

JAERI-M

6 3 3 9

冷却材喪失事故条件における燃料棒の
変形および内面酸化挙動

1975年12月

吉田 照夫・橋本 政男・大友 隆
川崎 了・本間 功三

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

冷却材喪失事故条件における燃料棒の変形および内面酸化挙動

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

古田照夫、橋本政男、大友 隆

川崎 了、本間功三*

(1975年11月29日受理)

軽水炉の冷却材喪失事故条件における燃料棒の変形挙動および内面酸化を調べる目的で、加圧燃料棒を用いて水蒸気中で加熱試験をおこなった。

燃料棒の破裂は初期内圧の増加とともに低温で生じ、最大周変形量が増加した。被覆管の平均肉厚減少も初期内圧の増加および最大周変形量の増加につれて大きくなるのが認められた。燃料棒の内面酸化は破裂状態および供給水蒸気量によって影響され、酸化被膜の形態も異なる。また、燃料棒軸方向の内面酸化は76mm以内であることが確認された。

* 三菱原子力工業株式会社

Deformation and Inner Oxidation of the Fuel Rod in
a Loss-of-Coolant Accident Condition

Teruo FURUTA, Masao HASHIMOTO, Takashi OTOMO,

Satoru KAWASAKI and Kozo HONMA*

Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

(Received November 29, 1975)

In order to study behaviours of the fuel rod in a loss-of coolant accident, four kinds of pre-pressurized sham fuel rods filled with Al_2O_3 pellets to simulate UO_2 were heated in steam under hypothetical LOCA conditions.

Circumferential strain of the sham fuel rod increases with rise of the initial pressure, since burst temperature of the single sham fuel rod decreases with increase of the initial pressure. Oxide thickness of the inner tube wall is larger than that of the outer tube wall, when amount of the supplied steam to the inner tube wall is less. The thicker coarse inner oxide film consists of monoclinic and tetragonal zirconia, while the thinner outer oxide film is of monoclinic zirconia alone. The longitudinal inner oxide film is observed within 76 mm of the rupture.

* Mitsubishi Atomic Power Industries, Inc.

目 次 な し

緒 言

軽水炉の冷却材喪失事故を解析するにあたっては燃料被覆管の最高温度が1200°Cを越えないこと、燃料被覆管の酸化が被覆管の厚さの15%を越えないことや炉心が冷却可能な形状に保たれていなければならないなどの条件を満足しなければならないことになっている。しかし事故中の燃料棒変形挙動や破裂後の内面酸化に関する報告で公表されているものは少なく、上記条件を満足しているかどうかを判定するためには多くのデータが蓄積されることが望ましい。

冷却材喪失事故時において燃料棒を変形させる力として考慮されるものには、BWRでは燃料の燃焼度とともに増加する核分裂生成ガスによる圧力の温度上昇にともなう変化であり、PWRではBWR同様の核分裂生成ガスおよび燃料成形時に封入されたガスの圧力が加えられたものである。一方、被覆管は温度上昇につれ変形能を増すが強度が低下し変形を生ずるとともに破裂に到る。破裂後被覆管内面は水蒸気に曝され酸化する。このような過渡的な現象を定量的に取扱うことは極めてむつかしい。

本研究ではPWRの場合を模擬する目的で冷却材喪失事故時に予想される各種の内圧を模擬燃料棒内に生じせしめるため、予めアルゴンガスで加圧した数種の試料を使って水蒸気雰囲気内で変形・破裂させ、破裂にともなって生ずる内面酸化についての知見を得ることを目的とした。

方 法

模擬燃料棒の概略および用いた被覆管材料ジルカロイ-4の主な化学成分をFig. 1に示す。この燃料棒の空間体積 1.40 cm^3 は実長燃料のそれに対する燃料棒長さの比から求められた値であり、ペレット一クラッドのギャップは実際と同じく0.15mmである。アルミナペレットは密度 3.9 g/cm^3 、純度99.5%以上のものを用いた。燃料棒に与えた初期内圧(室温)は20, 30, 40および 50 kg/cm^2 の4種類であり、純度99.999%以上のアルゴンガスを封入した。

Fig. 2は高周波誘導加熱方式による装置を示す。本装置は水蒸気圧力を変化させることができるが、本試験では1気圧のみでおこなった。水蒸気流量は 10 g/min である。高周波誘導加熱方式の特徴として、燃料棒の変形にともなって局部的に温度が上昇することが予想される。そこで、本試験では高周波コイルを加熱炉に変えた抵抗炉加熱方式による場合を併せて検討した。このときの昇温速度は $2\sim3\text{ }^\circ\text{C/sec}$ であり、Fig. 3に試験時の温度変化の一例を示す。なお、水蒸気流量は 5 g/min であった。以上の両方式を用い燃料棒を最高温度 $1,000\text{ }^\circ\text{C}$ まで昇温し、その温度に $6\sim8\text{ min}$ 保持する試験をおこなった。

燃料棒の変形は水蒸気中加熱試験後ノギスで破裂開口を原点として破裂部上下にわたり等間隔に測定した。肉厚減少や内面酸化の測定は、破裂した試料を樹脂に埋込み各測定に適するよう切削後機械研磨し、硝酸・フロ酸・グリセリン混合液(2:1:6)で腐食し顕微鏡観察から求めた。

結 果

抵抗炉加熱方式で得られた燃料棒の変形・破裂の様子を示す一例をFig. 4にまとめた。初期内圧が高くなるにつれて燃料棒の曲がりが起っているのが見られる。Fig. 5は抵抗炉加熱

方式で得られた燃料棒の破裂部付近を拡大した場合である。破裂開口の形態は初期内圧 20~30 kg/cm² と 40~50 kg/cm² の場合に大別される。即ち、内圧が高いときには開口部が広く、内圧が低いときには亀裂状になり易い傾向が認められる。ただし、内圧が高いときにも低い場合同様な割れ口を示すものも認められた。破裂温度は 780~870°C であり、初期内圧が低くなるにつれて破裂温度が上昇する。破裂圧力は破裂後の燃料棒変形から体積を求め計算した結果、初期内圧に関係せず 50~60 kg/cm² とほぼ一定の値となる。

高周波誘導加熱および抵抗炉加熱方式による各試験後の燃料棒変形を測定結果を次に示す。Fig. 6 は破裂開口部中央を原点として燃料棒上下約 80 mm にわたり外径測定から求めた周方向の変形を初期内圧毎にまとめたものである。

初期内圧が高ければ一般的に最大周変形が大きくなるが、変形が局部的に生じていることが認められる。なお、昇温速度 7.5 °C/sec でおこなった試料 (M.7, M.66, M.72 および M.76) の最大周変形は両加熱方式における昇温速度の遅い (3 °C/sec) 他の試料に比べやゝ小さい。この傾向は初期内圧が高くなるにつれてとくに顕著である。

昇温速度 7.5 °C/sec の高周波誘導加熱方式による場合と抵抗炉加熱方式による場合でおこなった燃料棒の破裂断面から求めた平均肉厚を初期内圧および最大周変形量との関係として Fig. 7 に示す。初期内圧が高ければ平均肉厚が小さくなり、また、最大周変形量が大きくても平均肉厚が小さくなる関係が認められる。同図中に最大周変形の $\frac{1}{2}$ が平均肉厚減少に相当する場合の関係を点線で示したが、抵抗炉加熱の場合では最大周変形が小さいとき平均肉厚減少が少なく、逆に最大周変形が大きくなると平均肉厚減少も大きくなるような傾向が見られる。また、高周波誘導加熱方式で試験した場合、最大周変形が小さいのに平均肉厚減少が大きくなるという明きらかな特徴が認められる。

Fig. 8 と Fig. 9 は抵抗炉加熱方式で試験した燃料棒断面における酸化と平均肉厚減少の変化を示す例である。Fig. 8 は初期内圧 40 kg/cm²、Fig. 9 は初期内圧 20 kg/cm² の場合である。

