

軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の
性能評価指針の技術的根拠と
高燃焼度燃料への適用性

Technical Basis of ECCS Acceptance Criteria for Light-water Reactors
and Applicability to High Burnup Fuel

永瀬 文久 成川 隆文 天谷 政樹

Fumihisa NAGASE, Takafumi NARUKAWA and Masaki AMAYA

安全研究・防災支援部門

安全研究センター

Nuclear Safety Research Center

Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

March 2021

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2021

軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針の技術的根拠と 高燃焼度燃料への適用性

日本原子力研究開発機構 安全研究・防災支援部門 安全研究センター

永瀬 文久、成川 隆文、天谷 政樹+

(2020年12月10日受理)

軽水炉においては、冷却系配管破断等による冷却材喪失事故 (LOCA) 時にも炉心の冷却可能な形状を維持し放射性核分裂生成物の周辺への放出を抑制するために、非常用炉心冷却系 (ECCS) が設置されている。ECCS の設計上の機能及び性能を評価し、評価結果が十分な安全余裕を有することを確認するために、「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針」が定められている。同指針に規定されている基準は 1975 年に定められた後、1981 年に当時の最新知見を参考に見直しが行われている。その後、軽水炉においては燃料の高燃焼度化及びそれに必要な被覆管材料の改良や設計変更が進められたが、それに対応した指針の見直しは行われていない。一方、高燃焼度燃料の LOCA 時挙動や高燃焼度燃料への現行指針の適用性に関する多くの技術的な知見が取得されてきている。本報告においては、我が国における指針の制定経緯及び技術的根拠を確認しつつ、国内外における LOCA 時燃料挙動に係る最新の技術的知見を取りまとめる。また、同指針を高燃焼度燃料に適用することの妥当性に関する見解を述べる。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4

+ 規制・国際情報分析室

Technical Basis of ECCS Acceptance Criteria for Light-water Reactors and Applicability to High Burnup Fuel

Fumihisa NAGASE, Takafumi NARUKAWA and Masaki AMAYA⁺

Nuclear Safety Research Center
Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 10, 2020)

Each light-water reactor (LWR) is equipped with the Emergency Core Cooling System (ECCS) to maintain the coolability of the reactor core and to suppress the release of radioactive fission products to the environment even in a loss-of-coolant accident (LOCA) caused by breaks in the reactor coolant pressure boundary. The acceptance criteria for ECCS have been established in order to evaluate the ECCS performance and confirm the sufficient safety margin in the evaluation. The limits defined in the criteria were determined in 1975 and reviewed based on state-of-the-art knowledge in 1981. Though the fuel burnup extension and necessary improvements of cladding materials and fuel design have been conducted, the criteria have not been reviewed since then. Meanwhile, much technical knowledge has been accumulated regarding the behavior of high-burnup fuel during LOCAs and the applicability of the criteria to the high-burnup fuel. This report provides a comprehensive review of the history and technical bases of the current criteria and summarizes state-of-the-art technical findings regarding the fuel behavior during LOCAs. The applicability of the current criteria to the high-burnup fuel is also discussed.

Keywords: LWR, LOCA, ECCS, Criteria, Review, Applicability, High Burnup Fuel, Cladding, Oxidation, Embrittlement

⁺ Office for Analysis of Regulatory and International Information

目次

1. 緒言	1
2. ECCS 性能評価指針制定の経緯、目的及び根拠	3
2.1 LOCA 時の燃料挙動の概要	3
2.2 現行基準及びその制定までの経緯	6
3. 指針見直しに向けた技術的課題	10
3.1 燃料の高燃焼度化とその影響	10
3.2 燃料棒の膨れ破裂挙動	12
3.3 被覆管高温酸化	13
3.4 ブレイクアウェイ酸化	15
3.5 被覆管脆化及び破断限界	16
3.6 燃料ペレット細片化、軸方向移動及び燃料棒外への放出	17
3.7 LOCA 後の長期炉心冷却性	18
4. 現行指針制定後に得られた主な知見	20
4.1 被覆管高温酸化速度	20
4.2 ブレイクアウェイ酸化	25
4.3 被覆管脆化	25
4.4 急冷時破断	28
4.5 燃料ペレット細片化、軸方向移動及び燃料棒外への放出	37
4.6 LOCA 後の長期炉心冷却性	38
5. 高燃焼度燃料に対する現行指針の適用性	43
5.1 基準(1)について	43
5.2 基準(2)について	44
5.3 基準(3)について	46
5.4 基準(4)について	46
5.5 継続的な検討が必要な課題	47
6. まとめ	49
参考文献	50
付録 A LOCA 基準見直しに関する国際動向	65
A.1 米国の動向	67
A.2 仏国の動向	70
A.3 独国の動向	72
付録 B English translation of the main part of report	77

Contents

1. Introduction	1
2. History, objective, and technical bases of the current Japanese ECCS acceptance criteria	3
2.1 Overview of fuel behavior under LOCA conditions	3
2.2 Current criteria and history	6
3. Technical issues for update of the criteria	10
3.1 Influence of burnup extension	10
3.2 Ballooning and rupture behavior of fuel rod	12
3.3 High-temperature oxidation of fuel cladding	13
3.4 Breakaway oxidation	15
3.5 Cladding embrittlement and fracture limit at quench	16
3.6 Fuel fragmentation, relocation and dispersal	17
3.7 Long-term core coolability after LOCA	18
4. Main findings obtained after prescription of current criteria	20
4.1 High-temperature oxidation rates of fuel cladding	20
4.2 Breakaway oxidation	25
4.3 Cladding embrittlement	25
4.4 Fracture of fuel cladding at quench	28
4.5 Fuel fragmentation, relocation and dispersal	37
4.6 Long-term core coolability after LOCA	38
5. Applicability of current criteria to high-burnup fuel	43
5.1 Regarding criterion (1)	43
5.2 Regarding criterion (2)	44
5.3 Regarding criterion (3)	46
5.4 Regarding criterion (4)	46
5.5 Issues for which continuous consideration is needed	47
6. Summary	49
References	50
Appendix A International trend in the revise of the regulatory guide against LOCA	65
A.1 Trend in the US	67
A.2 Trend in France	70
A.3 Trend in Germany	72
Appendix B English translation of the main part of report	77

1. 緒言

軽水型動力炉¹（以下、軽水炉）においては、想定される配管破断等による冷却材喪失時にも炉心の冷却可能な形状を維持することでこれを冷却し放射性核分裂生成物の周辺への放出を抑制するために、非常用炉心冷却系（Emergency Core Cooling System: ECCS）が設置されている。ECCS の設計上の機能及び性能を評価し、評価結果が十分な安全余裕を有するものとしそれを確認するために、原子力委員会は昭和 50 年（1975 年）に「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針」¹⁻¹⁾（以下、旧評価指針）を制定した。昭和 53 年（1978 年）に発足した旧原子力安全委員会は、旧指針を継続して用いるが最新の技術的知見を加えて逐次見直しを行うことを決定した。この方針に基づき、同委員会は、昭和 56 年（1981 年）に冷却材喪失事故（Loss-Of-Coolant Accident: LOCA）及び ECCS の動作に関する実験的、理論的研究の進展と解析技術の進歩を考慮し、基本的な考え方や基準は維持しつつ指針を見直し、「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針」¹⁻²⁾（以下、現行の ECCS 性能評価指針）を制定した。指針においては、想定される事故を解析し、燃料被覆温度の最高値（Peak Cladding Temperature: PCT）、燃料被覆の化学量論的酸化量、炉心で燃料被覆及び構造材が水と反応する際に発生する水素量、並びに崩壊熱の長期間除去に関する基準を満たすことを求めている。

指針に規定される基準が最後に見直されてから 40 年近くが経過したが、この間軽水炉燃料が置かれる使用環境、性能要求およびそれに対応する燃料技術は大きく変化している。燃料の使用環境における最も大きな変化は、使用済燃料発生量の低減と経済性向上を目的とした高燃焼度化である。高燃焼度化とは、燃料集合体 1 体当たりから取出す総熱量を増やすことである。高燃焼度化に伴って燃料の原子炉内滞在期間は長くなり、中性子照射によって燃料材料に生じる照射損傷の影響、冷却材との接触による被覆管の腐食量及び腐食に伴う水素吸収量の増大、ペレット中に生成及び蓄積する核分裂生成物量の増大、これらに伴う被覆管やペレットの特性変化等がより顕著になる^{1-3,4)}。これらの変化はしばしば燃料の性能劣化につながることから、高燃焼度化によっても一定の健全性及び安全性を確保するために、耐食性の高い被覆管材料の採用や燃料棒設計の変更が併せて行われてきている¹⁻³⁻⁷⁾。また、比較的低い温度でも起こり得る反応度事故での燃料破損挙動に高燃焼度化の影響が見出されたこと^{1-8,9)}を契機に、1990 年代になると高燃焼度化が LOCA 時の燃料挙動に及ぼす影響についても関心が高まり、各国において研究が開始された¹⁻¹⁰⁾。我が国においても国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）及び燃料メーカー等において、高燃焼度化の影響に関する基礎データとともに現行指針の高燃焼度燃料への適用性を確認するためのデータ及び知見が蓄積されてきている。

軽水炉燃料の高燃焼度化、それに対応した被覆管材料の改良と設計変更、並びに LOCA 時燃料挙動に関する最新知見の整備状況を考慮すれば、現行の ECCS 性能評価指針に規定されている基準の見直しの検討を行うことは可能であり、また最新知見を反映する必要があると考えられる。

¹ ECCS 性能評価指針の「用語の定義」において、「軽水型動力炉」とは、「動力源を得ることを主たる目的とする原子炉であって、通常の水を減速材及び冷却材とし、少量のプルトニウムを含有するものを含む二酸化ウランペレットをジルカロイ製の被覆管に封入した燃料を用いるもの。具体的には、加圧水型（PWR）及び沸騰水型（BWR）原子炉を指す。」とされている。

実際、軽水炉の LOCA 時の安全性に関する規制基準（以下、LOCA 基準）に関して、米国、仏国等において高燃焼度化等に対応した基準の改訂が進められている^{1)11~13)}。本報告においては、我が国における現行の ECCS 性能評価指針制定の経緯及び基準の根拠を確認しつつ、国内外における LOCA 時燃料挙動に係る最新の技術的知見を取りまとめ、同指針を高燃焼度燃料に適用することの妥当性についての見解を述べる。

2. ECCS 性能評価指針制定の経緯、目的及び根拠

2.1 LOCA 時の燃料挙動の概要

軽水炉の安全設計の妥当性は、「運転時の異常な過渡変化」と「設計基準事故」について、規制当局が判断基準に基づき行う審査を通して確認される²。「設計基準事故」に関しては、炉心が著しい損傷に至らず冷却可能な形状が保たれることや、周辺の公衆に対し著しい放射線被ばくのリスクを与えないことが要求される。「設計基準事故」は、発生頻度は低いものの安全評価上、工学的な観点から想定される事象であり、安全設計の基準になることから、「設計基準事故 (Design Basis Accident: DBA)」と呼ばれている。代表的な設計基準事故として、原子炉冷却系の配管等が破損し冷却水が失われる LOCA と制御棒の飛び出しなどの原因により原子炉出力の暴走を生じる反応度事故 (Reactivity-Initiated Accident: RIA) がある。LOCA に対する工学的安全施設として軽水炉には ECCS が設置されており、規制当局における審査においては、現行の ECCS 性能評価指針を用いて、「ECCS の作動により LOCA 時の炉心冷却が確保できる設計であること」に係る妥当性の評価が行われる。

DBA としての LOCA は、配管の破断規模で大、中、小破断 LOCA に分類される。大口徑配管が瞬時に破断するような大破断 LOCA の場合、事象の進展過程は大まかにブローダウン過程、リフィル及び再冠水過程に分類される。ここでは、PWR の例をとり、各過程で起こる現象を簡単に解説する。

Fig. 2-1 に PWR の大破断 LOCA 時のプラント状態の概念図を、Fig. 2-2 に解析的に予想される大破断 LOCA 時の燃料棒表面温度の変化と燃料挙動の例をそれぞれ示す。大破断 LOCA では破断口から高温高圧水が噴出し、「ブローダウン」が始まる。配管破断の検知により炉心には制御棒が速やかに挿入されて未臨界となるが、その後も燃料内部に蓄積された核分裂生成物 (FP) の崩壊による発熱 (崩壊熱) は続く。燃料に蓄えられた熱や崩壊熱の発生、及び炉心の冷却能力の低下により燃料棒温度は上昇し始める。一次冷却系の圧力は初め急速に飽和圧力付近まで低下し、その後は一次冷却系内部の沸騰によりやや緩やかに低下する。炉心部では、減圧沸騰により冷却材の流れは複雑に変化するようになる。この間、核沸騰からの離脱やリウエットにより炉心冷却の劣化あるいは促進が繰り返し生じ、燃料被覆管の温度は複雑に変化するが、さらに冷却材の流出が進むと炉心部を通る冷却材が少なくなり、蒸気雰囲気となって燃料被覆管の温度は再び上昇に転ずる。

² 原子力規制委員会は、「実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則」(平成 25 年 6 月 28 日公布)において基本的な要件を示すとともに、同規則の解釈において、運転時の異常な過渡変化及び設計基準事故に対する解析及び評価を「発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針」等に基づいて行うこととしている。

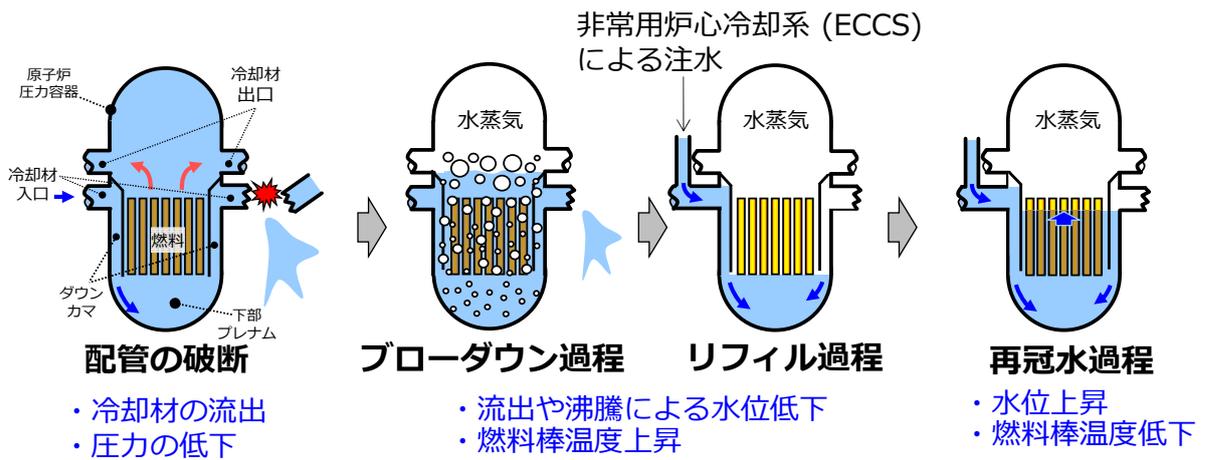


Fig. 2-1 PWR の大破断 LOCA 時のプラント状態の概念図

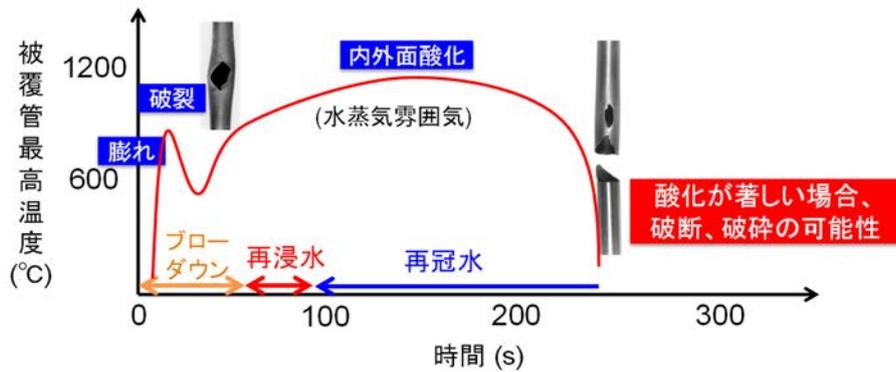


Fig. 2-2 大破断 LOCA 時の燃料被覆管の温度変化と挙動の例

ブローダウン中は破断口に向かって激しい流れが生じ、特にダウンカマ部では上向流が生じて、ECCS から注入された冷却材が下部プレナムに落下するのが妨げられる (ECCS 水のバイパス)。時間が経つにつれて破断口への上向流が弱くなり ECCS 水は落下を始める (バイパス終了)。その後、ECCS 水は落下を続け下部プレナムを満たし、やがて炉心に浸入する。このバイパス終了から下部プレナム満水までの期間を「リフィル期間」と呼び、これ以降を「再冠水過程」と呼ぶ。一次系圧力は徐々に下がり格納容器内圧力に近づく。冷却能力の低下により高温になっていた燃料棒は、再冠水過程では、炉心に侵入した水と生じた蒸気との二相流により冷却され始める。燃料棒の温度上昇が止まることを「ターンアラウンド」と呼ぶ。以後燃料棒温度は下降し、しばらくして飽和温度付近まで急速に低下する。この温度の急下降を「クエンチ」という。

一次系の破損により相対的に燃料棒内圧が一次系圧力より高くなる。また、ブローダウン後の温度上昇により燃料被覆管の強度が低下する。燃料棒温度の上昇や内外圧力差は燃焼度、事故シークエンス等により変化するが、両者が一定の条件を超えると燃料棒は膨れ、破裂する。軽水炉においては、中性子経済や耐食性の観点からジルコニウム合金が燃料被覆管として使用されており、この材料からなる被覆管は、LOCA 時の燃料の昇温速度、初期内圧等に依存するものの概ね

700–1000℃において破裂すると予想される。また、破裂時の膨れ量（周方向歪み量）も破裂時の温度、昇温速度、通常運転中に被覆管に吸収された水素濃度等の条件に依存して変化することが知られている^{2-1,2)}。

ジルコニウムは通常運転時の冷却材条件での耐食性が比較的高く、適切な種類及び量の合金元素添加や製造時の熱処理によりさらに耐食性が高められている。一方で、酸素や水素に対して非常に活性な元素であり、周囲が水蒸気雰囲気の場合、事故時の温度上昇に伴い酸化反応が急速に進行するとともに水素を発生する。後述するように、高温水蒸気中で酸化したジルコニウム合金被覆管においては表面に酸化膜層が成長し、肉厚内部では酸素や水素の吸収が進む。酸化に伴う金属部分の肉厚減少と酸素や水素の吸収により被覆管の延性は低下するが、著しい酸化により被覆管が脆化した場合には、再冠水過程のクエンチ時に被覆管内部に生じる熱応力や外部応力により燃料棒の破断や破砕が起こる可能性がある。

ECCS の性能が十分であることを確認するため、解析を行うことが安全評価において求められる。例えば、現行の ECCS 性能評価指針においては、破断口に関する解析条件が以下のように定められている。

(1) 破断口の位置

破断口は配管等の任意の 1 箇所に生ずるものとする。ただし、配管等の口径、接続位置、冷却材の径路にある各種の機器等を考慮して、いくつかの代表的な部分に分類し、それぞれの部分について破断を仮定することは妥当と認める。

(2) 破断口の体様

破断口の体様は両端破断及びスプリット破断とする。ただし、破断口面積、当該配管等の接続位置、破断口へ向う冷却材の径路等から、いずれか一方の体様を考察すれば十分であることが示されれば、他の体様についての解析は省略してよい。

(3) 破断口的面積

破断口的面積は、破断を想定する配管等の流路断面積の 2 倍を上限とし、冷却材の流出量が、補給水系の補給容量となる面積を下限とする。ただし、上限については、上記の値を取る必要がないことが示された場合はこの限りでない。

(4) 破断口よりの冷却材の流出

破断口からの冷却材の流出量を計算する相関式又は理論式、並びにこれを適用する際の原子炉冷却系のモデル化の方法は、実験データとの比較によってその妥当性が示されなければならない。これらの式の使用に際して用いられる係数等については、解析の不確実性を考慮して、解析の範囲に適切な余裕が確保できるように選定しなければならない。

(5) 破断スペクトル

解析の結果、基準に照らして最も厳しいものとなる破断条件が明らかになるように、破断口の位置、体様ごとに、破断面積を変化させた解析結果を示さなければならない。ただし、解析結果の傾向が一致すると思われる類似の原子炉についての解析結果があれば、これをもって代えることができる。

旧評価指針においては、概ね大破断 LOCA を念頭に制定されていたが、中小破断 LOCA のリスク上の重要性に関する指摘^{2,3)}及びスリーマイル島原子力発電所 2 号炉 (TMI-2) での事故を考慮し、現行の ECCS 性能評価指針においては、上記のように中小破断 LOCA への要求も明確化されている。中小破断 LOCA においては、事故の経過時間が大破断 LOCA に比べ長くなり、減圧および注水の操作や有効性が破断口の位置や大きさ等により変化するため、事象の進展過程を大破断 LOCA のように分類、定義することは容易でないが、上述した燃料棒の膨れ及び破裂、被覆管の高温酸化及び脆化、並びに脆化が著しい場合の急冷時の破断及び破砕以外の現象は起こりにくいと考えられる。

2.2 現行基準及びその制定までの経緯

現行の ECCS 性能評価指針は、LOCA 時にも炉心の冷却可能な形状を維持しつつ事故を収束させる機能及び性能を ECCS が有していることを確認するため、LOCA を想定した解析を行い、次の基準を満足することを示すよう求めている。

- (1) 燃料被覆の温度の計算値の最高値は、1,200°C 以下であること。
- (2) 燃料被覆の化学量論的酸化量の計算値は、酸化反応が著しくなる前の被覆管厚さの 15% 以下であること。
- (3) 炉心で燃料被覆及び構造材が水と反応するに伴い発生する水素の量は、格納容器の健全性確保の見地から、十分低い値であること。
- (4) 燃料の形状の変化を考慮しても、崩壊熱の除去が長期間にわたって行われることが可能であること。

ここで、「燃料被覆の化学量論的酸化量の計算値」とは、「被覆管が水や水蒸気と反応し吸収されるすべての酸素が化学量論的な ZrO_2 を生成すると仮定した場合に、酸化物に置き換わると計算される被覆管金属の厚さ」を意味する。この燃料被覆の化学量論的酸化量の計算値は、英語表記である **Equivalent Cladding Reacted** に基づき **ECR (値)** と呼ばれる。

また、同指針では、解析に当たっての要求事項として以下が挙げられている。

- 流体の挙動に関する流路形状の変化について、被覆管の変形等により、事故過程中に流路の形状が変化することが解析で予測される場合には、その影響を実験に基づいて考察しなければならない。実験データが十分でない場合には、基準に照らして厳しい結果となるような仮定を設けなければならない。
- 熱源となる金属-水反応による発熱について、被覆管の金属-水反応の反応速度及び反応熱は、実験との比較により妥当性の示し得る値を選ばなければならない。被覆管が破裂すると計算される場合には、その時点以降破裂箇所近傍の内面も反応するとしなければならない。反応は、蒸気の供給不足により制限されることがないものとしなければならない。
- 燃料棒の挙動を解析するために用いられる各種物性値については、燃焼に伴う変化も含めて、信頼性の高いものが選ばれていることを示さなければならない。また、ジルカロイと水との反応による被覆管酸化量の計算は、いわゆる **Baker-Just** の式^{2,4)}により計算し、蒸気の供給に制限がないものとする。被覆管が破裂すると計算される場合には、そ

の時点以降破裂個所近傍の内面も反応するとしなければならない。反応は蒸気の供給不足により制限されることがないものとしなければならない。

なお、同指針においては、使用される燃料被覆管の材質としてジルカロイが挙げられているが、同指針の「位置づけと適用範囲」においては、「本指針の基本的考え方は、次の炉型の ECCS の設計上の機能及び性能の評価に準用することができる。(1) ジルカロイ製以外の被覆管の燃料を用いる軽水減速軽水冷却型原子炉。(2) 軽水又は重水冷却圧力管型原子炉。」とされている。ジルカロイとは、ジルコニウム—スズ合金を基本とし、鉄、クロム、ニッケル等を添加したものである。従来、BWR においてはジルカロイ-2³ (Zry-2) が、PWR においてはジルカロイ-4⁴ (Zry-4) が使われてきた。現在は、ジルカロイの規格を超えた合金組成を持つ MDA (Zr-0.8Sn-0.21Fe-0.1Cr-0.5Nb)²⁻⁵⁾、NDA (Zr-1.0Sn-0.27Fe-0.16Cr-0.01Ni-0.1Nb)²⁻⁶⁾、ZIRLO (Zr-1.0Sn-1.0Nb-0.1Fe)²⁻⁷⁾を用いた被覆管も国内で実用化されている。

我が国に先立ち、米国において 1973 年に ECCS 性能評価指針が制定された^{2-8,9)}。制定時にはそれまでに得られていた実験データを参考にしたが、主な根拠としたのは Hobson 及び Rittenhouse が行った実験^{2-10,11)}の結果である。彼らは、927–1315°Cにおいて Zry-4 被覆管を両面から酸化し急冷した後に 20–150°Cでリング圧縮試験を行い、試験温度と酸化量（実際には酸化しなかった金属肉厚）の相関上にリング圧縮試験で得られた被覆管の延性 - 脆性遷移境界条件を示した。他のいくつかの実験データ^{2-12,13)}も考慮すれば、1204°C (2200°F) 以下の温度範囲では、Baker–Just の酸化速度式²⁻⁴⁾を用いて計算した酸化量相当で 17%ECR を超えると脆化する (zero ductility) と判断された。一方、1204°C (2200°F) を超えた温度範囲では被覆管脆化と酸化量の対応が不明確であったことから、被覆管の延性を保証できる酸化量の限界を見いだすことが出来なかった。なお、約 1200°Cを超える温度ではジルカロイ中の固溶酸素濃度が急激に増大するため、短時間の酸化によっても被覆管が脆化しやすいことがその後の研究²⁻¹³⁾で明らかとなっている。

米国において 1973 年に ECCS 性能評価指針が制定された際には、事故時及び事故後に燃料棒に加わる負荷に関する議論も行われている。当時の結論として、クエンチ時の熱衝撃より大きな負荷が事故時から事故後の取り扱い時に掛かるか否か、またその負荷がどのくらいになるかが判断できないことから、リング圧縮試験という比較的厳しい負荷条件で得られた被覆管の延性 - 脆性遷移境界条件を根拠とした 2 つの基準（脆化基準）を含む以下の 5 つの基準を制定することとなった。

(1) 燃料被覆管最高温度

燃料被覆温度の計算上の最高値は 2200°F (1204°C) を超えないこと。

(2) 燃料被覆管の最大酸化量

被覆の全酸化量の計算値はどの位置においても酸化前の被覆厚さの 17%を超えないこと。

(3) 最大水素発生量

³ 合金成分 Sn: 1.20–1.70, Fe: 0.07–0.20, Cr: 0.05–0.15, Ni: 0.03–0.08 (wt%)

⁴ 合金成分 Sn: 1.20–1.70, Fe: 0.18–0.24, Cr: 0.07–0.13, Ni: < 0.007 (wt%)

冷却材あるいは水蒸気との化学反応により生じる水素の総量の計算値が、プレナム体積部を除く燃料被覆管の全てが酸化したと仮定して生じる量の1%を超えないこと。

(4) 冷却可能形状

解析的に示される炉心形状の変化は、炉心が冷却され続けられるものであること。

(5) 長期冷却性

ECCSの初期作動が成功裏に行われた後も、炉心温度が許容できる程度に低いままであり、炉心に残った長寿命放射性核種からの放射能を考慮した長い期間に渡り崩壊熱を除去できることが解析的に示されること。

上記(1)及び(2)は被覆管の脆化基準であり、燃料被覆管の延性が極度に失われることがなければ燃料棒が大きく破損することはなく炉心は冷却可能な形状を維持し続け、輸送も含めた事故後の様々な状況での負荷にも耐えられるという安全側の立場から定められたものである。

米国で上記のような指針が制定された後、世界各国でこれをほぼ踏襲する形で指針が定められた。我が国においては、米国における検討と同時期に指針に関する検討が始まり、1972年の経済協力開発機構／原子力機関（OECD/NEA）での議論に参加して、最高温度だけでなく酸化量についても基準を設けるべきだとの提案を行っている²⁻¹⁴。指針制定は米国より若干遅れたが、我が国でも1975年に旧評価指針²⁻¹⁵が制定された。この指針では、米国同様、炉心の冷却可能形状を維持することを保証するため、被覆管の延性を維持することを目的とし、それまでに得られた知見を総合的に評価し、「被覆最高温度 1200℃以下、化学量論的酸化量 15%以下」の基準が設定された。酸化量に関する制限値が米国の制限値より2%低くなっている主な理由は、実験の精度と信頼性を考慮し参考データに相対値として10%程度の余裕を持たせたためであり²⁻¹⁴、また被覆管の脆化に対する冷却速度の影響の不確かさ、すなわち当時多くの実験が採用した酸化温度からの急冷に比べ、商用炉で予想されるような徐冷期間を経て急冷される方が被覆管の延性低下が顕著となる可能性を指摘した研究結果²⁻¹⁶を考慮したためである²⁻¹⁷とされている。

1981年には、旧評価指針を改訂する形で現行のECCS性能評価指針²⁻¹⁸が制定された。この指針改訂においては、事故時に被覆管に掛かる荷重とリング圧縮試験の対応は不明確であること、LOCA時に破裂開口を生じた被覆管の内面酸化に伴う水素脆化が新知見として見出されたこと、などが考慮され、被覆管の破裂や被覆管への負荷を含め、LOCA時の現象をできる限り模擬した急冷破断試験の結果に基づき、酸化後に急冷される被覆管の破断限界の観点から検討が行われた。その結果、「旧指針の基準は水素脆化や急冷時の負荷を考慮しても、なお安全余裕を含むものであり、当面、この基準を維持するのが妥当である」との判断に至った。すなわち、急冷破断試験結果に基づき、「被覆管の延性維持のために定めた旧基準はLOCA急冷時の被覆管破断限界に係る判断基準としても妥当である」との判断がなされた。

上記の急冷破断試験においては、短尺の模擬燃料棒を使用して、これをブローダウンからリフイルに至る水蒸気雰囲気での高温遷移及び冠水によるクエンチといったLOCA条件に曝す²⁻¹⁹。この試験により、酸化温度と時間、急冷時の軸方向拘束条件、等をパラメータとして急冷時に被覆管が破断に至る条件（破断限界）を決定することができる²⁻²⁰。この試験では、燃料被覆管の膨れ及び破裂、並びに高温での酸化のみならず、破裂後の水素吸収や急冷時の負荷等、LOCA時に

燃料被覆管に生じる現象を可能な限りで再現していることから、上記の指針改訂において参考とされた。具体的には、上塚らが行った未照射被覆管を用いた急冷破断実験により、燃料棒両端を拘束したままクエンチする非常に厳しい負荷条件においても、被覆管の破断は化学量論的酸化量約 19%未満では起こらないことが示された²⁻¹⁹⁾。この急冷破断試験において決められる被覆管の破断限界に係る基準は、リング圧縮試験により求められる被覆管の延性 - 脆性遷移境界条件を基に決められるもの（脆化基準）に対して、酸化した被覆管の急冷時の熱応力及び機械荷重に対する耐力に基づくもの（強度基準）であると言える。

3. 指針見直しに向けた技術的課題

3.1 燃料の高燃焼度化とその影響

産業界は軽水炉の高度利用（高燃焼度化、出力増大、長サイクル運転）を目指してきた。このうち、高燃焼度化はウラン資源の有効利用、使用済燃料発生量の低減、及び経済性向上の観点からメリットがあり、燃料技術の開発・改良、及び設計の変更を重ねながら徐々に進められてきた³⁻¹⁾。現在の二酸化ウラン燃料の燃焼度規制値は燃料集合体最高燃焼度⁵⁾で 55 GWd/t となっている。現在の ECCS 性能評価指針が制定された当時の燃焼度制限値は燃料集合体最高燃焼度で 40 GWd/t 未満であり³⁻³⁾、今日までの燃焼の延伸は大きなものとなっている。

高燃焼度化に伴い燃料棒内には様々な現象や特性の変化が生じる（Fig. 3-1）。被覆管に起こる主な変化は、中性子照射量の増大に伴う被覆管や燃料ペレット中の照射損傷の蓄積、冷却材や二酸化ウランとの接触による腐食量の増大及び水側腐食に伴う水素吸収量の増大である。運転条件、燃料棒軸方向位置などに依存するが、従来のジルカロイ被覆管の場合、燃料集合体最高燃焼度で 50 GWd/t を超えると腐食に伴う酸化膜の厚さが 100 μm を超えることがある³⁻⁴⁾。被覆管の肉厚は、BWR の場合 0.70–0.86 mm、PWR の場合 0.57–0.62 mm であるから、100 μm の腐食は被覆管肉厚の 10%程度が減少したことに相当する。腐食に伴い発生した水素のうちの一部 (<20%) は被覆管に吸収され、燃料集合体平均燃焼度で 50 GWd/t を超える高燃焼度従来型ジルカロイ被覆管では 800 ppm 程度まで水素濃度が増大することが報告されている³⁻⁵⁾。ジルカロイ被覆管に固溶できる水素の量は室温では 0.1 ppm より少なく、300°Cでも約 60 ppm である³⁻⁶⁾。したがって、高燃焼度燃料被覆管では、原子炉停止中には吸収された大部分の水素が、また通常運転条件でも高い割合の水素がジルコニウム水素化物として被覆管中に析出する。水素化物は温度の低下に伴い延性が低下し、室温付近では脆性を示す³⁻⁷⁾。このため、比較的低い温度では水素を吸収した被覆管の延性は低下する^{3-8,9)}。

⁵⁾ 燃料集合体最高燃焼度とは最も良く燃焼させた集合体一体当たりの平均燃焼度である。ペレット単位ではより高い燃焼度になっている箇所があり、保守的な評価であるが、燃料集合体最高燃焼度 55 GWd/t に相当する燃料棒最高燃焼度（標準燃料棒）は BWR で 66 GWd/t、PWR で 61 GWd/t、ペレット最高燃焼度は BWR で 75 GWd/t、PWR で 71 GWd/t になると評価されている³⁻²⁾。

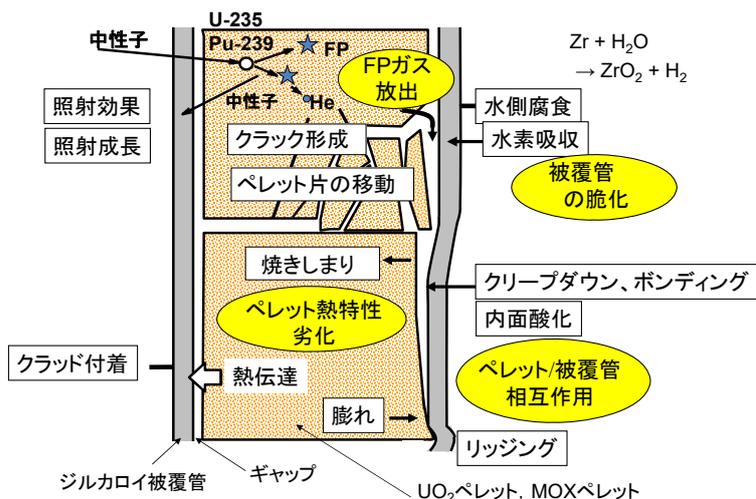


Fig. 3-1 高燃焼度化に伴い燃料棒内に生じる現象及び特性の変化

LOCA 時には、燃料の温度上昇に伴い被覆管は水蒸気中で酸化（酸化膜の形成と金属相への酸素拡散と濃度増大）し、酸化が著しい場合には脆化する。これらの LOCA 時の燃料挙動に対して、燃料の高燃焼度化が及ぼす影響について注意を払う必要がある。例えば、固溶した水素がジルコニウム合金における強度低下、酸素の固溶度及び拡散速度の増大を引き起こすことが報告されている³⁻⁷⁾。水側腐食に伴う表面酸化膜の形成及び水素吸収が、高温水蒸気中での酸化とそれに伴う脆化に及ぼす影響についても知見を取得する必要がある。規制の観点では、Fig. 3-1 に見られる様々な現象やそれによる燃料特性の変化を考慮しながら、燃料被覆管の膨れ破裂挙動評価モデル、酸化速度評価式、及び被覆管脆化に関する基準（1200℃、15%ECR）を高燃焼度燃料被覆管に適用することの妥当性を確認することが重要である。

軽水炉の高度利用を達成しようとする、燃料にはより高い性能と使用期間におけるその維持が要求される。燃料の健全性に大きな影響を与え燃料の寿命を決定する主な因子のひとつが、被覆管の水側腐食である。そのため、電力事業者及び燃料メーカーは、長年使用してきたジルカロイの代替材料として、耐食性を向上させた被覆管材料の開発を継続的に進めてきた。例えば PWR においては、MDA³⁻¹⁰⁾、NDA³⁻¹¹⁾、ZIRLO³⁻¹²⁾といったジルカロイの規格に必ずしもこだわらないジルコニウム合金の導入が進められ、耐食性及び低水素吸収特性を更に向上させるべく大幅に組成を変えた新合金（M-MDA、J 合金、等）の開発も行われている^{3-13~15)}。海外では M5（Zr-1.0Nb）³⁻¹⁶⁾ や Optimized-ZIRLO³⁻¹⁷⁾が広く導入されている。現行の ECCS 性能評価指針の「位置づけと適用範囲」の記載によれば、被覆管の材質についてはジルカロイに限定されていないが、合金成分がジルカロイと大きく異なる場合には、その成分変更が被覆管の LOCA 時挙動（高温酸化速度、被覆管脆化、急冷時破断限界等）に影響を及ぼすか否かについても確認する必要がある。

同指針では、炉心の冷却可能形状を維持することを目的に被覆管の著しい脆化を防止するための基準が示されている。つまり、被覆管の挙動のみに着目している。しかし、後述するように高燃焼度燃料では被覆管内における燃料ペレットの細片化、細片化したペレット片の移動、膨れ破裂に伴う燃料棒外へのペレット片の放出等が起こる可能性がある³⁻¹⁸⁾。被覆管の膨れに伴い燃料ペレット片が燃料棒内で移動すれば燃料棒内での発熱に偏りが生じ PCT に影響を及ぼす可能性

がある。また、細片化した燃料ペレット片が被覆管の破裂開口から放出されれば、特定位置で堆積することによる冷却材の流路閉塞や燃料の冷却不全などが生じる可能性がある。したがって、従来、研究の多くが被覆管の挙動に焦点を当ててきたが、今日では燃料ペレット挙動が LOCA 時の安全性に及ぼす影響についても把握する必要が生じている。

3.2 燃料棒の膨れ破裂挙動

一次系の配管破断等により原子炉圧力容器内の圧力が大きく低下した場合、燃料棒の内圧が外圧を上回ることがあり得る。また、温度の上昇によって被覆管の強度が低下するため、燃料棒が膨れ、破裂する可能性がある。燃料棒の膨れにより冷却材流路面積が減少し、炉心の冷却性が低下する可能性が指摘された。このため、1970年代から80年代に我が国及び欧米において単一燃料棒及び模擬燃料集合体を用いて LOCA 時の燃料棒の膨れ破裂挙動、及び流路面積の減少とそれによる冷却性の低下が評価された³⁻¹⁹⁻²⁷。Fig. 3-2 に原子力機構で実施した模擬燃料集合体の破裂試験の結果の一例として、膨れ破裂した模擬燃料集合体及び燃料被覆管の外観を示す³⁻²⁸。これらの研究によれば、流路減少は保守的に見積もっても90%程度であること、流路減少が90%に達した場合にも炉心は冷却されること、照射の影響は小さいこと等が確認されている。最近、仏国放射線防護・原子力安全研究所 (IRSN) は、膨れが軸方向に長くなった場合には冷却性の低下が大きくなること、これに及ぼす高燃焼度化の影響が不明であることを報告している³⁻²⁹が、一般的には現在においても安全上の課題とは認識されていない。

ジルコニウム合金被覆管の破裂温度や破裂時の膨れ量といった挙動は、事故発生直前の燃料棒の内圧、事故時の燃料の昇温速度等に基本的に依存する。一定の燃料棒内圧及び昇温速度では、被覆管の膨れ量（被覆管周長の増大）は破裂時の温度に依存し、ジルコニウムの結晶構造が α/β （ $\alpha+\beta$ ）相境界近傍や β 相領域の低温側で比較的大きい。燃料棒の内圧を高くすれば破裂温度は低下し、燃料棒の昇温速度を増大させれば破裂温度は上昇する³⁻²¹。膨れ及び破裂に関する解析モデル^{3-30,31}は、このような燃料棒内圧、昇温速度等に依存し破裂温度や膨れ量に関する実験データに依拠して構築されているが、多くの実験データは未照射被覆管を用いたものである。最近、酸化による被覆管肉厚減少や水素吸収による相変態温度の変化が膨れ量と破裂温度の関係に及ぼす影響も報告されており³⁻³²⁻³⁴、高燃焼度化が膨れ破裂挙動に及ぼす影響についてレビューを行い安全性や安全評価手法への影響について検討することも重要である。

既に述べたように、高燃焼度燃料では、被覆管の膨れ破裂時に、細片化したペレットが燃料棒軸方向に移動して膨れ位置に集積したり、燃料棒外に放出されたりする可能性がある。被覆管の膨れ位置へのペレット集積による被覆最高温度の上昇や燃料棒外へのペレット放出量の評価を行うためには、被覆管の膨れ破裂挙動をより精度高く予測するための知見を取得する必要がある。

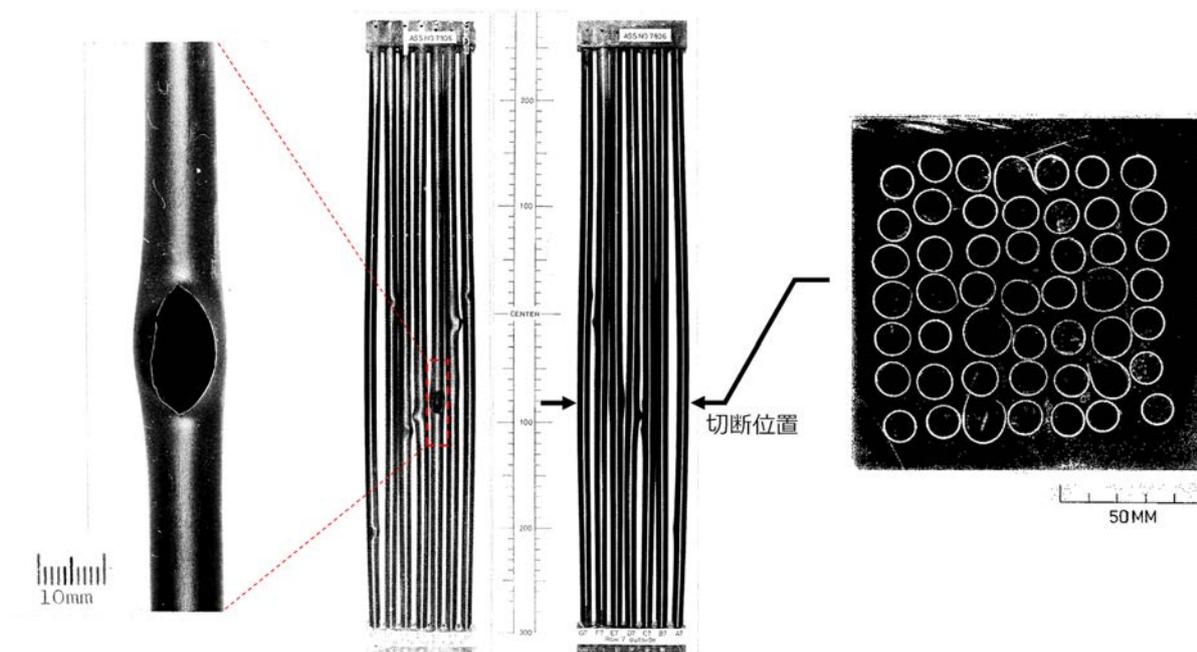


Fig. 3-2 膨れ破裂した燃料集合体及び燃料被覆管の外観 (3-28)

