

JAERI-M
8758

NSRR 実験における薄肉被覆材燃料の
破損挙動

1980年3月

斎藤 伸三・塩沢 周策・柳原 敏・石島 清見

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.

NSRR実験における薄肉被覆材燃料の破損挙動

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

齋藤伸三・塩沢周策・柳原 敏・石島清見

(1980年2月4日受理)

大気圧水カプセルを用いたNSRR実験において、ジルカロイ-4製被覆管の肉厚を標準肉厚の約2/3の0.4mmとした薄肉被覆材燃料を用い、被覆管肉厚が被覆管温度挙動、燃料破損しきい値、破損機構等に及ぼす影響を調べた。実験の結果、同一発熱量の場合、薄肉被覆材燃料の被覆管温度は標準肉厚被覆材燃料の場合よりもかなり高く、これは薄肉材の方が熱容量が小さく、かつ UO_2 ペレットの径が大きいため線出力密度が高いことによるものと思われる。また、薄肉被覆材燃料の破損しきい値は約 $210 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ で、標準肉厚被覆材燃料の場合の $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ に比して約 $50 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ 低くなるが、破損機構に関しては両者の間に本質的な相違はなく、被覆材の内面溶融及び酸化による脆化に起因する脆性破損あるいは被覆材の溶融を主因とする破損である。薄肉被覆材燃料の破損しきい値が標準肉厚被覆材燃料の場合より低下する原因は、同一発熱量に対して上述の理由により被覆管温度がより高くなるので酸化量もより多く、肉厚も薄いので脆化の度合がより大きく、かつより低い発熱量で被覆材が溶融することによる。

Study on Fuel Failure Behavior of a Thin Wall Clad Fuel Rod
in NSRR Experiments

Shinzo SAITO, Shusaku SHIOZAWA,
Satoshi YANAGIHARA and Kiyomi ISHIJIMA

Division of Reactor Safety,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 4, 1980)

Thin wall clad fuel rods in which the cladding thickness was reduced from 0.62mm to 0.4mm were tested in water environment at ambient pressure and temperature in the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR). The purpose of the test is to investigate the effect of Zircaloy-4 cladding thickness on the cladding temperature behavior, threshold energy deposition for fuel failure and failure mechanism under reactivity initiated accident conditions.

The cladding temperature in the thin wall clad fuel rod is much higher than that in the standard test fuel rod whose cladding thickness is 0.62mm when they are subjected to the same energy deposition. This is possibly attributed to the smaller heat capacity in the cladding and higher linear heat rate due to the larger pellet diameter in the thin wall clad fuel rod.

The threshold energy deposition for fuel failure of the thin wall clad fuel rod is about 210cal/g.UO₂, which is 50cal/g.UO₂ lower than that of the standard fuel rod. However, there is no essential difference in fuel failure mechanism between these two rods. It is brittle fracture of the cladding due to the embrittlement by the oxidation and the thinning by melting of the cladding inner surface ; the cladding melting contributes more to the failure of the thin wall clad fuel rod. The reason why the threshold energy deposition for fuel failure of a thin wall clad fuel rod is lower than that of a standard one is the severer embrittlement of the cladding in the former caused by much more oxidation due to higher peak cladding temperature and thinner original than final cladding thickness.

Keywords: Reactivity Initiated Accident, NSRR Reactor, Fuel Failure, Failure Mechanism, Zircaloy-4 Cladding, Cladding Thickness, Thin Wall Cladding, Energy Deposition, Post Irradiation Examination, Oxidation, Fuel-Cladding Reaction, Cladding Temperature

目 次

1. 序 論	1
2. 実験装置と実験方法	2
2.1 NSRRの概要	2
2.2 実験方法	2
2.2.1 試験燃料	2
2.2.2 照射条件	2
2.2.3 過渡計測	3
2.2.4 照射後試験	3
3. 実験結果	9
3.1 発熱量 $200 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-1)	9
3.2 発熱量 $220 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-4)	9
3.3 発熱量 $231 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-3)	11
3.4 発熱量 $255 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-2)	12
3.5 発熱量 $449 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-5)	13
4. 考察	37
4.1 破損しきい値	37
4.2 破損機構	38
4.3 高発熱量破損時の被覆管強度と応力	39
5. 結 論	42
謝 辞	42
参考文献	43

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Facility and Method	2
2.1 Outline of NSRR Facility	2
2.2 Experimental Method	2
2.2.1 Test Fuel	2
2.2.2 Test Conditions	2
2.2.3 Transient Measurements	3
2.2.4 Post Irradiation Examination	3
3. Experimental Results	9
3.1 Energy Deposition of 200 cal/g·UO ₂ (Test No.216-1).....	9
3.2 Energy Deposition of 220 cal/g·UO ₂ (Test No.216-4).....	9
3.3 Energy Deposition of 231 cal/g·UO ₂ (Test No.216-3).....	11
3.4 Energy Deposition of 255 cal/g·UO ₂ (Test No.216-2).....	12
3.5 Energy Deposition of 449 cal/g·UO ₂ (Test No.216-5).....	13
4. Discussions	37
4.1 Comparison of Threshold Energy Deposition for Fuel Failure between a Thin Wall Clad Fuel Rod and a Standard Fuel Rod	37
4.2 Fuel Failure Mechanism	38
4.3 Cladding Strength in High Energy Deposition Fuel Failure.....	39
5. Conclusions	42
 Acknowledgement	 42
References	43

1. 序 論

原子炉の反応度事故時の燃料の挙動を調べる目的でNSRRでは1975年10月以来、現在までに350回以上の実験を実施してきた。¹⁾ NSRR実験では、反応度事故時の急激な出力上昇をパルス出力によって模擬し、実験孔内に挿入したカプセル内の試験燃料の挙動を温度、圧力等の過渡計測及び照射後の各種試験結果から解明しようとするものである。具体的には、反応度事故の大きさ(燃料単位重量当りに与えられる熱量)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、破壊力の発生機構とその大きさ等に関し実験的に究明することである。

これらの実験は、PWRの14×14型燃料の長さを短くし、濃縮度を10%としたNSRR標準試験燃料に対し発熱量を種々変え、燃料破損しきい値、破損機構等を調べた標準燃料実験、破損機構を明確にする上で役立つ因子あるいはバーンアップ模擬も含め、より実炉に近い条件で燃料設計上の因子を変えその影響を調べた燃料設計パラメータ実験、大気圧水カプセル内で水温、流量等を変えた冷却条件パラメータ実験および浸水燃料並びに擦過腐食燃料を用いた欠陥燃料実験に大別される。本報告は、燃料設計パラメータ実験の一つとして実施した薄肉被覆材燃料試験の結果をまとめたものである。

実験は大気圧水カプセルを用い、発熱量 $200\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ から $450\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ の範囲にわたって合計5回行い、被覆管温度挙動、破損しきい値、破損形態及びその機構、高発熱量破損時の破損挙動等に着眼して被覆管肉厚が燃料破損挙動に及ぼす影響を調べた。被覆材の肉厚としては標準肉厚 0.62 mm に対して 0.4 mm と約 $2/3$ としたが、実験の結果、破損しきい値は約 $210\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ と判明し、標準燃料の場合の $260\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ に対して約 $50\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ 低くなることが分った。また、破損機構に関しては標準燃料の場合と同じで、被覆材の内面溶融及び酸化による脆化に起因する脆性破損、あるいは被覆材の溶融を主因とする破損である。

2. 実験装置と実験方法

2.1 NSRRの概要

原子炉安全性研究炉 (NSRR: Nuclear Safety Research Reactor) は米国GA社によって開発されたパルス炉TRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor) を改良したものである。NSRRはFig. 2.1に示すように水深9mのスイミング・プール型で、炉心はプール底部に位置し、炉心燃料の冷却はプール水の自然循環によって行い、炉心中央には内径約22cmの大きな実験孔を有し、実験物は垂直装填管またはオフセット装填管より出し入れする。

炉心はFig. 2.2に示すように中央の実験孔を取り囲む149の燃料要素と8本の燃料フォロア型調整棒並びに安全棒および3本のトランジェント棒より構成され、炉心の直径は約63cm、有効長は38cmである。炉心燃料は直径約3.6cm、有効長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トランジェント棒の急速引き抜きによって行い、3本のトランジェント棒の組合せによって最大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の水素の昇温による大きな負のフィードバック効果により抑制される。Fig. 2.3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。ピーク出力は約21,000MW、積分出力は117MW・secであり、最短炉周期は1.12msec、パルス半値幅は4.4msecである。NSRR炉の特性表をTable 2.1に示す。

2.2 実験方法

(1) 試験燃料

本実験に用いた試験燃料の主な設計仕様を従来NSRR実験において使用している標準燃料¹⁾と比較してTable 2.2に示す。本試験燃料の被覆管の肉厚が0.40mmと標準肉厚材の約2/3 (標準燃料の肉厚: 0.62mm) になっている点が大きな特徴である。燃料棒の外径は標準燃料と等しく10.72mmであり、ペレットと被覆管のギャップ幅 (0.095mm) も標準燃料と等しくなるよう設計してある。このため、薄肉被覆材燃料のペレット外径は9.73mmと標準燃料ペレットの9.29mmと比べて、0.44mm大きくなっている。燃料棒構造などその他の仕様はFig. 2.4に示す標準燃料の場合と全く同一である。

(2) 照射条件

試験燃料棒を、これまでの標準燃料実験と同様にFig. 2.5に示す大気圧水カプセルに封入し、パルス照射を行った。カプセル内部には、上部に約25cmの空隙を残して純水 (常温) を冷却水として注入した。NSRRにおいてパルス照射される試験燃料には、Fig. 2.3に示し

たようにほとんど瞬間的・断熱的にエネルギーが与えられる（以下、このエネルギーの総量を“発熱量” - Energy deposition と呼ぶ）。試験燃料に対するパルス特性と発熱量の関係は、投入反応度が 2.43\$（最短炉周期 2.91msec）に対する約 200 cal/g·UO₂ から、4.44\$（同 1.21msec）に対する約 450 cal/g·UO₂ の範囲にある。発熱量の値は標準燃料に関する燃焼率の測定結果に基づいて評価を行った。

(3) 過渡計測

過渡現象の計測として被覆管表面温度測定を行った。使用したセンサーは、Pt/Pt-13%Rh 熱電対で、素線径 0.3mm のものを素線のまま被覆管表面にスポット溶接した。このようにして取付けた熱電対は、応答周期約 200Hz を持ち、約 1,600°C までは正常に応答性よく作動することが確かめられている¹⁾。

(4) 照射後試験

照射後、試験燃料を約 2 週間の冷却期間を経て、カプセルから取出して、その後照射後試験を行う。試験項目は、外観検査、寸法測定、光学顕微鏡観察等である。外観検査は主として目視によるもので、寸法はマイクロメータ、ノギスを用いて軸方向および半径方向についての伸び（永久歪み）やすきまゲージを用いての曲がりの測定である。光学顕微鏡観察には、照射後燃料のうち代表的な場所を選び、ダイヤモンド・カッターで軸方向および半径方向に切断し、直径約 3 cm、高さ約 3 cm の円筒形樹脂に埋め込んだ後、研磨および腐食させたものを試料として用いた。研磨は、まず試料の観察面をエメリー紙で表面が光沢をもち、ほとんど傷等なくなるまで機械研磨し、更にダイヤモンド・ペーストを用いて最終的にバフ研磨を行った。次に、Table 2.3 に示す腐食液で化学腐食し、顕微鏡観察に供した。化学腐食の方法は、腐食液を脱脂綿にしみ込ませ、その綿で観察面を拭くようにして腐食した。観察にはオリンパス製倒立型光学顕微鏡を用い、また、必要に応じて偏光をかけての観察も行った。

Table 2.1 Characteristics of NSRR

(1) Reactor Type;	Modified TRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor)
(2) Reactor Vessel;	3.6 ^m (wide)×4.5 ^m (long)×9 ^m (deep) open pool
(3) Fuel;	
Fuel type	12 wt% U-ZrH fuel
Fuel enrichment	20 wt% U-235
Clad material	Stainless steel
Fuel diameter	3.56 cm
Clad diameter	3.76 cm O.D.
Length of fuel section	38 cm
Number of fuel rods	157 (including 8 fuel-followered control rods)
Equivalent core diameter	62 cm
(4) Control Rods;	
Number	8 (including 2 safety rods)
Type	Fuel followed type
Poison material	Natural B ₄ C
Rod drive	Rack and pinion drive
(5) Transient Rods;	
Number	2 fast transient rods and 1 adjustable transient rod
Type	Air followed type
Poison material	92% enriched B ₄ C
Rod drive	Fast : Pneumatic Adjustable: Rack and pinion & pneumatic
(6) Core Performance;	
a) Steady state operation	
Steady state power	300 kW
b) Pulse operation	
Max. peak power	21,100 MW
Max. burst energy	117 MW·sec
Max. reactivity insertion	3.4%Δk (\$4.67)
Min. period	1.13 msec
Pulse width	4.4 msec (1/2 peak power)
Neutron life time	30 μsec
(7) Experiment Tube;	
Inside diameter	22 cm

Table 22 Design Summary of Thin Wall Clad Fuel Rod

UO ₂ Pellets		
Diameter	9.73mm	(9.29mm)
Length	10mm	
Density	95% TD	
Enrichment	10%	
Shape	Chamfered	
Cladding		
Material	Zircaloy - 4	
Diameter	10.72mm	
Thickness	0.40mm	(0.62mm)
Pellet-Cladding Gap	0.095mm	
Element		
Fuel Length	135mm	
Plenum Gas	Helium 1 atm.	

Figure in the Parenthesis indicates the value of NSRR standard test fuel rod.

Table 23 Composition of Chemical Etching Solution for Zircaloy

Lactic acid C ₂ H ₄ (OH)(COOH)	55.6 vol. %
Nitric acid HNO ₃	18.5 vol. %
Fluoric acid HF	7.4 vol. %
Distilled water H ₂ O	18.5 vol. %