内面における酸化は破裂先端部より離れるにしたがって、外面の酸化と様相が異なっているのが見られる。とくに、Fig. 9 でこの傾向が顕著である。即ち、内面の被膜は外面の被膜に比べ厚さが厚く、かつ被膜全体が粗であり、金属相部分を侵触している。このような内面酸化の傾向は破裂開口が小さいときに著しく生じているが、高周波誘導加熱方式でおこなった試料には認められなかった。内面および外面の被膜に粗密の差が認められたため、被膜を同定する目的で X 線回折をおこなった。この結果、外面被膜は monoclinic 型 ZrO₂ のみしか存在しないのに対し、内面被膜には monoclinic 型 ZrO₂ および tetragonal 型 ZrO₂ が存在することが判明した。

Fig. 10 に高周波誘導加熱方式による昇温速度 7.5 °C/sec の場合および抵抗炉加熱方式による場合の内外面の被膜厚さ δ (内面の被膜厚さ / 外面の被膜厚さ) を Fig. 8 および Fig. 9 に示したような断面の各点で求めた結果をまとめた。 δ の傾向は開口先端部より離れるにしたがい 1 より大きくなる場合と 1 より小さくなる場合の二つに大別される。初期内圧の違いによる δ の傾向は認められず、高周波誘導加熱方式による場合だけはつねに開口先端部から離れるにつれて δ は 1 より小さくなる。 δ の傾向は Fig. 5 の破裂開口の形態に影響されるのが認めら

れるため、破裂開口部の面積を求め破裂先端部よりもっとも離れた位置における δ の値との関係をFig. 11に求めてみた。本試験での破裂開口面積が 5mm^2 以下に集中しているため、明確なことは言えないが破裂開口面積が大きくなるにつれて δ の値が1に近づくものと思われる。

Fig. 12は高周波誘導加熱および抵抗炉加熱方式により内面酸化された燃料棒軸方向における内面酸化被膜の形成が認められなくなる点を示したものである。図の上部は破裂が生じた側での測定であり、下部は破裂部反対側での測定である。内面の被膜は初期内圧に無関係に片側 $25\sim30\text{mm}$ 離れた点まで確実に存在するが、とくに深く酸化被膜が形成されたときでも現在の規制値 76mm 以内であることが判った。

討 論

燃料棒の変形に対する昇温速度の影響については、Hobson¹⁾ら、Hardy²⁾やEmery³⁾らによって広範囲にわたる結果が報告されている。Hobson¹⁾らの結果によれば破裂温度は昇温速度 $2\sim20\text{^\circ C/sec}$ の範囲で $815\sim970\text{^\circ C}$ を示し、内圧との間には明確な関係が認められない。しかし、内圧が 10kg/cm^2 以下の小さい場合には破裂温度が 970^\circ C 以上となる。本試験の結果は破裂温度が $780\sim870\text{^\circ C}$ とHobson¹⁾らの結果に比べ低くなっている。一方、周変形量についても、Hobson¹⁾らの結果では昇温速度 $2\sim10\text{^\circ C/sec}$ の範囲では内圧によらずほぼ同じ変形量を示すのに比べ本試験の最大周変形量は内圧が高くなるにつれて大きくなる。この差異は破裂が生じた領域によって変形が α 相および β 相が混在する場合は α 単相に比べ変形が小さくなる事実が認められている。²⁾したがって、本試験の内圧が高いとには低温で破裂が生じるから、内圧の低いときに比べ内圧が高い試験片で変形が大きくなったものと思われる。

Hardy²⁾による結果は内圧を一定としておこなったものであるが、昇温速度が遅ければ変形がより低い温度で生ずる。この点は本試験の結果昇温速度が遅いときに変形がFig. 6で認められるように大きくなっているのと対応する。なお、燃料棒の破裂が起る温度範囲でのLOCAにおける温度変化は約 20^\circ C/sec 程度であると思われるから、本試験の昇温速度より早いため生ずる変形は本試験で得られた結果よりも小さくなるものと予想される。

Emery³⁾らの昇温速度と内圧の関係を調べた結果から、最大変形が起る内圧と昇温速度の組合せが存在する。しかし、彼らの結果のうち、内圧 56kg/cm^2 のときには他の内圧に比べ変形が小さくなるがこの原因は明らかにされていない。本試験の内圧範囲以上であり、今後初期内圧を広く変化させた場合の検討が必要である。

本試験でおこなった燃料棒支持方法は上端固定、下端は無拘束であるが、実際の燃料棒は両端拘束の場合に相当する。したがって、燃料棒の拘束状態のちがいによる変形の差異を考慮しなければならない。両端拘束による内圧バースト試験による変形は両端無拘束による場合のそれに比べて半分程度になる。⁴⁾このため、本試験の結果得られた変形が実際の燃料棒で生ずる変形を意味しておらず、実際の変形は得られた変形よりも小さくなると考えられる。しかしながら、燃料棒間隔が 14.3mm であるから、約 17% 以上の変形が各々の燃料棒に生ずるとすれば燃料棒の接触が起る可能性が生まれる。本試験時の昇温速度および燃料棒固定方法が実用燃料のそれらと異なることを考慮しても燃料棒の接触が生じる可能性が考えられ、緊急冷却水の流路

閉塞を考慮するうえで重要であるため、今後の詳細な研究が必要とされよう。

内面酸化で内面における被膜が外面のそれに比較して膜厚が厚くかつ被膜が粗である特徴が認められた。このため内外面被膜を同定する目的でおこなったX線回折の結果、外面被膜は monoclinic 型 ZrO_2 のみであるのに対して内面被膜は低温で安定に存在する monoclinic 型および 1000°C 以上で準安定に存在するといわれる tetragonal 型 ZrO_2 から成っていることが判った。tetragonal 型 ZrO_2 は 850°C の空気中酸化⁵⁾ や 900°C 水蒸気中短時間酸化⁶⁾ などで認められている事実がある。ところが、1000°C 以上で本試験と同じ水蒸気流量 5g/min の水蒸気中酸化では tetragonal 型 ZrO_2 は認められていない。⁶⁾ 以上のことから、内面の酸化についての基礎的な知見が要求される。

各結晶系の ZrO_2 の密度は monoclinic 型 5.68g/cm³, tetragonal 型 6.10g/cm³ であり、両者において 7% 程度異なる。このため、被覆管厚がどの程度酸化したかを考慮する安全評価上重要な問題である。Fig. 8, 9 で認められるように内面の被膜は粗であってしかも金属相を食っているように見える。しかしながら、食われた金属相を求めるることは本試験の結果からでは無理であり、この点を評価できるようなデータが必要であろう。さらに、このような被膜が形成されたときの被覆管の脆化も安全評価上考慮しなければならず、詳細な試験がおこなわれなければならない。

内面に粗な被膜が生成される条件について考えてみると、Fig. 5 の破裂開口部の様子とある関係が存在するように見える。すなわち、Fig. 11 で示したように破裂開口部面積が 7.5mm² 以下である場合には Fig. 9 のような被膜が認められる。一方、試験時に供給される水蒸気流量が 10g/min. 以上である高周波誘導加熱方式では、5g/min. の抵抗加熱方式のときとちがって Fig. 9 のような被膜は認められない。以上の 2 点から粗な被膜の生成条件として供給水蒸気が極めて少ないと考えられる。

内面の被膜形態が従来までに知られているものと違うことから、冷却材喪失事故解析をするにあたっては、(1)酸化量の評価の問題、および (2)このような被膜が存在するときの被覆管脆化の程度、について考慮しなければならない。(1)については内面の酸化が外面の酸化とどのように異なるかを定量化する必要があり、(2)についても内外面の被膜が粗な場合の被覆管の脆化程度および内面が粗で外面が密の被膜である場合の被覆管の脆化程度などを定量的に評価できる必要がある。以上の観点より筆者らは今後この点について詳細な検討を加える予定である。