3.3 被覆管高温酸化

LOCA 時の燃料形状維持は被覆管の酸化量を指標として判断されることから、高温水蒸気中における被覆管の酸化挙動及び酸化速度に関する知見は重要である。ジルカロイの酸化速度については 1980 年代を中心に広く研究され、1000–1200°C の範囲について信頼性の高いデータが得られ、反応速度式が求められている (Fig. 3-3) (3-35–38)。Cathcart–Powel 及び川崎らのデータが最も信頼性が高いと言われている。一方、Baker–Just 式はジルコニウムの融点直下で得られた実験データを基に、低温側に内挿を行い得られた速度式であり、従来研究の中で最も大きな酸化量を与える。すでに述べたように、現行の ECCS 性能評価指針に規定されている基準 (PCT 1200°C、酸化量 15% ECR) は、未照射のジルカロイ被覆管に対する実験結果に基づき定められた脆化基準と密接に関係しており、酸化量に係る基準 (15% ECR) については Baker–Just 式を用いて計算した値である。他の酸化速度評価式を使用する場合は、Baker–Just 式に基づく基準値 (15% ECR) を補正する必要がある。例えば、Baker–Just 式で計算される 15% ECR に相当する酸化量を Cathcart–Powel 式で計算すれば、1000°C において 13.4% ECR、1100°C において 12.4% ECR、1200°C において 11.5% ECR となる。Baker–Just 式については、その他の式に比べて大きな酸化量を与えることから、実際の酸化反応に対しても保守性を有していると言われるが、高温水蒸気中における改良被覆管合金や高燃焼度燃料被覆管の酸化速度に関連する知見も近年蓄積されてきていることから、LOCA 解析において Baker–Just 式を使用することの科学的合理性について、再度確認する必要がある。

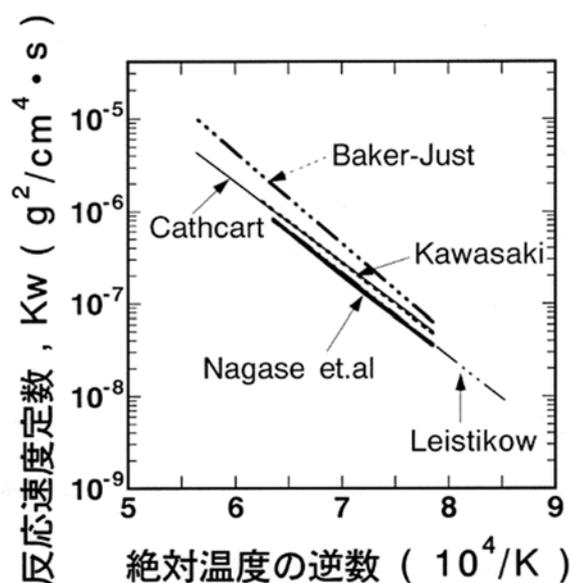


Fig. 3-3 ジルカロイ-水蒸気酸化反応速度定数の温度依存性

通常運転時と LOCA 時に形成される酸化膜はいずれも二酸化ジルコニウム (ZrO_2) であるが、その特性は酸化膜の生成条件 (温度及び雰囲気) の違いに依存して異なる。通常運転時の腐食に伴う被覆管金属相への酸素拡散は被覆管外表面近くに限られ、被覆管内部の酸素濃度は LOCA 条件に比べて低いのに対し、LOCA 時の高温水蒸気中酸化では急速な酸化膜形成とともに肉厚中央の金属部でも酸素濃度が上昇する。被覆管の酸化は表面からの酸素の拡散に支配されているため、比較的低温で形成された腐食酸化膜は、高温水蒸気中酸化に対して保護効果を有すると考えられる。また、酸素の拡散や金属相への溶解度は腐食に伴って吸収された水素により影響を受ける可能性がある。高燃焼度化をはじめとする軽水炉の高度利用に対応するため、組成や製造時条件を変更し耐食性を向上させた改良合金燃料被覆管の開発が進められてきたが、通常運転時の腐食及び水素吸収の影響と併せて、被覆管に加えられた種々の改良が LOCA 時の酸化挙動に及ぼす影響を評価することが重要である。

LOCA 時の酸化量評価において、腐食により予め被覆管表面に形成されていた酸化膜をいかに考慮するかについては以下の 2 つの考え方があるが、我が国においては明確に決められていない。一つは、腐食と LOCA 時の酸化とを合算して初期 (製造時) の被覆管肉厚に対する酸化割合を評価する方法であり、もう一つは、腐食せず残った被覆管金属部厚さを基準として LOCA 時の酸化割合を評価する方法である。欧米においては前者の考え方が多いが、腐食が LOCA 時の酸化及び酸化後の被覆管脆化に及ぼす影響を検討した上で合理的に判断されるべきものである。

水蒸気が燃料棒周辺を流れる条件で被覆管外表面が酸化される場合には、酸化に伴い発生した水素は被覆管に吸収されにくいことが知られている。一方、破裂後に開口部から侵入した水蒸気により被覆管内面が酸化される場合は、発生した水素が燃料棒内部に滞留するため、燃料棒軸方向の水蒸気/水素分圧に依存した、局所的な水素吸収が被覆管に生じる。具体的には、破裂開口近傍では被覆管内面に酸化膜が形成されていること及び水蒸気分圧が高いために水素の吸収は起

こりづらく、破裂開口から数 10 mm 離れた位置で被覆管の局所的な水素吸収が生じこれに伴う脆化が起こる^{3-39,40)}。この「内面酸化」現象は、1981年の指針見直しの際に参考とされたが、関連する試験はいずれも未照射被覆管を用いたものである。高燃焼度まで燃料を使用した場合、ペレットと被覆管の癒着（ボンディング）が生じ、二酸化ウランの酸素拡散により被覆管内面の酸化が進む傾向にあり、このような被覆管内面の状態変化は LOCA 時の内面酸化及びそれに伴う水素吸収に影響する可能性がある。

3.4 ブレイクアウェイ酸化

ジルコニウム合金被覆管が水蒸気雰囲気中において特定の温度で比較的長い時間酸化されると、酸化速度が急激に増大するブレイクアウェイ酸化が起こる³⁻⁴¹⁻⁴³⁾。ジルカロイについては 1000°C において約 3600 s 後にブレイクアウェイ酸化が開始するが、1050 あるいは 950°C においては起こりにくい (Fig. 3-4)³⁻⁴³⁾。500–800°C においてもブレイクアウェイ酸化が起こるが、1000°C に比べて長い時間経過後に開始し、開始時間と酸化速度の変化量は温度によって様々である。平衡状態では酸化膜 (ZrO₂) は約 1000°C で単斜晶から正方晶に相変態する。非平衡ではこれより低い温度で相変態が起こる。また、酸化物は金属に比べて密度が低く、酸化膜と金属の界面近傍では酸化物には圧縮応力が生じ、この応力によっても相変態温度が変化する。ブレイクアウェイ酸化はこのような酸化膜の不安定な相状態に基づくものと考えられ、酸化膜の外表面は白色でありその断面には多くの周方向クラックが見られる。なお、ブレイクアウェイの発生条件は、被覆管の合金組成、表面状態等にも依存することが知られている³⁻⁴²⁾。現行の ECCS 性能評価指針においては、燃料被覆管の酸化量の評価に Baker–Just 式³⁻³⁵⁾を使用することを認めているが、ブレイクアウェイ酸化が発生した場合、Baker–Just 式は保守性を失う。さらに、ブレイクアウェイ酸化に伴い、被覆管中に高濃度の水素が吸収され脆化する^{3-42,44)}。ジルコニウム合金においてブレイクアウェイ酸化が起こる温度–時間条件は、既存の軽水炉での LOCA 時に予想される範囲にはないが^{3-45,46)}、上記の理由により規制基準への反映については注意深く検討する必要がある。

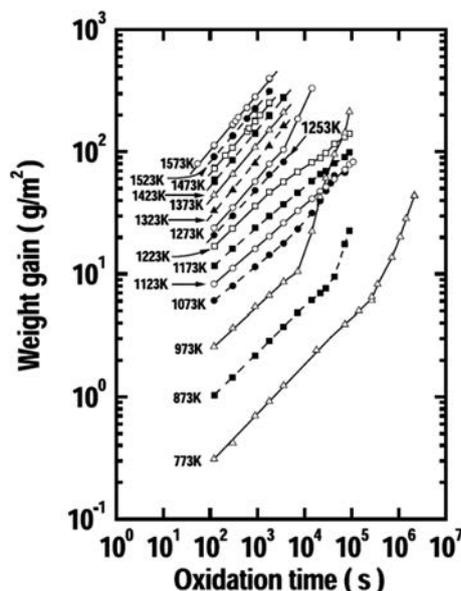


Fig. 3-4 773–1573 K の温度で酸化した低スズ Zry-4 被覆管の重量増加の温度依存性³⁻⁴³⁾

3.5 被覆管脆化及び破断限界

LOCA 時の被覆管脆化は、基本的に高温水蒸気中での酸化に伴う金属相への酸素拡散と酸化膜の形成（金属部の肉厚減少）によって起こる。しかし、先に述べたように高燃焼度燃料被覆管の高温酸化挙動は腐食や水素吸収の影響を受けて未照射被覆管のものとは異なる可能性がある。したがって、腐食後に高温酸化を受けた被覆管については、腐食酸化膜の取り扱いも含めた酸化量と被覆管脆化の相関に関する知見が必要である。また、高温酸化と水素吸収が重畳した場合、特に酸化温度 1000℃以上、水素濃度 500 ppm 以上では冷却後の被覆管の脆化が著しいことが知られている³⁻⁴⁰⁾。先に述べたように、LOCA 時に被覆管が破裂した場合には局所的に高濃度の水素吸収が起こる。加えて高燃焼度化に伴う腐食量の増大により被覆管中の水素濃度が平均的に高くなっているため、酸化及び水素吸収に起因した被覆管の脆化には最大の注意を払う必要がある。

前回の ECCS 性能評価指針見直し時には、LOCA 条件を模擬した急冷破断試験の結果が参考にされた。高燃焼度燃料の急冷時破断限界の評価及び現行指針の適用に関する検討には、腐食や水素吸収を含む高燃焼度化の影響を同様の急冷破断試験を使って評価することが妥当である。集合体体系では軸方向の伸縮が均一ではなく、被覆管－グリッド（スペーサー）間での固着等を想定すれば、温度変化が比較的大きな燃料棒で生じる急冷時の収縮がグリッド－グリッド間で拘束される可能性がある。指針見直し前に行われた急冷破断試験³⁻⁴⁷⁾においてはこれを考慮して、急冷時に被覆管の両端を完全に拘束する条件（完全拘束条件）で行われた。しかし、被覆管とグリッドが完全に固着すること、すなわち、被覆管とグリッド間の摩擦係数が無限大であると仮定する完全拘束条件は過度に保守的な負荷条件であると考えられる。拘束条件は急冷時の被覆管の破断限界を決定する大きな因子のひとつであることから、実際の被覆管－グリッド間に掛かる摩擦力に基づく中間的な拘束条件での急冷破断試験の結果を用いて、拘束力の適切な考慮とその影響についての評価を行うべきである。

3.6 燃料ペレット細片化、軸方向移動及び燃料棒外への放出

1970年代後半から80年代前半にかけて行われた照射済燃料を用いた欧米での炉内 LOCA 試験でペレットが割れ、被覆管が膨れた領域にそのペレットの破片が上方から移動、集積することが観察されていた^{3-24,25,48~50}。しかし、ペレットの割れは顕著ではなく、比較的大きなペレット片が移動し堆積することによる PCT の上昇は LOCA 解析の保守性から比べると小さなものであることから³⁻⁵¹、安全評価へのインパクトは小さいとの判断がなされた。これに対し、仏国 IRSN は 2001 年に、高燃焼度化に伴ってペレットがより細かい破片に割れやすくなり被覆管膨れ位置におけるペレットの充填率が高くなるため、PCT が顕著に上昇する可能性があることを指摘した³⁻⁵²。これを契機に、膨れ部に移動した燃料ペレット片の影響に関する関心が高まった。

OECD ハルデン原子炉計画においては、高燃焼度燃料の LOCA 時挙動に対する加盟国の関心を受けて、2003 年より照射済燃料を用いた炉内 LOCA 試験を開始した³⁻⁵³。試験の当初目的は、膨れ部へのペレット片の移行挙動を調べ PCT や酸化への影響を評価すること、及び内面酸化に伴う水素吸収を調べることであった。ハルデン炉内では、ブローダウン以降の LOCA 条件を模擬するために核加熱と隣接する燃料棒を模擬したヒーターによる加熱を組み合わせ、燃料棒単体での試験を実施することができ、2005–2014 年の期間に 12 回の試験（燃焼度範囲 44–92 GWd/t）が行われた。特に、2006 年に行われた非常に高い燃焼度の燃料（91.5 GWd/t）を用いた試験（IFA-650.4）で、従来の試験では見られなかった程度に燃料ペレットが細片化（fragmentation）し、被覆管の膨れ部に移動する（relocation）とともに、ペレット片が被覆管の破裂開口から放出される（dispersal）様子が見られた。Fig. 3-5 にハルデン原子炉計画において実施された炉内 LOCA 試験の結果の一例として、試験時に細片化した燃料ペレットが燃料被覆管の膨れ部に集積した様子を示す^{3-54,55}。ハルデン原子炉計画においては、当初の目的から対象とする現象を広げ、以上の FFRD（Fuel Fragmentation, Relocation and Dispersal）現象のメカニズム解明や発生条件確定のために試験を継続した。それらの試験の結果は、60 GWd/t までの燃焼度を有する燃料では顕著なペレットの細片化は生じないこと、72 GWd/t 以上では燃焼度に依存して細片化がより明確に起こること、並びに細片化は燃焼度だけではなく被覆管の膨れの程度（被覆管によるペレット拘束の影響）、使用中の燃料出力履歴、及びプレナムから破裂開口に向かってのガス流にも影響を受けることを示唆した³⁻⁵⁶。

米国原子力規制委員会（NRC）は、LOCA 時の被覆管脆化に関する基準の見直しに向けた基礎データを RIL-0801³⁻⁵⁷として報告したが、その中で、脆化基準の改訂には直接関連しないものの LOCA 時の燃料挙動のうち燃料ペレットの FFRD が未解明であること、また事象解明のための研究の必要性を指摘している。これを受けて NRC はスウェーデンのスタズビック社に委託して高燃焼度燃料を対象としたホットラボでの LOCA 試験（原子力機構における急冷破断試験に近いもの）を実施し、FFRD に関する知見を取得している³⁻⁵⁸。従来見られた膨れ部への移動や堆積量が少量であったため、安全評価における様々な安全余裕より小さく安全性へのインパクトは小さいと見なされてきたが、高燃焼度燃料に対するハルデン炉等での試験により制限値に近い燃焼度で顕著な燃料ペレットの細片化と放出が見られたこと、また今後の最適評価の導入を見据えた場合に FFRD の影響が無視できないことから、NRC は FFRD について十分に調査し規制への反映を検討することとしている。

原子力機構も、原子力規制庁の委託事業として、FFRD を含む LOCA 時のペレット挙動を調べる試験を計画し準備を進めている³⁻⁵⁹⁾。

ハルデン炉及びスタズビックでの試験においては、ペレット片が細片化しペレット片の相当量が破裂開口から燃料棒外に放出された。極めて多量のペレット片が燃料棒から放出され局所的に堆積すれば、冷却材流路の閉塞、燃料の冷却不全等が起こる可能性もある。これまでの試験から、FFRD は比較的高い燃焼度を有する燃料（あるいはその一部）で起こりやすいこと、並びに被覆管によるペレット拘束及び使用中の燃料出力履歴の影響を受ける可能性があること、が指摘されている。FFRD が燃料の健全性や炉心の冷却性等の観点で安全性に及ぼす影響を評価するとともに、FFRD が発生する条件を明確にして規制への反映を含め安全上の重要性を判断する必要がある。

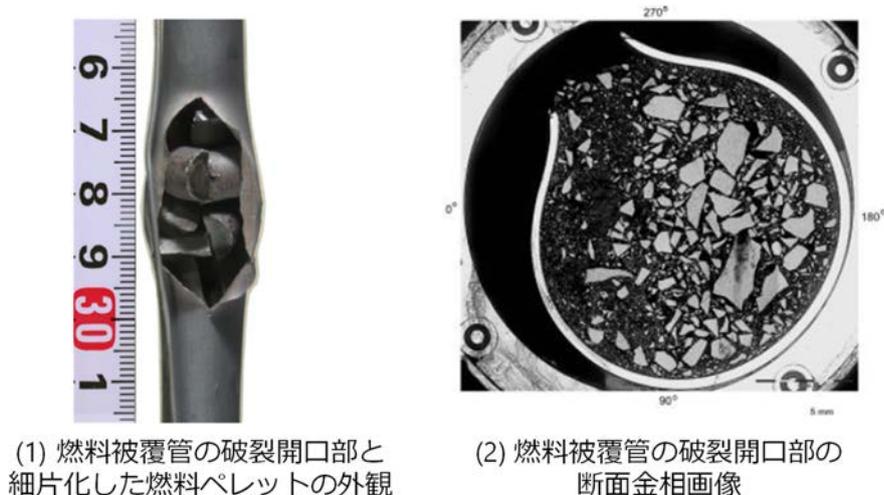


Fig. 3-5 LOCA 試験時に細片化した燃料ペレットが燃料被覆管の膨れ部に集積した様子^{3-54,55)}

3.7 LOCA 後の長期炉心冷却性

低下した炉心の水位が回復し燃料温度が低下して LOCA が収束した後は、PWR の格納容器再循環サンプルや BWR のサプレッションチェンバー内の冷却材を用いた再循環モードにより長期冷却が行われる。現行の ECCS 性能評価指針においては、LOCA 後の燃料の長期冷却性に関して、「燃料の形状の変化を考慮しても、崩壊熱の除去が長期間にわたって行われることが可能であること」とする基準がある。その解説においては、この基準が「必ずしも厳密な定量的論証を要求するものではない」とし³⁻⁶⁰⁾、具体的適用例として次の 2 つの内容が示されている。

- (a) 「燃料の形状の変化を考慮しても」との要求は、炉心が冠水しているか、又は少なくとも炉心の出力密度の高い部分が冠水し、それ以外の部分の冷却も十分であるような状態が維持できることを示せば満足されたと見なす。
- (b) 炉心から最終ヒートシンクに至るまでの熱の移動の経路が、十分な多重性又は多様性、及び独立性と性能の余裕を以って確保されており、かつ、この状態が適当な方法を講ずれば望む時間にわたって維持し得ることが示されれば、本基準の「長期間にわたって」の炉心冷却が可能であると見なす。

上記(a)は、被覆管脆化に関する基準(1)及び(2) (PCT : 1200℃、酸化量 : 15%ECR) が満足されていれば LOCA 時だけでなく LOCA 後の長期炉心冷却中にも炉心の冷却可能形状維持に有効であるという前提に基づくものである。しかし、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故においては津波を引き起こした本震後にも数多くの余震が起こった。これを考慮すれば、LOCA 後の炉心に対し地震等に起因する負荷が加わることを想定すべきである³⁻⁶¹⁾。したがって、LOCA 後の炉心の長期冷却性をより確実に確保するためには、地震等により燃料に作用する負荷を評価するとともに、LOCA 時に損傷した燃料や炉心が想定される負荷により冷却可能形状を失う条件を明らかにして、指針見直しの要否を検討する必要がある。また、長期炉心冷却期間中には、保温材等に起因する様々な形状の異物（デブリ）による冷却材流路の閉塞や炉心冷却系の動作不全により炉心冷却性が低下し燃料温度が上昇することも想定される。このような温度変化によっても燃料棒の特性が長期冷却中に大きく変化しないことを判断するための基準等の検討も必要であろう。

4. 現行指針制定後に得られた主な知見

4.1 被覆管高温酸化速度

Baker-Just 式⁴⁾¹⁾は既存研究で得られた酸化速度評価式の中で最も大きな酸化量を与える。Baker 及び Just は、水中に置いた長さ 1 インチ (25.4 mm) のジルコニウム線を急速に通電加熱し (0.3 ms で目標温度に到達)、実験中に測定した温度、圧力、及び水素発生量、並びに実験後に測定した酸化量等を基に、拡散理論を使って解析的に融点 (1852°C) での酸化速度定数を決定し、それまでに得られていた 1000–1300°C での文献値^{4)2,3)}と併せて温度依存性を求めることで同式を導出した。

ジルコニウムの酸化物 (ZrO₂) は温度上昇とともに、約 1000°C で単斜晶から正方晶に、約 1580°C で正方晶から立方晶に変態し、それらの温度において不連続に酸化速度定数が増大する。したがって、上記のような融点近傍 (立方晶温度域) のデータを低温側に内挿する方法は、約 1000–1580°C の正方晶温度域について過大評価となる。一方、上記の導出方法により Baker-Just 式では活性化エネルギーが比較的大きいため、温度低下とともに酸化速度は急激に減少する。1000°C より低い温度範囲における酸化速度及び酸化挙動に関する研究例が少なく⁴⁾⁴⁻⁷⁾、ばらつきが比較的大きいが、原子力機構の研究結果 (Fig. 4-1) は 800°C より低い温度で Baker-Just 式が酸化量を過小評価することを示唆している⁴⁾⁷⁾。なお、1000°C 以下においては酸化の進行は比較的遅く、現実的な条件の一つとして 800°C で 900 s (15 分) 間酸化されると仮定すれば、肉厚 0.54 mm のジルカロイにおける Baker-Just 式を用いた酸化量の計算値は高々 3% ECR である。したがって、PCT が 1000°C より十分に低く、Baker-Just 式で評価される酸化量が基準値に比べ十分に低い場合は上記の非保守性は安全上の課題ではない。

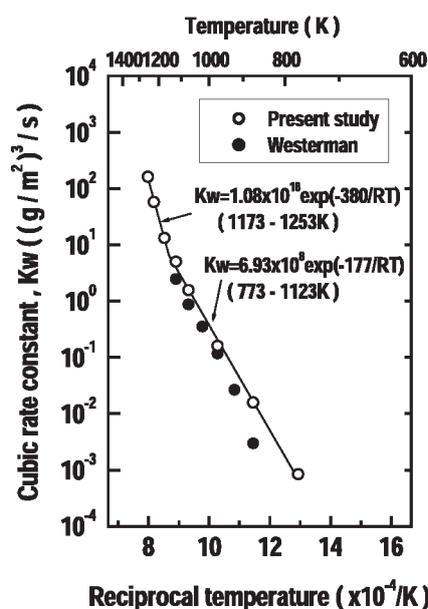


Fig. 4-1 ジルカロイ-水蒸気酸化反応速度定数の温度依存性⁴⁾⁷⁾

酸化速度式を導く際に使われた実験方法及び酸化量の測定方法についても着目する必要がある。**Baker** 及び **Just** の研究では拡散理論を使って解析的に酸化速度を評価しているのに対して、多くの研究は等温酸化後の重量増加や酸化膜厚さに基づき酸化速度定数及びその温度依存性を求めている。また、**Baker** 及び **Just** の実験では通電により急速に温度を上昇させているため、試験片表面では加熱直後から融点に近い高温での酸化が開始する。一方、多くの研究では水蒸気を流した環境で試験片を加熱するため、昇温中に徐々に酸化膜が成長し、等温酸化時間中に進む酸化の抵抗となり酸化速度が比較的小さくなる可能性がある。熱天秤を使い酸化速度の評価を試みた例がいくつかある^{4-8,9)}。これらの実験では、目標酸化温度に達してから水蒸気を導入し、酸化による重量変化を測っており、**Cathcart** 及び **Powel** らの実験結果より大きく、**Baker** 及び **Just** の実験結果に近い酸化速度定数が得られている。つまり、温度上昇とともに徐々に酸化が進行する場合に比べ、昇温過程での酸化が無視できる理想的な等温酸化条件では **Baker-Just** 式がより妥当な反応速度定数を与えると考えられる。一方、発電炉で起こる比較的緩やかな温度変化を考えれば、徐々に温度を上げる実験で得られた **Cathcart-Powel** の式等^{4-10,11)}がより実際的な速度を与えると考えられ、現在においてもその信頼性は高い。

以上に述べたように、**Baker-Just** 式が **Cathcart-Powel** の式等の既存研究で得られた酸化速度評価式の中で最も大きな酸化量を与える要因はいくつか考え得る。個々の酸化速度式は厳密にはそれぞれ異なる条件下での酸化についての速度を表している可能性があり、その背景を把握した上で適切に安全評価に用いるべきである。なお、すでに述べたように、15%ECR 基準は、被覆管が脆化する条件を **Baker-Just** 式を使って評価したものであるから、**Cathcart-Powel** 式等を使う場合には脆化する酸化量は 15%ECR とは異なる。

高燃焼度化に伴う腐食量の増大と水素吸収が酸化速度に及ぼす影響を評価する試験が原子力機構において系統的に行われている⁴⁻¹²⁻¹⁵⁾。未照射被覆管を用いた試験の結果ではあるが、

- あらかじめ被覆管表面に原子炉運転温度条件で形成された酸化膜（腐食酸化膜）は、LOCA 条件下での高温酸化に対して抑制効果を持つ。抑制効果は温度の上昇と酸化時間の増大に伴い低減する（Fig. 4-2）。
- 水素吸収が高温酸化に及ぼす影響は、水素濃度、酸化温度及び時間に依存して変化するが、現実的な水素濃度と酸化時間の範囲（800 ppm 以下、1800 s 以下）での影響は高々 5%程度である（Fig. 4-3）。

という知見が得られている⁴⁻¹²⁾。国内で行われた燃焼度約 85 GWd/t までの改良合金被覆管を含む高燃焼度燃料被覆管を用いた酸化試験や海外で行われた未照射被覆管や高燃焼度燃料被覆管を用いた試験においても、基本的に未照射被覆管を用いた試験を裏付ける結果が得られている⁴⁻¹³⁻²⁰⁾。これらのデータによれば、900-1200℃の温度域における高燃焼度燃料被覆管の酸化速度は未照射被覆管と同等あるいはやや低い（Fig. 4-4⁴⁻²⁰⁾）。観察結果（Fig. 4-5⁴⁻¹³⁾）によれば、通常運転条件での炉内腐食により生じた酸化膜は高温酸化に対して抑制効果を持つと考えられるが、温度上昇及び時間の経過とともに腐食酸化膜に生じたクラック位置から高温酸化が広がり抑制効果が低減すると考えられる。

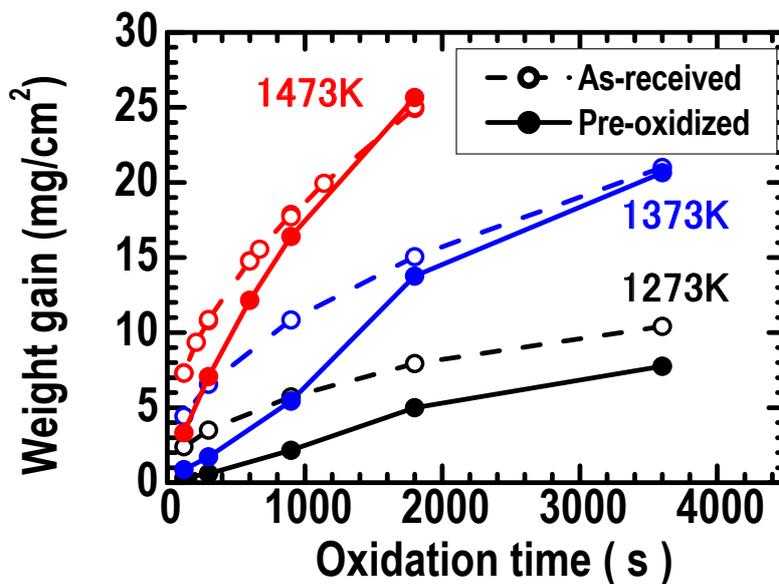


Fig. 4-2 低スズ Zry-4 被覆管の重量増加と酸化時間の関係 4-12)

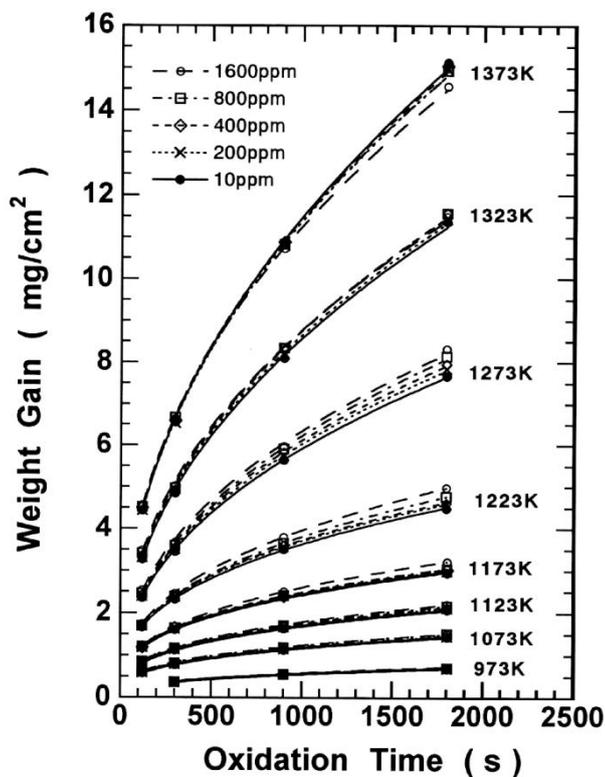


Fig. 4-3 水素添加低スズ Zry-4 被覆管の重量増加と酸化時間の関係 4-12)

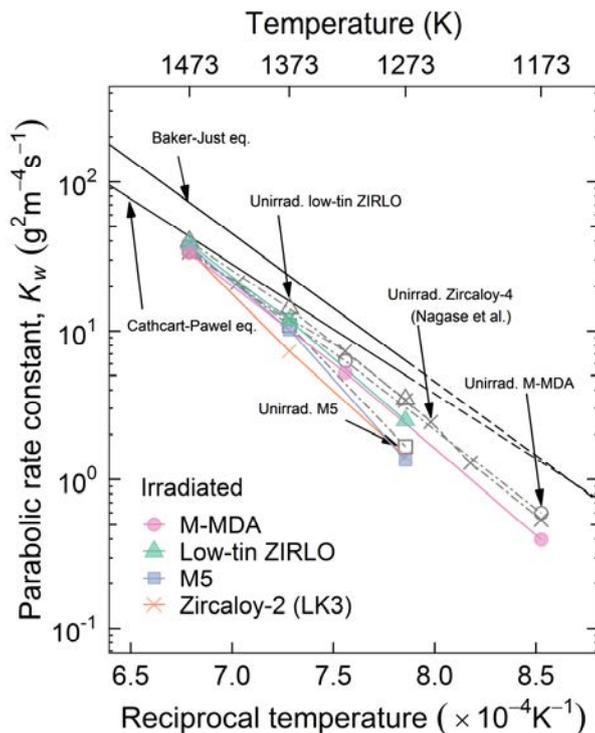


Fig. 4-4 ジルカロイ-水蒸気酸化反応速度定数の温度依存性⁴⁻²⁰⁾

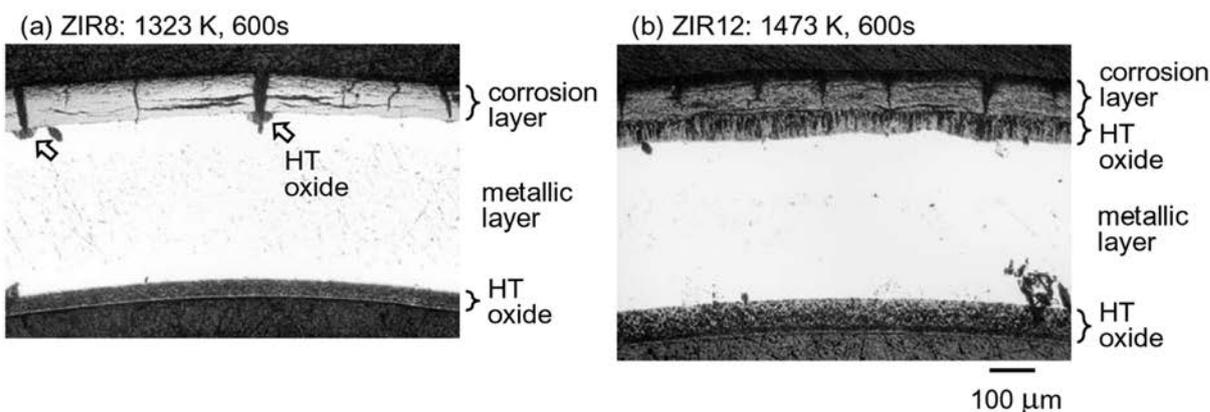


Fig. 4-5 高燃焼度 ZIRLO 被覆管の断面金相画像⁴⁻¹³⁾

高温酸化速度評価試験は、長さ 10–20 mm 程度のリング状試験片を用いて、等温条件で酸化試験を行い、重量変化や酸化膜厚さから酸化速度を評価するものである。あらかじめ腐食させた試験片についても同様の手法を採るが、燃料が炉内で LOCA 条件に曝された場合には、高温酸化が進行する前に燃料棒の膨れ、すなわち周長の増大が生じる。これに伴い、被覆管の内外面の腐食酸化膜には細かな割れが生じることが照射済燃料を用いた急冷破断試験において観察されている (Fig. 4-6)⁴⁻²¹⁾。上述のように、腐食酸化膜に生じたクラックからは高温酸化が容易に進行することから、膨れた燃料においては腐食酸化膜による高温酸化の抑制効果はあまり期待できないと

考えて良い。したがって、高燃焼度燃料においても安全評価においては、腐食酸化膜による高温酸化抑制効果を考慮しないことが安全上妥当である。

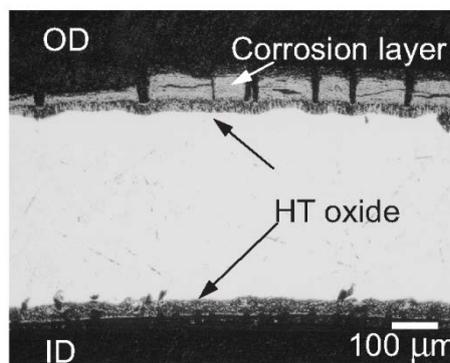


Fig. 4-6 高燃焼度 ZIRLO 被覆管の急冷破断試験後断面金相画像⁴⁻²¹⁾

原子炉運転中に起こる被覆管の腐食あるいは LOCA 時の高温酸化により、被覆管表面に酸化物が形成されるとともに金属部への酸素拡散が起こる。運転時の温度条件では金属中への酸素の拡散距離は短く、拡散距離内での酸素濃度もあまり高くない。一方、LOCA 時の高温では、酸素は被覆管肉厚中央まで拡散し、金属部の平均酸素濃度も高く、被覆管脆化の一因となる。運転中に生じた腐食酸化膜も LOCA 時には酸素供給源になる。照射済燃料被覆管を不活性ガス中で加熱した実験において、外面腐食酸化膜から酸素が拡散し酸素濃度が高い α -Zr(O)層が表面近くに形成され、被覆管の延性が低下したことが報告されている⁴⁻²²⁾。仏国原子力・代替エネルギー庁 (CEA) の Brachet らは予め 350°C で酸化させた後に 1200°C での高温酸化試験を行い、その後被覆管の脆化を調べ、高温での酸化において、初期酸化膜による抑制効果が見られたが、脆化に関しては差が見られなかったことを報告している⁴⁻²³⁾。高温酸化による酸素拡散が抑制される間も、初期酸化膜からの酸素拡散により金属領域に α -Zr(O)層が成長し被覆管の延性低下が進むためである。この結果も LOCA 時の被覆管脆化の観点で腐食酸化膜の高温酸化抑制効果を考慮しないことが安全評価上妥当であることを示している。

通常運転条件下での炉内耐食性改善を目的として開発・改良されてきた被覆管合金のうち、すでに PWR 用ステップ 2 燃料に導入されている MDA、NDA、及び ZIRLO については、その導入時に、高温酸化速度がジルカロイに比べて同等以下であることが確認されている⁴⁻²⁴⁻²⁶⁾。PWR については、さらに耐食性を高めた M-MDA や M5 (Zr-1.0Nb) を対象に、国内外において未照射及び照射済試料を用いて酸化速度が評価され、ジルカロイに比べて同等以下であるというデータが示されている^{4-15,18,20)}。上記の被覆管合金はいずれも Nb が添加されており、一般的には原子炉運転時の温度条件も含め、1000°C 以下の温度ではジルカロイより酸化速度が低い (Fig. 4-4)^{4-14,18,20)}。同程度の燃焼度で比べれば、BWR における腐食量は PWR に比べて小さく、改良合金被覆管の導入が積極的には行われてこなかったが、酸化量に対する水素吸収率が高燃焼度域で増大する傾向が見られる⁴⁻²⁷⁾こともあり、通常運転中の腐食に伴う水素吸収量低減のために Zry-2 に比べて鉄の濃度を高めた被覆管合金が開発されている⁴⁻²⁸⁾。これらについても高温酸化速度はジルカロイ

と同等であり、15%ECR 基準との比較においては Baker–Just 式を使った酸化量評価が有効である。

4.2 ブレイクアウェイ酸化

原子力機構等において、未照射及び照射済試料を用いた酸化試験を MDA、ZIRLO、M5 及び M-MDA 被覆管に対して行ったが、約 1000°C、3600 s 未満の範囲でブレイクアウェイ酸化が観察されていないことから^{4-13~15,18,20)}、調べた範囲において、これらの合金を使った被覆管の耐ブレイクアウェイ酸化性能はジルカロイと同等以上だと考えられる。ロシアで開発された E110 の合金組成 (Zr-1.0Nb) は M5 と同じであるが、850–1100°C において、比較的短い時間 (1000°C で 1500 s 以下) でブレイクアウェイ酸化を起こすことが報告されている^{4-19,29)}。また、表面に傷を付けた被覆管でブレイクアウェイ酸化が起りやすいことも報告されている⁴⁻²⁹⁾。約 1000°C で起こるブレイクアウェイ酸化は、酸化膜の相変態 (の不安定性) を原因とするものと考えられており、したがって被覆管の合金組成や製造法 (不純物や表面状態) の影響を受けやすいと考えられている^{4-16,29)}。ジルカロイについても、破裂した被覆管については破裂開口近くでブレイクアウェイ酸化が起りやすい (1000°C において 1500 s 程度) ことが報告されている⁴⁻³⁰⁾。この原因は明らかでないが、短時間にブレイクアウェイを起こした被覆管では破裂開口近傍の被覆管内面で多孔質の厚い酸化膜が生じるいわゆる内面酸化が観察されており、厚い酸化膜の形成により被覆管断面の応力条件に変化が生じ、それによってブレイクアウェイ酸化が起りやすくなった可能性がある。

ブレイクアウェイ酸化の開始により、酸化速度の増大とともに多量の水素吸収が起こる。この水素吸収により被覆管が脆化することから、米国で策定された ECCS 性能評価指針の改訂案においては、事故時に想定される温度–時間条件でブレイクアウェイ酸化が起こらないことを示すよう求めている⁴⁻³¹⁾。我が国において現在使用されているあるいは使用が見込まれるジルカロイ及び改良合金でブレイクアウェイ酸化が起こる温度–時間条件は、既存の軽水炉設計の範囲で予想される LOCA 時の温度–時間条件と大きく異なっている。すなわち、大幅な組成変更や表面加工の変更がなければ、ブレイクアウェイ酸化は起こらないと考えられる。一方で、今後開発される新しいジルコニウム合金被覆管あるいはその他の合金被覆管に適用できるものとするのであれば、指針改訂等においてはブレイクアウェイや同類の現象に対して注意深い対応を行う必要がある。

4.3 被覆管脆化

LOCA 時の被覆管の脆化は高燃焼度燃料においても基本的に酸化量を指標として評価できるのか、すなわち、高燃焼度化に伴う腐食量や水素吸収量の増大、耐食性改良のために行われている被覆管合金の変更が被覆管の脆化挙動にどの程度影響を及ぼすのかを明らかにする必要がある。米国での ECCS 性能評価指針制定以降、欧米においてはリング圧縮試験を用いて LOCA 時に被覆管が脆化に至る条件が評価されてきた。一方、我が国 (及び最近においては仏国) においては、LOCA 条件を模擬した試験を行い急冷時に被覆管が破断に至る条件をもって LOCA 時の燃料健全性 (被覆管の著しい脆化による強度低下に相当) を確認してきた。OECD/NEA が作成した LOCA 時の被覆管健全性を評価するための試験技術に関する技術意見書 (TOP)⁴⁻³²⁾にも書かれているよ

うに、LOCA 時の被覆管脆化や燃料の健全性は各国の歴史的背景や考え方により異なる試験手法で確認されており、試験手法が異なれば負荷条件や評価指標が異なるため、そこから導出される判断基準は必ずしも同じではない。以下においては、リング圧縮試験等の機械試験により評価される被覆管の脆化について述べ、LOCA 条件を模擬した試験により求められる急冷時の破断条件（強度基準）については 4.4 において述べる。

LOCA 時及び LOCA 後に加わる負荷の不確かさを考慮し、厳しい負荷と変形を与えるリング圧縮試験⁴⁻³³⁾により得た被覆管が脆化する条件をもって LOCA に関する燃料健全性を評価してきた米国においては、高燃焼度化の影響に関する評価においてもリング圧縮試験を中心とした系統的な実験を NRC が ANL において行った⁴⁻¹⁹⁾。また、NRC の原子力規制研究局 (RES) がその結果をとりまとめ、「10CFR50.46 の脆化基準を改訂する技術ベース」として原子力規制局 (NRR) と新規炉局 (NRO) に送付した⁴⁻³⁴⁾。以下にそれらの概要を示す。

まず、製造したままの未照射被覆管 (Zry-2、Zry-4、ZIRLO、M5) を使って、水蒸気雰囲気中での高温酸化後に室温あるいは 135°C でのリング圧縮試験を実施した。例として、17×17 タイプの Zry-4 と ZIRLO 被覆管について得られた酸化量に依存した残留組成ひずみの変化を Fig. 4-7⁴⁻¹⁹⁾ に示す。また、調べた様々な被覆管に対する脆化しきい酸化量に関する結果を Table 4-1 にまとめた⁴⁻¹⁹⁾。酸化量 (ECR) の算出においては Cathcart-Powel 式が用いられており、Baker-Just 式で求められた値とは異なる。また、米国においては、運転中に生じた腐食による酸化膜を ECR に換算し、それを LOCA 時の酸化量と併せて脆化基準の指標としている。さらに、リング圧縮試験の評価において、下記の標準的な手法を新たに策定した上で酸化した被覆管が脆化したことの判断を行っている。

- 圧縮試験で最初の荷重低下が測定されたときに試験を停止し、試料を取り出す。
- 肉厚を貫通するクラックが 1 つ形成された試料については、残留塑性変形量（初期外径に対するリング圧縮試験後の外径減少量）が 1% より小さい場合に脆性とする。
- 貫通クラックが 2 つ以上形成された試料については、残留塑性変形量が 2% より小さい場合に脆性と判断する。

Table 4-1 に示されるように表面処理を含む製造条件が若干異なる過去材を除き現在使われている被覆管における脆化しきい酸化量が 17–20% ECR にある。M5 被覆管と同じ組成 (Zr-1.0%Nb) を持つが原料（スポンジ Zr）や表面処理の異なるロシア製の VVER 用 E110 被覆管^{4-30,35,36)}を除き、脆化のしきい酸化量に及ぼす合金成分の影響はあまり大きくない。冷却時に 800°C あるいはそれ以下からの急冷の有無もパラメータとしたが、急冷開始温度に対する依存性も見られなかった。

