

JAERI-M

8 5 8 6

冷間加工および完全焼鈍被覆材の
燃料破損挙動に及ぼす影響

(NSRRによる特殊被覆材燃料実験結果・1)

1979年12月

斎藤伸三・星野裕明*・塩沢周策・柳原 敏

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、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

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.

冷間加工および完全焼鈍被覆材の燃料破損挙動に
及ぼす影響

(NSRRによる特殊被覆材燃料実験結果・1)

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

斎藤伸三・星野裕明^{*}・塩沢周策・柳原 敏

(1979年11月1日受理)

NSRRにおいて6回に涉つて行つたジルカロイ被覆材の熱処理条件を変えた燃料破損実験の結果についてまとめた。本実験は、照射脆化した被覆材の模擬を目的とした冷間加工被覆材燃料と、被覆管を完全焼鈍により軟化させた完全焼鈍被覆材燃料を用いて、被覆材の熱処理の相違が反応度事故条件下における燃料破損挙動に及ぼす影響を調べることを目的としたものである。

実験の結果、単なる冷間加工材では照射脆化を完全に模擬できず被覆材の昇温により焼鈍されるため、標準の熱処理を行つた被覆材燃料と比較して、破損しきい値、破損機構、変形挙動、被覆管温度挙動および被覆管酸化などいずれをとつても、ほとんど相違はなく、完全焼鈍材燃料についても標準燃料の実験結果と大差はなかつた。

* 外来研究員(三井造船株式会社)

Effects of Cold Worked and Fully Annealed
Claddings on Fuel Failure Behaviour
(Specifically Heat Treated Claddings Tests in NSRR Experiments, 1)

Shinzo SAITO, Hiroaki HOSHINO^{*}, Shusaku SHIOZAWA
and Satoshi YANAGIHARA

Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received November 1, 1979)

Described are the results of six differently heat-treated Zircaloy clad fuel rod tests in NSRR experiments. The purpose of the test is to examine the extent of simulating irradiated claddings in mechanical properties by as-cold worked ones and also the effect of fully annealing on the fuel failure behaviour in a reactivity initiated accident (RIA) condition.

As-cold worked cladding does not properly simulate the embrittlement of the irradiated one in a RIA condition, because the cladding is fully annealed before the fuel failure even in the short transient. Therefore, the fuel behaviour such as fuel failure threshold energy, failure mechanism, cladding deformation and cladding oxidation of the fully annealed cladding fuel, as well as that of the as-cold worked cladding fuel, are not much different from that of the standard stress-relieved cladding fuel.

Keywords ; Reactivity Initiated Accident, NSRR Reactor, Zircaloy Cladding, As-cold Work, Full Annealing, Brittleness, Irradiation Effect, Fuel Failure, Cladding Deformation, Grain Growth

* On leave from Mitsui Engineering & Shipbuilding Co.,Ltd.

目 次

1. 序 論	1
2. 実験装置と実験方法	3
2.1 NSRR装置の概要	3
2.2 実験方法	3
2.3 試験燃料	4
3. 実験結果	12
3.1 冷間加工被覆材燃料実験	12
3.1.1 燃料挙動	12
3.1.2 被覆管変形・酸化	13
3.2 完全焼鈍被覆材燃料実験	13
3.2.1 燃料挙動	13
3.2.2 被覆管変形・酸化	14
4. 考 察	24
4.1 燃料破損しきい値および破損機構	24
4.2 被覆管温度挙動と結晶粒径	25
5. 結 論	31
謝 辞	31
参考文献	31

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Facility and Method	3
2.1 Outline of NSRR Facilities	3
2.2 Experimental Method	3
2.3 Test Fuel	4
3. Experimental Results	12
3.1 Cold Worked Clad Fuel Tests	12
3.1.1 Transient Fuel Behaviour	12
3.1.2 Deformation and Oxidation of Cladding	13
3.2 Fully Annealed Clad Fuel Tests	13
3.2.1 Transient Fuel Behaviour	13
3.2.2 Deformation and Oxidation of Cladding	14
4. Discussion	24
4.1 Fuel Failure Threshold Energy Deposition and Its Mechanism	24
4.2 Correlation between Cladding Temperature History and Grain Size	25
5. Conclusion	31
Acknowledgement	31
References	31

List of Figures and Tables

Fig. 2.1 Standard operating core configuration	6
2.2 Pulse reactor power and core energy release for 467\$ pulse	7
2.3 Peak reactor power and integrated power versus inserted reactivity ($\beta_{1.0}=0.73\% \Delta k$)	7
2.4 Standard test fuel	8
2.5 Location of thermo-couples on the cladding surface	9
2.6 Mechanical properties of standard, cold worked, and fully annealed claddings	10

Fig. 2.7	Grain structure of heat-treated Zircaloy-4 cladding	11
3.1	Post-test photographs of cold worked and fully annealed cladding rods and standard rods	17
3.2	Histories of the cladding surface temperature at the upper part of rods	18
3.3	Histories of the cladding surface temperature at the center of rods	18
3.4	Histories of the cladding surface temperature at the lower part of rods	19
3.5	Post-test photographs of broken face and UO_2 -Zry reaction layer of heat-treated cladding fuel rods	20
3.6	Diametral changes of the fuel rod after irradiation in Test No217-1 ($185\text{cal/g}\cdot\text{UO}_2$)	21
3.7	Comparison of oxide layer thickness of a cold worked clad fuel rod and a standard fuel rod irradiated at about $180\text{cal/g}\cdot\text{UO}_2$	22
3.8	Comparison of oxide layer thickness of heat-treated Zircaloy clad fuel rods irradiated at about $260\text{cal/g}\cdot\text{UO}_2$	23
4.1	Comparison of failure threshold for heat-treated Zircaloy-4 cladding fuel rods	27
4.2	Deformation model of cladding in case of $185\text{cal/g}\cdot\text{UO}_2$	27
4.3	Comparison of diametral strain for heat-treated Zircaloy-4 cladding rods after irradiation	28
4.4	Photomicrographs showing cladding grain growth in heat-treated cladding fuel tests	29
4.5	Recovery curves for Zircaloy-2	30
Table 2.1	Test fuel design summary	5
3.1	Summary of cold worked and fully annealed cladding fuel tests	16

1. 序 論

原子炉の安全性を評価する際に想定される事故の一つに反応度事故がある。これは何らかの原因によって原子炉に核的な外乱が入り、原子炉出力が異常に上昇することにより燃料が破損あるいは溶融するに至る可能性のある事故をいう。

NSRR実験¹⁾では、この反応度事故時の急激な出力上昇をパルス炉を用いて模擬し、実験孔に挿入したカプセルまたはループ内の試験燃料をパルス照射して事故時の燃料挙動を解明することを目的としている。具体的には、反応度事故の大きさと燃料挙動との関係、燃料破損しきい値とその機構、破損の伝播、破壊力の大きさとその発生機構等に関し実験的に究明することである。

NSRR実験は1975年10月に開始して以来、現在までに300回以上の大気圧水カプセル実験を行った。これらは、標準試験燃料(10%濃縮, Zry-4 被覆)を用いて広範囲に発熱量を変え燃料のふるまいを調べた標準燃料試験、ギャップ幅、燃料棒内圧、燃料濃縮度、ペレット形状や被覆管の熱処理条件等燃料設計のパラメータを変えた試験、冷却材温度、流速、流路断面積(流路壁付、バンドル)等冷却条件を変えた試験、および浸水燃料、フレッティング腐蝕燃料等欠陥燃料に関する試験である。このうち、本報告書では、被覆管の製造時における熱処理条件を変えた未照射燃料の実験結果について報告する。

NSRR実験では、すでに実施した標準燃料実験の結果から、反応度事故時の燃料挙動に関する基本的な知見を得、未照射燃料の破損しきい値、破損機構について明らかにしてきた。しかしながら、バーンアップ燃料実験に関しては、照射済燃料の入手難、施設・設備の拡充の必要性等から未だ行なえず、早期の実験による破損しきい値、破損機構の究明が望まれている。そこで、照射燃料の模擬実験として加圧燃料実験あるいはギャップガスをXe等にした実験を行ってきた。また、照射燃料の被覆材の機械的性質を模擬したものとして冷間加工したジルカロイ-4を被覆材とした未照射燃料実験が提案された。

バーンアップが進むと、被覆管は中性子の照射により脆くなってくる。これにより延性が低下する一方、硬度や引張強さ、降伏点応力は増加する。このため、これまでの未照射燃料の破損に見られた燃料体の急速加熱により高温に達した被覆材が脆化してクエンチ時に破損するのは異なり、初めから脆化し延性も失っている被覆材ではペレットの急速加熱による熱膨張に起因するペレットと被覆材との力学的な相互作用(PCMI)により破損することが考えられる。事実、SPERT-CDCのいくつかの照射済燃料に関する実験では、このPCMIによる破損²⁾を示し、被覆材は軸方向に長いクラックが入って破損している。

照射済被覆材のこれらの機械的性質の変化は、まさに冷間加工により加工硬化したときの変化に一致している。したがって冷間加工被覆材を使用することにより、照射燃料に関する破損しきい値や破損機構について参考となるデータが得られることが期待される。

NSRR実験で用いられる標準燃料の被覆材は、残留ひずみを取り除くために応力除去焼鈍を行なっている。こうした被覆材を、さらに軟化させて延性を高めたとき、試験燃料はどのよ

うな挙動を示すだろうか。とくにバルーニングが議論されるような実験条件では、その膨れの大きさにも関連して興味もたれる。そこで、被覆材を完全焼鈍して十分に軟化させた燃料を用いて、破損しきい値や破損機構を究明していく。

これらの実験結果は、標準燃料実験の結果をベースとして比較・検討する。

2. 実験装置と実験方法

2.1 NSRRの概要

NSRRは米国GA社によつて開発された大型パルス炉TRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor) を改良したもので、炉心はFig. 2. 1に示すように、炉心中心部の実験孔と、それを取り囲む149本の燃料要素、8本の燃料フォロア型制御棒および3本のトランジェント棒より構成されている。

炉心は直径約63cm、有効長約38cmの円筒形状である。炉心燃料は直径約3.6cm、有効長約38cmの20%濃縮ウラン-水素化ジルコニウム (U-ZrH_{1.6}) をステンレス鋼で被覆したものである。

パルス出力の発生は3本のトランジェント棒の急速引き抜きによつて行う。3本のトランジェント棒の組み合わせによつて最大4.7ドルまでの任意の反応度を投入することができる。パルス出力はNSRRのもつ自己制御性、すなわち、燃料体に含まれる減速材 (ZrH) の大きな負の温度係数によるフィードバック効果により抑制される。

Fig. 2. 2に投入反応度量4.67ドルに対するパルス出力と積分出力の時間変化を示す。この場合の最大ピーク出力と積分出力は、それぞれ約21,000 MWと約11.7 MW・secである。また、パルス出力の最短炉周期とパルス半値幅はそれぞれ1.1 msecと4.4 msecで、これらはいずれも熱中性子パルス炉としては最も速く、かつ狭い部類に属する。Fig. 2. 3にパルス出力と積分出力を投入反応度で整理した図を示す。³⁾

2.2 実験方法

(1) 実験条件

本実験は、すべて大気圧水カプセル⁴⁾を使用し、冷却材として常温、常圧の軽水を用いた。試験燃料は、後述のように、最終の熱処理条件が異なるだけで、その他はすべてFig. 2. 4に示す標準燃料と同じである。また、発熱量は、破損しきい値近傍における知見を得ることを主眼とし、冷間加工被覆材燃料実験では185~260 cal/g・UO₂、完全焼鈍被覆材燃料実験では237~262 cal/g・UO₂の範囲で実施した。

(2) 実験計装および照射後燃料試験

i) 実験計装

過渡時の挙動としては被覆管表面温度を測定した。測定位置はFig. 2. 5に示すとおりで、標準燃料における測定位置と一致させてある。温度計測用エレメントとしては、白金-白金・ロジウム (Pt/Pt-13%Rh) 熱電対を素線 (0.2mmφ) のまま使用した。

ii) 照射後燃料試験

照射した試験燃料に対し以下の試験・検査を行なった。

- ① 外観検査：写真撮影
- ② 寸法検査：マイクロメータによる外径測定，およびプロフィロメータによる軸方向の外径変化測定。すきまゲージによる被覆管の曲り量測定。
- ③ 内部非破壊検査：X線写真撮影
- ④ 金相試験：顕微鏡による被覆管断面の酸化膜厚さ測定，および結晶粒径の測定

2.3 試験燃料

Table 2.1 に実験に用いた燃料の形状，寸法を示す。これらはFig. 2.4 に示した標準燃料の形状・寸法と同一である。また実験燃料の被覆管の機械的性質は温度に依存するが各被覆管について常温，200°C及び400°Cで引張試験を行なった結果をFig. 2.6 に示す。さらに中性子照射した冷間加工ジルカロイ-2の機械的性質を未照射の場合と比較して同図に示す。実験燃料はいずれもPWR型の燃料であり，濃縮度，形状，材質は一致しているが，次に述べるように被覆管の最終熱処理条件が異なっている。

まず冷間加工被覆材では，被覆管の最後の加工工程で10%冷間引抜き加工を行ない，その後の熱処理は行なっていない。したがって加工硬化したときの機械的性質が得られるため，抗張力と耐力は他の被覆材より大きく，伸びは逆に小さくなっている。標準被覆材と比較した場合，抗張力は1.1倍，耐力は1.3倍，そして伸びは0.8倍程度である。この金相をFig. 2.7 a) に示す。冷間加工被覆材の製造工程に加えて，最終熱処理として歪とりのための焼なまし（応力除去焼鈍）を行なった標準被覆材（Fig. 2.7 c)）と比較すると，結晶粒の並びや大きさにほとんど変化がないことがわかる。