燃料棒軸方向における内面の酸化は Fig. 12 にみられるごとく、76mm 以内しか被膜が認められず現在の安全評価指針は十分であるといえるが、Fig. 9 のような粗な被膜が破断部断面で認められたものは軸方向でも同様な被膜が認められ酸化の程度を評価するときには問題にされよう。

結 論

軽水炉の冷却材喪失事故条件における燃料棒の挙動を模擬する目的で、模擬燃料棒を水蒸気雰囲気中で加熱し、変形および破裂の挙動と肉厚減少の関係ならびに内面酸化について検討した結果次の結論を得た。

(1) 燃料棒破裂は初期内圧が高くなるにつれ低温で生ずるようになるが、破裂圧力は初期内圧

に關係なくほゞ一定の圧力を示す。

- (2) 燃料棒の変形は初期内圧が高くなるにつれて破裂温度が変態点以下でより低くなるため最大周変形量は大きくなるが、燃料棒全体での変形範囲はむしろ初期内圧が低い場合に広い。変形の結果生ずる肉厚減少は初期内圧が高いほど大きくなるが、そのときの最大周変形量との間には定量的な関係が認められなかった。
- (3) 内面酸化の程度は破裂開口部との間に關係が存在し、小さな破裂開口で水蒸気流量が少ない場合、内面には外面の被膜と全く様子が異なった粗な被膜が認められる。内面における粗な被膜はmonoclinic, およびtetragonal ZrO_2 から成っており、このような被膜が存在するときには外面被膜厚さに比べて数倍の厚さを持っている。
- (4) 燃料棒の破裂部から内面の軸方向に生ずる酸化は76mm以内であり、現在の安全審査基準は妥当である。

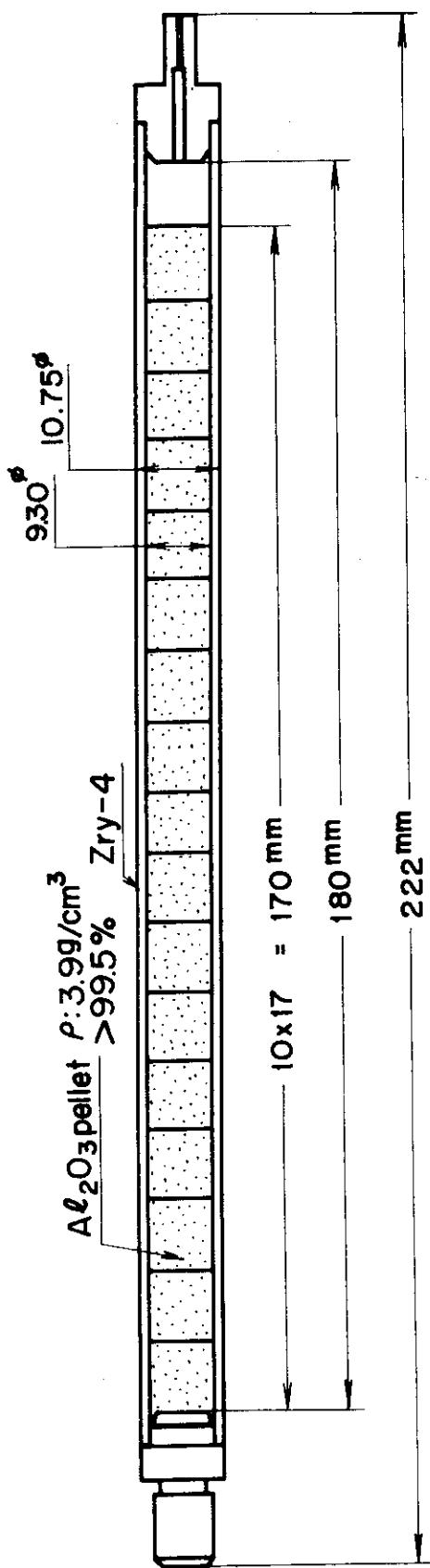
以上の結論から、冷却材喪失事故時の燃料棒挙動に対する解析を正しくおこなうためには、変形や内面酸化に対する基礎的な知見を得ることが是非とも必要であると考えられる。

謝 辞

酸化被膜のX線回折実験については、中性子回折研究室 本橋治彦氏に多大な御助力をいただいた。記してこゝに謝意を表する。

References

- (1) Hobson D.O., Osborne M.F. and Parker G.W : Nucl. Technol. 11 (1971) p.p. 479-490
- (2) Hardy D.G. : CONF-730304 (1973) p.p. 254-273
- (3) Emery A.D., Scott D.B. and Stewart J.R. : Nucl. Technol. 11 (1971) p.p. 474-478
- (4) 原安協・燃安専：ジルカロイ燃料被覆管材料強度共通試験結果 (1974) p. 99
- (5) Maekawa T. and Terada M. : Trans. J. Inst. Metals Japan 4 (1963) p. 57
- (6) 池田清一, 伊藤伍郎, 大橋重雄 : 日本国金属学会誌 39 (1975) p. p. 710-717



Fuel Rod (Space Volume = 1.40 cm³)

Chemical Composition of Zry - 4 used (wt %)

Sn	Fe	Cr	Fe + Cr + Ni	C	O	H	N	Zr	Bal
1.46	0.22	0.10	0.32	80 ppm	1400 ppm	20 ppm	18 ppm		

Fig. 1 Fuel Rod and Chemical Composition of Zircaloy Cladding used in the Experiment.