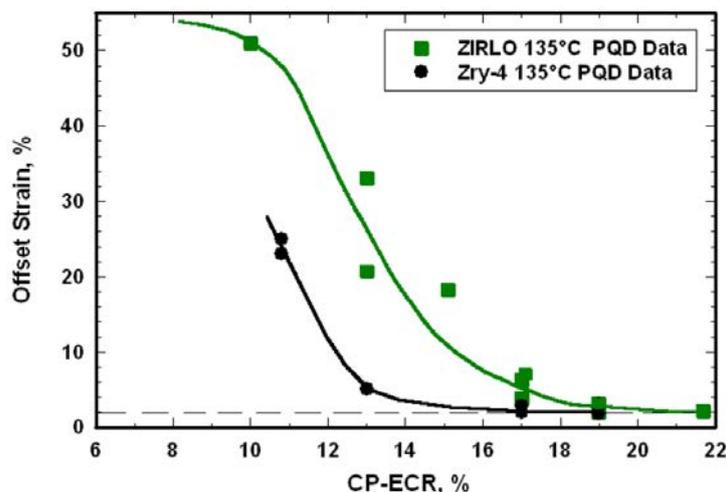


Fig. 4-7 Zry-4 と ZIRLO 被覆管について得られた酸化量に依存した
残留組成ひずみの変化⁴⁻¹⁹⁾

Table 4-1 水蒸気中、1200°Cで酸化された未照射被覆管の脆化しきい値

被覆管合金 (タイプ)	製造者	製作時期、特徴	脆化しきい値
Zry-4 (PWR, 15×15)	ジーメンス	過去、Sn 濃度 1.4%	16%ECR
Zry-4 (PWR, 17×17)	ウェスティングハウス	現行、Sn 濃度 1.3%	17%ECR
Zry-4 (PWR, 15×15)	アレバ	現行、Sn 濃度 1.3%	19%ECR
Zry-2 (BWR, 10×10)	GNF	現行、Sn 濃度 1.3%	19%ECR
ZIRLO (PWR, 17×17)	ウェスティングハウス	現行、Zr-Fe-Sn-Nb	19%ECR
M5 (PWR, 17×17)	アレバ	現行、Zr-Nb	20%ECR

未照射被覆管に加え、通常運転中に生じる水素吸収を模擬し水素添加した未照射 Zry-4 や高燃焼度燃料 (63-70 GWd/t) から切り出した Zry-4、ZIRLO、M5 被覆管試料も対象に、水蒸気雰囲気中での高温酸化後にリング圧縮試験を実施した。試験により得られた被覆管が脆化に至る酸化量を水素濃度に対してプロットした図を Fig. 4-8 に示す。高燃焼度燃料被覆管において一般的に見られる水素濃度の範囲 (< 600 ppm) において、脆化に至る酸化量は、高燃焼度 Zry-4 及び ZIRLO 被覆管については、急冷しない場合 8-9%、800°Cから急冷した場合 5%、高燃焼度 M5 被覆管 (ただし耐食性の違いから水素濃度は低い) については急冷が無い場合には 18%、急冷した場合には 14%であった。

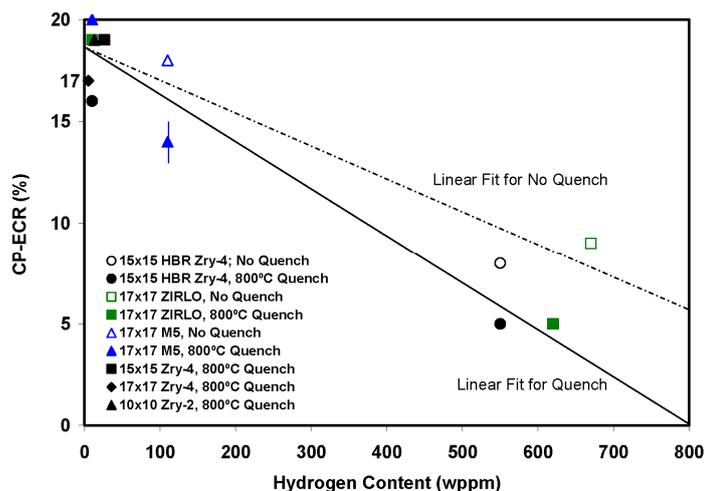


Fig. 4-8 水素濃度に依存した脆化しきい酸化量⁴⁻¹⁹⁾

米国での被覆管脆化の判断において、従来は内面酸化による水素吸収の影響は考慮されてこなかったが、高燃焼度化の影響を確認する研究においてはこれに関する検討も行っている。試験では、原子力機構が行っている試験と同様に、長さ 300 mm 程度の被覆管試料を膨れ、破裂させた後に高温で酸化させ、被覆管の内面酸化に伴う局所的な水素吸収が起こったことを確認し、4 点曲げ試験手法により変形、破損挙動を調べた。試験の結果、内面酸化により膨れ部が脆化するが、酸化量が 17%以下であれば十分な強度と靱性を有し、外力によって分断する場合にも被覆管が粉々になることはない、すなわち破砕に対する耐性も十分であると結論づけている。

脆化メカニズムのひとつとして水素吸収を伴うブレイクアウェイ酸化にも着目し試験を行っている。主な結果については 4.2 で述べたが、原材料の違いに基づく不純物元素濃度の違う被覆管や、表面が粗い旧来の被覆管、表面に傷のある被覆管では比較的短時間に起こることを明らかにし、高温トランジェントが比較的長く続く小破断 LOCA で注意が必要であるとしている。また、高燃焼度燃料では燃料ペレットとの物理的、化学的相互作用により、被覆管内面においても酸化物燃料が酸素供給源として存在するために、破裂部以外においても被覆管の両面が酸化される可能性があることを指摘している。

4.4 急冷時破断

我が国において 1981 年に行われた指針の見直し時には、内面酸化に伴う水素吸収による被覆管脆化と急冷時に働く負荷を考慮しても旧指針に定められた脆化基準はなお安全余裕を有していることを確認し、旧指針にあった 1200°C–15%ECR という基準を維持した。この際に参考とされたのが、上塚らによる急冷破断試験の結果である⁴⁻³⁷⁾。未照射の PWR 用 14×14 タイプ Zry-4 被覆管 (スズ濃度 : 1.46 wt%、内径 : 9.48 mm、外径 : 10.72 mm、肉厚 : 0.62 mm) から長さ約 500 mm の被覆管試料を切り出し、内部にアルミナペレットを装荷した後に加圧して模擬燃料棒を製作し、水蒸気雰囲気下で加熱した。加熱温度は 920–1330°C であり、等温酸化後に急冷した。この実験では、燃料棒の破裂後に起こる内面酸化と水素吸収とともに、急冷時に模擬燃料棒両端を拘束することにより集合体体系で生じ得る負荷を模擬している。試験の結果、破断する酸化条件の

下限は非拘束条件下では 35%ECR にあり、冷却時の被覆管収縮を許容しない完全拘束条件下では 19%ECR にあることが示された（いずれも初期被覆管肉厚（0.62 mm）に対し Baker-Just 式を用いて評価した ECR）。比較的低い ECR まで酸化し拘束条件で破断した場合、破断位置は膨れ破裂した位置となった。なお、基準にある「酸化が著しくなる前の変形」を考慮するために、膨れ後の肉厚を ECR 評価のベースとした場合には、完全拘束条件下での破断限界は 21%ECR となる。

高燃焼度化の影響を調べる実験として、まず原子力機構は PWR 用 17×17 タイプ Zry-4 被覆管（スズ濃度：1.3 wt%、内径：8.36 mm、外径：9.50 mm、肉厚：0.57 mm）に対して 400–600 ppm の水素を水素ガス中で人工的に添加し、上塚らの実験と同様の実験を行った⁴⁻³⁸⁾。LOCA 解析によれば最終的には冠水により急冷されるが、燃料棒温度は PCT に到達した後、徐々に低下することが一般的である。また、(α+β) 相温度域での徐冷を経て急冷された被覆管で脆化が促進することも報告されている^{4-39,40)}。これらを考慮して上の実験では約 800°C まで徐冷しその後冠水により急冷した。その結果、非拘束条件下では水素濃度にかかわらず破断限界は約 40%ECR であること、完全拘束条件下では水素添加をしなかった場合には約 20%ECR、水素を添加した場合には約 10%ECR であることが明らかになった。いずれの酸化量も、膨れによる減肉を考慮したものであり、これ以降に記述する急冷破断試験の結果として示す酸化量は膨れによる減肉を考慮したものである。この試験により、炉内腐食により一定量の水素を吸収した高燃焼度燃料被覆管は、拘束力を考慮すれば急冷時の破断限界が低下する可能性が示された。なお、上塚らの実験とは肉厚等異なる被覆管を用いているが、同じ酸化条件では酸化割合（ECR）を指標とした破断限界に差は見られない。非拘束条件下の破断限界が初期水素吸収（400–600 ppm）の影響を受けないのは、内面酸化に伴う高濃度（1000–3000 ppm）の水素吸収が破断の主因であるためである。一方、拘束条件下では軸方向の強い引張荷重が働くため、膨れと酸化により強度が低下した破裂部で破断し、そこでは内面酸化による水素吸収が無く初期水素吸収の影響を受ける。

酸素はジルコニウムに対する α 相安定化元素であり、水素は β 相安定化元素である。このため、LOCA 条件下で冷却されたマイクロ組織として典型的な Widmanstätten 組織では、酸素は α-incursion 中に多く、水素は α-incursion を除く prior-β 相の母相中に集まる傾向にある。prior-β 相中の水素は冷却時に水素化物として析出するが、析出物の大きさや分布は冷却速度に依存する。また、Zr-H-O の三元系状態図に関する研究^{4-41~43)}から、水素濃度の増大に伴い Zr-O 相の α/β 及び (α+β) / β 相変態温度を低下させ、α 相中の酸素濃度が高くなることが明らかになっている。酸化した被覆管の冷却後の延性低下が水素吸収により促進されるのは以上の prior-β 相中の水素濃度の増大と α 相中の酸素濃度の増大が原因である⁴⁻⁴⁴⁾。

LOCA 解析によれば、燃料温度は最高温度を経て徐々に低下して冠水により急冷されるのが一般的である。小松らは酸化した PWR 用の Zry-4 被覆管を対象に冷却速度に依存した被覆管機械特性の変化を調べ、冷却速度を低くした場合に金属層（prior-β 層）に α-incursion が析出しやすく、小さな荷重で初期クラックが発生しやすいと報告している⁴⁻³⁹⁾。宇田川らは、1100–1200°C で等温酸化後に徐冷し 800–1100°C から急冷する実験を行い、急冷開始温度が低くなるほど（すなわちより低い温度まで徐冷するほど）被覆管の延性が低下すること、一方徐冷速度には依存しないことを示した⁴⁻⁴⁰⁾。これらの試験は水素吸収のない高温酸化後の被覆管に対する実験であるが、

仏国 CEA の Brachet らは約 600 ppm の水素濃度を有する Zry-4 を 1200°C で 50 s 間等温酸化させた後に様々な条件で冷却し、冷却後の室温及び 135°C にて延性低下を調べた⁴⁻²³⁾。1200°C から急冷した場合と 1200°C から 800°C までを徐冷し 800°C から急冷した場合に、被覆管は塑性変形をせずに破損した。急冷開始温度を 600°C あるいは 700°C に低下させた場合、800°C 急冷被覆管に比べ降伏応力が低下し延性が増大した。1200°C から室温まで徐冷した被覆管でも降伏応力の低下が見られ、延性も比較的小さかった。冷却後の組織観察において以下が観察されている。

- 1200°C から直接急冷した被覆管では、prior-β は均一であり酸素濃度分布も均一であった。
- 800°C から急冷した被覆管では、β 相から変化した α 相 (α-incursion) が prior-β 領域の 50% 程度を占めて析出しており、prior-β 相の母相と α-incursion 間の酸素濃度差が比較的明確であった。
- 600°C あるいは 700°C から急冷した被覆管では、徐冷期間に α 相への変態が完了したため、800°C で急冷した被覆管より prior-β 相中の酸素濃度変化は小さい。また、亜粒界上に鉄とクロムを多く含む第二相が析出している。
- 室温まで徐冷した被覆管では、亜粒界上に成長した水素化物が析出していた。

以上の研究結果は、prior-β 相中の α-incursion の析出のし方や酸素濃度の分布、さらには水素化物の析出形態や冷却後のマイクロ組織の違いが延性や強度の変化に関連があることを示している。水素吸収による影響はあるが、一般的には、(α+β) 相温度域を徐冷しその後に急冷された場合に被覆管の延性低下が最も大きい。原子力機構において行われている急冷破断試験はこれを考慮しており、延性低下に及ぼす冷却条件の影響については保守的であると言える。

原子力機構は約 400 ppm の水素を添加した BWR 用の Zry-2 被覆管 (内径: 約 9.6 mm、外径: 約 11.0 mm) についても急冷破断試験を行っている⁴⁻⁴⁵⁾。非拘束条件下では、水素を添加しない被覆管で約 50% ECR、水素を添加した被覆管で 42% ECR に破断限界が見られた。いずれの被覆管でも 38% ECR 以上の酸化をした被覆管は試験装置から取り外した際の軽微な負荷により破損したことから、脆化の観点からは PWR 被覆管と同等の酸化量依存性を示すと考えられる。完全拘束条件下での破断限界は、水素を添加しない被覆管で約 22% ECR、水素を添加した被覆管で約 19% ECR であった。BWR においては冷却材温度が低いことを主因として腐食量が PWR におけるそれと比べて小さい。このため、本試験においても水素濃度を比較的 low (< 400 ppm) 設定した。完全拘束条件下での水素添加の影響が PWR 被覆管試験より小さいのは主に水素濃度が比較的 low ためである。

拘束力が急冷時の破断限界を決める大きな因子である。上に記述した上塚らの研究⁴⁻³⁷⁾及び水素吸収の影響を調べた研究^{4-38,44)}では、急冷時に模擬燃料棒の両端を拘束し被覆管の収縮を許さない完全拘束条件で実験が行われた。集合体内の温度分布により燃料棒間あるいは燃料棒と制御棒案内管との間に伸縮の差が生じるが、燃料棒とグリッド (スペーサー) 間の固着や摩擦力の増大がある場合には、周囲より伸縮の大きな燃料棒が収縮する際に拘束を受けることになる。集合体全体の LOCA 時挙動が必ずしも明らかではないこともあり、十分な保守性を確保する観点から

は、燃料棒とグリッド間の固着による完全拘束を想定するのもひとつの選択ではあるが、完全拘束が集合体や炉心の中で広く生じるとは考えにくく、技術的に合理性のない過度な保守性を持たせるのは適切ではない。そこで、より現実的な拘束力とその影響を評価するために、燃料棒とグリッド間の相互作用や破断限界の拘束力依存性に関する研究が進められた。

村田らは、LOCA 時の PWR 集合体内温度分布を基に急冷時の収縮量の最大値を求め、それによって生じる拘束力を解析的に 157 N であると評価した⁴⁻²⁵⁾。本間らは、PWR 用の短尺燃料被覆管とグリッドを組合せ電気炉内で加熱し、冷却後に引き抜く際の摩擦力を測定し、集合体での拘束力はジルカロイ製グリッドについて 167 N、インコネル製グリッドについて 431 N であると評価した⁴⁻²⁴⁾。後者で抵抗力が大きいのはジルカロイとインコネル間で共晶反応が生じたためである。原子力機構においても、PWR 用のグリッドと模擬燃料棒を組み合わせた試験体に対して LOCA 条件を模擬した試験を行い、水蒸気中での膨れ、破裂、及び高温酸化を経た被覆管を室温から 1000°C までの温度範囲でグリッドから引き抜き、その際の摩擦力を測定した⁴⁻⁴⁶⁾。その結果、被覆管とインコネル製グリッドとの間で測定される摩擦力は、急冷中及び急冷後にかかわらず 15–35 N であることが示された。また、燃料棒の膨れや破裂による直径増大により摩擦力が増大する傾向はないこと、高温酸化雰囲気では被覆管及びグリッド間に顕著な共晶反応やそれによる固着は認められないこと、インコネル製グリッドの場合、室温から 600°C において摩擦力はほぼ一定であること、並びにインコネル製に比較してジルカロイ製グリッドでは加熱後のバネ力の低下が大きく高温酸化及び急冷後の摩擦力は 15 N 以下であることが示された。収縮が拘束される場合に生じる荷重の最大値は、燃料棒とグリッド間の摩擦力で決まる。ある水位まで瞬時に冠水し、その時に全てのスパンで収縮が可能であると仮定し、収縮に必要な摩擦力の合計を各スパンで求めた結果、9 段グリッドを有する集合体において、冠水後のグリッド位置で 35 N の摩擦力が生じる場合、最も厳しい拘束力は燃料棒高さ中央付近で生じる約 140 N であった。仏国においても基準見直しに際し事業者による拘束力の評価が行われた⁴⁻⁴⁷⁾。制御棒案内管と燃料棒間の温度差を基に模擬集合体体系に対し、800°C 以上で燃料棒とグリッドが機械的に拘束される条件で有限要素法解析を行い、急冷時に発生する拘束力は約 250 N と評価している。なお、事前に行った試験及び解析を基に、インコネル製グリッドとジルカロイ被覆管の間の共晶反応（及びそれによる固着）や燃料棒の曲がり起因する負荷が生じる可能性はほとんどないこと、及び可能性は低いグリッドの直上あるいは直下に被覆管の膨れが形成されれば拘束が発生する可能性があることなどを述べている。上記解析は大破断 LOCA について行っているが、半径方向の温度分布が小さく、また膨れを起こす（グリッド部で機械的に拘束される）燃料本数に対する案内管の本数が小さい中小破断 LOCA では拘束力は比較的小さいとも述べている。

上記の拘束力評価の結果（約 150–430N）はばらつきが大きい、原子力機構で行った完全拘束試験で被覆管が破断しない場合に測定された軸方向引張荷重 1400–2200 N⁴⁻³⁸⁾に比べて明らかに小さい。現実的な拘束力について代表値や上限値を特定するには至っていないが、完全拘束条件は非常に厳しい負荷条件と考えられる。

原子力機構は、拘束力の評価に関する試みとともに拘束力に依存した急冷時破断限界の変化に関する研究を行っている⁴⁻⁴⁴⁾。中間的拘束条件として 390、540、及び 735 N を完全拘束条件で生じる軸方向荷重を参考に選択し、急冷時に模擬燃料棒の上下端を拘束するが上記 3 つの荷重値を

上回らないように軸方向荷重を調整した。試験に用いた被覆管は、100–1450 ppm の水素を添加した PWR 用 17×17 タイプの Zry-4 被覆管である。なお、照射材の水側腐食による減肉を模擬し、被覆管肉厚を予め 10%減じている。中間拘束及び完全拘束条件において得られた破断条件（酸化料）を水素濃度の関数として Fig. 4-9 に示す。本試験によって、破断しきい値は拘束力及び水素濃度の増大に伴って破断限界が低下すること、100–350 ppm の水素濃度では中間拘束条件だけではなく完全拘束条件下でも 15%ECR 以下では破断しないが、800 ppm を超える水素濃度では拘束力が 500 N を大きく超える場合、破断しきい値は 15%ECR を下回る可能性があることが明らかになった。

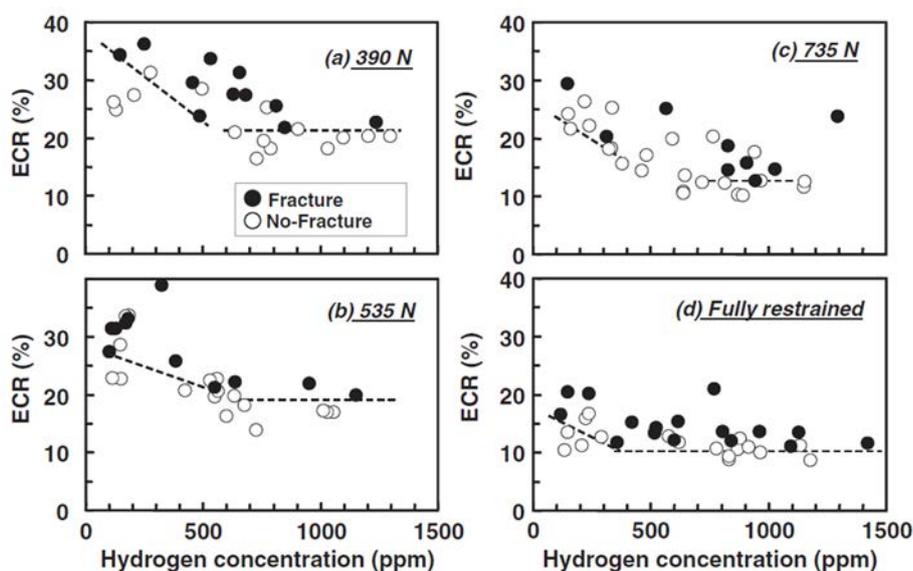


Fig. 4-9 酸化量と拘束条件に関する破断マップ⁴⁻⁴⁴⁾

以上のような急冷破断試験により評価した LOCA 時の被覆管の破断限界には、実験と評価における不確かさが存在すると考えられる。このため、被覆管の破断限界に関する評価結果が有するこれらの不確かさを定量化する研究も行われている^{4-48,49)}。求められた不確かさを基に、急冷破断確率 5%の 95%信頼水準を破断限界と定義すれば、LOCA 時の未照射 Zry-4 被覆管の破断限界酸化量は、拘束力が 540 N 以下であれば、800 ppm までの初期水素濃度の範囲で 15%ECR よりも高いことが報告されている

原子力機構は未照射被覆管を用いた試験を行って基礎データを蓄積するとともに、照射済燃料被覆管を用いた試験の準備を進めた。試験手法は未照射被覆管を用いたものと基本的に同じではある。燃料ペレットを取り除いた被覆管を用いた模擬燃料棒の作製やホットセルでの一連の LOCA 条件を模擬した試験の実施が容易ではないことから、照射済燃料被覆管を用いたデータの数は限られる。したがって、未照射被覆管を用いた試験のデータと照射済燃料被覆管を用いた試験のデータを組み合わせ、高燃焼度燃料の急冷時破損挙動を評価することとなる。

原子力機構が実施した照射済燃料被覆管に対する急冷破断試験^{4-21,50-52)}の一覧を Table 4-2 に

示す。被覆管材料は PWR 用の Zry-4、MDA、NDA、ZIRLO、M5、及び M-MDA、BWR 用の Zry-2/LK3 である。Zry-2/LK3 は、耐食性を高めるために製造時の熱処理を調整し Zry-2 中の析出物径を適正化したものである。燃焼度、原子炉照射中に生じた腐食量（腐食酸化膜厚さ）及び水素吸収量の範囲は、それぞれ 39–84 GWd/t、6–79 μm 、69–839 ppm である。国内外の発電炉等において照射された高燃焼度燃料から長さ約 190 mm の燃料棒片を採取し、大部分の燃料ペレットを取り除き、内面に薄いペレット層が残存した被覆管を試験に供した。Table 4-3 に試験条件を示す。等温酸化時間は 1030–1232°C であり、Baker–Just 式を用いて求められる酸化量の範囲は約 16–38% ECR（膨れ破裂後の被覆管金属肉厚がベース）であった。

試験は、高燃焼度燃料被覆管が 1200°C–15% ECR 以下の条件で破断しないことを確認することを主眼に置いて行われた。試験条件が 1200°C–15% ECR 近傍に多いのはこのためである。Fig. 4-10 は試験結果（破損／非破損）を酸化量（ECR）と等温酸化温度プロット上に示したものである。1030–1230°C、29.6% ECR 以下の範囲で被覆管が急冷時に破断することはなかった。すなわち、高燃焼度燃料被覆管が ECCS 性能評価指針における基準値以下で破断することは恐らくないと考えられる。Fig. 4-11 は高燃焼度燃料被覆管に対する試験結果を、水素を添加し同程度の拘束力下で急冷した未照射 Zry-4 被覆管に関する試験結果^{4-21,44,49)}とともに、酸化量（ECR）－初期水素濃度プロット上に示したものである。図中点線は未照射 Zry-4 の急冷破断限界^{4-21,44)}を、実線、濃い灰色帯及び薄い灰色帯はそれぞれ未照射 Zry-4 被覆管に対して評価した急冷破断確率 5%に関するベイズ予測分布の中央値、50%区間及び 95%区間⁴⁻⁴⁹⁾を表している。すでに述べたように、未照射 Zry-4 被覆管の破断限界は水素濃度とともに低下し、水素濃度が低い場合には 25% ECR 以上であるのに対して、水素濃度約 800 ppm では約 20% ECR にまで低下する。Fig. 4-11 が示すように、高燃焼度燃料被覆管が未照射 Zry-4 被覆管の破断限界より低い酸化条件で破断していないことから、水素吸収の影響を除き高燃焼度化の影響は非常に小さいと考えられる。また、調べた範囲での被覆管合金の変更の影響もないと考えられる。26.0、29.3 及び 37.8% ECR まで酸化させた被覆管は急冷時に破断したが、酸化量は未照射被覆管の破断限界より高く、これらの被覆管破断は未照射被覆管の結果と矛盾しない。

急冷破断試験の結果を評価する際には、膨れと腐食により減少した金属部肉厚に対し酸化量（ECR）を計算し、基準値である 15% ECR との比較を行った。結果として、評価された酸化量が 15% ECR 以下であれば局所燃焼度 84 GWd/t までの高燃焼度燃料が破断する可能性は低いことが確認できたことから、今後も一貫して用いるのであれば安全評価において上記の酸化量評価手法を用いても構わないと考えられる。なお、腐食及び高温酸化による酸化を合わせ初期の被覆管肉厚に対して酸化割合（ECR）を評価する方法があるが、この場合基準値に対して許容される酸化量が小さく、保守的であると考えられる。なお、被覆管の脆化は物理的には酸素濃度（及び水素濃度）と肉厚に依存すると考えられ⁴⁻⁵³⁾、現在使用されている被覆管より肉厚を顕著に減少させた場合には、指標及び評価手法について検討する必要がある。

Table 4-2 原子力機構が実施した照射済燃料被覆管に対する急冷破断試験 (4-21,50~52)の一覧

タイプ	試験番号	照射炉	局所燃焼度(GWd/t)	被覆管合金/タイプ	腐食酸化膜厚さ(μm)	水素濃度(ppm)	参考文献	
PWR	A3-1	高浜-3	43.9	Zry-4 17×17 タイプ	20	170	4-50)	
	A1-2		43.9		25	210		
	BL-3		39.1		18	140		
	BI-3		40.9		18	140		
	BI-5		40.9		15	120		
	BL-7		39.1		15	120		
	MDA-1		76		51	720		
MDA-2	76	62	838					
PWR	ZIR-2	ヴァンデロース-2 (スペイン)	71	ZIRLO	51	496	4-21)	
	ZIR-3	リングハルス (スウェーデン)	73	17×17 タイプ	79	764		
	MFI-1		M5	6	73			
	MFI-2	マクガイア (米国) R2 (スウェーデン)	66	17×17 タイプ	7	69		
	NDA-1		NDA	33	214			
	ZRT-1		ライプシュタット (スイス)	66	Zry-2 (LK3)	30		297
	ZRT-2	ヴァンデロース-2 (スペイン)	73	9×9 タイプ	25	182		
	MMDA-1		81	M-MDA	27	249		
	MMDA-2	グラブリン (フランス)	81	17×17 タイプ	27	227		4-51,52)
	LMFI-3		M5	10	64			
LMFI-4	84		17×17 タイプ	10	63			
PWR	LZIR-4	ヴァンデロース-2 (スペイン)	80	低スズ ZIRLO	18	144		
	LZIR-5	ライプシュタット (スイス)	80	17×17 タイプ	18	123		
	LZRT-3		Zry-2 (LK3)	39	492			
	LZRT-4	73	10×10 タイプ	35	395			
	BWR							

Table 4-3 原子力機構が実施した照射済燃料被覆管に対する急冷破断試験 (4-2.1.50~52)の結果

試験番号	破裂温度(°C)	膨れ率(%)	酸化温度(°C)	等温酸化時間(s)	酸化量(ECR%)	最大拘束力(N)	破断／非破断
A3-1	800	14.1	1176	486	29.3	498	破断
A1-2	751	27.7	1178	120	16.6	540	非破断
BL-3	820	24.3	1154	200	16.0	540	非破断
BI-3	785	13.6	1172	363	21.9	540	非破断
BI-5	755	8.0	1030	2195	21.5	540	非破断
BL-7	804	7.5	1177	543	26.0	385	破断
MDA-1	715	9.9	1207	131	18.3	350	非破断
MDA-2		6.0	1190	719	38.0	530	破断
ZIR-2	672	28.0	1200	228	27.3	518	非破断
ZIR-3	676	20.6	1186	153	20.2	519	非破断
MFI-1	780	20.1	1197	151	19.5	400	非破断
MFI-2	762	19.2	1196	229	23.6	0	非破断
NDA-1	715	8.9	1194	280	22.5	518	非破断
ZRT-1	763	17.7	1195	222	21.2	519	非破断
ZRT-2	778	20.6	1194	232	22.0	0	非破断
MMDA-1	768	26.0	1232	112	21.6	80	非破断
MMDA-2	752	34.4	1201	125	20.8	528	非破断
LMFI-3	774	27.2	1201	187	21.5	521	非破断
LMFI-4	769	23.0	1200	384	29.6	519	非破断
LZIR-4	714	39.7	1201	119	21.0	529	非破断
LZIR-5	714	42.7	1202	111	20.8	526	非破断
LZRT-3	714	13.8	1199	202	(20.0)*	525	非破断
LZRT-4	742	12.1	1201	203	(19.8)*	521	非破断

*両面酸化を仮定し評価した ECR であるが、被覆管内面の酸化が抑制されたことから実際の ECR はこれよりも小さいと考えられる。

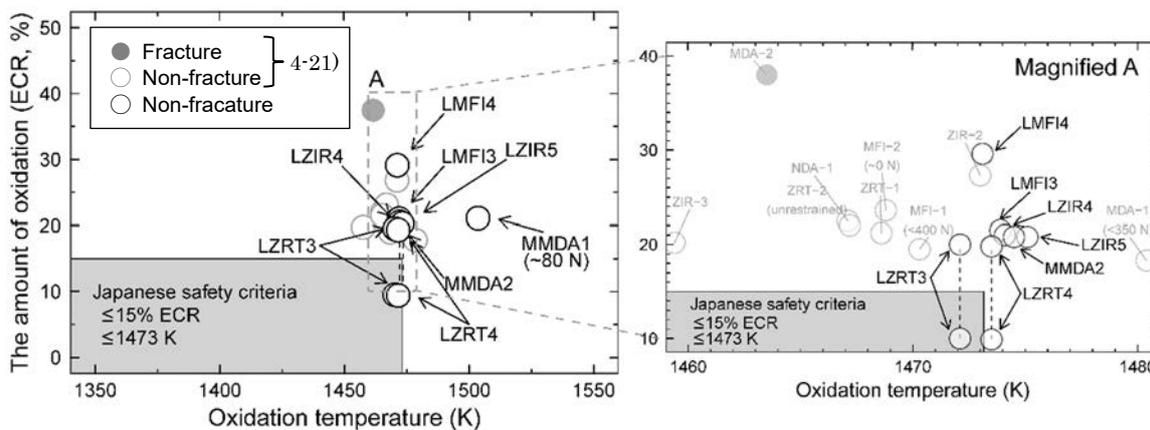


Fig. 4-10 酸化量と等温酸化温度に関する破断マップ⁴⁻⁵¹⁾

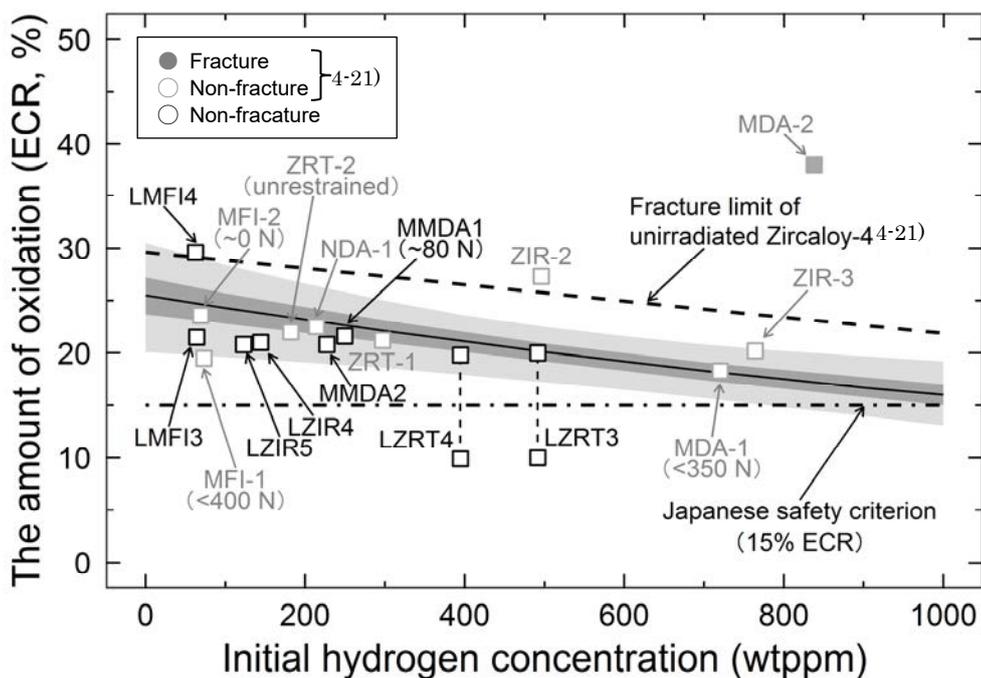


Fig. 4-11 酸化量と初期水素濃度に関する破断マップ⁴⁻⁵¹⁾

4.5 燃料ペレット細片化、軸方向移動及び燃料棒外への放出

燃料ペレットの細片化、軸方向移動及び燃料棒外への放出（FFRD）に関し、OECD/NEAのハルデン原子炉計画における炉内試験^{4-54,55)}及びNRCや米国電力研究所（EPRI）が委託したスタズビックでのホットラボ試験^{4-56,57)}等の結果を基に、OECD/NEAの原子力施設安全委員会（CSNI）の燃料安全に関するワーキンググループ（WGFS）が2016年にそれまでの知見を以下のようにとりまとめている⁴⁻⁵⁸⁾。

ハルデン炉内試験では、セグメント燃焼度約60 GWd/t以下の燃料では顕著な燃料ペレットの細片化は起こらず、約72 GWd/t以上の燃料で起こっている。スタズビック試験では約60 GWd/tの燃料では起こらず、約72 GWd/t以上の燃料で起こっている。したがって、燃料ペレット細片化のしきい値は60–70 GWd/tにあると考えられる。

燃料ペレットの細片化が起こるメカニズムは完全に明らかにはなっていない。細片化がペレット周辺部の高燃焼度組織（リム組織）で主に生じているように見えるが、FPガス気泡が高密度に析出したその他の領域でも細片化が生じているようにも見えることから、FPガス気泡の析出（数）密度と気泡内圧が細片化に関する重要な因子であると考えられる。燃焼度が燃料ペレットの細片化を決める主な因子であることは、高燃焼度化によりFPガス析出量が増大し結晶粒界の強さが低下することから説明できる。過渡時の温度上昇（ $> 750^{\circ}\text{C}$ ⁴⁻⁵⁷⁾）及び温度勾配がペレットに加わることによりFPガス析出に起因する細片化が起こると考えられるが、メカニズムが温度により異なる可能性がある。ハルデン炉内試験で行った破裂有無の影響を調べる試験から、静水圧の変化（内圧の低下）の影響は小さいと考えられる。また、被覆管の膨れによる拘束の低下が細片化を助長しているように見える。さらに、EPRIがスタズビックにて実施した試験では、事故前の燃料の出力履歴が細片化挙動に影響を及ぼす可能性を示唆しているが、明確ではない。

ハルデン炉内試験で見られた軸方向の燃料ペレット細片の移動は、90 GWd/t以上の極めて高い燃焼度を持つ燃料以外では顕著ではなかった。原理的には、ペレット細片の軸方向の移動には、被覆管の大きな膨れ、ペレット細片化、軸方向の移動を促すメカニズム（破裂時のガス流や振動）が必要である。ハルデン炉^{4-54,55)}、FR2^{4-59,60)}、PBF⁴⁻⁶¹⁻⁶³⁾における炉内実験及びスタズビックにおけるホットラボ試験から、軸方向移動が生じ得る被覆管の膨れ量は2–10%以上である。膨れ位置に多くの燃料片が移動し集積するとPCTが上昇する。これを評価するためには、細片化した燃料ペレットの被覆管膨れ位置における充填率が必要であるが、軸方向移動と同様に複数の因子の影響を受け変化し、これを評価するためのデータ及び手法整備は限られている⁴⁻⁶⁴⁻⁶⁶⁾。

破裂開口からの燃料ペレット片放出についても軸方向移動と同様の因子、さらには破裂開口部の形状や大きさに影響を受け、現状では定量的な予測を行うことは困難である。多量の燃料ペレット片が冷却材中に放出されれば、燃料片だけではなく水溶性のFPが冷却材中に放出されることになり、被ばく及びソースタームの観点で安全上の課題となり得る。また、放出された燃料片のうち、冷却材中を浮遊し循環するものは原形状よりも大幅に伝熱面積が増加していることから、冷却性は十分に確保されると判断できるが、放出された燃料片が一定位置に堆積した場合には燃料集合体の冷却性を低下させる可能性を検討する必要がある。さらに、放出された燃料片が冷却

材とともに流出し、サブプレッションプール水へ移行した場合、燃料ペレット片の崩壊熱が熱源となり、サブプレッションプール水の水温を上昇させ冷却能力に影響を及ぼす可能性がある。しかし、上に述べたように放出量に関する定量的な評価が難しいこと、放出後の挙動に関し知見がないことから、燃料ペレット片の放出による影響を評価することも難しい。燃料ペレット片の細片化が起こる燃焼度の範囲 (> 60–70 GWd/t) については比較的実験データの信頼性が高いと考えられる。現在許可されている集合体最高燃焼度 (55 GWd/t) の範囲では、設計上のペレット最高燃焼度は PWR で 71 GWd/t、BWR で 75 GWd/t であるが⁴⁻⁶⁷⁾、炉心内での燃焼度分布を考慮すると燃料ペレット細片化のしきい値を超える燃料長 (燃料ペレットの量) はあまり大きくないかもしれない⁴⁻⁶⁸⁾。NRC は燃料挙動解析コード (FRAPCON 及び FRAPTRAN) とシステム解析コード (TRACE) をカップリングさせ、FFRD 発生時のペレット片の放出量を評価している⁴⁻⁶⁹⁾。高燃焼度燃料が低燃焼度燃料に比べ低い出力で使用されるという仮定に依存するものの、この評価結果は放出される燃料片の量がさほど多くないことを示した。NRC はこの評価結果等を基に、現行の燃料設計及び燃料運用の範囲内では FFRD 現象は至急の対応を要するものではないとしている。このように、保守的な仮定や運用上の制限を基に、FFRD が炉心冷却性に及ぼす影響を保守的に評価し、当該現象が安全上の重要な課題であるか否かについて検討することは可能であろう。

4.6 LOCA 後の長期炉心冷却性

LOCA 後の長期炉心冷却性を、LOCA 時の炉心冷却性と同様に、燃料棒あるいは燃料集合体が大きく破損することがなければ炉心が冷却可能な形状を維持するという考え方に基づいて評価するのであれば、LOCA 後に燃料に加わる全ての荷重を想定する必要がある。LOCA 後に燃料棒に加わる荷重としては、温度変化に伴う熱応力や冷却材の流動に伴う負荷等も挙げることが出来るが、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故を教訓にすれば、日本国内において LOCA 後の炉内長期冷却中に燃料棒に負荷される最大の荷重は地震によるものかもしれない。

原子力機構においては、急冷破断試験と同じ手法で LOCA 条件下での膨れ、破裂、高温酸化、急冷を経験させたジルカロイ被覆管試料 (水素濃度 < 800 ppm) の強度を評価し地震時に想定される最大負荷と比較する試みが行われている⁴⁻⁷⁰⁾。この研究では、1000–1300°C で所定の時間等温酸化した模擬燃料棒を下端から冠水させ急冷し、切り出した破裂部を含む被覆管試験片 (長さ約 190 mm) を 4 点曲げ試験に供した。地震時の燃料棒の振動を考慮すれば、被覆管に生じる応力は軸方向が主である⁴⁻⁷¹⁾。最も破損しやすい位置は膨れ破裂部であり、その近傍の複雑な形状と特性変化を考えれば、膨れ破裂部の一定長さに均一な負荷を与える必要がある。原子力機構はこれらの点を考慮して 4 点曲げ試験を採用し、荷重点間で均一な曲げモーメントが得られるよう FEM 解析等を用いて被覆管試料の配置方向や支点間距離等を最適化している。4 点曲げ試験より得られた被覆管の破損時曲げモーメント (図中では maximum bending moment) と酸化量の関係を Fig. 4-12 に示す。酸化温度による破損時曲げモーメントへの影響は小さく、酸化量 (ECR) の増加に伴い、破損時曲げモーメントが低下する傾向が見られる。発電所内に装荷された燃料集合体内で生じる負荷と比較するために、旧原子力安全基盤機構 (JNES) が実験的に求めた地震時の燃料集合体変位⁴⁻⁷²⁾を基に、燃料集合体を片持ち梁と考え被覆管に生じる曲げモーメントを算出した。JNES における試験では、十分な保守性を持たせるために PWR プラントの中から最も

厳しい基準地震動 S2 に 3.3 を乗じた加速度を与えており、BWR プラントについては同様に基準地震動 S2 に 4.0 を乗じた加速度を与えている。Fig. 4-13 に示されるように、15%ECR より低い酸化量において、地震時に予想される最大の曲げモーメントは 4 点曲げ試験で得られた破損時曲げモーメントを上回ることはなかった。つまり、現行の被覆管脆化に関する ECCS 性能評価指針の基準（PCT：1200℃、酸化量：15%ECR）を満たした燃料被覆管は、上記基準地震動 S2 により生じる曲げ荷重により破損することはないと考えられる。

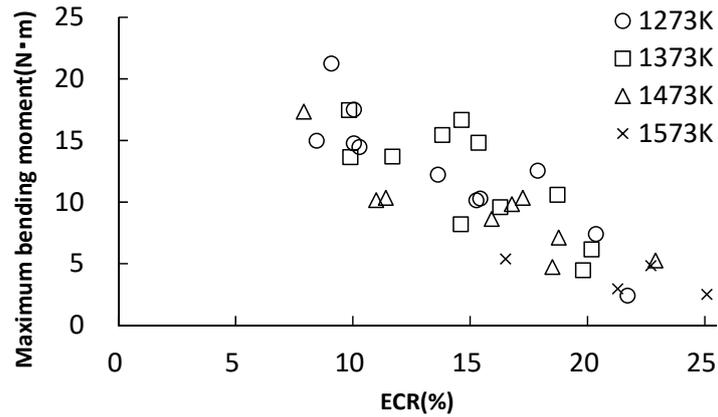
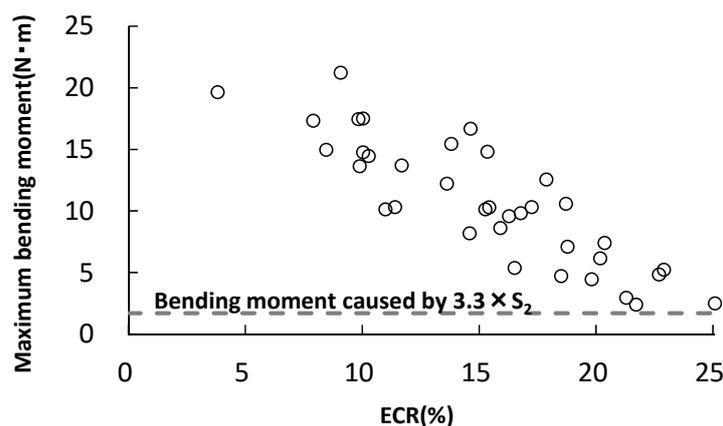
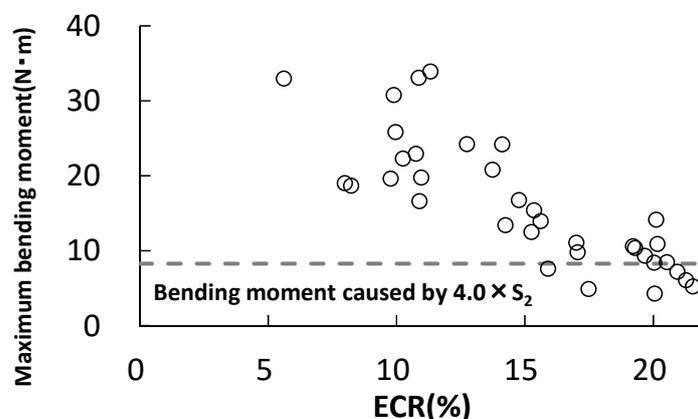


