

JAERI - M  
88-223

照射済軽水炉燃料の炉外焼鈍時の  
挙動に関する研究

1988年11月

柳澤 和章・金澤 浩之・宇野 久男・笹島 栄夫

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division  
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-  
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1988

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 株高野高速印刷

照射済軽水炉燃料の炉外焼鈍時の挙動に関する研究

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部  
柳澤 和章・金澤 浩之・宇野 久男・笹島 栄夫

(1988年10月12日受理)

燃焼度  $3.5 \text{ MWd/kgU}$  まで照射した軽水炉燃料 (LWR燃料) 及び燃焼度  $5.6 \times 10^{-6} \text{ MWd/kgU}$  まで短期照射したNSRR燃料 (NSRR燃料) を用い、 $2273 \text{ K}$  までの炉外焼鈍 (等温加熱) 実験を行い、FPガス (Xe及びKr) の放出率を測定した。実験結果は、米国ORNLの焼鈍実験 (SFD/HI-実験) の結果とも相互比較した。得られた知見は以下のとおりである。

- (1) LWR燃料におけるKrガスの放出率は最大で  $6.4\% \text{ min}^{-1}$  ( $2273 \text{ K}$ ) となった。この結果は、米国ORNL実験結果とも一致した。焼鈍によるFPガス放出率は、燃料試料の燃焼度及び焼鈍温度の増加と共に増加した。
- (2) NSRR燃料は  $1913 \text{ K}$  までの焼鈍でも、有意のFP放出が認められなかった。

Study on the Behavior of Irradiated Light Water Reactor Fuel  
During Out-of-pile Annealing

Kazuaki YANAGISAWA, Hiroyuki KANAZAWA<sup>+</sup>, Hisao UNO and  
Hideo SASAJIMA

Department of Fuel Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received October 12, 1988)

Using the pre-irradiated light water reactor fuel (burnup: 35 MWd/kgU) and the slightly irradiated NSRR fuel (burnup:  $5.6 \times 10^{-6}$  MWd/kgU), FP gas release rate up to the temperature of 2273 K was measured through out-of-pile annealing test. Results of this experiment were compared with those of ORNL annealing test (SFD/HI-test series) performed in USA.

Obtained conclusions are:

- (1) Maximum release rate of Kr gas in light water reactor fuel was 6.4%  $\text{min}^{-1}$  at temperature of 2273 K. This was in good agreement with ORNL data. FP gas release rate during annealing test was increased greatly with increasing fuel burnup and annealing temperature.
- (2) No FP was detected in NSRR slightly irradiated fuel up to the temperature of 1913 K.

Keywords: FP Release, Out-of-pile, Anneal, Light Water Reactor Fuel,  
Burnup, NSRR

---

+ Department of Reactor Fuel Examination

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験装置と実験方法 .....	2
2.1 LWR燃料 .....	2
2.2 NSRR燃料 .....	4
3. 実験結果と考察 .....	5
3.1 LWR燃料 .....	5
3.1.1 FPガス放出率 $f$ .....	5
3.1.2 ORNL炉外実験結果との比較 .....	5
3.2 NSRR燃料 .....	6
3.2.1 SUS加熱管の内面観察 .....	6
3.2.2 焼鈍試料の外観・金相写真 .....	7
3.2.3 焼鈍試料のSEM/XMA試験 .....	7
4. 結言 .....	8
謝辞 .....	9
参考文献 .....	10
附録 焼鈍試料の外観・金相写真観察結果 .....	13

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental Equipment and Experimental Method .....	2
2.1 LWR fuel .....	2
2.2 NSRR fuel .....	4
3. Experimental Result and Discussion .....	5
3.1 LWR fuel .....	5
3.1.1 FP gas release rate f .....	5
3.1.2 Comparison with ORNL out-of-pile experimental results .....	5
3.2 NSRR fuel .....	6
3.2.1 Inner surface observation of SUS heating pipe .....	6
3.2.2 Outerview and Ceramo/Metallography of annealed specimen ....	7
3.2.3 SEM/XMA analysis of annealed specimen .....	7
4. Conclusions .....	8
Acknowledgments .....	9
References .....	10
Appendix Result of Outerview and Ceramo/Metallography of Annealed Specimen .....	13

## 1. はじめに

発電用軽水型原子炉で使用されている $UO_2$ 燃料ペレットからの核分裂生成物（以下、FP）の放出は、通常運転下での燃料性能や事故条件下での環境への影響評価に大きく影響する。

通常運転下では、燃料棒内のギャップコンダクタンス、プレナム長及び被覆管のクリープ量等の評価で、FP放出量は重要なデータであろうと考えられる。

一方、事故条件下では、1) 冷却材喪失事故（LOCA）時、2) 制御棒の落下又は引き抜きによる急激な出力増加時（例えば、反応度事故等）、及び3) 照射済燃料の落下事故の様な燃料再装荷時に於ける燃料損傷時<sup>(1)</sup>等においてFP放出量は安全審査上重要なデータであろうと考えられる。安全基準の策定及び安全審査における判断基準には直接結びつかないものの、施設の安全裕度の評価等に関する技術資料を得るためのシビア・アクシデント時のソースターム評価時<sup>(2)</sup>等に於ても、FPに関するデータは重要である。

$UO_2$ 燃料ペレットから放出されるFP量を評価する具体的実験手法としては、以下は主要なものであろう。

(I) 燃料温度や中性子束を十分に制御したうえで、 $UO_2$ 試料又は燃料棒を炉内で照射しオンパワー状態下でのFP放出量を実測する手法。

(II) 照射後の燃料棒プレナム部を機械的に穿孔（パンクチュアリング）して、燃料棒内のガスギャップ中に放出されたFP放出量を実測する手法。

(III) 照射後の燃料ペレットから $UO_2$ 試料を部分採取（マイクロドリリング）して、ガス分析等から得られた残存FP量からFP放出量を実測するか、又は照射後の燃料ペレットを等温加熱即ち焼鈍（Annealing）して、放出FP量を実測したりする手法。

(I)の具体例としては、英国の中央電力庁（Central Electricity Generating Board: CEGB）がHarwellにあるDIDO炉を利用して実施した実験<sup>(3)</sup>やOECD/NEAのHBWR炉を利用して実施した実験<sup>(4-6)</sup>等がある。この手法では、長寿命安定核種のみならず短寿命の不安定核種を測定する事が可能であり、 $UO_2$ ペレットからのガス状FP（Xe及びKr）や揮発性FP（Br, I）の拡散係数等が求められる。また、これを利用して通常運転時及び事故時に於ける燃料からのFP放出量を推定する計算コード<sup>(7-9)</sup>の検証用データベースが構築されている。

(II)は、世界各国の照射後試験（PIE）施設に於いて幅広く用いられている手法であり、主に長寿命安定核種のうちの希ガス（Xe, Kr）の放出量を求めるのに用いられている<sup>(10-11)</sup>。これは、特に、通常運転時に於ける燃料棒の健全性を評価するための計算コード<sup>(12)</sup>の検証用データベースの構築に役立っている。

(III)は、比較的小型の試料の利用が可能であること、また炉外で実施できることもあって、現在までに世界各国で数多く利用されている。このうち、 $UO_2$ 燃料中に残存しているFPをマイクロドリリングによって実測する手法は、具体的にはデンマークのリソ研究所等で数多くの実測データが得られている<sup>(13)</sup>。この手法の特徴は、燃料ペレットの半径方向に分布する長寿命安定FP核種（Xe, Kr, Cs等）を比較的精度良く測定できることにある。

一方、炉内で照射した燃料ペレット又は燃料棒を炉外加熱実験装置を用いて等温加熱（以下、焼鈍

：Annealing）し、燃料から放出されるFPガスの挙動を研究する実験も、冷却材喪失事故（LOCA）、反応度事故（RIA）及びシビア・アクシデントといった各種事故条件下でのFPソースタームの評価用に幅広く応用されている<sup>(14-25)</sup>。

この実験研究の成果の概要をまとめると、Table 1 のようになる。表から分るように、1981年～1987年に渡って、米国、英国及び西独で極めて精力的に照射燃料の焼鈍実験が実施され、特に希ガスとテルル（Te）の放出挙動が燃焼度40 MWd/kg Uの範囲までで明らかにされている。この世界の動きに対応して原研でも、照射済燃料の炉外焼鈍実験が石渡らによって実施されている<sup>(26)</sup>。即ちNSRR及びJMTRで最大 $4.6 \times 10^{-4}$  %まで照射したUO<sub>2</sub>燃料ペレットを用い、2300 Kまでの焼鈍温度範囲におけるCs, Ba, Ru及びCeの放出挙動が明らかにされた。

上記実験に引き続き、筆者らはNSRR短期照射燃料ペレット（以下、NSRR燃料）及び燃焼度35 MWd/kg Uまで照射したLWR燃料ペレット（以下、LWR燃料）を用い、炉外焼鈍実験を行った。

燃焼度が35 MWd/kg Uを超える燃料試料の焼鈍実験は、Table 1に示すORN Lの実験HI-5（燃焼度38 MWd/kg U）及びHI-6（燃焼度40 MWd/kg U）があるが、これらの実験は加熱速度が比較的ゆるやか（2K/sに対して7K/s程度）で、保持時間が長い（20分に対して90分）といった様な特徴がある。

一方、NSRR燃料は、極端に燃焼度が低い燃料（ $5.6 \times 10^{-6}$  MWd/kg U）である。

本報は、原研で行われた最近の焼鈍実験の結果について報告するとともに、米国ORN L実験結果との比較も行った。

## 2. 実験装置と実験方法

### 2.1 LWR燃料

LWR燃料試料からのFP放出研究に用いた実験装置の概略図<sup>(27,28)</sup>をFig. 1に示す。LWR燃料試料はZrO<sub>2</sub>製のるつぼ中に装填した。続いて断熱効果を増すために準備したカーボン断熱材とともに、セル内にある高周波加熱炉（30 kW, 25 kHz）中に装填した。この実験では、希ガス性FP（以下FPガス）の焼鈍温度に依存した放出挙動に研究の主眼を置いた。このため、同時に発生が予測された揮発性のヨウ素等は、加熱炉出口側に取り付けられたヨウ素トラップ装置で除去した。

負圧条件下で、LWR燃料試料から放出され、ヨウ素トラップを通過したFPガスは、一定時間一定量だけ貯蔵タンクに蓄積したのち、タンク出口側に設定した質量分析計（四重極質量分析計、amu：1～400の範囲）により、定量及び定性分析を行った<sup>(29)</sup>。その後、捕集FPガスはロータリーポンプを用いて、再びセル内に排気した。Table 2に示すように、実験に供した照射済UO<sub>2</sub>燃料試料<sup>(30)</sup>は、PWR型燃料棒（平均燃焼度35 MWd/kg U）であり、3.6 m長の長手方向中央位置付近より切断した。同燃料棒の長手方向ガンマスキニングの結果によれば、切断位置の長手方向ピーキング係数は1.0であった。切断後被覆管を取り除き、UO<sub>2</sub>ペレットのみ各2.5 gを焼鈍実験に供試した。



：Annealing）し、燃料から放出されるFPガスの挙動を研究する実験も、冷却材喪失事故（LOCA）、反応度事故（RIA）及びシビア・アクシデントといった各種事故条件下でのFPソースタームの評価用に幅広く応用されている<sup>(14-25)</sup>。

この実験研究の成果の概要をまとめると、Table 1のようになる。表から分るように、1981年～1987年に渡って、米国、英国及び西独で極めて精力的に照射燃料の焼鈍実験が実施され、特に希ガスとテルル（Te）の放出挙動が燃焼度40 MWd/kg Uの範囲までで明らかにされている。この世界の動きに対応して原研でも、照射済燃料の炉外焼鈍実験が石渡らによって実施されている<sup>(26)</sup>。即ちNSRR及びJMTRで最大 $4.6 \times 10^{-4}$  %まで照射したUO<sub>2</sub>燃料ペレットを用い、2300 Kまでの焼鈍温度範囲におけるCs, Ba, Ru及びCeの放出挙動が明らかにされた。

上記実験に引き続き、筆者らはNSRR短期照射燃料ペレット（以下、NSRR燃料）及び燃焼度35 MWd/kg Uまで照射したLWR燃料ペレット（以下、LWR燃料）を用い、炉外焼鈍実験を行った。

燃焼度が35 MWd/kg Uを超える燃料試料の焼鈍実験は、Table 1に示すORN Lの実験HI-5（燃焼度38 MWd/kg U）及びHI-6（燃焼度40 MWd/kg U）があるが、これらの実験は加熱速度が比較的ゆるやか（2K/sに対して7K/s程度）で、保持時間が長い（20分に対して90分）といった様な特徴がある。

一方、NSRR燃料は、極端に燃焼度が低い燃料（ $5.6 \times 10^{-6}$  MWd/kg U）である。

本報は、原研で行われた最近の焼鈍実験の結果について報告するとともに、米国ORN L実験結果との比較も行った。

## 2. 実験装置と実験方法

### 2.1 LWR燃料

LWR燃料試料からのFP放出研究に用いた実験装置の概略図<sup>(27,28)</sup>をFig. 1に示す。LWR燃料試料はZrO<sub>2</sub>製のるつぼ中に装填した。続いて断熱効果を増すために準備したカーボン断熱材とともに、セル内にある高周波加熱炉（30 kW, 25 kHz）中に装填した。この実験では、希ガス性FP（以下FPガス）の焼鈍温度に依存した放出挙動に研究の主眼を置いた。このため、同時に発生が予測された揮発性のヨウ素等は、加熱炉出口側に取り付けられたヨウ素トラップ装置で除去した。

負圧条件下で、LWR燃料試料から放出され、ヨウ素トラップを通過したFPガスは、一定時間一定量だけ貯蔵タンクに蓄積したのち、タンク出口側に設定した質量分析計（四重極質量分析計、amu：1～400の範囲）により、定量及び定性分析を行った<sup>(29)</sup>。その後、捕集FPガスはロータリーポンプを用いて、再びセル内に排気した。Table 2に示すように、実験に供した照射済UO<sub>2</sub>燃料試料<sup>(30)</sup>は、PWR型燃料棒（平均燃焼度35 MWd/kg U）であり、3.6 m長の長手方向中央位置付近より切断した。同燃料棒の長手方向ガンマスキニングの結果によれば、切断位置の長手方向ピーキング係数は1.0であった。切断後被覆管を取り除き、UO<sub>2</sub>ペレットのみ各2.5 gを焼鈍実験に供試した。

第1回目の焼鈍実験(LWR-1実験)での到達目標焼鈍温度は2173Kとした。まず、試料を5分間で目標温度まで一定速度で昇温し、目標温度で5分間保持し、更に5分間で試料温度を室温に戻した。昇温中の5分間と目標温度2173Kでの保持時間5分間の合計10分間に、試料から放出されたFPガスを真空系を介して貯蔵タンクに導き、そこでガス分析を実施した。試料は、再度5分間に一定速度で昇温され、目標温度で25分間保持された。この保持中の20分から25分までの5分間、試料から放出されたFPガスを貯蔵タンクに導き、そこでガス分析を実施し、そのうち、室温まで降温した。最後に、再び5分間に、一定速度で昇温され、目標温度で55分間保持した。この保持中の50分から55分まで5分間、試料から放出されたFPガスを貯蔵タンクに導き、そこでガス分析を実施した。