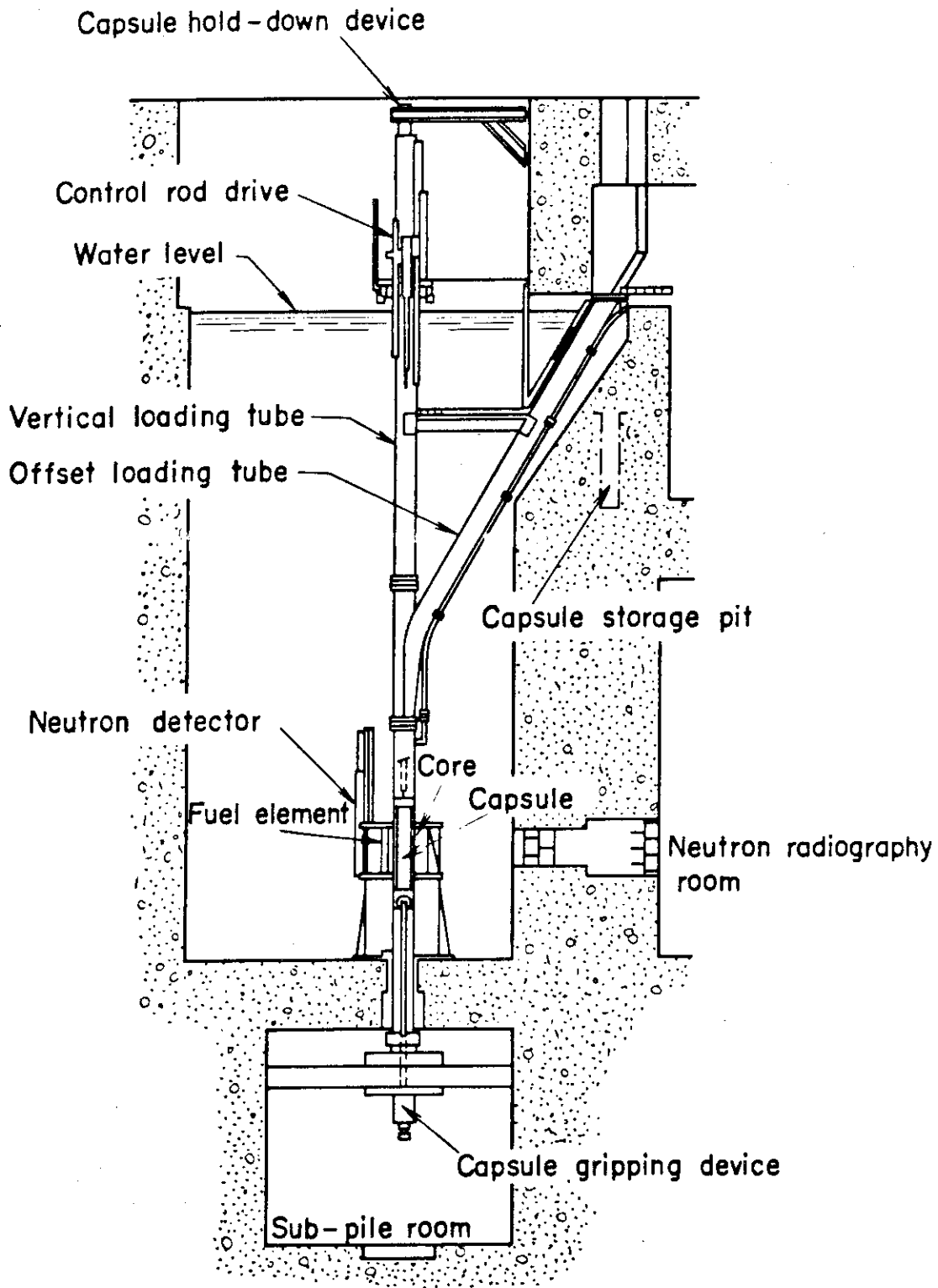


Fig. 2.1 Vertical cross-section of the NSRR reactor

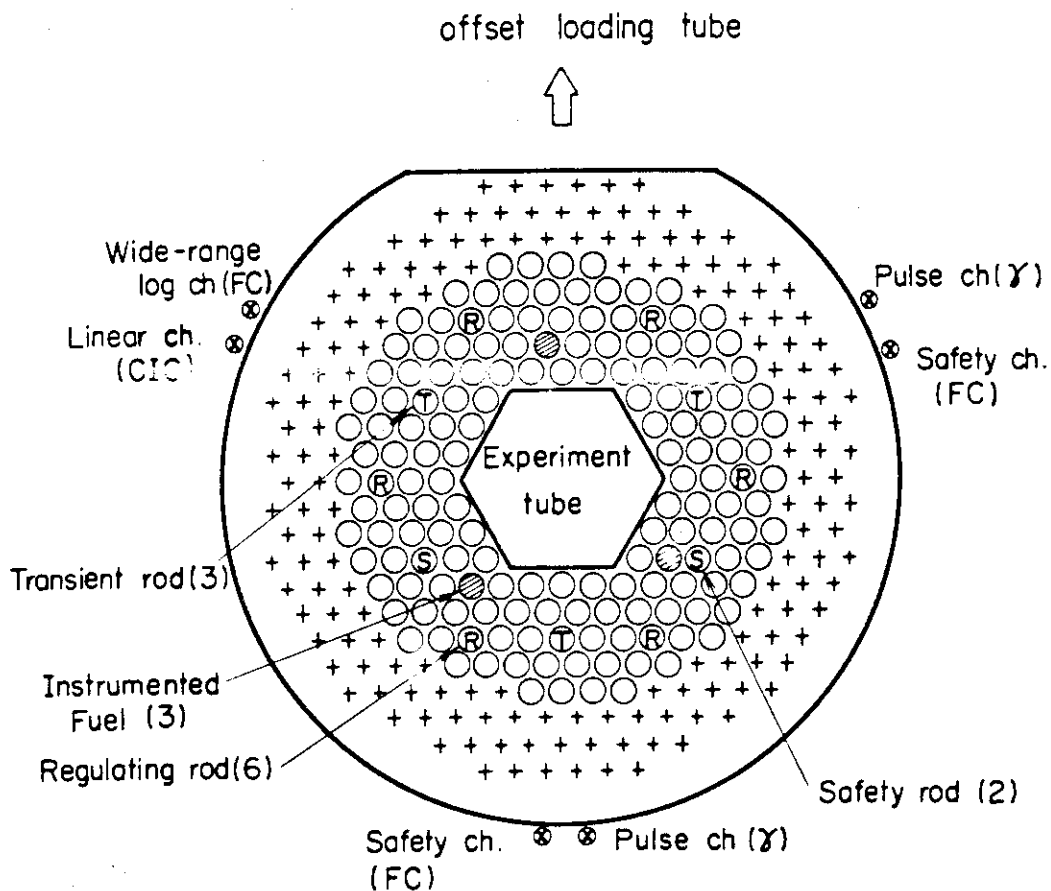


Fig.2.2 Standard operating core configuration

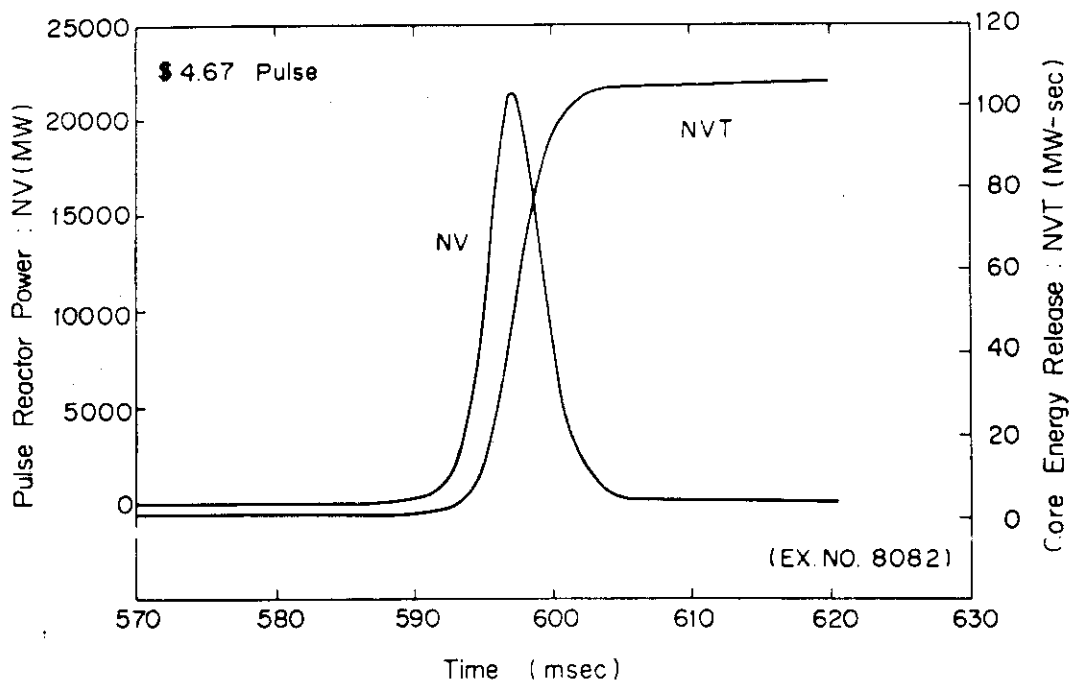


Fig.2.3 Pulse reactor power and core energy release for 4.67\$ pulse

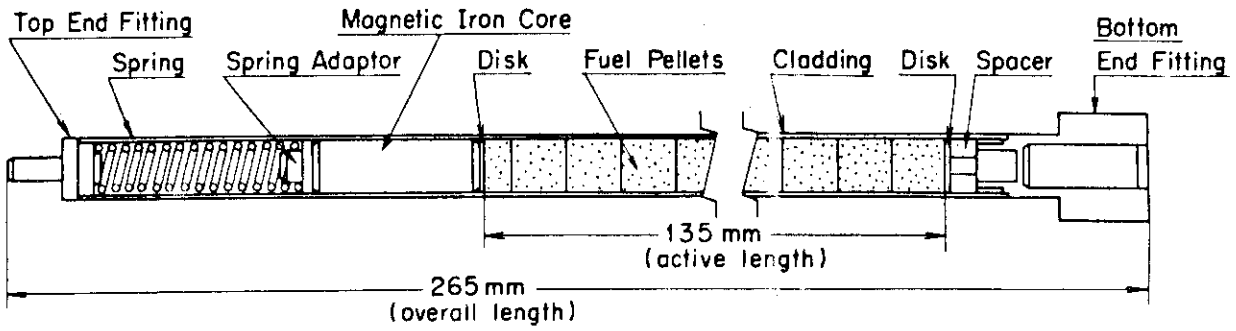


Fig.2.4 Test Fuel Rod

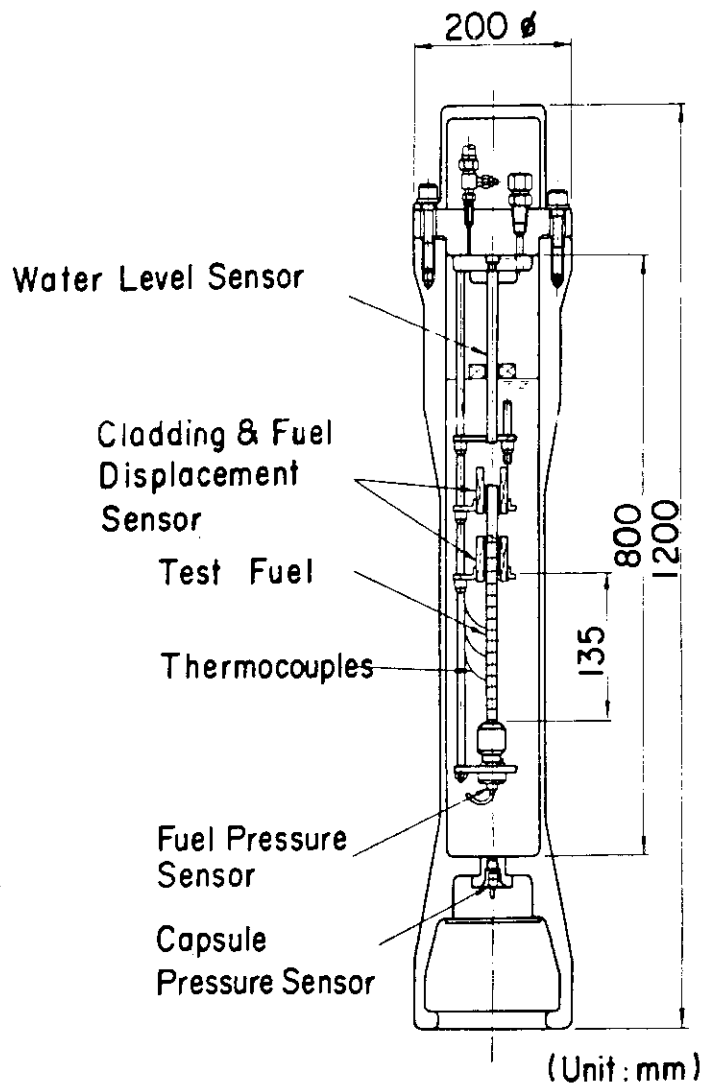


Fig.2.5 Standard Water Capsule

3. 実験結果

今回実施した5回の実験における発熱量、被覆管表面最高温度、照射後外観および顕微鏡観察結果の概要をTable 3.1に、また外観写真をFigs. 3.1~3.5に示す。各実験毎に結果を次に詳細に説明する。

3.1 発熱量 $200 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-1)

発熱量 $200 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ で照射した結果、表面が全発熱領域にわたって酸化しただけで燃料破損には至らなかった (Fig. 3.1)。被覆管表面最高温度はTable 3.2に示すように、発熱量が約 $10 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ 高い標準燃料の結果とほぼ同じで、燃料棒の変形に関しては、本実験より発熱量が $20 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ 高い標準燃料実験 Test No. 111-16と比べてもTable 3.3より明らかなように、薄肉被覆材燃料の方が大きな変形量となっている。特に、曲がり大きいのが特徴で、本試験の場合、上部端栓の先端 (外径 4 mm) は、上部燃料支持板の穴 (内径 11.5 mm) に接触していた*。酸化の状況は外見上極めて均一で同発熱量の標準燃料試験結果と比べて定性的には相違は見られなかった。

次に、被覆管の金相試験の結果について記述する。被覆管の組織は、Fig. 3.6に示すように、外面から順次、酸化層 (ZrO_2 相)、酸化によって安定化された α -ジルカロイ層 (Oxygen stabilized α -Zircaloy layer)、一旦 β 相になったジルカロイ層 (prior β -Zircaloy layer) になっている。また、 α 相と β 相の境界には α -incursion も同時に認められている。さらに、被覆管内面において UO_2 -ジルカロイ反応が極く僅かながら見られる個所が存在した。観察されたこれらの組織は、定性的には標準燃料実験において燃料が破損しなかった発熱量約 $200 \sim 240 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ の被覆管組織と完全に一致している。また、酸化量に関しても、酸化膜厚は特殊な場所 (例えば熱電対取付位置近傍など) を除き $15 \sim 20 \mu\text{m}$ であり、標準燃料の発熱量約 $220 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ の場合と大旨一致していた。

3.2 発熱量 $220 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-4)

発熱量 $220 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ で照射した結果、周方向の貫通クラックが生じ、燃料は破損した。Fig. 3.2に示したように目視できるクラックの発生位置は、標準燃料実験における初期破損のクラックの位置¹⁾とほぼ同じ燃料ペレット領域の下側部分で、本試験では燃料ペレット領域最下端より約 0.5 cm (クラックが被覆管のほぼ全周にわたる大きなもの) と約 4 cm (半

* 通常燃料棒は下部のみで固定し、上部は拘束のない支持条件にしているが、支持板の穴に燃料棒の先端が触れると、燃料棒の横方向のそれ以上の振れは拘束されることになる。標準燃料の場合、この発熱量で接触することはない。

周にわたる比較的小さいもの)の部分であり、ほぼペレット-ペレット境界になっている。しかし、光学顕微鏡観察結果によれば、これ以外の貫通クラックもいくつか認められ、その位置も必ずしも初期のペレット-ペレット境界にはなっていないが、Fig. 3.7に示すように、ペレットを輪切りにしたようなクラックがペレット中に存在し、あたかも新たなペレット-ペレット境界ができ、その部分に被覆管を貫通するクラックが発生していることが多い。また、被覆管の表面の状況に関しては、表面は波打っており、(wavy)、さらに被覆管周方向に凹状の変形が僅かにいくつか認められ、また一部筋状の酸化膜の剝離(break-away)もあった。金相試験の結果によれば、被覆材の溶融が部分的に生じており、このため被覆材の流れ込みが起こり、被覆管は偏肉している。外観上波打って見えるのは大部分この偏肉が主因で、ペレットの形状はほぼ真円をなしている。また、ペレットの押しによると思われる被覆管の変形も同時に認められ、管は弓状に外側に変形しているが、場合によってはこの弓状の変形の両端は節になっており、周方向の凹状の変形を残している。これらの表面状態は、標準燃料実験において初期破損を生じた燃料と比べて、発熱量は低いにも拘らず、変形はより激しいといえる。次に、温度挙動についてみると、Fig. 3.8およびTable 3.2に示したように、標準燃料の同一発熱量と比較すると、高い最高温度を示している。これは、後に詳しく考察するが被覆材が薄肉のため標準肉厚のものに比べて熱容量が小さいことおよび被覆管の外径およびギャップ幅を標準燃料と同一としたため薄肉材燃料の方がペレット径が大きく線出力密度が高いことによるものと思われる。一方、標準燃料で初期破損を生じたもの(最高1,700°C以上)と比べると本実験における被覆管表面最高温度は幾分低い値になっている。

本試験における燃料破損機構について金相試験結果も含めて次に検討する。標準燃料の発熱量約260 cal/g·UO₂における初期破損の場合、燃料にクラックが生じ破損するためには、i) 被覆材が溶融して、薄肉の部分が生じること、ii) 被覆材の酸化による脆化が進み、i)の薄肉の効果と相まって、被覆材が“zero ductility”になること、iii) 燃料棒内部においてUO₂-ジルカロイ反応が生じ、被覆管とペレットの強い結合が起こり、被覆管急冷時の管の自由な熱収縮がペレットにより阻止されることの3つであると要約される。²⁾³⁾これに対し、本試験においては前述のように2箇所においてクラックの発生が見られたが、このクラックの形態はFig. 3.7および3.9に示すように標準燃料の初期破損の場合と若干異なるように思われる。

Fig. 3.7に示したクラックは発熱部下端より約0.5 cmの個所に現われたもので同図c)に見られるように破損部では被覆材は溶融して欠落した徴候を示している。周辺の残された被覆材は550~600 μmと初期の400 μmに比して相当肉厚が増加していることから破損部で溶け、被覆材が流れ込み厚肉になったものと思われる。また、残された部分のZrO₂層の厚さが50 μm程度とかなり厚く、被覆管内面にはUO₂とジルカロイの反応も見られ、Fig. 3.7a)の外観写真に見られるようにかなり脆いが、この部分におけるZrO₂層の厚さは最終被覆管肉厚に対して10%以下で、標準燃料のクラック発生部で測定された20%と比較するとその半分である。一方、Fig. 3.9に示したクラック発生部では被覆材は完全に一度溶融しており、被覆管を貫通したクラックは結晶粒界で発生しているように見える。その他、未貫通のものでも粒界に沿ったクラックが多数見られる。これより、化学分析を行っていないので確定的ではないが、被覆材が溶融した際にUまたはU-Zr合金等がジルカロイの結晶粒界に入り

込んで凝結し、このために引張りに対する強度が低下し被覆管が急冷され熱収縮する際にペレットの熱膨張によって阻止されクラックが入ったものと思われる。因みにこの部分の ZrO_2 層の厚さは約 $30\mu m$ で水との反応による酸化のみによって完全に脆化したとは思われない。