Fig. 4-12 未照射 Zry-4 被覆管の破損時曲げモーメント (maximum bending moment) と酸化量の関係 (4-70)



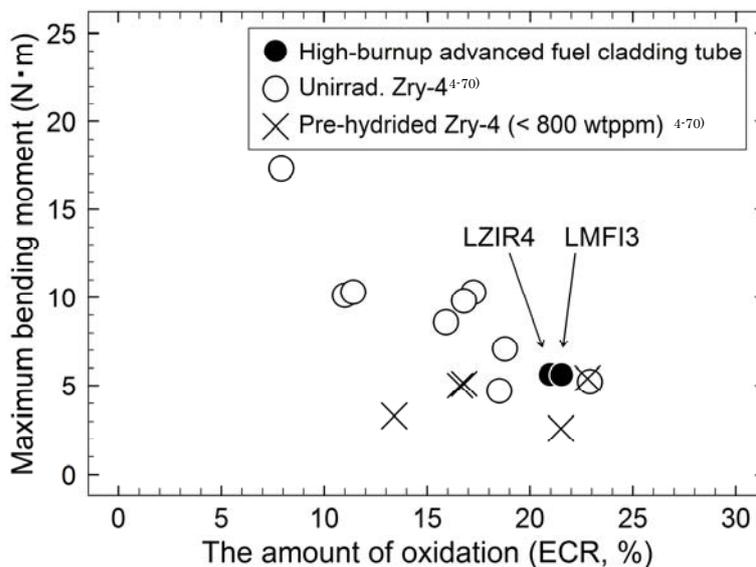
(1) 未照射 Zry-4 被覆管



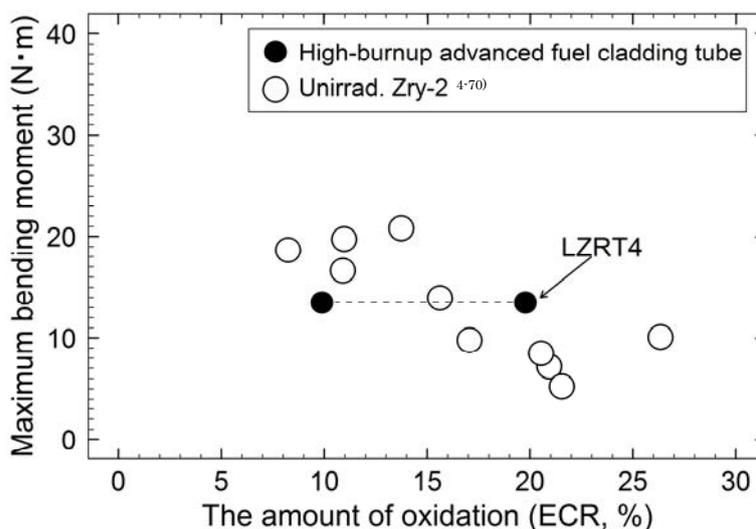
(2) 未照射 Zry-2 被覆管

Fig. 4-13 未照射 Zry-4 及び Zry-2 被覆管の破損時曲げモーメント (maximum bending moment) と設計基準地震動で生じる曲げモーメントの関係⁴⁻⁷⁰⁾

原子力機構においては、局所燃焼度約 80 GWd/t まで照射した高燃焼度燃料被覆管 (LMFI3、LZIR4、LZRT4) の破損時曲げモーメントを評価している。Fig. 4-14 は急冷破断試験と同じ手法で LOCA 条件下での膨れ、破裂、高温酸化、急冷を経験させた高燃焼度燃料被覆管の 4 点曲げ試験結果を、未照射の従来材 (Zry-4 被覆管及び Zry-2 被覆管) に関する試験結果⁴⁻⁷⁰⁾とともに、破損時曲げモーメント (maximum bending moment) - 酸化量 (ECR) プロット上に示したものである。高燃焼度燃料被覆管の破損時曲げモーメントは未照射の従来材と比べほぼ同等である。先に述べたように、高燃焼度化及び被覆管合金の変更によって高温水蒸気中の酸化速度は加速せず、急冷破断限界は著しく低下しないことを踏まえれば、水素吸収の影響を除き高燃焼度化及び被覆管合金の変更が破損時曲げモーメントに及ぼす影響は非常に小さいと考えられる。



(1) PWR 被覆管



(2) BWR 被覆管

Fig. 4-14 高燃焼度改良型燃料被覆管の破損時曲げモーメント
(maximum bending moment) ⁴⁻⁷³⁾

なお、米国においては1973年の基準制定の際に、急冷時の熱衝撃だけでなくLOCA後の全ての負荷（地震、取扱い、輸送）においても燃料の健全性を維持するためには、被覆管の延性を維持することが有効だと判断されている⁴⁻⁷⁴⁾。リング圧縮試験は炉内で予想される負荷条件に比べて明らかに厳しいと考えられるが、リング圧縮試験の結果により確認される脆化基準をLOCA基準の根拠としているのは、LOCA後に予想される様々な負荷条件下においても炉心の冷却性や燃料の健全性を維持するためであると考えられる。

1992年から1993年にかけてスウェーデン及び米国で起こったBWRでの非常用炉心冷却系ストレーナ閉塞事象^{4-75,76)}に端を発し、米国NRCの指示⁴⁻⁷⁷⁾に基づきBWRではストレーナの大型化などの対策が行われている。PWRについても、NRCは格納容器再循環サンプルスクリーン閉塞の影響評価を安全課題として取り上げ(GSI-191⁴⁻⁷⁸⁾)、産業界と共に評価を行っている。再循環モードにおいては、保温材等に起因する様々な形状の異物(デブリ)による冷却材流路の閉塞や、冷却材と格納容器内構造物や保温材との反応で生じる化学物質が燃料棒表面に析出することによる熱伝達の低下が起こり、燃料温度が上昇する可能性がある。米国のPWR事業者グループは、実験結果を基にサンプルスクリーンの閉塞をモデル化し、様々なケースにおけるPCT等への影響について評価手法と解析結果をNRCに提示している^{4-79,80)}。そこでの評価によれば、PCTへの影響は限定的であり、事業者らが定めたPCTに関する上限値800°F(約427°C)に近づくことはあるが100s以下の時間範囲である。800°F(約427°C)基準は、それ以下の温度であれば対策に必要とされる30日間での被覆管の酸化や水素吸収の程度は低く、10CFR50.46における被覆管への要求(脆化しないこと)を満たすことが実験的にも確認されるとして事業者らが定めたものである。米国においては、引き続きNRCとPWR事業者らにより調整が進められるとともに施設対応の準備が進められている。我が国においては、2008年に旧原子力安全・保安院が「非常用炉心冷却設備又は格納容器熱除去設備に係るろ過装置の性能評価等について(内規)」を定め⁴⁻⁸¹⁾、これにしたがって事業者らが施設変更等の対応を進めている。

原子力機構が行った500–1300°CにおけるZry-4被覆管の酸化試験⁴⁻⁷⁾によれば、500–800°Cにおいて長期間の酸化が続けば酸化速度が上昇する、いわゆるブレイクアウェイが起こる。温度上昇に伴いブレイクアウェイが起こるまでの時間は短くなり、500°Cにおいては7日程度、800°Cにおいては12時間程度である。一方、400°C(水蒸気中)におけるZry-2に対する試験⁴⁻⁸²⁾では、40日程度までは酸化速度や水素吸収の急激な増大は観察されていない。これらの実験結果は米国のPWR事業者らによる800°F(約427°C)基準が根拠とする実験結果と整合すると考えられる。すでに述べたように、ブレイクアウェイ酸化が生じた場合には被覆管の脆化が促進されることから注意が必要である。非常用炉心冷却系ストレーナや格納容器再循環サンプルスクリーンの閉塞への対策が施されれば、閉塞によるPCTの顕著な上昇は起こりづらいと考えられるが、その他の事象も考慮しLOCA後の長期冷却性を確保するために、被覆管の到達温度及びその温度で保持される時間等、燃料特性の変化を防ぐための目安や基準値等を設定する必要があると考える。

事故後の冷却失敗を仮定し、高温酸化及び急冷を経験した後に再び加熱されることが被覆管の酸化や脆化に及ぼす影響についても知見が得られている。原子力機構は水蒸気中、1200°Cで酸化、急冷した後に再び900–1100°Cに加熱し、リング圧縮試験により延性低下を調べている⁴⁻⁸³⁾。その結果、再加熱時の酸化は初めの酸化に比べて抑制されること、再加熱後の脆化の程度は2回の高温酸化で生じる酸化量の合計から予想されるものと同様であることが示された。すなわち、LOCA後に再加熱する影響は従来知見の範囲で評価可能である。

事故後の長期冷却性に関する基準に従えば、基本的に原子炉の安全性は確保できると考えられる。ただし、長期冷却中の燃料特性の変化を防ぎ、燃料強度や炉心冷却性を確保するために、PCTや温度上昇期間に関する定量的な指標を示すことも可能である。また、冷却系の長期信頼性を含め、長期の炉心冷却が確実に行われることの確認については検討の余地があると考えられる。

5. 高燃焼度燃料に対する現行指針の適用性

現行の ECCS 性能評価指針は、配管等の破断による原子炉冷却材喪失時に炉心の冷却可能な形状を維持しつつ事故を収束させる機能及び性能を ECCS が有することを確認するため、想定 LOCA の解析を行い、次の基準を満足することを示すよう求めている。

- (1) 燃料被覆の温度の計算値の最高値は、1,200℃以下であること。
- (2) 燃料被覆の化学量論的酸化量の計算値は、酸化反応が著しくなる前の被覆管厚さの 15% 以下であること。
- (3) 炉心で燃料被覆及び構造材が水と反応するに伴い発生する水素の量は、格納容器の健全性確保の見地から、十分低い値であること。
- (4) 燃料の形状の変化を考慮しても、崩壊熱の除去が長期間にわたって行われることが可能であること。

原子力規制庁は、最新の科学的・技術的知見の反映等、規制の継続的改善を行うこととしており⁵⁻¹⁾、また国際原子力機関 (IAEA) の総合規制評価サービス (IRRS) の報告⁵⁻²⁾を踏まえ、旧原子力安全委員会の指針等を多数引用している設計基準対象施設に係る規定については、見直す体制を整えた上で十分な検討を行い修正等の作業を行うとしている。4 章に述べたように、高燃焼度燃料の LOCA 時挙動及び当該燃料に対する上記基準の適用性に関する多くの技術的な知見が取得されてきており、欧米においては指針の見直しが進んでいる。東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故後の原子力発電を取り巻く情勢を考えれば容易ではないと考えられるが、燃料の性能向上は信頼性や安全性の向上にもつながることから、開発した改良型被覆管材料の利用を含めた新型燃料の導入が進められる可能性は十分にある⁵⁻³⁾。したがって、最後に見直しがなされてから 40 年近く経過した現行の ECCS 性能評価指針に規定される基準の見直しを検討する、あるいは高燃焼度燃料への適用性を確認する必要性はすでに高いと思われる。

高燃焼度燃料の LOCA 時挙動に関する技術的な知見に基づき、同指針の高燃焼度燃料への適用性に関して検討した結果を以下に述べる。なお、現行の ECCS 性能評価指針は、PWR 及び BWR において使用されるジルコニウム合金被覆管を対象としたものである。近年開発が進められている炭化ケイ素材等、ジルカロイ製以外の被覆管ないし従来のジルカロイと比べ大きく異なる組成を有する被覆管や大きく異なる燃料挙動を示す被覆管が使用される場合は、別途基準を検討する必要がある。

5.1 基準(1)について

被覆管温度の計算値の最高値に関する基準(1)は、基準(2)とともに、被覆管の著しい脆化を防ぐことにより LOCA 時の炉心の冷却可能な形状を維持する目的で定められたものである。1200℃以上で酸化された被覆管において、脆化と酸化量の相関が明確ではなかったこと⁵⁻⁴⁾がそもそもの根拠であり、1200℃以上で酸素固溶度が急激に増大するという後の研究成果⁵⁻⁵⁾により裏付けられた。1200℃を超えた温度範囲で延性が急激に低下することは、負荷条件が厳しく鋭敏なリング圧縮では見られることがあるが、急冷破断試験では明確に確認できない。しかし、酸化速度は温

度に関して指数関数的に増大し 1200°C以上では短時間に被覆管金属層の肉厚減少と延性低下が進むため、LOCA 解析の不確かさを考慮すれば 1200°C基準を維持することが妥当である。また、ジルコニウム合金の酸化は発熱反応であり、小さな試験片や少数の短尺被覆管を用いた実験に比べ集合体や炉心体系では熱の逃げが少なく 1200–1500°Cを超えた温度域から急激な温度上昇が観察されている^{5-6,7)}ことから、燃料破損の拡大を防ぐ意味でも本基準を維持することが妥当であるとする。ただし、1200°Cを超える温度での酸化速度、酸化量と被覆管脆化の関係、露出した燃料集合体及び炉心での酸化による温度急昇に関する評価精度が向上した場合には、1200°C基準を見直すことは可能である。

高燃焼度燃料では、細片化した燃料ペレット片が被覆管膨れ部に移動、集積することによる PCT の上昇が懸念される。現状の知見はこれを定量化するために十分とは言えない。一方で、細片化が起こる条件として例えばしきい燃焼度が徐々に明らかになってきている。関連する知見の信頼性が向上することが必要ではあるが、炉心全体について多くの燃料で影響が見込まれる場合にはこれを考慮した PCT 評価及び被覆管酸化量評価を行う必要がある。

5.2 基準(2)について

燃料被覆管の化学量論的酸化量（酸化割合：ECR）の計算値に関する基準(2)も、被覆管の著しい脆化を防ぐ目的で定められたものである。2.2 で述べたとおり、1981 年の指針改訂においては、それまでに得られた知見、すなわち、事故時に被覆管に掛かる荷重とリング圧縮試験結果の対応は不明確であることや、LOCA 時に破裂開口を生じた被覆管の内面酸化に伴う水素脆化が新知見として見出されたことなどを考慮し、LOCA 時の現象をできる限り模擬した急冷破断試験の結果⁵⁻⁸⁾等に基づき、「旧指針の基準は水素脆化や急冷時の負荷を考慮しても、なお安全余裕を含むものであり、当面、この基準を維持するのが妥当である」との判断に至っている。現在においてもこの考え方を考えるあるいは否定する知見は得られていない⁵⁻⁹⁾。したがって、本基準への適用性を判断するための手法として急冷破断試験が最も適切であり、そこで決められる酸化後の残存強度を脆化の指標として構わない。

安全評価においては被覆管温度の時間変化から ECR を評価するが、その際に基本的に Baker–Just 式⁵⁻¹⁰⁾を用いることとされている。15%ECR 基準が同式を用いた評価を基に決められたためである⁵⁻¹¹⁾。Baker–Just 式に比べ、Cathcart–Powel 等が求めた酸化速度式⁵⁻¹²⁾が実際の酸化の進行をより正確に予測するが、上記の理由から安全評価においては引き続き Baker–Just 式を用いても問題はない。Cathcart–Powel 等が求めた酸化速度式を用いて安全評価を行うことも許容されると考えるが、基準値（脆化しきい値）も Cathcart–Powel 等を用いて評価し直す必要がある。なお、Baker–Just 式は非常に高い温度域について求められたものであり、800°Cより低い温度域については非保守的になる⁵⁻¹³⁾。しかしこの温度域では酸化速度は非常に低く、15%ECR 程度に達するまでに長時間を要することから、Baker–Just 式で評価される酸化量が基準値に比べ十分に低い場合は上記の非保守性は安全上の課題ではない。1000°C以下の特定の温度で長時間酸化された場合に起こるブレイクアウェイ酸化が、酸化量の計算値が 15%ECR より小さいにも拘わらず被覆管の脆化を引き起こす可能性がある⁵⁻¹³⁾。既存炉の LOCA 条件や開発されてきた被覆管材料でブレイクアウェイ酸化が起こる条件を考えれば、ブレイクアウェイ酸化が実際に起こる

可能性は低いが、ブレイクアウェイ酸化を回避する制限を設けるか、あるいは上記の Baker-Just 式の非保守性を考慮し、1000°Cより低い温度範囲については時間を指標とした基準を加えることも一案である（基準(4)に関する検討結果を参照）。

これまでに得られた知見によれば、酸化速度に及ぼす高燃焼度化（腐食、水素吸収、照射）の影響は顕著に大きいものではない⁵⁻¹⁴⁻¹⁶⁾。通常運転中に被覆管の内外面に腐食酸化膜が形成されることにより高温酸化が抑制される傾向にあるが、温度上昇、酸化時間の増大及び膨れにより腐食酸化膜に割れが生じるとこの酸化抑制効果は間もなく消失する。したがって、腐食した被覆管についても腐食による酸化抑制効果を考慮しない酸化速度式を用いて ECR を評価すべきである。

腐食された被覆管における酸化量の評価については、膨れと炉内腐食により減少した金属部肉厚に対し高温時のみの酸化量を計算する方法と、腐食及び高温酸化の双方の酸化を合計し、初期の被覆管肉厚に対して酸化割合を評価する方法がある。米国では後者の方法で評価するよう NRC が求めているが⁵⁻¹⁷⁾、わが国においては明確な指示がない。同じ基準値（ECR）を適用すれば、後者の場合で許容される高温での酸化量が小さく、より厳しい。急冷破断試験の結果を評価する際には、膨れと腐食により減少した金属部肉厚に対し ECR を計算する前者の評価方法を用いた。この場合でも、高燃焼度燃料が現行基準値を満たしていれば LOCA 時に破断する可能性は低いことが示されている^{5-15,18,19)}。したがって、いずれの評価法を用いても現在の燃料設計及び使用環境における燃料健全性の判断において差は生じない。基準が十分な安全余裕を持っているためと考えられる。肉厚減少などの設計変更や炉内での利用環境に変更がある場合には、腐食酸化膜からも金属部への酸素拡散が起こるため高温での酸化に寄与すること^{5-20,21)}や被覆管の脆化は物理的には金属部の酸素濃度（及び水素濃度）と肉厚に依存すること⁵⁻²²⁾を考慮し、評価手法について合理的な規定を決める必要があると考えられる。

現行指針においては、ECR の計算は酸化が著しくなる前に生じた膨れ等の変形を考慮した肉厚に対して行うべきであるとされているが、この考え方についても上と同じ理由で変更する必要は無い。ただし、被覆管の膨れ破裂挙動は水素吸収の影響を受けることが明らかになっており⁵⁻¹⁸⁾、変形量を評価するモデルはこれを考慮したものに変更する必要がある。

原子力機構が行った未照射及び高燃焼度燃料被覆管を用いた急冷破断試験の結果^{5-15,18,19)}は、運転中に吸収される水素濃度の増大とともに破断条件（下限）が低下すること、調べた範囲（局所燃焼度 < 約 80 GWd/t、腐食酸化膜厚さ < 80 μm、水素濃度 < 800 ppm）では未照射材も照射材も現行基準値の範囲（PCT：1200°C以下、酸化量：15%ECR 以下）では破断せず、実験及び評価における不確かさを考慮しても十分な余裕があることを示している。なお、我が国において実用化されている、あるいは実用化が見込まれる被覆管合金（M-MDA、M5 等）の破断条件においては合金組成による明確な差は見られない。また、高燃焼度化が LOCA 時の燃料被覆管挙動に及ぼす影響因子として、水素濃度以外は顕著でない。したがって、M-MDA と M5 を含むジルコニウム合金被覆管については、現行の燃焼度規制範囲（集合体最高燃焼度 55 GWd/t）で想定される 800 ppm 以下の水素濃度範囲において、15%ECR 基準を高燃焼度燃料に適用することができる。

5.3 基準(3)について

本基準においては、炉心で燃料被覆管及び構造材が水と反応するに伴い発生する水素の量が、格納容器の健全性確保の見地から十分低い値であることを示すよう求めている。LOCA 時の水素の発生源は金属-水反応だけではない。本基準は、全水素発生量に対する金属-水反応の寄与をある限度内に抑えることができるような ECCS の性能を要求するものである。なお、水素の発生源をすべて考慮に入れた格納容器の健全性の評価については、「発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針」（平成 2 年 8 月 30 日原子力安全委員会決定）において、安全設計評価のうち格納容器内圧力及び雰囲気等の異常な変化に関する解析を行う際に参考とすべき具体的な条件及び判断基準の適用方法（解説 3.4.2）として別途示されている。

本基準「格納容器の健全性確保の見地から十分低い値であること」は定性的であることから、判断基準の例として、「金属-水反応による水素発生量の寄与をどの程度にすべきかは、原子炉、格納容器及び関連する防護施設の設計に依存しており、一義的に定めることは困難であるが、本指針にしたがって行われる解析から推定される水素発生量が、炉心の被覆管のジルカロイの全量の 1%の酸化に相当する量以下であることが適切な余裕を以って示されるならば、ECCS の性能は十分であると考えてよい」とされている。

「1%以下とする」ことの定量的な根拠は明確ではない。しかし、例えば米国や仏国では燃料棒の有効長のみ（プレナム部を除く）とするなど、水素発生量の評価で対象とする範囲は国によって異なるものの、水素発生量をジルカロイ被覆管全量の 1%の酸化に相当する量以下とすることは共通している⁵⁻²³⁾。米国ではこの 1%基準は水素の爆発限界濃度を避けるために定められたと説明されている⁵⁻²⁴⁾。新規制基準に対応した重大事故対策の有効性評価においては、炉内のジルコニウムが 75-100%酸化されたことを前提としており、その前提で格納容器破損の防止策が確認されている。これと比較すると、1%以下という量は極めて少ない量であり、水素の発生を禁ずるものではないが発生量は水素の燃焼を生じさせないレベルに抑えるべき、という考えにより保守的に定められたものと推察する。したがって、被覆管酸化により発生する水素に起因する格納容器破損の観点では「1%以下とする」という基準は十分な保守性を持って有効であると考えられる。なお、LOCA 時に燃料棒温度は軸方向に分布を持ち、基準(2) (ECR 基準) は最も厳しい位置に対するものである。本基準は炉心における全ての燃料棒に対して適用されるものであるので 2 つの基準が矛盾することはない。

5.4 基準(4)について

本基準においては、燃料の形状の変化を考慮しても、崩壊熱の除去が長期間にわたって行われることが可能であることを求めている。指針の解説においては、具体的な適用例として以下を挙げている。

- 「燃料の形状の変化を考慮しても」との要求は、炉心が冠水しているか、又は少なくとも炉心の出力密度の高い部分が冠水し、それ以外の部分の冷却も十分であるような状態が維持できることを示せば満足されたと見なす。
- 炉心から最終ヒートシンクに至るまでの熱の移動の径路が、十分な多重性又は多様性、及び独立性と性能の余裕を以って確保されており、かつ、この状態が適当な方法を講ず

れば望む時間にわたって維持し得ることが示されれば、本基準の「長期間にわたって」の炉心冷却が可能であると見なす。

これらの例は、基準(1)及び(2)を満たせば、事故後の長期冷却中においても炉心の冷却形状が失われるほどの燃料破損が起これないということを前提としている。しかし、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故等の教訓から、事故後の長期冷却時にも様々な負荷を考慮し、それによる長期炉心冷却性の維持について検討する必要がある。非常に大きな地震荷重を想定し行われた LOCA 条件を経験した被覆管に対する機械特性試験の結果^{5-25,26)}はこれに対応するものであり、基準(1)及び(2)を満たす燃料は、地震荷重によっても大きく破損する可能性は低いことを示した。したがって、本基準の前提はデータをもって確認することが出来た。なお、長期冷却後には炉心から燃料を取り出し、輸送、貯蔵等を行う必要があるが、その際にも同様の考えのもとに燃料の損傷が拡大しないよう注意を払う必要があることは言うまでもない。

LOCA 後の長期冷却中には機器の故障等による冷却能力の低下も予想される。この場合には、燃料温度の上昇が予想され被覆管の酸化及び脆化に注意を払う必要がある。LOCA 時の PCT に近い温度に達した場合には当然基準(1)及び(2)に基づいて安全性が判断されるものであるが、800°Cより低い温度で数日以上に渡って温度が上昇した場合にはブレイクアウェイ酸化による酸化の急速な進行と脆化の懸念がある⁵⁻¹³⁾。ブレイクアウェイ酸化を防ぐために、冷却の確保を求める上記の定性的な指標に加えて温度及び時間に関する定量的な指標や基準を示すことも検討すべきである。

ECCS 性能評価指針の高燃焼度燃料への対応に関する検討や改訂は、欧米においても進められている。米国、仏国及び独国における検討及び改訂の状況を付録 A に示す。

5.5 継続的な検討が必要な課題

基準(1)及び(2)は、LOCA 時の炉心の冷却性を確保することを目的に、広範な燃料集合体の破損を防ぐために被覆管が著しく脆化しない条件を規定している。安全評価においては時々刻々と変わる最高温度箇所を一点の最高温度箇所とみなして最大酸化量を評価し被覆管の脆化を判断することも含め、被覆管の脆化と炉心の冷却性の喪失の間に、現象論的及び 2 つの現象が起こる範囲に関して大きなギャップがあるように思える。LOCA 時に起こる現象についてすべてを把握すること、LOCA 時の炉内条件について十分に理解すること、及び様々な条件で起こる炉心形状の変化を考慮した炉心の冷却性を定量的に評価することが非常に難しいことが、指針制定当時の考え方を未だに踏襲している理由と考えられる。LOCA 時の炉内条件について十分に調べられ、炉心冷却性の定量的評価が可能となれば、高燃焼度燃料ペレットの FFRD の影響評価や不確かさを考慮した最適評価手法の採用においても、より合理的な規制判断が可能となるはずである。

個別には、膨れ破裂による冷却材流路閉塞による冷却性低下についても確認する必要があるかもしれない。膨れ及び破裂による冷却材流路閉塞を保守的に仮定しても炉心冷却性が確保できることが、80 年代に実験的に確認されているが (3.2 参照)、燃料体設計の変更や被覆管材質の

変更を含む高燃焼度化が、集合体体系において膨れ破裂挙動に及ぼす影響は必ずしも定量的に確認されていない。

4.5 で述べたように、高燃焼度燃料では膨れ及び破裂時に、燃料ペレットが細片化し、軸方向に移動して膨れ位置に集中し、さらには燃料棒外に放出される、いわゆる FFRD が起こる可能性がある。研究炉やホットラボ研究が進められているが、FFRD が起こる条件、FFRD が PCT や炉心冷却性等に及ぼす影響等を明らかにする必要がある。なお、燃料片の膨れ位置への集積による被覆管最高温度の上昇や燃料棒外への放出量の評価を行うためには、被覆管の膨れ破裂挙動をより精度高く予測するための知見も取得する必要がある。

仏国においては、ECCS 性能評価指針改訂にあたって事故解析に必要な代表的な配管の破断及び事故シナリオに関する検討を行っている。事故シナリオにより昇温速度や高温遷移時間等が変化し、燃料挙動に影響を及ぼす可能性があることから、同指針において原則として与えられている様々な熱水力学的な要求の妥当性についても必要に応じて確認する必要がある。

6. まとめ

現行の ECCS 性能評価指針に規定される基準は 1981 年以降、見直しがなされていない。高燃焼度燃料の LOCA 時挙動及び当該燃料に対する現行の指針の適用性に関する多くの技術的な知見が取得されてきたが、燃料の高燃焼度化の影響についての知見を指針に反映するための規制的な観点での議論がなされてこなかった。

以上を背景とし、本報告においては、我が国における ECCS 性能評価指針制定の経緯及び基準の根拠を確認しつつ、国内外における LOCA 時燃料挙動に係る最新の技術的知見を取りまとめ、同指針の高燃焼度燃料への適用性等に関する見解を述べた。主な見解は以下のとおりである。

- 被覆管最高温度及び酸化量に関する基準（1200℃及び 15%ECR）については、高燃焼度燃料に対しても基準設定のための基本的な考え方（急冷時負荷に対する耐破断性を指標とする強度基準）を変える必要はない。被覆管の短時間の脆化及び炉心温度急昇による燃料損傷の拡大を防ぐために被覆管最高温度に関する基準を維持するのが妥当である。高燃焼度化に伴う水素吸収により燃料棒の破断限界は低下するが、現行の燃焼度規制値（燃料集合体最高燃焼度 55 GWd/t）の範囲においては現在の基準は未だ裕度を有することからこれを変更する必要はない。ただし、高燃焼度化により酸化挙動や膨れ・破裂変形挙動に多少の変化が生じていることから、これらに十分注意を払って被覆管の脆化を評価すべきである。
- 東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故を教訓にすれば、LOCA 後の長期炉心冷却性についてはさらに注意深く安全性を確認する必要がある。一方で、LOCA を経験した燃料被覆管の強度に関する知見を参考にすれば、現行の脆化基準（PCT：1200℃、酸化量：15%ECR）を満たす燃料が地震荷重等により破損する可能性は小さい。このため、現時点において長期炉心冷却性に関する基準については改訂の必要はない。しかし、被覆管のブレイクアウェイ酸化発生に対する考慮等、長期冷却時の条件における燃料破損防止を目的とした定量的な基準や判断材料を追加することにより、より一層の安全性向上が図れる。
- 高燃焼度燃料においては、LOCA 時の被覆管膨れ破裂に伴うペレットの細片化、ペレット片の被覆管膨れ位置への移動や集積、及び被覆管破裂開口から冷却材中へのペレット片放出（FFRD）が発生する可能性があり、確認すべき安全上の懸念である。現在の使用条件や許可燃焼度範囲では、多くのペレット片の移動や放出は予想されないとの知見があるが、FFRD が生じる条件及び被覆管最高温度や炉心冷却性に及ぼす影響に関する知見が十分に得られた際には、ECCS 性能評価指針への反映について検討すべきである。

参考文献

第1章

- 1-1) 原子力委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針について, 昭和 50 年 5 月 13 日, 1975.
- 1-2) 原子力安全委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針, 昭和 56 年 7 月 20 日, 1981.
- 1-3) 原子力安全・保安部会 原子炉安全小委員会, PWR 燃料の高燃焼度化 (ステップ 2) 及び燃料の高燃焼度化に係る安全研究の現状と課題について, 平成 13 年 12 月 7 日, 2001.
- 1-4) 宮下俊靖, 中江延男, 緒方恵造, 馬場利和, 上村勝一郎, 松岡徹之, 垣内一雄, BWR 高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証, 日本原子力学会和文論文誌, vol. 7, no. 4, 2008, pp. 380-395.
- 1-5) Kakiuchi, K., Ohira, K., Itagaki, N., Otsuka, Y., Ishii, Y., Miyazaki, A., Irradiated behavior at high burnup for HiFi alloy, J Nucl Sci Technol, vol. 43, no. 9, 2006, pp. 1031-1036.
- 1-6) Watanabe, S., Okada, Y., Sato, D., Teshima, H., Kido, T., Shinohara, Y., Kameda, Y., Performance of M-MDA™, reliable cladding material for advanced fuel, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part I, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 186-197, on Internet.
- 1-7) Nishikawa, S., Fujii, H., Tsuchiuchi, Y., Sanjurjo, M. N., Alonso, J. M., J-Alloy™, Advanced PWR fuel cladding material (1) Program of J-Alloy™ development, Proceedings of LWR Fuel Performance Meeting/Top Fuel/WRFPM 2010, Orlando, USA, 2010, pp. 600-605, in CD-ROM.
- 1-8) Fuketa, T., Mori, Y., Sasajima, H., Ishijima, K., Fujishiro, T., Behavior of high burnup PWR fuel under a simulated RIA condition in the NSRR, Proceedings of the CSNI Specialist Meeting on Transient Behaviour of High Burnup Fuel, Cadarache, France, 1995, pp. 59-85, OECD/GD(96)197.
- 1-9) Schmitz, F., Papin, J., High burnup effects on fuel behaviour under accident conditions: the tests CABRI REP-Na, J Nucl Mater, vol. 270, no. 1-2, 1999, pp. 55-64.
- 1-10) OECD NEA Working Group on Fuel Safety, Nuclear fuel behaviour in loss-of-coolant accident (LOCA) conditions, State-of-the-art report, OECD NEA, 369p., NEA/CSNI/R(2009)15, NEA No. 6846, ISBN 978-92-64-99091-3.
- 1-11) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Performance-based emergency core cooling systems cladding acceptance criteria, Federal Register, vol. 79, no. 56, 2014, pp. 16106-16146.
- 1-12) Boutin, S., Graff, S., A new LOCA safety demonstration in France, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 440-449, on Internet.
- 1-13) Cabrera, A., Waackel, N., A strength based approach to define LOCA limits,

Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 420-429, on Internet.

第2章

- 2-1) Erbacher, F. J., Leistikow, S., A review of Zircaloy fuel cladding behavior in a loss-of-coolant accident, KfK-3973, 1985, 66p.
- 2-2) Nagase, F., Fuketa, T., Behavior of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 42, no. 2, 2005, pp. 209-218.
- 2-3) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Reactor safety study, An assessment of accident risks in U.S. commercial nuclear power plants, WASH-1400 (NUREG-75/014), 1975, 210p.
- 2-4) Baker, L., Just, L. C., Studies of metal-water reactions at high temperatures, III. Experimental and theoretical studies of the zirconium-water reaction, ANL-6548, 1962, 89p.
- 2-5) Takahashi, T., Yamate, K., Advanced fuel development for burnup extension, Proceedings of 1997 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp. 550-554.
- 2-6) Yamate, K., Oe, A., Hayashi, M., Okamoto, T., Anada, H., Hagi, S., Burnup extension of Japanese PWR fuel, Proceedings of 1997 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp. 318-325.
- 2-7) Sabol, G. P., Comstock, R. J., Schoenberger, G., Kunishi, H., Nuhfer, D. L., In-reactor fuel cladding corrosion performance at higher burnups and higher coolant temperatures, Proceedings of Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp. 397-404.
- 2-8) New acceptance criteria for emergency core-cooling systems of light-water-cooled nuclear power reactors, Nuclear Safety, vol. 15, no. 2, 1974, pp. 173-184.
- 2-9) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Acceptance criteria for emergency core cooling systems for light-water nuclear power reactors, U.S. Code of Federal Regulations, Title 10, Part 50, Section 46, 1974, amended.
- 2-10) Hobson, D. O., Rittenhouse, P. L., Embrittlement of Zircaloy clad fuel rods by steam during LOCA transients, ORNL-4758, 1972, 56p.
- 2-11) Hobson, D. O., Ductile-brittle behavior of Zircaloy fuel cladding, Proceedings of ANS Topical Meeting on Water Reactor Safety, Salt Lake City, USA, 1973, 4p.
- 2-12) Hesson, J. C., Ivins, R. O., Wilson, R. E., Nishio, K., Barnes, Jr. C. B., Laboratory simulations of cladding-steam reactions following loss-of-coolant accidents in water-cooled power reactors, ANL-7609, 1970, 38p.
- 2-13) Pawel, R. E., Oxygen diffusion in beta Zircaloy during steam oxidation, J Nucl Mater, vol. 50, 1974, pp. 247-258.

- 2-14) 三島良績, 温故知新 50 言い出し兵衛より, 日本原子力学会誌, vol. 35, no. 7, 1993, pp. 621-627.
- 2-15) 原子力委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針について, 昭和 50 年 5 月 13 日, 1975.
- 2-16) Komatsu, K., Takada, Y., Mizuta, M., Takahashi, S., The effects of oxidation temperature and slow-cooldown on ductile-brittle behavior of Zircaloy fuel cladding, Proceedings of Specialists' Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spaatind, Norway, 1976, pp. 22-23.
- 2-17) 川崎了, 軽水炉の冷却材喪失事故における燃料被覆管のふるまい, 日本金属学会会報, vol. 19, no. 6, 1980, pp. 447-452.
- 2-18) 原子力安全委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針, 昭和 56 年 7 月 20 日, 1981.
- 2-19) Uetsuka, H., Furuta, T., Kawasaki, S., Failure-bearing capability of oxidized Zircaloy-4 cladding under simulated loss-of-coolant condition, J Nucl Sci Technol, vol. 20, no. 11, 1983, pp. 941-950.

第 3 章

- 3-1) 原子力安全研究協会, 軽水炉燃料のふるまい, 実務テキストシリーズ No.3 (改訂第 5 版), 原子力安全研究協会, 2013, 317p.
- 3-2) 原子力安全委員会原子炉安全基準専門部会, 発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象における燃焼の進んだ燃料の取扱いについて, 平成 10 年 4 月, 1998.
- 3-3) OECD NEA, Nuclear fuel safety criteria technical review (second edition), NEA/CSNI/R(2012)3, 2012, 83p.
- 3-4) Sato, D., Kido, T., Mazaki, Y., In-pile behavior of M-MDATM, advanced PWR fuel cladding irradiated up to 73 GWd/t(R) in a commercial reactor, Proceedings of 2011 Water Reactor Fuel Performance Meeting (WRFPM 2011), Chengdu, China, 2011, T5-021, in CD-ROM.
- 3-5) Kitagawa, T., Takahashi, T., Shinohara, Y., Sugano, M., Kosaka, Y., Sendo, T., Post irradiation examination of fuel rods in 55GWd/t lead use assembly, Proceedings of 2005 Water Reactor Fuel Performance, Kyoto, Japan, 2005, 1016.
- 3-6) Une, K., Ishimoto, S., Terminal solid solubility of hydrogen in unalloyed zirconium by differential scanning calorimetry, J Nucl Sci Technol, vol. 41, no. 9, 2004, pp. 949-952.
- 3-7) 山中伸介, 黒田雅利, 瀬戸山大吾, ジルコニウム水素化物および水素固溶体の機械特性, 日本原子力学会和文論文誌, vol. 1, no. 4, 2002, pp. 323-327.
- 3-8) 永瀬文久, 菅野光照, 小澤正明, 小松和志, 古田照夫, ジルカロイ-4 と MDA の機械特性に及ぼす水素吸収と中性子照射の影響 (共同研究), JAERI-Research 2001-008, 2001, 70p.
- 3-9) Garde, A. M., Effects of irradiated and hydriding on the mechanical properties of Zircaloy-4 at high fluence, STP1023-EB Zirconium in the Nuclear Industry: Eighth

- International Symposium, San Diego, USA, 1989, pp. 548-569.
- 3-10) Takahashi, T., Yamate, K., Advanced fuel development for burnup extension, Proceedings of 1997 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp. 550-554.
- 3-11) Yamate, K., Oe, A., Hayashi, M., Okamoto, T., Anada, H., Hagi, S., Burnup extension of Japanese PWR fuel, Proceedings of 1997 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp. 318-325.
- 3-12) Sabol, G. P., Comstock, R. J., Schoenberger, G., Kunishi, H., Nuhfer, D. L., In-reactor fuel cladding corrosion performance at higher burnups and higher coolant temperatures, Proceedings of Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, USA, 1997, pp. 397-404.
- 3-13) Kakiuchi, K., Ohira, K., Itagaki, N., Otsuka, Y., Ishii, Y., Miyazaki, A., Irradiated behavior at high burnup for HiFi alloy, J Nucl Sci Technol, vol. 43, no. 9, 2006, pp. 1031-1036.
- 3-14) Watanabe, S., Okada, Y., Sato, D., Teshima, H., Kido, T., Shinohara, Y., Kameda, Y., Performance of M-MDA™, reliable cladding material for advanced fuel, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 186-197, on Internet.
- 3-15) Nishikawa, S., Fujii, H., Tsuchiuchi, Y., Sanjurjo, M. N., Alonso, J. M., J-Alloy™, Advanced PWR fuel cladding material (1) Program of J-Alloy™ development, Proceedings of LWR Fuel Performance Meeting/Top Fuel/WRFP 2010, Orlando, USA, 2010, pp. 600-605, in CD-ROM.
- 3-16) Garat, V., Mardon, J. P., McCoy, K., Dunn, B., M5® fulfills the new requirements by regulators, Proceedings of 2013 LWR fuel performance meeting (TopFuel 2013), Charlotte, USA, 2013, pp. 150-157, in CD-ROM.
- 3-17) Pan, G., Garde, A. M., Atwood, A. R., Performance and property of high-burnup optimized ZIRLO™ cladding, STP1543-EB Zirconium in the Nuclear Industry: 17th International Symposium, Hyderabad, India, Volume, 2015, pp. 607-627.
- 3-18) OECD NEA, Report on fuel fragmentation, relocation, dispersal, NEA/CSNI/R(2016)16, 2016, 221p.
- 3-19) Rose, K. M., Mann, C. A., Hindle, E. D., The axial distribution of deformation in the cladding of pressurized water reactor fuel rods in a loss-of-coolant accident, Nucl Technol, vol. 46, 1979, pp. 220-227.
- 3-20) Chung, H. M., Kassner, T. F., Embrittlement criteria for Zircaloy fuel cladding applicable to accident situations in light-water reactors, Summary report, NUREG/CR-1344, 1980, 168p.
- 3-21) Erbacher, F. J., Leistikow, S., A review of Zircaloy fuel cladding behavior in a loss-of-coolant accident, KfK-3973, 1985, 66p.