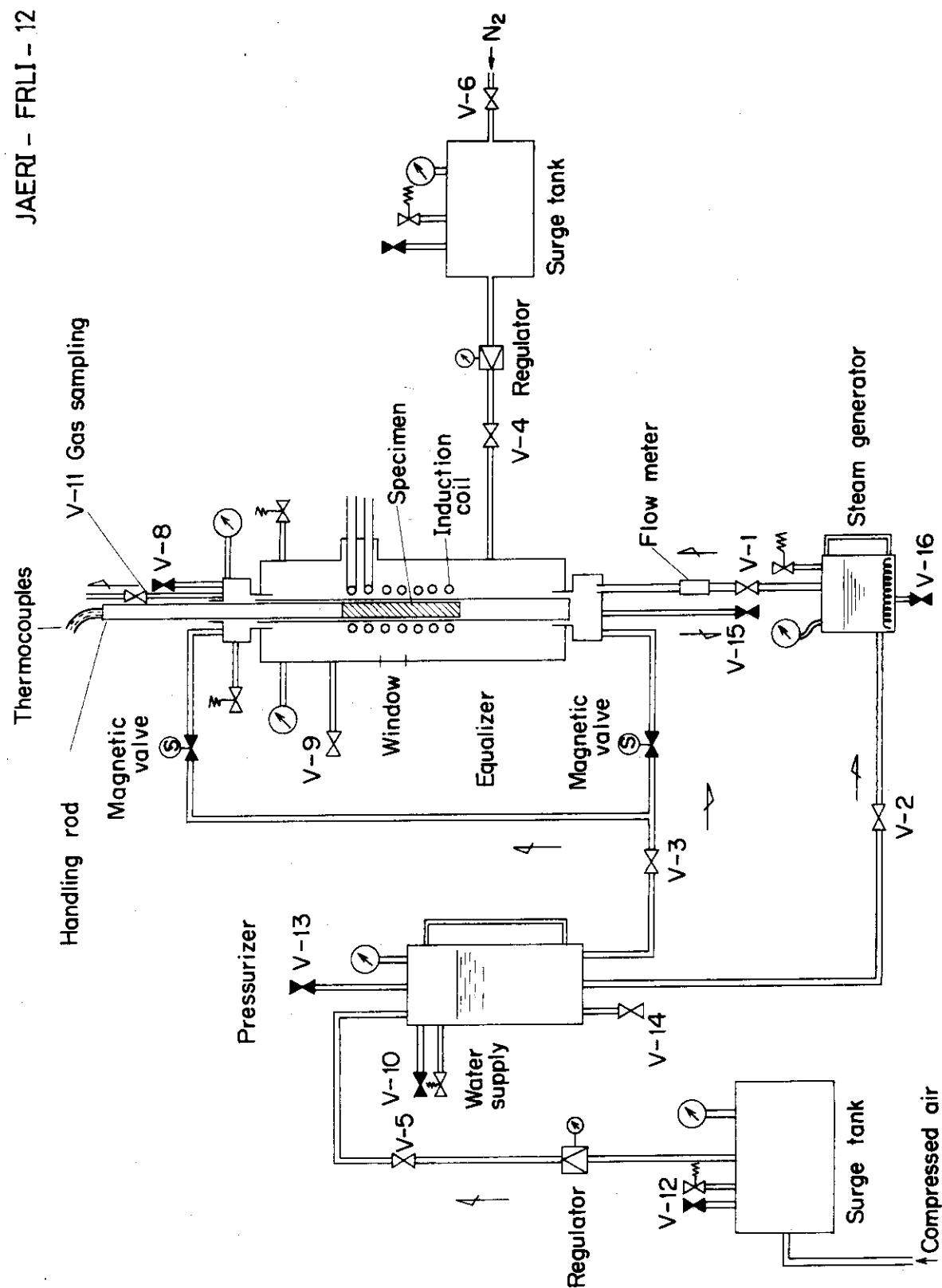


Fig. 2 Apparatus for Zircaloy-Steam Reaction

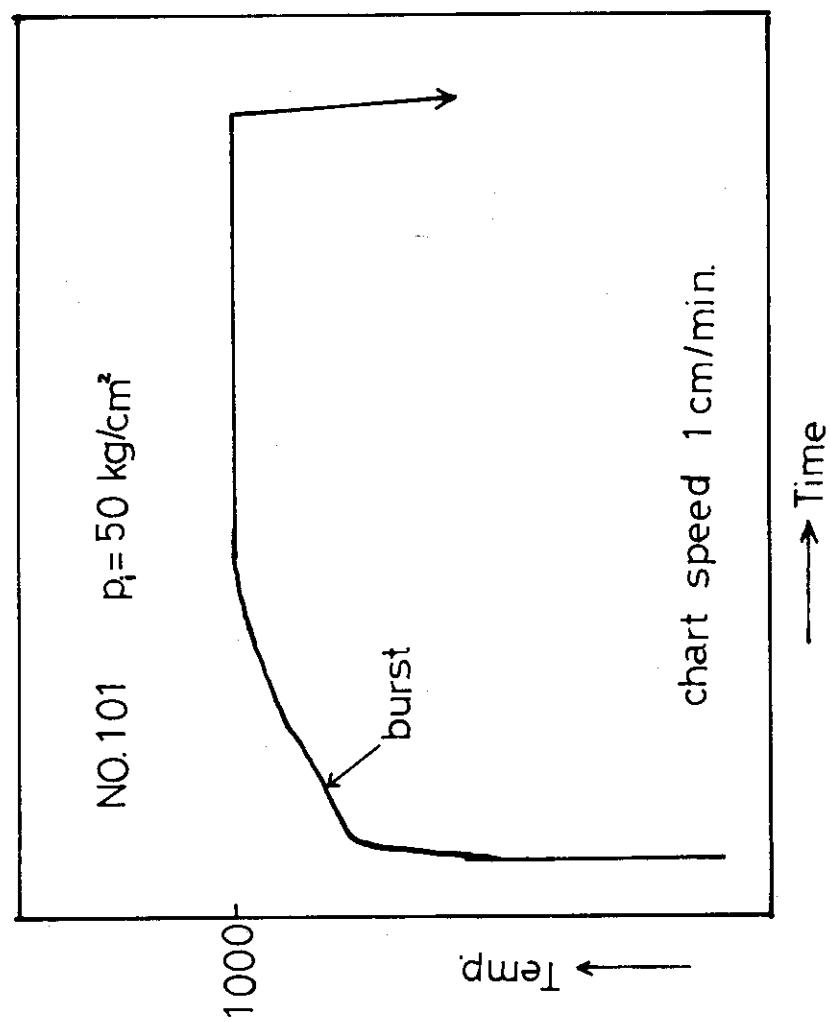


Fig. 3 Temperature curve for a fuel rod in an electrical furnace

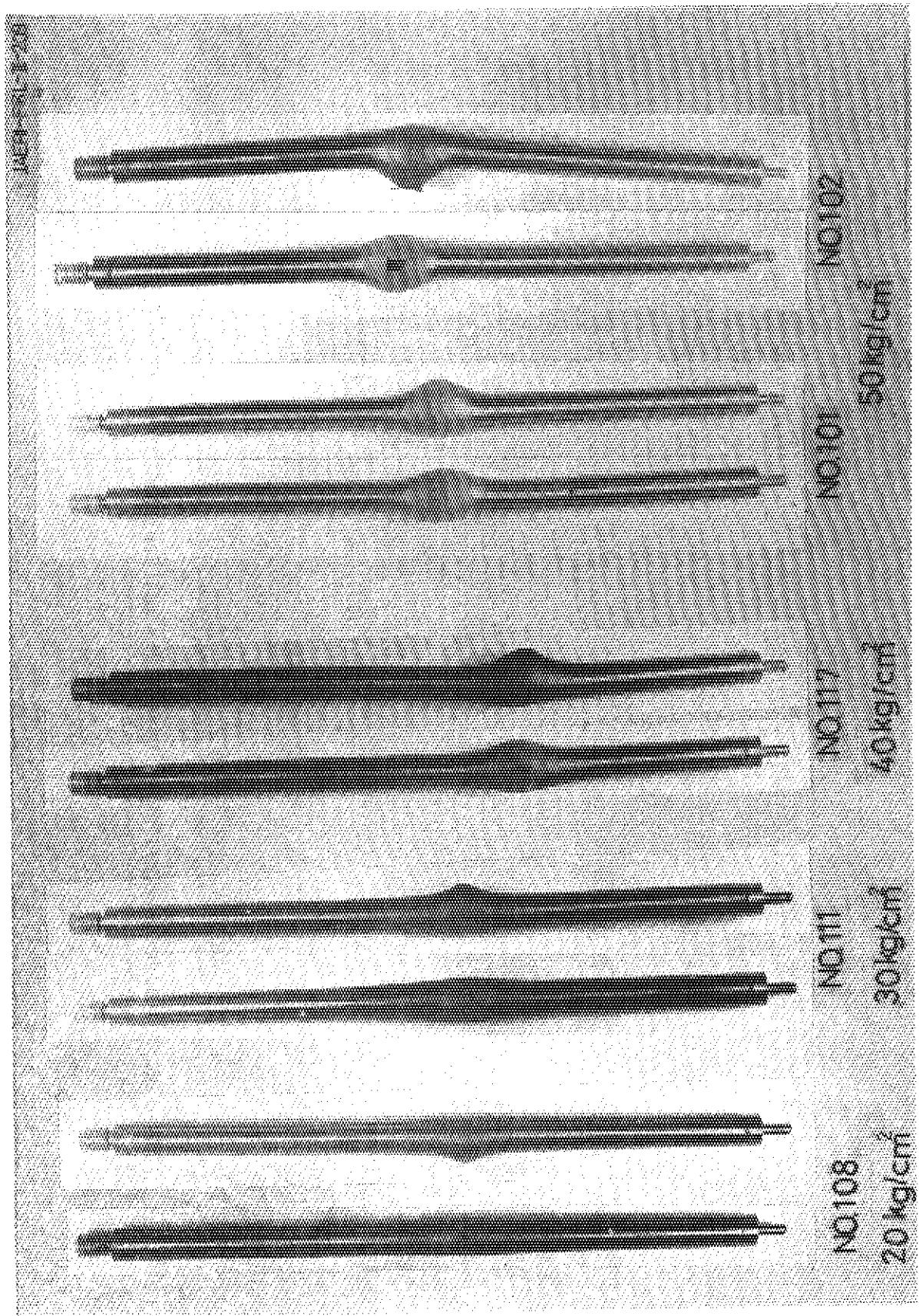


Fig. 4 Examples of Overall Views of Rods used in the Experiments