完全焼鈍被覆材は，上述の冷間加工被覆材の製造工程に加えて，最終熱処理として完全焼なましを行なったものであり，真空雰囲気，590°Cで十分に保持したものである。完全焼なましにより冷間加工の影響は完全になくなり，十分に軟化した被覆管になっている。完全焼鈍被覆材の機械的性質は標準被覆材と比較して，抗張力で0.6～0.7倍，耐力で0.5～0.7倍，伸びは約2倍である。この完全焼鈍熱処理で得られる結晶組織をFig. 2.7 b) に示す。この写真から再結晶過程が終了していることを示す粒子の球状化，均一化の様子がうかがえる。ただし結晶粒の成長は認められず，粒径はおおよそ5～8 μ mの範囲にある。

Table 2.1 Test fuel design summary

UO ₂ Pellet	Diameter	9.29 mm
	Length	10 mm
	Density	95%TD
	Enrichment	10%
	Shape	Chamfered
Cladding	Material	Zircaloy-4
	Outer Dia.	10.72 mm
	Wall Thickness	0.62 mm
Pellet-Cladding Gap		0.095 mm
Element	Overall Length	265 mm
	Fuelled Length	135 mm
	Weight of Fuel Pellets	95.5 mm
	Number of Pellets	14 mm
	Plenum Gas	Helium

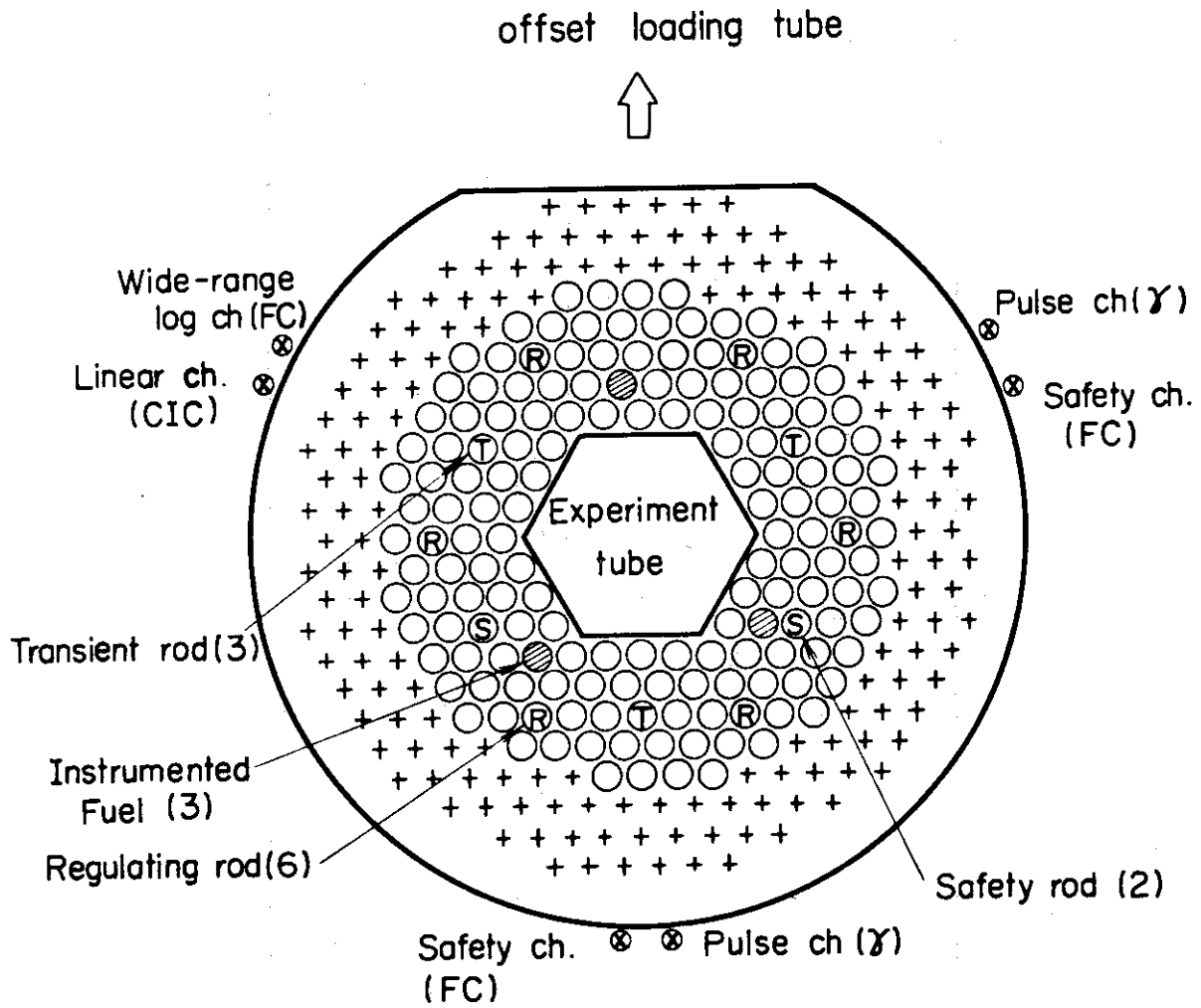


Fig. 21 Standard operating core configuration

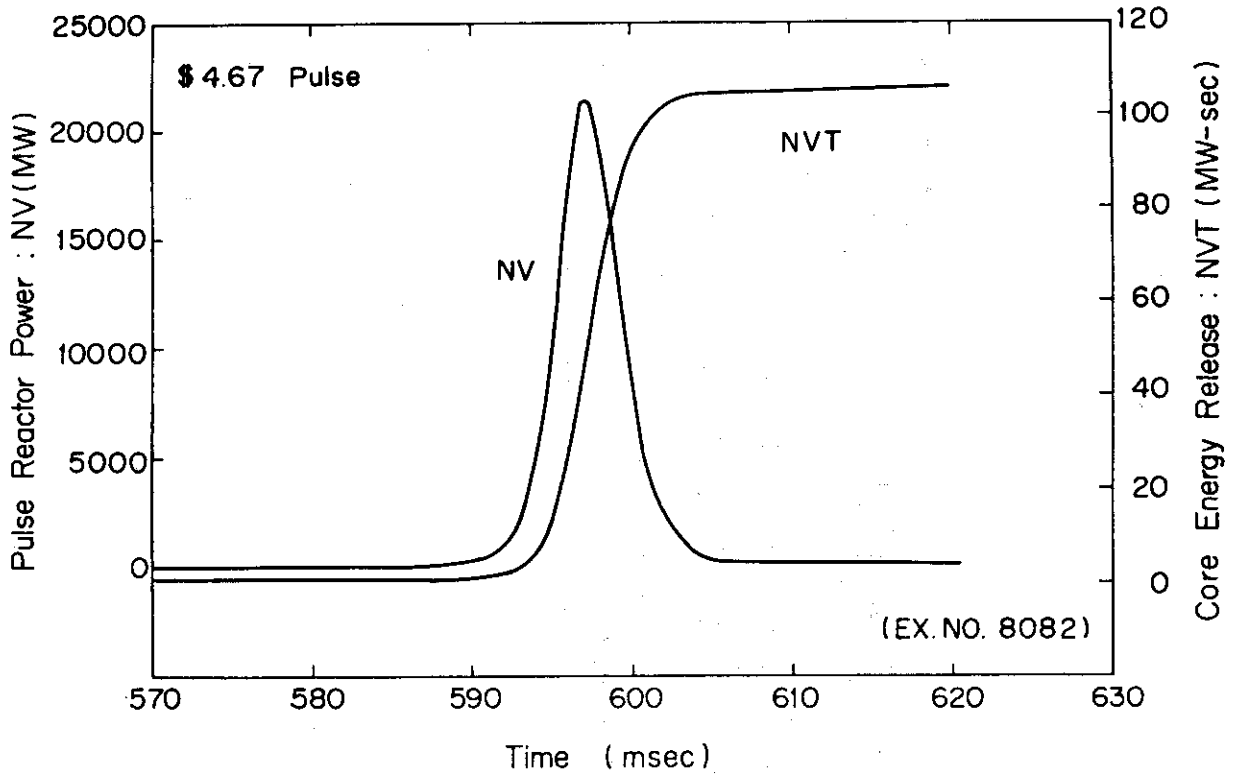


Fig. 22 Pulse reactor power and core energy release for 4.67 \$ pulse

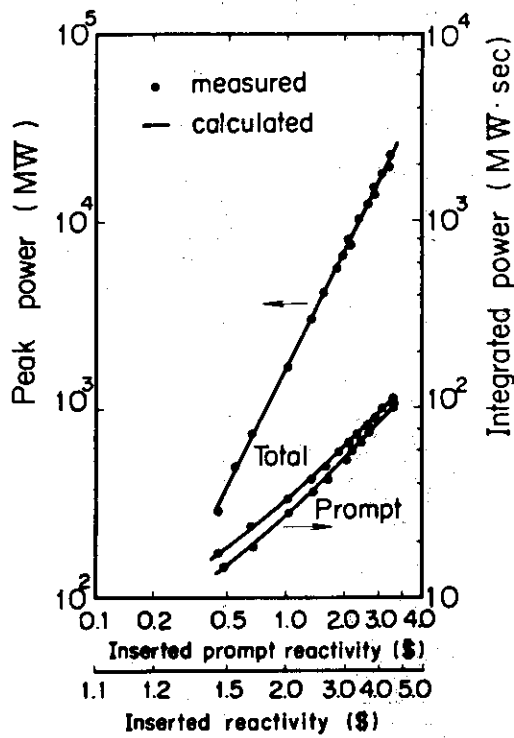


Fig. 23 Peak reactor power and integrated power versus inserted reactivity ($\$1.0 = 0.73\% \Delta k$)