- 3-22) Chapman, R. H., Crowley, J. L., Longest, A. W., Hofmann, G., Zirconium cladding deformation in a steam environment with transient heating, STP681-EB Zirconium in the Nuclear Industry, 1979, pp. 393-408.
- 3-23) Kawasaki, S., Hashimoto, M., Otomo, T., Furuta, T., Uetsuka, H., Effect of burst temperature on coolant channel restriction in multirods burst tests, J Nucl Sci Technol, vol. 20, no. 3, 1983, pp. 246-253.
- 3-24) Karb, E. H., Průbmann, M., Sepold, L., Hofmann, P., Schanz, G., LWR fuel rod behaviour in the FR2 in-pile tests simulating the heatup phase of a LOCA, KfK-3346, 1983, 114p.
- 3-25) Broughton, J. M., PBF LOCA test LOC-6 fuel behavior report, NUREG/CR-3184, 1983, 59p.
- 3-26) Russcher, G. E., Cannon, L. W., Goodman, R. L., Hesson, G. E., King, L. L., McDuffie, P. N., Marshall, R. K., Nealley, C., Pilger, J. P., Mohr, C. L., Experiment operations plan for a loss-of-coolant accident simulation in the NRU reactor, NUREG/CR-1735 (PNL-3551), 1981, 136p.
- 3-27) Adroguer, B., Hueber, C., Trotabas, M., Behavior of PWR fuel in LOCA conditions – PHEBUS Test 215P, Proceedings of OECD/NEA CSNI/IAEA Specialists Meeting in Water Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-normal and Accident Conditions, Roskilde, Denmark, 1983, 14p.
- 3-28) 大友隆, 橋本政男, 川崎了, 古田照夫, 上塚寛, 冷却材喪失事故模擬条件下での模擬燃料集合体の破裂試験 (II) No. 7806 試験結果, JAERI-M 9624, 1981, 65p.
- 3-29) Grandjean, C., A state-of-the-art review of past programs devoted to fuel behavior under LOCA conditions, part2 Impact of clad swelling upon assembly cooling, SEMCA-2006-183, 2006, 125p.
- 3-30) General Electric Company, General Electric Company analytical model for loss-of-coolant analysis in accordance with 10CFR50 Appendix K, volume 2, NEDO-20566, 1976, 385p.
- 3-31) Bordelon, F. M., Collier, G., Spencer, A. C., Burman, D. L., Ohkubo, M., Yang, J. W., LOCTA IV program: Loss-of-coolant transient analysis, WCAP-8305, 1974, 130p.
- 3-32) Brachet, J. C., Portier, L., Forgeron, T., Hivroz, J., Hamon, D., Guilbert, T., Bredel, T., Yvon, P., Mardon, J. P., Jacques, P., Influence of hydrogen content on the α/β phase transformation temperatures and the thermal-mechanical behavior of Zy-4, M4 (ZrSnFeV), and M5™ (ZrNbO) alloys during the first phase of a LOCA transient, STP1423-EB Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, Annecy, France, 2002, pp. 673-701.
- 3-33) Nagase, F., Fuketa, T., Behavior of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 42, no. 2, 2005, pp. 209-218.
- 3-34) Narukawa, T., Amaya, M., The effect of oxidation and crystal phase condition on the

- ballooning and rupture behavior of Zircaloy-4 cladding tube-under transient-heating conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 53, no. 11, 2016, pp. 112-122.
- 3-35) Baker, L., Just, L. C., Studies of metal-water reactions at high temperatures, III. Experimental and theoretical studies of the zirconium-water reaction, ANL-6548, 1962, 89p.
- 3-36) Pawel, R. E., Cathcart, J. V., McKee R. A., The kinetics of oxidation of Zircaloy-4 in steam at high temperatures, *J Electrochem Sci Technol*, vol. 126, no. 7, 1979, pp. 1105-1111.
- 3-37) Kawasaki, S., Furuta, T., Suzuki, M., Oxidation of Zircaloy-4 under high temperature steam atmosphere and its effect on ductility of cladding, *J Nucl Sci Technol*, vol. 15, no. 8, 1978, pp. 589-596.
- 3-38) Nagase, F., Otomo, T., Tanimoto, M., Uetsuka, H., Experiments on high burnup fuel behavior under LOCA conditions at JAERI, Proceedings of the 2000 International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Utah, USA, 2000, 15p., in CD-ROM.
- 3-39) Furuta, T., Uetsuka, H., Kawasaki, S., Ductility loss of Zircaloy cladding by inner-surface oxidation during high temperature transient, *J Nucl Sci Technol*, vol. 18, no. 10, 1978, pp. 802-810.
- 3-40) Uetsuka, H., Furuta, T., Kawasaki, S., Zircaloy-4 cladding embrittlement due to inner surface oxidation under simulated loss-of-coolant condition, *J Nucl Sci Technol*, vol. 18, no. 9, 1981, pp. 705-717.
- 3-41) Leistikow, S., Schanz, G., The oxidation behavior of Zircaloy-4 in steam between 600 and 1600°C, *Werkst Korros*, vol. 36, 1985, pp. 105-116.
- 3-42) Billone, M., Yan, Y., Burtseva, T., Daum, R., Cladding embrittlement during postulated loss-of-coolant accidents, NUREG/CR-6967, 2008, 386p.
- 3-43) Nagase, F., Otomo, T., Uetsuka, H., Oxidation kinetics of low-Sn Zircaloy-4 at the temperature range from 773 to 1,573K, *J Nucl Sci Technol*, vol. 40, no. 4, 2003, pp. 213-219.
- 3-44) Kim, H. G., Kim, I. H., Choi, B. K., Park, J. Y., A study of the breakaway oxidation behavior of zirconium cladding materials, *J Nucl Mater*, vol. 418, 2011, pp. 186-197.
- 3-45) Mitsubishi Heavy Industries, LTD, Small Break LOCA Sensitivity Analyses for US-APWR, MUAP-07025-NP(R3), 2011.
- 3-46) Mitsubishi Heavy Industries, LTD, Large Break LOCA Code Applicability Report for US-APWR, MUAP-07011-NP(R3), 2013.
- 3-47) Uetsuka, H., Furuta, T., Kawasaki, S., Failure-bearing capability of oxidized Zircaloy-4 cladding under simulated loss-of-coolant condition, *J Nucl Sci Technol*, vol. 20, no. 11, 1983, pp. 941-950.
- 3-48) Dickson, L. W., Elder, P. H., Devaal, J. W., Irish, J. D., Yamazaki, A. R., Preliminary results of the BTF-104 experiment: An in-reactor test of fuel behaviour and fission-

- product release and transport under LOCA/LOECC conditions, Proceedings of 16th Annual Conference Canadian Nuclear Society, Saskatoon, Canada, 1995, 16p.
- 3-49) Réocreux, M., Scott de Martinville, E. F., A study of fuel behavior in PWR design basis accident: An analysis of results from the PHEBUS and EDGAR experiments, Nucl Eng Des, vol. 124, 1990, pp. 363-378.
- 3-50) Bruet, M., Janvier, J. C., FLASH experiments in SILOE reactor: Fuel rod behaviour during LOCA tests, Proceedings of OECD/NEA CSNI/IAEA Specialists Meeting in Water Reactor Fuel Safety and Fission Product Release in Off-normal and Accident Conditions, Risø National Laboratory, Denmark, 1983, pp. 52-63.
- 3-51) Siefken, L. J., Axial fuel relocation in ballooning fuel rods, Proceedings of 7th International Conference on Structure Mechanics in Reactor Technology (SMiRT-7), Chicago, USA, 1983, pp. 65-72.
- 3-52) Grandjean, C., Hache, G., Rongier, C., High burnup UO₂ fuel LOCA calculations to evaluate the possible impact of fuel relocation after burst, Proceedings of Topical Meeting on LOCA Fuel Safety Criteria, Aix-en-Provence, France, 2001, pp. 239-266.
- 3-53) Kolstad, E., Wiesenack, W., Oberländer, B., Tverberg, T., High burn-up fuel behaviour under LOCA conditions as observed in Halden experiments, IAEA-TECDOC-CD-1709, 2011, pp. 207-218.
- 3-54) OECD NEA Working Group on Fuel Safety, Nuclear fuel behaviour in loss-of-coolant accident (LOCA) conditions, State-of-the-art report, OECD NEA, 369p., NEA/CSNI/R(2009)15, NEA No. 6846, ISBN 978-92-64-99091-3.
- 3-55) OECD NEA, Safety Significance of the Halden IFA-650 LOCA Test Results, NEA/CSNI/R(2010)5, 2010, 45p.
- 3-56) Volkov, B., Wiesenack, W., McGrath, M., Tverberg, T., Halden fuel and material experiments beyond operational and safety limits, Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/ Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014), Sendai, Japan, 2014, 100140, in USB Flash Drive.
- 3-57) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Technical Basis for Revision of Embrittlement Criteria in 10 CFR 50.46, Research Information Letter 0801, 2008, 18p.
- 3-58) Flanagan, M. E., Askeljung, P., Post-test examination results from integral, high-burnup, fueled LOCA tests at Studsvik Nuclear Laboratory, NUREG-2160, 2013, 99p.
- 3-59) Narukawa, T., Status and plan of LOCA study at JAEA, Proceedings of Fuel Safety Research Meeting 2017 (FSRM 2017), Mito, Japan, 2017, 42p.
- 3-60) 原子力安全委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針, 昭和 56 年 7 月 20 日, 1981.
- 3-61) 東京電力福島原子力発電所における事故調査・検証委員会, 最終報告書, 平成 24 年 7 月 23 日, 2012.

第4章

- 4-1) Baker, L., Just, L. C., Studies of metal-water reactions at high temperatures. III. Experimental and theoretical studies of the zirconium-water reaction, ANL-6548, 1962, 89p.
- 4-2) Bostrom, W. A., The high temperature oxidation of Zircaloy in water, WAPD-104, 1954, 17p.
- 4-3) Lemmon, Jr. A. W., Studies relating to the reaction between zirconium and water at high temperatures, BMI-1154, 1957, 125p.
- 4-4) Leistikow, S., Schanz, G., The oxidation behavior of Zircaloy-4 in steam between 600 and 1600°C, Werkst Korros, vol. 36, 1985, pp. 105-116.
- 4-5) Westerman, R. E., High-temperature oxidation of zirconium and Zircaloy-2 in oxygen and water vapor, J Electrochem Soc, vol. 111, no. 2, 1964, pp. 140-147.
- 4-6) Pemsler, J. P., The kinetics and mechanism of oxide film growth of zirconium, Electrochem Technol, vol. 4, 1966, pp. 128-131.
- 4-7) Nagase, F., Otomo, T., Uetsuka, H., Oxidation kinetics of low-Sn Zircaloy-4 at the temperature range from 773 to 1,573K, J Nucl Sci Technol, vol. 40, no. 4, 2003, pp. 213-219.
- 4-8) 吉永真希夫, 熱天秤による酸化実験, JAERI-Review 2002-027, 2002, pp. 71-73.
- 4-9) Baek, J. H., Park, K. B., Jeong, Y. H., Oxidation kinetics of Zircaloy-4 and Zr-1Nb-1Sn-0.1Fe at temperatures of 700-1200°C, J Nucl Mater, vol. 335, no. 3, 2004, pp. 443-456.
- 4-10) Pawel, R. E., Cathcart, J. V., McKee, R. A., The kinetics of oxidation of Zircaloy-4 in steam at high temperatures, J Electrochem Sci Technol, vol. 126, no. 7, 1979, pp. 1105-1111.
- 4-11) Kawasaki, S., Furuta, T., Suzuki, M., Oxidation of Zircaloy-4 under high temperature steam atmosphere and its effect on ductility of cladding, J Nucl Sci Technol, vol. 15, no. 8, 1978, pp. 589-596.
- 4-12) Nagase, F., Otomo, T., Tanimoto, M., Uetsuka, H., Experiments on high burnup fuel behavior under LOCA conditions at JAERI, Proceedings of the 2000 International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Utah, USA, 2000, in CD-ROM.
- 4-13) Chuto, T., Nagase, F., Fuketa T., High temperature oxidation of Nb-containing Zr alloy cladding in LOCA conditions, Nucl Eng Technol, vol. 41, no. 2, 2009, pp. 163-170.
- 4-14) Amaya, M., Udagawa, Y., Narukawa, T., Mihara, T., Sugiyama, T., Behavior of high burnup advanced fuels for LWR during design-basis accident, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp.10-18, on Internet.
- 4-15) Amaya, M., Udagawa, Y., Narukawa, T., Mihara, T., Taniguchi, Y., Behavior of high-burnup advanced LWR fuels under accident conditions, Proceedings of Annual Topical Meeting on LWR Fuels with Enhanced Safety and Performance (TopFuel 2016), Boise, USA, 2016, pp. 53-62, in USB Flash Drive.

- 4-16) Chung, H. M., Fuel behavior under loss-of-coolant-accident situations, *Nucl Eng Technol*, vol. 37, no. 4, 2005, p. 327-362.
- 4-17) Ozawa, M., Takahashi, T., Homma, T., Goto, K., Behavior of irradiated Zircaloy-4 fuel cladding under simulated LOCA conditions, *STP1354-EB Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium*, Toronto, Canada, 2000, pp. 279-299.
- 4-18) Portier, L., Bredel, T., Brachet, J. C., Maillot, V., Mardon, J. P., Lesbros, A., Influence of long service exposures on the thermal-mechanical behavior of Zy-4 and M5 alloys in LOCA conditions, *STP1467-EB Zirconium in the Nuclear Industry: Fourteenth International Symposium*, Stockholm, Sweden, 2005, pp. 896-920.
- 4-19) Billone, M., Yan, Y., Burtseva, T., Daum, R., Cladding embrittlement during postulated loss-of-coolant accidents, *NUREG/CR-6967*, 2008, 386p.
- 4-20) Narukawa, T., Amaya, M., Oxidation behavior of high-burnup advanced fuel cladding tubes in high-temperature steam, *J Nucl Sci Technol*, vol. 56, no. 7, 2019, pp. 650-660.
- 4-21) Nagase, F., Chuto, T., Fuketa, T., Behavior of high burn-up fuel cladding under LOCA conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 46, no. 7, 2009, pp. 763-769.
- 4-22) 永瀬文久, 上塚寛, 温度遷移による高燃焼度 PWR 燃料被覆管の機械特性変化, *JAERI-Research 2002-023*, 2002, 23p.
- 4-23) Brachet, J. C., Vandenberghe-Maillot, V., Portier, L., Gilbon, D., Lesbros, A., Waeckel, N., Mardon, J. P., Hydrogen content, preoxidation, and cooling scenario effects on post-quench microstructure and mechanical properties of Zircaloy-4 and M5® alloys in LOCA conditions, *STP1505-EB Zirconium in the Nuclear Industry: 15th International Symposium*, Sunriver, USA, 2009, pp. 91-118.
- 4-24) Honma, K., Doi, S., Ozawa, M., Urata, S., Sato, T., Thermal shock behavior of PWR high-burnup fuel cladding under simulated LOCA conditions, *Proceedings of ANS Annual Meeting, Milwaukee, USA, 2001*, pp. 253-255, in CD-ROM.
- 4-25) Murata, T., Taniguchi, Y., Urata, S., Sato, T., LOCA simulation test of the cladding for high-burnup fuel, *Proceedings of ANS Annual Meeting, Milwaukee, USA, 2001*, pp. 252-253, in CD-ROM.
- 4-26) Leech, W. J., Ductility testing of Zircaloy-4 and ZIRLO cladding after high temperature oxidation in steam, *NEA/CSNI/R(2001)18*, 2001, pp. 135-143.
- 4-27) Sakurai, H., Wakashima, Y., Ito, K., Sasaki, M., Nomata, T., Tsukuda, Y., Hayashi, H., Kubota, O., Irradiation characteristics of high burnup BWR fuels, *Proceedings of 2000 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Park City, USA, 2000*, pp. 515-525.
- 4-28) Kakiuchi, K., Ohira, K., Itagaki, N., Otsuka, Y., Ishii, Y., Miyazaki, A., Irradiated behavior at high burnup for HiFi alloy, *J Nucl Sci Technol*, vol. 43, no. 9, 2006, pp. 1031-1036.
- 4-29) Böhmert, J., Dietrich, M., Linek, J., Comparative studies on high-temperature corrosion of ZrNb1 and Zircaloy-4, *Nucl Eng Des*, vol. 147, 1993, pp. 53-62.

- 4-30) Yamato, M., Nagase, F., Amaya, M., Reduction in the onset time of breakaway oxidation on Zircaloy cladding ruptured under simulated LOCA conditions, *J Nucl Mater*, vol. 445, no. 1-3, 2014, pp. 78-83.
- 4-31) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Performance-based emergency core cooling systems cladding acceptance criteria, *Federal Register*, vol. 79, no. 56, 2014, pp. 16106-16146.
- 4-32) OECD NEA, CSNI Technical Opinion Papers No. 13, LOCA criteria basis and test methodology, NEA/CSNI/R(2011)7, 2011, 43p.
- 4-33) Nagase, F., Chuto, T., Fuketa, T., Ring compression ductility of high-burnup fuel cladding after exposure to simulated LOCA conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 48, no. 11, 2011, pp. 1369-1376.
- 4-34) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Technical Basis for Revision of Embrittlement Criteria in 10 CFR 50.46, Research Information Letter 0801, 2008, 18p.
- 4-35) Bibilashvili, Y. K., Sokolov, N. B., Andreeva-Andrievskaya, L. N., Tonkov, V. Y., Salatov, A. V., Thermomechanical properties of zirconium-based alloys oxidized claddings in LOCA simulating conditions, IAEA-TECDOC-1320, 2002, pp. 186-208.
- 4-36) Yegorova, L., Lioutov, K., Smirnov, V., Goryachev, A., Chesanov, V., LOCA behavior of E110 alloy, NUREG/CP-0185, 2004, pp. 123-139.
- 4-37) Uetsuka, H., Furuta, T., Kawasaki, S., Failure-bearing capability of oxidized Zircaloy-4 cladding under simulated loss-of-coolant condition, *J Nucl Sci Technol*, vol. 20, no. 11, 1983, pp. 941-950.
- 4-38) Nagase, F., Fuketa, T., Effect of pre-hydrating on thermal shock resistance of Zircaloy-4 cladding under simulated loss-of-coolant accident conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 41, no. 7, 2004, pp. 723-730.
- 4-39) Komatsu, K., Takada, Y., Mizuta, M., Takahashi, S., The effects of oxidation temperature and slow-cooldown on ductile-brittle behavior of Zircaloy fuel cladding, *Proceedings of Specialists' Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions*, Spaatind, Norway, 1976, pp. 22-23.
- 4-40) Udagawa, Y., Nagase, F., Fuketa, T., Effect of cooling history on cladding ductility under LOCA conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 43, no. 8, 2006, pp. 844-850.
- 4-41) Forgeron, T., Brachet, J. C., Barcelo, F., Castaing, A., Hiroz, J., Mardon, J. P., Bernaudat, C., Experiment and modeling of advanced fuel rod cladding behavior under LOCA conditions: Alpha-Beta phase transformation kinetics and EDGAR methodology, STP1354-EB Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, Toronto, Canada, 2000, pp. 256-278.
- 4-42) Brachet, J. C., Portier L., Forgeronk T., Hirozk J., Hamonk D., Guilbertk T., Bredelk T., Yvonk P., Mardonk J. P., Jacquesk P.k Influence of hydrogen content on the α/β phase transformation temperatures and the thermal-mechanical behavior of Zy-4, M4

- (ZrSnFeV), and M5™ (ZrNbO) alloys during the first phase of a LOCA transient, STP1423-EB Zirconium in the Nuclear Industry: Thirteenth International Symposium, Annecy, France, 2002, pp. 673-701.
- 4-43) 瀬戸山大吾, 山中伸介, ジルコニウム-酸素-水素 3 元系計算状態図, 日本原子力学会和文論文誌, vol. 2, no. 4, 2003, pp. 452-459.
- 4-44) Nagase, F., Fuketa, T., Behavior of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 42, no. 2, 2005, pp. 209-218.
- 4-45) 小澤正明, 永瀬文久, 更田豊志, LOCA 条件における水素添加 BWR 被覆管の急冷時破断挙動, 日本原子力学会 2004 年秋の大会予稿集, 2004, p. 448.
- 4-46) 永瀬文久, 更田豊志, LOCA 条件における燃料棒-グリッド間相互作用, 日本原子力学会 2006 年秋の大会予稿集, 2006, H11, p. 388.
- 4-47) Cabrera, A., Waeckel, N., A strength based approach to define LOCA limits, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 420-429, on Internet.
- 4-48) Narukawa, T., Yamaguchi, A., Jang, S., Amaya, M., Experimental and statistical study on fracture boundary of non-irradiated Zircaloy-4 cladding tube under LOCA conditions, J Nucl Mater, vol. 499, 2018, pp. 528-538.
- 4-49) Narukawa, T., Yamaguchi, A., Jang, S., Amaya, M., Uncertainty quantification of fracture boundary of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding tube under LOCA conditions, Nucl Eng Des, vol. 331, 2018, pp. 147-152.
- 4-50) Nagase, F., Fuketa, T., Fracture behavior of irradiated Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 43, no. 9, 2006, pp. 1114-1119.
- 4-51) Narukawa, T., Amaya, M., Fracture limit of high-burnup advanced fuel cladding tubes under loss-of-coolant accident conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 57, no. 1, 2020, pp. 68-78.
- 4-52) Narukawa, T., Amaya, M., Behavior of High-Burnup Advanced LWR Fuel Cladding Tubes Under LOCA Conditions, Proceedings of International Nuclear Fuel Cycle Conference / Light Water Reactor Fuel Performance Conference (Global/Top Fuel 2019), Seattle, USA, 2019, pp. 912-921, in USB Flash Drive.
- 4-53) Hache, G., Chung, H. M., The history of LOCA embrittlement criteria, NUREG/CP-0172, 2001, pp. 205-237.
- 4-54) Kolstad, E., Wiesenack, W., Oberländer, B., Tverberg, T., High burn-up fuel behaviour under LOCA conditions as observed in Halden experiments, IAEA-TECDOC-CD-1709, 2013, pp. 207-218.
- 4-55) Volkov, B., Wiesenack, W., McGrath, M., Tverberg, T., Halden fuel and material experiments beyond operational and safety limits, Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/ Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014), Sendai, Japan, 2014, 100140, in USB Flash Drive.

- 4-56) Flanagan, M. E., Askeljung, P., Post-test examination results from integral, high-burnup, fueled LOCA tests at Studsvik Nuclear Laboratory, NUREG-2160, 2013, 99p.
- 4-57) Yueh, K., Snis, N., Mitchell, D., Munoz-Reja, C., Fuel fragmentation data review and separate effects testing, Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/ Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014), Sendai, Japan, 2014, 100117, in USB Flash Drive.
- 4-58) OECD NEA, Report on fuel fragmentation, relocation, dispersal, NEA/CSNI/R(2016)16, 2016, 221p.
- 4-59) Karb, E. H., Sepold, L., Hofmann, P., Petersen, C., Schanz, G., Zimmermann, H., KfK In-Pile Tests on LWR fuel rod behavior during the heatup phase of a LOCA, KfK-3028, 1980, 100p.
- 4-60) Karb, E. H., Prößmann, M., Sepold, L., Hofmann, P., Schanz, G., LWR fuel rod behaviour in the FR2 in-pile tests simulating the heatup phase of a LOCA, KfK-3346, 1983, 114p.
- 4-61) Cook, T. F., An evaluation of fuel rod behavior during Test LOC-11, NUREG/CR-0590, 1979, 115p.
- 4-62) Broughton, J. M., Masaon, R. E., McCardell, R. K., MacDonald, P. E., PBF LOCA test series, Test LOC-3 and LOC-5 fuel behavior report, NUREG/CR-2073, 1981, 82p.
- 4-63) Broughton, J. M., Vinjamuri, K., Hagrman, D. L., Golden, D. W., MacDonald, P. E., PBF LOCA Test LOC-6 fuel behavior report, NUREG/CR-3184, 1983, 59p.
- 4-64) Siefken, L. J., Axial fuel relocation in ballooning fuel rods, Proceedings of 7th International Conference on Structure Mechanics in Reactor Technology (SMiRT-7), Chicago, USA, 1983, pp. 65-72.
- 4-65) Swiler, L. P., Williamson, R. L., Perez, D. M., Calibration of a fuel relocation model in BISON, Proceedings of International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science & Engineering (M&C 2013), Sun Valley, USA, 2013, 12p., in USB Flash Drive.
- 4-66) Jernkvist, L. O., Massih, A. R., Modellig axial relocation of fragmented fuel pellets, Proceedings of 23rd International Conference on Structure Mechanics in Reactor Technology (SMiRT-23), Manchester, UK, 2015, 186, in USB Flash Drive.
- 4-67) 原子力安全委員会原子炉安全基準専門部会, 発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象における燃焼の進んだ燃料の取扱いについて, 平成 10 年 4 月 13 日, 1998.
- 4-68) Raynaud, P., Porter, I., Predictions of fuel dispersal during a LOCA, Proceedings of 2014 Water Reactor Fuel Performance Meeting/ Top Fuel / LWR Fuel Performance Meeting (WRFPM 2014), Sendai, Japan, 2014, 100026, in USB Flash Drive.
- 4-69) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Evaluation of fuel fragmentation, relocation and dispersal under loss-of-coolant accident (LOCA) conditions relative to the draft final rule on emergency core cooling system performance during a LOCA (50.46c), SECY-15-

- 0148, No. 30, 2015, 10p.
- 4-70) Yamato, M., Nagase, F., Amaya, M., Evaluation of fracture resistance of ruptured, oxidized, and quenched Zircaloy cladding by four-point-bend tests, J Nucl Sci Technol, vol. 51, no. 9, 2014, pp. 1125-1132.
- 4-71) 北野剛司, 燃料の LOCA 後耐震性に関する研究, 原子力規制委員会 第 7 回研究報告会資料, 2017, <http://www.nsr.go.jp/data/000196904.pdf> (参照 : 2020 年 10 月 9 日) .
- 4-72) Kennedy, R., Nie, J., Hofmayer, C., Evaluation of JNES equipment fragility tests for use in seismic probabilistic risk assessments for US Nuclear Power Plants, NUREG/CR-7040, 2011, 271p.
- 4-73) Narukawa, T., Amaya, M., Four-point-bend tests on high-burnup advanced fuel cladding tubes after exposure to simulated LOCA conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 57, no. 7, 2020, pp. 782-791.
- 4-74) U.S. Atomic Energy Commission, Rule-Making Hearing, Opinion of the Commission, Docket RM-50-1, 1973.
- 4-75) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Information Notice No. 92-85: Potential Failures of Emergency Core Cooling Systems Caused by Foreign Material Blockage, 1992.
- 4-76) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Information Notice 93-34, Supplement 1: Potential for Loss of Emergency Cooling Function due to a Combination of Operational and Post-LOCA Debris in Containment, 1993.
- 4-77) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Bulletin 96-03: Potential plugging of emergency core cooling suction strainers by debris in boiling-water reactors, 1996.
- 4-78) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Generic Safety Issue (GSI) 191, Assessment of debris accumulation on pressurized water reactor sump performance, 2005.
- 4-79) Andreychek, T. S. et al., Evaluation of long-term cooling considering particulate, fibrous and chemical debris in the recirculating fluid, WCAP-16793-NP, Revision 2, 2011, 431p.
- 4-80) Spring, J. P., Wissinger, G. J., Comprehensive analysis and test program for GSI-191 closure (PA-SEE-1090) – Thermal-hydraulic analysis of large hot leg break with simulation of core inlet blockage, WCAP-17788-NP, Vol. 4, Revision 0, 2015, 146p.
- 4-81) 経済産業省, 非常用炉心冷却設備又は格納容器熱除去設備に係るろ過装置の性能評価等について (内規) , 平成 20 年 2 月 27 日, 2008.
- 4-82) Une, K., Sakamoto, K., Matsunaga, J., Etoh, Y., Aomi, M., Itakagi, T., Sawada, K., Watanabe, H., Controlling factors in hydrogen absorption of zirconium alloys, Proceedings of Annual Topical Meeting on Water Reactor Fuel Performance (TopFuel 2012), Manchester, UK, 2012, TopFuel-A0016, in USB Flash Drive.
- 4-83) Miwa, H., Amaya, M., The effect of oxidation and quenching process during a LOCA on the behavior of the oxidation and embrittlement of Zircaloy-4 cladding under reheating transients, J Nucl Sci Technol, vol. 53, no. 12, 2016, pp. 2090-2097.

第5章

- 5-1) 原子力規制委員会原子力規制庁, 規制基準等の見直しに係る課題と対応について, <https://www.nsr.go.jp/data/000172819.pdf> (参照: 2020年10月12日) .
- 5-2) 原子力規制委員会原子力規制庁, IRRS において明らかになった課題への対応について, <https://warp.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/11402581/www.nsr.go.jp/data/000148394.pdf> (参照: 2020年10月12日) .
- 5-3) 日本原子学会軽水炉安全技術・人材ロードマップ高度活用研究専門委員会, 日本原子力学会における軽水炉安全技術・人材ロードマップローリング対応 最終報告, 2017.
- 5-4) Hobson, D. O., Rittenhouse, P. L., Embrittlement of Zircaloy clad fuel rods by steam during LOCA transients, ORNL-4758, 1972, 56p.
- 5-5) Pawel, R. E., Oxygen diffusion in beta Zircaloy during steam oxidation, J Nucl Mater, vol. 50, 1974, pp. 247-258.
- 5-6) OECD NEA, The OECD/LOFT Project: Achievements and Significant Results, Proceedings of Open Forum on the Achievements of the OECD/LOFT (Loss-of-Fluid Test) Project, Madrid, Spain, 1991, 424p.
- 5-7) Hagen, S., Hofmann, P., Noack, V., Sepold, L., Schanz, G., Schumacher, G., Impact of absorber rod material on bundle degradation seen in CORA experiments, FZK-5680, 1996, 75p.
- 5-8) Uetsuka, H., Furuta, T., Kawasaki, S., Failure-bearing capability of oxidized Zircaloy-4 cladding under simulated loss-of-coolant condition, J Nucl Sci Technol, vol. 20, no. 11, 1983, pp. 941-950.
- 5-9) OECD NEA, CSNI Technical Opinion Papers No. 13, LOCA criteria basis and test methodology, NEA/CSNI/R(2011)7, 2011, 43p.
- 5-10) Baker, L., Just, L. C., Studies of metal-water reactions at high temperatures, III. Experimental and theoretical studies of the zirconium-water reaction, ANL-6548, 1962, 89p.
- 5-11) 原子力委員会, 軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の安全評価指針について, 昭和 50 年 5 月 13 日, 1975.
- 5-12) Pawel, R. E., Cathcart, J. V., McKee, R. A., The kinetics of oxidation of Zircaloy-4 in steam at high temperatures, J Electrochem Sci Technol, vol. 126, no. 7, 1979, pp. 1105-1111.
- 5-13) Nagase, F., Otomo, T., Uetsuka, H., Oxidation kinetics of low-Sn Zircaloy-4 at the temperature range from 773 to 1,573K, J Nucl Sci Technol, vol. 40, no. 4, 2003, pp. 213-219.
- 5-14) Chuto, T., Nagase, F., Fuketa T., High temperature oxidation of Nb-containing Zr alloy cladding in LOCA conditions, Nucl Eng Technol, vol. 41, no. 2, 2009, pp. 163-170.
- 5-15) Nagase, F., Chuto, T., Fuketa, T., Behavior of high burn-up fuel cladding under LOCA conditions, J Nucl Sci Technol, vol. 46, no. 7, 2009, pp. 763-769.

- 5-16) Narukawa, T., Amaya, M., Oxidation behavior of high-burnup advanced fuel cladding tubes in high-temperature steam, *J Nucl Sci Technol*, vol. 56, no. 7 2019, pp. 650-660.
- 5-17) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Information Notice No. 98-29: Predicted Increase in Fuel Rod Cladding Oxidation, 1998.
- 5-18) Nagase, F., Fuketa, T., Behavior of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 42, no. 2, 2005, pp. 209-218.
- 5-19) Narukawa, T., Amaya, M., Fracture limit of high-burnup advanced fuel cladding tubes under loss-of-coolant accident conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 57, no. 1, 2020, pp. 68-78.
- 5-20) 永瀬文久, 上塚寛, 温度遷移による高燃焼度 PWR 燃料被覆管の機械特性変化, *JAERI-Research 2002-023*, 2002, 23p.
- 5-21) Brachet, J. C., Vandenberghe-Maillot, V., Portier, L., Gilbon, D., Lesbros, A., Waeckel, N., Mardon, J. P., Hydrogen content, preoxidation, and cooling scenario effects on post-quench microstructure and mechanical properties of Zircaloy-4 and M5® alloys in LOCA conditions, *STP1505-EB Zirconium in the Nuclear Industry: 15th International Symposium*, Sunriver, USA, 2009, pp. 91-118.
- 5-22) Chung, H. M., Fuel behavior under loss-of-coolant-accident situations, *Nucl Eng Technol*, vol. 37, no. 4, 2005, pp. 327-362.
- 5-23) OECD NEA, Fuel safety criteria in NEA member countries, *NEA/CSNI/R(2003)10*, 2003, 125p.
- 5-24) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Performance-based emergency core cooling systems cladding acceptance criteria, *Federal Register*, vol. 79, no. 56, 2014, pp. 16106-16146.
- 5-25) Yamato, M., Nagase, F., Amaya, M., Reduction in the onset time of breakaway oxidation on Zircaloy cladding ruptured under simulated LOCA conditions, *J Nucl Mater*, vol. 445, 2014, pp. 78-83.
- 5-26) Narukawa, T., Amaya, M., Four-point-bend tests on high-burnup advanced fuel cladding tubes after exposure to simulated LOCA conditions, *J Nucl Sci Technol*, vol. 57, no. 7, 2020, pp. 782-791.

付録 A LOCA 基準見直しに関する国際動向

This is a blank page.

A.1 米国の動向

本文において説明したように、米国は 1973 年に ECCS 性能評価指針 (10CFR50.46) を定めている。具体的な要求は以下の 5 項目である。

- (1) Peak cladding temperature. The calculated maximum fuel element cladding temperature shall not exceed 2200°F.
- (2) Maximum cladding oxidation. The calculated total oxidation of the cladding shall nowhere exceed 0.17 times the total cladding thickness before oxidation.
- (3) Maximum hydrogen generation. The calculated total amount of hydrogen generated from the chemical reaction of the cladding with water or steam shall not exceed 0.01 times the hypothetical amount that would be generated if all of the metal in the cladding cylinders surrounding the fuel, excluding the cladding surrounding the plenum volume, were to react.
- (4) Coolable geometry. Calculated changes in core geometry shall be such that the core remains amenable to cooling.
- (5) Long-term cooling. After any calculated successful initial operation of the ECCS, the calculated core temperature shall be maintained at an acceptably low value and decay heat shall be removed for the extended period of time required by the long-lived radioactivity remaining in the core.

1998 年に始まった米国 NRC におけるリスク情報に基づく規制の議論、及び 2000 年に始まった ECCS 性能評価指針の対象をジルカロイと ZIRLO 以外にも拡大するための性能規定化に関する議論の結果、規制委員は、ECCS 性能評価指針 (10 CFR 50.46) を含むいくつかの分野においてリスク情報に基づいて規制を実施するための準備を進める指示を行った^{A-1)}。その SRM では、ECCS 性能評価指針の性能規定化をより進めるための検討も指示された。

これを受けて NRC は、ロシアのクルチャトフ研究所との共同研究や OECD ハルデン原子炉共同プロジェクトを活用しつつ、ANL を主実施機関とした広範な高燃焼度燃料の事故時挙動に関する研究計画を実施した。この研究計画の主目的は、被覆管合金の変更と高燃焼度化が LOCA 時の被覆管脆化に及ぼす影響を評価することである。技術報告書^{A-2,3)}にとりまとめられた主な研究成果は以下のとおりである。なお、被覆管脆化に関する知見については、本文 (4.3) により詳しく記述している。

調べた改良被覆管については、被覆管脆化に及ぼす添加元素の影響は小さかったが、高燃焼度化に伴う腐食の増大の影響は明確であった。腐食に伴う水素濃度の増大によりジルコニウム中の酸素の溶解度と拡散速度が増大するために、高温酸化中に金属中に吸収される酸素量は増大する。ペレットと被覆管との間にボンディングが生じている場合には、水蒸気酸化による被覆管外面からの酸素吸収に加え、被覆管内面ではペレットからの酸素の移行が生じることが新たに判明した。また、1000°C 程度で比較的長い時間遷移する小破断 LOCA 条件においては、酸化速度が増大し多量の水素の吸収と脆化促進を伴うブレイクアウェイ酸化が起こり得ること、破裂開口周辺では内

面酸化に伴い局所的に多量の水素吸収がおこることについても本研究において確認することが出来た。

NRC はこれらの研究成果をとりまとめるとともに、それらを基に ECCS 性能評価指針の改訂案を作成し連邦官報 A⁴⁾において示した。その骨子は以下のとおりである。

- 改訂指針案は仕様規定を性能規定に置き換える。要求を満たすことを示すために、NRC が認めた評価モデルを使い、適用する燃料系（例えば UO_2/Zr 合金系）の損傷機構や特徴を考慮した性能目標や限界をもって ECCS に性能を評価することになる。
- 改訂指針案は原則的に以下の 2 つの性能要求を規定し、全ての燃料設計と被覆管材料に適用できるものである。
 - ・ LOCA 時及び LOCA 後の炉心温度は、許容性能を確保するために当該燃料設計の解析的限界を超えないこと。
 - ・ ECCS は炉心にある長半減期核種を考慮した期間の崩壊熱除去に十分な冷却材を供給すること。
- 最新の研究成果を反映し、被覆管酸化量の計算値を 17%以下に抑えるという現在の要求は、被覆管最高温度（PCT）及び実験的に求められるジルコニウム合金被覆材の脆性－延性遷移に対応する積分時間（integral time at temperature : ITT）に関する制限を規定する要求に置き換える。改訂指針では新たにブレイクアウェイに関する基準を設け、ブレイクアウェイが起こらない温度及び時間条件に至らないことを示すよう要求する。また、ブレイクアウェイ酸化が起こる条件を定期的に確認することも求める。さらに、LOCA 開始時に被覆管内面に酸素供給源がある場合には、内面からの酸素拡散も考慮することを要求する。
- 運転中に形成されるクラッドと腐食酸化膜は燃料棒から冷却材への熱伝導を低下させるものであるから、LOCA 開始時の温度分布及び蓄積エネルギーを評価するために、クラッドと腐食酸化膜による熱影響について評価することを事業者を求める。
- LOCA 後の長期冷却におけるデブリの影響を評価するために、リスク情報に基づいた手法を使用することを認める規程を設ける。改訂規則には、リスク情報活用手法やそれに必要な内容に適用する許容基準を盛り込む。さらに、改訂規則には、リスク情報活用手法に関連する報告の要求を加える。

Table A-1 に、NRC が整理した旧 LOCA 基準から新 LOCA 基準案への主な変更点 A⁵⁾を示す。指針案は性能規定化されており、性能を確認するための試験や評価の手法が示されている。試験や評価の手法は ANL 等で行われた試験の結果を基に決められており、ジルカロイや ZIRLO 等を対象とした試験の結果はそれらの被覆管に適用される基準の例として示されている。Fig. A-1 は、水素を添加した未照射被覆管や高燃焼度被覆管を用いたリング圧縮試験結果を基に決められた水素濃度を指標とする脆化基準である A⁶⁾。

NRC は上記の研究成果や指針の改訂案を基にワークショップやパブリックコメント A⁷⁾を行ったが、関連する規制活動をすぐに開始する必要性はなく通常の規則制定過程を踏むことが妥当と判断し、その後指針改定の利害に関する議論を経て、指針改訂は見送られている。なお、ペレットの細片化、移動及び放出（FFRD）に関しては、現状では至急の対応を要するものではないとされている A⁸⁾。

Table A-1 旧 LOCA 基準から新 LOCA 基準への主な変更点 A-5)

分類	項目	旧 10CFR50.46	新 10CFR50.46c
ECCS 性能評価	規程の考え方	仕様規定	性能規定
	適用被覆管材料	ジルカロイ、ZIRLO	全ての軽水炉被覆管
	高燃焼度化に関連し考慮する現象	無し	被覆管内面からの酸素侵入
	腐食に関し考慮する現象	無し	水素による脆化促進
	製造に起因し考慮する現象	無し	ブレイクアウェイ酸化
	デブリの考慮（長期冷却のための再循環）	明示無し	具体的に規定
	長期冷却に関する基準	一般的な記述	具体的に規定
	クラッドの扱い	無し	具体的に規定
リスク情報に基づく長期冷却性に対するデブリ影響の評価	リスク情報に基づくデブリの扱い	適用無し	許容

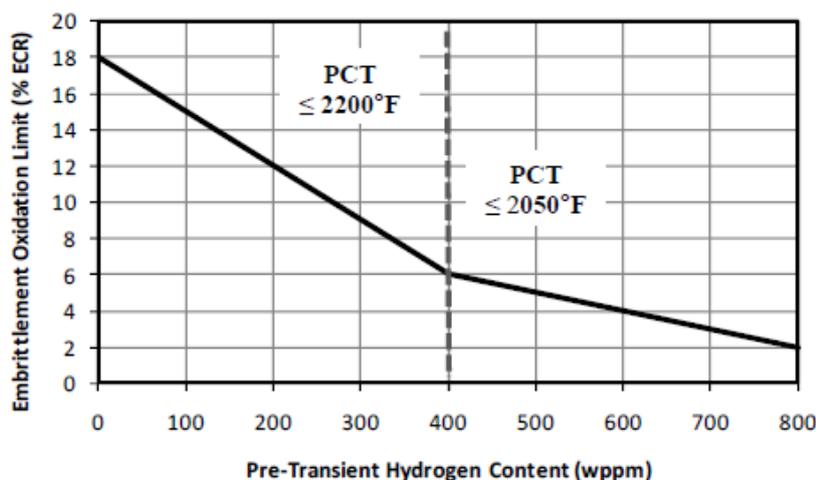


Fig. A-1 水素を添加した未照射被覆管や高燃焼度被覆管を用いたリング圧縮試験結果を基に決められた水素濃度に依存した酸化量に関する NRC の脆化基準 (ジルコニウム合金に対する基準) A-6)

A.2 仏国の動向

仏国は米国における基準及びその考え方を踏襲し、PCT と酸化量に関する基準（1204℃以下、17%ECR 以下）を含む 5 つの基準をそのままを採用した。燃料の高燃焼度化に対応し、仏国の電力事業者である EDF は 1994 年に運転中に生じる腐食を ECR の評価に考慮することとし、1999 年には当初のリング圧縮試験により求められる被覆管の残留応力に基づく安全性の評価（1204℃－17%ECR 基準を満たすことの確認）を、高温酸化後に急冷した短尺被覆管のリーク試験により評価される耐急冷破損特性に基づく評価に代えた^{A-9)}。

規制者である ASN (L'Autorité de sûreté nucléaire) は、高燃焼度燃料の LOCA 時挙動に関する新知見の拡充、モデルや計算コードの改良及び開発、並びに米国での指針改訂の動きを受けて、2008 年から ECCS 性能評価指針の見直しに関する議論を開始し 2014 年に終了した。議論においては仏国以外の研究成果も参考にされたが、国内では TSO (Technical Support Organization : 技術支援機関) である IRSN が独自に R&D を行うとともに、産学官が協力した R&D が進められ、指針見直しの議論ではその成果が活用された。

EDF は、燃料の高燃焼度化や被覆材の材質の変更の考慮に加え、膨れによる薄肉化や、破裂開口の形成に伴う二次水素化、急冷時の軸荷重等の LOCA 時に被覆管に生じる諸現象を考慮するため、被覆管の LOCA 時急冷破断強度に基づき LOCA 基準の見直しを行う提案をし、ASN はこの LOCA 基準の考え方を 2010 年に承認した^{A-10)}。すなわち、仏国は米国が定めた被覆管の脆性条件に基づく基準の考え方を改め、我が国と同じ強度に基づく基準を策定することとなった。具体的には、原子力機構が実施した未照射及び高燃焼度被覆管を対象とした拘束条件下での急冷破断試験結果を基に、EDF は水素吸収量の関数として LOCA 基準改訂案を提案した。ここで定められた基準値は、原子力機構が取得した非破断データの上限值に通常運転時の外表面腐食に伴う被覆管水素吸収量及び被覆管内外面の酸化膜厚さの関係を考慮している。この改訂案にさらに、原子力機構の試験における温度測定に係る不確かさ（原子力機構が評価した 20℃）と 2.5 倍の安全率とを安全側に考慮したしきい線を IRSN が LOCA 基準改訂案として設定し、これを ASN が 2014 年に承認した^{A-10,11)}。Fig. A-2 に EDF が提案し、ASN が承認した改訂 LOCA 基準を示す。なお、PCT 基準は従来と変更なく、1204℃である。

また、EDF から提案された上記の新しい LOCA 基準に対する ASN の見解として、

- ・追加の試験を実施し、原子炉での使用中に生じる被覆管腐食の影響及び MOX 燃料について FFRD 現象が起こるしきい燃焼度について確認すること、
- ・提案された基準が炉心の長期冷却を保証することを説明すること、

が示されている。

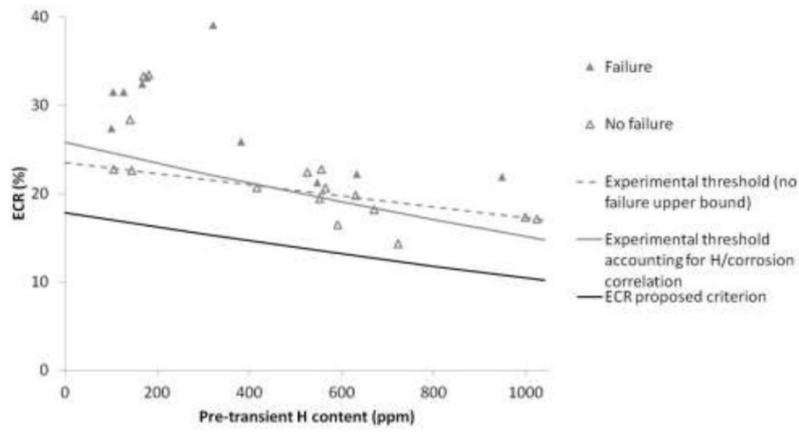


Fig. A-2 EDF が提案し、ASN が承認した被覆管酸化量に関する新しい LOCA 基準 A-10)
 (図中黒の実線が ASN が承認した新しい LOCA 基準)

A.3 独国の動向

独国では LOCA 基準の改訂作業が 2012 年に開始された。GRS (Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH ; ドイツ原子炉安全協会) は、LOCA 時の被覆管の脆化だけではなく残留強度にも着目し、通常運転中に被覆管に吸収された水素が及ぼす影響を考慮しつつ LOCA 時に被覆管に膨れ破裂が発生した箇所とそれ以外の箇所について検討を行った。この結果は以下のようにまとめられている A-12)。

- 被覆管の膨れ破裂発生箇所においては、通常運転中に被覆管に吸収された水素濃度の関数で表された脆化しきい値を適用する (Fig. A-3 中に「NRC 基準」として示す。NRC の改訂案の中で示されているジルコニウム合金に関する基準) を適用する。試験データにより適用性が示されれば、運転中の水素吸収量に加え LOCA 時の被覆管膨れ・破裂に伴う二次水素化を考慮した LOCA 模擬急冷試験での残留強度に基づく限界曲線 (Fig. A-3 中に「GRS 基準」として示す。) を使用できるものとする
- 通常運転中に被覆管に吸収された水素濃度の関数で表された上記の破断限界曲線を安全評価に適用する場合、以下の条件を遵守すること。
 - ・ LOCA 時の被覆管の高温酸化量 (ECR) の評価について、被覆管の膨れ破裂発生箇所以外においては被覆管の外表面酸化を、被覆管の膨れ破裂発生箇所においては被覆管の両面酸化を考慮すること。
 - ・ 通常運転中の腐食が被覆管の強度に及ぼす影響を考慮すること。
 - ・ 被覆管膨れ破裂部の ECR を計算することにより、この部分の断面平均としての被覆管の脆化を考慮すること。
 - ・ 通常運転中に被覆管に吸収された水素濃度の関数で表された米国 NRC 及び GRS の破断限界曲線において ECR の評価は Cathcart-Pawel の式または Leistikow の式で行われているため、これらの曲線の適用に当たっては、これらの式、または酸化量評価に係る保守性が証明されている式を使用すること。
 - ・ 通常運転中に被覆管に吸収された水素量の評価に当たっては、実験データで検証された相関式を用いること。

RSK (Reaktor- Sicherheitskommission; ドイツ原子炉安全委員会) はこの案を勧告として 2015 年に採択した A-13)。なお、PCT 基準は従来と変更なく、1200°C である。

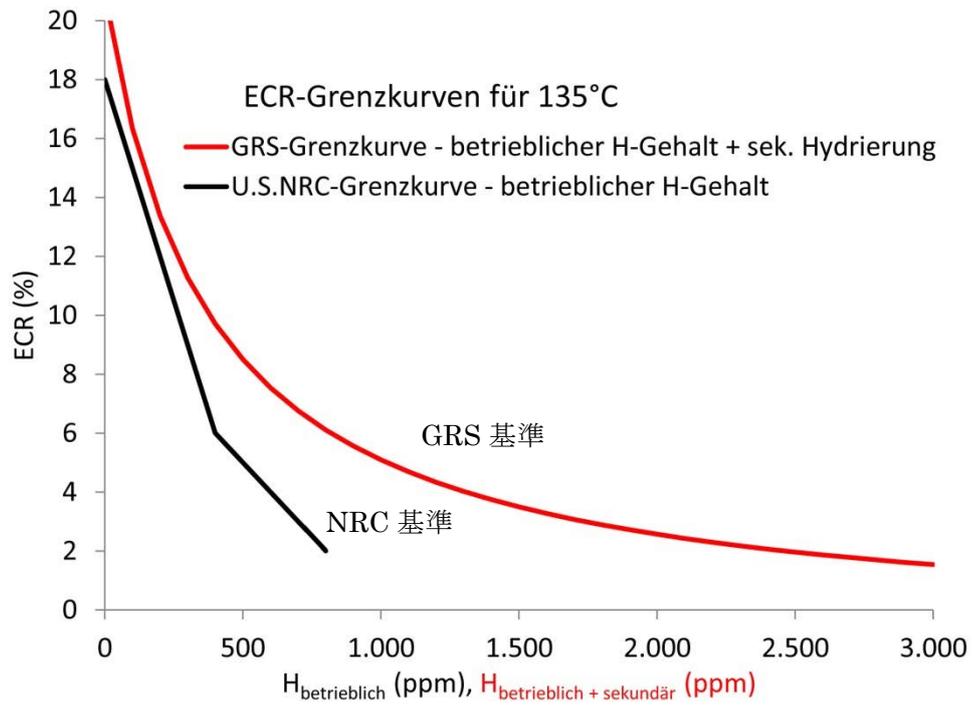


Fig. A-3 独国 RSK が定めた被覆管酸化量に関する新しい LOCA 基準 A-12)

付録 A の参考文献

- A-1) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Staff requirements – SECY-02-0057 – Update to SECY-01-0133, "Fourth status report on study of risk-informed changes to the technical requirements of CFR part 50 (Option 3) and recommendations on risk-informed changes to 10 CFR 50.46 (ECCS acceptance criteria)", 2003, 4p.
- A-2) Billone, M., Yan, Y., Burtseva, T., Daum, R., Cladding embrittlement during postulated loss-of-coolant accidents, NUREG/CR-6967, 2008, 386p.
- A-3) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Research Information Letter, Technical basis for revision of embrittlement criteria in 10 CFR 50.46, RIL-0801, 2008, 18p.
- A-4) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Performance-based emergency core cooling systems cladding acceptance criteria, Federal Register, vol. 79, no. 56, 2014, pp. 16106-16146.
- A-5) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Final draft rulemaking – 10 CFR 50.46c: Emergency core cooling system performance during loss-of-coolant accidents (RIN 3150-AH42), 2015.
- A-6) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Establishing analytical limits for zirconium-alloy cladding material, Draft regulatory guide DG-1263, 2014, 33p.
- A-7) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Draft final rule - Performance-based emergency core cooling system requirements and related fuel cladding acceptance criteria (RIN 3150-AH42), SECY-16-0033, 2016, 16p.
- A-8) U.S. Nuclear Regulatory Commission, Evaluation of fuel fragmentation, relocation and dispersal under loss-of-coolant accident (LOCA) conditions relative to the draft final rule on emergency core cooling system performance during a LOCA (50.46c), SECY-15-0148, No. 30, 2015, 10p.
- A-9) Graff, S., Boutin, S., Foucher-Taisne, A., Dubois, O., New LOCA and RIA safety criteria in France, Proceedings of 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting (WRFPM 2017), Jeju, Korea, 2017, IA-005, in USB Flash Drive.
- A-10) Cabrera, A., Waeckel, N., A strength based approach to define LOCA limits, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 420-429, on Internet.
- A-11) Boutin, S., Graff, S., A new LOCA safety demonstration in France, Proceedings of Annual Topical Meeting on Reactor Fuel Performance (TopFuel 2015), Part II, Zurich, Switzerland, 2015, pp. 440-449, on Internet.
- A-12) Reaktor-Sicherheitskommission, Nachweis einer Restduktilität/Restfestigkeit mittels einer ECR-Grenzkurve, RSK-Empfehlung (476. Sitzung der Reaktor-Sicherheitskommission), 2015, 14p.
- A-13) Herb, J., Sievers, J., Sonnenburg, H. G., Ermittlung der Festigkeit von Brennstab-

Hüllrohren aus Zry-4, M5, ZIRLO und Zry-4-low-tin anhand von Ringdruckversuchen, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH, GRS-A-3698, 2013.