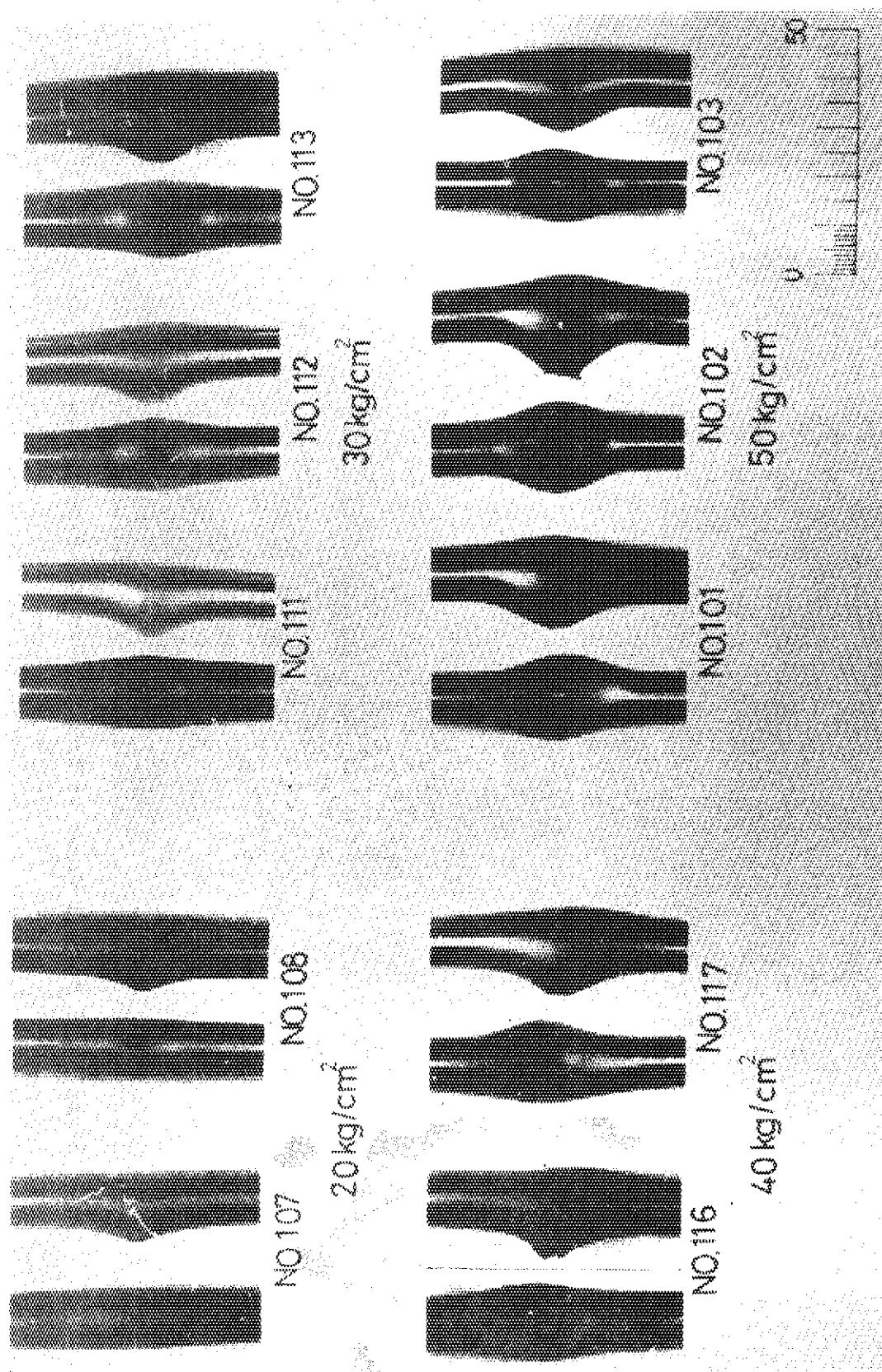


Fig. 5 Close-up Views of Rupture Areas and Ruptured Areas at 90°C
from Ruptures used in the Experiments

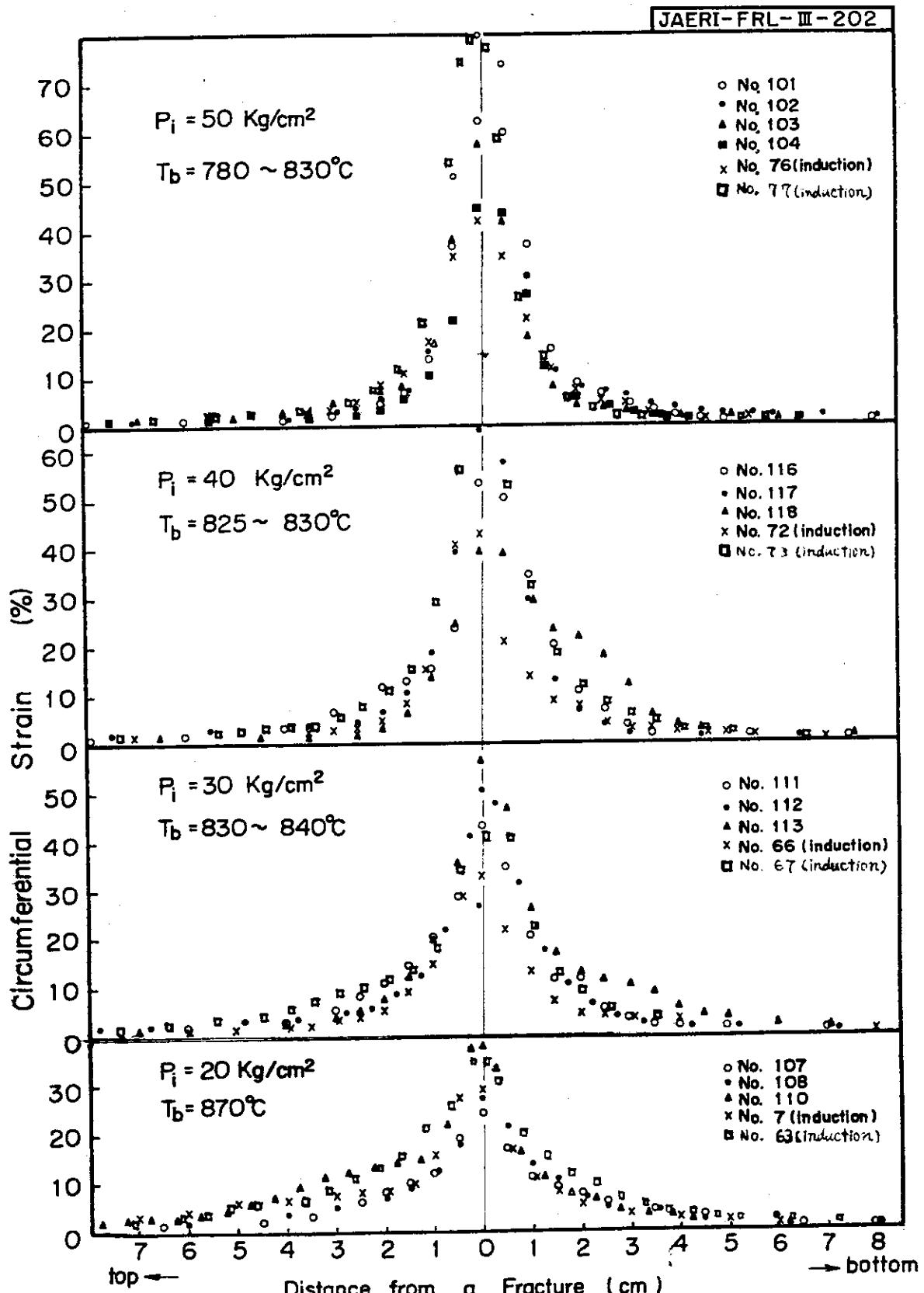


Fig. 6 Circumferential Strain of a Fuel Rod during a LOCA Condition
 (Heating rate 7.5°C/sec ... No.63, No.67, No.73 and No.77,
 3°C/sec ... others)