第2回目の焼鈍実験(LWR-2実験)は、第1回目と同一仕様の燃料ペレットを用い、目標到達温度を2273Kにして行った。その加熱方法は、第1回目と全く同じとした。

貯蔵タンクに導いた捕集FPガスは、四重極分析計でイオン化(FPガス量に相当した電流値に変換)した。すなわち、FPガスの量 $Q_{FP}$ (cc)は、次式(1)を用いて評価した。

$$Q_{FP} = \frac{R_{STD}}{R_{FP}} \cdot \frac{\int I_{FP} dt}{\int I_{STD} dt} \cdot Q_{STD} \quad (1)$$

ここに、 $R_{STD}$ ：標準ガス同位体存在比

$R_{FP}$ ：FPガス中の同位体存在比

$\int I_{STD} dt$ ：標準ガス測定時の電流積算値(A・min)

$\int I_{FP} dt$ ：供試試料から放出されたFPガス測定時の電流積算値(A・min)

$Q_{STD}$ ：標準ガス量(cc)

実験では、一定保持時間 $t$ に於けるFPガスの量 $Q_{FP}$ を求めたが、その量を以下の式を用いて放出率 $f$ (fraction)に変換した。すなわち、

$$f = \frac{Q_{FP}}{BU \times Wf \times (Fy)} \quad (2)$$

本データは、ORN Lの実験結果と比較するが、その場合ORN Lでは、放出率 $f$ が時間 $t$ に関して飽和する時間を実効時間(effective time)と称して、 $f/te$ (fraction/min)を作り、この値を試験温度の関数として評価している。そこで、本報でも、実効時間 $te$ を設定した。

すなわち

$$fe = f/te \quad (\text{fraction/min}) \quad (3)$$

ここに、 $Q_{FP}$ ：保持時間 $t$ (min)に於いて放出されたFPガスの量(cc)

( $Fy$ )：対象FPガスの核分裂収率(cc/MWd)

$BU$ ：供試試料の燃焼度(MWd/kgU)

$Wf$ ：供試試料の重量(kgU)

である。

なお、(2)式の分母は、対象としている供試試料中に生ずるFP核種の生成量である。これに関しては、本実験に用いた燃料試料が含まれていた燃料棒について、照射後試験(燃料棒の穿孔、ガス圧力

とF Pガス成分分析)を行い、(2)式の分母を使用したF Pガス生成量と実測量が誤差範囲20%以内で一致することを確認した。

また測定F P放出量の測定誤差は、5%内外である。

なお、LWR実験では、供試試料から放出されたF Pガスは真空体系中で質量分析計にかけられており、キャリアガスは使用しなかった。また、Table 2から分る様に、典型的な昇温速度は7.2K/sであった。

## 2.2 NSRR燃料

NSRR燃料試料からのF P放出研究に用いた実験装置の概略をFig. 2に示す。NSRR燃料試料は、グラファイト製のるつぼ中に装填し、グローブボックス内の高周波加熱炉中に装填した。

NSRR燃料から放出されたF Pは、SUS製の高温導管(温度773K)を通過し、チャコールフィルター付のコールドトラップ(195K)部を介して、再び真空ポンプでグローブボックス内に戻す構造とした。F Pの測定は、コールドトラップに設けたGe検出器で行った。即ち、この実験は、放出されたF Pの定性分析に研究の主眼を置いた。

実験に供したNSRR短期照射済燃料試料は、17×17型PWR燃料セグメント棒(有効長13.5cm、平均燃焼度は $5.6 \times 10^{-6}$  MWd/kgUに相当)の中央位置付近より切断した。長手方向ガンマスキヤニングの結果によれば、切断位置のピーキング係数は1.0であった。同試料は、切断後被覆管をつけたままで焼鈍実験に供した。同燃料試料中の生成F Pインベントリーは、短期照射用に改良した計算コードORIGEN2<sup>(30)</sup>にて算出した。同コードの計算上必要な入力は、パルス照射中の炉内データ及び照射後試験(PIE)データから作成した。

NSRR燃料試料に関する詳細な燃料仕様及び試験条件は、Table 1に含めた。同表から分るように、合計2回の焼鈍実験(750-1及び750-2実験)を実施した。焼鈍最高温度はともに約1900K近傍とし、ステップ状の加熱(加熱速度1.2K/s)と矩形状の加熱(加熱速度0.7K/s)方式を用いた。その加熱履歴をFig. 3に示す。図中①-①'、②-②'といった具合に表示した各ステップでGe検出器による、放出F P核種の測定を行った。

ステップ状の加熱は、各ステップ温度に於て放出されるF Pを保持温度と時間の関数として測定するために行ったものである。一方、矩形状の加熱は、燃料試料をいっきに加熱したときの放出F Pを測定するために行ったものである。この加熱速度は、LOCA時やシビア・アクシデント時等に於て、燃料の崩壊熱により燃料温度が上昇する速度に近いものを用いた。

焼鈍実験終了後、供試試料はNSRRにて、外観及び金相観察を含む照射後試験(PIE)を行った。ここでは、焼鈍を行なわなかったレファレンス試料との金相比較も行った。さらに焼鈍試料は、実用燃料試験室(ホットラボ)にて、走査型電子顕微鏡(SEM)及びX線マイクロアナライザー(XMA)による詳細な金相観察と試料表面の元素分析も行った。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 LWR燃料

##### 3.1.1 FPガス放出率

式(2)を用いて評価したLWR燃料のFPガス放出率 $f$ を、実効時間 $t_e=10$ 分で除した値をTable 3(1)に示す。各試験温度に於ける $f$ の値は、昇温開始後10、35及び90分にて測定したが、Table 3(2)に示す様にいずれも顕著な増加はなかった。但し、2273Kでは、Xeに関する $f$ を測定できなかった。

いずれにしても、2173Kに於けるKrの実効放出率 $f_e$ は $0.064 \text{ min}^{-1}$  ( $6.4\% \text{ min}^{-1}$ )、Xeのそれは $0.058 \text{ min}^{-1}$  ( $5.8\% \text{ min}^{-1}$ )であった。また、2273Kに於けるKrの実効放出率 $f_e$ は $0.064 \text{ min}^{-1}$  ( $6.4\% \text{ min}^{-1}$ )であった。

焼鈍前後の供試試料の平均結晶粒は、焼鈍前で $6 \mu\text{m}$ 、2273K焼鈍後で $10 \mu\text{m}$ であった。すなわち、焼鈍によって、平均的に $4 \mu\text{m}$ の結晶粒成長が観察された。また焼鈍前の燃料表面の結晶粒界上には、FPガス気泡が大量に存在していた。焼鈍後、結晶粒界はもとより粒内に於いても、ガス気泡がつぶれFP放出がおこったあとが観られた。

##### 3.1.2 ORNL炉外実験結果との比較

米国オークリッジ国立研究所(ORNL)では、Table 1に示した様に、最高 $40 \text{ MWd/kgU}$ まで照射したLWR燃料棒をさらに $15 \sim 20 \text{ cm}$ 長にセグメント化し、その試料を用いて焼鈍実験を行っている。燃料試料は被覆管付きで、長手方向の中間位置に $1.6 \text{ mm}$ 径の貫通孔を被覆管に1ヶ所だけ設け、高周波による試料の急速焼鈍(焼鈍速度 $1.7 \text{ K/s}$ )を行っている。このORNL実験は、貫通孔付燃料棒による急速焼鈍という点で本LWR実験(燃料ペレットのみによる昇温で平均 $7.3 \text{ K/s}$ )と差異があるが、LWR型の比較的燃焼度の高い試料を用いていること、FPガスとして希ガスを対象にしていること、評価手法がほぼ同様である等の類似性もある。

そこで、ORNLの炉外実験成果<sup>(24)</sup>のうち、FPガス放出率の温度依存性を示すデータと本LWR実験のそれとを比較した。その比較結果をFig. 4に示す。これから、本実験結果(燃焼度 $35 \text{ MWd/kgU}$ )は、ORNL<sup>(24,31)</sup>のデータと傾向的に一致した。すなわち、燃焼度 $25.2 \text{ MWd/kgU}$ で行ったHI-3実験(Kr放出率 $0.04 \text{ min}^{-1}$ )と燃焼度 $40.3 \text{ MWd/kgU}$ で行ったHI-6実験(Kr放出率 $0.15 \text{ min}^{-1}$ )に対して、本実験ではKrの放出率が $0.064 \text{ min}^{-1}$ となった。

このKr放出挙動に関してもう少し詳細に考察すると次のことが分る。ORNLのHI-3実験では、 $25 \text{ MWd/kgU}$ のPWR燃料棒を $2.1 \text{ K/s}$ の加熱速度で焼鈍し $2275 \text{ K}$ まで到達した。このときのKr放出率は約 $4\% \text{ min}^{-1}$ であるが、放出がほぼ飽和するのに20分程度要している。一方、HI-6実験では、 $40 \text{ MWd/kgU}$ のBWR燃料棒を $2.3 \text{ K/s}$ の加熱速度で焼鈍し $2250 \text{ K}$ まで到達した。このときのKr放出率は $15\% \text{ min}^{-1}$ であるが、保持時間が2.5分と極めて短かった。本実験(LWR-2実験)では、 $35 \text{ MWd/kgU}$ のPWR燃料棒を $7.6 \text{ K/s}$ の加熱速度で焼鈍し $2273 \text{ K}$ まで到達した。このときのKr放出率は約 $6.4\% \text{ min}^{-1}$ であり、保持時間は10分であっ

た。本実験の総保持時間は90分程度であったが、Table 3の(2)で、分る様に、最初の保持時間10分以後のKr放出の増加は殆んどなかった。従って、Kr放出率を決めるにあたっては、10分を実効保持時間 $t_e$ とした。

この検討から、LWR-2実験の結果は、HI-3実験よりも燃焼度が高く、逆にHI-3実験よりも焼鈍速度が遅いが、ほぼ同様の焼鈍温度に達している。この結果、HI-3でのKr放出率 $4\% \text{ min}^{-1}$ に対して、LWR-2実験では $6.4\% \text{ min}^{-1}$ となった。

実験対象試料がHI実験では孔つき燃料棒、本実験では、被覆管なしの $\text{UO}_2$ 燃料破片と異なるので、LWR-2実験でのKr放出率がHI-3実験のそれよりも大きくなった原因が、燃焼度、焼鈍速度、保持時間、キャリアガス(ORNLは $\text{He} + \text{H}_2\text{O}$ 、本実験はキャリアガスなし)、加熱履歴のどれに依存するのか、特定できない。

一方、LWR-2実験に対するLWR-1実験では、前者の到達温度が $2273\text{K}$ であるのに対し後者のそれが $2173\text{K}$ であった。しかしながら、Kr放出率には、殆んど差異がなかった。これは、ほぼ同じ燃焼度を持つORNLのHI-4(燃焼度 $10.1\text{MWd/kgU}$ 、PWR燃料、焼鈍速度 $2.3\text{K/s}$ 、焼鈍温度 $2200\text{K}$ )実験結果として比較して、より高いKrの放出率( $1\% \text{ min}^{-1}$ に対して $6.4\% \text{ min}^{-1}$ )を得ている。この差は両者の燃焼度及び昇温速度の差に起因するものであろう。

いずれにしても、HI-3、LWR-2及びHI-6の実験結果並びにHI-5とLWR-1の実験結果の比較から、焼鈍によるKr放出率には燃焼度と焼鈍温度が強く影響すると思われる。

## 3.2 NSRR燃料

NSRR燃料に関しては、ステップ状に $1873\text{K}$ まで昇温する実験(750-1実験)及び直線状に $1913\text{K}$ まで昇温する実験(750-2実験)を、被覆管付きの燃料ペレットを用いて行った。いずれの実験に於ても昇温速度は $0.7 \sim 1.2\text{K/s}$ の範囲にあり、先行実験である米国ORNLの昇温速度(シビア・アクシデント時の崩壊熱による燃料棒の昇温速度)と同じ範囲にあった。

しかしながら、Ge検出器によるFP測定結果を示すTable 4から分るように、両実験ともFig. 2に示すコールドトラップ箇所には、何らのFPも検出されなかった。これは、パルス照射によって生成するFPの絶対量が極めて小さく、仮に、FPの放出があっても、その量は測定機器の検出限界以下だったためであろうと考えられる。

そこでコールドトラップよりもより焼鈍試料に近い加熱部SUS管( $773\text{K}$ でキャリアガスの $\text{He}$ 又は $\text{H}_2\text{O} + \text{He}$ を加熱する部分)の曲り箇所(Fig. 2の中の①で示す)を切断し、この管内面に例えばCs等が附着していないかどうかをSEM/XMAで調べた。

さらに、被覆管付燃料試料の外観、金相写真及びSEM/XMA観察も行った。これらの結果は以下のとおりである。

### 3.2.1 SUS加熱管の内面観察

ORNLの焼鈍実験<sup>(24)</sup>では、 $1273\text{K}$ から $400\text{K}$ までの熱勾配をつけた加熱SUS管を供試料の出口配管側に設け、そこに附着したCsやIの分布を得ている。本実験は、CsやIが最も附着しやすい温度と考えられた $773\text{K}$ にL字型SUS配管を加熱し、その曲り部の一部を実験後に切り取って内面観察した。

Photo. 1は、加熱実験に試供しなかったレファレンスSUS管及び1913Kまでの焼鈍に使用した各SUS管の内面SEM像である。外観上、両者に差界があるのは、後者が773Kまで加熱されたこと、Heと水蒸気の混合ガスの雰囲気さらされたこと等に基づいていると思われる。レファレンス管の写真中央部で点分析を行ったところ、Fe, Ni, Cr, Mn, Mo, Sが検出された。一方、773K加熱SUS管の写真中央部で点分析を行ったところ、Fe, Ni, Cr, Mn, Mo, S, Siが検出された。ケイ素(Si)を除けば、両管に共通に検出された元素は、SUS材の成分である。加熱管中に検出されたSiは、非常に微量であるが、Photo. 1に示す様に、管内表面にはほぼ均一に分散していた。Siは、燃料または被覆管中の不純物として含まれていたものが、キャリアガスと共に移動して附着したものと考えられる。

この加熱SUS材については、さらにヨウ素(I)の存在を確認するための点分析を実施したが、ヨウ素は見つからなかった。

### 3.2.2 焼鈍試料の外観・金相写真

Photo. 2は、レファレンス燃料、焼鈍燃料試料の輪切り断面写真である。写真中、(b)は1873K焼鈍燃料試料であるが、被覆管が部分的に溶融していることが分る。即ち、前記温度は、燃料試料のごく近傍にとりつけたPt/Pt-13%Rh熱電対で測定した雰囲気温度であるが、実際の燃料試料の温度はこれよりも高く局所的にはジルカロイ被覆管の融点2128K以上になったと推測される。即ち、焼鈍試料の温度は、熱電対による読み取り値よりも13.6%程度高い場合もあったと考えられる。

写真(c)は、1913K焼鈍燃料試料であるが、被覆管に部分溶融のあとが観察される他、燃料試料は原形をとどめない程にバラバラになっていた。金相組織上特徴的だったのは、Photo. 3に示した様に、バラバラになった燃料試料の表面に平均径0.25mm程度の割れが存在していた事である。これは、Photo. 3(c)のエッチング写真から分る様に、平均径0.009mm程度の結晶粒に対し粒界割れを発生していた。この様な割れ形態は、1873Kの焼鈍試料には観られなかった。