以上のような破損形態は標準燃料に対して約 $290 cal/g \cdot UO_2 \sim 340 cal/g \cdot UO_2$ の発熱量を与えた場合に見られ、前述の $260 cal/g \cdot UO_2$ における初期破損の場合と若干異なり、被覆材の溶融が破損の主因と考えられる。しかし、本試験燃料棒中に見られた第2のクラックは前述のように脆化した被覆材に軸方向の引張応力が作用して発生したものであり、薄肉被覆材燃料でも、もう少し発熱量が低い場合には標準燃料の初期破損と全く同様な機構で破損することは十分考えられる。

3.3 発熱量 $231 cal/g \cdot UO_2$ における実験 (実験番号 216-3)

発熱量 $231 cal/g \cdot UO_2$ で照射した結果、燃料は2ヶ所において3つに分析した。(Fig. 3.3 a))。分断した場所は燃料ペレット領域最下端より約 $1 cm$ と約 $8 cm$ のところで、このうち約 $8 cm$ の部分はカプセルから燃料を取外す際に自重により分断したものである。その他の外観上の特徴としては、分断した以外の場所においても多数の貫通クラック(多くは周方向)が存在すると(Fig. 3.3 c))、分断部の被覆材は脆化しており、燃料棒本体から剥れ易くなっていること(Fig. 3.3 b))、分断面における被覆管は溶融した痕跡があり偏肉を生じていること、 UO_2 -ジルカロイ反応を示唆するペレットと被覆管の一体化が認められること、露呈したペレット表面は比較的滑らかで初期仕上げ面がほぼ保たれており(この意味からも分断箇所はペレット-ペレット境界部であると言える)、放射状のクラックが見られること(以上 Fig. 3.3 d), e))、被覆管表面は溶融に起因すると思われる波打った(wavy)変形が認められることなどである。金相試験の結果も全てこれらの外観上の特徴を裏付けるもので、Fig. 3.10~3.12 に示すように被覆材の溶融(Fig. 3.10)、偏肉(Fig. 3.11)、 UO_2 -ジルカロイ反応(Fig. 3.12)が生じており、基本的には前述した実験番号216-4の結果と同じであるが、量的に見てより激しくなっていると言える。その他金相から見た特徴としては、場所によって被覆管の広い意味での損傷(換言すれば、被覆管の温度上昇)の程度が相当異なっている。例えば、Fig. 3.11 に示した写真は径方向の同一断面において互いに 180° 離れた箇所における被覆材の顕微鏡写真である。a) では被覆材の溶融や、 UO_2 -ジルカロイ反応は認められず、Prior- β 相が厚く残っている。これに対しb) では被覆材の溶融及び UO_2 -ジルカロイ反応が見られ、a) に比較して到達した最高温度にかなりの相違があるものと断定される。破損部分では溶融により被覆材肉厚は初期の厚さに対し約半分となっている。このように周方向の位置によって、被覆管の最高到達温度、したがって損傷の程度が大きく異なっているのは、多分にペレットの偏心の影響によるものと思われ、これはTable 3.2 に示した実験番号216-4の測定された被覆管温度でも $200^\circ C$ 程度の差は現われている。

また、Fig. 3.13 に示した下側分断部分の UO_2 -ジルカロイ反応は、標準燃料試験の約 $300 cal/g \cdot UO_2$ で激しく分断した燃料に認められたものと同じ、被覆管中にU又は(U, Zr)合金が不規則に析出している形態⁴⁾の反応である。標準燃料試験結果によれば、U又

は(U, Zr)合金が不規則に析出している形態⁴⁾の反応である。標準燃料試験結果によれば、U又は(U, Zr)合金が不規則に析出する形態の UO_2 -ジルカロイ反応は約 $300 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ 以上でないと認められず、また、前述のようにジルカロイが完全に溶融した場合に見られる。本試験結果のように、一本の試験燃料棒中にジルカロイ-水反応による酸化がそれ程極端なまでに進んでなく、 UO_2 -ジルカロイ反応が全く生じていない場所から、ジルカロイが完全に溶け、U又は(U, Zr)合金が被覆材の肉厚方向の到る所で析出している個所まで存在するのは、標準試験燃料ではあまり見られなく、これは、薄肉材の場合、被覆材の熱容量が小さいためペレットの偏心及び軸方向の発熱の不均一による発熱密度の相違によって被覆材の到達最高温度あるいは溶融するか否かに関しより影響を受けることによるものと思われる。

燃料の破損機構に関しては、実験番号216-4の場合と同様に被覆材の溶融が主因となった分断で、標準燃料の分断の場合と同様である。温度挙動(測定できた最高温度 $\sim 1600^\circ\text{C}$ 、膜沸騰継続時間4.5 \sim 6秒)に関しては、熱電対が途中で破損してしまったものもあるが、同程度に分断した標準燃料試験(発熱量 $280\sim 300 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$)の場合より若干低めの値を示している。また、一方では被覆材が完全に溶融している(融点 1840°C)場所があるのに対し、他方最高でも 1420°C とかなり低い値を示した場所もあり、熱電対取付位置ではフィン効果により温度が低くなることが考えられるが、これらは前述した金相の観察結果と一致する。

3.4 発熱量 $255 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験(実験番号216-2)

標準燃料の破損しきい値に近い発熱量 $255 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ で照射した結果、燃料はFig. 3.4に示すように5つに分断して破壊した。外觀上の特徴は、前述の実験番号216-3と大筋において同じであるが、その程度においてはすべてより激しい(Fig. 3.4 b)~h)。その他の特徴としては、標準燃料試験の実験番号200-7(発熱量 $295 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$)において生じたものと同様の溶融被覆材あるいはペレットの噴出を示す部分的な盛り上がり(Fig. 3.4 b), c), e), f)に示すように見られ、また分断した燃料片から被覆管の一部が剥れ落ち、同図i), j)に示したように被覆管の内、外面とも酸化しており、内面にペレット-ペレット境界部の痕跡を示すと思われる筋が存在している。破壊の状況は、標準燃料試験において分断した発熱量 $295 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ (実験番号200-7)の結果よりは激しいが、同じ5つに分断した $334 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ (実験番号111-6)の結果と比較すると、被覆管の損傷については大差がないが、 UO_2 ペレットについてはより穏やかであった。すなわち、標準燃料の場合の燃料ペレットは与えられた発熱量に応じてより高温にまで達し、到る所で溶融した痕跡が見られたが、本試験燃料の場合溶融した部分も見受けられるが、流れ出す程ではない。温度挙動については、取付けた熱電対4組すべてがパルス出力発生0.1秒後までに破損してしまったため有意なデータは得られなかったが、ほとんどすべてジルカロイの融点を越えたものと思われる。なお、熱電対破損時点での被覆管表面温度は $1200\sim 1700^\circ\text{C}$ であった。

3.5 発熱量 $449 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における実験 (実験番号 216-5)

上記の4回の実験は薄肉被覆材燃料の初期破損のしきい値及び破損機構を実験的に究明し標準燃料の場合と比較する目的で行ったものである。これに対し、本実験では内圧による破損と推察される高発熱量実験において被覆材の肉厚がどのような影響を及ぼすか調べることを目的とした。実験は標準燃料における高発熱量実験の実験番号111-21と同発熱量の $449 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ で行った。主要な計装の過渡記録を Fig. 3.14 に示す。図において時間はトランジェント棒引抜開始からの経過時間で、原子炉出力は 262 msec でピーク出力に達している。燃料破損は、カプセル内圧の発生、水面の移動開始等の時刻、及び燃料分断計測よりピーク出力 2 msec 後の 264 msec と判断される。これまでに燃料に投入された発熱量は $342 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ となる。燃料破損時の被覆材温度は、その表面で 100°C 前後でこの時点では未だそれほど上昇していない。しかし、燃料破損後も上昇し、熱電対 # 1 は 500°C まで記録し破損した。また、熱電対 # 2 及び # 3 は 285 msec で破損したが、この時点ではそれぞれ $1,040^\circ\text{C}$, $1,200^\circ\text{C}$ であった。これは燃料破損後破片となってもある時間熱電対が切れず、破片も直ぐには急冷されなかったものと思われる。一方、燃料破損に伴って燃料より上部にある水が飛上るが、その移動を差動トランスによって測定した結果も Fig. 3.14 に示してある。図において1サイクルは 12 mm の移動を表し、水塊は約 25 cm の自由空間を移動しカプセルの蓋にまで到達している。その際の水塊の最大速度は約 6.2 m/sec である。また、燃料破損に伴ないカプセル内圧が検出され、その大きさは約 40 kg/cm^2 である。図からは圧力パルスの半値幅は読み取れないが、拡大した結果、約 0.07 msec と極めて狭く、鋭い圧力パルスとなっている。図では、その後にも幾つかの圧力パルスが認められるが、これらの圧力パルスの発生原因は最初のもは内圧破損した燃料棒からのガスの放出により、その後のものは高温の燃料または被覆材が水と接触し、水を急速に加熱させるために起る蒸発爆発によるものと推定される。

実験後の燃料は、Fig. 3.5 に示したように試験燃料上下の非発熱部を除いて微粒子化した。微粒子化した破片の形状及び大きさは同図に拡大した写真を示したように大きなもので 10 mm 前後でこれらは溶岩のような状態であり、小さなものは数 mm から 1 mm 以下で種々の形をしているが、完全な球状のものも多々ある。これらの破片を篩にかけて粒度分布を測定した結果を Table 3.4 及び Fig. 3.15~3.17 に、また、各粒径毎の写真を Fig. 3.18 に示す。試験前の試験燃料の重量は 164.1 g であったが、試験後微粒子化し篩にかけた量は 99.77 g 、上下の非発熱部等の破片の重量が 51.99 g で合わせて 151.76 g となり回収率は全体で 92.5% である。実験においてはカプセルの内径より僅か小さい径の網で試験燃料を囲うようにしたが、Fig. 3.5 に見られるように数ヶ所において焼き切れており、網を飛出した破片もあるものと思われる、これが回収率が 100% にならない大きな理由と思われる。また、微粒子化したものが被覆材も含めて発熱部領域にあったものとする、回収された割合は 87.2% となるが、端栓を含む非発熱部の破片にも溶融した燃料がある程度付着しているので回収率はやはり 90% を越えるものと推定される。Fig. 3.15 は破片の粒径を8段階に分け、各段階に属する破片の重量をグラフに示したものである。縦軸は重量 (g) で示してあるが、全量が 99.77 g であるので重量百分率と見ることにもできる。重量で見ると $500 \sim 1000 \mu\text{m}$ の大きさのものが一

番多く、全体の約30%を占め、この大きさのものを中心にほぼ対称に大小方向に分布している。この傾向は標準試験燃料実験等の結果とも良く一致し¹⁾、発熱量が450 cal/g·UO₂程度では重量比で見た場合500~1000 μm を有する破片がもっとも多い。しかし、燃料破損に伴う圧力発生は、水の蒸気爆発によるものと思われ、これには燃料破片表面から水への熱伝達が重要な役割を果す。したがって、各粒径毎の重量よりも破片粒子数がより重要である。この観点から各粒径に属する粒子数を求めその分布を粒子数及び百分率で示したのがFig. 3.16, 3.17である。粒子数の算出に当っては分類した各段階の平均の径を有する球を仮定して求めた。Fig. 3.16に見られるように粒子数で整理すると粒径の小さい程多く、74 μm 以下、74~125 μm, 125~250 μm では10⁵個を越えている。また、百分率に直すと74 μm 以下のものが50%以上で、250 μm 以下で90%以上を占め、発生圧力の評価上主要な破片粒子はこの範囲となる。

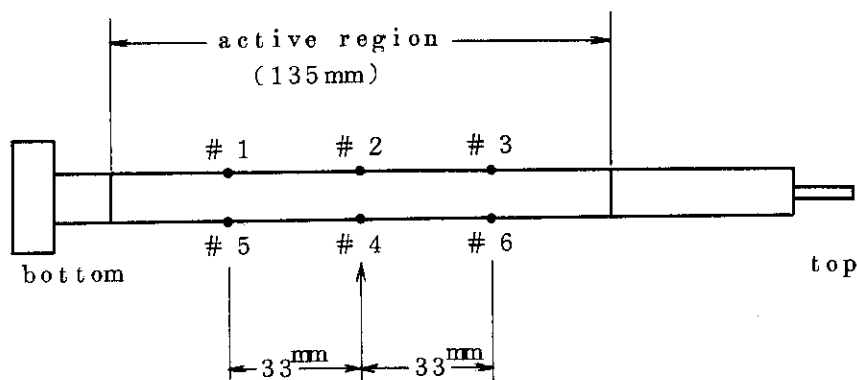
Table 3.1 Summary of Thin Wall Clad Fuel Rod Tests

Test No.	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)	Maximum Cladding Surface Temperature (°C)	Post-test Appearance	UO ₂ -Zry Reaction	Cladding Melting
216-1	200	~1,300	No failure. Uniform oxidation in a whole active region. (neither Oxide-flake nor break-away.)	none	none
216-4	220	~1,600	Failure by circumferential cracks. Local collapse, and local ballooning. (wavy cladding surface in an active region.)	partial	partial
216-3	231	>1,600 (TC failure at ~1,600°C)	Failure by fracture into three parts, and wall-through circumferential cracks.	almost whole	almost whole
216-2	255	>1,700 (TC failure at ~1,700°C)	Failure by fracture into five parts, and wall-through cracks.	almost whole	almost whole
216-5	449	>1,200 (TC failure at 1,200°C)	Almost of the fuel was fragmented into fine particles.	almost whole	almost whole

Table 3.2 Comparison of Cladding Surface Temperatures of Thin Wall Clad Fuel Rod and Standard Rod

Test No.	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)	Maximum Cladding Surface Temperature (°C)						Wall Thickness
		#1	#2	#3	#4	#5	#6	
216-1	200	1200	1250	1200	1300	1250	failed	thin
226-1	208	1200	1230	1140	1250	1250	1210	standard
226-5	207	1230	1240	1180	1170	1160	1160	standard
216-4	220	1580	1380	failed	1580	1530	1300	thin
111-16	220	failed	1250	1200	1300	failed	1300	standard

Position of Thermocouples



Center of active region

Table 3.3 Comparison of Deformation between Thin wall Clad Fuel Rod and Standard Fuel Rod after Irradiation.

Test No.	Energy Deposition (cal/g·UO ₂)	Dimension after Irradiation				Wall thickness
		Outer Diameter(min)*			Maximum Bowing(mm)**	
		#1	#2	#3		
216-1	200	1094	1086	1083	~1.0	thin
		1083	1086	1084		
226-1	208	1070	1080	1070	0.5	standard
		1075	1080	1075		
226-5	207	1075	1085	1085	~1.1	standard
		1075	1075	1075		
111-16	220	1083	1082	1080	0.67	standard
		1077	1080	1081		

* Measuring positions are in correspondence with thermocouple positions.

** Measured with a thickness gauge.

Table 3.4 Fragmented Fuel Particle Size Distribution Measured
by Sieve for the Fuel Tested in Test No. 216-5

Particle size(μm)	Weight(g)	Fraction of weight(%)	Estimated average weight of a particle(g)	Number of particles	Fraction of particle number(%)
>4000	17.37	17.41	1.1773	148	0.00
2000~4000	7.55	7.57	0.1472	51.3	0.00
1000~2000	14.59	14.62	0.0184	793	0.068
500~1000	31.42	31.49	2.2995×10^{-3}	1.37×10^4	1.16
250~500	19.99	20.07	2.874×10^{-4}	6.95×10^4	5.93
125~250	6.65	6.67	3.593×10^{-5}	1.85×10^5	15.8
74~125	1.66	1.66	5.369×10^{-6}	3.09×10^5	26.3
<74	0.54	0.54	9.069×10^{-7}	5.95×10^5	50.7

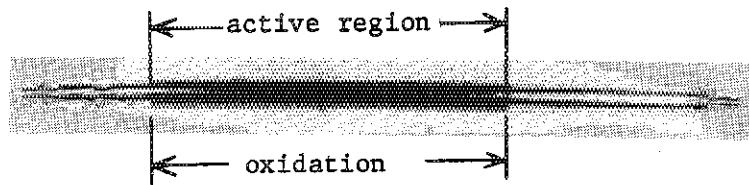


Fig.3.1 Post-test appearance of the fuel rod, irradiated at $200 \text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ in Test No.216-1

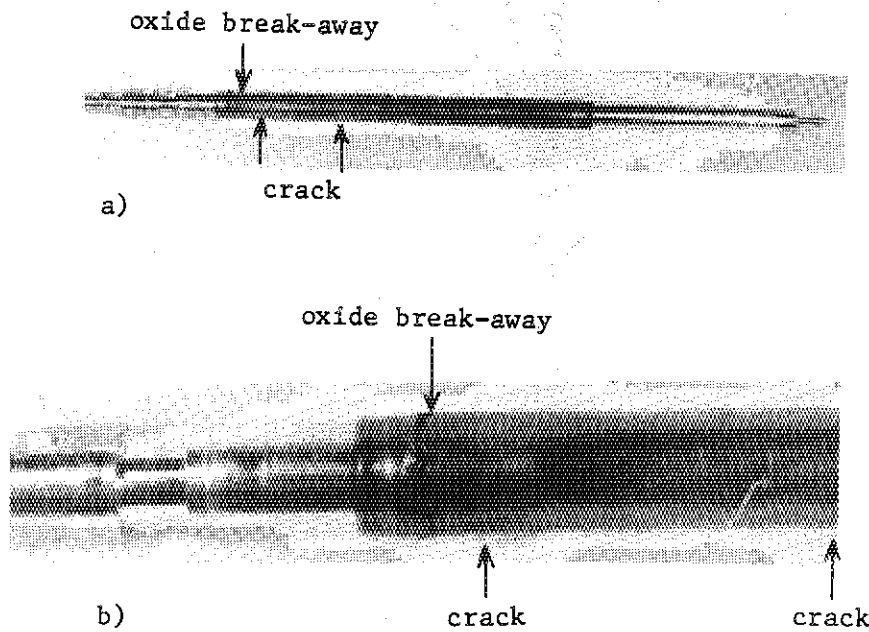


Fig.3.2 Post-test appearance of the fuel rod irradiated at $220 \text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ in Test No.216-4, showing a) an overall view, and b) a magnified picture of the cladding at the cracks and oxide break-away.