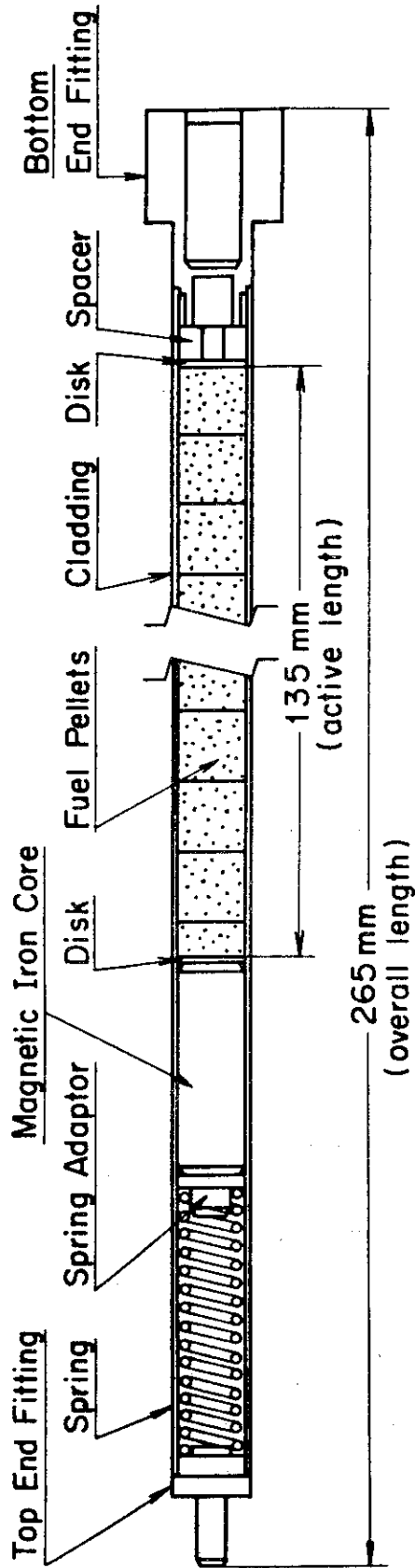


Fig. 2.4 Standard test fuel

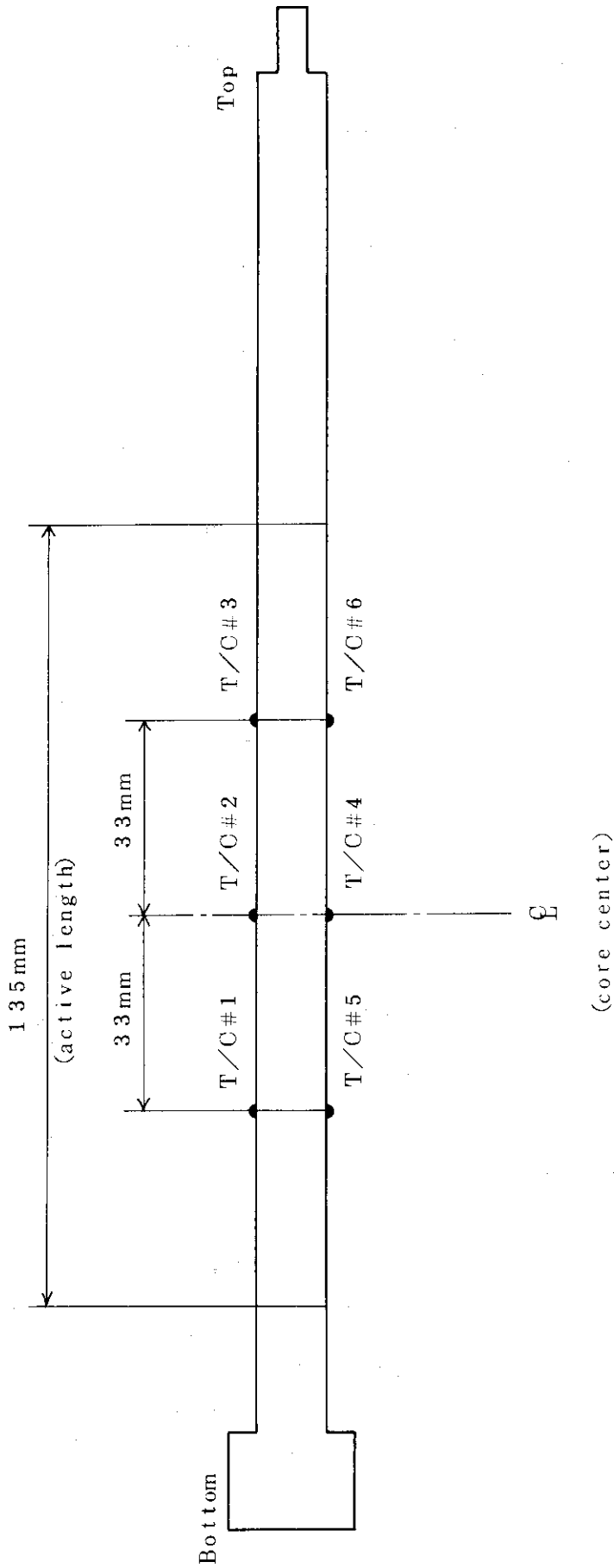


Fig. 25 Locations of thermo-couples

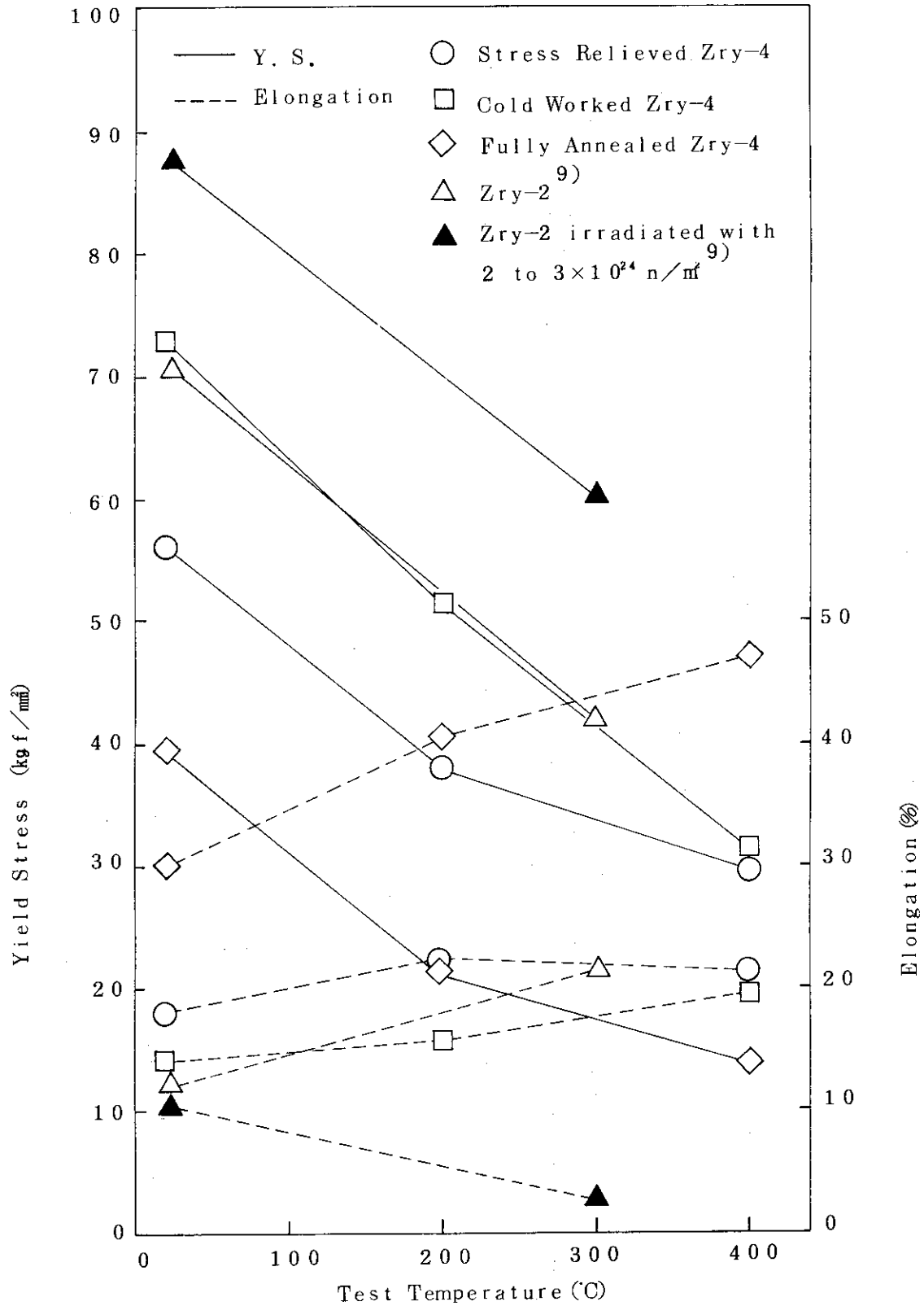
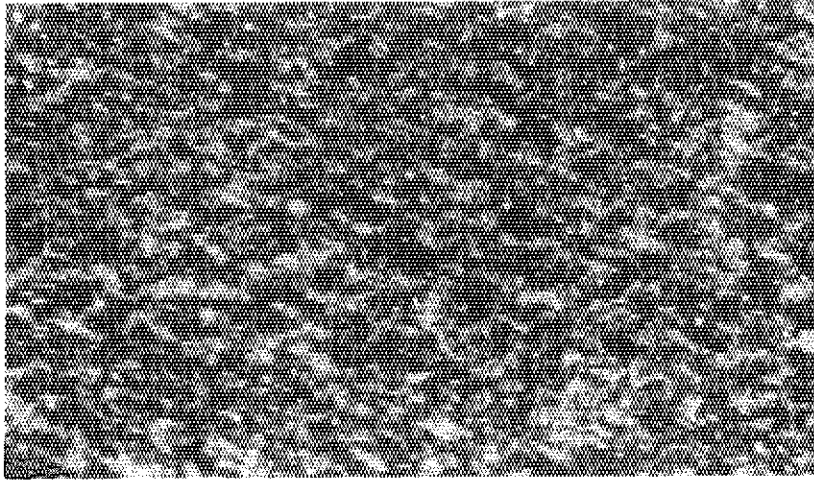
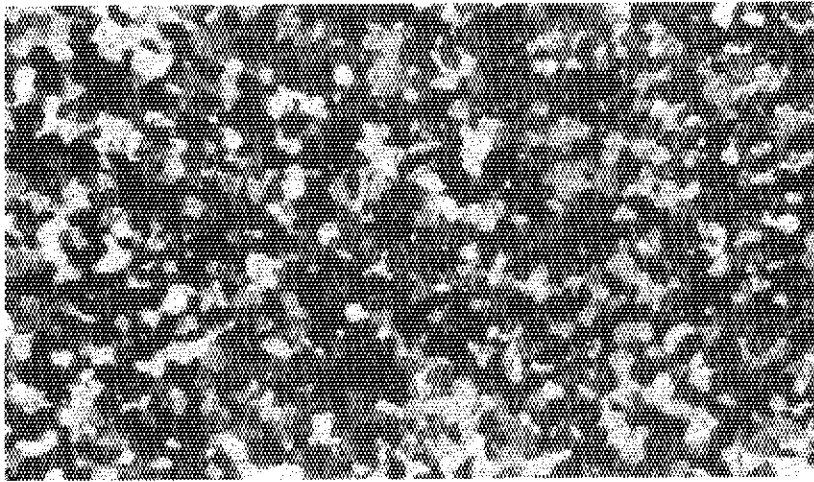


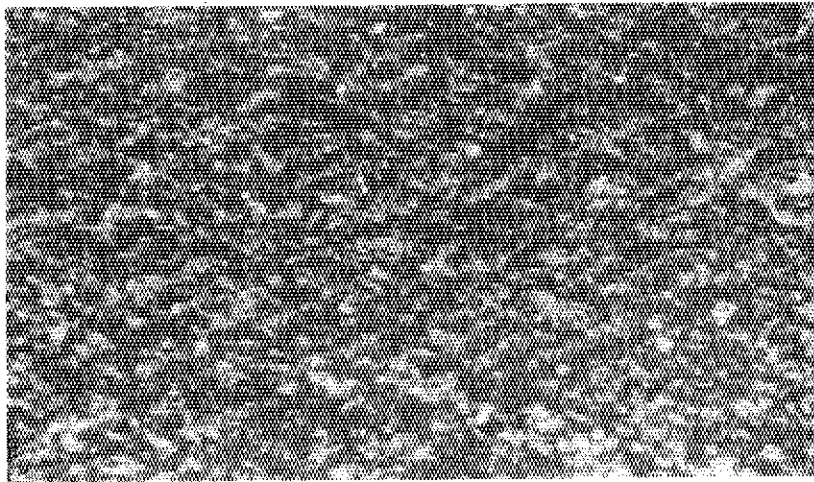
Fig. 26 Mechanical properties of standard, cold worked, and fully annealed claddings



a) As-rolled

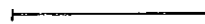


b) Fully annealed



c) Stress Relieved

×200 Etched



50 μm

Fig. 27 Grain structure of heat-treated Zry-4 cladding

3. 実験結果

3.1 冷間加工被覆材燃料実験

3.1.1 燃料挙動

冷間加工被覆材燃料実験は、発熱量を変えて合計3回行なった。まず加工硬化した材料は高温状態におかれることにより再結晶が進行して機械的性質が変化するため、加工硬化の影響が明確にあらわれると思われる低い発熱量 ($185 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) で1回照射した。さらに破損しきい値を標準燃料の場合と比較するために、標準燃料で破損の生じた最も低い発熱量 (Test No 200-5, $264 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) で1回、それで破損したため約 $10 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ 低い発熱量でも実験を行なった。Table 3.1 に実験結果の要約を示し、Fig. 3.1 に照射後燃料の外観を示す。

(1) 発熱量 $185 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における燃料挙動

試験燃料 (Test No 217-1) はパルスピーク出力約0.7秒後に被覆管表面温度が最高 1200°C に達し、有効発熱部中心で約7秒間膜沸騰が継続したのち、クエンチした。被覆管表面温度の時間的変化の傾向は、標準燃料 (Test No 111-1, $179 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) と同様に最高温度に達したのちは (約 100°C/s) で降温し、約 600°C でクエンチした。

照射後の外観は Fig. 3.1 に示すように有効発熱部全面にわたり一様な黒色酸化を呈していた。酸化膜の剥離や巨視的な燃料棒の変形は認められなかった。

(2) 破損しきい値近傍における燃料挙動

Test No 217-2 (発熱量 $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) の被覆管表面温度の時間的変化を燃料上部、中央部、下部について測定したものを Figs. 3.2~3.4 に示す。同図には比較のため標準燃料 (Test No 200-5, 発熱量 $264 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) と後述する完全焼鈍被覆材燃料 (Test No 218-1, 発熱量 $262 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) の被覆管温度の時間的変化を加えてある。まず3ヶ所で測定した時間的変化についての全体の傾向を調べてみると温度はパルス出力と同時に急激に上昇し、DNBを超えて最高温度まで達したのち、緩やかな勾配で下降してからクエンチしている。標準燃料と比較した場合、温度については大きいところで $100 \sim 150^\circ\text{C}$ の違いがあり、膜沸騰の継続時間についても1~2秒の違いがある。しかしこれらは実験の再現性を考えればバラツキと見做すことができ、従って両者の時間的溫度変化に明確な違いはないといえる。

Test No 217-2 の照射後の外観については Fig. 3.1 に示すように燃料は発熱部最下部のペレット上端面で周方向に分断している。また Fig. 3.5 (a) に示すように分断面のペレットは表面がなめらかで中心に向かってクラックが入っている。またペレット外周部は均一に約 0.5 mm の深さで変質した跡がみられ、被覆管はかなり減肉し、さらに同図(c)のように部分的に $\text{UO}_2 - \text{Zry}$ 反応層がみられる。一方、被覆管の外表面は発熱部中央付近で

しわ状に変形している。X線写真によれば、ペレットは全域にわたって偏心して被覆管と接触している。とくに発熱部中央付近では接触した部分が一体化し、被覆管が溶融によって減肉した様子が見られる。

Test No 217-3 (243 cal/g·UO₂) では、被覆管表面温度が最高1570°C (T/C #4) まで上昇したが破損はなかった。照射後の燃料は、ほぼ同発熱量の標準燃料 (Test No 200-1, 241 cal/g·UO₂) と同様に、全面酸化および部分的な酸化膜の剥離がみられた。

3.1.2 被覆管変形・酸化

(1) 発熱量185 cal/g·UO₂ における被覆管の変形と酸化

巨視的変形が認められなかったため、プロファイロメータを使用して外径の変化を1/100 mmの精度で連続測定した結果をFig. 3.6に示す。これらは周方向に45度ずつ測定方向を変えたもので、任意の断面で切るとその断面は稽首状に変形している。この結果については標準燃料 (Test No 111-12, 発熱量179 cal/g·UO₂) で得られた結果と一致していた。すなわち、軸方向の外径変化は正弦曲線状になっている。被覆管の最大外径変化と曲り量について調べた結果をTable 3.1に示す。外径は最大で0.6%増加し、曲り量は定盤に置いた試験燃料の曲りをすきまゲージで測定する方法で行ない、0.35~0.40 mmであった。標準燃料 (Test No 111-12) ではそれぞれ、0.1%増加、0.67~0.68 mmと大差なく、冷間加工被覆材による特徴的な変形は見出されなかった。

次に被覆材の酸化膜厚さを周方向に測定した結果を、Fig. 3.7に示す。比較のため標準燃料 (Test No 111-12) の測定値も示す。冷間加工被覆材の酸化膜厚さは約7~10 μm、標準燃料では約5~12 μmにわたって分布している。このことから両者の酸化の程度はほぼ同じであることがわかる。このときの被覆管表面最高温度および膜沸騰継続時間は酸化膜厚さ測定位置で、前者が1200°C、7秒、後者が1000°C、8秒であった。

(2) 破損しきい値近傍における被覆管の酸化

照射後燃料 (Test No 217-2) の酸化膜厚さを周方向に測定した結果をFig. 3.8に示す。比較のため標準燃料 (Test No 200-5) について同じ位置で測定した結果を示す。冷間加工被覆材燃料の酸化膜厚さは30~70 μmのあいだに分布し、標準燃料では20~70 μmのあいだに分布しており、両者の結果にはよい一致がみられた。