焼鈍実験に用いた燃料試料に関する詳細な外観及び金相写真は、まとめて附録に収録した。

これら外観と金相写真観察から、 $UO_2$ 燃料と被覆管内面との間には、化学的な相互作用によるU-Zr反応の様な現象は生じていなかったことが分る。また、実験雰囲気がHeだったため、被覆管外面に、 $ZrO_2$ の緻密な酸化膜層の形成は認められない。しかし被覆割れや数多くの局所的な溶融が認められる。

いずれにしても、LWR実験で観られた様な結晶粒界上でのFPガスの集積や焼鈍後でのガス気泡の崩壊といった、FP放出の様子を物理的に示す形態は、NSRR燃料の外観観察では観られなかった。

### 3.2.3 焼鈍試料のSEM/XMA試験

外観・金相写真終了後、焼鈍試料は、実用燃料試験室にてSEM/XMA試験に供した。

Photo. 4は、1873Kまで加熱焼鈍した燃料及び被覆管のSEM写真(4枚)と、焼鈍を行わなかったレファレンスの燃料のSEM写真(右下1枚)である。被覆管に関しては、部分溶融があったこと、被覆管の外面側の組織と内面側の組織に差異が生じている部分もあること等が分る。一方、燃料に関しては、中央部及び端部とも焼鈍後の気孔数はレファレンス燃料に比べて少し減少傾向にあることが分る。この燃料中央部に於て、Zr, Cs, Ru, 及びBa元素に関するXMA分析を行った

が、いずれも検出できなかった。

Photo. 5は、1913Kまで加熱焼鈍し、60分間同温度に保持後さらにHeと水蒸気の混合雰囲気中に20分間保持された燃料及び被覆管のSEM写真である。写真(A)では、被覆管内側から1/3のところ、組織変化に起因すると思われる円環が観られるが、SEM像(B)及びその拡大写真(C)から、それは部分的に被覆管が溶融した為に生じたものであることが明らかになった。すなわち、この様な円環状の割れが生じた原因の1つは、附録の写真A Photo. 14からも分るように、この円環状の割れの内側(被覆内面側)で、非常に大きな結晶が存在する一方で、その割れの外側(被覆外面側)で、急激に結晶粒が小さくなっている事と関係があるように思われる。

燃料ペレットがバラバラになってしまった事から明らかのように、燃料ペレットと被覆材との間の反応—例えばU-Zr反応—はここでも生じなかったと思われる。

1913Kまでの焼鈍実験では、1913K到達後60分後に、20分間Heと水蒸気の混合雰囲気中に試料をさらした。被覆管外側では、しかしながら緻密な $ZrO_2$ のような酸化膜層は形成されなかったことが、写真(B)や(D)及びその拡大写真(E)より分る。

燃料組織変化については、焼鈍前後で極端な気孔の変化が生じていないことが判明した。写真(H)の中央位置に於て、Zr, Cs, Ru, 及びBa元素に関するXMA分析を行ったが、いずれも検出できなかった。この結果は、ORIGEN2計算から予測した<sup>(32)</sup>ように、NSRR燃料中に生成されたFP量が絶対的に少ないことに起因していると思われる。

#### 4. 結 言

- (1) 燃焼度3.5 MWd/kgUのLWR燃料を2273Kで炉外焼鈍した結果、Krの放出率は6.4 % min<sup>-1</sup>となった。この結果は、米国ORNLのHI-実験シリーズの結果ともほぼ一致した。焼鈍燃料のFP放出率は、燃料の燃焼度と焼鈍温度の増加と共に増加することが、本実験と米国ORNL実験との比較から明らかになった。
- (2) 燃焼度 $5.6 \times 10^{-6}$  MWd/kgUの被覆管付NSRR燃料を1913Kまで炉外焼鈍したが、コールドトラップ部で測定に供したGe検出器には、何らのFPも検出されなかった。また、焼鈍試料に直結したSUS配管内面にも、何らFPは附着していなかった。焼鈍後の燃料組織の観察では、FPガス気泡の崩壊の様に燃料からFPガスが放出された事を示す様な物理的現象は観察されなかった。
- (3) NSRR燃料では、燃料と被覆管間の相互作用(例、U-Zr反応)は観られず、また結晶粒の成長もなかったが、被覆管には部分溶融が生じていた。NSRR燃料の被覆管は、高温下で20分間だけHeとH<sub>2</sub>O(水蒸気)の環境にさらされたが、著しいZrO<sub>2</sub>膜の形成等は生じなかった。被覆管は内面から結晶粒成長をおこし、その成長が停止した箇所、被覆管に円環状の割れが生じた。

が、いずれも検出できなかった。

Photo. 5は、1913Kまで加熱焼鈍し、60分間同温度に保持後さらにHeと水蒸気の混合雰囲気中に20分間保持された燃料及び被覆管のSEM写真である。写真(A)では、被覆管内側から1/3のところ、組織変化に起因すると思われる円環が観られるが、SEM像(B)及びその拡大写真(C)から、それは部分的に被覆管が溶融した為に生じたものであることが明らかになった。すなわち、この様な円環状の割れが生じた原因の1つは、附録の写真A Photo. 14からも分るように、この円環状の割れの内側(被覆内面側)で、非常に大きな結晶が存在する一方で、その割れの外側(被覆外面側)で、急激に結晶粒が小さくなっている事と関係があるように思われる。

燃料ペレットがバラバラになってしまった事から明らかのように、燃料ペレットと被覆材との間の反応—例えばU-Zr反応—はここでも生じなかったと思われる。

1913Kまでの焼鈍実験では、1913K到達後60分後に、20分間Heと水蒸気の混合雰囲気中に試料をさらした。被覆管外側では、しかしながら緻密なZrO<sub>2</sub>のような酸化膜層は形成されなかったことが、写真(B)や(D)及びその拡大写真(E)より分る。

燃料組織変化については、焼鈍前後で極端な気孔の変化が生じていないことが判明した。写真(H)の中央位置に於て、Zr, Cs, Ru, 及びBa元素に関するXMA分析を行ったが、いずれも検出できなかった。この結果は、ORIGEN2計算から予測した<sup>(32)</sup>ように、NSRR燃料中に生成されたFP量が絶対的に少ないことに起因していると思われる。

#### 4. 結 言

- (1) 燃焼度3.5 MWd/kgUのLWR燃料を2273Kで炉外焼鈍した結果、Krの放出率は6.4 % min<sup>-1</sup>となった。この結果は、米国ORNLのHI-実験シリーズの結果ともほぼ一致した。焼鈍燃料のFP放出率は、燃料の燃焼度と焼鈍温度の増加と共に増加することが、本実験と米国ORNL実験との比較から明らかになった。
- (2) 燃焼度 $5.6 \times 10^{-6}$  MWd/kgUの被覆管付NSRR燃料を1913Kまで炉外焼鈍したが、コールドトラップ部で測定に供したGe検出器には、何らのFPも検出されなかった。また、焼鈍試料に直結したSUS配管内面にも、何らFPは附着していなかった。焼鈍後の燃料組織の観察では、FPガス気泡の崩壊の様に燃料からFPガスが放出された事を示す様な物理的現象は観察されなかった。
- (3) NSRR燃料では、燃料と被覆管間の相互作用(例、U-Zr反応)は観られず、また結晶粒の成長もなかったが、被覆管には部分溶融が生じていた。NSRR燃料の被覆管は、高温下で20分間だけHeとH<sub>2</sub>O(水蒸気)の環境にさらされたが、著しいZrO<sub>2</sub>膜の形成等は生じなかった。被覆管は内面から結晶粒成長をおこし、その成長が停止した箇所、被覆管に円環状の割れが生じた。



謝 辞

焼鈍実験後の照射後試験，特にSEM/XMA試験については，実用燃料試験室の石本課長他の皆様に御協力を賜りました。NSRR燃料の焼鈍実験の遂行に関しては，NSRR管理室の堀木室長他の皆様，及び千代田メンテナンスの吉田・辻田の両氏に御協力を賜りました。

実験結果に関する論文作成時には，反応度安全研究室の藤城室長及び燃料安全第2研究室の石渡室長の両氏に有益な御助言を賜りました。ここに，謝して辞するものであります。

## 参 考 文 献

- (1) U. S. Nuclear Regulatory Commission: " The Role of Fission Gas Release in Reactor Licensing ", NUREG-75/077 (1975)
- (2) C. Kelber, " The Radiological Term of Nuclear Power Reactors", Nuclear Safety, 27, No1. (1986)36
- (3) J. A. Turnbull et al; " The Diffusion Coefficients of Gaseous and Volatile Species During the Irradiation of Uranium Dioxide ", J. Nucl. Mater., 107(1982)168
- (4) A. D. Appelhans et al; " Measured Release of Radioactive Xenon, Krypton, and Iodine From UO<sub>2</sub> at Typical Light Water Reactor Conditions, and Comparison With Release Models ", NUREG/CR-2298, EGG-2124 (1981)
- (5) E. R. Bradley et al, " An Evaluation of the In-Pile Pressure Data From Instrumented Fuel Assemblies IFA-431 and IFA-432 ", PNL-3206, NUREG/Cr-1139 (1979)
- (6) E. Kolstad and C. Vitanza; " In-Reactor Measurements of Thermomechanical Behaviour and Fission Gas Release of Water Reactor Fuel ", Res Mechanica, 16(1985)81
- (7) N. Beatham et al, " A Comparison of Measured Fission Gas Release For Windscale AGR Fuel Irradiated Above GWd/tU With Those Predicted Using the Computer Code MINIPAT D ", ND-R-803 (w) (1982)
- (8) I. R. Brearley et al, " Modelling of Fission Gas Release From Fuel Undergoing Isothermal Heating ", SRD R278 (1983)
- (9) J. Rest, " An Improved Model for Fission Product Behavior in Nuclear Fuel under Normal and Accident Conditions, " J. Nucl. Mater., 120(1984)195
- (10) Y. Tsuchie et al, " Post-Irradiation Examination of TSURUGA Fuel ", IWGFPT/12, p 211
- (11) Y. Iriya et al, " Proving Test on the Reliability of PWR 15 X 15 Fuel Assemblies Through Three Reactor Cycle in Japan ", ANS Topical Mtg. on LWR Fuel Performance, Virginia, USA (1988)
- (12) T. Nakajima et al, " A Comparison Between Fission Gas Release Data and FEMAXI-IV Code Calculations ", Nucl. Eng. Design, 101(1987)267

- (13) P. Knudsen et al, " Fission Product Behavior in High-Burnup Water Reactor Fuel Subjected to Slow Power Increases ", Nucl. Technol. 72(1986)258
- (14) S. M. Gehl, " The Release of Fission Gas During Transient Heating of LWR Fuel ", NUREG/CR-2777, ANL-80-108 (1982)
- (15) M. F. Osborne et al, " Fission-Product Release From Irradiated LWR Fuel ", CONF-821037-28 (1982)
- (16) M. F. Osborne et al, " Data Summary Report For Fission-Product Release Test HI-1 ", NUREG/CR-2928, ORNL/TM-8500 (1982)
- (17) D. G. Bridge et al, " Fission-Gas Releases During Post-Irradiation Annealing of UO<sub>2</sub> Fuel From WAGR Pins of Burn-up up to 5500 MWd/teU, ND-R-720(w)
- (18) D. Bayen, " Release of Volatile Fission Products From Uranium Dioxide ", LBL-15222 (1983)
- (19) K. S. Norwood et al, " Characterization and Chemistry of Fission Products Released From LWR Fuel Under Accident Conditions ", CONF-840701-27, TI85016383 (1984)
- (20) M. F. Osborne et al, " Fission Product Release From UO<sub>2</sub> Under LWR Accident Conditions: Recent Data Compared with Review Values ", CONF-850536-7, TI85016400 (1985)
- (21) G. J. Small, " Facilities For Studying the Release of Kr<sup>85</sup> From Irradiated UO<sub>2</sub> During Transients ", Nucl. Energy, 26, No.1 (1987)23
- (22) J. Burbach et al, " Spaltgasverhalten in bestrahltem UO<sub>2</sub> bei Out-of-pile Glühungen von 1400 bis 2000°C ", KfK 3997(1985)
- (23) H. Albrecht et al, " Investigation of Fission Product Release by Annealing and Melting of LWR Fuel Pins in Air and Steam ", ANS/ENS Topl. Mtg. on Reactor Safety Aspect of Fuel Behavior, Idaho USA, p2-458 (1981)
- (24) M. F. Osborne et al, " Experimental Studies of Fission Product Release From Commercial Light Water Reactor Fuel Under Accident Conditions ", Nucl. Technol., 78(1987)157
- (25) J. L. Collins et al, " The Influence of Environment on Release Behavior and Chemical Forms of Fission Products Released Under LWR Accident Conditions ", CONF-870437-1, DE 87 006207 (1987)

- (26) 石渡, 永井, " 照射済  $UO_2$  ペレットの加熱による炉外 F P 放出実験 ", JAERI-M 85-199 (1985)
- (27) 市瀬ら, " 燃料のペレット内 F P ガス分析技術 ( 1 ) ", 日本原子力学会「昭和 6 2 秋の大会」( 1 9 8 7 年 1 0 月 2 ~ 4 日, 北大) 講演予稿集、p101, J39
- (28) 原子力安全性研究の現状, 原研パンフレット p18 (1987)
- (29) 金澤ら, " 燃料のペレット内 F P ガス分析技術 ( 2 ) ", 日本原子力学会「昭和 6 2 秋の大会」( 1 9 8 7 年 1 0 月 2 ~ 4 日, 北大) 講演予稿集、p102, J40
- (30) A. G. Croff, " ORIGEN2: A Versatile Computer Code For Calculating The Nuclide Compositions And Characteristics of Nuclear Materials ", Nucl. Technol., 62(1983)335
- (31) " Technical Bases of Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents, " NUREG-0772, U.S. Nuclear Regulatory Commission (June 1981)
- (32) K. Yanagisawa et al, " XMA Analysis on Undissolved Materials Observed in NSRR Short Irradiated Uranium Dioxide Fuel ", J. Nucl. Sci, Technol. 25, No.5,500(1988)