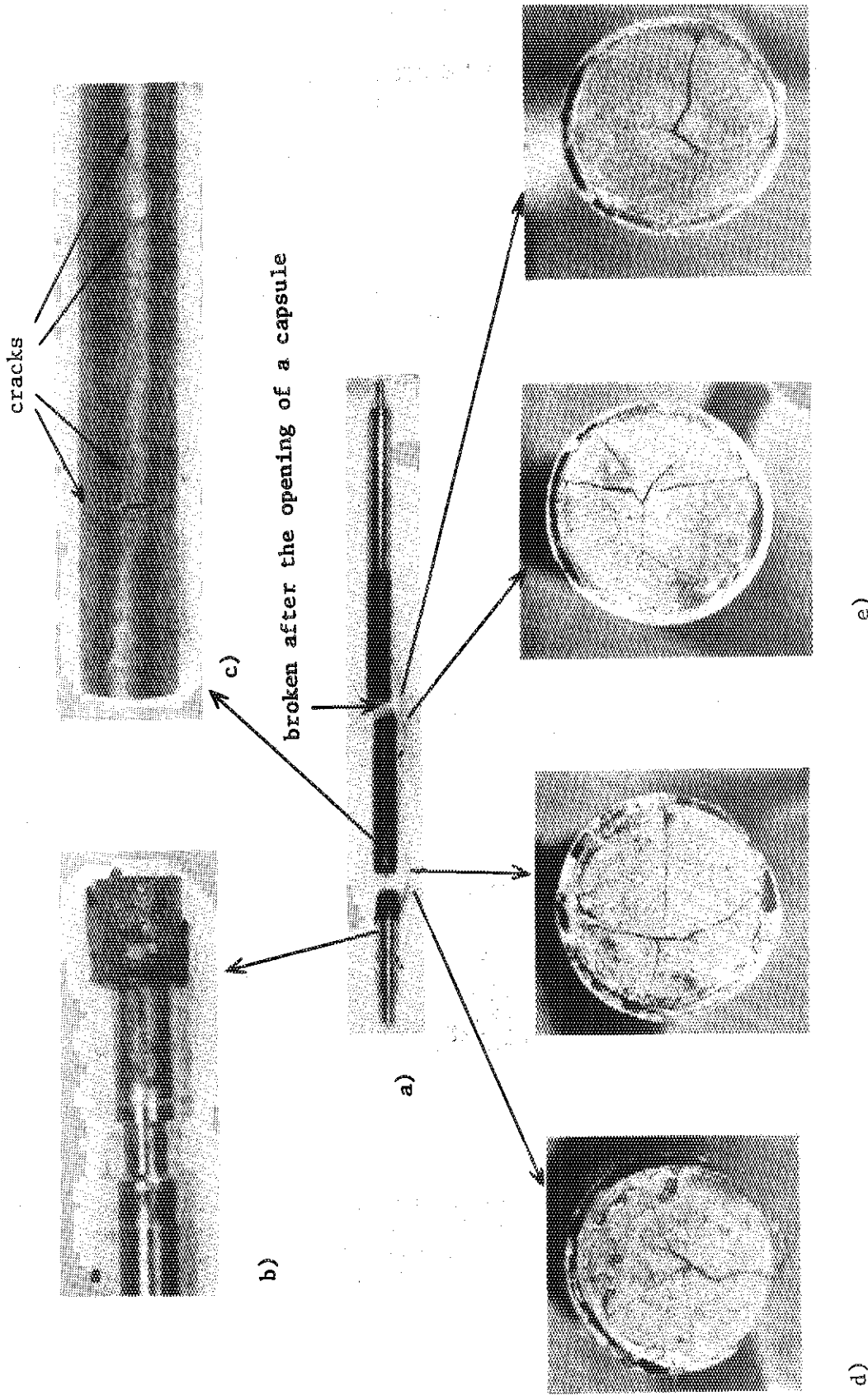


Fig. 3.3 Post-test appearance of the fuel rod irradiated at 231 cal/g.UO₂ in Test No. 216-3, showing a) an overall view, b), c) magnified pictures of the rod, and d), e) mating end views at the location of failure.

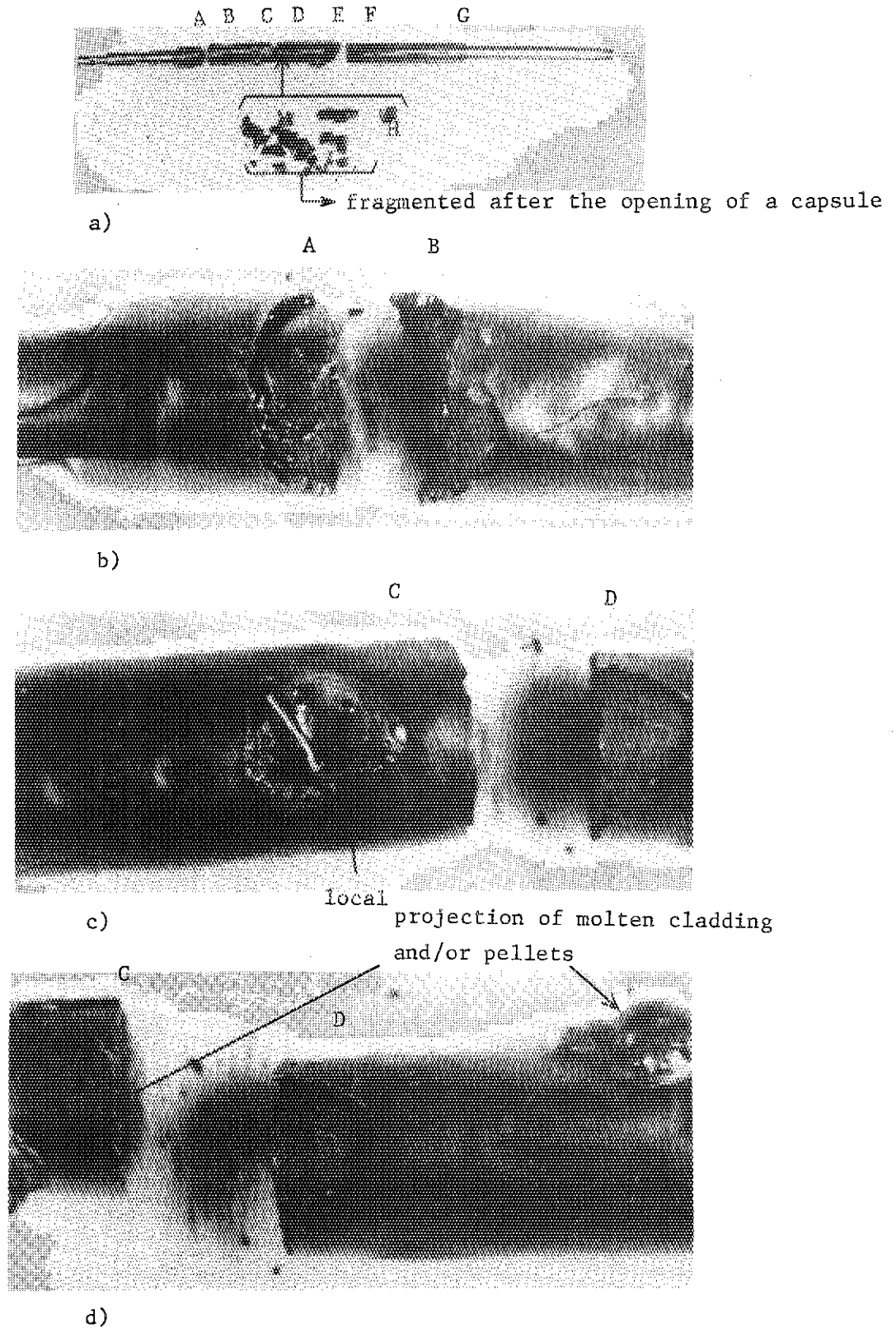
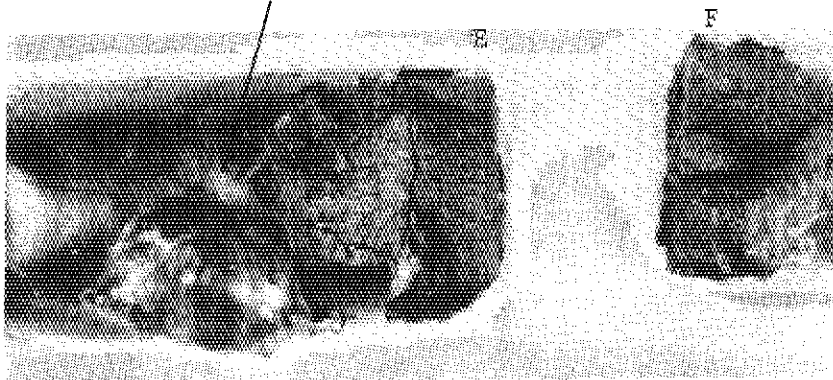


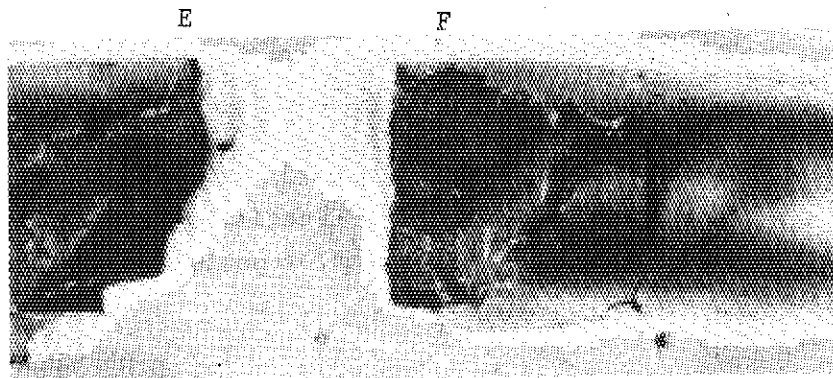
Fig.3.4 Post-test appearance of the fuel rod irradiated at 255 cal/g.UO₂ in Test No.216-2, showing a) an overall view, b)~h) enlarged views of the rod, i) j) magnified views of the fuel rod fragmented after opening the capsule, k), m) mating end views at the location of failure, and l) end views at the location of failure.



e) local projection of molten cladding and/or pellets



f)



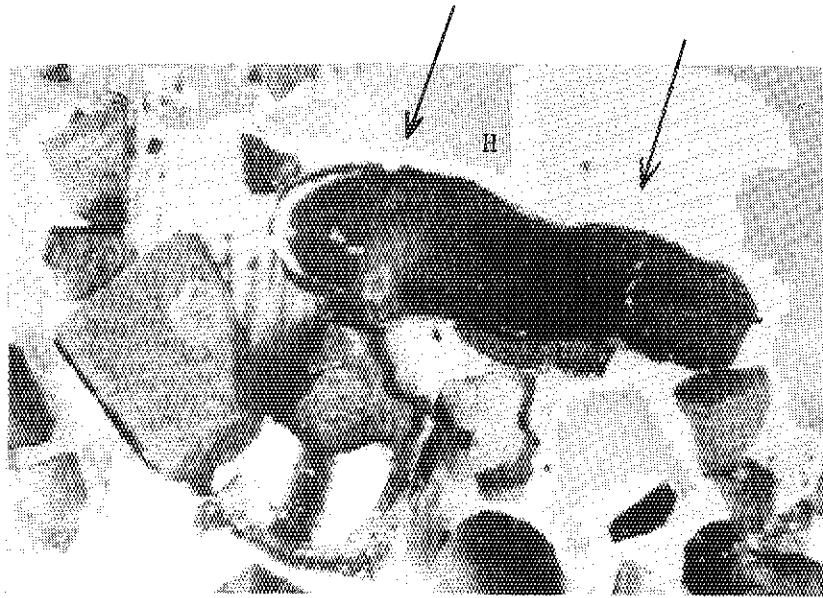
g)



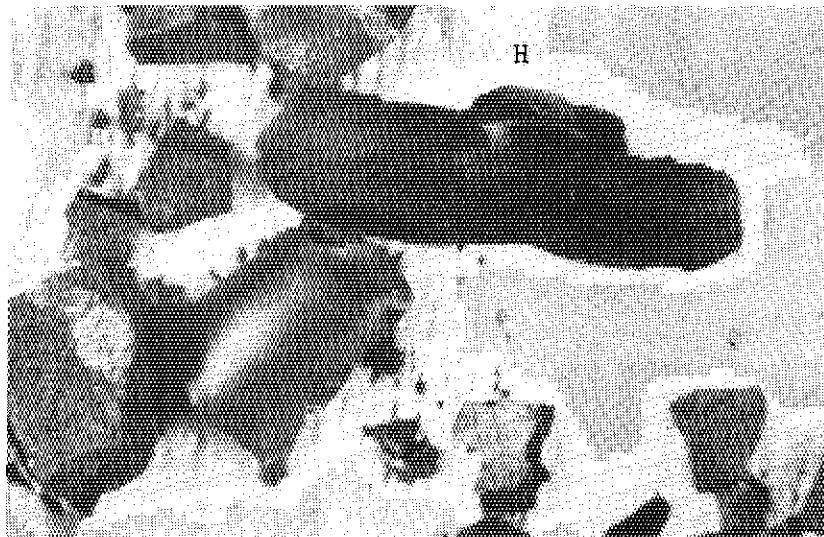
h)

Fig.3.4 (Continued)

traces of pellet-pellet boundaries

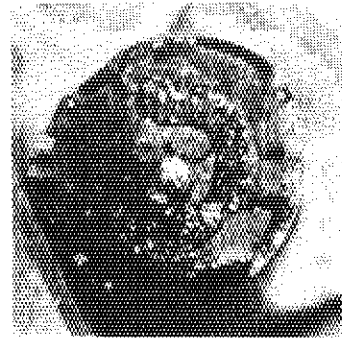
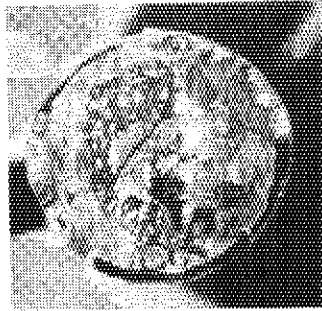


i)



j)

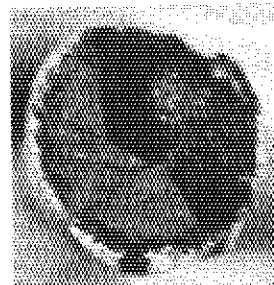
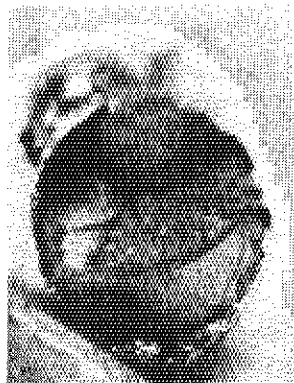
Fig.3.4 (Continued)



k)



l)



m)

Fig. 3.4 (Continued)