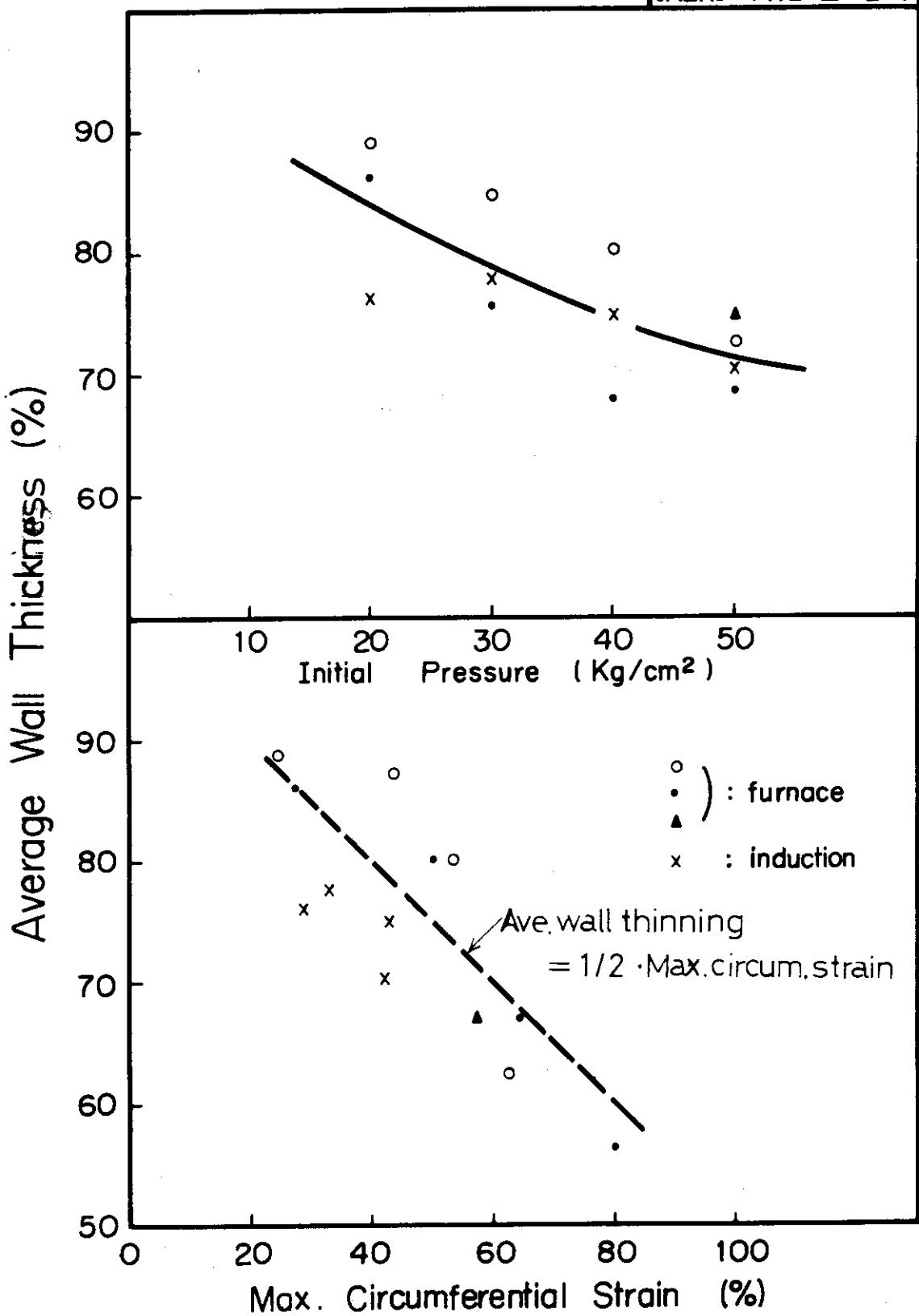


Fig. 7 Change of Average Wall Thinning

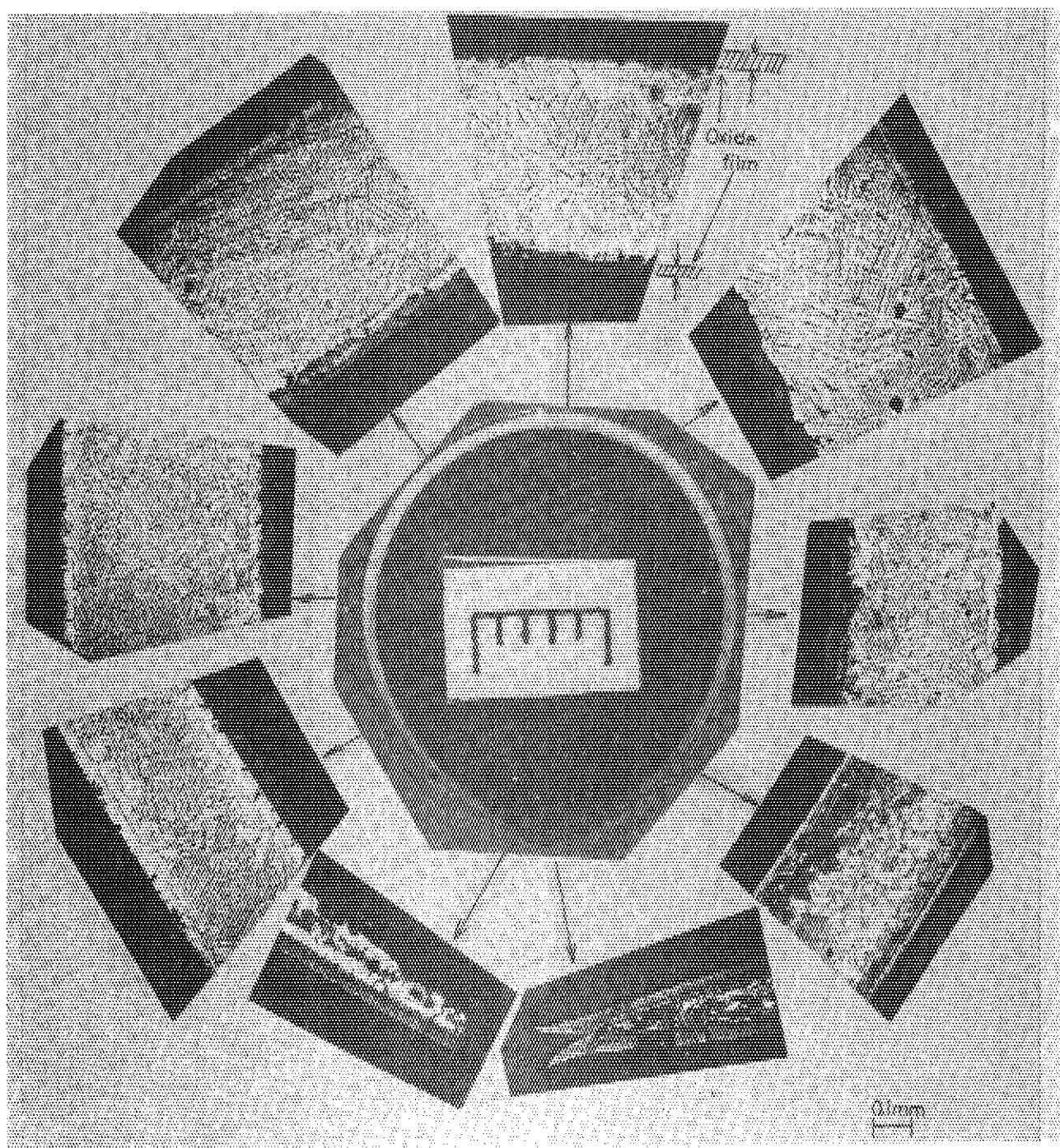


Fig. 8 Cross Section of Tube Wall exposed to Steam for
6 min. at 1000°C

No.116 40 kg/cm²