3.2 完全焼鈍被覆材燃料実験

3.2.1 燃料挙動

完全焼鈍被覆材燃料実験は、発熱量を変えて合計3回行なった。Table 3.1に実験結果の要約を示し、あわせてほぼ同一発熱量の標準燃料実験データを示す。目標とした発熱量は破損しきい値究明のため、および標準燃料の破損しきい値との比較のため、260 cal/g·UO₂ に定め、これで破損が生じたのでさらに低い発熱量で実験した。結局発熱量は、262, 240,

237 cal/g·UO₂ となり、262 cal/g·UO₂ (Test No 218-1) の場合のみ破損が生じた。

後述するように、この発熱量が破損しきい値近傍の値となるが、この場合の被覆管表面温度の時間的变化を Figs. 3.2~3.4 に示す。温度測定点は燃料上部、中央部、および下部であり、いずれの部分でも完全焼鈍被覆材燃料の温度挙動は併記した冷間加工被覆材燃料および標準燃料の場合と類似している。

照射後燃料の外観写真を Fig. 3.1 に示す。ここで Test No 218-1 は発熱部下部で分断しているが、これは被覆管のクラック部において解体中に破断したものである。クラックは最下部に位置するペレットの上端面で周方向に生じていた。また Fig. 3.5 (b) に示すように破断位置のペレット表面はおおむね滑らかで、クラックが中心に向つて数本走っているのがみられる。ペレット外周は深さ1mmにわたり一度溶融した跡がみられる。これは冷間加工材燃料の同発熱量の場合と溶融層の厚さに若干の差はあるが同様である。一方被覆管破断面では内面の大きな減肉がみられ、これは溶融によるものである。

これらの破断部分の様子は同一発熱量の冷間加工被覆材燃料 (Test No 217-2) の場合 (Fig. 3.5 (a)) とよく類似している。また同一発熱量の標準燃料 (Test No 200-5, 264 cal/g·UO₂) と比較しても後述の酸化の様子、クラックが生じた位置およびクラックが周方向に生じていることなど良い対応がみられる。

次に Test No 218-1 の照射後 X 線写真によりペレットと被覆材の境界の様子を調べた。破損部の近く、すなわち燃料下部のペレット3個分にわたり、ペレットと被覆管の境界がはつきりしないがその他の発熱部 (ペレット11個分) では、明らかにギャップの存在が認められる。いずれのペレットも大きく偏心した様子はなく、ギャップ幅は全長、全周にわたってほぼ一定している。この点は冷間加工被覆材燃料 (Test No 217-2, 発熱量260 cal/g·UO₂) にみられた偏心した場合と異なる。しかしこの差異が特殊熱処理被覆材特有の現象と考えられる理由はみあたらない。

発熱量240 cal/g·UO₂ を与えた Test No 218-2 の照射後の外観は、標準燃料 (Test No 200-1, 発熱量241 cal/g·UO₂) の場合と同じく全面酸化し、部分的な酸化膜の剥離がみられた。温度挙動は Table 3.1 に示したように被覆管表面温度が発熱部中心で最高1550°C (T/C #2, #4とも) を記録した。同発熱量の標準燃料では T/C #2 が最高1600°C, T/C #4 が最高1500°C を記録していた。また、膜沸騰継続時間は両者とも10秒以上であり、両者の温度挙動は類似していた。

3.2.2 被覆管変形・酸化

被覆管の変形については、外径のひずみ量と被覆管の曲りについて調べ標準燃料と比較した。結果は Table 3.1 に示すように、外形変化量は最大値でみると発熱量237~262 cal/g·UO₂ の範囲で2~3%とほとんど一定していたが、標準燃料の244~264 cal/g·UO₂ の範囲における変形量が1~1.3%であるのと対照的であった。しかし、破損した標準燃料の場合のみ1.3%と大きいのは、燃料ペレット外周や被覆管の内面の溶融により偶々、局部的に溶融物が集合したものと思われる。曲り量についてはデータが少く、発熱量との明確な相関は

得られなかった。

酸化量については、冷間加工被覆材との比較を兼ねて、Test No 218-1における周方向の酸化膜厚さの分布を測定した。結果は Fig. 3.8 に示すように30~50 μm のあいだに分布している。標準燃料の分布20~70 μm に比べて酸化膜厚さにバラツキが少ないのは、前項で述べたように測定位置である発熱部中央における UO_2 ペレットの偏心が少なかったためと思われる。

Table 3.1 Summary of cold worked and fully annealed cladding fuel tests

Test No	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)	Cladding Condition	Maximum Cladding Surface Temperature(C)						Maximum Diametral strain ϕ	Maximum Bowing *2) (mm)	Post-irradiation Observation
			Upper		Middle		Lower				
			# 3	# 6	# 2	# 4	# 1	# 5			
217-1	185	10% C.W	1150	1200	1200	1200	1150	1200	0.65	0.35~0.40	Oxidation
217-2	260	ditto	1450	1500	1450	-	1550	1600	8.5	-	Broken
217-3	243	ditto	1420	1440	-	1570	1430	1550	2.7	0.75~0.80	Oxidation and partly flaked
218-1	262	Fully-annealed	-	1550	1600	-	1600	1600	2.6	-	Cracking
218-2	240	ditto	1450	1450	1550	1550	1550	1550	2.9	0.40~0.45	Oxidation and partly flaked
218-3	237	ditto	1230	1220	1350	1370	1360	1430	2.5	0.70~0.75	ditto
200-5 ^{*1)}	264	Stress Relieved	1620	-	1750	1550	-	1580	13	-	Cracking
111-4 ^{*1)}	244	ditto	-	-	1690	-	1600	-	1.4	0.8~0.9	Oxidation and partly flaked
200-1 ^{*1)}	241	ditto	-	-	1600	1500	-	-	4.5	0.65~0.70	ditto
200-4 ^{*1)}	233	ditto	-	-	1680	-	1780	-	3.2	0.35~0.40	ditto
111-12 ^{*1)}	179	ditto	1130	-	1000	-	1050	-	0.14	0.67~0.68	Oxidation

*1) References

*2) The initial maximum bowing of a rod is less than 0.25mm.

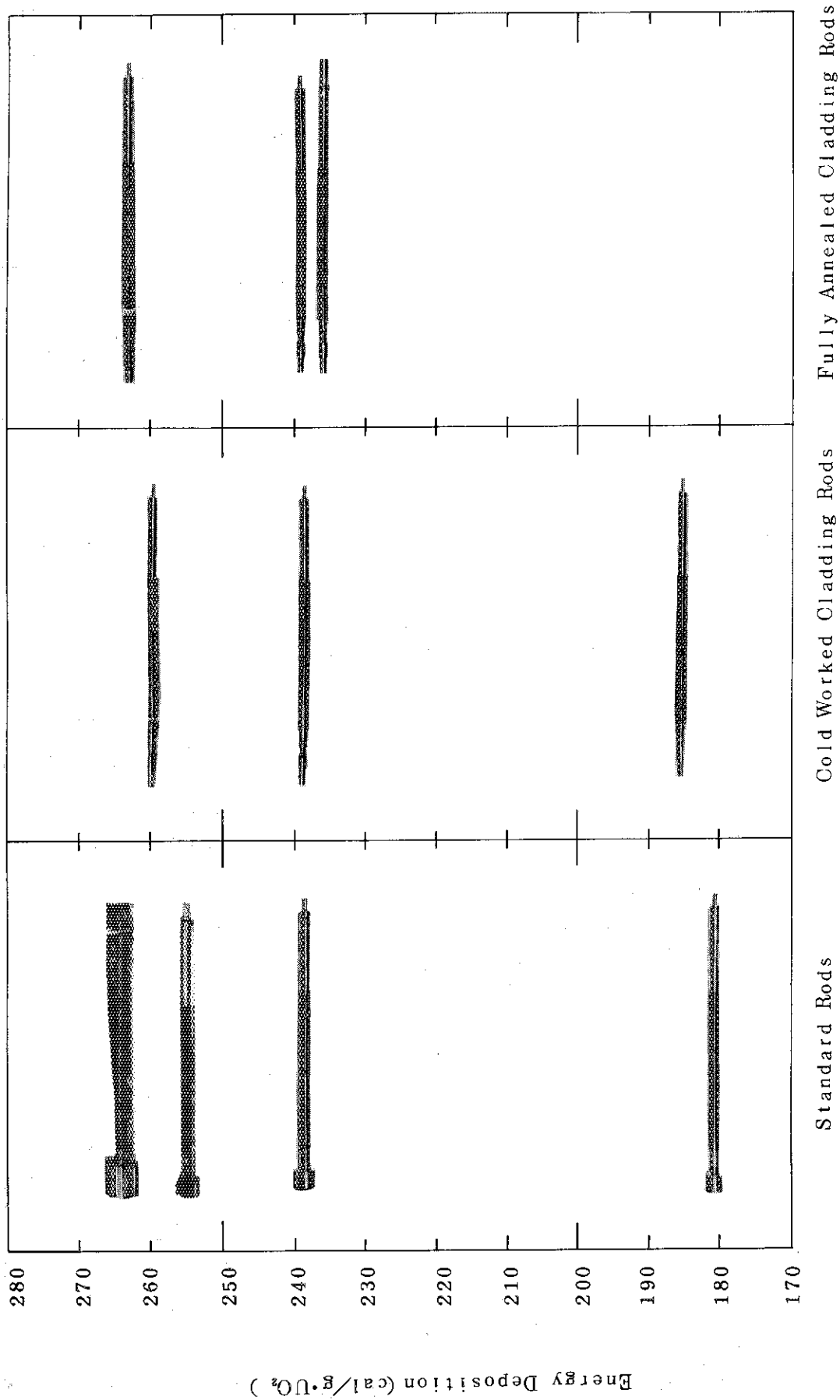


Fig. 31 Post-test photographs of cold worked and fully annealed cladding rods and standard rods