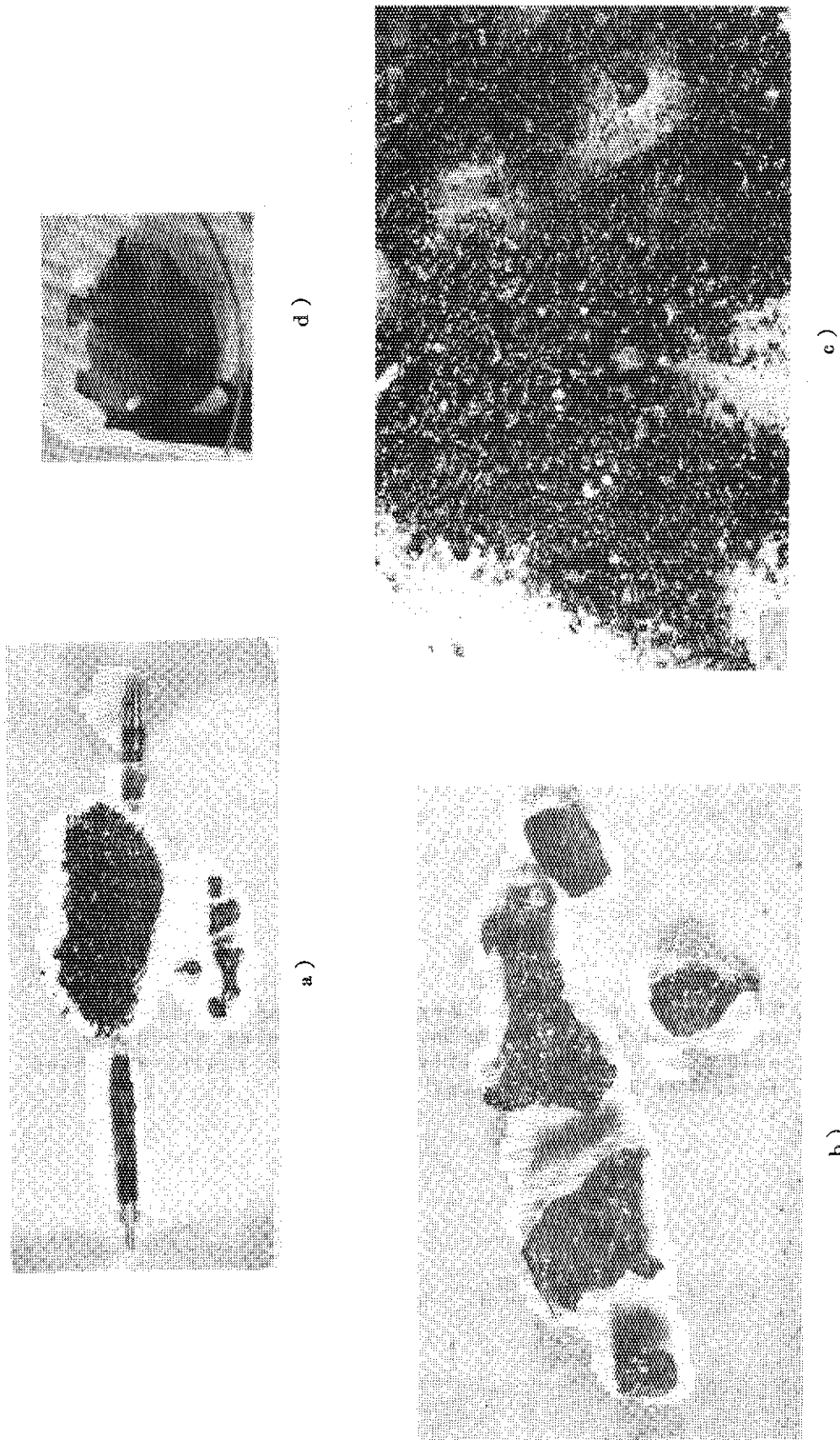


Fig. 3.5 Post-test appearance of the fuel rod irradiated at 449 cal/g.UO₂ in Test No. 216-5, showing a) an overall view, magnified pictures of b) large fragments and c) small fragments and particles, and d) scorched net which covered the fuel rod.

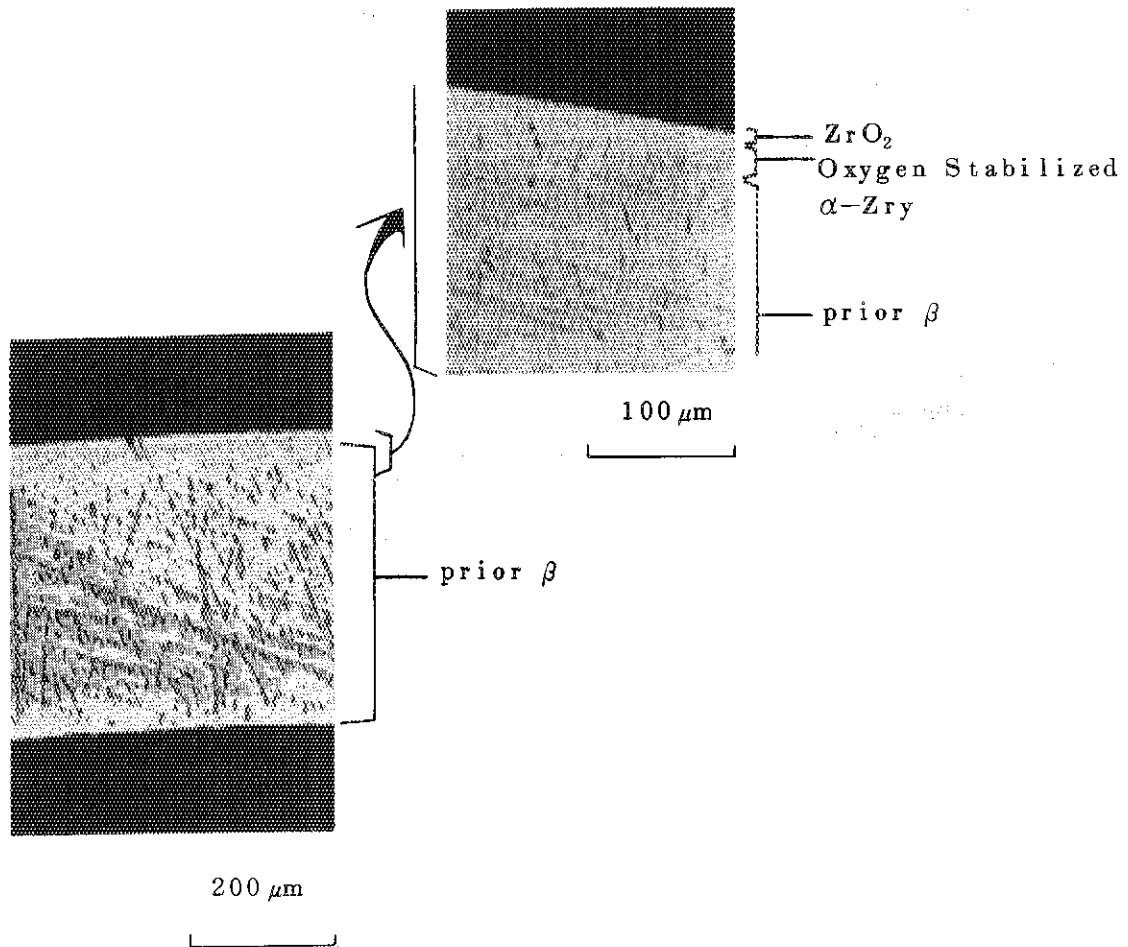


Fig. 3.6 Transverse section of Zry-4 cladding irradiated at 200 cal/g.UO₂ (Test-No. 216-1) showing zirconium oxide and oxygen-stabilized alpha-Zircaloy reaction layers by Zircaloy-water reaction.

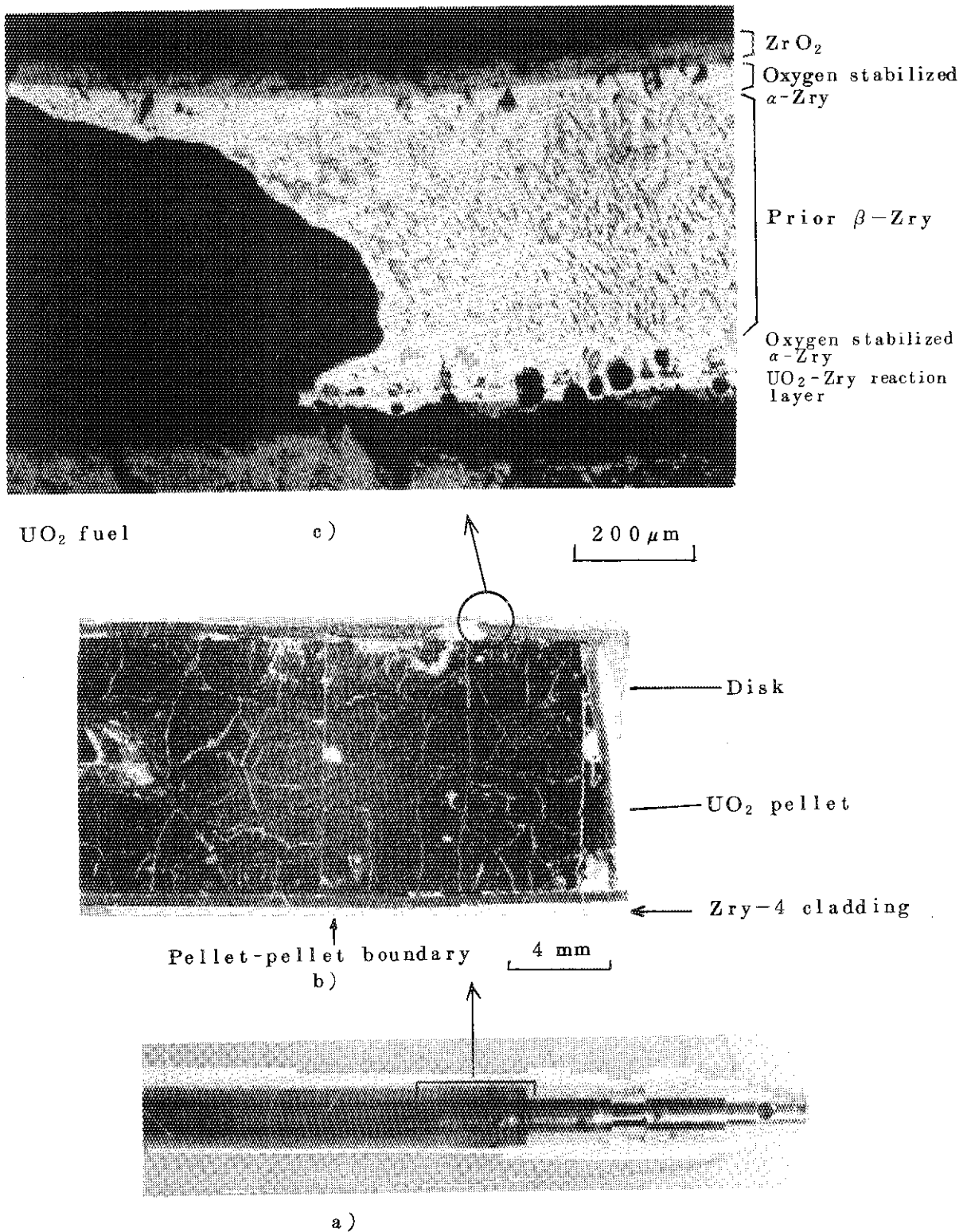


Fig. 3.7 Crack characteristics of fuel rod irradiated at 231 cal/g.UO₂ (Test No.216-4) showing a) Enlarged view of crack, b) Longitudinal section of fuel rod, and c) Magnified view of cladding.

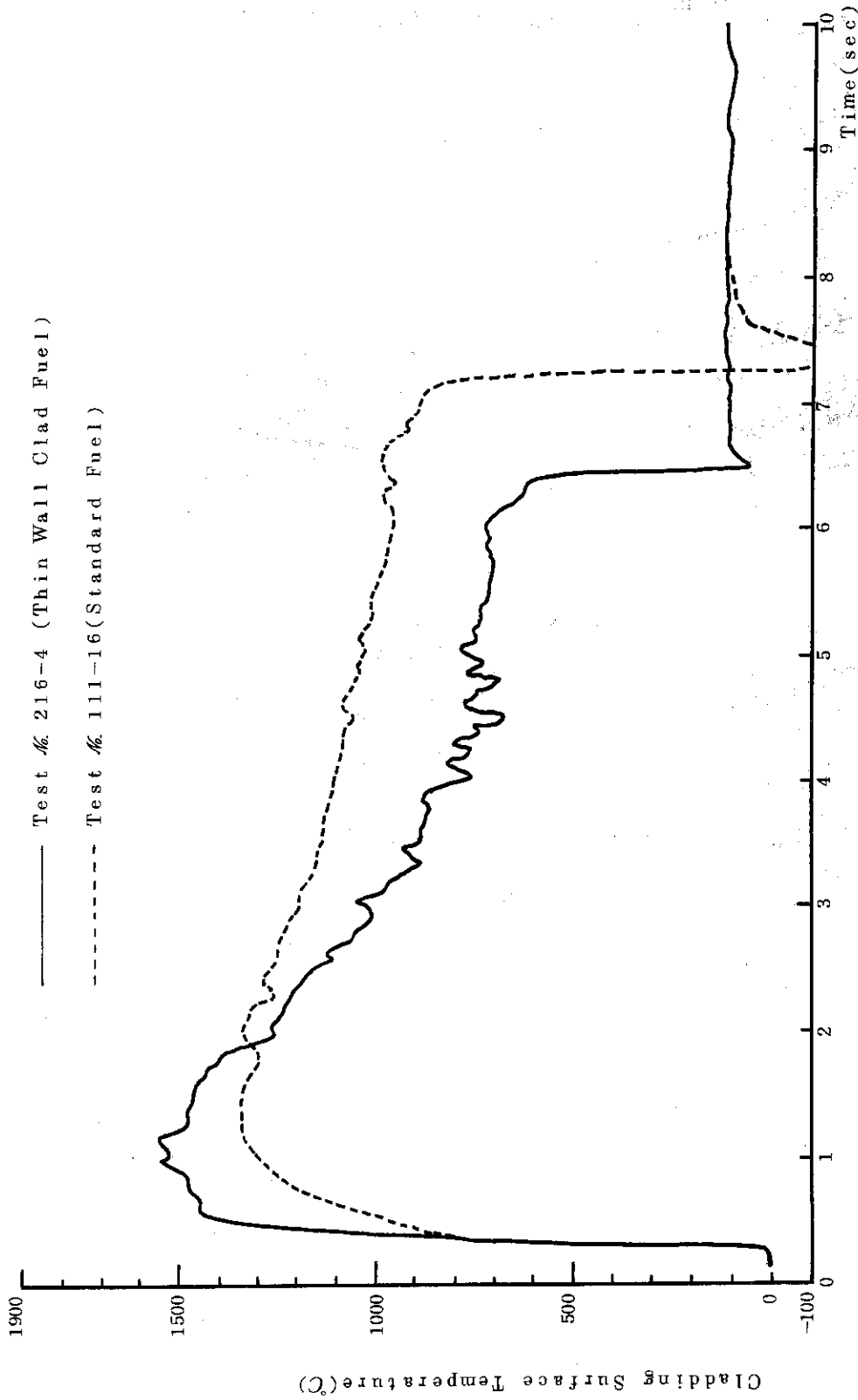


Fig. 38 Comparison of Histories of Cladding Surface Temperature at Center of Active Length in Case of Thin Wall Clad Fuel and Standard Fuel Tests. Both Fuel Rods Were Irradiated at 220 cal/g·UO₂

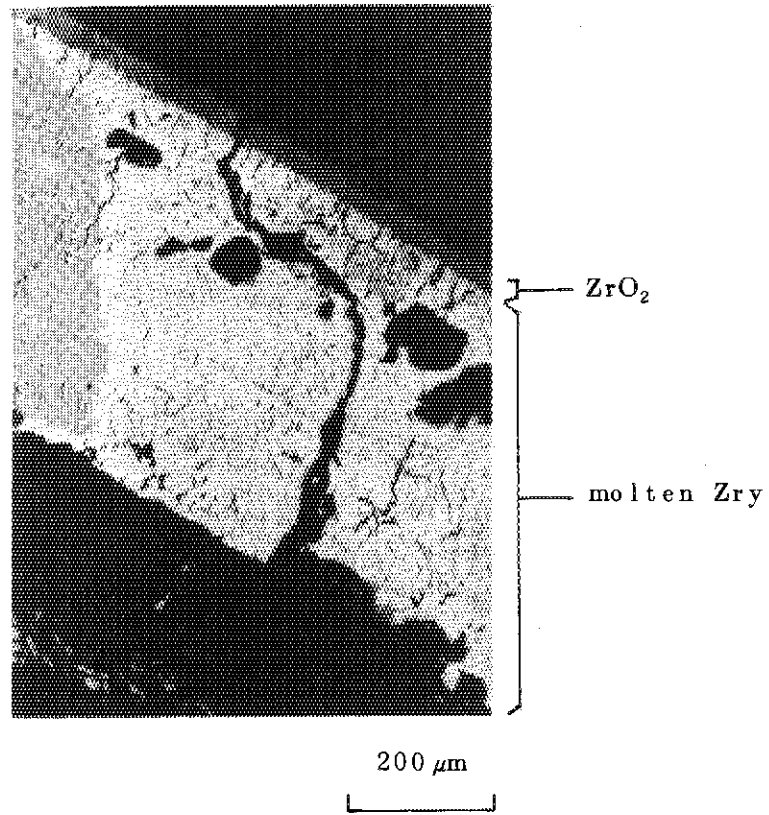


Fig.3.9 Longitudinal section showing crack appeared in the molten Zircaloy region (Test No.216-4)