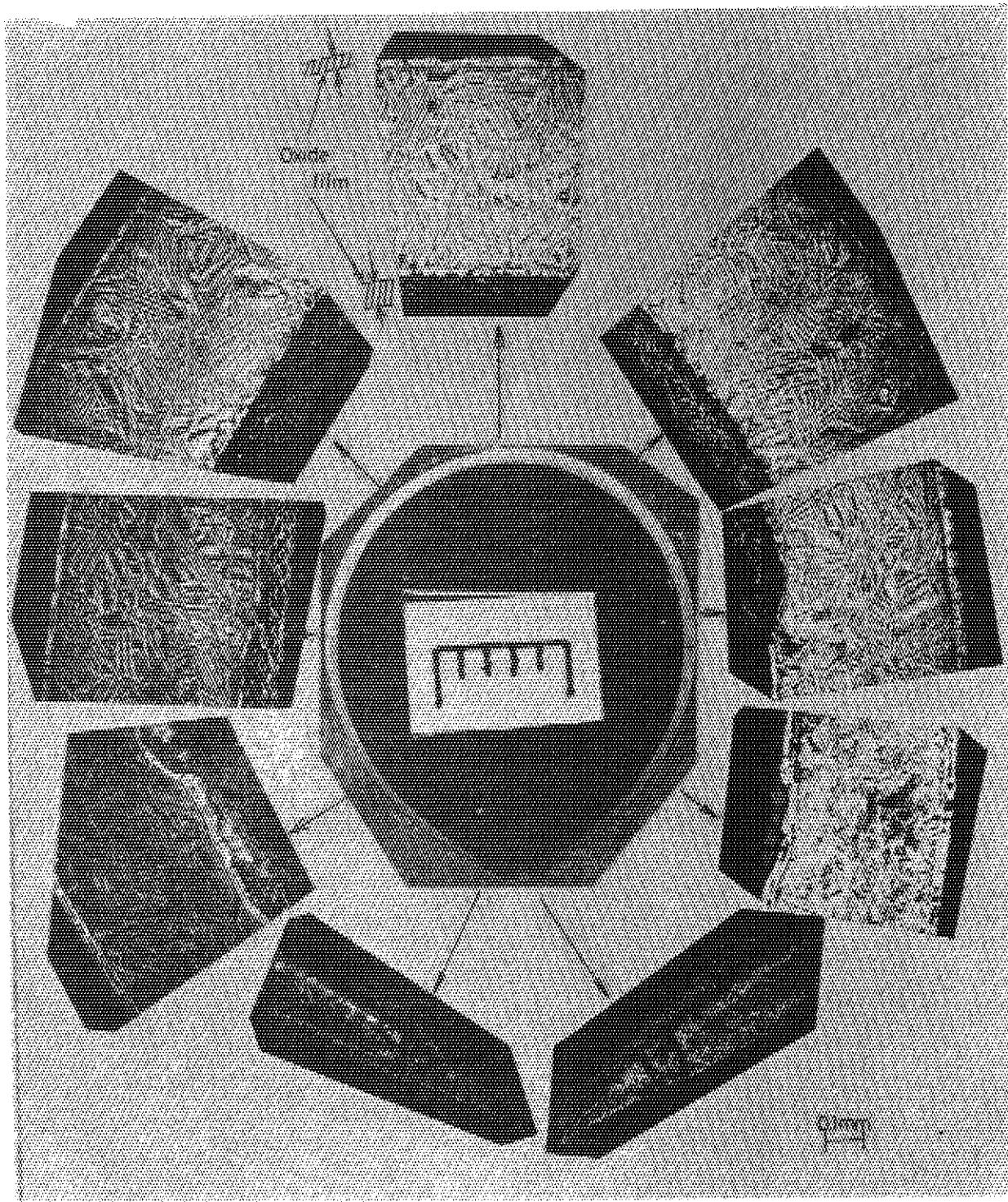


Fig. 9 Cross Section of Tube Wall exposed to Steam for
7 min. at 1000°C

No.108 20 kg/cm²

WILFRED R. COOPER

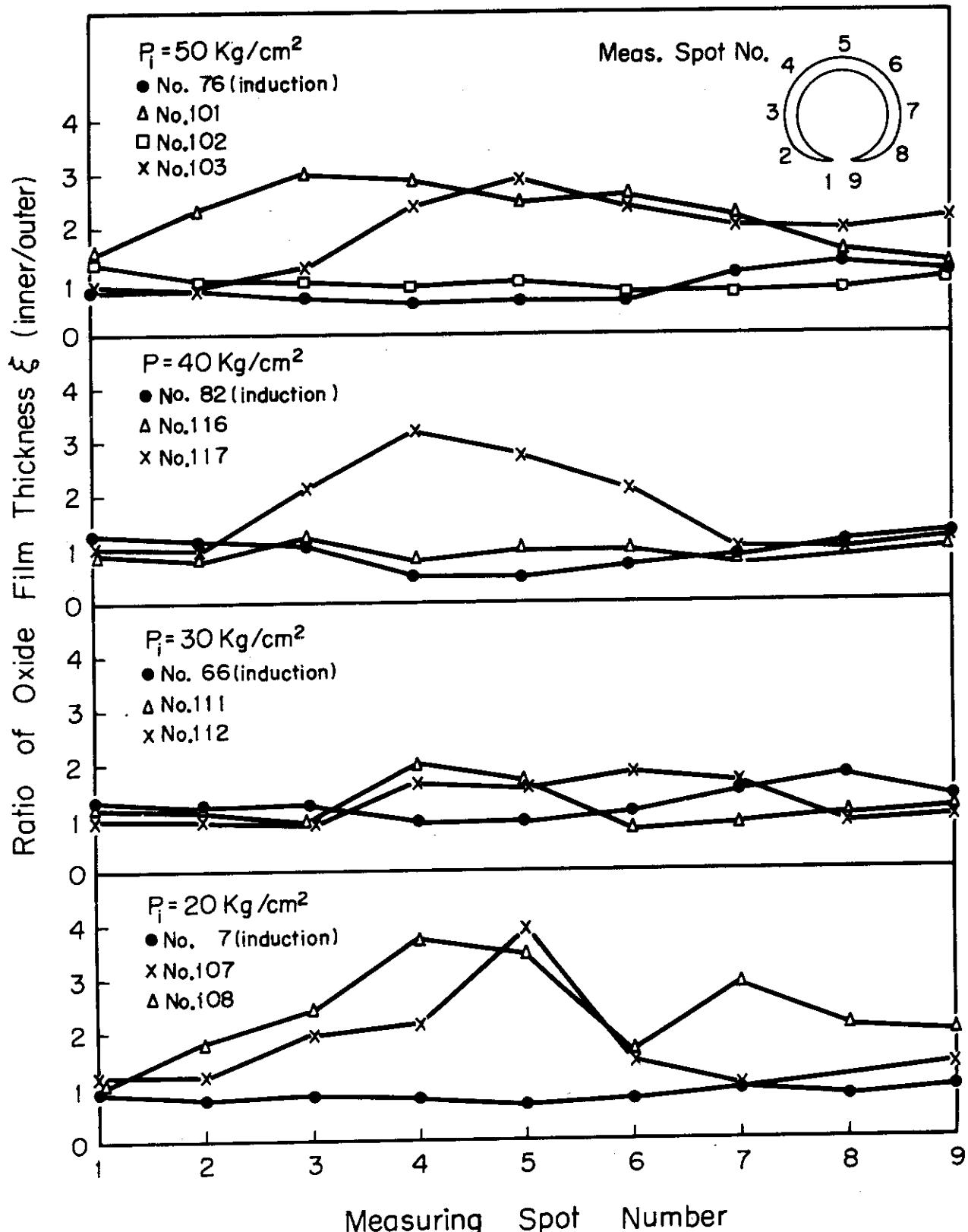


Fig.10 Ratio of Oxide Film Thickness vs. Location of Inner Surface