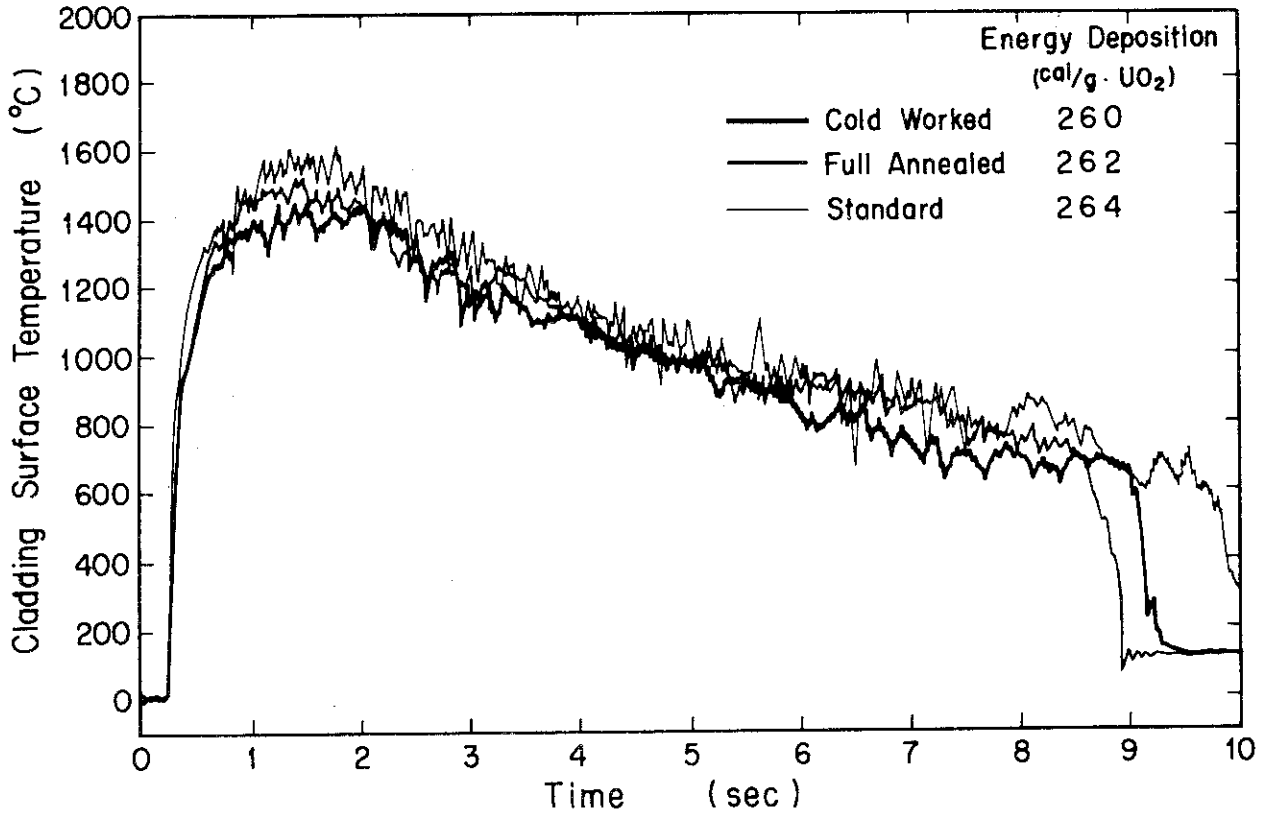


Fig.3.2 Histories of cladding surface temperatures at the upper part of rods

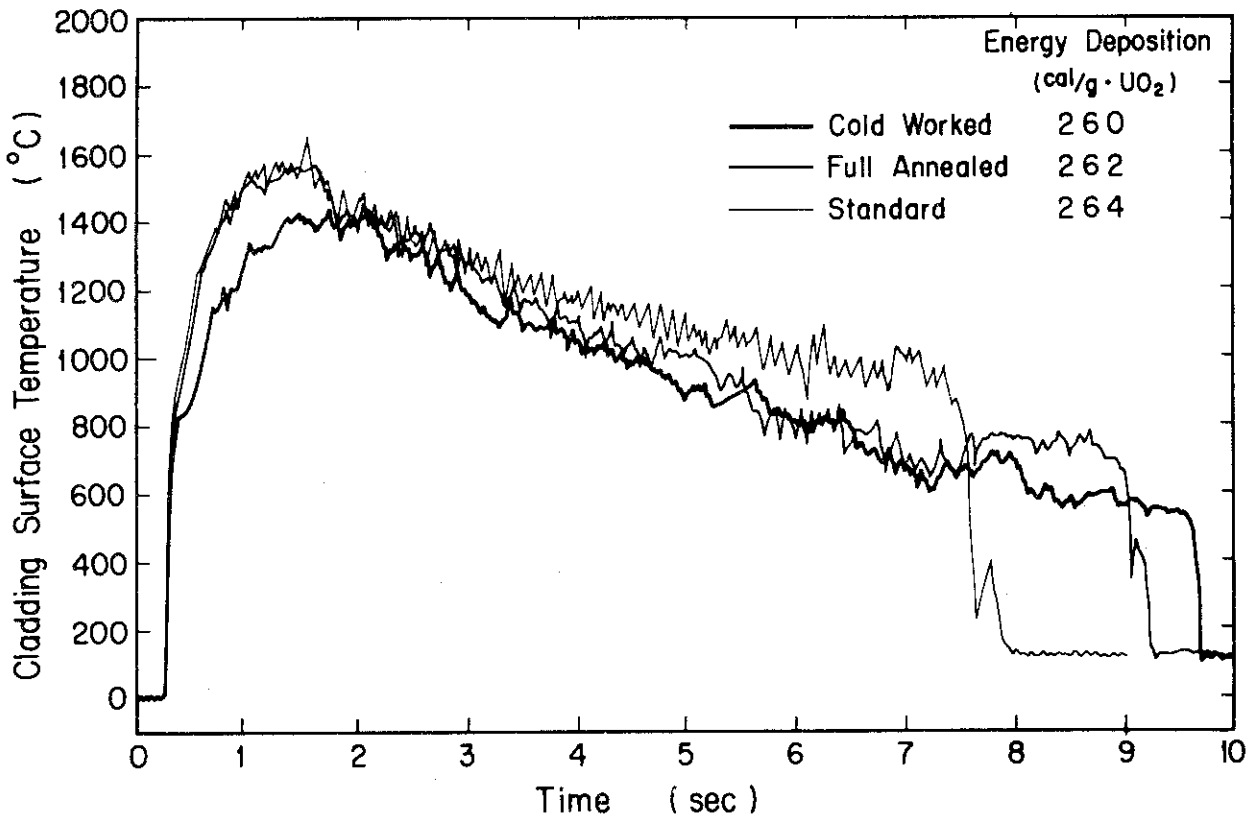


Fig.3.3 Histories of the cladding surface temperatures at the center of rods

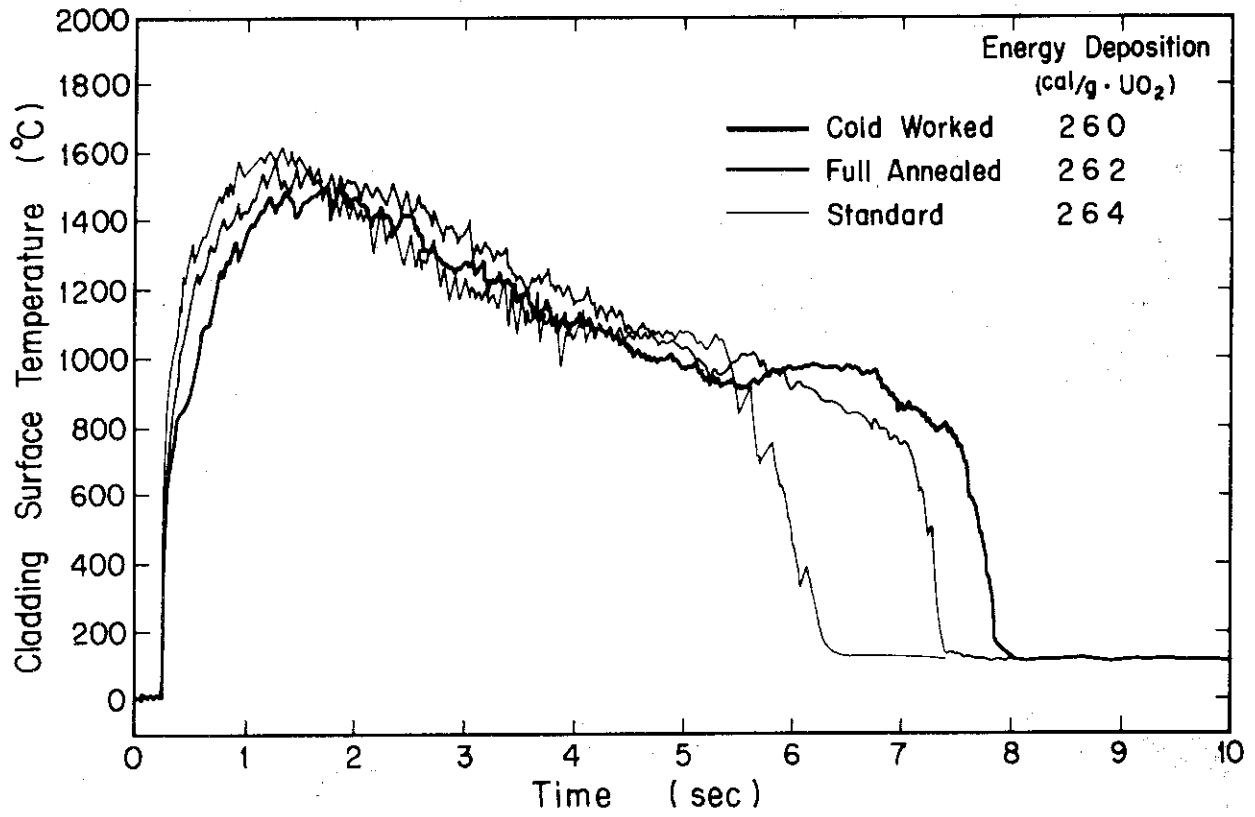
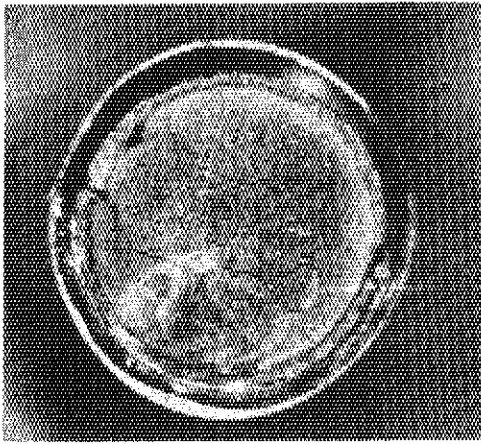
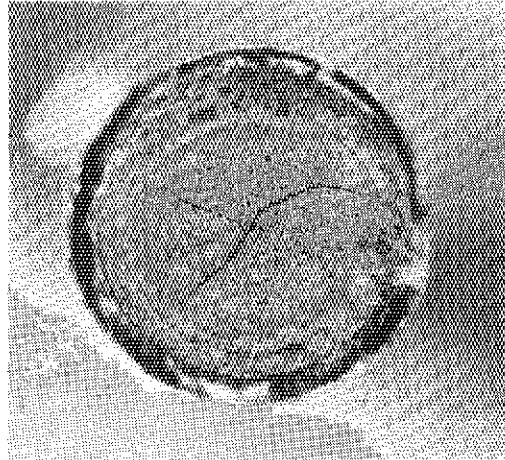


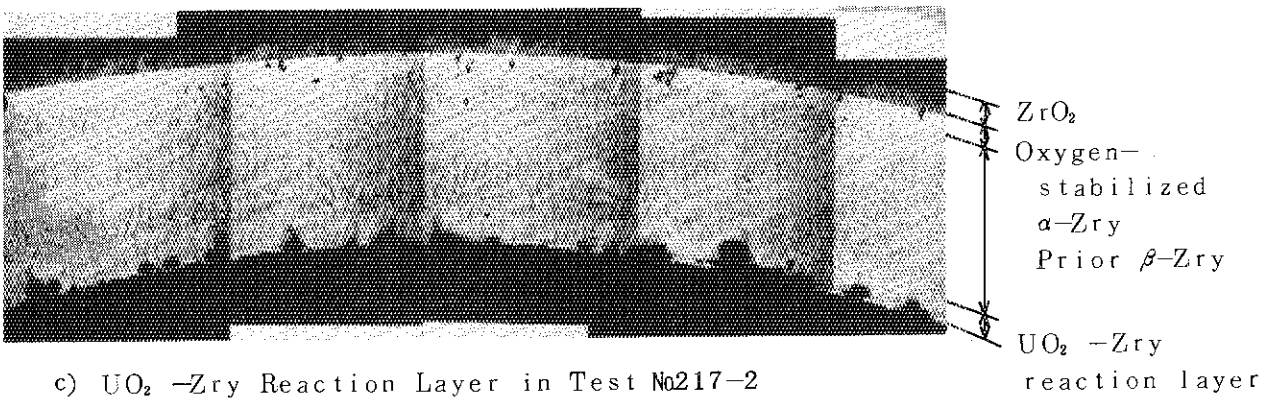
Fig.3.4 Histories of the cladding surface temperatures at the lower part of rods



a) Test No217-2



b) Test No218-1



c) UO₂-Zry Reaction Layer in Test No217-2

Fig. 35 Post-test photographs of broken face and UO₂-Zry reaction layer of heat-treated cladding fuel rods

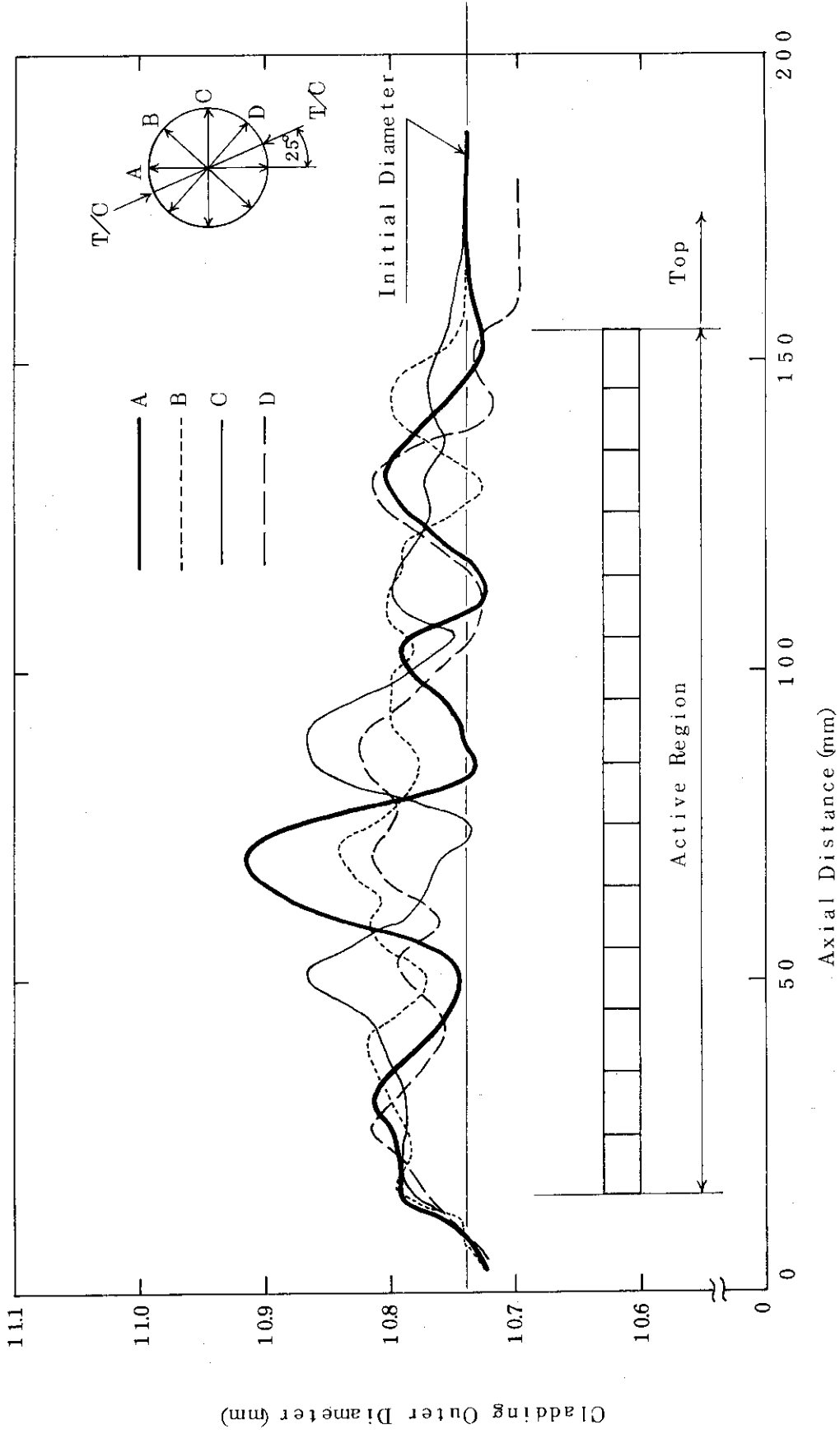


Fig. 36 Diametral changes of the fuel rod after irradiation in Test No217-1 (185cal/g·UO₂)