This is a blank page.

付録 B English translation of the main part of report

This is a blank page.

Technical Basis of ECCS Acceptance Criteria for Light-water Reactors and Applicability to High Burnup Fuel

Fumihisa NAGASE, Takafumi NARUKAWA and Masaki AMAYA⁺

Nuclear Safety Research Center
Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

Each light-water reactor (LWR) is equipped with the Emergency Core Cooling System (ECCS) to maintain the coolability of the reactor core and to suppress the release of radioactive fission products to the environment even in a loss-of-coolant accident (LOCA) caused by breaks in the reactor coolant pressure boundary. The acceptance criteria for ECCS have been established in order to evaluate the ECCS performance and confirm the sufficient safety margin in the evaluation. The limits defined in the criteria were determined in 1975 and reviewed based on state-of-the-art knowledge in 1981. Though the fuel burnup extension and necessary improvements of cladding materials and fuel design have been conducted, the criteria have not been reviewed since then. Meanwhile, much technical knowledge has been accumulated regarding the behavior of high-burnup fuel during LOCAs and the applicability of the criteria to the high-burnup fuel. This report provides a comprehensive review of the history and technical bases of the current criteria and summarizes state-of-the-art technical findings regarding the fuel behavior during LOCAs. The applicability of the current criteria to the high-burnup fuel is also discussed.

⁺ Office for Analysis of Regulatory and International Information

Contents

1. Introduction	81
2. History, objective, and technical bases of the current Japanese ECCS acceptance criteria	83
2.1 Overview of fuel behavior under LOCA conditions	83
2.2 Current criteria and history	85
3. Technical issues for update of the criteria	90
3.1 Influence of burnup extension	90
3.2 Ballooning and rupture behavior of fuel rod	92
3.3 High-temperature oxidation of fuel cladding	93
3.4 Breakaway oxidation	95
3.5 Cladding embrittlement and fracture limit at quench	96
3.6 Fuel fragmentation, relocation and dispersal	97
3.7 Long-term core coolability after LOCA	98
4. Main findings obtained after prescription of current criteria	100
4.1 High-temperature oxidation rates of fuel cladding	100
4.2 Breakaway oxidation	105
4.3 Cladding embrittlement	106
4.4 Fracture of fuel cladding at quench	107
4.5 Fuel fragmentation, relocation and dispersal	116
4.6 Long-term core coolability after LOCA	117
5. Applicability of current criteria to high-burnup fuel	123
5.1 Regarding criterion (1)	123
5.2 Regarding criterion (2)	124
5.3 Regarding criterion (3)	126
5.4 Regarding criterion (4)	127
5.5 Issues for which continuous consideration is needed	127
6. Summary	129

1. Introduction

The Emergency Core Cooling System (ECCS) is designed and installed in light-water reactors (LWRs) in order to ensure the reactor core coolability and suppress the release of radioactive fission products by maintaining the coolable geometry of the reactor core in postulated loss-of-coolant accident (LOCA) conditions which are caused by a failure of the reactor coolant pressure boundary. The Japan Atomic Energy Commission established the “Safety evaluation criteria for emergency core cooling systems for light-water nuclear power reactors” in 1975. The Nuclear Safety Commission (NSC), launched in 1978, decided that the criteria for ECCS would be revised when additional knowledge is obtained though they continued to use the criteria. In 1981, according to the decision, the NSC reviewed the progress of related experimental and theoretical studies as well as the development of analytical technologies, and revised the criteria to establish the new “Acceptance criteria for emergency core cooling systems for light-water nuclear power reactors”. Though the revision was made, the basic consideration and the limits were not changed. In the criteria, the limits were defined on the peak cladding temperature (PCT), the degree of oxidation, the amount of hydrogen generated by reactions between metallic core components and water, and long-term removal of decay heat.

It has been over 40 years since the last revision of the ECCS acceptance criteria. During this period, the environment in which the fuel is used, the performance requirements, and the corresponding technologies for the LWR fuel have changed significantly. One of the great changes is the fuel burnup extension. As the irradiation time in the reactor increases with the burnup extension, changes in fuel properties and behavior become more remarkable due to an increase in radiation damage in the fuel component materials, the water-side corrosion and hydrogen absorption in the fuel cladding, and the generation and accumulation of fission products in the fuel pellet^{1-3,4)}. These changes may reduce the performance of the fuel. Therefore, improvement and development of cladding alloys with high corrosion resistance and changes in the fuel design have been conducted to maintain the integrity and safety even at the higher burnup^{1-3~7)}. In addition, changes in fuel failure behavior and reduction of the failure limit were observed in the experiments under reactivity-initiated accident conditions for the high-burnup fuel^{1-8,9)}, which triggered concern about the high burnup effects on the fuel behavior under LOCA conditions¹⁻¹⁰⁾. In Japan, the Japan Atomic Energy Agency (JAEA) and fuel vendors have conducted research to obtain knowledge on the fuel behavior under LOCA conditions that will be used in the safety analysis and in investigating the applicability of the current criteria to the high-burnup fuel.

Given the status that the fuel burnup has been gradually extended, that the cladding material and fuel bundle design have been correspondingly improved, and that the knowledge has been extensively accumulated on the fuel behavior under LOCA conditions, it is quite

possible to start a discussion about the applicability of the criteria to the high-burnup fuel and the revision of the ECCS acceptance criteria. Actually, the revision of the criteria to correspond to the high burnup has been discussed or conducted in France and US^{1-11~13)}. This report summarizes the technical knowledge on the fuel behavior under LOCA conditions that have been accumulated since the last revision of the criteria, and shows our view for the necessity of the revision of the criteria, reviewing the basis and discussion on the establishment of the current criteria.

2. History, objective, and technical bases of the current Japanese ECCS acceptance criteria

2.1 Overview of fuel behavior under LOCA conditions

The validity of the safety design of LWRs is currently reviewed by the Nuclear Regulation Authority (NRA), the new regulatory authority in Japan. Design Basis Accidents (DBAs) are assumed for the review to confirm that the coolable geometry of the reactor core shall be maintained without severe core damage even in accidents. One major DBA is RIAs that involve a sudden and rapid insertion of positive reactivity caused by a control rod ejection for Pressurized Water Reactors (PWRs) and by a control rod drop accident for Boiling Water Reactors (BWRs). Another major DBA is LOCAs that are caused by a failure of the reactor coolant pressure boundary and results in a decrease in the coolant level in the reactor core. LWRs are equipped with the ECCS as the safety system for LOCAs and the NRA evaluates the validity of the design based on the ECCS acceptance criteria to ensure the coolability of the reactor core during LOCAs.

The LOCA as a DBA is classified into large, medium, and small-break LOCAs. A large-break LOCA is considered to begin with the rupture of the pipes connecting the external circulating pump with the reactor vessel in a BWR and the large break in a cold leg in a PWR. Such a large-break LOCA consists of three phases: blowdown, refill, and reflooding phases. The thermal-hydraulic behavior and the fuel behavior that are expected during each phase in a PWR are briefly described below.

Fig. 2-1 shows a schematic illustration of plant conditions during a large-break LOCA in a PWR and Fig.2-2 schematically shows a change in the analyzed peak cladding temperature during a large-break LOCA in a PWR. Fuel behavior during the temperature transient is also illustrated in Fig.2-2. The blowdown phase begins with the outflow of the high-pressure and high-temperature coolant from the failure opening of the pressure boundary in the primary system. Although the subcriticality is achieved by the insertion of the control rods soon after the detection of the boundary failure, the heat generation is continued due to the decay heat from the fission products accumulated in the fuel. The fuel surface temperature begins to rise due to the heat generation and the lack of coolability. The pressure of the primary system rapidly increases toward the saturation pressure and gradually decreases, causing the boiling of the coolant. This boiling causes a complex change in the coolant flow in the reactor core. During this period, degradation and enhancement of cooling due to the departure from the nuclear boiling and the rewetting are repeated, and the cladding surface temperature changes as the cooling conditions change. The coolant inflow into the reactor core decreases with the loss of coolant, resulting in a steam atmosphere and an increase in the cladding surface temperature.

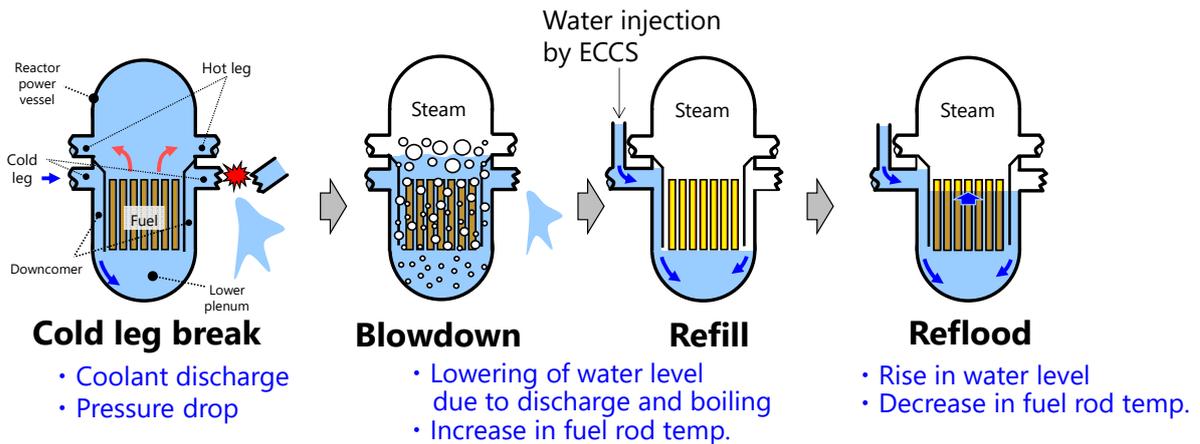


Figure 2-1 Schematic illustration of plant conditions during a large-break LOCA in a PWR.

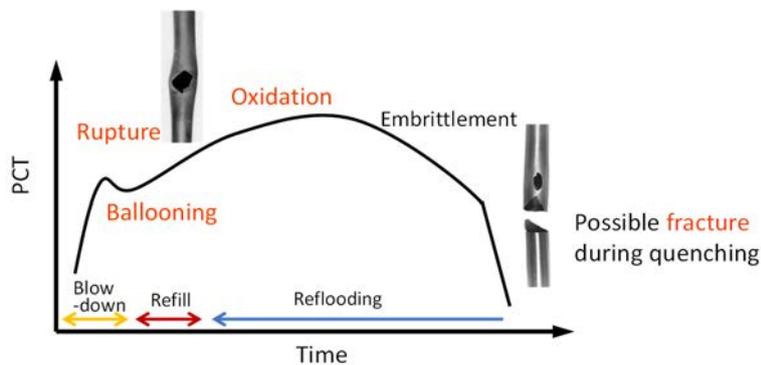


Figure 2-2 Schematic illustration of analyzed peak cladding temperature and fuel behavior during a large-break LOCA.

In the blowdown phase, upper flow at the downcomer area caused by the flow toward the failure position disturbs the downflow of the ECCS coolant to the lower plenum (By-pass of ECCS coolant). The cladding surface temperature increases until the upper flow becomes weak and the ECCS coolant begins to reach the reactor core through the lower plenum. The period from the end of the by-pass flow to the completion of flooding of the lower plenum is called the refilling phase. In the early reflooding phase following the refill phase, the fuel is gradually cooled by the two-phase flow and the cladding temperature eventually shows the turnaround. The cladding temperature slowly decreases until the fuel is quenched by the reflooding coolant.

The rod pressure becomes higher than the system pressure that decreases due to the failure of the primary coolant system. In addition, the mechanical strength of the cladding decreases with increasing temperature after the blowdown. Therefore, the fuel rod may balloon and rupture during the blowdown phase though the possibility of the rupture depends on the fuel condition before the transient including the rod pressure and the accident scenario including the temperature increase. In LWRs, zirconium-based alloys are used as the fuel cladding from

the viewpoint of neutron economy and corrosion resistance. These alloys are expected to rupture at temperatures in a range from 700°C to 1000°C, basically depending on the heat-up rate and initial rod pressure. It is also known that the circumferential increase at rupture (balloon size) changes with parameters including the rupture temperature, the heat-up rate, and the hydrogen absorption caused by the water-side corrosion ^{2-1,2)}.

Zirconium has high corrosion resistance in the coolant condition during normal reactor operation and the corrosion resistance is enhanced by appropriate alloying and heat treatment. Meanwhile, at high temperatures in a steam environment, zirconium interacts preferentially with water, which leads to very rapid oxidation accompanied by hydrogen generation. As it will be described later, when a zirconium-alloy fuel cladding oxidizes, an oxide layer grows on its surface, and oxygen and hydrogen absorption takes place in the metallic part below the oxide layer. This oxidation causes cladding wall thinning and the absorption of oxygen and hydrogen in cladding, which leads to a reduction in the ductility of the cladding. When the cladding is severely oxidized and embrittled, the fuel rod may shatter due to the thermal stress and external loading on quenching back to lower temperatures in the reflooding phase.

A large-break LOCA was mainly considered in the discussion to establish the ECCS acceptance criteria. In the revision of the criteria, requirements of analyses for considering small- and middle-break LOCAs were clearly defined based on the information on the importance of small- and middle-break LOCAs regarding risk ²⁻³⁾ and as the lessons learnt from the accident at the Three Mile Island Unit 2 reactor. The accident progress is slower in small- and middle-break LOCAs. Further, depending on the location and size of the failure in the primary system, the operation and efficiency of the depressurization and water injection and the duration of the accident would vary. Therefore, the progress of the accident is not easily classified or defined for small- and middle-break LOCAs. However, irrespective of break size, no other fuel behavior other than ballooning, rupture, high-temperature oxidation, and embrittlement of the cladding is expected.

2.2 Current criteria and history

The current ECCS acceptance criteria require that the analytical results of the postulated LOCAs satisfy the following criteria in order to confirm the function and performance of the ECCS to terminate the accidents while maintaining the coolability of the reactor core.

- (1) The calculated maximum fuel cladding temperature shall be 1200°C or less.
- (2) The calculated stoichiometry oxidation of the cladding shall be 15% or less of the total cladding thickness before significant oxidation.
- (3) The amount of hydrogen generated by the reactions of the fuel cladding and core structures with water shall be sufficiently low from the viewpoint of the integrity of the containment vessel.
- (4) Decay heat shall be removed for a sufficient period of time even if the geometry of the

fuel is changed.

Here, “the calculated stoichiometry oxidation of the cladding” means the total thickness of the cladding metal that would be locally converted to oxide if all the oxygen absorbed by and reacted with the cladding locally were converted to stoichiometric zirconium dioxide. The calculated stoichiometry oxidation is commonly referred to as “Equivalent Cladding Reacted (ECR).”

In the criteria, the following analysis conditions are shown.

- In the case that the shape change of flow channel due to deformation of the fuel cladding and so on is expected, the influence of the changes of the fluid behavior should be considered based on the experimental data. If there is not enough experimental data, assumptions should be made to have conservative results complying with the criteria.
- Since the exothermic metal-water reaction is a heat source of the fuel temperature rise, the reaction rate and the heat of reaction that were validated by comparing with experiments should be used in the analyses. In the case that the fuel cladding ruptures, it should be considered that the inner surface of the cladding near the rupture is also oxidized. The oxidation should not be limited by a shortage of steam supply.
- It should be shown that reliable physical properties, including changes associated with burnup extension, are used to analyze the fuel behavior. The oxidation of Zircaloy by the reaction with water should be calculated using the Baker–Just equation²⁻⁴⁾ and the oxidation should not be limited by a shortage of steam supply.

Although the only Zircaloy is listed as a cladding material in the current criteria, the fundamental concept of the criteria is applicable to the evaluation of functions and performance on the design of ECCS for the following reactor types: light-water-moderated light-water-cooled reactors in which the fuel with the cladding other than Zircaloy and light-water- or heavy-water-cooled pressure-tube-type reactors as described in the “positioning and scope of application” of the criteria. Zircaloy is based on Zr-Sn alloy with the addition of Fe, Cr, Ni, etc. In general, Zircaloy-2 and Zircaloy-4 have been used in BWRs and PWRs, respectively, for many years as the fuel cladding materials. Alloys with compositions exceeding the standards of Zircaloy have also been implemented. The new alloys implemented in Japan are MDA (Zr-0.8Sn-0.21Fe-0.1Cr-0.5Nb)²⁻⁵⁾, NDA (Zr-1.0Sn-0.27Fe-0.16Cr-0.01Ni-0.1Nb)²⁻⁶⁾, and ZIRLO (Zr-1.0Sn-1.0Nb-0.1Fe)²⁻⁷⁾.

The ECCS acceptance criteria were established in 1973 in the U.S. in advance of Japan^{2-8,9)}. Although various experimental data obtained before the establishment were referred at that time, the main basis for the criteria was the results of the experiments conducted by Hobson and Rittenhouse^{2-10,11)}. They conducted ring-compression tests at 20°C to 150°C with the Zircaloy-4 cladding oxidized on both internal and external surfaces at 927°C to 1315°C and

then showed a ductile-brittle transition condition on the correlation between oxidation temperature and the amount of oxidation (actually remained metallic thickness). Finally, after considering other experimental data^{2-12,13)}, it was concluded that the cladding becomes brittle when the amount of oxidation calculated using the Baker–Just equation²⁻⁴⁾ exceeds 17% ECR for the oxidation temperature range $\leq 1204^{\circ}\text{C}$ (2200°F) (Zero ductility criteria). For the temperature range over 1204°C , the amount of oxidation that corresponds to the ductile-to-brittle transition was not clearly identified, and consequently, the oxidation limit for ensuring the ductility of the cladding was not determined. The later studies²⁻¹³⁾ showed a sudden increase in a solid solution of oxygen in Zircaloy was the cause of the cladding embrittlement by short-term oxidation above approximately 1200°C .

When the ECCS acceptance criteria were established in the U.S., they discussed possible mechanical loads during and after accidents. However, it was impossible to judge whether mechanical loads greater than the thermal shock during the quench phase might be applied to the fuel and to estimate the loads. Therefore, based on the ductile to brittle transition condition obtained from the ring-compression tests under relatively severe loading conditions, the following five criteria, including two embrittlement criteria, were established.

(1) Peak cladding temperature.

The calculated maximum fuel element cladding temperature shall not exceed 2200°F (1204°C).

(2) Maximum cladding oxidation.

The calculated total oxidation of the cladding shall nowhere exceed 0.17 times the total cladding thickness before oxidation.

(3) Maximum hydrogen generation.

The calculated total amount of hydrogen generated from the chemical reaction of the cladding with water or steam shall not exceed 0.01 times the hypothetical amount that would be generated if all of the metal in the cladding cylinders surrounding the fuel, excluding the cladding surrounding the plenum volume, were to react.

(4) Coolable geometry.

Calculated changes in core geometry shall be such that the core remains amenable to cooling.

(5) Long-term cooling.

After any calculated successful initial operation of the ECCS, the calculated core temperature shall be maintained at an acceptably low value and decay heat shall be removed for the extended period of time required by the long-lived radioactivity remaining in the core.

The above criteria (1) and (2) are related to cladding embrittlement and based on the conservative consideration that, if the cladding keeps some ductility, the fuel will not be so significantly damaged, which ensures the coolable geometry of the reactor core, and

consequently the fuel will also withstand loading under various post-accident circumstances including transportation.

Other countries follow the U.S. in establishing their ECCS acceptance criteria based on the results from the ring compression tests. In Japan, discussions were started at almost the same time as in the U.S., and at the meeting of OECD/NEA in 1972, they proposed the necessity of the oxidation criterion as well as the PCT criterion, based on the domestic discussion²⁻¹⁴). The former Japanese ECCS acceptance criteria, including the PCT limit $\leq 1200^{\circ}\text{C}$ and the ECR limit $\leq 15\%$, were eventually established in 1975²⁻¹⁵) based on a comprehensive evaluation of the knowledge that had been obtained. The objective of the criteria is to keep some degree of ductility of the fuel cladding and to finally ensure the coolable geometry of the reactor core, as in the U.S. However, the oxidation limit is 2% lower than that of the U.S. It has been explained that a safety margin of about 10% was taken into account considering the accuracy and reliability of the experimental data²⁻¹⁴). After the establishment of the criteria in the U.S., an experiment showed that slower cooling before the quenching process enhanced the reduction of the cladding ductility²⁻¹⁶). This result might have been considered in the determination of the 15% ECR limit since such slower cooling rates are expected in the accident analysis for commercial reactors.

The ECCS acceptance criteria were revised in 1981²⁻¹⁸). They discussed the correlation between the actual loading conditions applied to the cladding in LOCAs and the ring compression test conditions. Further, they paid attention to secondary hydriding caused by the inner surface oxidation of the cladding around the rupture opening. Considering the updated information, they reviewed the embrittlement criteria from the viewpoint of the fracture boundary of the cladding obtained by the semi-integral quench tests in which short test rods are exposed to LOCA-simulated conditions²⁻¹⁹). Considering that a fracture boundary determined by the semi-integral thermal shock tests can be used to preserve coolable geometry of the reactor core and confirming that the fracture boundary obtained by the tests was higher than the 1200°C -15% ECR criteria²⁻¹⁹), they concluded that the criteria used at that time still had a safety margin even considering the hydrogen embrittlement and the thermal shock and that it is reasonable to maintain the criteria. Accordingly, the limits on the PCT and oxidation were not changed in the revision, though the basis was changed to the fracture boundary of the fuel against the thermal shock, which is considered to be the most important factor affecting fuel integrity in LOCAs.

The semi-integral thermal shock test is a laboratory-scale test. In this test, a short test rod is exposed to LOCA-simulated conditions including a high-temperature transient in the steam atmosphere (corresponding to the blowdown and refill phases) and quench (corresponding to the reflooding phase)²⁻¹⁹). Under the LOCA-simulated conditions, the test rod experiences ballooning, rupture, oxidation, secondary hydriding, and loading including the thermal shock. Therefore, the test enables to determine boundary conditions of the cladding failure varying

the oxidation temperature, oxidation time, the amount of oxidation, axial restraint condition on quench, etc. ²⁻²⁾ The pioneering tests²⁻¹⁹⁾, which were referred to in the revision of the criteria, showed that the fuel rod failure unlikely occurs below about 19% ECR even under very severe loading conditions. Consequently, the Japanese embrittlement criterion is based on the resistance to thermal stress and other mechanical loadings (strength criteria). This is in contrast to the embrittlement criteria based on the ductile to brittle transition obtained from the ring compression tests.

3. Technical issues for update of the criteria

3.1 Influence of burnup extension

The industry has been aiming at the advanced utilization of LWRs by extending the fuel burnup, uprating the power, and extending the operating cycle length, etc. Fuel burnup has been gradually extended together with the development and improvement of the fuel technology and design since the fuel burnup extension is of benefit to the industry in terms of the efficient use of uranium resources, the reduction of the spent fuel, and the improvement of the economic efficiency³⁻¹⁾. The licensed average assembly burnup for the UO₂ fuel is 55 GWd/t⁶ in Japan, which is much higher than that licensed when the 1200°C-15% ECR criteria were originally established (40 GWd/t)³⁻³⁾.

The burnup extension causes various phenomena and property changes in the fuel rod as shown in Fig. 3-1. Major changes in the fuel cladding are the accumulation of radiation damage, remarkable corrosion, and hydrogen uptake associated with the corrosion. The corrosion layer grows up to 100 µm in conventional Zircaloy at a local burnup of 50 GWd/t³⁻⁴⁾, though the extent of the corrosion depends on operational conditions, the axial location in the fuel rod, and the cladding alloy. Since the initial cladding thickness is 0.70 to 0.86 mm for the BWR fuel and 0.57 to 0.62 mm for the PWR fuel, corrosion of 100 µm corresponds to a reduction in the cladding thickness of more than 10%. A part of hydrogen generated during the corrosion (< 20%) is absorbed by the cladding. It has been reported that the hydrogen concentration increases to about 800 ppm in the Zircaloy cladding irradiated over 50 GWd/t (average burnup)³⁻⁵⁾. The solid solubility of hydrogen in Zircaloy is less than 0.1 ppm at room temperature and about 60 ppm at 300°C³⁻⁶⁾. Therefore, almost all the absorbed hydrogen precipitates as hydrides during the reactor shutdown, and a large part of hydrides precipitate during the operation. The ductility of hydrides decreases with decreasing temperature and becomes brittle at room temperature³⁻⁷⁾, and the ductility of the cladding containing a certain amount of hydrides is relatively low at lower temperatures^{3-8,9)}.

⁶ For the fuel assembly with an average burnup of 55 GWd/t, the rod average burnup is conservatively estimated to be about < 66 GWd/t for BWRs and < 61 GWd/t for PWRs, while the pellet peak burnup is conservatively estimated to be about < 75 GWd/t for BWRs and < 71 GWd/t for PWRs³⁻²⁾.

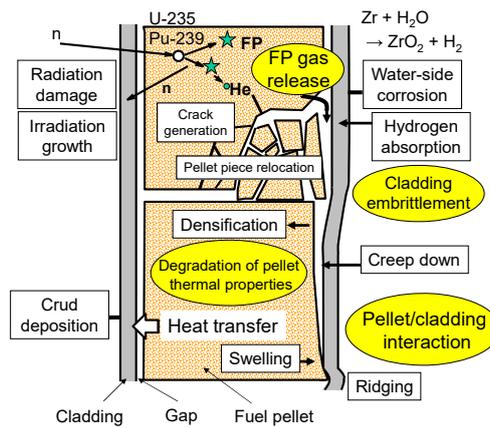


Figure 3-1 Various phenomena and property changes in the fuel rod with burnup extension.

In the LOCA, the cladding reacts with steam to form a surface oxide layer and causes a diffusion and an increase in concentration of oxygen in the metallic layer, which results in ductility reduction and further embrittlement when the oxidation becomes severe. Therefore, it would be most important to obtain information on the influence of corrosion and accompanied hydrogen absorption on the high-temperature oxidation and subsequent ductility reduction of the cladding. From a regulatory point of view, it is necessary to confirm the applicability of the current models and equations for ballooning, rupture, and oxidation as well as the 1200°C-15%-ECR limits to the high-burnup fuel.

To achieve the advanced utilization of LWRs, there is a need to improve the performance of the fuel and maintain its performance during its lifetime. Water-side corrosion is one of the major factors affecting fuel integrity and influencing the lifetime of the fuel. Thus, utilities and fuel vendors have been developing cladding materials with higher corrosion resistance to replace Zircaloy. In Japan, advanced alloys with compositions exceeding the standard of Zircaloy, such as MDA³⁻¹⁰, NDA³⁻¹¹, and ZIRLO³⁻¹², have been implemented in PWRs and new alloys with improved resistances, such as M-MDA and J-alloys, are under development^{3-13~15}. Overseas, M5 (Zr-1.0Nb)³⁻¹⁶ and Optimized-ZIRLO³⁻¹⁷ have been widely implemented in commercial reactors. The ECCS acceptance criteria are applicable to Zr-alloy cladding other than Zircaloy; however, it is necessary to evaluate and show the influence of changes in alloy composition on fuel behavior and fuel safety during LOCAs.

As defined in the criteria, it has been considered important to prevent severe embrittlement of the cladding to ensure reactor safety while maintaining the coolable geometry of the reactor core. However, high burnup effects are also observed in the fuel pellet behavior; high-burnup fuel pellets may be fragmented, axially relocated, and dispersed out of the fuel rod through the rupture opening of cladding³⁻¹⁸. The relocation and accumulation of fragmented fuel pellets in the balloon region of cladding may increase the PCT. Further, if the dispersed fuel pellets are

locally accumulated, the dispersal of fragmented fuel pellets may affect the coolability of the reactor core. Therefore, there is a growing need to investigate the influence of the fuel pellet behavior on reactor safety during LOCAs.

3.2 Ballooning and rupture behavior of fuel rod

During the LOCA, the system pressure inside the reactor vessel decreases due to the failure of the primary system, and the fuel rod pressure can exceed the system pressure. If the fuel rod pressure becomes higher than the system pressure and the cladding strength decreases due to temperature rise, the fuel rod can balloon and rupture. The fuel rod ballooning reduces the coolant channel, which may affect the coolability of the reactor core. Thus, single-rod and bundle experiments were conducted in the U.S., European countries, and Japan to evaluate the blockage of the coolant channels and the reduction of coolability of the reactor core^{3-19~27}. Fig. 3-2 shows the appearance of fuel assembly and fuel cladding after being subjected to ballooning and rupture as an example of multi-rod burst tests conducted at JAEA³⁻²⁸. Those experiments showed that the channel blockage ratio reached about 90% under conservative conditions; however, even at such a high blockage ratio, the reactor core is considered to be cooled. The French Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) has recently reported that the axial expansion of the cladding swelling range results in a decrease in the coolability of the reactor core and the effect of the burnup extension on this is not confirmed³⁻²⁹. However, this tendency has not yet been confirmed and is not recognized as a safety issue at present.

The rupture behavior of the fuel rods with zirconium alloys depends on conditions including the rod internal pressure before the transient and the heat-up rate. In general, fuel rods with higher internal pressures rupture at lower temperatures, while those heated at higher heat-up rates rupture at higher temperatures³⁻²¹. In any case, the fuel rods of the current designs are expected to rupture at temperatures ranging from 700°C to 1000°C. Even in such a narrow temperature range, the circumferential increase is known to be strongly dependent on the phase structure of the zirconium-based alloys at the time of rupture³⁻²¹. The circumferential increase reaches a maximum at temperatures near the $\alpha/(\alpha+\beta)$ phase boundary, a minimum in the higher temperature range of the $(\alpha+\beta)$ phase region, and a maximum again at temperatures ranging from the $(\alpha+\beta)/\beta$ phase boundary to the lower temperature range of the β phase region. Analytical models^{3-30,31} were developed based on those experimental data mostly obtained with unirradiated cladding samples. Recently, it has been reported that the phase transition and also the relationship between the circumferential increase and rupture temperature were affected by the corrosion and the hydrogen absorption^{3-32~34}. Therefore, it would be necessary to review the effects of high burnup on ballooning and rupture behavior and evaluate its influence on safety evaluation methods.

As mentioned above, fragmented fuel pellets may axially relocate and accumulate in the

balloon region of cladding or disperse out of the fuel rod during ballooning and rupture of the fuel rod. To properly evaluate the influence of the fuel pellet relocation and dispersal on the coolability of the reactor core, it is necessary to improve the accuracy of estimating the ballooning and rupture behavior of the cladding.

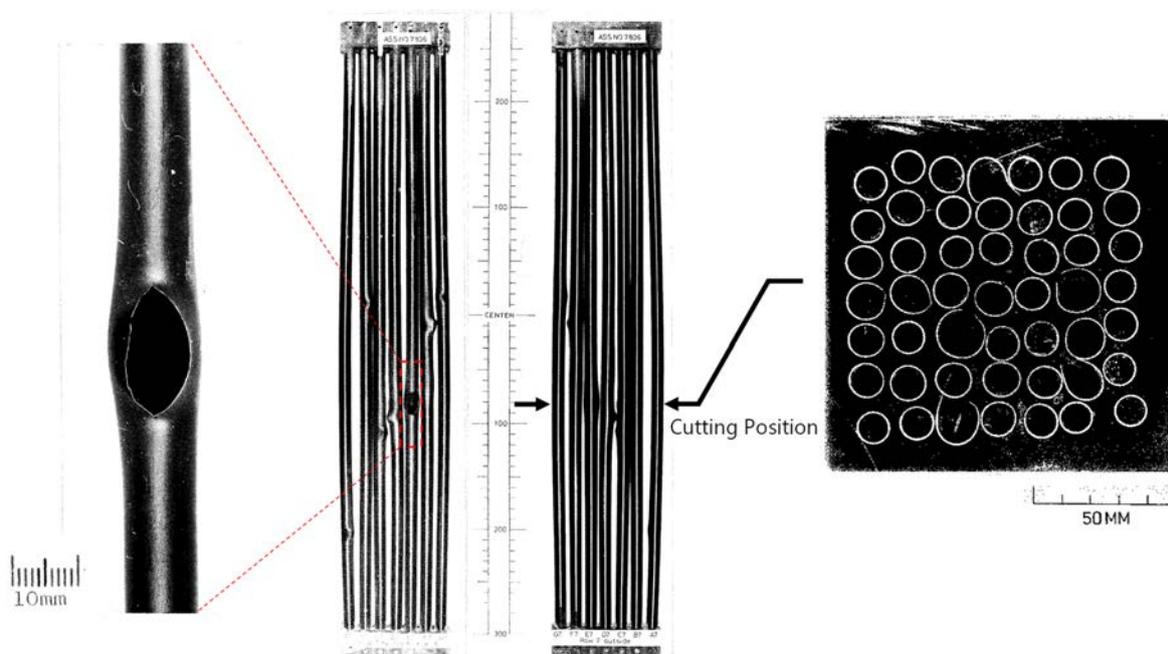


Figure 3-2 Appearance of fuel assembly and fuel cladding after being subjected to ballooning and rupture³⁻²⁸⁾.

3.3 High-temperature oxidation of fuel cladding

Since the amount of oxidation is used as an indicator of fuel integrity during LOCAs, the information on the oxidation behavior and the oxidation rate is important. Oxidation rates of Zircaloy cladding have been extensively investigated, especially in the 1980s, and reliable data have been obtained in the temperature range of 1000–1200°C (Fig. 3-3)^{3-35~38)}. The experiments conducted by Cathcart–Powel and Kawasaki et al. are considered to provide the most reliable data. In contrast, the Baker–Just equation provides the highest oxidation rate among the other investigations; this equation was obtained by experiments dropping zirconium specimens into the water at about the melting temperature and by extrapolating to the lower temperature range using previous data. As already described, the limits of cladding embrittlement in the ECCS acceptance criteria were determined based on the experimental data with unirradiated cladding samples, and the 15% ECR limit was determined by evaluation using the Baker–Just equation. If the amount of oxidation is evaluated by using the other equations, the limit should be adjusted. For example, 15% ECR calculated by using the Baker–Just equation is equivalent to 13.4% at 1000°C, 12.4% at 1100°C, and 11.5% at 1200°C when using the Cathcart–Powel equation. Considering the experimental and evaluation methods used to obtain the Baker–

Just equation, the oxidation rates are likely higher (conservative) than those obtained using experimental and evaluation methods that are more realistic conditions. In addition, experimental data have been accumulated on the oxidation rates of new cladding alloys and the high-burnup fuel cladding in recent years. Therefore, it is worth confirming the technical rationale for the continuous use of the Baker–Just equation in the safety evaluation of LOCAs.

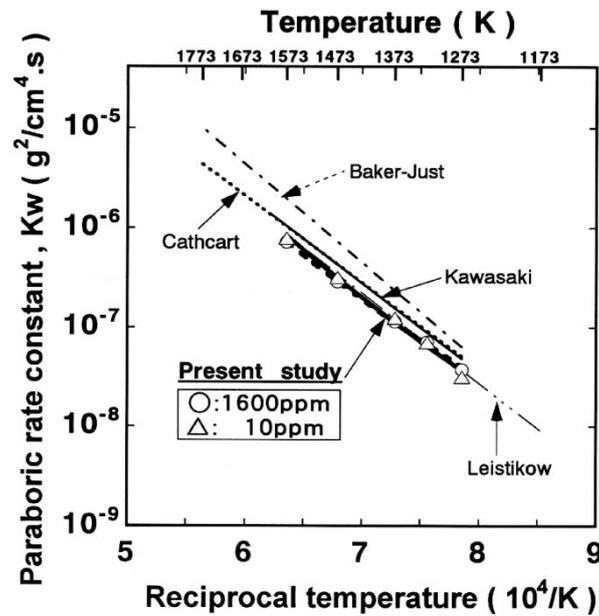


Fig. 3-3 Temperature dependence of rate constant of Zircaloy-steam oxidation³⁻³⁷⁾

Though the oxide layer formed during normal reactor operation and a LOCA is zirconium oxide (ZrO_2), its microstructure and properties vary depending on the conditions during the formation, such as temperature and atmosphere. The oxide layer formed at operating temperatures is relatively denser and more protective than that formed at high temperatures. The oxygen diffusion into the metallic part of the cladding is limited to the thinner periphery region under the operation condition, while the oxygen concentration significantly increases in the whole thickness of the metallic part with the rapid oxide growth under LOCA conditions. The diffusion and solubility of oxygen in the cladding may be affected by an increased amount of hydrogen at high burnup. New cladding alloys have been developed to increase the corrosion resistance during the operation, by changing alloy compositions and heat treatment in fabrication. It would be necessary to evaluate the effects of such changes on the high-temperature oxidation during a LOCA in addition to the effects of corrosion and hydriding.

In evaluating the amount of oxidation (ECR) for the high-burnup fuel, the following two approaches are considered to take into account the corrosion layer formed during the operation. One is based on the relative amount of (corrosion + HT oxidation) to the original thickness,

and the other is based on the relative amount of HT oxidation to the non-corroded metallic thickness before HT oxidation. In Japan, there is no obvious decision on which of these is to be used, while the former approach is generally adopted in Europe and the U.S. The selection of these approaches should be rationally judged considering the influence of the corrosion layer on the high-temperature oxidation and cladding embrittlement.

The cladding absorbs only a very small amount of hydrogen when its outer surface is oxidized under flowing steam conditions. In contrast, the cladding absorbs a certain amount of stagnant hydrogen when the inner surface of the cladding is oxidized by the steam flowing through the rupture opening. The significant hydrogen absorption and cladding embrittlement occur locally at a distance of a few 10 mm apart from the rupture opening where the partial pressure of hydrogen to the steam is relatively high^{3-39,40)}. This “inner surface oxidation” under LOCA conditions was taken into account in the revision of the criteria in 1981. In the high-burnup fuel, the fuel pellets and cladding chemically react to form the bonding layer, which may affect the inner surface oxidation and subsequent hydriding during a LOCA.