Table 1 これまでに行われたU<sub>2</sub>O<sub>5</sub>燃料の炉外等温実験の概要

実験場所	実験目的と実験結果	参考文献
ANL 米国	<p>LOCA時及びPCM時のFPガス放出挙動研究</p> <p>FPガス放出は1%以下であった。PCM時のFPガス放出のメカニズムは粒界割れ及び粒界上のFPガスバブルのトータル連結過程に律速される。</p> <p>実験温度 1222℃～融点</p> <p>加熱速度 5～300K/s (DEH: 直接電気加熱方式)</p> <p>燃料照射原子炉 H.B. Robinson No.2(PWR)</p> <p>線出力密度 18～23kW/m<sup>2</sup></p> <p>燃焼度 1.3～3.1 at.%</p>	(14):1982
ORNL 米国	<p>SFD時のFPガス放出挙動研究 (SFD/HIシリーズ)</p> <p><sup>85</sup>Krと<sup>137</sup>Csの放出挙動はほぼ同じ。<sup>85</sup>Kr, <sup>137</sup>Cs, <sup>125</sup>Sb, <sup>110m</sup>Agはガンマ線ヌベクトロメトリで検出できた。1400℃までの加熱でKr, I, Csは約2%, 1700℃までの加熱で約50%の放出があった。殆ど(99%以上)のIは、熱勾配配付FPガス移送配管とフイルターで捕らえられた。温度2000℃で20分保存したところ、60%以上のKr, I, Csの放出があった。</p> <p>Teは、被覆管の酸化挙動にも大きく影響することが明らかになった。</p> <p>構造材には、CsI, CsOH, Ag, Sb, 及びCsとSnのTe化合物が見つかった。</p> <p>揮発性のFPの放出には、燃料の気孔が関与することが分かった。</p> <p>実験温度 1700℃まで</p> <p>燃料試料 20cm長</p> <p>燃料照射原子炉 H.B. Robinson No.2(PWR)</p> <p>燃焼度 40MWd/kgU (最大)</p>	(15):1982 (16):1982 (19):1984 (20):1985 (24):1987 (25):1987
California大 米国	<p>TeとIに関するUO<sub>2</sub>ペレットからの放出拡散係数の研究</p> <p>1400℃におけるTe-132の拡散係数は1-131よりも10倍以上大きかった。</p> <p>X-133, I-131の放出に及ぼす化学的量論比 (Stoichiometry) の影響は大きかった。</p> <p>H<sub>2</sub>中で1750℃まで加熱したが、1400-1700℃の範囲で、TeとIの放出率はXeより高かった。</p> <p>燃料照射原子炉 UCB TRIGA炉 10～25分照射(5X10<sup>12</sup>fission)</p>	(18):1983
UKAEA 英国	<p><sup>85</sup>KrのFP放出率は0.13～29%と開きがあった。結晶粒の成長はなかったが、結晶粒界上でFPガスバブルが連絡してパイストをおこした例が多かった。</p> <p>炉外高温焼鈍におけるFP放出は、炉内高温焼鈍におけるFP放出よりも大きかった。</p> <p>焼鈍温度 1400℃と1650℃ (He-H<sub>2</sub>, 62h)</p> <p>燃料照射原子炉 WAGR fuel</p> <p>燃焼度 5.5MWd/kgU</p>	(17):1982 (21):1987
KfK 西独	<p>FPガス放出は、温度の増加、焼鈍時間及び燃焼度の増加と共に増加した。燃焼度0.9%のUO<sub>2</sub>試料を2000℃で5及び15分間焼鈍したところ、40及び60%のFP放出があった。</p> <p>PCMとSFD時のFP放出挙動を、SASCHAを用いて解析したところ、米国レポート WASH-1400は、TeとSbに関しては過大評価、Ba, Mo, Zr, Ru, La, Ce, Pr, Nd及びNPについては過小評価していることが明らかになった。</p> <p>焼鈍温度 1200～1600℃ (8～240分)</p> <p>1700～2000℃ (2.5～40分)</p> <p>燃焼度 0.3～3.8 at%</p>	(23):1981

Table 2 Data for post-irradiation anneal tests of LWR and NSRR fuels

Test	LWR		NSRR	
	Test No. LWR-1	Test No. LWR-2	Test No. 750-1	Test No. 750-2
Characteristics	Fractured, without cladding		13 with cladding	
Specimen length (mm)	2.50	2.50	7.10	6.33
Mass of fuel specimen (gUO <sub>2</sub> )	35.1	35.1	5.6 × 10 <sup>-6</sup>	5.6 × 10 <sup>-6</sup>
Fuel burnup (Mwd/kgU)	2.6	2.6	10	10
Enrichment (w/o)	<2	<2	0	0
In-pile gas release (%)	vacuum	vacuum	He(1 l/min)	He(5 l/min)
Environmental gas (flow rate)	—	—	—	5
Steam flow rate (l/min)	7.2	7.6	1.2	0.7
Test heat up rate (K/s)	2173	2273	1873	1913
Test temperature (K)	10	10	60	90
Effective time at maximum anneal temperature (min)	—	6	9	9
UO <sub>2</sub> grain size (μm)	—	10	9	9
pretest	—	6	9	9
post test	—	10	9	9

Note: \* Injected at 60 min. after reaching maximum anneal temperature.

Table 3 Result of anneal test on LWR fuel

(1) f as a function of anneal temperature

Temperature (K)	Effective time at the temperature (min)	Release rate fe in equation (3) (fraction/min)	
		Xe	Kr
2173	10	0.094	0.064
2273	10	*	0.064

\* not measured

(2) f in equation (2) as a function of anneal time

2173K

Time	f	
	Kr	Xe
10	0.64	0.94
35	0.64	0.97
90	0.64	0.97

2273K

Time	f	
	Kr	Xe
10	0.64	*
35	0.64	*
90	0.64	*

\* not measured

Table 4 Result of anneal test on NSRR fuel

## (1) Test:750-1 : Stepwise annealing

Temperature (K)	Holding time (min)	Petected FP	Remarks
To 773	—	ND †	① - ①' in Fig. 3(a)
773	3	ND	①' - ②
773-1273	—	ND	② - ②'
1273	10	ND	②' - ③
1273-1473	—	No Data logging	③ - ③'
1473	24	ND	③' - ④
1473-1623	—	No Data logging	④ - ④'
1623	18	ND	④' - ⑤
1623-1873	—	ND	⑤ - ⑤'
1873	60	ND	⑤' - ⑥

† ND : Not Detected

## (2) Test:750-2: Mono annealing

Temperature (K)	Holding time (min)	Petected FP	Remarks
To 773	—	No data logging	① - ①' in Fig. 3(b)
773	5	ND †	①' - ②
773-1913	—	ND	② - ②'
1913	90	ND	②' - ③

† ND : Not detected



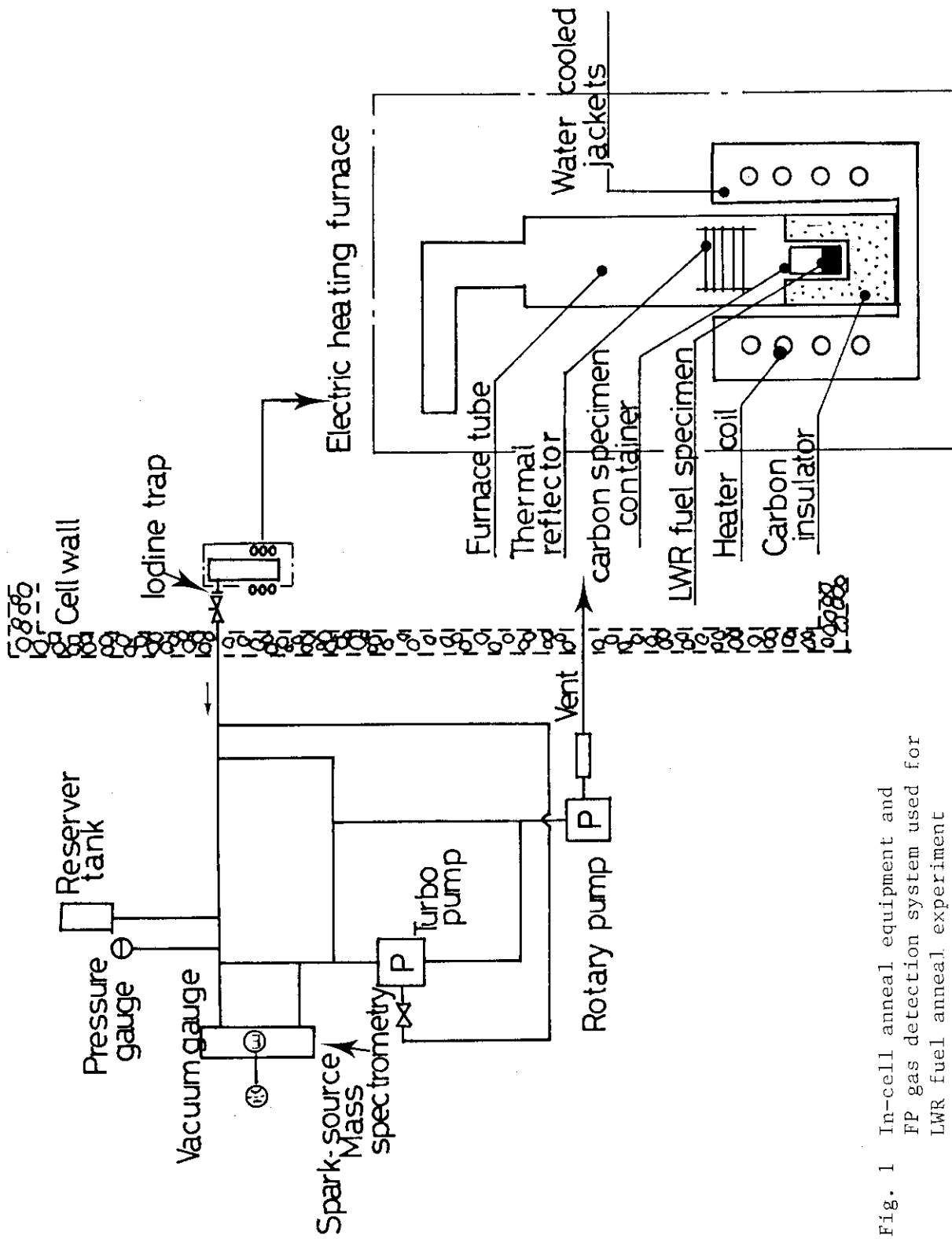


Fig. 1 In-cell anneal equipment and FP gas detection system used for LWR fuel anneal experiment

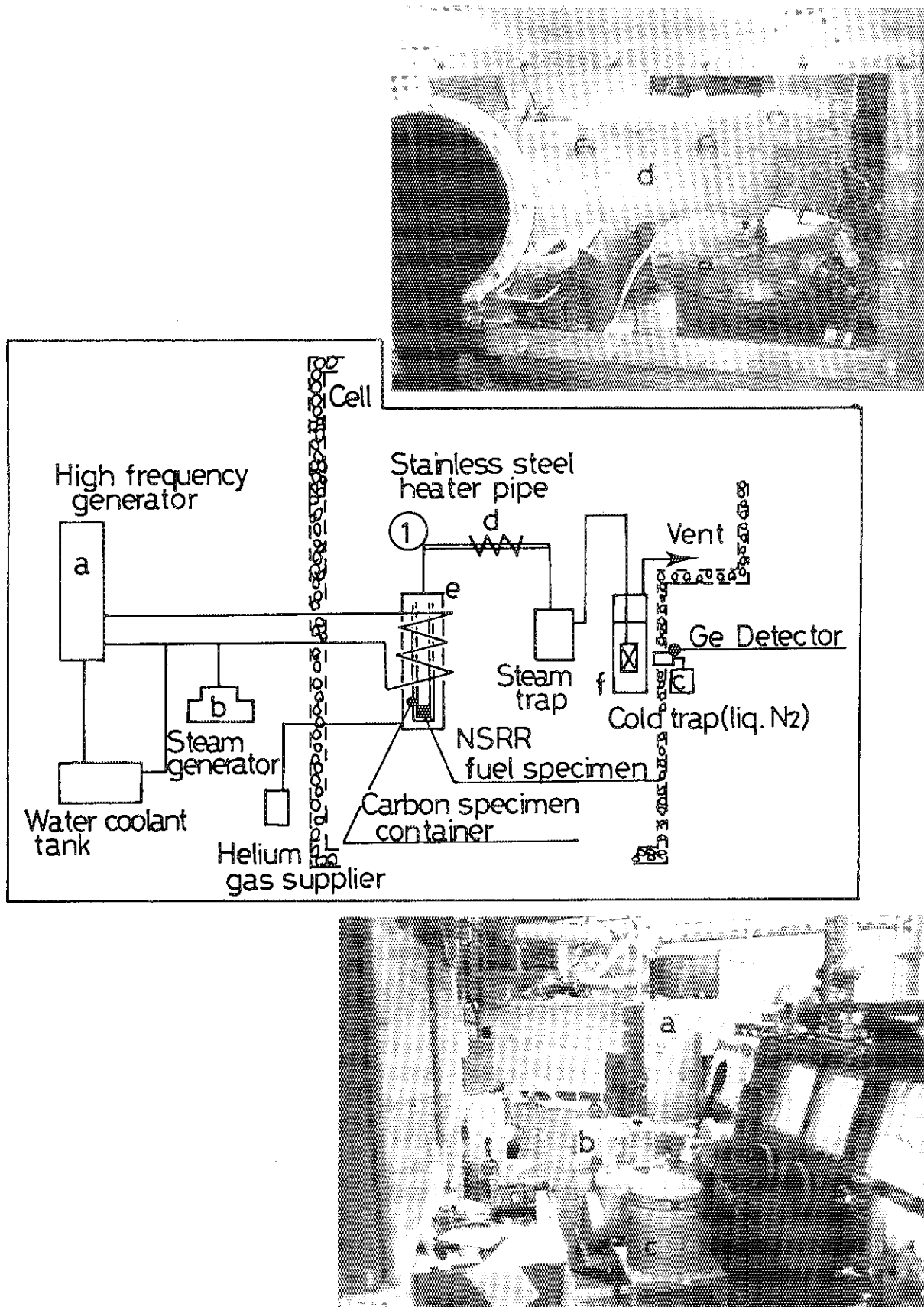


Fig. 2 In-cell anneal equipment and FP gas detection system used for NSRR fuel anneal experiment

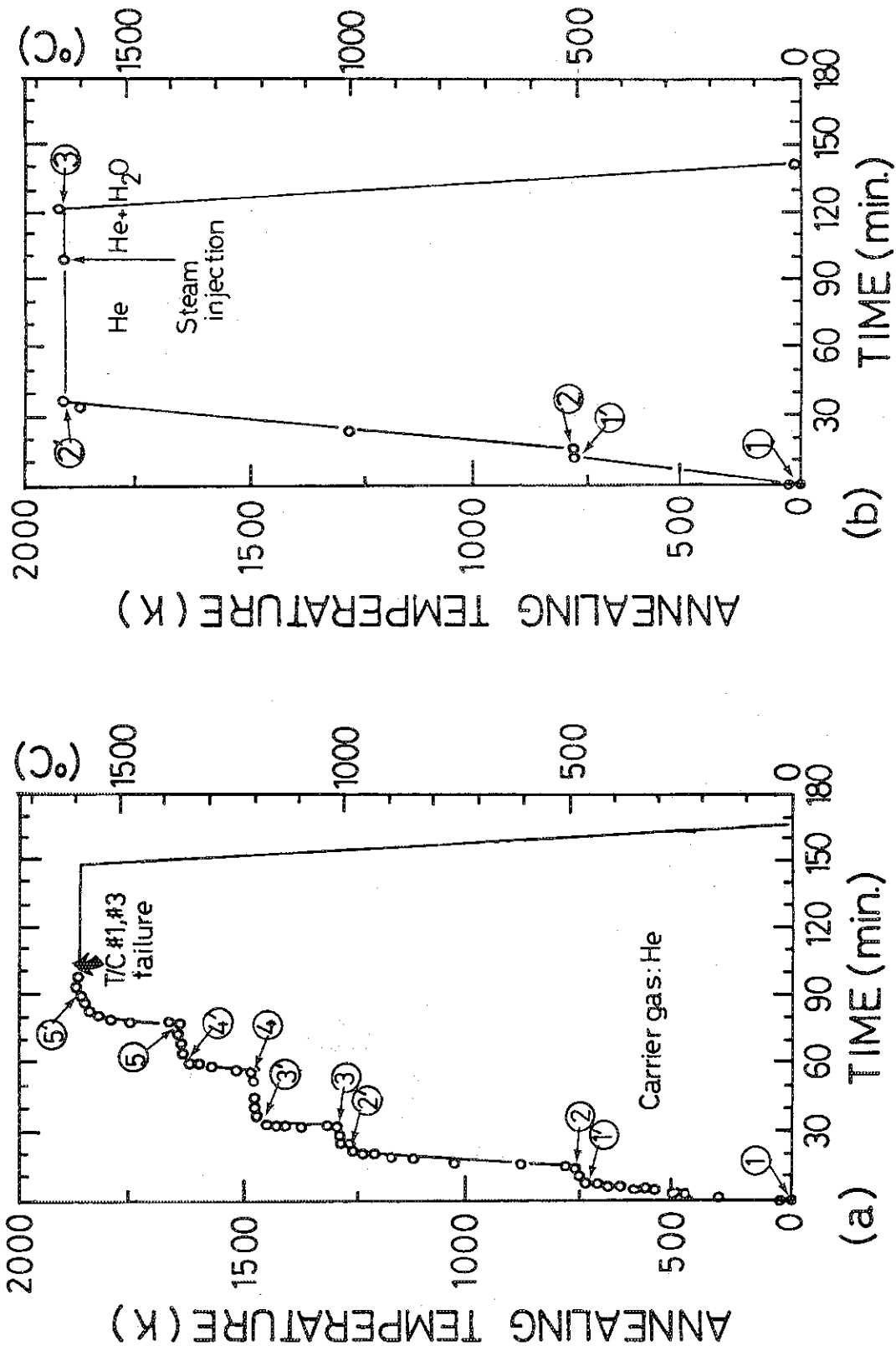


Fig. 3 (a) Anneal experiment heated up to 1873 K and (b) anneal experiment heated up to 1913 K; numbers in the figure, e.g. ① - ⑤ show the time span for FP measurement by Ge detector