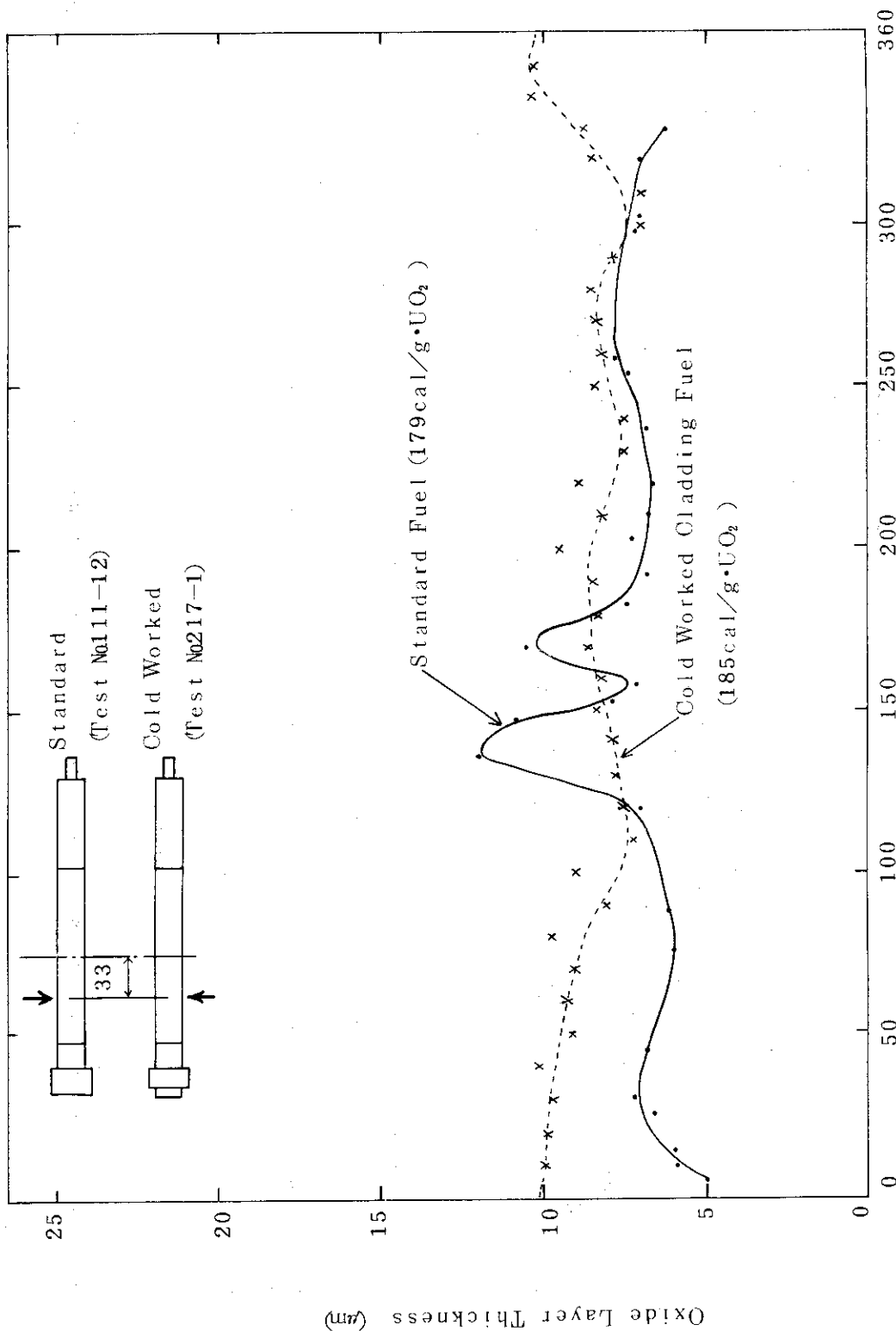


Fig. 37 Comparison of oxide layer thickness of a cold worked clad fuel rod and a std. fuel rod irradiated at about 180 cal/g·UO₂

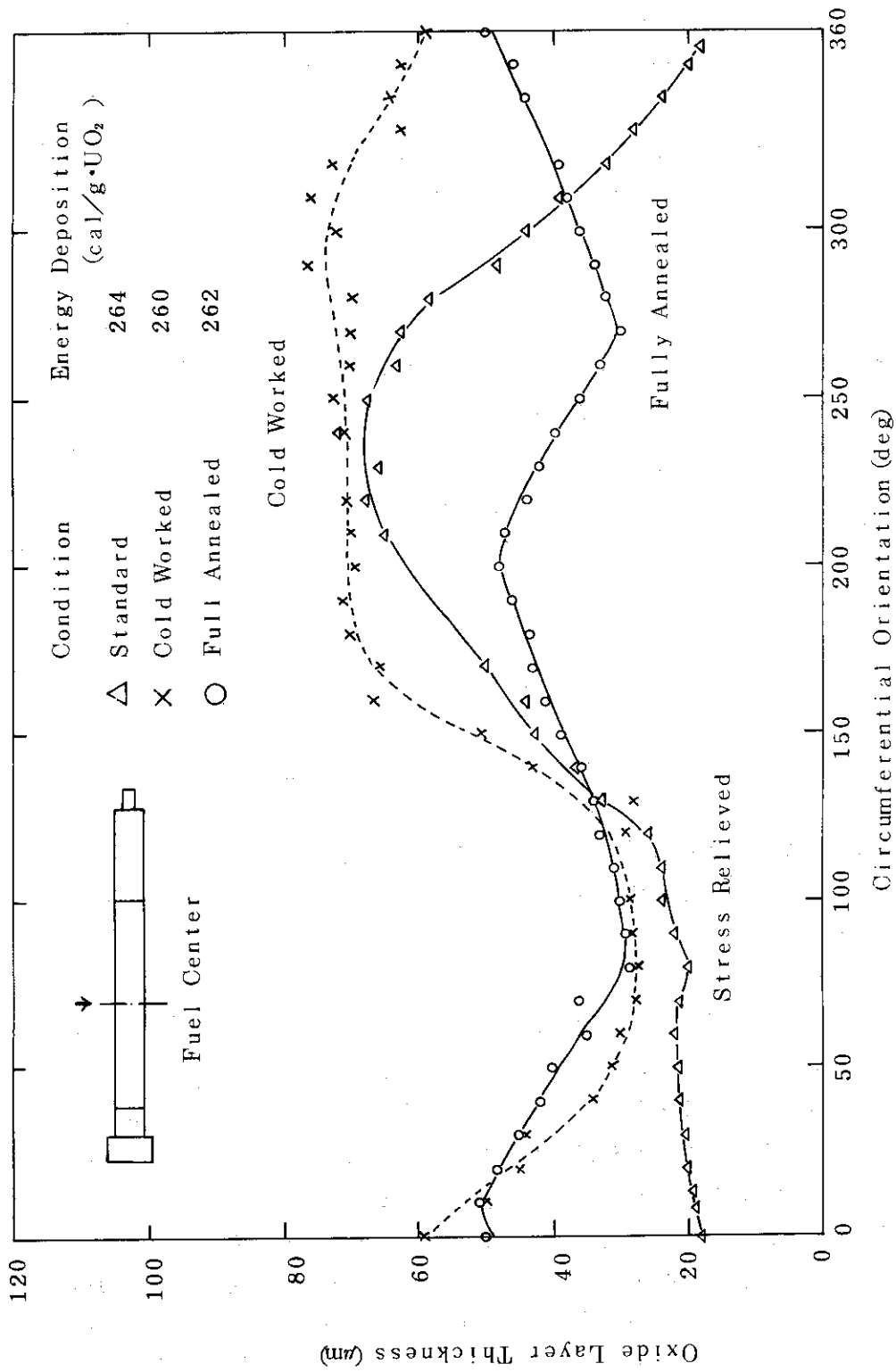


Fig. 3.8 Comparison of oxide layer thickness of heat-treated Zircaloy clad fuel rods irradiated at about 260cal/g·UO₂

4. 考 察

4.1 燃料破損しきい値および破損機構

ここではまず、各被覆材燃料の破損しきい値を検討し、標準燃料との違いを明らかにしていく。さらにSPERT実験結果を参照しながらこれらの燃料棒の変形機構と破損機構を考えていく。

(1) 破損しきい値

Fig. 4.1 に各被覆材燃料の破損の有無を発熱量で比較して示す。破損した実験燃料のうちもつとも低い発熱量は、標準燃料、冷間加工被覆材燃料、および完全焼鈍被覆材燃料についてそれぞれ264、260、262 cal/g・UO₂であった。このうち冷間加工被覆材燃料は、他の2つが周方向のクラックでとどまっていることから破損しきい値はほぼ同じと考えられたのに対し、2片に分断していたため、破損しきい値がやや下がることも考えられた。破損位置にもつとも近い熱電対(#1、#5)の指示値は最高1550°Cと1600°Cであり、完全焼鈍被覆材燃料のクラック位置付近の温度が1600°Cであったのと一致し、また被覆管表面温度の時間的変化もFig. 3.4 に示すようにほぼ一致している。これは燃料棒の半径方向に同じ熱移動の履歴があったことを示している。こうしてみると冷間加工被覆材燃料が260 cal/g・UO₂で分断に至ったのは、被覆材の加工硬化による脆化がクラックの進展を速めたとも考えられるが、4.2節で述べるように、加工硬化の効果は高温域では失われるため、この仮定は成立しない。

結局、冷間加工被覆材燃料の破損しきい値は260 cal/g・UO₂を下まわるが、大きく下まわることはなく、既報¹⁾の標準燃料破損しきい値 260 ± 5 cal/g・UO₂とほぼ同じとみるのが適切と思われる。

(2) 変形機構および破損機構

標準燃料の変形については、すでに発熱量と径方向ひずみの関係としてまとめられている。すなわち発熱量が約160 cal/g・UO₂以上のとき、被覆管の発熱部における平均的な半径方向の変形量は、ほぼ比例的に増加していく、というものである。これは、ペレットが熱膨張により被覆管に接触して被覆管が押し広げられたことを示している。冷間加工被覆材燃料でも同様の結果が得られた。Fig. 3.6 に示した径方向のふくれは、3.1節で述べたように楕円状に変形している。これはFig. 4.2 のモデルを考えるとわかりやすい。すなわち隣り合うペレット間の迂りはないものとし、ペレットは偏心して照射前に被覆管内壁に接触しているとする。ペレットの熱膨張時にリッジングや割れが生じなければ、被覆管はペレットと接触した部分のみが塑性変形し、断面は楕円状となる。Fig. 3.6 で発熱部中央付近の軸方向外形変化に周期性がみられるが、ここで1/2周期が約20mmとペレット長さの倍数になっていることも、このモデルの妥当性を示す意味で興味深い。

この長径、短径を有する外径変化を評価するために、最大、最小径のレンジをとって

Fig. 4.3 に示す。これから冷間加工被覆材と完全焼鈍被覆材の変形の範囲は、標準燃料の場合とほぼ一致していることがわかった。なお燃料棒の曲りについては、すでに標準燃料¹⁾に関して発熱量との相関はみられないという報告がなされているが、今回の実験でも Table 3.1 に示すように特徴的な知見は得られなかった。

次に特殊熱処理被覆材燃料の破損機構について考える。標準燃料の破損は、発熱量が約 $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ で被覆管に周方向の貫通クラックが生じること、被覆管のクラックはペレット・ペレット境界に位置していること、被覆管の内面が溶融し偏肉していることなどが特徴である。⁶⁾ 被覆管挙動はこの内面溶融による減肉と外面酸化により脆化が生じ、さらにクエンチ時に外表面が急冷されるため熱応力が生じ、外表面に大きな引張応力が作用することによりクラックが誘起される。

実験結果で述べてきたように、冷間加工被覆材燃料と完全焼鈍被覆材燃料の破損様式は上述の標準燃料と比べ違いがみられない。内面溶融による減肉は Fig. 3.5 で示されるように、また酸化膜厚さについては Fig. 3.8 のように、なんら標準燃料と変わるところがないことがはっきりしたといえる。

参考として、SPERT-CDCの燃料破壊実験で同様な目的で行なわれた実験⁵⁾について触れておく。これは $200 \sim 590 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ の発熱量の範囲で、焼きなましおよび冷間加工のジルカロイ-2被覆材燃料の破損限界、破損のモードと機構および破損後の状態を調べたものである。実験では破損しきい値、破損機構、被覆材表面温度、カプセル内圧、水塊速度、燃料棒の過渡時の伸び、および金属-水反応について調べられたが、両者に違いはなかった。唯一の相違は高発熱量実験で燃料破損までに投入された発熱量が冷間加工被覆材燃料では約 $500 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ であるのに対し焼鈍被覆材燃料では約 $400 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ と低いことである。燃料破損時の被覆管表面温度はそれぞれ 1200°C 、 800°C であり、比較的低い温度で破損していた。これは被覆材の降伏応力に差があるためであると結論されている。

4.2 被覆管温度挙動と結晶粒径

被覆管の機械的性質は大きく温度に依存するので、被覆管の温度挙動や粒径の変化を調べることにより、ある程度まで特殊熱処理被覆材の機械的性質の変化が類推できる。NSRR 実験において被覆管は非常に高い加熱速度で加熱される。標準燃料を例にとると最高約 $10000^\circ\text{C}/\text{sec}$ (発熱量 $264 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$) である。このような速いトランジェントのある被覆管において、機械的性質が如何に変化していくかを示すデータはまだない。一般に、回復や再結晶温度は試験材を恒温にして定めているが、速いトランジェントではこれらの温度がやや高くなると予想される。ここでは被覆管表面での温度履歴、酸化膜厚さ、および粒径の観察によって、特殊熱処理被覆材の機械的性質の変化を類推していく。

(1) 温度履歴

実験結果によれば、Figs. 3.2~3.4 に示すように特殊被覆材燃料と標準燃料の温度挙動はほぼ一致していた。4.1.(2)項で示したように被覆管の膨れ量も一致していることか