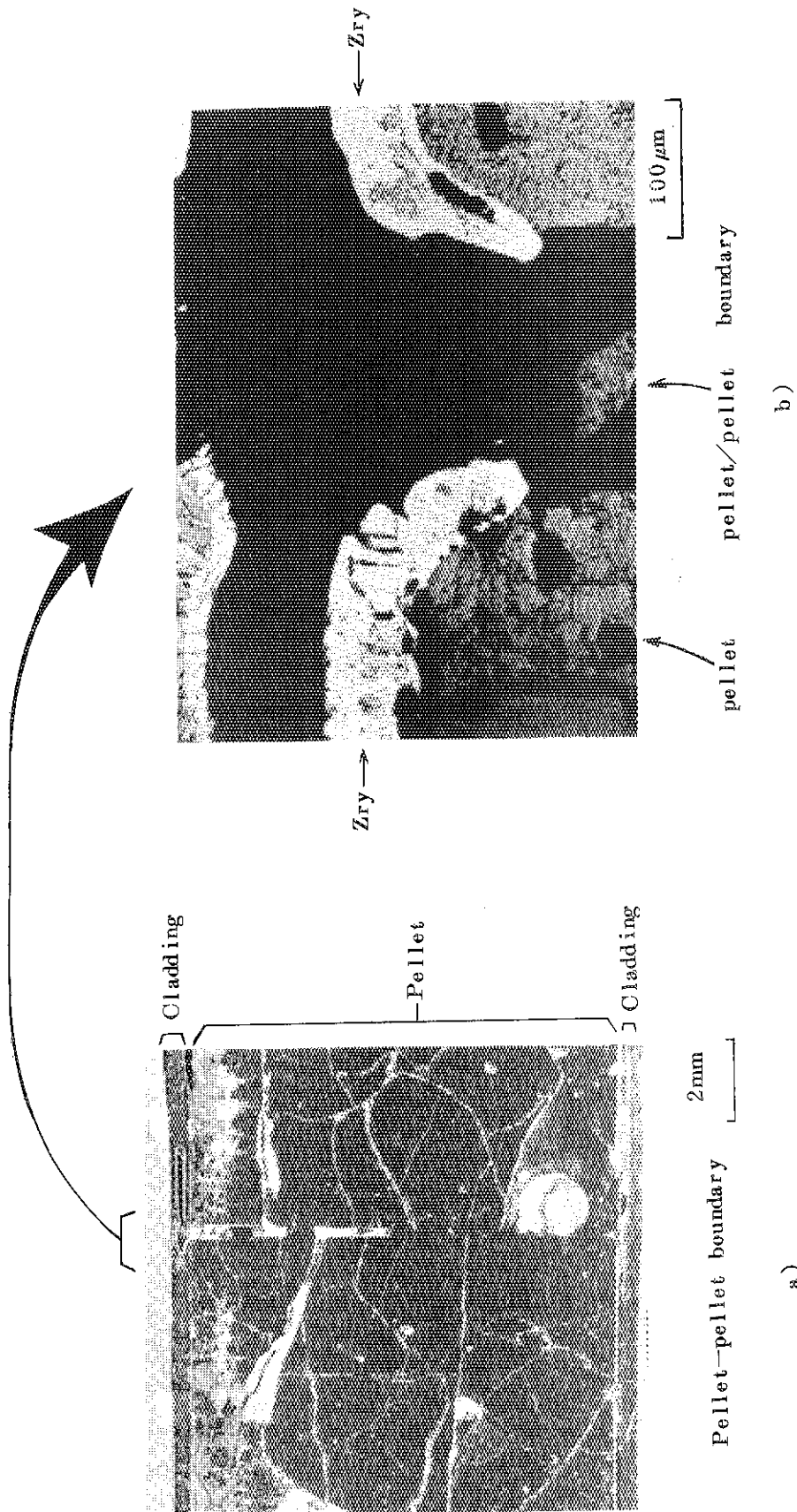


Fig. 3.10 Longitudinal section showing molten-cladding. a) Enlarged view of location of failure and b) Magnified view of molten cladding flow into a pellet-to-pellet gap (Test No. 216-3)

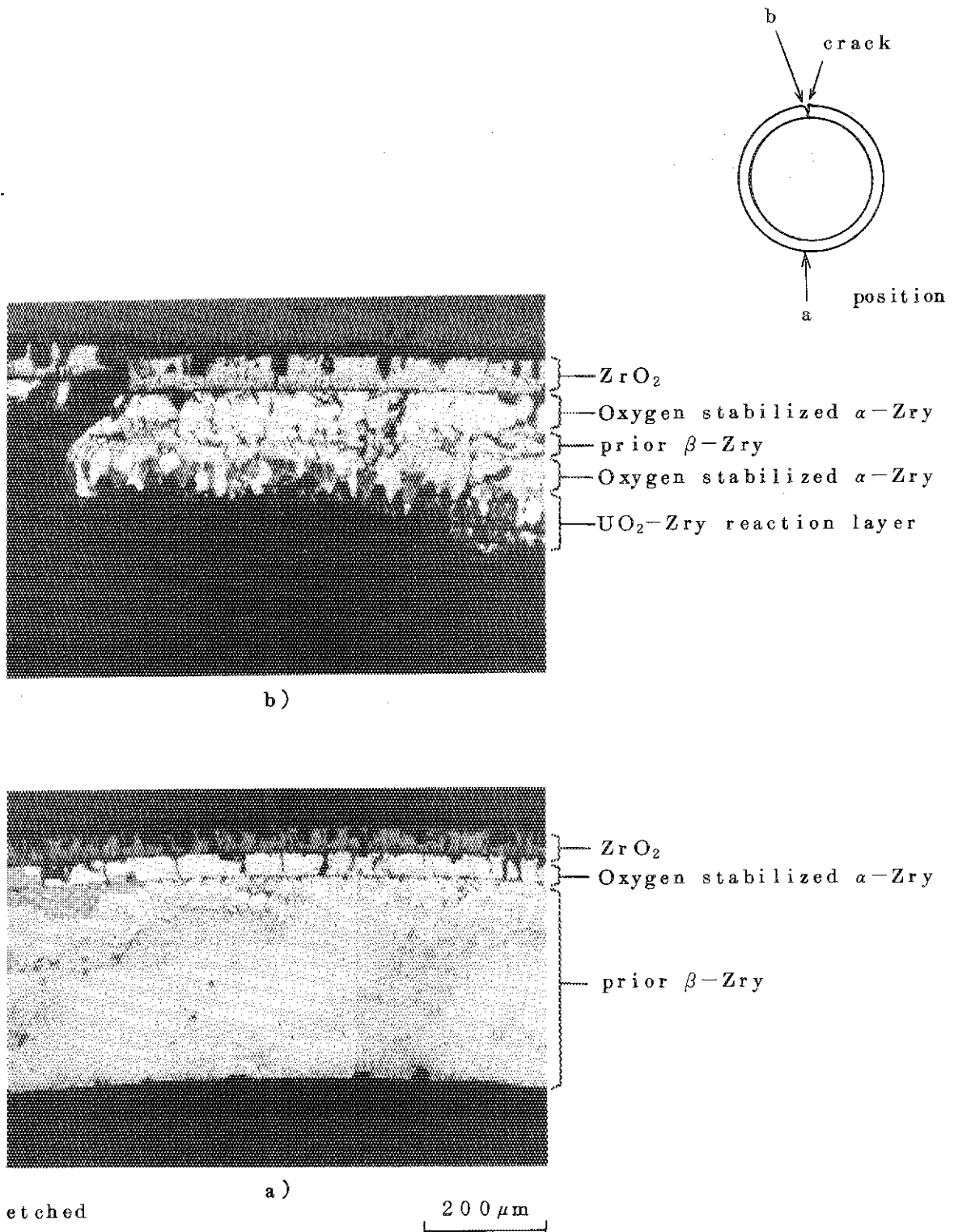


Fig.3.11 Comparison of cladding thicknesses and microstructures at the locations apart 180° each other on the same cross-section of the fuel rod (Test No.216-3)

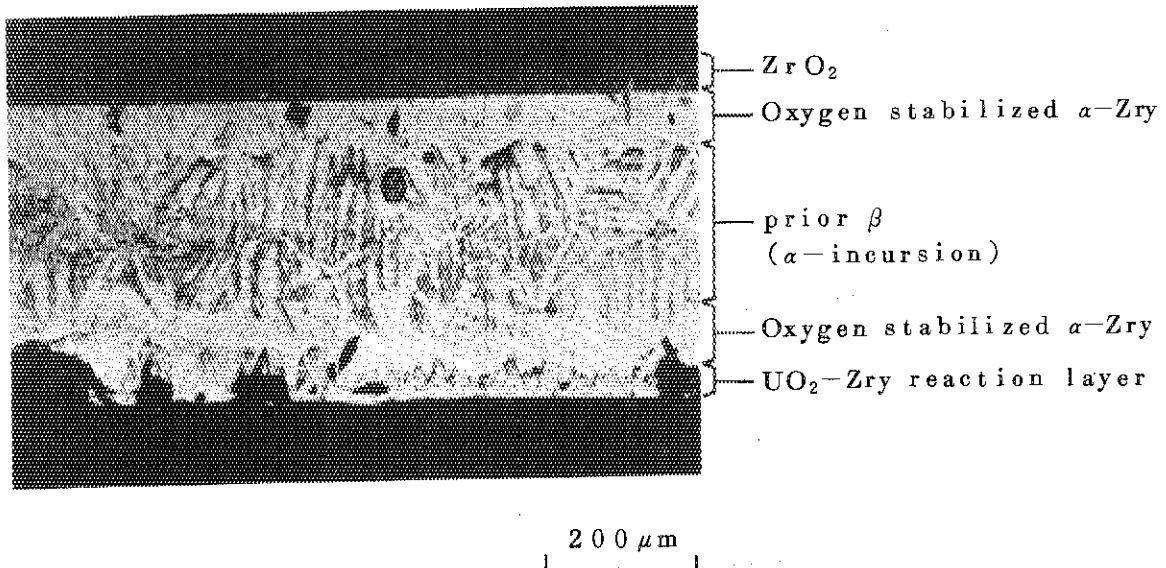


Fig.3.12 Typical cladding reacted with water at external surface and with fuel at internal surface (Test No.216-3)

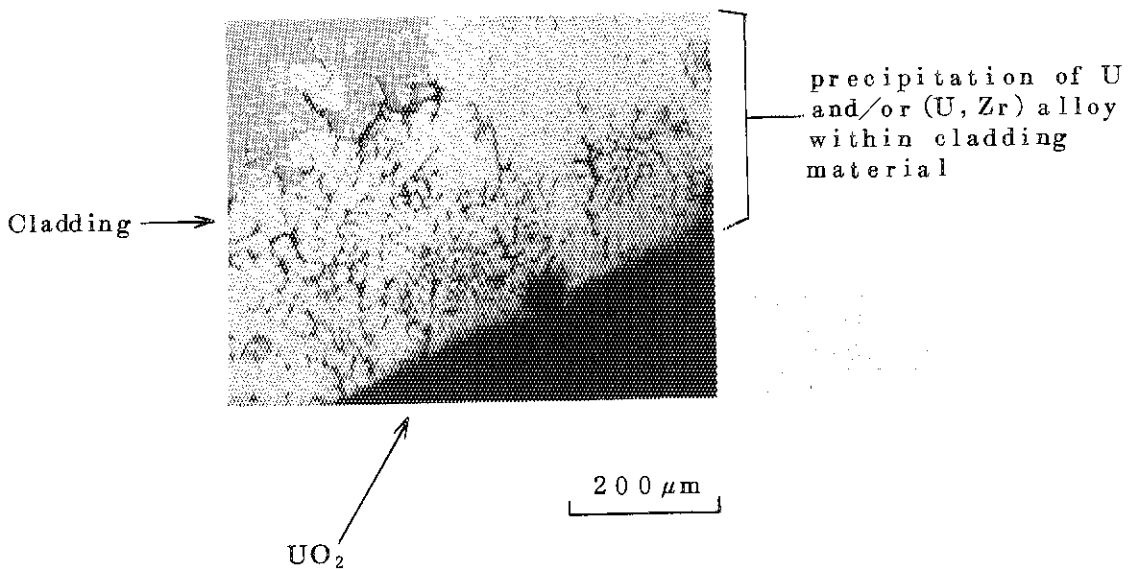


Fig.3.13 Precipitation of U and/or (U, Zr) alloy within cladding material irradiated at $231 \text{ cal/g.}UO_2$ (Test No.216-3)

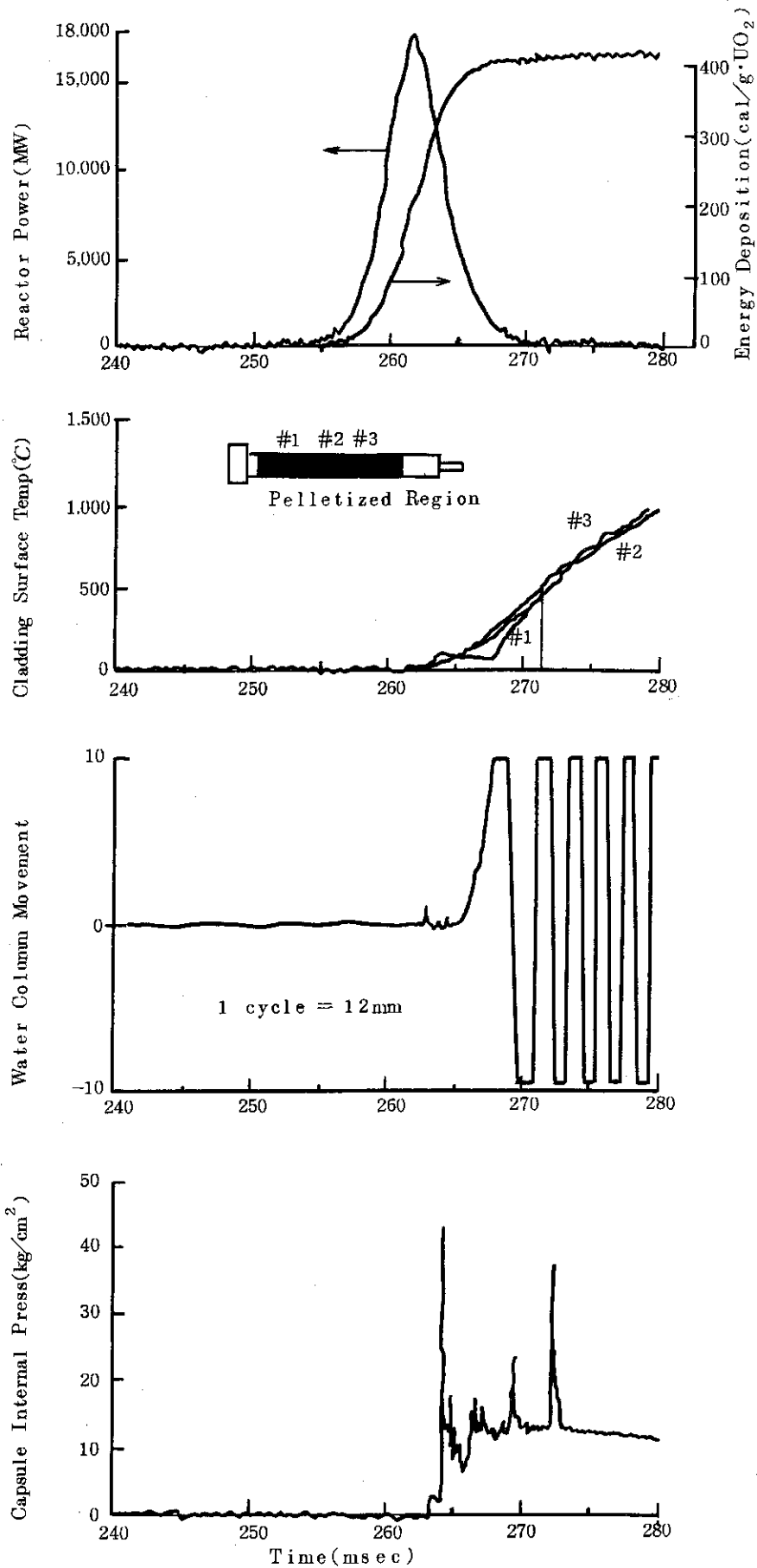


Fig. 3.14 Time Histories of Reactor Power, Cladding Surface Temperature, Water Column Movement and Capsule Internal Pressure in Test # 216-5