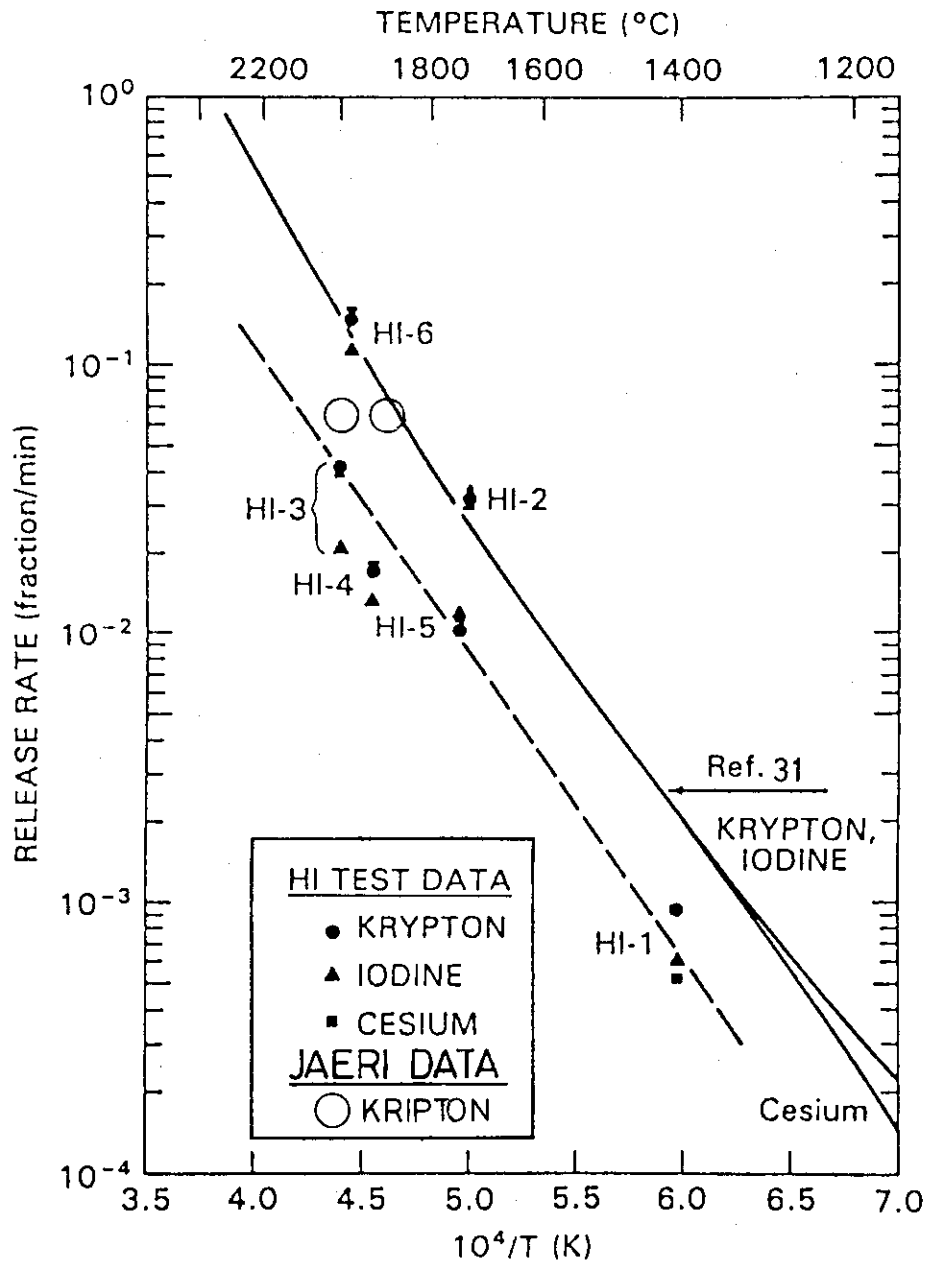


Fig. 4 Inverse temperature dependence of LWR fuel test data (JAERI), HI test data (ORNL)(25) and NRC review data(31)

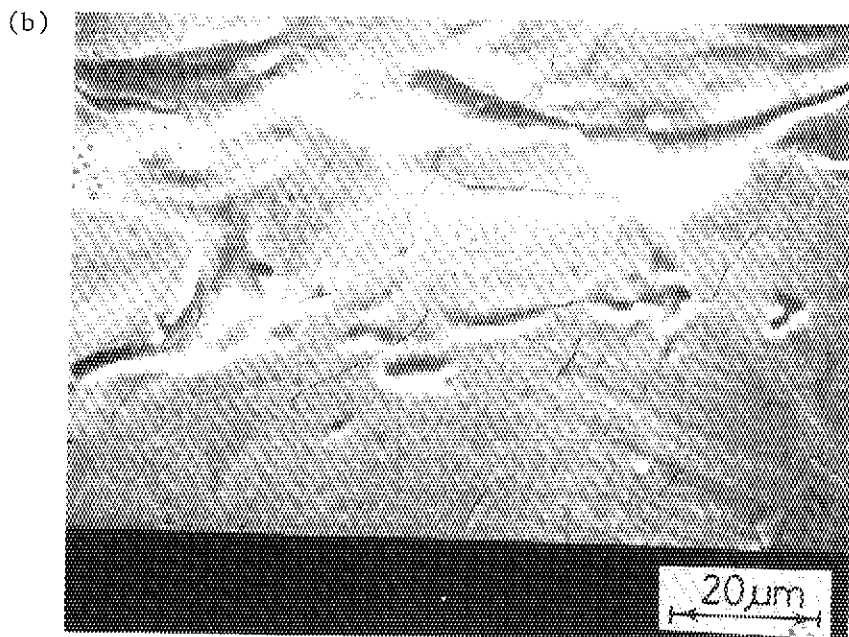
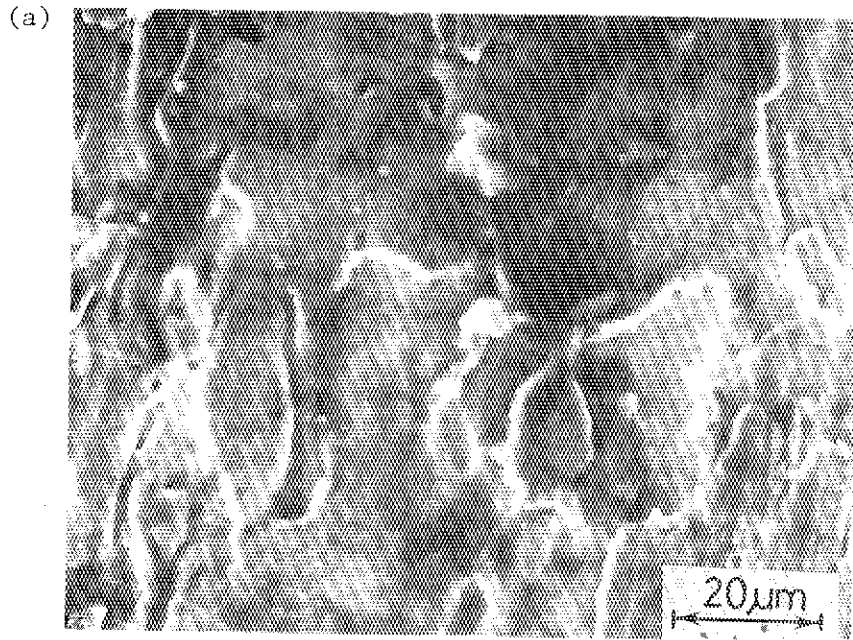


Photo. 1 (a) Inner surface of non-heated SUS tube and  
(b) that of heated SUS tube to 1773 K used for  
750-2 experiment, where steam was injected after  
60min. holding at maximum temperature

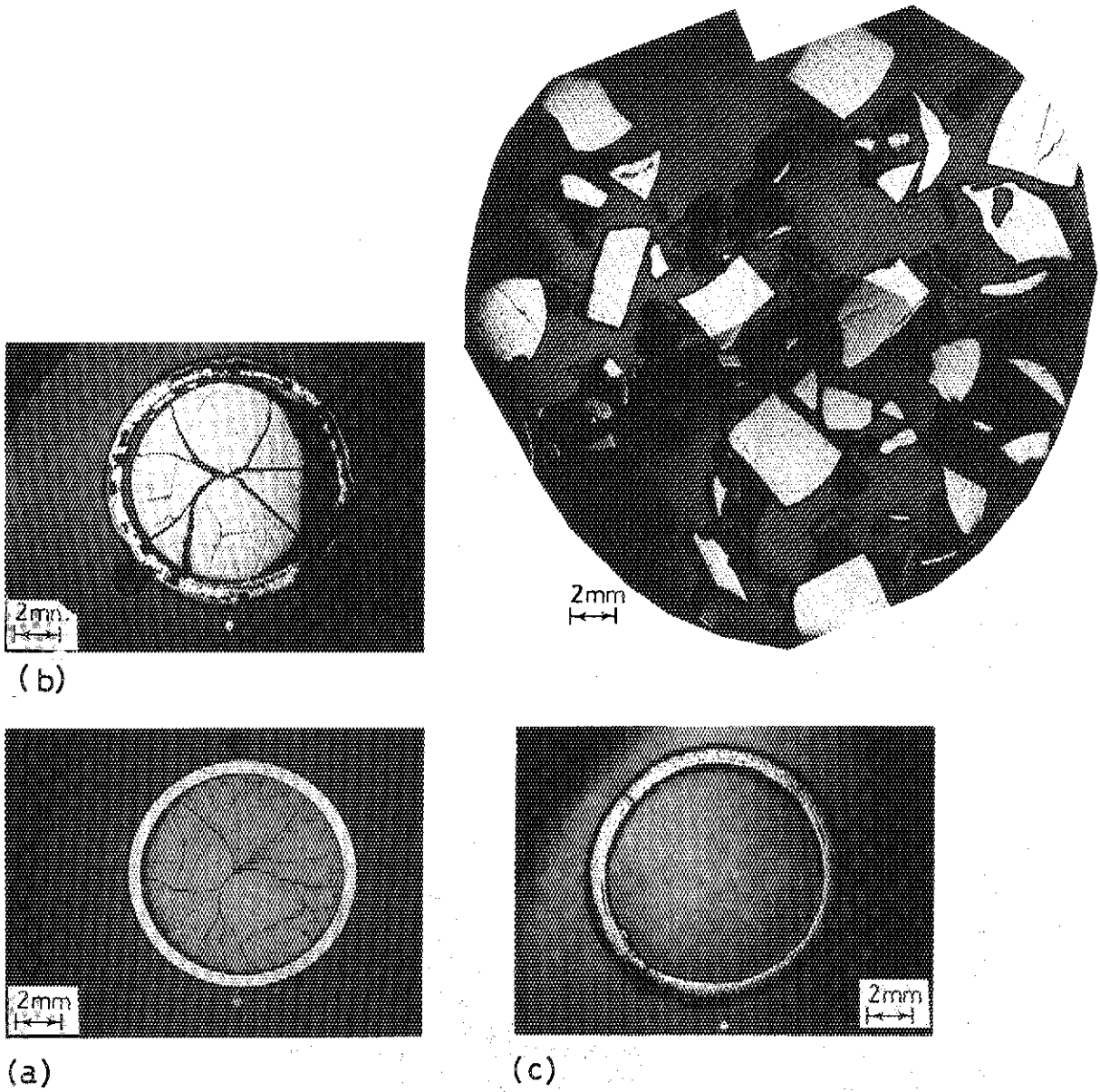


Photo. 2 (a) Non-heated reference fuel, (b) heated to 1873 K, and (c) heated to 1913 K, where fuel specimen was fragmented; white spots marked in the photographs show fuel zero orientation