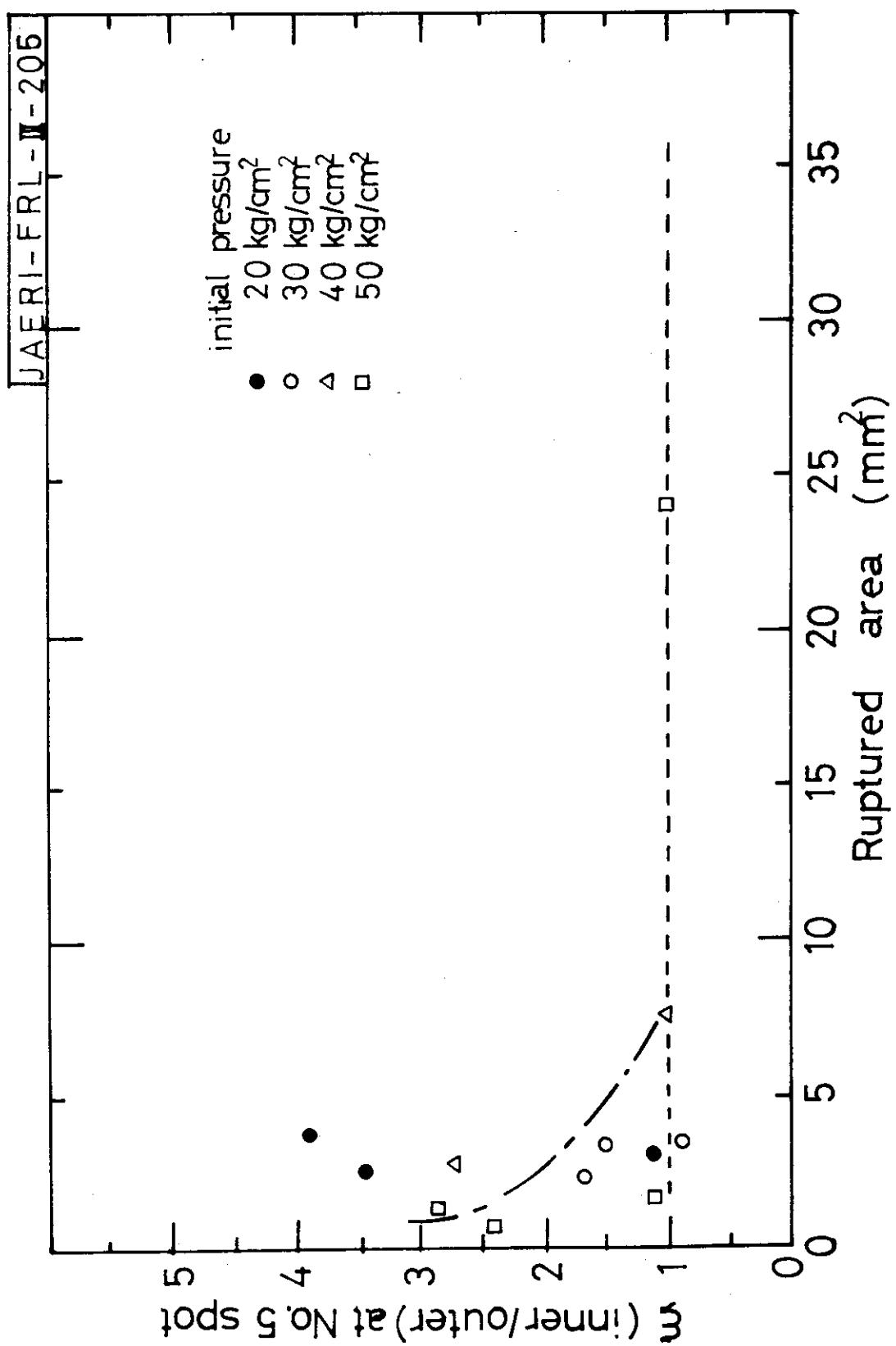


Fig. 11 Relation of Inside Oxidation with Ruptured Area

JAERI-FRL-III-203

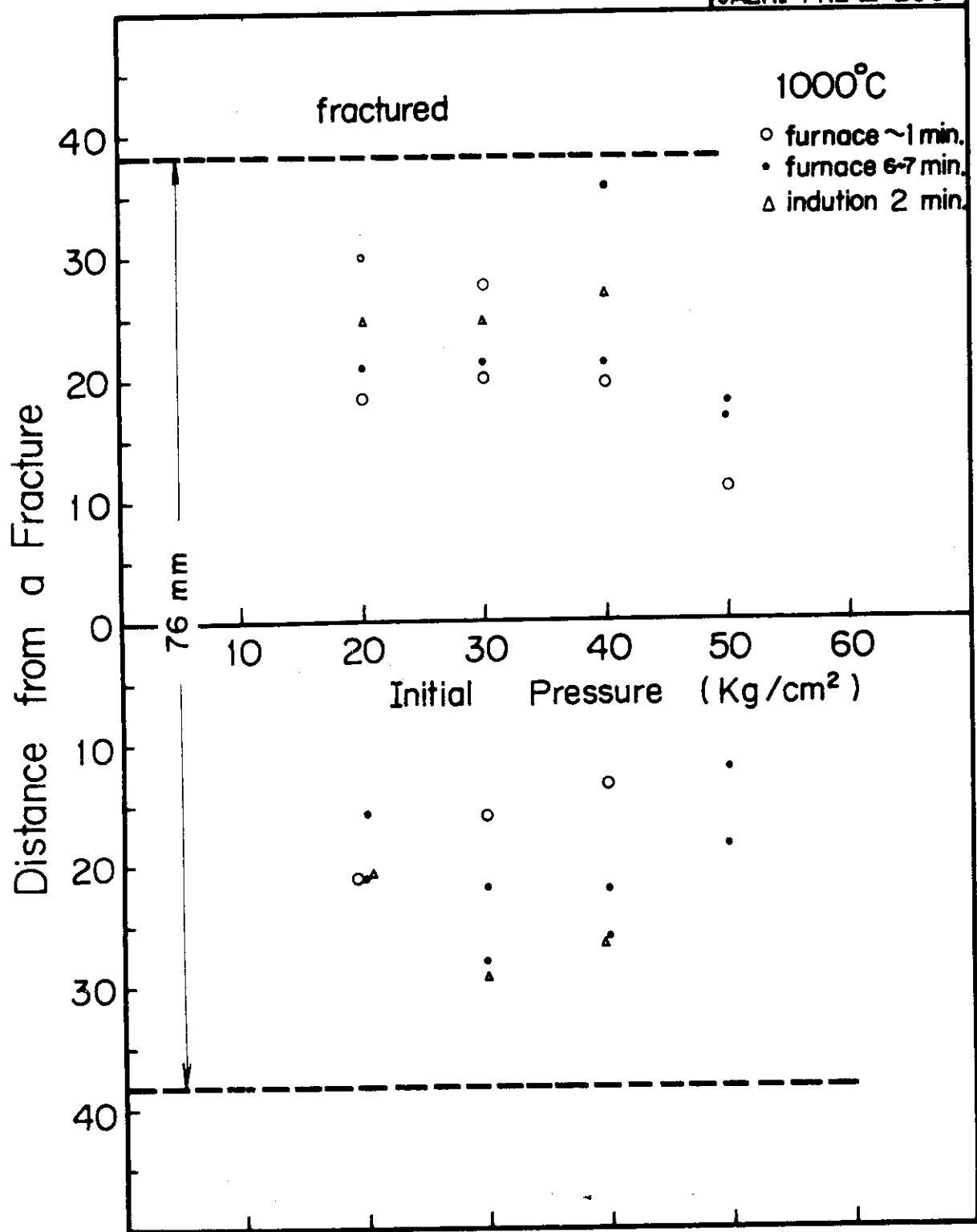


Fig.12 Longitudinal Inside Oxidation