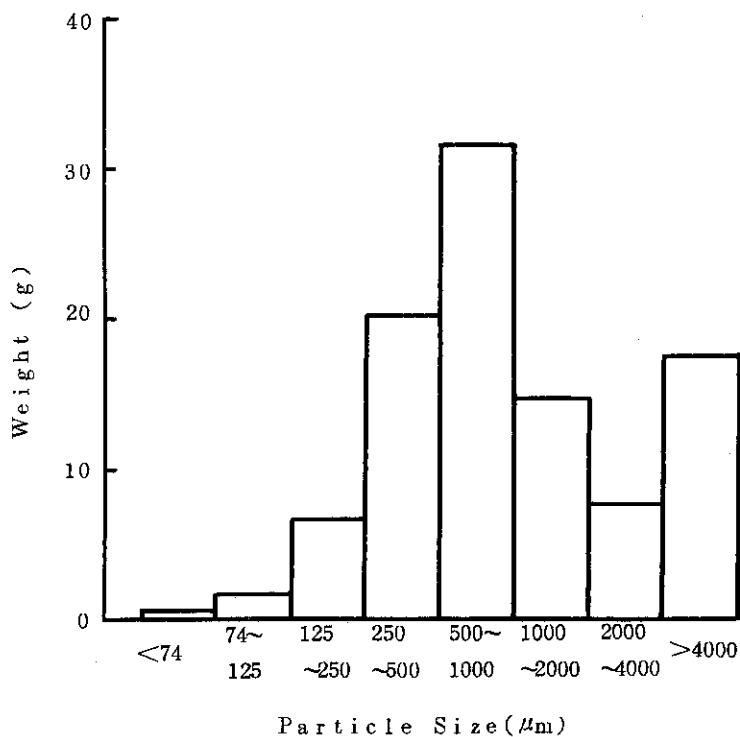


Fig. 3.15 Fragmented Fuel Particle Size Distribution in Weight for Test № 216-5

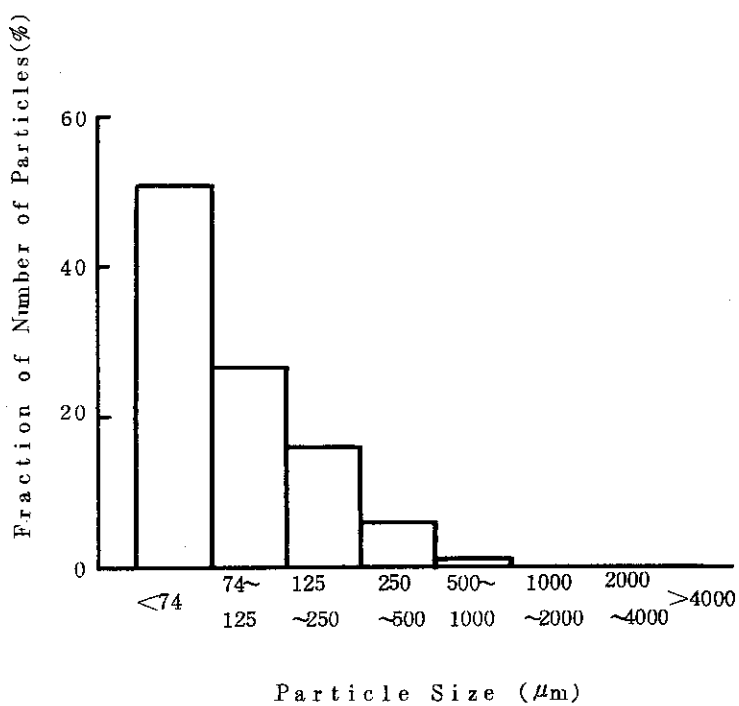


Fig. 3.17 Fractional Distribution of Fragmented Fuel Particle in Number of Particles for Test № 216-5

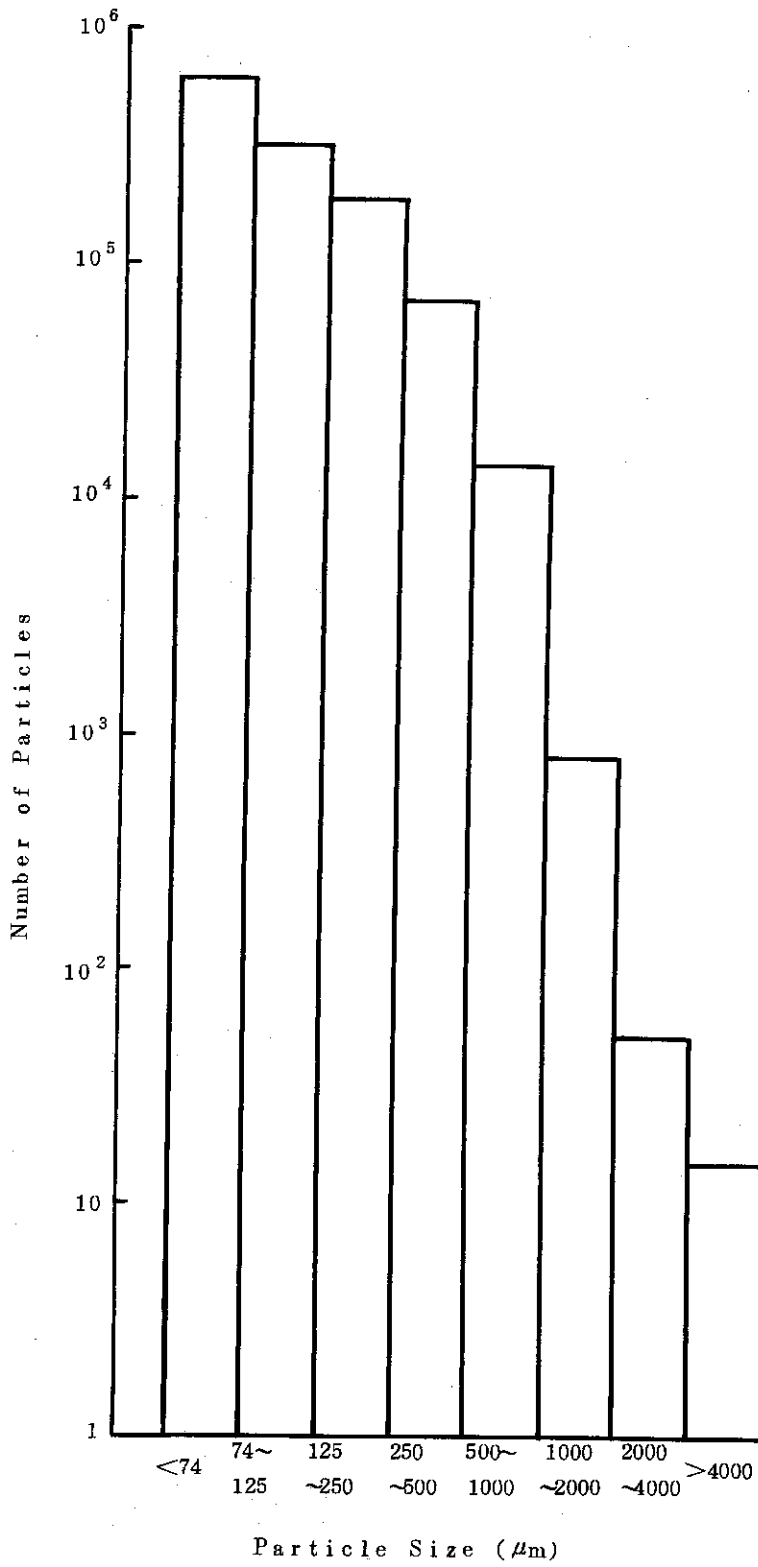


Fig. 3.16 Fragmented Fuel Particle Size Distribution in Number of Particles for Test № 216-5

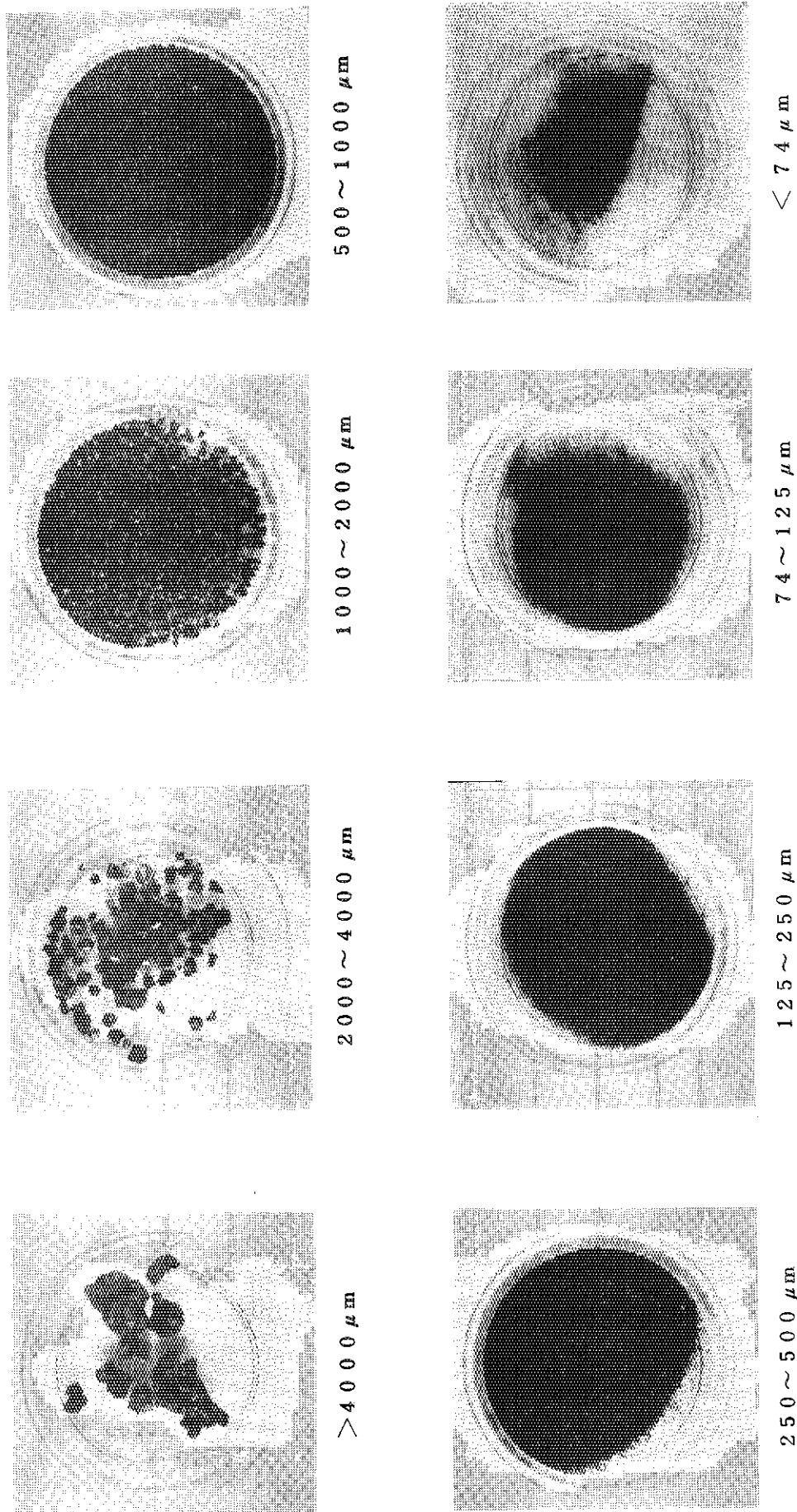


Fig. 3.18 Fuel fragments shifted after irradiation test in Test No. 216--5
The fuel rod was subjected to 449 cal/g.UO₂ and dispersed in
the capsule.

4. 考 察

4.1 破損しきい値

薄肉被覆材燃料を用い、発熱量を種々変えて5回の実験を行った結果、薄肉被覆材燃料の破損しきい値は200~220 cal/g·UO₂ の範囲にあり、220 cal/g·UO₂ の実験(実験番号216-4)における照射後の燃料では下部において被覆管がかなりひどく破損していることから、破損しきい値は220 cal/g·UO₂ より低く約210 cal/g·UO₂ 程度と言える。これは、標準肉厚被覆材燃料の破損しきい値の約260 cal/g·UO₂ に比較して50 cal/g·UO₂ 低いことになり、被覆材肉厚の燃料破損に及ぼす影響が顕著であることを示している。投入発熱量に対する薄肉被覆材燃料の照射後の外観を標準肉厚被覆材燃料の場合と対比させてFig. 4.1に示す。同図からも同一発熱量の場合、薄肉被覆材燃料の方が破損の程度が激しいことが分る。

薄肉被覆材燃料の場合に標準肉厚被覆材燃料より破損しきい値が低下する原因は二つ考えられる。その一つは次節の破損機構の項で詳細に述べるが、燃料の初期破損が標準燃料の場合と同様に被覆管の脆性破損であり、被覆管の脆化は主として高温に達した被覆材と蒸気の反応に基く被覆材の酸化によるとすると次のように考えられる。そこで、例えば被覆材の表面において同様な温度履歴を辿り形成された酸化膜厚が同じであるとすると、被覆材の脆性評価においては初期の被覆材肉厚に対して酸化されずに残ったPrior β相の厚さの比が問題となる。したがって、標準肉厚の2/3の初期肉厚を有する薄肉被覆材においては、標準肉厚被覆材よりPrior β相の厚さが薄く、かつ下式に示すように初期肉厚に対する比(Fw値)においても小さくなるので薄肉材の方が脆いと言える。

$$\frac{a-b}{a} = 1 - \frac{b}{a} > \frac{\frac{2}{3}a - b}{\frac{2}{3}a} = 1 - \frac{3}{2} \cdot \frac{b}{a}$$

ここで、

a : 標準材の肉厚

b : 酸化層の厚さ (ZrO₂+Oxygen-stabilized α)

燃料は非常に高温に達するので、被覆材の内面酸化およびUO₂-ジルカロイ反応による脆化もあるが、いずれにせよ同一温度履歴を経験した場合、薄肉材の方が脆く、したがって破損しきい値が低下することになる。

一方、もう一つの原因として、今回の試験燃料に特有の問題であるが、ペレット径の相違が考えられる。2.2節に述べたように本実験燃料用の薄肉被覆材は外径を標準材と同一にし、また、燃料ペレット-被覆材間のギャップ幅も標準燃料と同一にしたため、薄肉被覆材燃料のペレット外径は9.73mmと標準燃料ペレットの9.29mmと比べて、0.44mm大きくなっている。

このため、ペレットの断面積では9.7%大きく、平均発熱量では計算値を基に評価すると3.4%低くなる。これより線出力密度で評価すると外径の大きい薄肉被覆材燃料ペレットの方が5.7%大きく、過渡時における熱移動の影響もあるがこの線出力密度の相違が破損しきい値の相違に影響を与えていることは十分考えられる。

結局、被覆管表面の温度挙動にも見られるように薄肉被覆材燃料の場合、標準肉厚被覆材燃料と同一の評価による同一発熱量を与えた場合、線出力密度が高いことおよび被覆材が薄肉のため熱容量が小さいこと（被覆材の温度上昇時には、被覆材表面から水への熱流束より、ペレットから被覆材への熱流束の方が大きく被覆材の熱容量が温度上昇の上で問題となる）により、被覆管温度はより高温にまで達することとなる。したがって、被覆材はより酸化され、第一に述べた理由により脆化の度合も標準肉厚材よりも高く破損のしきいとなる発熱量は低下することとなる。

4.2 破損機構

薄肉被覆材燃料の破損したものの外観及び金相観察を行うと、発生したクラックが脆性クラックの徴候を示しているものの、被覆材の溶融が肉厚方向に広範囲に及んでいたり、酸化膜を残してペレット-ペレット境界に流れ込んでおり、発熱量 $220-260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ の範囲では薄肉被覆材燃料の破損機構は標準燃料 $290-340 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ の場合と同一であると言える。これまでの標準燃料試験の結果では、発熱量 $260 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ における初期破損において被覆管にクラックが生じるために必要な被覆材の脆化度は、酸化膜厚の最終肉厚に対する比率が20%以上であったが、²⁾ 本試験の場合Fig. 3.9に示したクラックの発生場所においては、酸化膜厚比は10%以下となっている。被覆管の脆化が酸化によってのみ進むと仮定して、炉外実験における酸化量と脆化の関係をみると、酸化膜厚比が10%以下の時、被覆管は延性（ORNLのHobsonら⁵⁾の定義に基けば、“total ductility”）を有することになる。^{6)~9)}

しかし、Fig. 3.9に示したクラック発生部では被覆材は一度完全に溶融してU又は(U, Zr)合金が母地のジルカロイ管中に析出している。この場合、ジルカロイ組織は、全面にわたりOxygen-stabilized α 相なので管は脆化しており、写真のような脆性クラック（この場合には粒界に沿って）が入ったものと思われる。この α 相の存在は、外面の酸化膜厚から考えて、ジルカロイ-水反応のみによるとは到底考えられず、 UO_2 -ジルカロイ反応も α 相の存在に寄与しているものと思われ、標準燃料の初期破損の場合と機構的に若干異なるところである。これに対し、Fig. 3.11a)に示したクラックでは、被覆管内面は溶融して別な個所へ流れ肉厚は初期の約半分となっている。残された層はほとんど、 ZrO_2 ・Oxygen stabilized α 層及び UO_2 -Zrの反応層でPrior- β 相はほとんどなく、酸化膜厚が最終肉厚に対する比は20%を越え、またFw値（Prior- β 相の厚さ/全肉厚）で評価しても延性を失っていることになる。その意味においては標準燃料の初期破損と機構を同一とするが、観点を変えれば、被覆材の内面溶融により肉厚が0.2mm程度になってしまったことが被覆材の強度を著しく低下させたことが破損に大きく影響し、その意味で溶融が主因であるとも言えよう。しかし、Fig. 3.11a)のようなクラックも薄肉材において見られたことは、今回実験を行わなかった