ら、ギャップ熱伝達率は標準燃料の場合と同様の過渡変化があつたと考えられる。

(2) 酸化膜厚さ

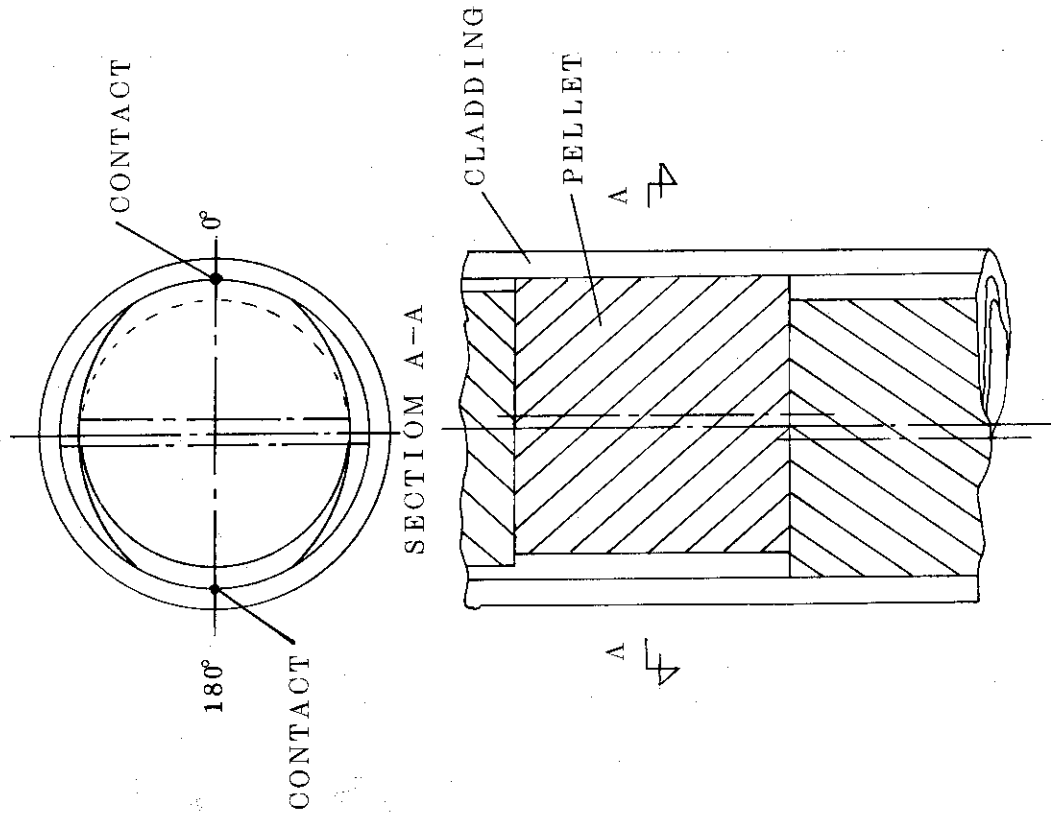
被覆管の脆化の主因をなす酸化挙動については、Fig. 3.8 に示したように、被覆管の熱処理方法の如何にかかわらず、同じ発熱量に対してほぼ同じ範囲の酸化膜厚さが測定された。これらの測定において特徴的なことは、酸化膜厚さが円周方向に一様でないことである。これはほぼ正弦波曲線状に分布していることから、 UO_2 ペレットの偏心により伝熱量に差がでたためと考えられている。⁷⁾ とくに冷間加工被覆材燃料に関しては、酸化膜厚さの最も厚い部分の内表面で UO_2 - Zry 反応層が生じているが、これなどは UO_2 ペレットの偏心によるものであることを明確にあらわしている。

(3) 結晶粒径

前項までに破損しきい値、変形機構、破損機構、被覆管表面温度履歴、および酸化膜厚さを調べてきたが、熱処理による顕著な差はみられなかつた。このような結果を得て、なおも熱処理の効果を NSRR 実験に求めるとするならば、結晶粒の成長を調べることによって機械的強度を類推していく方法が考えられる。具体的にはジルカロイ被覆管断面の P prior- β 相の結晶粒径を測定し、他の被覆管のそれと比較することである。結晶粒は投入される熱エネルギーによって粗大化していくので、同じ発熱量の場合、結晶粒が大きく成長した被覆管の方が軟化していると推測できる。

測定結果を Fig. 4.4 に示す。これは冷間加工被覆材燃料 (Test No 217-2) と完全焼鈍被覆材燃料 (Test No 218-1) の被覆管断面であるが、両者の最大粒径は殆んど同じで約 $350 \mu m$ である。初期の結晶粒構造が違う (Fig. 2.7) にもかかわらずほぼ同じ粒径を示したことは、クエンチにより破損する時点ではもはや加工度や熱処理の影響は消滅していることになる。とくに今回の試験燃料である 10% 冷間加工材のように小さな加工度や、粒成長を伴わない穏やかな焼鈍材においてはこの傾向が顕著であると思われる。

ところで、⁸⁾ 照射脆化したジルカロイの機械的強度は、引張強さを例にとれば Fig. 4.5 のようになる。すなわち試験温度 $280^\circ C$ では未照射 1.31 % 冷間加工ジルカロイと比べて $\frac{73.2 \text{ kgf/mm}^2}{59.1 \text{ kgf/mm}^2} = 1.24$ 倍と大きく、冷間加工被覆材によって照射脆化被覆材を模擬するならば、さらに高い加工度を有する被覆材で実験する必要がある。しかしながら同図によれば、照射脆化したジルカロイにしても、冷間加工被覆材にしても回復が $300 \sim 450^\circ C$ で起きていることがわかる。もちろんこれは長時間にわたり熱エネルギーを与えた状態での回復温度であり、NSRR 実験の場合は、極めて短時間の現象なのでより高温で回復すると思われる。しかし、Test No 217-1 で、被覆管表面温度が最高 $1200^\circ C$ まで上昇したときの平均粒径が約 $110 \mu m$ にまで成長していることから、¹⁾ 回復は比較的低温 (高くとも約 $1000^\circ C$) で比較的短時間に生じていると考えられる。このような低温で回復が起きる限り少くとも冷間加工被覆材燃料は、今回実験した低い加工度の冷間加工被覆材燃料と同じく、標準燃料と類似した挙動を示すと思われる。



Longitudinal Section as Initial Condition
 Fig. 42 Deformation model of cladding in case of 185 cal/g·UO₂

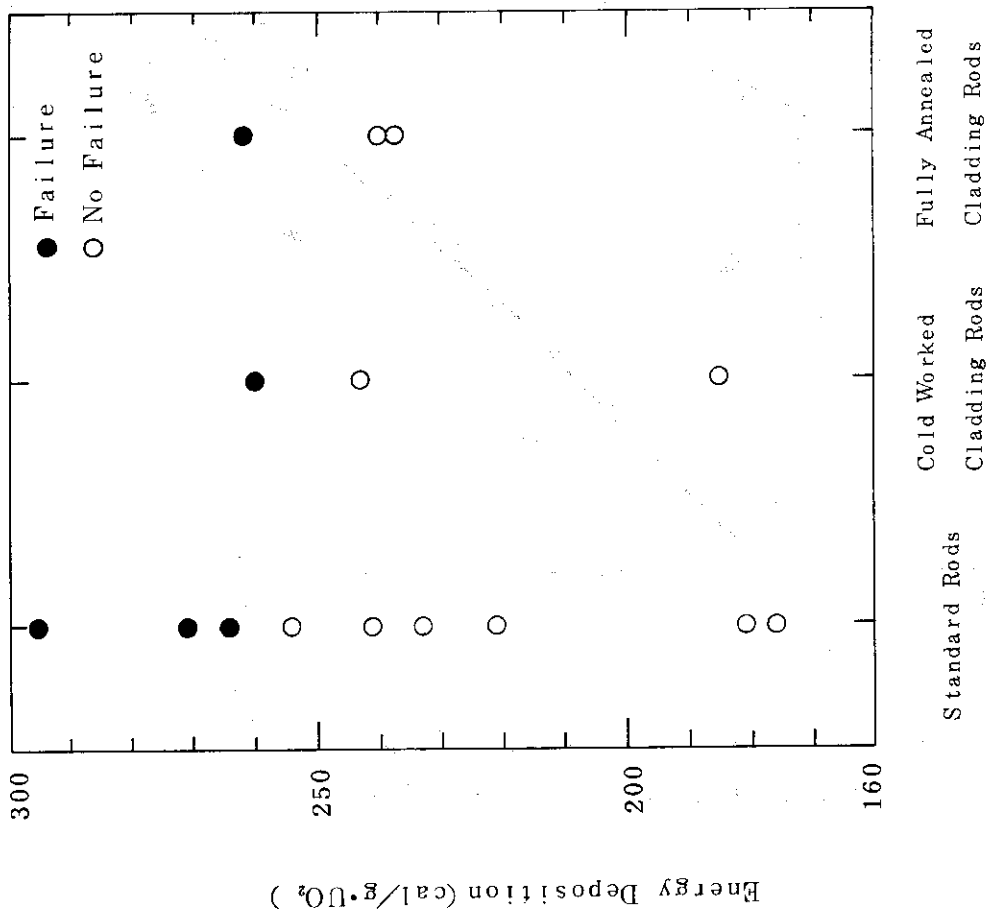


Fig. 41 Comparison of failure threshold for heat-treated Zircaloy-4 cladding fuel rods

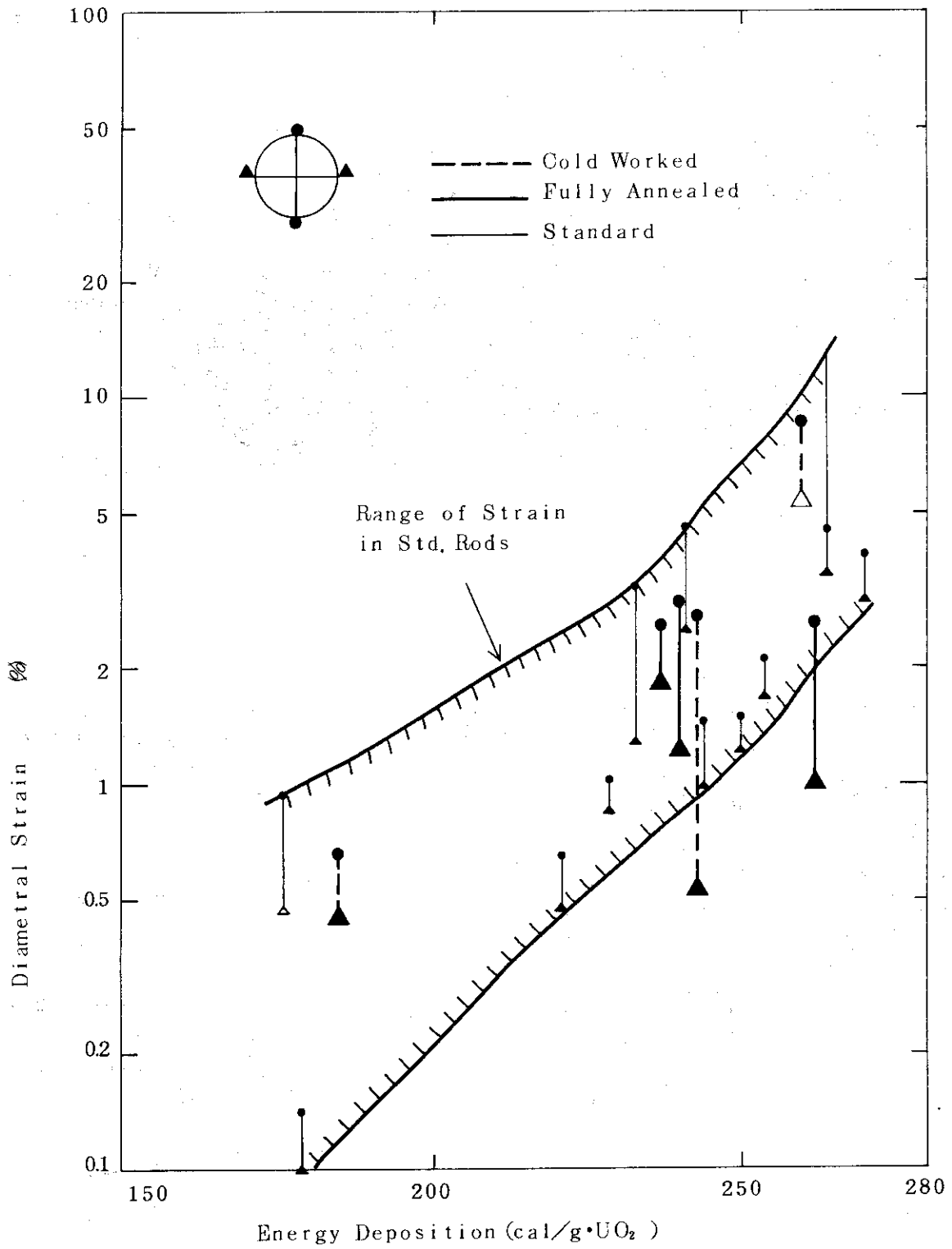
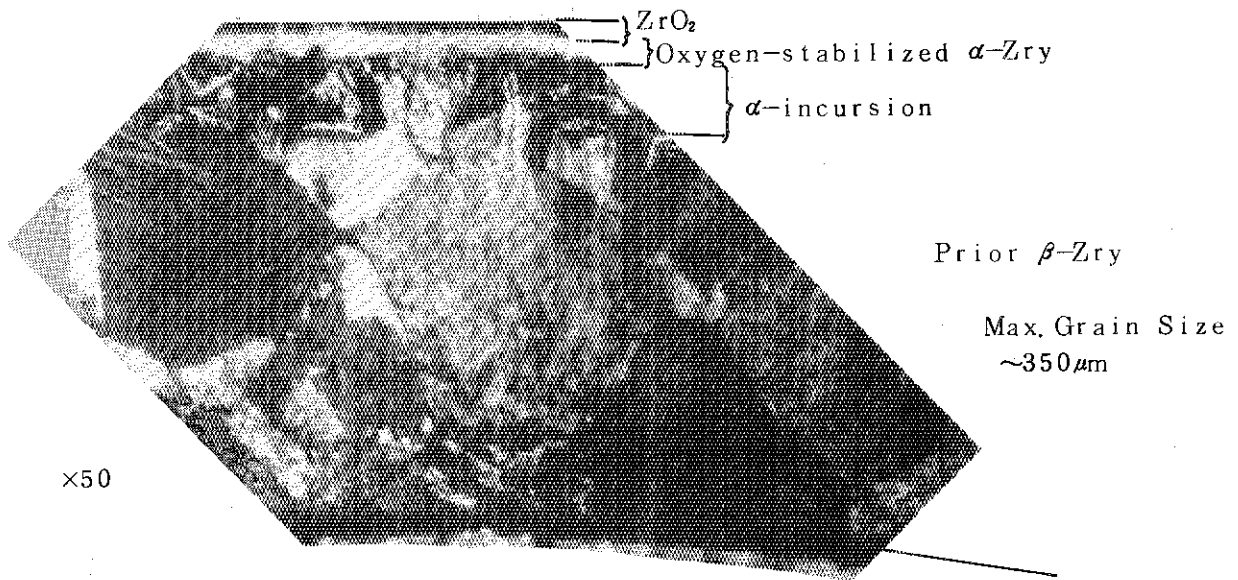
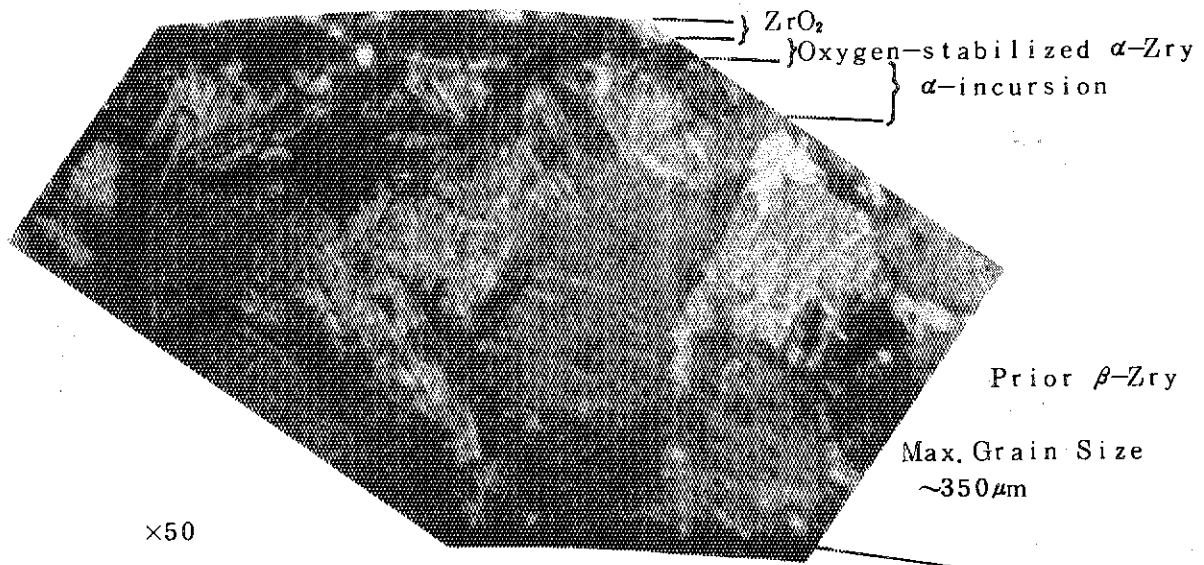