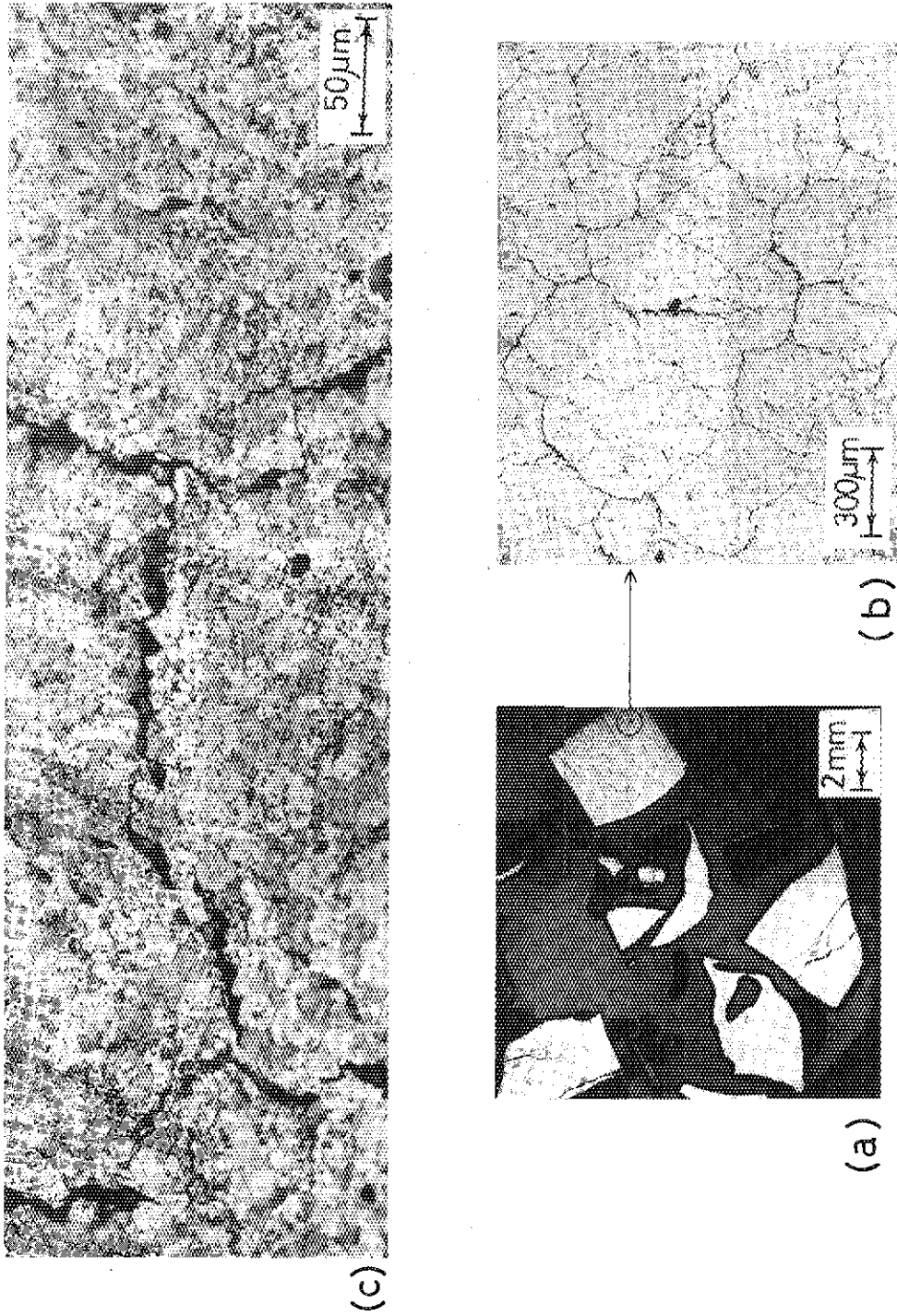
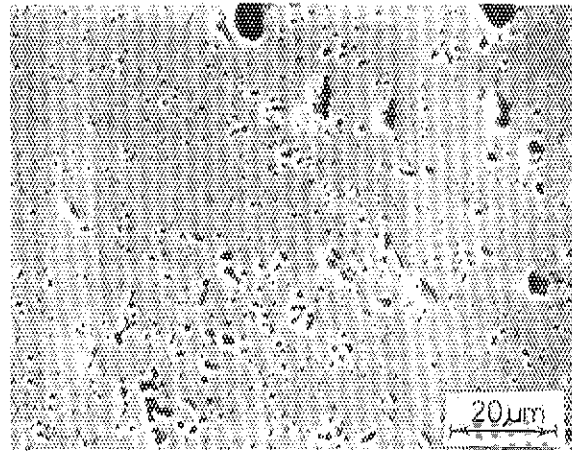
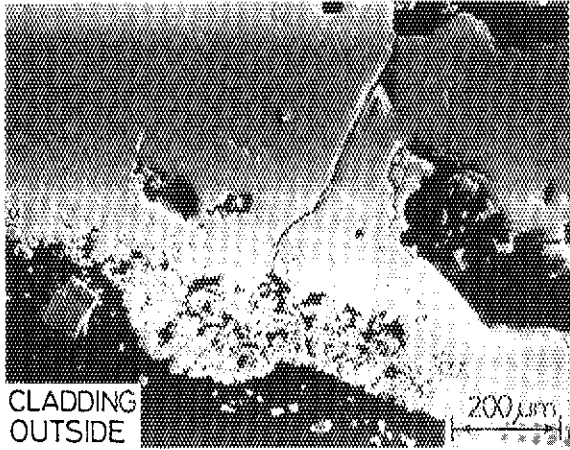
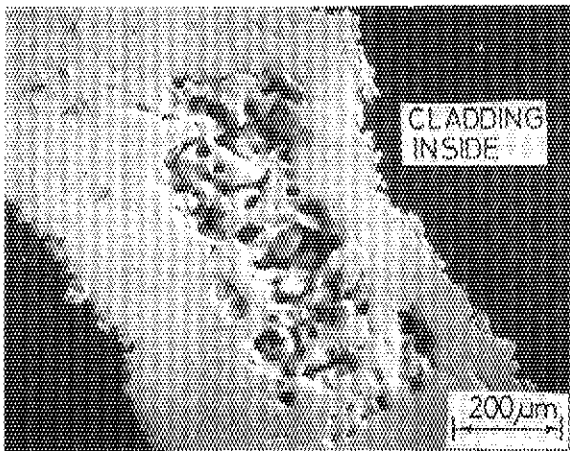


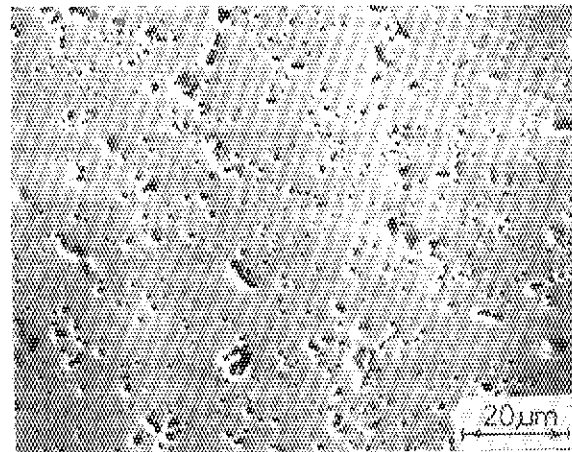
Photo. 3 (a) Ceramograph of annealed fuel specimen to 1913 K, (b) magnified polished local structure where rather uniform cracks were existed, and (c) magnified etched local structure



CENTER



ZIRCALOY  
CLADDING



EDGE

UO<sub>2</sub> FUEL

Reference (non-annealed UO<sub>2</sub>)

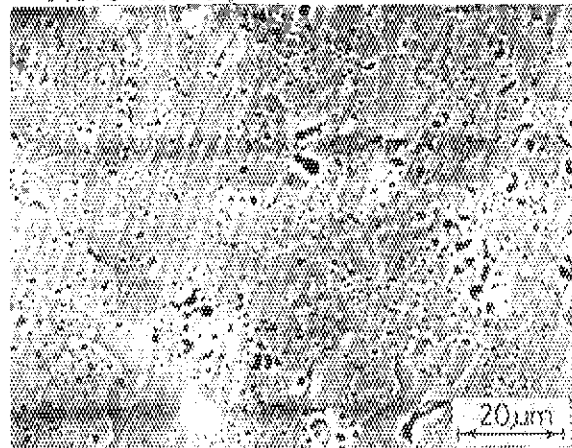


Photo. 4

(Left) Detail cladding condition of annealed specimen to 1873 K.

(Right) Top two show the center and edge fuel condition of specimen annealed to 1973 K and bottom one show the fuel condition of non-annealed reference.



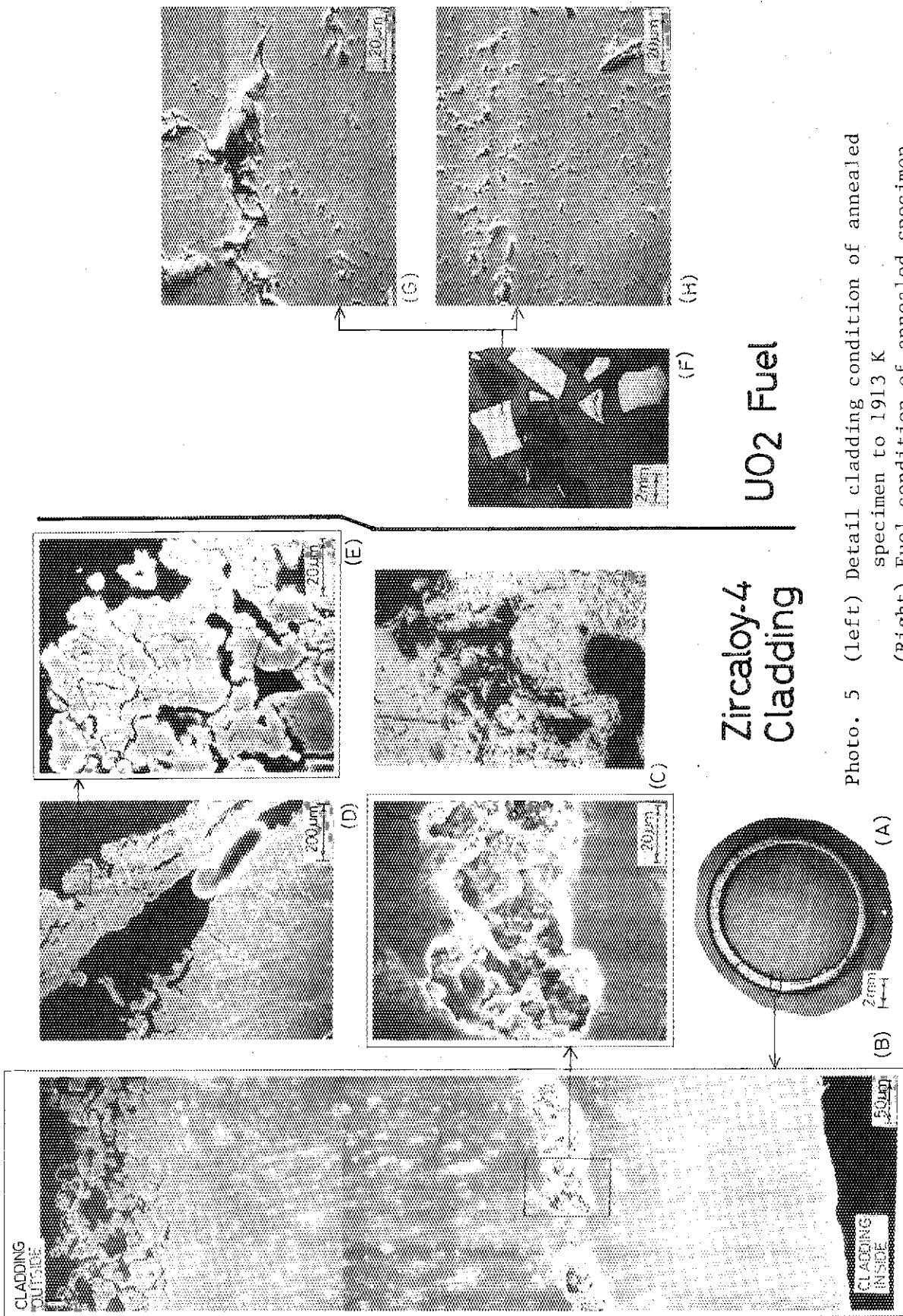


Photo. 5 (left) Detail cladding condition of annealed specimen to 1913 K  
 (Right) Fuel condition of annealed specimen, both locations are closed each other.

## 附録 焼鈍試料の外観・金相写真観察結果

### (1) 1873 Kまで焼鈍した燃料試料の外観と金相写真

研磨状態のまま 燃料試料 $0^\circ$ 方向に於て中心, 中央及び端にむかって撮影した写真をPhoto. A.1～A.3に示す。試料研磨はエメリー紙で#80, 180, 400, 800, 1000, 1200, 1500及び3, 1, 1/4粒径のダイヤモンドペーストを用いて行った。

同試料は,  $80\% \text{H}_2\text{O}_2 + 20\% \text{H}_2\text{SO}_4$  溶液を用いてエッチングした。このエッチング状態のまま燃料試料 $0^\circ$ 方向に中心, 中央及び端にむかって撮影した写真をPhoto. A.4～A.6に示す。

Photo. A.7は, 燃料端に観られた径方向割れの詳細である。Photo. A.8は, 燃料端に観られた白点であり, 燃料又はジルカロイ成分中の不純物(例えば, Si)であると考えられる。

$0^\circ$ ,  $90^\circ$ ,  $180^\circ$ 及び $270^\circ$ 方向における, 部分溶融を含む被覆管の研磨状態のままの写真がPhoto. A.9である。この被覆管を,  $\text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O}_2 (30\%) : \text{H}_2\text{O} = 3 : 6 : 21$ の割合で混ぜた混合液でエッチングし, 偏光をかけて撮影したのがPhoto. A.10である。

燃料と被覆管内面との境界面に着目すると, 燃料と被覆管の間に相互作用のなかったことが分る。また, 被覆管外面はHe雰囲気下にあったため,  $\text{ZrO}_2$ 酸化膜も生じていない。

### (2) 1913 Kまで焼鈍した燃料試料の外観と金相写真

研磨状態のまま, 着目 $\text{UO}_2$ 燃料片の金相を撮影したものをPhoto. A.11に示す。同試料をエッチングしたあとの燃料組織の写真をPhoto. A.12に示す。比較的大きさの揃った燃料割れが存在しているのがこの試料の特徴である。

被覆管のエッチング写真をPhoto. A.13に, また研磨状態のまま拡大した被覆管の写真をPhoto. A.14に示す。Photo. A.14から, 被覆管を同心円状に横切る割れがあるが, その前後で結晶粒径が大きく変化していることが分る。また $\text{ZrO}_2$ 酸化膜の形成が被覆管外面に認められない。