発熱量 $200\sim 220 \text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ の間においては標準燃料の場合と同様な機構で必ずしも被覆材の溶融が主因ではない破損形態が存在することは十分考えられる。薄肉被覆材の場合、前述したように熱容量が小さいため被覆材の内面の極く一部を溶融させ、かつ高温を維持して十分脆化する程水との反応により被覆材を酸化させる条件（投入発熱量）は極く限定され、今回の実験条件では標準燃料の初期破損と全く同一のものは見つからなかったのはこのためと思われる。しかし、クラック発生を伴なり脆性破損から分断による破損に至る破損機構は本質的には標準燃料と変わらず、Fig. 4.2のようにまとめられる。図中、クラック及び分断を起させる主要な原因を3つずつ挙げたが、上位に記してある因子ほど破損により強く影響を与えているものである。

4.3 高発熱量破損時の被覆管強度と応力

従来の標準試験燃料を用いた実験において、 $380 \text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ 以上の高発熱量を与えた場合燃料は粉々になって破壊し、内圧破損の形態を示している¹⁾。これは、 UO_2 燃料の溶融、蒸発あるいは UO_2 中の不純物の蒸発により燃料棒中の内圧が上昇し、一方、被覆管も温度上昇により強度が低下することにより内圧破損するものと思われる。

一般に管に内圧が作用した場合の円周方向応力は次式で表わされる。

$$\sigma_t = \frac{PD}{2t}$$

ここで、 P は内圧、 D は被覆管の内径、 t は被覆管の肉厚である。したがって、薄肉被覆材の場合は標準肉厚材に比して同じ内圧が作用した場合、円周方向の応力値は約1.5倍となり、より低い被覆材温度で破損することになる。そこで、発熱量 $450 \text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ の標準肉厚被覆材燃料実験（実験番号111-21）の場合と比較すると薄肉材の場合と同様に燃料破損時の被覆材温度は約 100°C と低く、両者に明確な相違は見られなかった。被覆材温度 100°C の場合の限界強度は約 33 kg/mm^2 であるので破損するためには標準肉厚材で内圧が 431 kg/cm^2 、薄肉材で 266 kg となる必要がある。しかし、破損時点までに燃料に投入された発熱量は約 $340 \text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ であるので、燃料の一部が蒸発しても UO_2 の蒸気圧は数 kg/cm^2 程度で到底数 100 kg/cm^2 とはなり難いように思われる。然るに燃料の破損時点はカプセル内圧の発生および水塊の移動開始により判断し、熱電対の時定数も素線のみを使用しているので極めて短く対応づけに問題はないと思われるが、より正確には燃料破損の可視装置も含めた計装の開発、信頼性の向上、複数回の実験が必要となろう。以上の理由より1回の高発熱量実験では標準肉厚材と薄肉材による相違を明確に出来なかった。

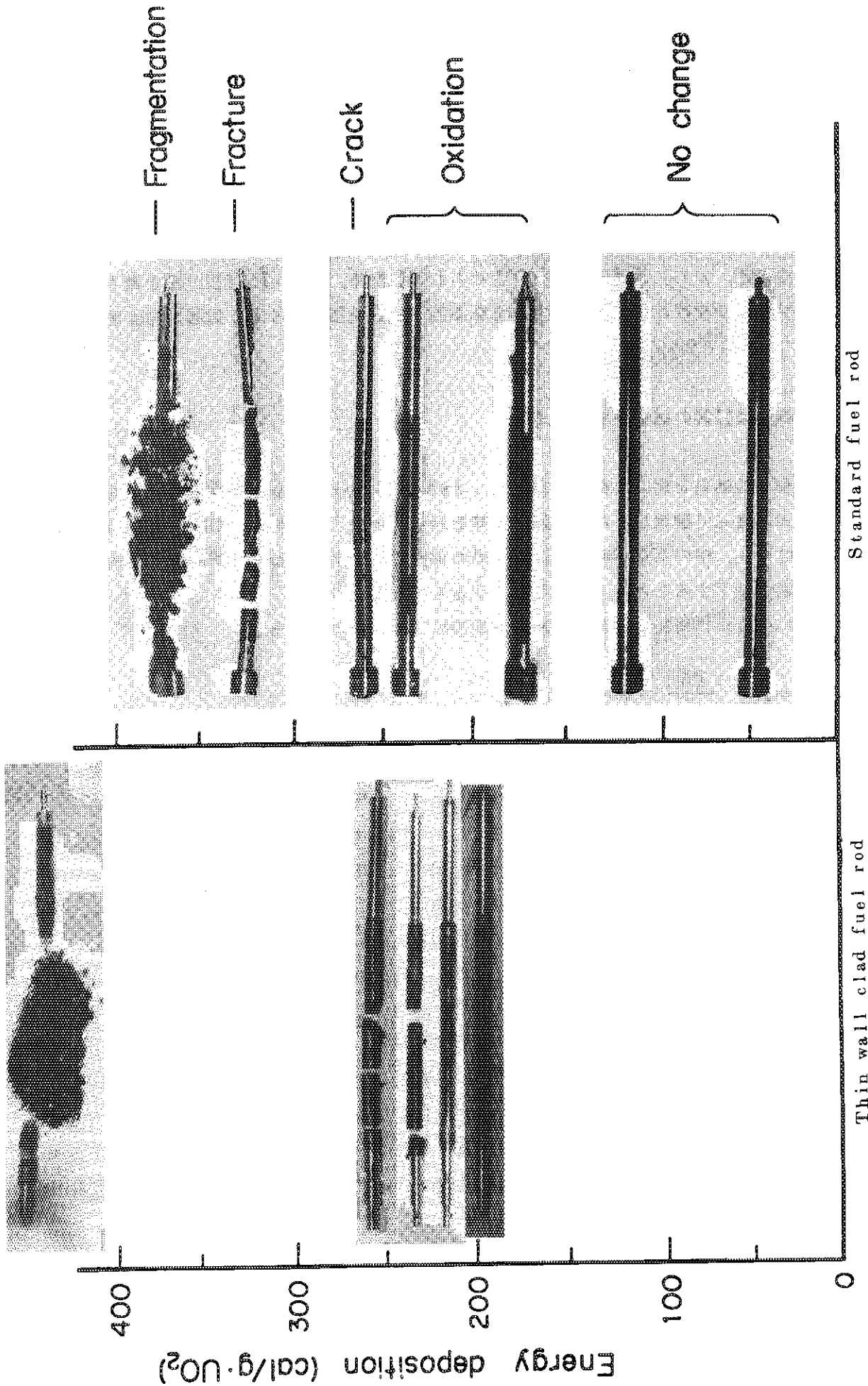
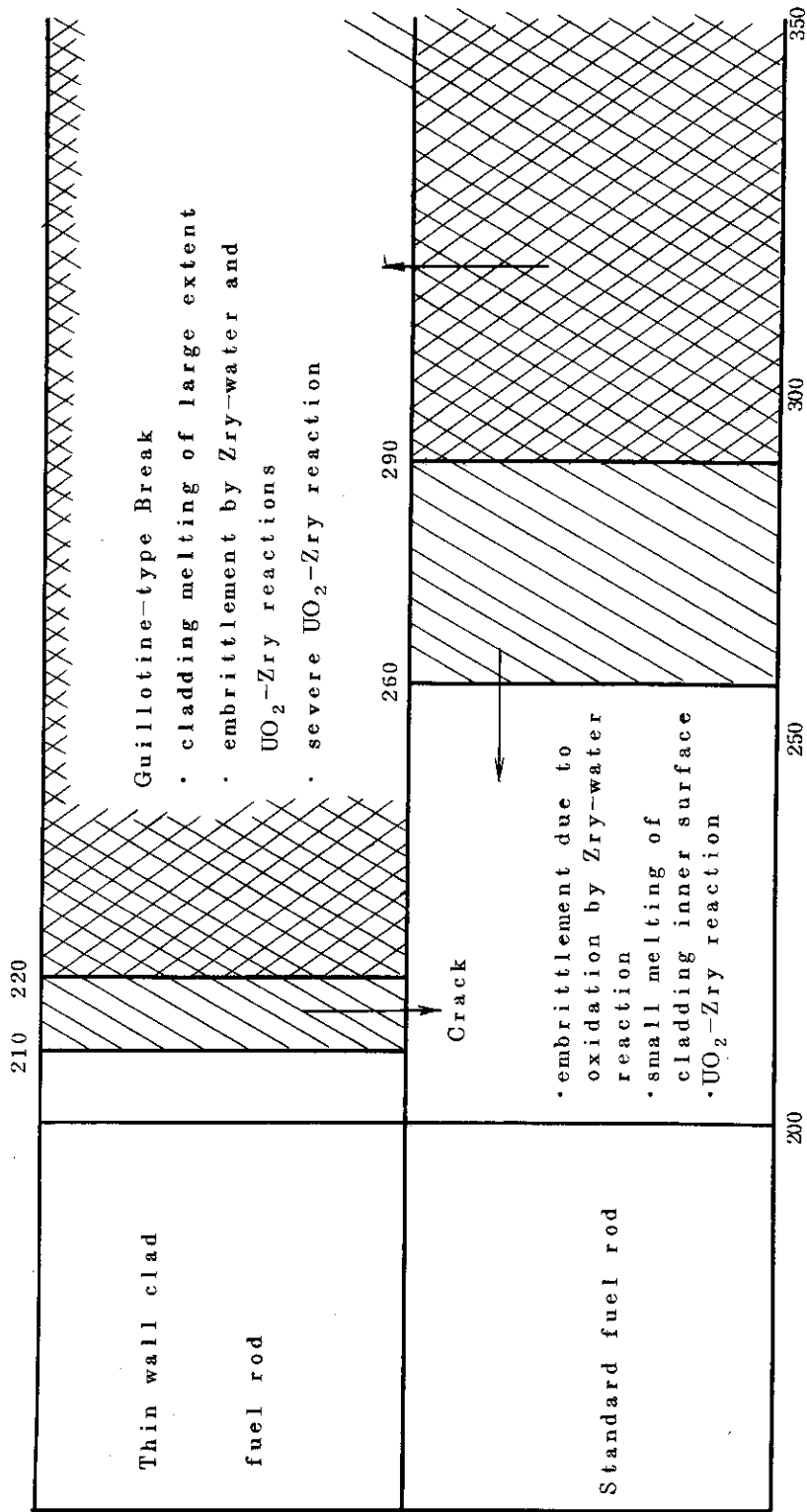


Fig. 4.1 Comparison of appearances of post-test fuel rods related with energy deposition between thin wall clad fuel rod and standard fuel rod.



Energy Deposition (cal/g·UO₂)

Fig. 4.2 Comparison of fuel failure threshold related to its mechanism between thin wall clad fuel rod and standard fuel rod.

5. 結 論

NSRR実験において、標準肉厚に対し約2/3の0.4mmの薄肉ジルカロイ-4被覆材燃料を用い、発熱量を $200\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ から $450\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ の範囲にわたって変えて実験を行った。その結果、次のような結論が得られた。

- (1) 薄肉被覆材燃料の破損しきい値は約 $210\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ で標準肉厚被覆材燃料の場合に比して約 $50\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ 低下する。
- (2) 薄肉被覆材燃料の破損機構は、標準肉厚被覆材燃料の場合と同様である。初期破損は脆性破損で被覆管は急激に加熱された UO_2 燃料からの熱移動により高温になり外面では周囲の蒸気との反応により酸化する。一方、燃料破損を生ずる程度の発熱量を燃料に与えた場合には被覆管内面は溶融し、一部では UO_2 -ジルカロイ反応が生じ被覆材の脆化度は極めて高くなりほとんど延性を失うことになる。このような状態で被覆管が急冷されるとまだ高温の状態にあるペレットの熱膨脹が被覆管の熱収縮を拘束することになり、被覆管は周方向のクラックを生じて破損する。ただし、薄肉被覆材の場合、酸化による脆化が主因で破損する発熱量の範囲は極く限られ、発熱量が $220\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ 以上では被覆材の溶融又は溶融を主因とする脆性破損となる。
- (3) 薄肉被覆材燃料の破損しきい値が標準肉厚被覆材燃料の場合より低下する原因は、同一発熱量を試験燃料に与えた場合、本試験燃料では薄肉被覆材燃料の方が UO_2 ペレットの径が大きいため線出力密度が高い上、被覆材の熱容量が小さいので被覆管温度はより高くなり酸化もより激しく、かつより容易に溶融する。一方、初期肉厚も薄いので薄肉材の方がより脆く、したがって被覆材がほとんど延性を失うしきい値、あるいは被覆管が肉厚方向にほとんど溶融するしきい値、すなわち燃料破損しきい値が低下する。
- (4) 内圧破損の形態をとる高発熱量実験では、実験回数も少なく計装も不十分なところがあり、被覆材肉厚による破損しきい値等の相違は明らかに出来なかった。

謝 辞

本実験を実施するに際し種々便宜を計って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。

5. 結 論

NSRR実験において、標準肉厚に対し約2/3の0.4mmの薄肉ジルカロイ-4被覆材燃料を用い、発熱量を $200\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ から $450\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ の範囲にわたって変えて実験を行った。その結果、次のような結論が得られた。

- (1) 薄肉被覆材燃料の破損しきい値は約 $210\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ で標準肉厚被覆材燃料の場合に比して約 $50\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ 低下する。
- (2) 薄肉被覆材燃料の破損機構は、標準肉厚被覆材燃料の場合と同様である。初期破損は脆性破損で被覆管は急激に加熱された UO_2 燃料からの熱移動により高温になり外面では周囲の蒸気との反応により酸化する。一方、燃料破損を生ずる程度の発熱量を燃料に与えた場合には被覆管内面は溶融し、一部では UO_2 -ジルカロイ反応が生じ被覆材の脆化度は極めて高くなりほとんど延性を失うことになる。このような状態で被覆管が急冷されるとまだ高温の状態にあるペレットの熱膨脹が被覆管の熱収縮を拘束することになり、被覆管は周方向のクラックを生じて破損する。ただし、薄肉被覆材の場合、酸化による脆化が主因で破損する発熱量の範囲は極く限られ、発熱量が $220\text{ cal/g}\cdot\text{UO}_2$ 以上では被覆材の溶融又は溶融を主因とする脆性破損となる。
- (3) 薄肉被覆材燃料の破損しきい値が標準肉厚被覆材燃料の場合より低下する原因は、同一発熱量を試験燃料に与えた場合、本試験燃料では薄肉被覆材燃料の方が UO_2 ペレットの径が大きいので線出力密度が高い上、被覆材の熱容量が小さいので被覆管温度はより高くなり酸化もより激しく、かつより容易に溶融する。一方、初期肉厚も薄いので薄肉材の方がより脆く、したがって被覆材がほとんど延性を失うしきい値、あるいは被覆管が肉厚方向にほとんど溶融するしきい値、すなわち燃料破損しきい値が低下する。
- (4) 内圧破損の形態をとる高発熱量実験では、実験回数も少なく計装も不十分なところがあり、被覆材肉厚による破損しきい値等の相違は明らかに出来なかった。

謝 辞

本実験を実施するに際し種々便宜を計って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実験プログレス・レポート1~7, JAERI-M 6635, 6790, 7051, 7304, 7554, 7977, 8259(1976~1979)。
- 2) 星 蔦雄, 他; 反応度事故条件下における未照射燃料の破損挙動, 日本原子力学会誌 20 651(1978)。
- 3) M. Ishikawa, S. Saito, S. Shiozawa and K. Ishijima; "A Study on Fuel Failure Mechanism for Unirradiated Fuel Rods under a Reactivity Initiated Accident Condition", Proc. of the International Colloquim on Irradiation Tests for Reactor Safety Programmes, Petten, The Netherlands, 1979.
- 4) 塩沢周策, 斎藤伸三, 柳原 敏; NSRR実験における UO_2 -ジルカロイ反応, JAERI-M 8267(1979)。
- 5) Hobson, D.O., et al; ORNL-4758(1972)。
- 6) 小松和志, 他; 日本原子力学会 昭和50年秋の分科会予稿集, G6, (1975)。
- 7) 池田清一, 他; 日本金属学会誌, 39, 712(1975)。
- 8) 古田照夫, 他; 冷却材喪失事故条件下でのジルカロイ被覆管と水蒸気反応および延性変化" JAERI-M 6601(1976)。
- 9) 鈴木元衛, 他; 冷却材喪失事故条件下でのジルカロイ被覆管と水蒸気との反応および延性変化(1200℃ 以上におけるジルカロイ被覆管と水蒸気との反応), JAERI-M 6879 (1977)。