3.4 Breakaway oxidation

The oxidation rate suddenly increases when the zirconium-based alloy cladding is oxidized at certain temperatures between 500°C and 1000°C for longer periods, which is known as breakaway oxidation³⁻⁴¹⁻⁴⁴⁾. The breakaway oxidation occurs in the Zircaloy cladding after about 3600 s at 1000°C, while it does not occur at 950°C or 1050°C (Fig. 3-4)³⁻⁴³⁾. It also occurs at 500°C to 800°C, and the onset of breakaway oxidation and the increase in the oxidation rate vary depending on the oxidation temperature. The oxide layer (ZrO₂) transforms from the monoclinic phase to the tetragonal phase at 1000°C in an equilibrium state. The phase transformation occurs at lower temperatures in a non-equilibrium state. The density of the oxide layer is lower than that of the metallic matrix. Therefore, compressive stress is generated in the oxide formed on the metallic matrix, while tensile stress is generated in the metallic surface adjacent to the oxide. Such stress conditions affect the phase transformation of the oxide and metallic matrix. The breakaway oxidation is likely related to such unstable phase transformations, which is suggested by the characteristic morphology of the oxide, the color (white), and small radial cracks. The occurrence conditions of the breakaway oxidation have also been reported to vary with alloy compositions and surface conditions³⁻⁴²⁾.

The oxidation rate equations that the ECCS acceptance criteria allow to use do not take into account the breakaway oxidation. Once the breakaway oxidation occurs, even evaluations using the Baker–Just equation are not always conservative. What is worse, a significant amount of hydrogen is absorbed as the breakaway oxidation occurs and the cladding is embrittled^{3-42,44)}. The temperature-time conditions for the breakaway oxidation of the Zircaloy and the already developed new alloys are outside the range of LOCA conditions expected in existing LWRs^{3-45, 46)}. However, for the above mentioned reasons, the breakaway oxidation may

need to be carefully considered in the regulation.

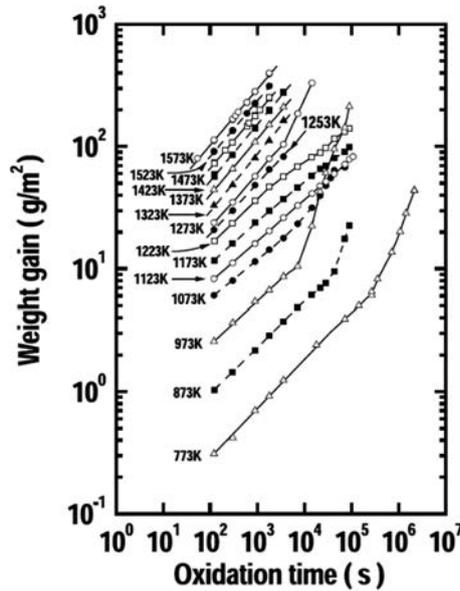


Fig. 3-4 Weight gain of Zircaloy-4 cladding oxidized at 773 to 1573 K³⁻⁴³⁾

3.5 Cladding embrittlement and fracture limit at quench

Cladding embrittlement in a LOCA is basically caused by the oxygen diffusion to the metallic layer due to the oxidation in steam and the formation of the oxide layer (reduction of the metallic layer). However, the high-temperature oxidation behavior of high-burnup fuel cladding may be different from that of unirradiated cladding since it can be affected by corrosion and hydriding. Therefore, for the cladding that experienced corrosion and high-temperature oxidation, information is required on the relationship between the amount of oxidation and embrittlement, including the consideration of the corrosion in the ECR evaluation. When the high-temperature oxidation and the hydrogen absorption occur at the same time, especially for oxidation temperatures above 1000°C and hydrogen concentrations above 500 ppm³⁻⁴⁰⁾, the cladding becomes severely embrittled. As mentioned above, a large amount of hydrogen can be absorbed in the cladding due to the inner surface oxidation though it occurs locally. In addition, the greatest attention has to be paid to the embrittlement of pre-corroded and pre-hydrided high-burnup fuel cladding since a certain amount of hydrogen has already been absorbed before the LOCA transient occur.

The results of the semi-integral thermal shock tests simulating fuel behavior under LOCA conditions were referred to in the previous revision of the ECCS acceptance criteria. It is appropriate to adopt similar semi-integral thermal shock tests to evaluate the high burnup effects on the fuel behavior under LOCA conditions, namely to confirm the applicability of the criteria to the high-burnup fuel. Since the expansion and shrinkage of components due to temperature changes during the transients are not uniform in the fuel bundle, the shrinkage

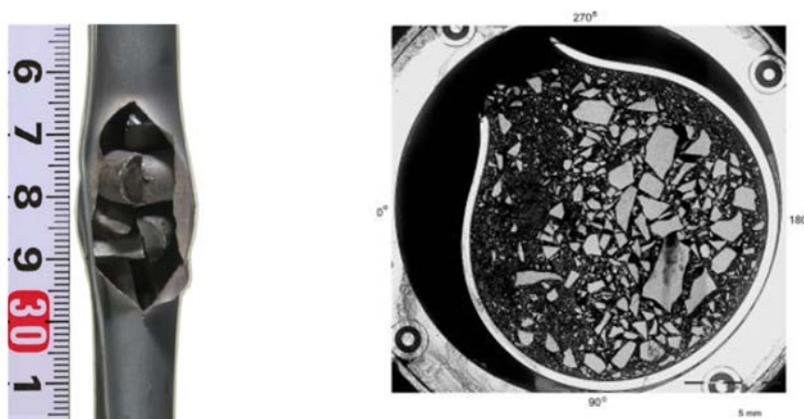
of hotter fuel rods may be restrained and stress is generated during quenching if friction or locking is assumed between the rods and the grid spacers. Therefore, in the experiments conducted before the revision of the criteria, test rods oxidized at high temperatures were quenched while being fully restrained³⁻⁴⁷). However, the results of separate effect tests indicate that complete locking of the fuel rod at the grid position, namely full restraint, is not realistic. The restraint condition is one of the main factors that determine the failure boundary of the fuel during quenching; therefore, consideration of appropriate restraint conditions is also necessary when reviewing the criteria with technical rationality.

3.6 Fuel fragmentation, relocation and dispersal

In in-pile LOCA experiments with pre-irradiated fuel rods conducted in the late 1970s and early 1980s^{3-24,25,48-50}), fuel pellets were observed to break into pieces, relocate, and accumulate in the balloon of fuel cladding. Since the broken pieces were very large and the axial relocation was not remarkable, the increase in PCT was estimated to be small compared to the overall margin already secured in the LOCA analysis³⁻⁵¹), and therefore, the impact on safety was considered to be small at that time. The French IRSN pointed out in 2001 that fuel pellets might be fragmented into smaller pieces when the fuel burnup increased, which could lead to an increase in PCT due to the relocated and accumulated fragments at the balloon of cladding³⁻⁵²). This has led to increased interest in fuel fragmentation and its influence on fuel safety. The OECD Halden Reactor Project initiated in-pile LOCA experiments with irradiated fuel segments in 2003 in response to the interests of participating countries in high-burnup fuel behavior under LOCA conditions³⁻⁵³). In a series of experiments, a fuel segment pre-irradiated to 91.5 GWd/t in a commercial reactor was exposed to a simulated LOCA condition, which resulted in significant dispersal of fragmented fuel pellets out of the rupture opening of cladding as well as the fragmentation and the axial relocation of fuel pellets inside the fuel segment. Since then, the main objective of the Halden LOCA experiments was to clarify the mechanism and the occurrence conditions of fuel fragmentation, relocation and dispersal (FFRD). Fig. 3-5 shows appearances of fuel pellet fragments that were relocated in the balloon of fuel cladding during LOCA tests as an example of the results of the in-pile LOCA test conducted in the Halden Reactor Project^{3-54,55}). The results of the test series showed that no obvious fragmentation was observed in fuels with burnups below 60 GWd/t, but in fuels with burnups above 72 GWd/t. The extent of fragmentation appears to be affected by the circumferential increase in cladding that is likely to be connected with the restraint for fuel pellets, the power history during normal reactor operation prior to the accident, and the gas flow to the rupture opening of cladding as well as burnup³⁻⁵⁶).

The United States Nuclear Regulatory Commission (U.S.NRC) reported fundamental data needed to revise the criteria on cladding embrittlement for a LOCA in a research information letter (RIL-0801)³⁻⁵⁷). It noted that FFRD had not been fully investigated and that its impact

on the reactor safety needed to be examined. Then, a hot-lab LOCA test program was performed by Studsvik on behalf of the U.S.NRC and information on FFRD was additionally obtained³⁻⁵⁸⁾. Experiments at Halden and Studsvik showed that a certain amount of fragmented fuel pellets was dispersed at the time of rod rupture, independent of the oxidation limited by the current criteria, though it occurs in the case of fuels irradiated to relatively high burnups. The dispersal of a larger amount of fragmented fuel pellets may have an impact on the coolability of the reactor core if the fragments accumulated locally and blocked the coolant channel. U.S.NRC decided to continue its investigation on FFRD in light of regulatory feedback. The Nuclear Regulation Authority of Japan also entrusted to JAEA to conduct hot-lab experiments on fuel pellet behavior during a LOCA including FFRD³⁻⁵⁹⁾.



(1) Appearance of rupture opening of fuel cladding and fuel pellet fragments (2) Cross-sectional image of fuel cladding at rupture opening

Figure 3-5 Appearances of fuel pellet fragments that were relocated in the balloon of fuel cladding during LOCA tests^{3-54,55)}.

3.7 Long-term core coolability after LOCA

The long-term cooling following the cold shutdown is achieved by using the containment recirculation sump in PWRs and the recirculation of the coolant from the suppression pool in BWRs. The current criteria require to ensure the removal of decay heat over a long period of time, considering changes in the fuel geometry. The supplement provides the following two examples noting that critically quantitative evidence is not necessarily required³⁻⁶⁰⁾.

- (a) The requirement to “consider changes in the fuel geometry” is satisfied when the following conditions are maintained:
 - The entire reactor core is reflooded or
 - At least the part of the core with the highest power density is reflooded, while the rest of the core is sufficiently cooled.
- (b) If it can be shown that the path of heat transfer from the core to the final heat sink is ensured with sufficient multiplicity or diversity and independence and with a margin

of performance, and that this condition can be maintained for the desired time if appropriate measures are taken, the core cooling "over a long period of time" of this criterion shall be considered possible.

The above example (a) is based on the assumption that the 1200°C and 15% ECR criteria are available to ensure the coolable geometry of the reactor core during the long-term core cooling as well as during the accident. However, there were hundreds of aftershocks after the main earthquake in the case of the accident at the TEPCO's Fukushima Daiichi NPS. Considering this experience, additional loads, including earthquakes, should be assumed for the post-LOCA reactor core³⁻⁶¹). Therefore, in order to ensure the long-term coolability of the reactor core following a LOCA, it is necessary to obtain information on possible loading conditions as well as the integrity of the fuel and the core under such assumed post-LOCA conditions. There are possibilities of coolant channel blockage by debris and failing in operation of the cooling system, which may increase the fuel temperature. Therefore, a requirement in terms of the fuel temperature may need to be considered to avoid changes in the fuel properties and finally ensure the coolable geometry during the post-LOCA cooling.

4. Main findings obtained after prescription of current criteria

4.1 High-temperature oxidation rates of fuel cladding

The Baker–Just equation⁴⁻¹⁾ provides a larger amount of oxidation than the other equations. In the experiment on which the Baker–Just equation is based, Baker and Just rapidly supplied electrical power to zirconium wires of 1 inch (23.4 mm) long in water and heated-up the wires to the melting temperature (1852°C) in 0.3 ms. They evaluated the oxidation rate based on the diffusion theory with the measured temperature, pressure, hydrogen generation, and post-test measurement of the oxide layer thickness. Finally, they determined the temperature dependence of the oxidation rate constants, namely the Baker–Just equation, combining their own data and literature data for the temperature range from 1000°C to 1300°C^{4-2,3)}.

In zirconium oxide, a phase transition occurs with increasing temperature, from the monoclinic to the tetragonal phase at about 1000°C, and to the cubic at about 1580°C in an equilibrium state. The oxidation rate is affected by the phase structure and the temperature dependence of the oxidation rate shows discontinuity (sudden increases) at the phase transformation temperatures. Therefore, the interpolation of the oxidation rate from the melting point to the lower temperatures results in overestimation for the temperature range from about 1000°C to 1580°C. In contrast, the oxidation rate calculated by the Baker–Just equation remarkably decreases with decreasing temperature due to the higher activation energy of the equation. For this tendency, there is a possibility that the Baker–Just equation underestimates the oxidation rate at temperatures below 800°C (Fig. 4-1)⁴⁻⁷⁾. Progress of oxidation is relatively slow below 1000°C. In fact, the amount of oxidation of cladding (0.54 mm thick) oxidized at 800°C for 900 s, which is possibly one of the representative conditions in realistic safety analyses, calculated to be about 3% ECR by the Baker–Just equation. Therefore, the underestimation described above has a small impact on the safety if the PCT is well below 1000°C and the amount of oxidation calculated by the Baker–Just equation is sufficiently lower than the limit.

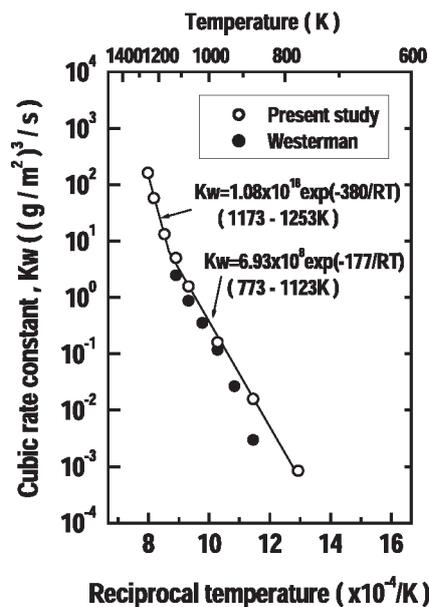


Fig. 4-1 Temperature dependence of rate constant of Zircaloy-steam oxidation in the lower temperature range⁴⁻⁷⁾

Attention should also be paid to the test and evaluation methodologies. Baker and Just analytically evaluated the oxidation rate combining the diffusion theory and the experimental data. In contrast, most of the previous studies evaluated oxidation rates and their Arrhenius-type temperature dependence based only on the experimental data. In the experiments of Baker and Just, the specimen was heat-up so rapidly that its oxidation can be practically considered to start at the target oxidation temperature. In general, specimens are inserted into steam and then heated to target temperatures over tens of seconds to minutes; therefore, the oxide layer grows from lower temperatures. Since the oxides formed at lower temperatures are protective against the oxidation at higher temperatures, oxidation rates evaluated using data obtained under such conditions are relatively small. Some oxidation tests were conducted using thermobalance^{4-8,9)}. Steam was introduced after the specimen temperature reached the oxidation temperature and weight changes were measured as a function of time. Oxidation rates obtained by the tests were generally higher than those estimated by the Cathcart–Powel equation and closer to those estimated by the Baker–Just equation. Accordingly, the Baker–Just equation provides the oxidation rate under ideal isothermal oxidation conditions, while the other equations, including the Cathcart–Powel equation^{4-10,11)}, provide realistic oxidation rates that would be expected in the reactor conditions. In the selection of the oxidation rate equation, this technical background needs to be fully considered. As already described, since the 15% ECR limit was determined by the evaluation using the Baker–Just equation, the limit needs to be changed when other equations are used in the safety analysis.

JAEA has conducted various oxidation tests to systematically evaluate the influence of

increased corrosion and hydrogen absorption at high burnup^{4-12~15}). As a result of the tests on unirradiated cladding specimens, the following information was obtained⁴⁻¹²).

- The corrosion layer formed at the operating temperature has a protective effect on the high-temperature oxidation under LOCA conditions. The protective effect decreases with increasing oxidation temperature and time (Fig. 4-2).
- The effect of hydrogen on high-temperature oxidation depends on the hydrogen concentration and oxidation temperature and time. However, for a realistic range of hydrogen concentration and oxidation time (< 800 ppm and 1800 s, respectively), the effect of hydrogen is at the most 5% of the oxidation rate (Fig. 4-3).

Test results for high-burnup fuel cladding (< about 85 GWd/t) in Japan and for unirradiated and high burnup cladding in other countries^{4-13~20}) basically confirmed the above information. In conclusion, oxidation rates of the high-burnup fuel cladding are equivalent or slightly lower than those of unirradiated cladding for the temperature range from 900°C to 1200°C (Fig. 4-4). The microstructure observation (Fig. 4-5⁴⁻¹³) suggests that the corrosion layer has a protective effect against high-temperature oxidation. However, the high-temperature oxidation initiates and progresses at the cracking positions of the corrosion layer and finally, the protective effect is reduced at higher temperatures and for longer oxidation times.

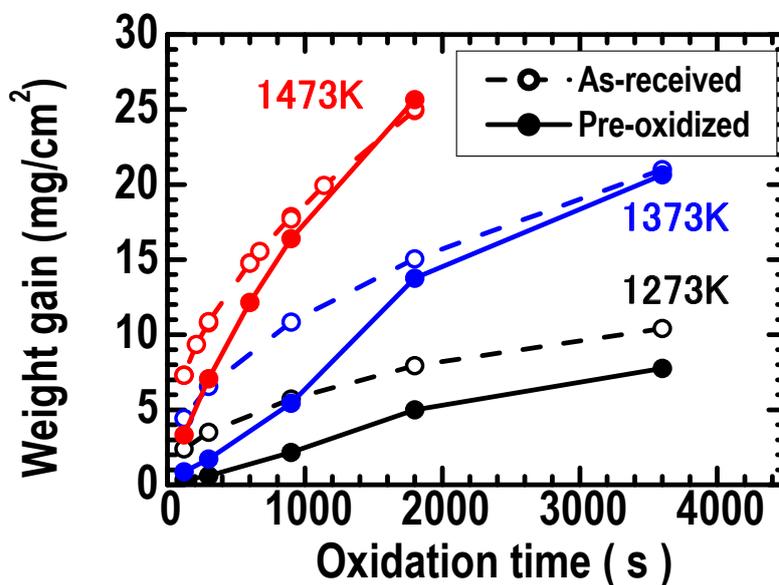


Fig. 4-2 Effect of pre-oxidation on high-temperature oxidation of Zircaloy-4 cladding⁴⁻¹²)

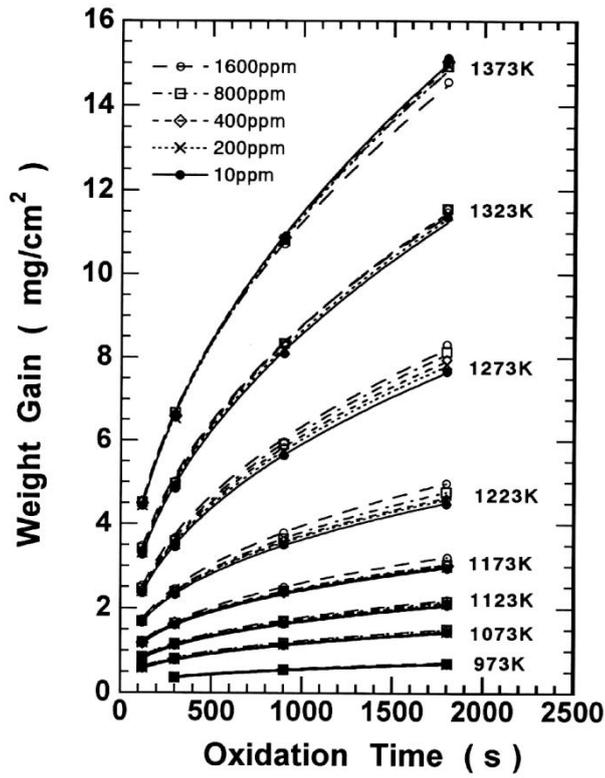


Fig. 4-3 Weight gain as a function of oxidation time of Zircaloy-4 cladding with various hydrogen concentrations⁴⁻¹²⁾

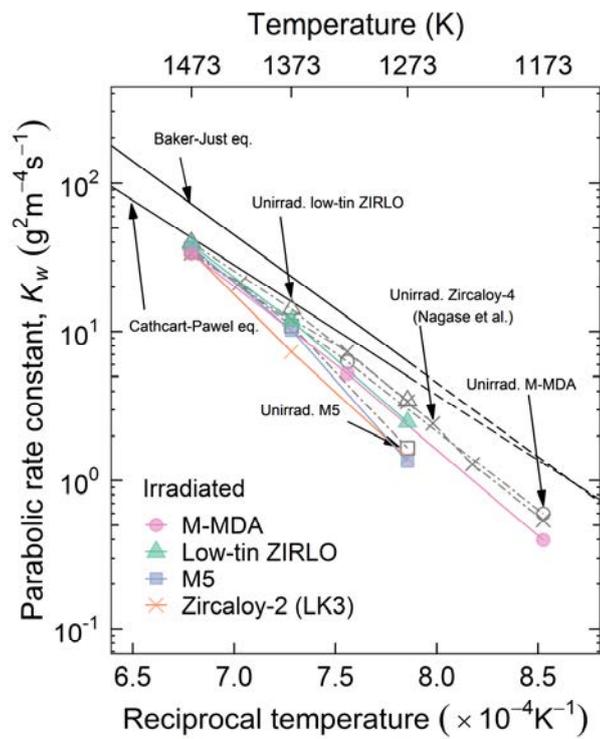


Fig. 4-4 Temperature dependence of oxidation rate constant of irradiated Zr-alloy claddings⁴⁻²⁰⁾

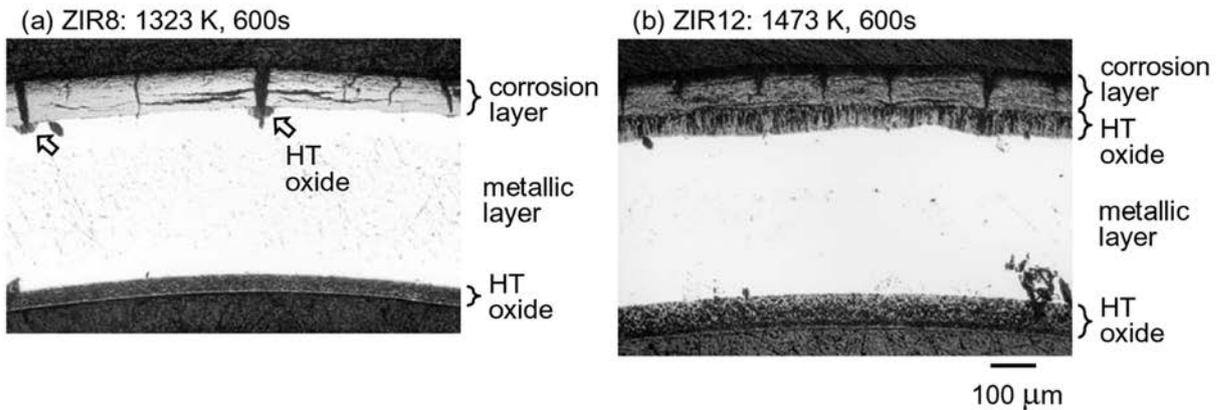


Fig. 4-5 Cross section of high burnup ZIRLO™ cladding after oxidation ⁴⁻¹³⁾

Oxidation tests are generally conducted on 10–20 mm ring-like specimens cut from cladding. The specimens are oxidized at predetermined temperatures for various times to evaluate the oxidation rate based on the weight gain and the oxide layer thickness. During a LOCA of commercial reactors, fuel rods generally may balloon and rupture prior to the oxidation. The semi-integral thermal shock tests confirmed the formation of axial cracks due to ballooning in the corrosion layer of the high-burnup fuel cladding (Fig. 4-6)⁴⁻²¹⁾. Considering the above-mentioned progression of high-temperature oxidation at the cracking positions, protective effect of the corrosion layer may be limited under actual LOCA conditions. Accordingly, it is appropriate not to take into account the protective effect of the corrosion layer in the safety evaluation.

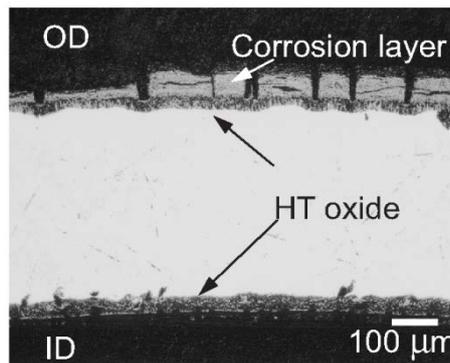


Fig. 4-6 Cross section of high burnup ZIRLO™ cladding after semi-integral thermal shock test⁴⁻²¹⁾

Oxygen diffusion into the metallic layer as well as the oxide layer formation occurs under the operating condition and accidental conditions. During the reactor operation, the diffusion distance is short and the oxygen concentration in the diffused area is low. In contrast, under LOCA conditions, the diffusion distance is long and the oxygen concentration in the metallic

part is much higher, which is the main cause of the cladding embrittlement. The corrosion formed during the reactor operation is an oxygen source under LOCA conditions. In experiments in which irradiated fuel cladding was heated in an inert gas, a reduction of the cladding ductility and the formation of α -Zr(O) containing a high oxygen concentration due to oxygen diffusion from the corrosion layer were observed⁴⁻²²⁾. Brachet et al. examined the embrittlement of the cladding pre-oxidized at 350°C and oxidized at 1200°C⁴⁻²³⁾. They reported that no effect of pre-oxidation on the cladding embrittlement was observed though the high-temperature oxidation was suppressed by the pre-oxidation. This suggests that in addition to the suppression of the high-temperature oxidation, the diffusion of oxygen from the pre-formed oxide may have led to the cladding embrittlement and the growth of a highly oxidized layer (α -Zr(O)). This result also indicates that the protective effect of the corrosion layer against the cladding embrittlement does not need to be considered in the safety evaluation.

Various new cladding alloys have been developed to improve in-pile corrosion resistance compared to Zircaloy. MDA, NDA, and ZIRLO™ with higher corrosion resistance, which have been already implemented as the cladding of the “Step 2 PWR fuel” in Japan, have been confirmed to have oxidation rates in high-temperature steam equal to or less than those of Zircaloy^{4-24~26)}. Cladding alloys with further increased corrosion resistance, including M-MDA and M5® (Zr-1.0Nb), have been developed and experiments using unirradiated and irradiated cladding specimens of these alloys showed that their oxidation rates were equal to or less than those of Zircaloy^{4-15,18,20)}. Niobium is added to the new alloys for PWRs. This addition generally has an effect to reduce oxidation rates for the temperature range below 1000°C including the operation temperature (Fig. 4-4)^{4-14,18,20)}.

Since the cladding corrosion progresses more slowly in BWRs than in PWRs, the cladding alloy compositions have not been changed drastically. However, the fraction of hydrogen absorption to corrosion tends to increase at high burnup⁴⁻²⁷⁾. Therefore, new cladding alloys with higher Fe-content have been developed based on the composition of Zircaloy-2⁴⁻²⁸⁾. The high-temperature oxidation rates of these alloys are comparable to those of Zircaloy and, therefore, the evaluation of the amount of oxidation using the Baker–Just equation is still valid for comparison with the 15% ECR limit.

4.2 Breakaway oxidation

JAEA has conducted oxidation tests of unirradiated and irradiated MDA, ZIRLO™, M5®, and M-MDA cladding specimens and showed breakaway oxidation did not start within 3600 s at 1000°C and other typical LOCA conditions^{4-13~15,18)}. Therefore, the performance of these alloys against the breakaway oxidation is considered to be equal to or better than that of Zircaloy in the examined range. Although the nominal alloy composition of Russian E110 is the same as that of M5®, the breakaway oxidation has been reported to occur in a shorter period of time at 850°C to 1100°C (for example, < 1500 s at 1000°C), possibly due to the

difference in impurities^{4-19, 29)}. It has also been reported that breakaway oxidation is likely to occur in a shorter period of time when there are scratches on the cladding surface⁴⁻²⁹⁾. The phase transformation of oxide and its instability are considered to be the main cause of the breakaway oxidation and, therefore, it is reasonable to assume that the occurrence of the breakaway oxidation is affected by the alloy composition and fabrication methods including impurities and surface conditions^{4-16,29)}. It has been reported that the breakaway oxidation occurred on the outer surface near the rupture opening of the Zircaloy cladding for about 1500 s at 1000°C⁴⁻³⁰⁾. The stress and surface conditions near the rupture opening are complicated, which might affect the occurrence of the breakaway oxidation.

The breakaway oxidation is accompanied by the absorption of a large amount of hydrogen. Therefore, the drafted revision of the US ECCS acceptance criteria requires the prevention of the breakaway oxidation which can cause cladding embrittlement⁴⁻³¹⁾. Occurrence conditions of breakaway oxidation (in terms of temperature and time) are far different from the LOCA conditions expected in existing LWRs for the cladding in current and future use. Accordingly, the breakaway oxidation would not occur without drastic changes in compositions and manufacturing methods of the cladding alloys. However, the breakaway oxidation or similar phenomena should be carefully considered when the criteria are revised to cover new cladding materials including zirconium alloys, non-zirconium alloys, and materials of entirely new concepts.

4.3 Cladding embrittlement

It is necessary to confirm whether cladding embrittlement can be evaluated based on the amount of oxidation even for the high-burnup fuel, similarly to the lower burnup fuel. Namely, it is necessary to evaluate the influence of increased corrosion and hydrogen absorption and also the use of new alloys on the cladding embrittlement. The zero-ductility criteria determined by the results of ring compression tests have been widely used to confirm the fuel integrity in terms of the core coolability during a LOCA since the establishment of the ECCS acceptance criteria in the U.S. and many European countries. In contrast, the fracture limit at quench determined by the results of semi-integral thermal shock tests, which is a strength-based limit, has been used in Japan and recently in France. As described in the Technical Opinion Paper issued by OECD/NEA on LOCA criteria basis and test methodology⁴⁻³²⁾, different test methodologies are used to confirm the cladding embrittlement and fuel integrity during a LOCA in each country based on the historical background and perspective of each country. Since loading conditions and evaluation indices are not the same among the different test methodologies, the criteria and their intent should be different. The technical basis and latest information on the zero-ductility criteria are detailed in the report of the NRC-ANL LOCA program⁴⁻¹⁹⁾ and the proposal of new embrittle criteria based on the the experimental results obtained in the program⁴⁻³¹⁾. The updated information on the fracture boundary of the cladding

at quench obtained by the semi-integrated thermal shock tests is summarized in the following section.

4.4 Fracture of fuel cladding at quench

The criteria in Japan were reviewed in 1981 and the 1200°C, 15% ECR limits were maintained as it was confirmed that the criteria still had a sufficient safety margin even considering the latest information, i.e., the inner surface oxidation and possible loading at quench. In this review, the results of the semi-integral thermal shock tests conducted by Uetsuka et al.⁴⁻³⁷⁾ were used as a reference. In the semi-integral thermal shock tests, short test rods were fabricated using a 500-mm-long unirradiated 14×14 type PWR cladding segments (ID: 9.48 mm, OD: 10.72 mm), end plugs, and alumina pellets. After pressurizing the inside of the test rod with inert gas, the test rods were heated to 920°C–1330°C for various times in flowing steam and then quenched by flooding water. In the experiments, the test rod experienced ballooning and rupture; therefore, the inner surface oxidation accompanied by local hydriding occurred. During the quench, both ends of the test rods were restrained to reproduce the restraint conditions of the bundle geometry. The lower bound of the fracture at quench was about 35% ECR under non-restrained conditions and about 19% ECR under restrained conditions where cladding shrinkage was completely blocked. The ECR value was calculated from the isothermal oxidation temperature and time for the initial wall thickness (0.62 mm) using the Baker–Just equation. When calculating the ECR value for the reduced wall thickness due to ballooning and rupture, the fracture boundary under the restraint conditions was about 21% ECR.

To evaluate the influence of the high burnup, a series of tests were conducted using unirradiated 17×17 type PWR cladding (ID: 8.36 mm, OD: 9.50 mm) with hydrogen concentrations of 400 to 600 ppm, using a similar test procedure as the previous test⁴⁻³⁸⁾. It is generally expected that the cladding temperature decreases gradually from the PCT during LOCA in the reactor. However, since it has been reported that the ductility reduction of the quenched cladding was enhanced by slow cooling in the ($\alpha+\beta$) phase temperature range^{4-39,40)}, the test rods were slowly cooled to about 800°C, and then quenched by flooding water. The obtained fracture boundary under the non-restrained conditions was about 40% ECR regardless of the hydrogen concentration. The boundary was reduced to about 20% ECR for the non-hydrided cladding by completely restraining the test rods at quench and further reduced to about 10% ECR by pre-hydriding the cladding. These test results using the hydride cladding suggested a possible reduction of the fracture boundary at the high burnup. The ECR values shown above were calculated for the cladding thickness reduced by ballooning and rupture. The ECR value is hereinafter calculated in the same way in this report. Post-test observations (fracture positions) suggested that the cladding fracture was affected by the inner surface oxidation accompanied by local hydriding (1000 to 3000 ppm) under non-restrained

conditions, which explains the absence of pre-hydriding effect on the fracture boundary. In contrast, under restrained conditions, the cladding fractured at the rupture position, where the strength was reduced by wall thinning and oxidation. Additional hydriding due to the inner surface oxidation did not occur at the rupture position and, therefore, the effect of pre-hydriding was seen in the fracture boundary under the restrained conditions. The fracture boundaries of the two tests of 14×14 and 17×17 type PWR cladding performed under the same test conditions were nearly the same, indicating that the ECR can be used as a common index for different cladding thicknesses.

In zirconium, oxygen is the α phase stabilizer and hydrogen is the β phase stabilizer. In the Widmanstätten structure typically observed in quenched zirconium alloys, the α -incursion has higher concentrations of oxygen, while hydrogen is concentrated in the matrix prior- β phase. Hydrogen in the prior- β phase is precipitated as zirconium hydrides, the size and distribution of which depends on the cooling rate. Studies on the Zr-H-O ternary system showed an increase in hydrogen concentration decreases the phase transformation temperatures of the α/β and $(\alpha+\beta)/\beta$ boundary in the Zr-O system and consequently increases the oxygen concentration in the α phase of the quenched microstructure⁴⁻⁴¹⁻⁴³). The increased hydrogen concentration in the prior- β phase and increased oxygen concentration in the α phase reduce the ductility of the oxidized and quenched cladding and are the main cause of the reduction of the fracture boundary due to pre-hydriding observed in the semi-integral thermal shock tests⁴⁻⁴⁴).

According to the LOCA analyses for commercial reactors, the cladding temperature decreases gradually from the PCT and then drops by reflooding during a LOCA. Komatsu et al. examined the mechanical properties of the Zircaloy-4 cladding as a function of the cooling rate, and reported that a slower cooling rate increased the precipitation of α -incursions in the prior- β phase, which enhanced the formation of incipient cracks⁴⁻³⁹). Udagawa et al. quenched Zircaloy-4 cladding specimens from different temperatures (800°C–1100°C) following the oxidation at temperatures from 1100°C to 1200°C⁴⁻⁴⁰). The results showed that the ductility decreased as the quench temperature decreases (i.e., when the slow cooling is continued to lower temperatures), while variation in cooling rate had no influence on the ductility reduction. These experiments were conducted using the non-hydride cladding. Brachet et al. examined the ductility reduction of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding (about 600 ppm) after the oxidation at 1200°C under different cooling conditions⁴⁻²³). The mechanical tests showed that the cladding underwent brittle fracture when quenched from 1200°C and when quenched from 800°C following the slow cooling from 1200°C to 800°C. When the cladding was quenched at 600°C or 700°C, the yield stress was lower but ductility was relatively high compared to the above cases. When the cladding was cooled slowly to room temperature, both the yield stress and ductility were reduced. Key observations of the post-test microstructure are as follows.

- The cladding directly quenched at 1200°C formed a uniform prior- β phase across the cladding thickness and had a uniform oxygen concentration.

- In the cladding quenched at 800°C, the α phase (α -incursion) precipitated in about 50% of the cross-section, and the difference in oxygen concentration was relatively clear between the matrix prior- β phase and precipitated α -incursions.
- In the cladding quenched at 600°C or 700°C, the local variations of oxygen concentration in the prior- β layer was smaller than those in the cladding quenched at 800°C, since the phase transformation to the α phase was completed during the slow cooling process. Precipitation of secondary phases containing rich iron and chromium was observed on the sub-grain boundaries in those cladding.
- The growth of hydride precipitates was observed on the sub-grain boundaries in the cladding that was cooled slowly to room temperature.

The above results on the characterization of the quenched cladding show that the post-quench microstructure is strongly affected by the temperature profile during transients and has an influence on the ductility and strength of the cladding. In general, the cladding ductility decreases most when cooled slowly through the (α + β) phase region and then quenched. Therefore, the results of the semi-integral thermal shock tests that are conducted considering the slow cooling effect are probably conservative in terms of the influence of the cooling conditions.

JAEA has conducted the semi-integral thermal shock tests using unirradiated Zircaloy-2 cladding for BWRs (ID: 9.6 mm, OD: 11.0 mm, < about 400 ppmH)⁴⁻⁴⁵⁾. Under the no-restrained condition, the cladding, with and without pre-hydrating, fractured during quenching or post-test handling when oxidized to above 38% ECR, which is equivalent to that of the PWR cladding. The fracture boundary under the restrained condition was about 22% ECR for the BWR cladding without pre-hydrating and about 19% ECR for the cladding with pre-hydrating. Since the corrosion rate is low due to the lower fuel surface temperature in BWRs, the initial hydrogen in the tested cladding was limited to lower levels, which is the reason for the smaller hydrogen effect on the fracture boundary seen in these tests for the BWR cladding compared to the test results for the PWR cladding⁴⁻³⁸⁾.

The restraint condition is a key factor in determining the fracture boundary of the cladding. The previous studies described above^{4-37,38,44)} were conducted under the restrained condition where the shrinkage of the test rods was completely blocked during quenching. However, the axial extension and shrinkage during the temperature transient of a LOCA vary among fuel rods and there are also difference of these between fuel rods and guide tubes. If an increase in friction or locking is assumed at the grid spacer locations, tensile loads are generated in the “hottest” rods during cooling and quenching. Because the behavior and phenomena in the bundle geometry are not fully clarified, assuming fully restrained conditions is an option for conservatism. However, it is unlikely that the fully restrained condition will occur extensively

in the reactor core during a LOCA. Therefore, in order to evaluate realistic restraint conditions and technically reasonable safety margins, several studies have been conducted to examine the interaction between fuel rods and grid spacers and the variation of fracture boundary in response to the restraint loads.

Honma et al. performed separate effect tests on the mechanical and chemical interactions between the cladding tube and the grid spacer, and estimated the maximum restrained loads to be 167 N for the Zircaloy grid and 430 N for the Inconel grid⁴⁻²⁴. The eutectic formation between Zircaloy and Inconel increased the restraint load. Murata et al. calculated the difference in shrinkage between the hottest and the coldest fuel rods in the PWR fuel bundle, and experimentally measured the force generated by restraining the difference in shrinkage. As a result, the restraint force was estimated to be about 157 N⁴⁻²⁵. JAEA conducted the semi-integral thermal shock test using a combination of a short test rod and a piece of grid spacer. The test rod that experienced ballooning, rupture, and oxidation was pulled out of the grid spacer during and after the quench at temperatures ranging from room temperature to 1000°C and the friction load was measured⁴⁻⁴⁶. As a result, the friction loads both during and after the quench were in the same range of 15–35 N for the tests with the Inconel grid. Neither the dependence of pull-out temperature (from room temperature to 600°C) nor the influence of ballooning and rupture was seen. No obvious eutectic reactions or subsequent locking occurred under high-temperature oxidation conditions. In the tests with the Zircaloy grid, the pull-out load after the high-temperature oxidation decreased to about 15 N. Here, a very simple estimation is performed using these measured data, assuming that a fuel rod with 9 grids was suddenly reflooded to a certain grid span and that the friction load to slide the fuel rod was 35 N at reflooded and cooled grid positions. As a result, the tensile load was estimated to be about 140 N at most. The French utility conducted FEM analyses for a fuel bundle using the temperature distribution expected during a LOCA and experimental data for the contact conditions at the grid positions⁴⁻⁴⁷. Their estimated restraint load was less than about 250 N. A large break LOCA was assumed in this estimation. They expected that the restraint load would be smaller for the small-break LOCA, where the number of ruptured cladding is small. As described above, the estimated restraint loads vary over a wide range of 140–450 N for the Inconel grid. However, they are obviously smaller than the tensile loads generated in the tests conducted under the fully restrained condition (1400–2200 N)⁴⁻³⁸. Therefore, the fully restrained condition is probably a very severe condition compared to the actual conditions.

JAEA has conducted studies on the variation of fracture boundary depending on the restraint load and attempted to estimate the realistic restraint load⁴⁻⁴⁴. Intermediate restraint conditions of 390, 540, and 735 N were selected considering the axial loads measured in the full-restraint tests, and the semi-integral thermal shock tests were conducted controlling the restraint load not to exceed these three values. The cladding used in the tests was the 17×17 type PWR cladding with hydrogen concentrations ranging from 100 to 1450 ppm. In addition,

the cladding was thinned by 10% to simulate the wall thickness reduction due to in-reactor corrosion. Fig. 4-9 shows the oxidation conditions for cladding fracture as a function of hydrogen concentration obtained for the three intermediate conditions and a full restraint condition. The results are as follows:

- the fracture boundary decreased as the restraint load and hydrogen concentration increased,
- the cladding with hydrogen concentrations lower than 350 ppm did not fracture at 15% ECR and below, regardless of the restraint conditions, and
- when hydrogen concentrations higher than 800 ppm and the restraint load is higher than 500 N, the fracture boundary may be lower than 15% ECR.

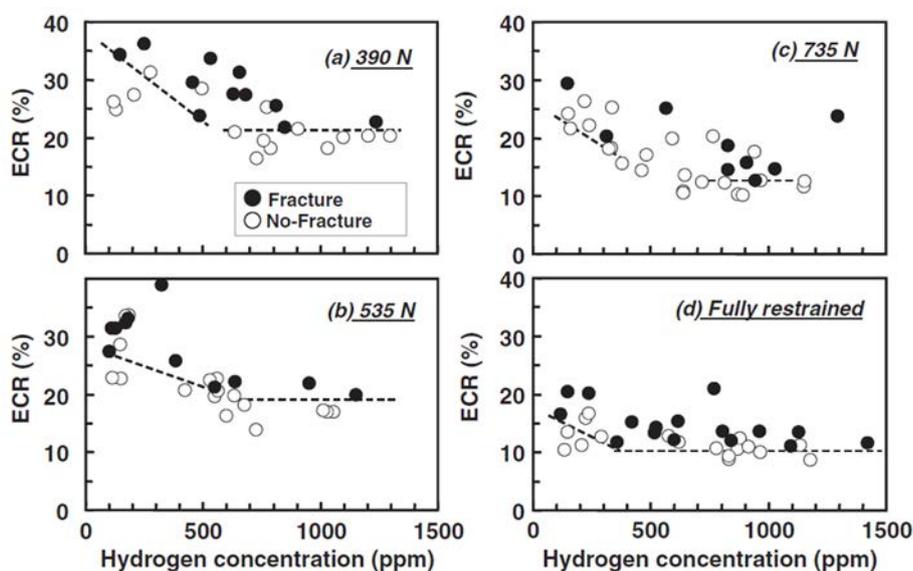


Fig. 4-9 Fracture maps relevant to ECR and hydrogen concentration for four restrained conditions⁴⁻⁴⁴⁾

The fracture boundaries determined by the semi-integral thermal shock tests contain uncertainties associated with test conductance and evaluation. Therefore, studies have been initiated to quantify the uncertainty in the estimated fracture boundary^{4-48, 4-49)}. It has been reported that the boundary representing a 5% fracture probability with 95% confidence for the pre-hydrated cladding samples is higher than 15% ECR, for initial hydrogen concentrations of up to 800 ppm.

JAEA accumulated the base data through the various experiments using unirradiated cladding samples and prepared for the experiments using irradiated cladding samples. The test methods for the irradiated samples were basically the same as those for the unirradiated samples. The amount of data for the irradiated samples is limited due to difficulties in

preparing the test rod with irradiated cladding and conducting experiments in the hot cell. Therefore, the failure behavior of the high-burnup fuel during quenching is evaluated by combining data obtained by the tests using the unirradiated and irradiated cladding.