Fig. 43 Comparison of diametral strain for heat-treated Zry-4 cladding rods after irradiation



(a) 10% Cold Worked Cladding (260cal/g \cdot UO₂)



(b) Fully Annealed Cladding (262cal/g \cdot UO₂)

Fig. 44 Photomicrographs showing cladding grain growth in heat-treated cladding fuel tests.

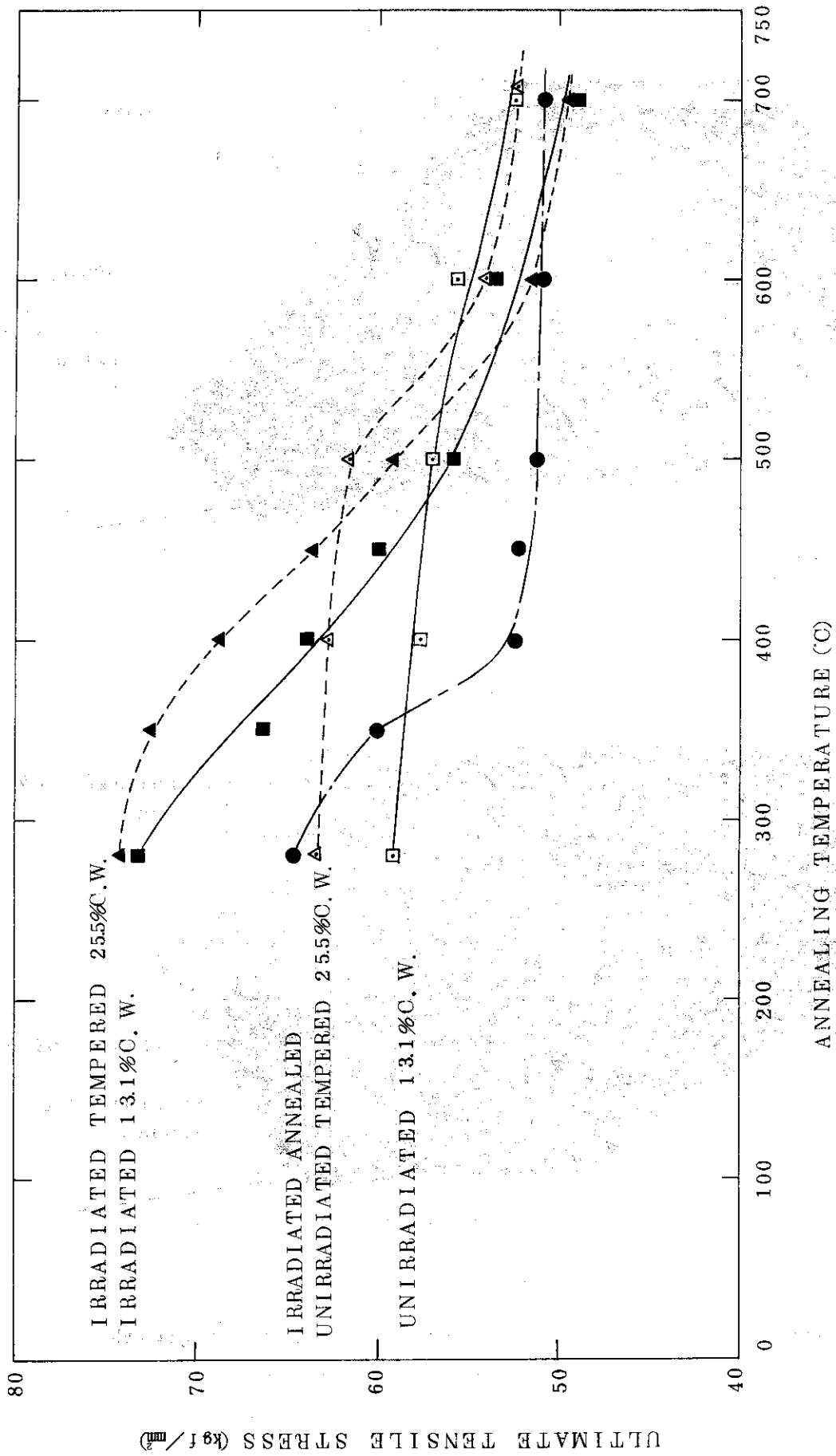


Fig. 4.5 Recovery curves for Zircaloy-2⁸⁾

5. 結 論

以上より結論をまとめると次の通りである。

- (1) 冷間加工被覆材燃料，完全焼鈍被覆材燃料とも破損しきい値は約 $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ であり，標準燃料の場合と変らない。
- (2) これら特殊被覆材燃料の破損機構も高温酸化により脆化した被覆材がクエンチ時の熱収縮に抗しきれず被覆材の周方向に貫通したクラックを発生するものであり，標準燃料の場合と同じである。また，被覆管の変形挙動や酸化量についても標準燃料の場合と同様な傾向を示す。
- (3) 上記のように反応度事故条件下の燃料のふるまいに対して，照射脆化した被覆材を冷間加工材で模擬することは難しい。これは，照射材では脆化によりほとんど伸びを失っており，かつ被覆材の温度上昇とともに一層伸びが減少するのに対し，今回用いた10%冷間加工材では常温で15%の伸びがあり，かつ温度上昇とともに伸びは増加する。したがって，反応度事故時のペレットの熱膨張により被覆材との間に力学的相互作用が働き照射材の場合にはこれに抗しきれず破損するが，冷間加工材の場合には余程加工度を上げたものでない限り一般的にはこの力学的相互作用には耐え，高温になるとともに焼鈍されて機械的性質も回復するためである。

以上より，冷間加工材を用いて照射材の機械的性質を模擬するためには，極めて高い加工度の冷間加工材を用いる必要がある。

謝 辞

本実験を行なう際し種々助言を頂いた反応度安全研究室石川迪夫室長並びに実験遂行に御協力頂いたNSRR管理室の皆様へ感謝します。

参 考 文 献

- 1) NSRR実験プロGRESS・レポート1~7, JAERI-M 6635, 6790, 7051, 7304, 7554, 7977, 8259
- 2) R. W. Miller; The Effects of Burn-up on Fuel Failure, ANCR-1280 (1976)
- 3) NSRR管理室・反応度安全研究室; NSRR臨界および特性試験報告, 1976年12月, JAERI-M6791
- 4) 山崎 利, 他, 「NSRR大気圧カプセル及び実験計装の現状」1977年6月, JAE

5. 結 論

以上より結論をまとめると次の通りである。

- (1) 冷間加工被覆材燃料，完全焼鈍被覆材燃料とも破損しきい値は約 $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ であり，標準燃料の場合と変わらない。
- (2) これら特殊被覆材燃料の破損機構も高温酸化により脆化した被覆材がクエンチ時の熱収縮に抗しきれず被覆材の周方向に貫通したクラックを発生するものであり，標準燃料の場合と同じである。また，被覆管の変形挙動や酸化量についても標準燃料の場合と同様な傾向を示す。
- (3) 上記のように反応度事故条件下の燃料のふるまいに対して，照射脆化した被覆材を冷間加工材で模擬することは難しい。これは，照射材では脆化によりほとんど伸びを失っており，かつ被覆材の温度上昇とともに一層伸びが減少するのに対し，今回用いた10%冷間加工材では常温で15%の伸びがあり，かつ温度上昇とともに伸びは増加する。したがって，反応度事故時のペレットの熱膨張により被覆材との間に力学的相互作用が働き照射材の場合にはこれに抗しきれず破損するが，冷間加工材の場合には余程加工度を上げたものでない限り一般的にはこの力学的相互作用には耐え，高温になるとともに焼鈍されて機械的性質も回復するためである。

以上より，冷間加工材を用いて照射材の機械的性質を模擬するためには，極めて高い加工度の冷間加工材を用いる必要がある。

謝 辞

本実験を行なう際し種々助言を頂いた反応度安全研究室石川迪夫室長並びに実験遂行に御協力頂いたNSRR管理室の皆様へ感謝します。

参 考 文 献

- 1) NSRR実験プロGRESS・レポート1～7，JAERI-M 6635, 6790, 7051, 7304, 7554, 7977, 8259
- 2) R. W. Miller: The Effects of Burn-up on Fuel Failure, ANCR-1280 (1976)
- 3) NSRR管理室・反応度安全研究室；NSRR臨界および特性試験報告，1976年12月，JAERI-M6791
- 4) 山崎 利，他，「NSRR大気圧カプセル及び実験計装の現状」1977年6月，JAE

5. 結 論

以上より結論をまとめると次の通りである。

- (1) 冷間加工被覆材燃料，完全焼鈍被覆材燃料とも破損しきい値は約 $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ であり，標準燃料の場合と変わらない。
- (2) これら特殊被覆材燃料の破損機構も高温酸化により脆化した被覆材がクエンチ時の熱収縮に抗しきれず被覆材の周方向に貫通したクラックを発生するものであり，標準燃料の場合と同じである。また，被覆管の変形挙動や酸化量についても標準燃料の場合と同様な傾向を示す。
- (3) 上記のように反応度事故条件下の燃料のふるまいに対して，照射脆化した被覆材を冷間加工材で模擬することは難しい。これは，照射材では脆化によりほとんど伸びを失っており，かつ被覆材の温度上昇とともに一層伸びが減少するのに対し，今回用いた10%冷間加工材では常温で15%の伸びがあり，かつ温度上昇とともに伸びは増加する。したがって，反応度事故時のペレットの熱膨張により被覆材との間に力学的相互作用が働き照射材の場合にはこれに抗しきれず破損するが，冷間加工材の場合には余程加工度を上げたものでない限り一般的にはこの力学的相互作用には耐え，高温になるとともに焼鈍されて機械的性質も回復するためである。

以上より，冷間加工材を用いて照射材の機械的性質を模擬するためには，極めて高い加工度の冷間加工材を用いる必要がある。

謝 辞

本実験を行なう際し種々助言を頂いた反応度安全研究室石川迪夫室長並びに実験遂行に御協力頂いたNSRR管理室の皆様へ感謝します。

参 考 文 献

- 1) NSRR実験プロGRESS・レポート1～7，JAERI-M 6635, 6790, 7051, 7304, 7554, 7977, 8259
- 2) R. W. Miller; The Effects of Burn-up on Fuel Failure, ANCR-1280 (1976)
- 3) NSRR管理室・反応度安全研究室；NSRR臨界および特性試験報告，1976年12月，JAERI-M6791
- 4) 山崎 利，他，「NSRR大気圧カプセル及び実験計装の現状」1977年6月，JAE

RI-M7105

- 5) Z. R. Martinson, et al, Transient Irradiation of 1/4-inch OD Zircaloy-2 Clad Oxide Fuel Rods to 590cal/g·UO₂, Nov. 1968, IDO-ITR-102
- 6) 塩沢周策, 「NSRR実験における標準燃料の振舞いに関する一考察」1977年9月, JAERI-M7267
- 7) 柳原敏, 塩沢周策, 斎藤伸三; NSRR実験におけるジルカロイ被覆管の酸化膜厚さに基づく円周方向温度分布の評価, JAERI-M8200 (1979年5月)
- 8) L. M. Howe, et al, The effect of neutron irradiation on the tensile of properties Zircaloy-2, J. nucl. Mater. 2 (1960) 248
- 9) D. G. Hardy, ASTM STP-529, 415 (1973)