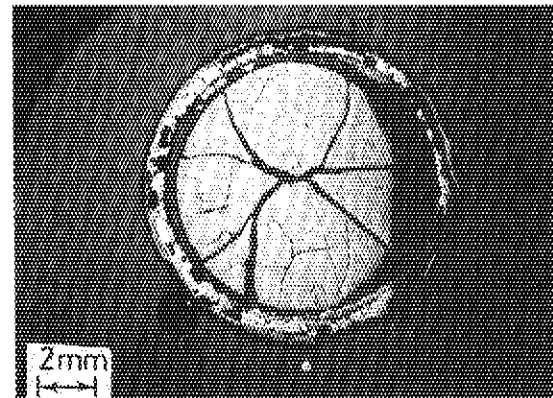
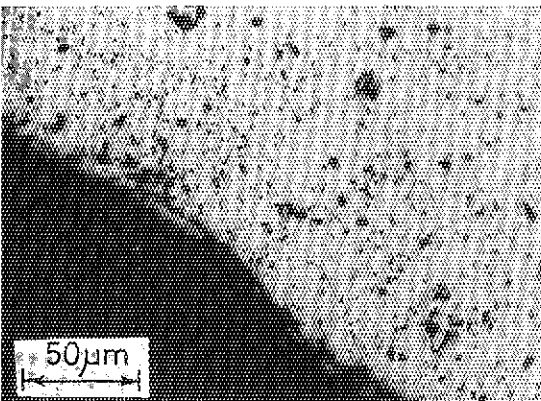
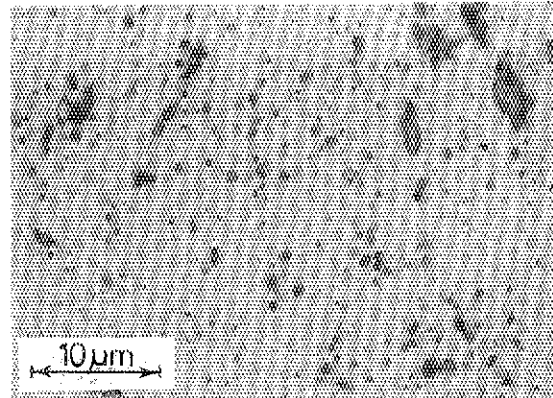
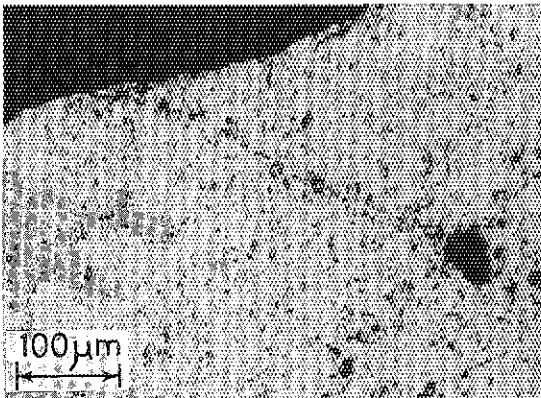
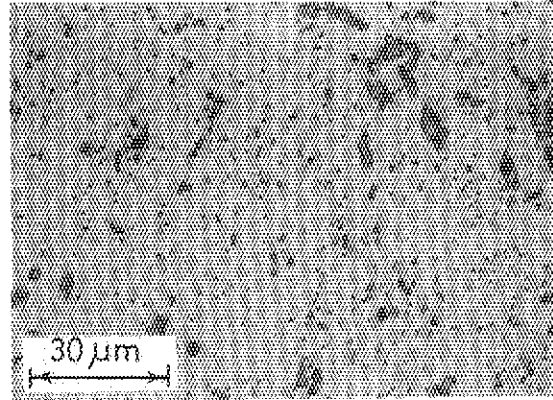
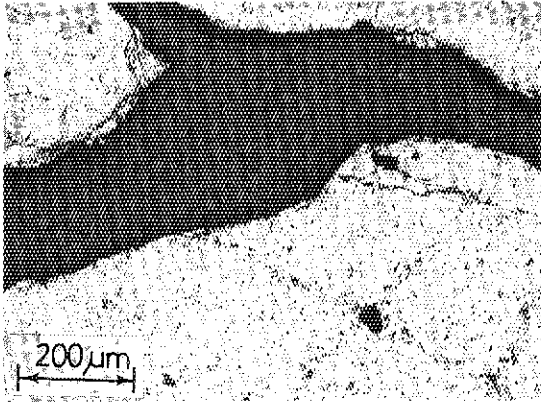


Photo. A.1 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; white spot mark in the macrophotograph is indicating zero orientation, as-polished, fuel center location at zero orientation

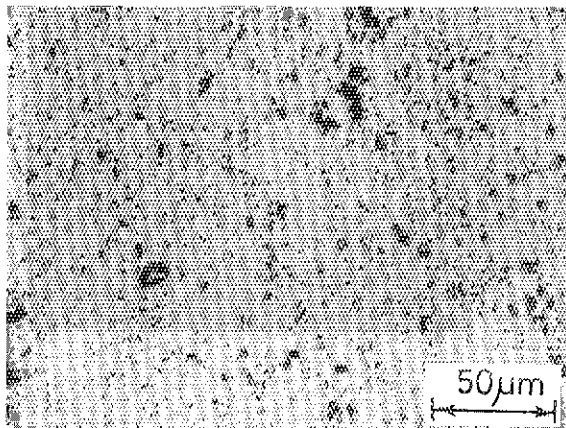
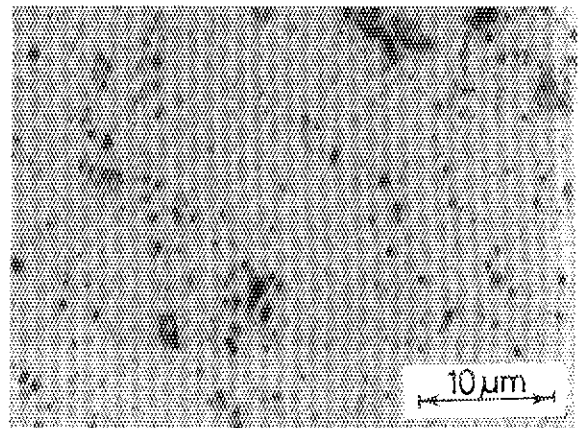
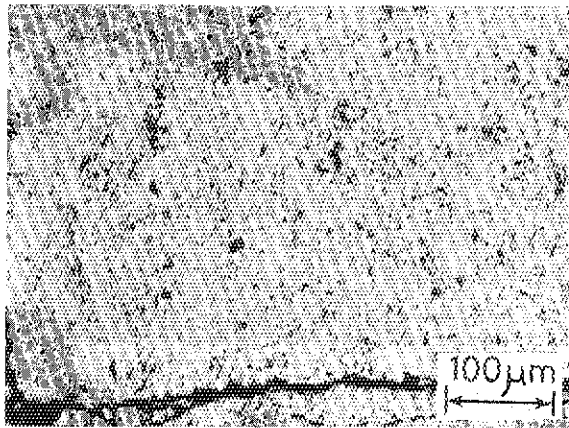
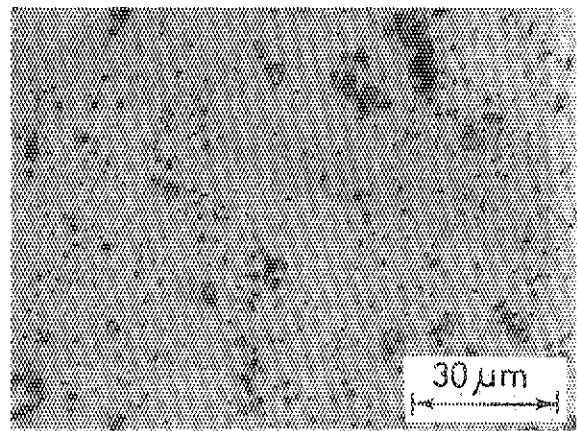
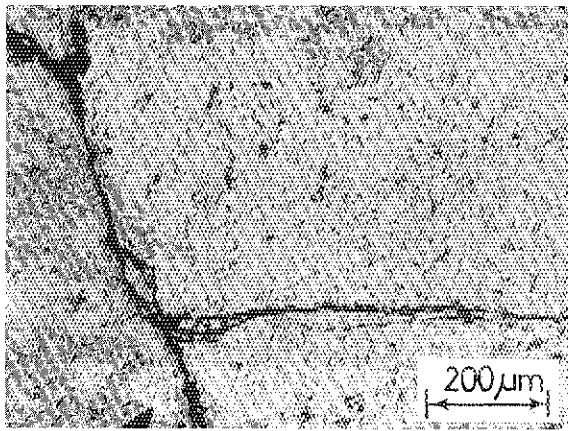


Photo. A.2 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K;  
As-polished, fuel middle location at zero orientation

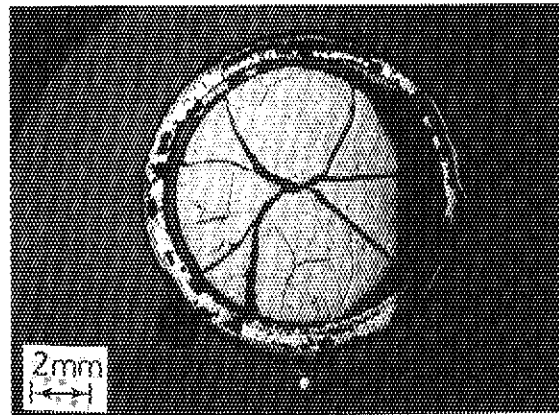
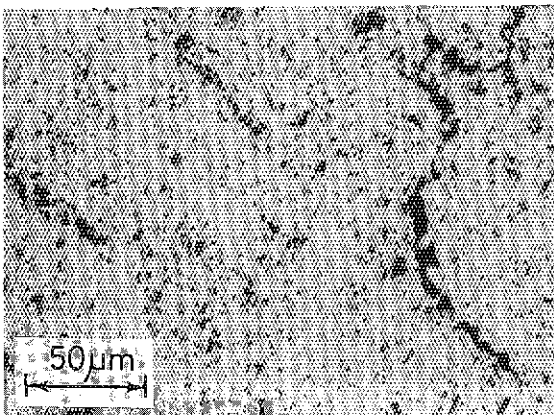
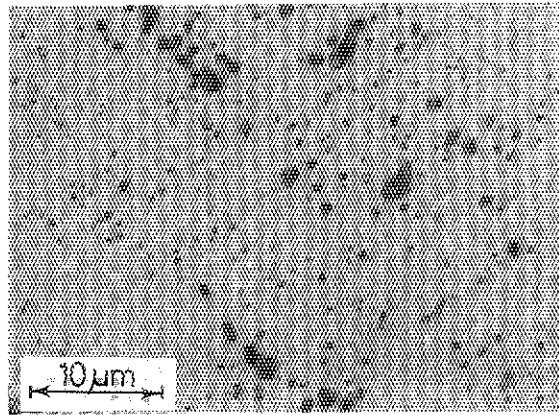
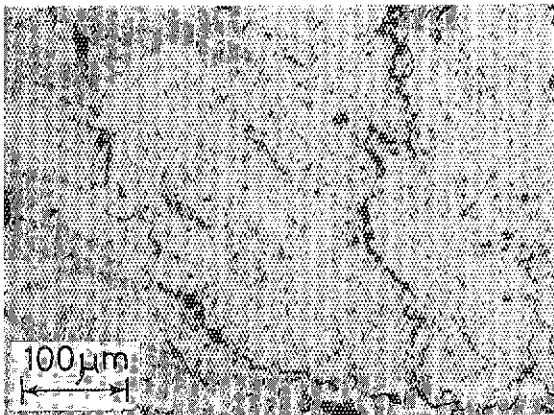
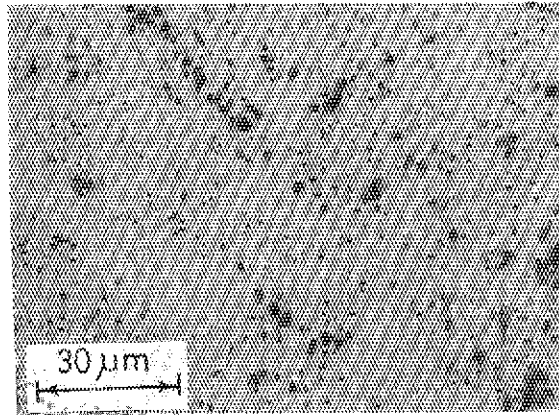
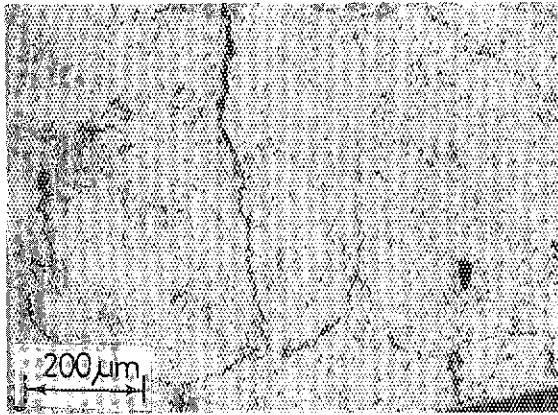


Photo. A.3 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; white spot mark in the macrophotograph is indicating zero orientation: as-potished, fuel edge location at zero orientation



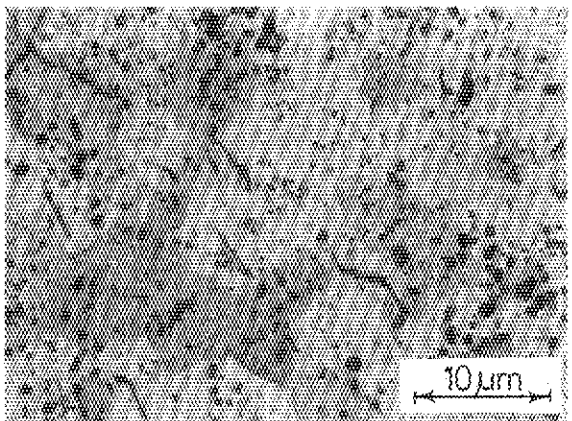
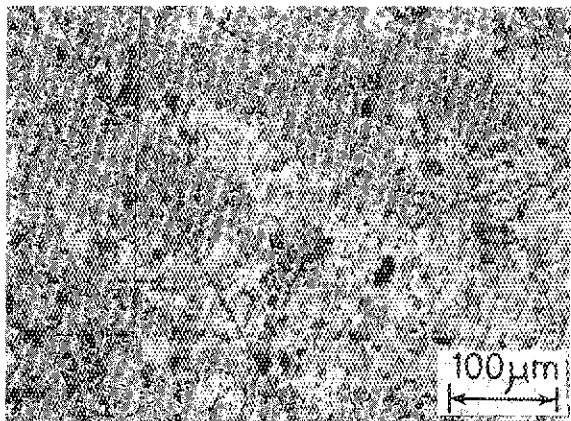
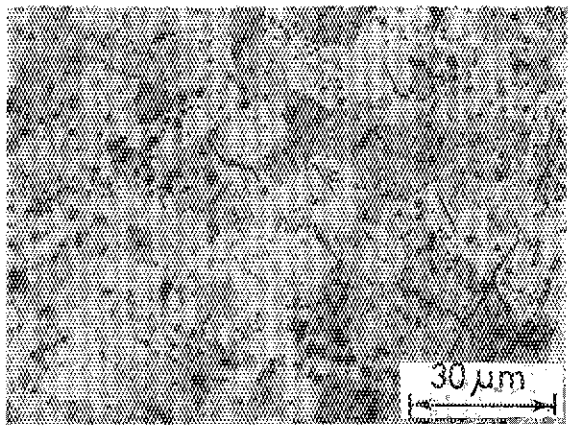
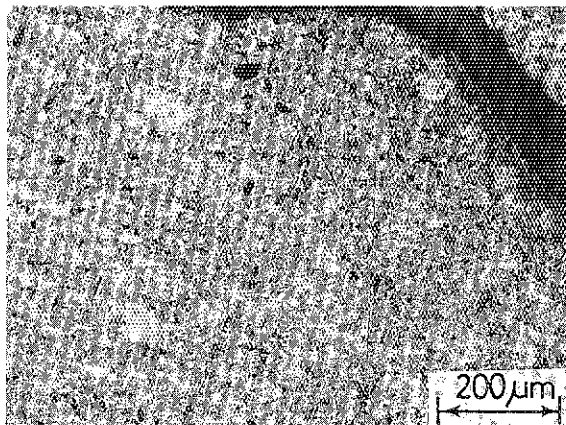
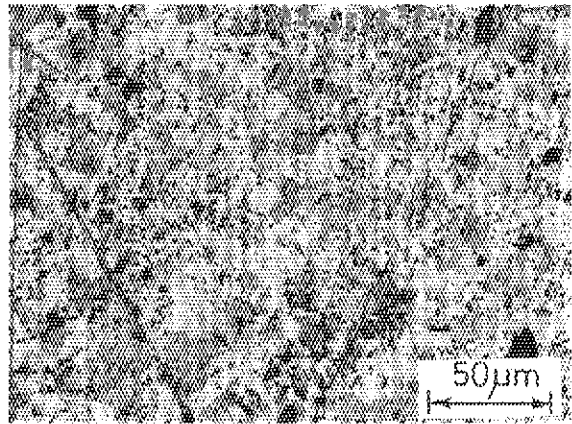
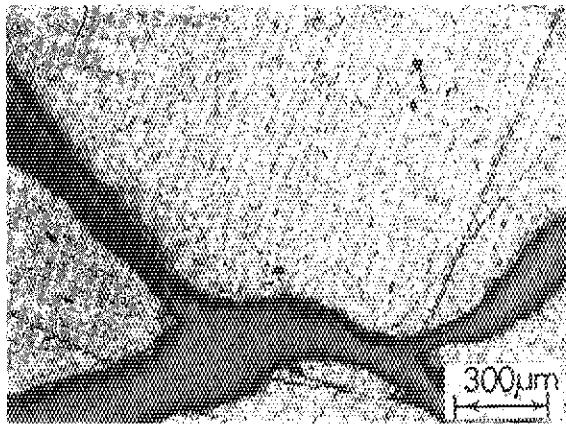