Table 4-2 shows a list of the semi-integral thermal shock tests using the irradiated cladding^{4-21,50-52}). The cladding materials tested in the experiments were Zry-4, MDA, NDA, ZIRLO™, M5®, and M-MDA for PWRs and Zry-2/LK3 for BWRs. The ranges of burnup, in-reactor corrosion, and hydrogen absorption were 39 to 84 GWd/t, 6 to 79 μm, and 69 to 839 ppm, respectively. The test rods were fabricated by cutting a short segment (190 mm long) from the fuel rods irradiated at commercial reactors, removing most of the fuel pellets by center drilling, and then combining the cladding segments with the bonded thin layer of fuel pellets, alumina pellets, and end plugs. The test conditions are summarized in Table 4-3. The isothermal oxidation temperatures ranged from 1030°C to 1232°C and the amount of oxidation was calculated to be about 16% to 38% ECR using the Baker–Just equation for the metallic thickness of cladding after rupture.

The main purpose of the tests was to confirm the applicability of the 1200°C and 15% ECR limits to the high burnup. Therefore, most of the test conditions were primarily set just above these limits. Fig. 4-10 shows fracture/no-fracture conditions relevant to ECR and oxidation. The cladding did not fracture during quenching for the oxidation conditions of ECR below 29.6% at 1030–1230°C. Accordingly, the fracture boundary of the examined high burnup cladding is higher than the limits in the Japanese ECCS acceptance criteria. Fig. 4-11 shows the results of the tests using the high-burnup fuel cladding relevant to ECR and initial hydrogen concentration, comparing with those using the unirradiated cladding^{4-44,49}). In this figure, the dotted line shows the fracture boundary of the unirradiated Zry-4 cladding tube, while the solid line and the shaded regions show the median, 50% Bayesian prediction interval, and 95% Bayesian prediction interval estimated for the fracture boundary of unirradiated Zry-4 cladding tube. As already described, the fracture boundary of the unirradiated Zry-4 cladding decreases as the hydrogen concentration increases: it is higher than 25% ECR at lower hydrogen concentrations and decreases to about 20% ECR at 800 ppm. Fig. 4-11 shows that the high burnup cladding did not fracture below the fracture boundary of the unirradiated Zry-4 cladding, which suggested that the high burnup effects including changes in the alloy composition were negligible except the hydrogen effect. The irradiated cladding oxidized to 26.0%, 29.3%, and 37.8% ECR fractured during quenching. Since the amounts of oxidation were larger than the fracture boundary of the unirradiated cladding, these results are consistent with those of the unirradiated cladding.

In the evaluation of the semi-integral thermal shock tests, the amount of oxidation (ECR) has been calculated for the metallic thickness reduced by corrosion and rupture and compared with the 15% ECR limit. The results showed that this evaluation method can be used reasonably for high-burnup fuel; therefore, this method can be used consistently in the safety

evaluation. There is another method for the ECR evaluation in which the ECR value is calculated based on the sum of the oxidation during the operation and accident relative to the initial (nominal) cladding thickness. This method generally provides a smaller allowable amount of oxidation to the limit: namely, it is a conservative method. Theoretically, the cladding embrittlement is considered to depend on the thickness and oxygen concentration of the metallic thickness⁴⁻⁵³); therefore, indices and methods for evaluating the cladding embrittlement should be considered if the cladding material and thickness change drastically.

Table 4-2 List of semi-integral thermal shock tests with irradiated fuel conducted at
JAEA^{4-21,50~52)}

Type	Test ID	Reactor	Local burnup (GWd/t)	Cladding alloy / Bundle type	Corrosion layer (μm)	Hydrogen concentration (ppm)	Reference
PWR	A3-1	Takahama-3	43.9	Zry-4 17×17	20	170	4-50)
	A1-2		43.9		25	210	
	BL-3		39.1		18	140	
	BI-3		40.9		18	140	
	BI-5		40.9		15	120	
	BL-7		39.1		15	120	
	MDA-1		Vandellos-2 (Spain)		76	MDA	
MDA-2	76	17×17		62	838		
ZIR-2	71	ZIRLO		51	496		
ZIR-3	73	17×17		79	764		
MFI-1	Ringhals (Sweden)	66	M5	6	73		
MFI-2		66	17×17	7	69		
NDA-1	McGuire (US) R2 (Sweden)	69	NDA 17×17	33	214		
BWR	ZRT-1	Leibstadt (Swiss)	66	Zry-2 (LK3) 9×9	30	297	
	ZRT-2		73		25	182	
PWR	MMDA-1	Vandellos-2 (Spain)	81	M-MDA 17×17	27	249	4-51,52)
	MMDA-2		81		27	227	
	LMFI-3	Gravelines (France)	84	M5 17×17	10	64	
	LMFI-4		84		10	63	
	LZIR-4	Vandellos-2 (Spain)	80	Low-Sn ZIRLO 17×17	18	144	
	LZIR-5		80		18	123	
BWR	LZRT-3	Leibstadt (Swiss)	85	Zry-2 (LK3) 10×10	39	492	
	LZRT-4		73		35	395	

Table 4-3 Summary of semi-integral thermal shock tests with irradiated fuel conducted at
JAEA^{4-21,50~52)}

Test ID	Rupture temp (°C)	Circumferential increase (%)	Oxidation temperature (°C)	Oxidation time (s)	Oxidation amount (%ECR)	Restraint load (N)	Fracture / No-fracture
A3-1	800	14.1	1176	486	29.3	498	F
A1-2	751	27.7	1178	120	16.6	540	N
BL-3	820	24.3	1154	200	16.0	540	N
BI-3	785	13.6	1172	363	21.9	540	N
BI-5	755	8.0	1030	2195	21.5	540	N
BL-7	804	7.5	1177	543	26.0	385	F
MDA-1	715	9.9	1207	131	18.3	350	N
MDA-2		6.0	1190	719	38.0	530	F
ZIR-2	672	28.0	1200	228	27.3	518	N
ZIR-3	676	20.6	1186	153	20.2	519	N
MFI-1	780	20.1	1197	151	19.5	400	N
MFI-2	762	19.2	1196	229	23.6	0	N
NDA-1	715	8.9	1194	280	22.5	518	N
ZRT-1	763	17.7	1195	222	21.2	519	N
ZRT-2	778	20.6	1194	232	22.0	0	N
MMDA-1	768	26.0	1232	112	21.6	80	N
MMDA-2	752	34.4	1201	125	20.8	528	N
LMFI-3	774	27.2	1201	187	21.5	521	N
LMFI-4	769	23.0	1200	384	29.6	519	N
LZIR-4	714	39.7	1201	119	21.0	529	N
LZIR-5	714	42.7	1202	111	20.8	526	N
LZRT-3	714	13.8	1199	202	(20.0)*	525	N
LZRT-4	742	12.1	1201	203	(19.8)*	521	N

*The ECR values were calculated assuming double-sided oxidation. The actual ECR values are likely smaller since the inner surface oxidation was less extensive due to the very small rupture opening of cladding.

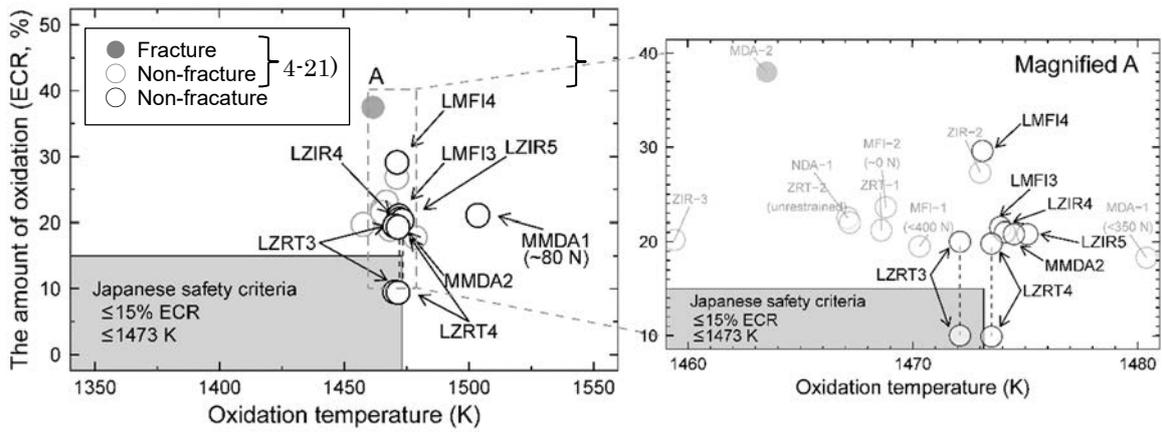


Fig. 4-10 Fracture map relative to ECR and oxidation temperature⁴⁻⁵¹⁾

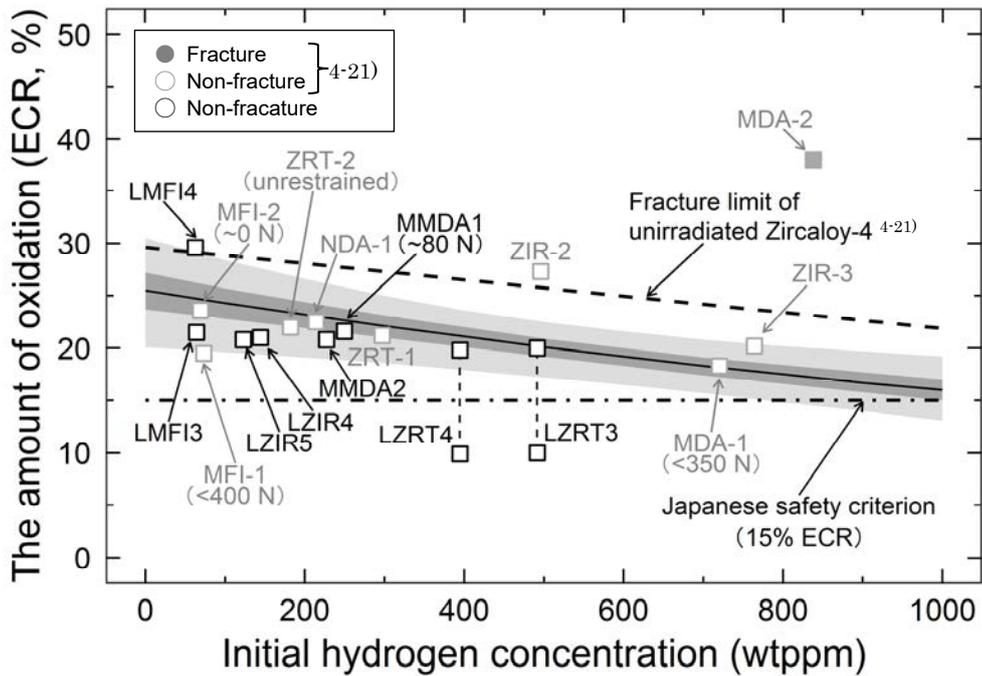


Fig. 4-11 Fracture map relevant to ECR and initial hydrogen concentration⁴⁻⁵¹⁾

4.5 Fuel fragmentation, relocation and dispersal

Regarding the fuel fragmentation, relocation and dispersal (FFRD), the OECD/NEA CSNI Working Group on Fuel Safety reviewed and summarized the knowledge obtained by 2016 in their report⁴⁻⁵⁸⁾ based on the results from the studies including the in-pile tests of OECD Halden Reactor Project^{4-54,55)} and the hot cell tests at Studsvik Nuclear conducted under the contract with US NRC and EPRI^{4-56,57)}.

In the Halden LOCA tests, significant fuel fragmentation was observed for fuels with the segment burnups below about 60 GWd/t, but observed for fuels with the segment burnup higher than about 72 GWd/t. This indicates that the threshold of the fuel fragmentation is between 60 and 70 GWd/t.

The mechanism of the fuel fragmentation is not fully clarified. The fuel fragmentation appears to occur not only in the rim region with the high burnup structure but also in other regions where FP gas bubbles are densely concentrated. Thus, the number density of FP gas bubbles and the pressure inside the FP gas bubbles are considered to be important factors for the fuel fragmentation. The burnup dependence of the fuel fragmentation can be explained by an increase of FP gas bubble precipitation and a decrease in fracture resistance of grain boundaries with increasing burnup. The temperature increase during the transient ($> 750^{\circ}\text{C}$ ⁴⁻⁵⁷⁾) and the temperature gradient in the fuel pellet act on the FP gas bubbles, which may induce the fuel fragmentation, though its mechanism depends on the temperature.

The Halden tests with and without rod rupture suggested that the influence of hydrostatic pressure change was small on the fragmentation. In contrast, it was suggested that a decrease in mechanical restraint due to ballooning enhances the fuel fragmentation. In addition, EPRI's experiments at the Studsvik Nuclear showed the possible influence of the power history before the accident on the fuel fragmentation.

In the Halden LOCA tests, the axial relocation of the fragmented fuel pellets was not so significant, except for fuels with very high burnup (> 90 GWd/t). In principle, a certain degree of circumferential increase in the cladding (ballooning), the fuel fragmentation to smaller pieces, and some mechanisms to enhance the downward movement (e.g., gas flow and mechanical vibrations) are necessary for the axial relocation. In the in-pile tests at the Halden reactor^{4-54,55)}, FR2^{4-59,60)}, and PBF^{4-61~63)}, and the hot cell tests at Studsvik Nuclear, the axial relocation occurred when the circumferential increase in cladding was greater than 2–10%. If a large amount of fuel fragments is relocated and accumulated in the balloon of cladding, we have to consider PCT increase. To evaluate the increase in PCT, the information on the filling ratio of the accumulated fragments is also necessary. However, the filling ratio depends on various parameters and its information is still limited^{4-64~66)}.

The quantitative evaluation on the dispersal of the fragments of fuel pellets from the

rupture opening of cladding is also difficult because this phenomenon is affected by similar factors to the axial relocation and the rupture behavior of the cladding such as the shape and the size of the opening. The dispersal of a larger amount of fuel fragments containing FP can be a safety issue from the viewpoint of exposure and source term. This is also a safety issue related to the core coolability when the dispersed fuel fragments accumulate at a certain location.

The reliability of the experimental data is relatively high in the burnup range where the fuel fragmentation occurs ($> 60\text{--}70$ GWd/t). It is then possible to estimate the total fuel length (total weight of fuel pellets) for which the burnup exceeds the threshold of the fuel fragmentation⁴⁻⁶⁸). For the Japanese licensed burnup (bundle average) of 55 GWd/t, the peak pellet burnup is about 71 GWd/t for PWRs and 75 GWd/t for BWRs⁴⁻⁶⁷). However, given the burnup distribution in the reactor core, the total fuel length where the fragmentation is likely to occur should not be so extensive. USNRC estimated the amount of dispersed fuel weight by coupling the fuel behavior code (FRAPCON and FRAPTRAN) and the system code (TRACE)⁴⁻⁶⁹). If we will follow this example of USNRC, it will be possible to estimate whether FFRD is a critical safety issue or not. In this case, the influence of FFRD should be evaluated based on conservative assumptions until more information will be obtained for the mechanism, and the occurrence condition will be clarified.

4.6 Long-term core coolability after LOCA

In order to ensure the long-term core coolability following a LOCA without extensive damages on fuel rods or fuel assemblies as in the case of a LOCA (i.e., on quenching), all possible loads applied on fuel rods after a LOCA must be assumed. In addition to the loads generated due to temperature changes or coolant flow, earthquakes are possibly main loadings for the fuel rods during the long-term core cooling following a LOCA as the lessons learned from the accident at the TEPCO's Fukushima Daiichi NPS.

JAEA has measured the strength of Zircaloy cladding samples that are pre-hydrated to 800 ppm in maximum and experienced ballooning, rupture, oxidation, and quench in the semi-integral tests to compare with the maximum load assumed in an earthquake⁴⁻⁷⁰). Considering the fuel rod deformation due to seismic vibrations, the main component of the stress generated in the cladding is in the axial direction⁴⁻⁷¹). In addition, the most likely locations for the fracture are considered to be the ballooned and ruptured region. Thus, the four-point-bend test was selected and the geometry of the test jig as well as the sample setting was determined using the Finite Element Method (FEM) analysis so as to apply a uniform bending moment to the entire rupture region including a ballooned region, a rupture opening, and peaks of hydrogen content. The four-point-bend tests were carried out on 190-mm-long cladding samples that were oxidized at 1000–1300°C and subsequently quenched. Fig. 4-12 shows the relationship between the maximum bending moment and the amount of oxidation. The maximum bending

moment decreases as the amount of oxidation increases while the oxidation temperature (1000–1300°C) has no influence. In this JAEA’s study, the largest conceivable bending moment was evaluated using the data from high level shaking tests on full-scale fuel assemblies conducted by the Japan Nuclear Energy Safety Organization (JNES)⁴⁻⁷²⁾ under the assumption that the fuel assemblies are deformed as a cantilever beam during an earthquake, and was compared with the above test data. Fig. 4-13 shows that the maximum bending moment of the oxidized cladding is lower than the bending moment expected to be caused by the seismic motion in the oxidation range greater than 16% ECR. Therefore, the cladding oxidized to less than 15% ECR, the oxidation limit of the Japanese LOCA criteria, unlikely fractures with a realistic seismic motion.

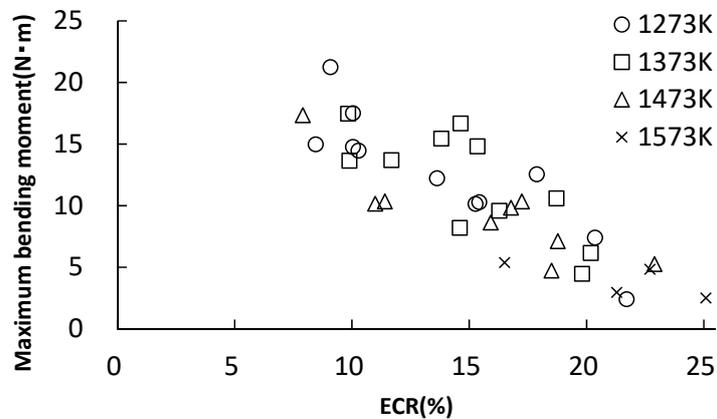
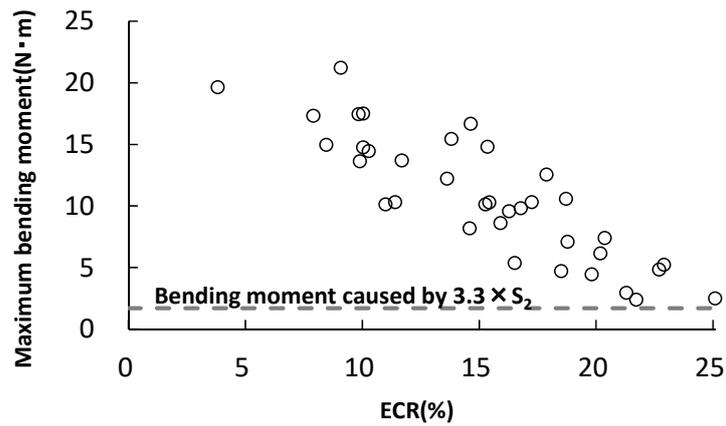
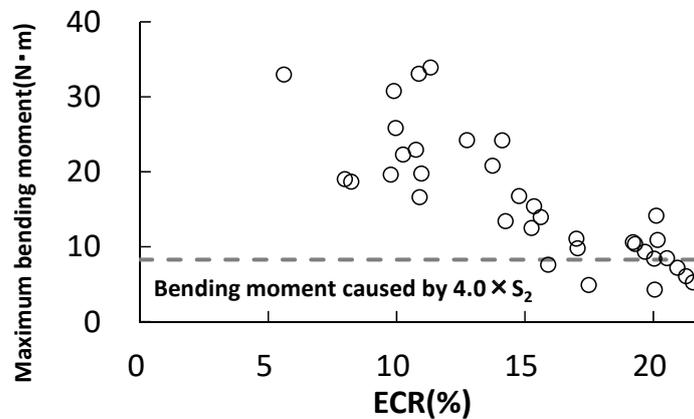


Fig. 4-12 Relation between the maximum bending moment and the amount of oxidation for unirradiated Zry-4 cladding⁴⁻⁷⁰⁾



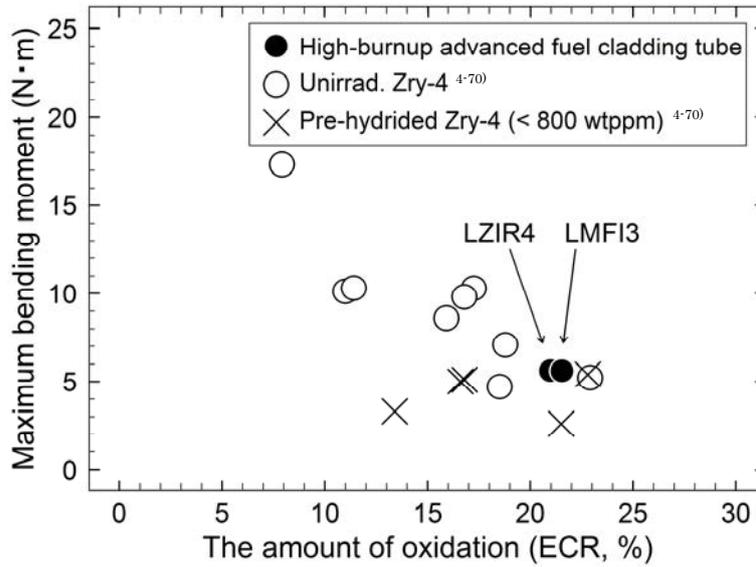
(1) Unirradiated Zry-4 cladding



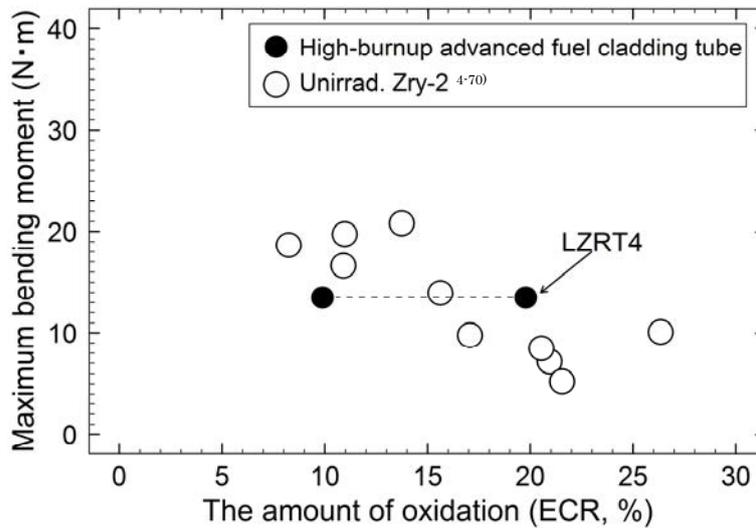
(2) Unirradiated Zry-2 cladding

Fig. 4-13 Relation between maximum bending moments of the Zry cladding and bending moment resulting from the largest conceivable ground motion⁴⁻⁷⁰⁾

At JAEA, the maximum bending moments of high-burnup advanced fuel cladding tubes (LMFI3, LZIR4, and LZRT4) irradiated up to ~ 80 GWd/t were evaluated⁴⁻⁷³⁾. Fig. 4-14 shows the maximum bending moment as a function of ECR for the high-burnup advanced fuel cladding tubes that were subjected to ballooning, rupture, high-temperature oxidation, and quenching under LOCA conditions. The maximum bending moments of unirradiated Zry-4 and Zry-2 cladding tubes are also shown as reference. The maximum bending moments of the high-burnup advanced fuel cladding tubes are almost equivalent to those of the unirradiated conventional Zircaloy cladding tubes. Considering that the oxidation kinetics is not accelerated and the fracture boundary is not significantly reduced by extending the burnup and changing alloy compositions, the effects of high burnup, including changes in alloy compositions, on the maximum bending moment are expected to be very small, though the maximum bending moment may decrease slightly as the hydrogen absorption increases.



(1) PWR fuel cladding



(2) BWR fuel cladding

Fig. 4-14 Maximum bending moments of high-burnup advanced fuel cladding tubes⁴⁻⁷³⁾

The criteria set in 1973 in the U.S. state that the preservation of cladding ductility is effective to ensure the integrity of the fuel under various loading conditions during earthquakes, post-LOCA handling, and transportation as well as quenching during a LOCA⁴⁻⁷⁴⁾. The loading conditions in the ring compression test is considered to be more severe than those in the expected events during and after a LOCA. The zero-ductility criteria determined by the results from the ring-compression tests have therefore been used as the basis for the LOCA criteria in the U.S. that are available to maintain the core coolability or the fuel integrity during and after a LOCA.

In response to the plugging of emergency core cooling suction strainers in the U.S. and Swedish BWRs^{4-75,76}), NRC has requested that measures such as an increase in strainer size be implemented⁴⁻⁷⁷). Also for PWRs, NRC has addressed the impact evaluation of the recirculation sump screen blockage as a safety issue (GSI-191⁴⁻⁷⁸) and evaluated the impact with industry. The blockage of the coolant channel can be caused by various debris, e.g., originated from piping insulation materials and paint. Chemical materials generated during the circulation of the debris inside the containment may precipitate on the fuel rod surface. This could cause fuel temperature to rise in the recirculation mode after a LOCA. The US PWR owners group modeled the blockage of the recirculation sump screen using experimental results and provided NRC with evaluation methods and results for the influence on PCT in various cases^{4-80,81}). The evaluation results showed that the influence on PCT is small: PCT may approach 800°F (about 427°C), which is the limit determined by the utilities, but the high-temperature period is shorter than 100 s. The 800°F (about 427°C) limit was established because it has been experimentally shown that the cladding at temperatures below 800°F (about 427°C) has a low degree of oxidation and hydrogen absorption during the 30-day period required for countermeasures and meets the requirement of 10CFR50.46 to avoid the cladding embrittlement.

The oxidation test of Zry-4 at 500–1300°C⁴⁻⁷) showed that the oxidation rate increased in the long-term oxidation in the middle-temperature range of 500–800°C, which is called breakaway oxidation. The duration that the breakaway oxidation occurs decreases with increasing oxidation temperature: 7 days at 500°C and 12 hours at 800°C. No apparent increase in oxidation rate and hydrogen absorption has been observed in the oxidation test of Zry-2 at 400°C up to about 40 days⁴⁻⁸²). This result is consistent with those that are the basis of the 800°F (about 427°C) limit determined by the US PWR owners group. Since the measures to the recirculation sump screen blockage have been taken, the PCT increase would be small even if it occurs. However, we should pay attention to the breakaway oxidation, which results in the cladding embrittlement.

Assuming a failure of reactor core cooling during the post LOCA long-term cooling, the influence of re-heating at high temperatures on the oxidation and embrittlement behavior of the once quenched cladding has been investigated. JAEA conducted ring-compression tests of cladding samples that were oxidized in steam at 1200°C, quenched by reflooding, and oxidized again at 900–1100°C⁴⁻⁸³). It was shown that the oxidation during the re-heating tended to be suppressed: however, the final ductility reduction was predictable from the sum of the amounts of oxidation during the two transients. This means that the influence of the re-heating, namely the cladding embrittlement after the re-heating, can be estimated based on the information obtained so far.

According to the current criterion regarding the long-term core cooling following a LOCA, reactor safety can be basically secured. Even so, quantitative indices for PCT and duration

may be needed to ensure the core coolability and fuel integrity by avoiding the characteristic changes of the fuel during the long-term cooling. In addition, it may be worth considering to confirm that the reactor core is surely cooled during the post-LOCA long-term core cooling, which includes confirmation of long-term reliability of the cooling system.

5. Applicability of current criteria to high-burnup fuel

“Acceptance criteria for emergency core cooling systems for light-water nuclear power reactors” require that results of the analyses for the postulated LOCAs satisfy the following criteria to confirm the function and performance of ECCS to terminate the accidents maintaining the reactor core coolability.

- (1) The calculated maximum fuel cladding temperature shall be 1200°C or less.
- (2) The calculated stoichiometry oxidation of the cladding shall be 15% or less of the total cladding thickness before significant oxidation.
- (3) The amount of hydrogen generated from the reactions of the fuel cladding and core structures with water shall be sufficiently low from the viewpoint of the integrity of the containment vessel.
- (4) Decay heat shall be removed for a sufficient period of time even if the geometry of the fuel changes.

The NRA has a policy to continuously improve the regulation taking account of the latest scientific and technical knowledge and experiences⁵⁻¹⁾. In addition, the IAEA's Integrated Regulatory Review Service (IRRS) reports that the NRA is going to revise the requirements that frequently cite the criteria established by the former NSC⁵⁻²⁾. As described in Chapter 4, a great deal of technical knowledge has been accumulated on the behavior of high-burnup fuels under LOCA conditions and the applicability of the current criteria to the high-burnup fuels. In the U.S. and European countries, the criteria have been revised or reviewed for revision. There is still a possibility of the introduction of the advanced fuel with new cladding alloys which leads to the improvement of reliability and safety, though the immediate introduction is unlikely to be done under the circumstance after the accident at the TEPCO's Fukushima Daiichi NPS in Japan⁵⁻³⁾. Therefore, there is already a strong need to consider reviewing the criteria specified in the current ECCS acceptance criteria, nearly 40 years after the last review, or to confirm their applicability to high-burnup fuels.

Based on the accumulated technical knowledge on the behavior of the high-burnup fuels under LOCA conditions, the applicability of the current criteria to the high-burnup fuels was reviewed as below. The criteria were determined for the combination of UO₂ or MOX fuel pellets and zirconium alloy cladding used in the existing PWRs and BWRs. An essential revision should be considered when metallic alloys other than zirconium alloys or ceramic materials which exhibit quite different behaviors are adopted as the cladding alloy.

5.1 Regarding criterion (1)

Criterion (1) in terms of PCT is determined with a view to maintaining the reactor core coolability during a LOCA by avoiding severe embrittlement of the cladding. The 1200°C limit

is based on the experimental knowledge that the embrittlement of the cladding and the amount of oxidation was not clearly correlated above that temperature⁵⁻⁴). This is supported by the evidentiary result showing that oxygen solubility drastically increases above 1200°C⁵⁻⁵). A sudden decrease in ductility after the oxidation above 1200°C is observed in the ring compression tests in which the loading condition is relatively severe, but not necessarily in the semi-integral thermal shock tests. Hence, it is not clear whether the PCT limit is a kind of edge for fuel integrity under realistic conditions. However, it would be reasonable to keep the limit considering uncertainties in the LOCA analysis and the very high oxidation rate in the higher temperature range. Since the oxidation of zirconium is an exothermic reaction, the positive feedback should be considered especially in the bundle or core geometry where the heat removal condition is different from that in the smaller specimen geometry. Actually, temperature escalations were observed from the temperature range above 1200°C to 1500°C in the bundle experiments^{5-6,7}). This also supports the preservation of the current PCT limit. If the accuracy can be improved in evaluating the oxidation rate above 1200°C, the relationship between the cladding embrittlement and the amount of oxidation, and the temperature escalation in the exposed bundle and core geometries, it would be possible to have a new PCT limit.

For the high-burnup fuel, fragmented fuel pellets may axially relocate and accumulate in the balloon of cladding to increase PCT, which is a great concern on the reactor safety. Sufficient data and knowledge have not been obtained to quantitatively evaluate those phenomena and their influence. However, with the gradual clarification of the conditions under which FFRD occurs, it has become possible to evaluate its effects on PCT and the amount of oxidation and to take them into account to some extent in the safety evaluation.

5.2 Regarding criterion (2)

Criterion (2) in terms of stoichiometry oxidation of the cladding is also determined to avoid severe embrittlement of the cladding. As described in Section 2.2, after the ECCS acceptance criteria were first established, a variety of additional data were obtained regarding the fuel behavior under LOCA conditions, such as the inner surface oxidation accompanied by the secondary hydriding and possible loading on quenching due to the axial restraint. Considering those data and knowledge, they judged to keep the 1200°C, 15% ECR limits in the revision of the criteria in 1981. The main basis of the judgment was the results of the semi-integral thermal shock tests that reproduced the LOCA conditions and phenomena as much as possible⁵⁻⁸). No additional information has been obtained since then to revise or refute the judgement at the last revision⁵⁻⁹). Therefore, the semi-integral thermal shock test should be used to evaluate the fuel safety in LOCA conditions, and the strength of the oxidized and quenched fuel, which is determined by the tests, can be used as the indicator of the “embrittlement”.

The ECR value is calculated with the cladding temperature change in the safety evaluation.

The Baker–Just equation⁵⁻¹⁰⁾ is generally used for the calculation to confirm that the expected oxidation meets the criteria since the 15% ECR limit was determined by the evaluation using this equation⁵⁻¹¹⁾. Although oxidation rate equations such as the Cathcart–Powel⁵⁻¹²⁾ equation are more accurate in predicting the amount of oxidation than the Baker–Just equation, the use of the Baker–Just equation in the safety evaluation is still available for the above reason. The use of oxidation rate equations other than the Baker–Just equation is also permitted. In that case, the ECR limit should be re-evaluated using a substitute equation. The Baker–Just equation was derived using data obtained at very high temperatures and may underestimate the amount of oxidation below 800°C⁵⁻¹³⁾. Below 1000°C, oxidation progresses slower and takes longer for the cladding to be oxidized to 15% ECR. Therefore, if the amount of oxidation calculated by the Baker–Just equation is sufficiently lower than the criterion, the underestimation is not a real safety concern. The breakaway oxidation, which can occur at specific temperatures at 1000°C and below, may cause embrittlement of the cladding, even if the calculated amount of oxidation is less than 15% ECR⁵⁻¹³⁾. Consequently, a time-based criterion may be more effective in avoiding the breakaway oxidation for the temperature range at 1000°C and below (see also criterion (4)).

The information obtained so far indicates that the influence of the high burnup, such as corrosion, hydrogen absorption, and irradiation, is not remarkable^{5-14~16)}. The corrosion layer formed during normal reactor operation has a protective effect on the high-temperature oxidation; however, the effect disappears after a while due to the increase in temperature and oxidation time or the crack formation caused by the cladding deformation. Therefore, the ECR value should be calculated without considering the protective effect of the corrosion layer.

There are two considerations in calculating ECR for the evaluation of the cladding embrittlement. One is to calculate the amount of high-temperature oxidation against the reduced metallic thickness due to ballooning and in-reactor corrosion, and the other is to calculate the sum of the in-reactor corrosion and the amount of high-temperature oxidation against the total cladding thickness including the corrosion layer. The latter case is explicitly required in the US⁵⁻¹⁷⁾, but not in Japan. If the same ECR limit is applied, a smaller amount of oxidation would actually be allowed when the latter is adopted. In the evaluation of the semi-integral thermal shock tests, the former has been adopted and it was shown the high-burnup fuel would be unlikely fracture if the calculated ECR value met the 15% ECR limit^{5-15,17,19)}. Therefore, under the current fuel design and use conditions, no difference is seen in the judgment of fuel integrity, possibly due to the sufficient safety margin. If the fuel design is changed, e.g., cladding wall thinning or changes in fuel irradiation conditions, rules for calculating ECR values may be needed, if possible, considering the oxygen diffusion from the corrosion layer at high temperatures^{5-20,21)} and the dependence of the cladding embrittlement on thickness reduction and oxygen concentration (hydrogen concentration as well)⁵⁻²²⁾.

The current criteria require that the ECR should be calculated for the cladding thickness

reduced by the deformation before the significant oxidation progression, namely circumferential increase and wall thinning due to ballooning and rupture. This requirement is considered reasonable for the same reasons described above and, therefore, does not need to be changed. However, since it has been shown that the balloon and rupture behavior is affected by the hydrogen absorption⁵⁻¹⁸⁾, models to estimate the deformation amount have to be modified to take the hydrogen effect into account.

The results of the semi-integral thermal shock tests using unirradiated and high-burnup fuel cladding^{5-15,17,19)} showed that the cladding unlikely fracture within the examined ranges (local burnup < 80 GWd/t, corrosion layer thickness < 80 μm, hydrogen concentration < 800 ppm) as long as meeting the criteria ($PCT \leq 1200^{\circ}\text{C}$, $ECR \leq 15\% \text{ ECR}$), though the fracture boundary gradually decreases with increasing hydrogen concentration. Accordingly, it can be said that the criteria have a sufficient safety margin, even considering the uncertainties of experiments and evaluations. The results also showed that changes in the cladding alloys do not affect the fracture boundary for MDA, NDA, ZIRLO, M-MDA, M5, and so on. Therefore, the current 15% ECR limit in terms of the cladding embrittlement is applicable to the high-burnup fuels below ~80 GWd/t (< 800 ppmH) with the advanced cladding, which have been implemented or are to be implemented into the commercial reactors.

5.3 Regarding criterion (3)

This criterion requires that the amount of hydrogen generated from the reactions of the fuel cladding and core structures should be suppressed to a sufficiently low value by the ECCS operation. As is well known, hydrogen is also generated by other mechanisms. Therefore, criteria have also been established to evaluate the integrity of the primary containment vessel (PCV) taking into account all sources of hydrogen generation.

Since “sufficiently low from the viewpoint of the integrity of the containment vessel” is a qualitative description, the supplement of the criteria provides an example that the ECCS performance is sufficient if the amount of hydrogen generated by oxidation of all Zircaloy fuel cladding is estimated to be less than 1% in the reactor core. The basis of this 1% limit is not clear. However, this 1% limit for the hydrogen generation in a LOCA is commonly used in many countries, though it is estimated for the active stack length of the fuel rods in some countries including the U.S. and France⁵⁻²³⁾. In the U.S., it is explained that the limit was determined so as not to reach the lower explosive limit⁵⁻²⁴⁾. In the evaluation of the effectiveness of severe accident countermeasures based on the Japanese regulatory requirements, measures to prevent the failure of PCVs were evaluated assuming that 75% to 100% of the zirconium in the reactor core was oxidized. Therefore, while hydrogen generation is not prohibited, it can be inferred that the criterion conservatively requires that hydrogen generation be controlled to very low levels. Accordingly, the 1% limit is still valid from the viewpoint of preventing PCV failure resulting from hydrogen generation due to the cladding oxidation.

The fuel temperature differs at axial positions. The 15% ECR limit is applied at the position exposed to the most severe conditions. Since the hydrogen generation limit applies to the entire reactor core, the two limits are consistent with each other.

5.4 Regarding criterion (4)

This criterion requires that decay heat can be removed over a long period of time considering possible changes in the fuel geometry. The supplement of the criterion provides the following examples as acceptable cases.

- (a) The requirement to “consider changes in the fuel geometry” is satisfied when the following conditions are maintained:
 - The entire reactor core is reflooded or
 - At least the part of the core with the highest power density is reflooded, while the rest of the core is sufficiently cooled.
- (b) If it can be shown that the path of heat transfer from the core to the final heat sink is ensured with sufficient multiplicity or diversity and independence and with a margin of performance, and that this condition can be maintained for the desired time if appropriate measures are taken, the core cooling “over a long period of time” of this criterion shall be considered possible.

This criterion and its examples assume that no harmful fuel damage will occur during long-term core cooling if the criteria (1) and (2) are satisfied. However, based on the lessons learned from the accident at the TEPCO's Fukushima Daiichi NPS, it is necessary to further study the long-term core coolability following a LOCA based on various loads during cooling. To address this issue, mechanical tests of the oxidized and quenched cladding, assuming earthquakes after a LOCA^{5-25,26)}, confirmed that fuels that satisfy the criteria (1) and (2) are unlikely to fracture due to earthquakes. Therefore, the assumption of this criterion was temporarily confirmed by the experimental data. Needless to say, the removal, transportation, and storage of the fuel from the reactor, must be conducted with great care to avoid additional fuel damage.

There may also be oxidation and embrittlement of the cladding due to reduced cooling capacity and increased fuel temperature caused by failures of facilities and devices. If the cladding temperature is very high (e.g., above 800°C), as in the case of a LOCA, safety is ensured by fulfilling conditions (1) and (2). However, if the fuel temperature is kept at lower temperatures (e.g., less than 800°C) for more than a few days, attention should be paid to the breakaway oxidation⁵⁻¹³⁾. Namely, additional criteria or limits on temperature and time should be considered to ensure the long-term core coolability as needed.

5.5 Issues for which continuous consideration is needed

Criteria (1) and (2) define the conditions for severe embrittlement of the cladding to avoid extensive core damage with a view to maintaining the core coolability in a LOCA. There seems

to be a large gap between the cladding embrittlement and the loss of core coolability both from a phenomenological and a regional perspective because, in the safety analysis, the maximum amount of oxidation is estimated for a single maximum temperature position even though the maximum temperature position actually changes with time. However, it is very difficult to understand all the phenomena that occur in LOCAs, to fully understand the conditions in the reactor, and to quantitatively evaluate the core coolability, taking into account the geometry changes of the core under various conditions in the accidents. This could be the reason why we still follow the basic consideration at the time when the criteria were established. However, once the in-reactor conditions are fully clarified and the core coolability can be quantitatively evaluated, it may be possible to make more rational decisions not only in establishing the cladding embrittlement criteria but also in evaluating the influence of FFRD or introducing the best-estimate analysis with uncertainties.

As a specific issue, it may be necessary to confirm the extent of core coolability reduction due to coolant channel blockage caused by ballooning and rupture of cladding. As experimentally shown in the 1980s, the core coolability has been shown to be maintained even with a very conservative assumption of the coolant channel blockage. However, the influence of the fuel burnup extension on the ballooning and rupture behavior of cladding in the bundle geometry does not appear to have been fully investigated.

As described in 4.5, in the case of the high-burnup fuel, the fuel pellet fragmentation, axial relocation of fragments, and dispersal out of the rupture opening of cladding, so-called FFRD, may occur during ballooning and rupture of cladding. This FFRD is currently being studied in research reactors and hot laboratories. It is expected that important data will be acquired to clarify the conditions for the occurrence of FFRD and to evaluate its impact on PCT and core coolability. In addition, information for a more accurate estimate of the rupture behavior of cladding is also necessary for the above evaluation.

In France, representative pipe failures and accident scenarios were reviewed on the occasion of the revision of the ECCS acceptance criteria. Since conditions such as heat-up rates and transient periods may change depending on the accident scenario and consequently affect the fuel behavior, requirements and conditions on thermo-hydraulics should be continuously reviewed.

6. Summary

The ECCS acceptance criteria have not been reviewed since 1981 in Japan. In addition, although much technical knowledge has been accumulated on the behavior of the high-burnup fuel under LOCA conditions and the applicability of the current criteria, no discussion has been made to consider the influence of the fuel burnup extension on the criteria from a regulatory perspective.

Based on the above background, this report summarized the latest information on the fuel behavior under LOCA conditions obtained inside and outside Japan, reviewing the process and basis of the current ECCS acceptance criteria, and showed our view for the necessity of the revision of the criteria as follows:

- The basic consideration for the criteria on the peak cladding temperature and the amount of oxidation, namely the strength criteria for the fracture resistance against loadings on quenching, can be maintained also for the high-burnup fuel. In order to prevent the cladding embrittlement for short periods and the extension of fuel damage, it is reasonable to maintain the peak cladding temperature limit as well as the limit of the amount of oxidation. Although the fracture boundary decreases as the hydrogen absorption increases at high burnup, it is not necessary to revise the 15% ECR limit since this limit still has a sufficient margin within the licensed bundle average burnup (< 55 GWd/t). It is noted that the cladding embrittlement should be carefully evaluated for the high-burnup fuel because some high-burnup effects are observed in the oxidation and deformation behavior.
- The post-LOCA long-term core coolability should be considered more carefully as a lesson learned from the accident at the TEPCO's Fukushima Daiichi NPS. However, based on the information on the strength of the cladding that experienced the LOCA-simulated conditions, it is considered that the possibility of the extensive fuel failure by loadings including earthquakes is low if the embrittlement criteria (1200°C, 15%-ECR) are satisfied. Therefore, there is probably no need to revise the criterion for the long-term core coolability at the moment. However, the criterion would be effectively enhanced by adding limits or guides to prevent the extensive fuel failure during the long-term core cooling, including the consideration of the breakaway oxidation.
- The occurrence of the fuel fragmentation, axial relocation, and dispersal of the fragments out of the fuel rod (FFRD) is currently a pending safety concern. Based on the information obtained so far, the impact of the FFRD may be small under the current operating conditions and in the licensed fuel burnup range. However, it is necessary to consider reflecting the FFRD in the ECCS acceptance criteria, when sufficient knowledge on the occurrence conditions of the FFRD and its impact on the peak cladding temperature and reactor core coolability becomes available.

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(e)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照射量	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角加速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加減	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ = kg s ⁻³
	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π)A m ⁻¹

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