Photo. A.4 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; as-etched, fuel center location at zero orientation

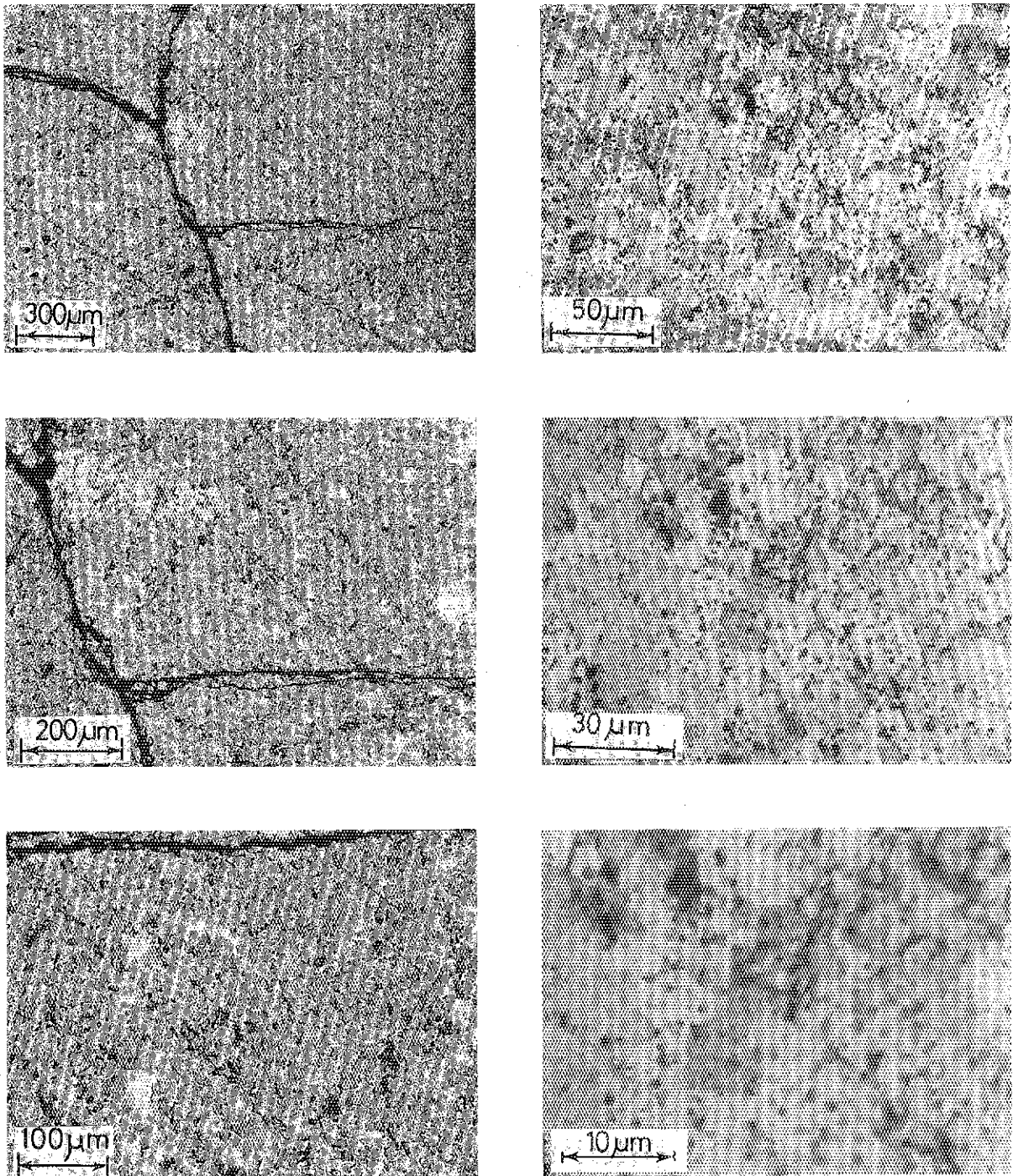


Photo. A.5 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; as-etched, fuel middle location at zero orientation

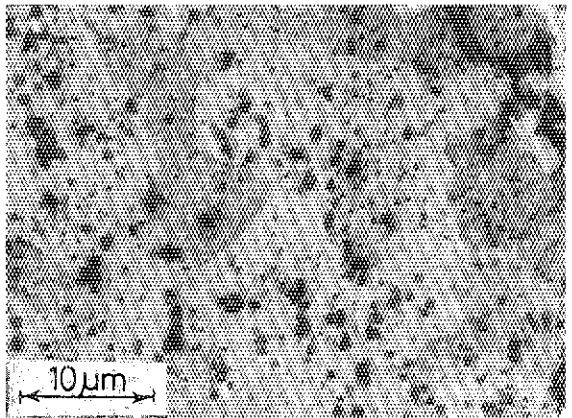
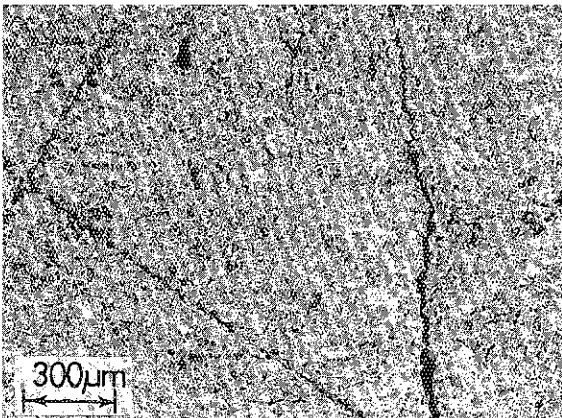
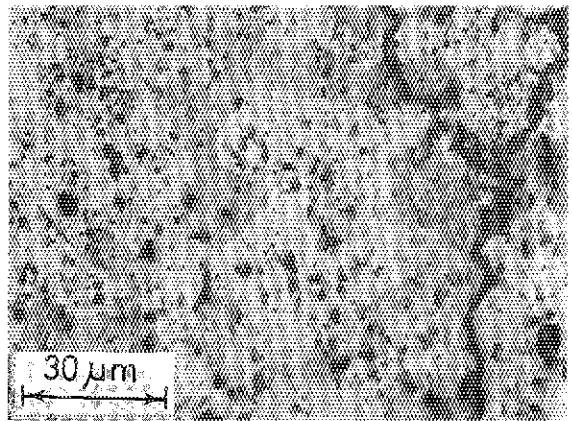
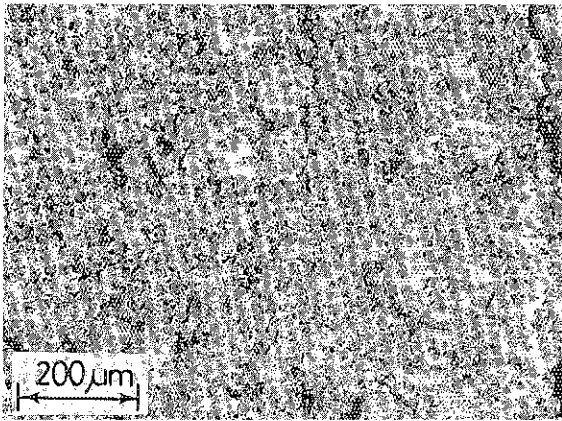
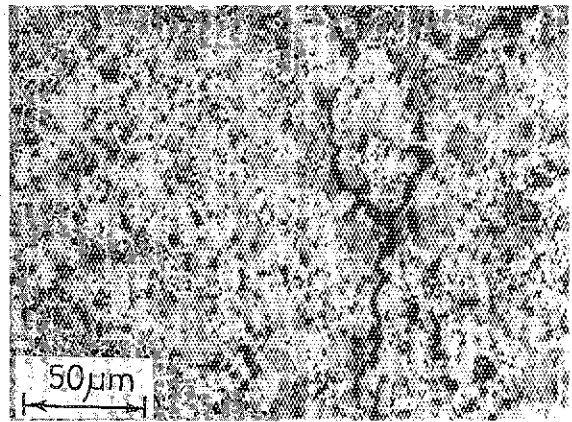
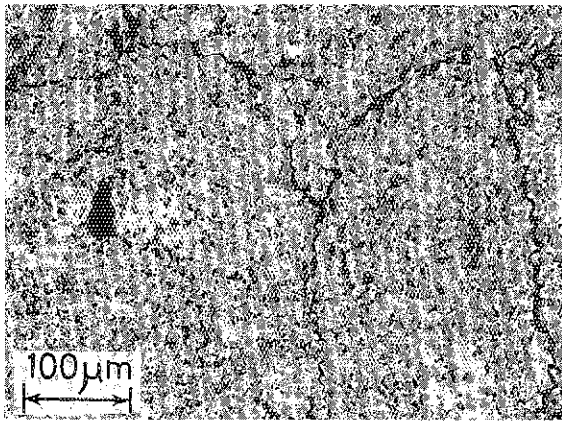


Photo. A.6 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; as-etched, fuel edge location at zero orientation



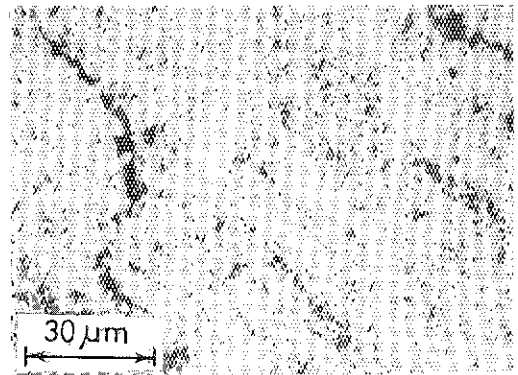
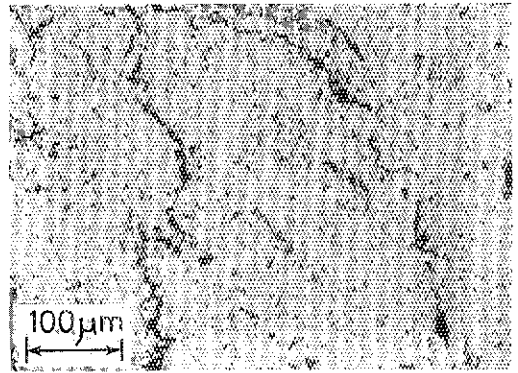
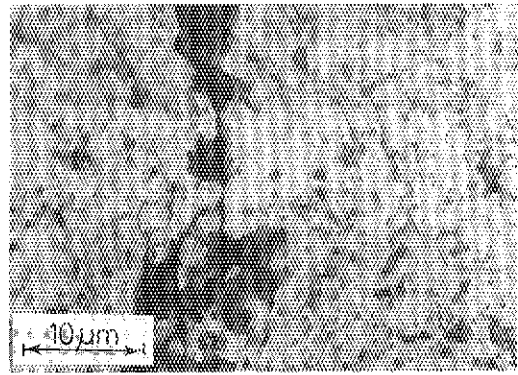
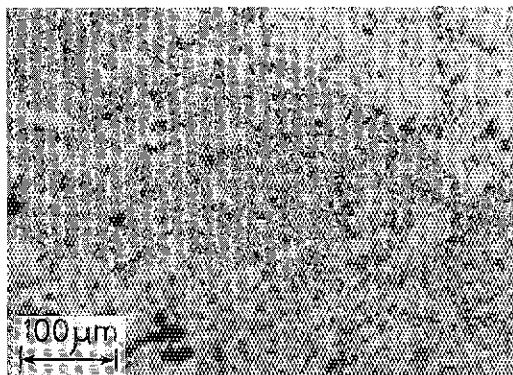
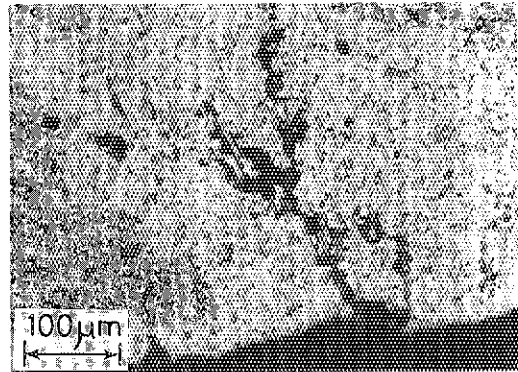
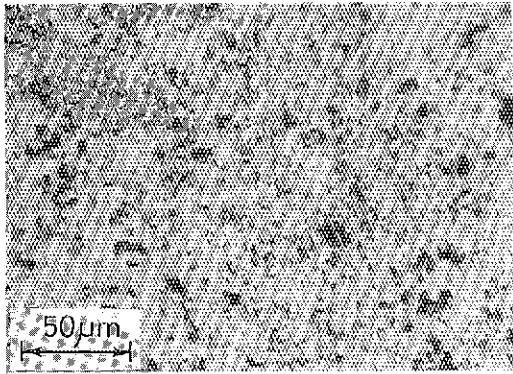


Photo. A.7 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; where radical cracking at fuel edge location is shown

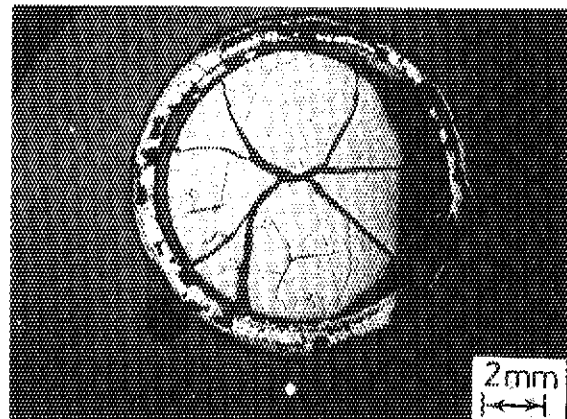
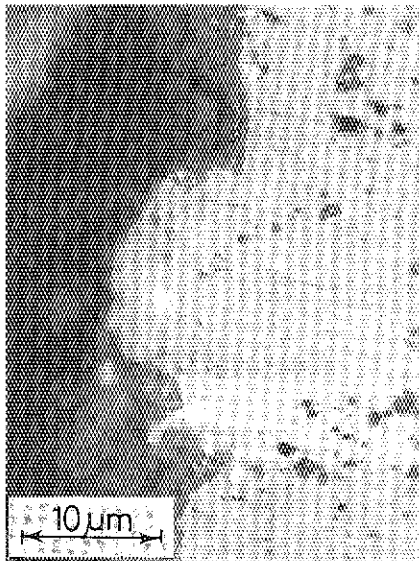
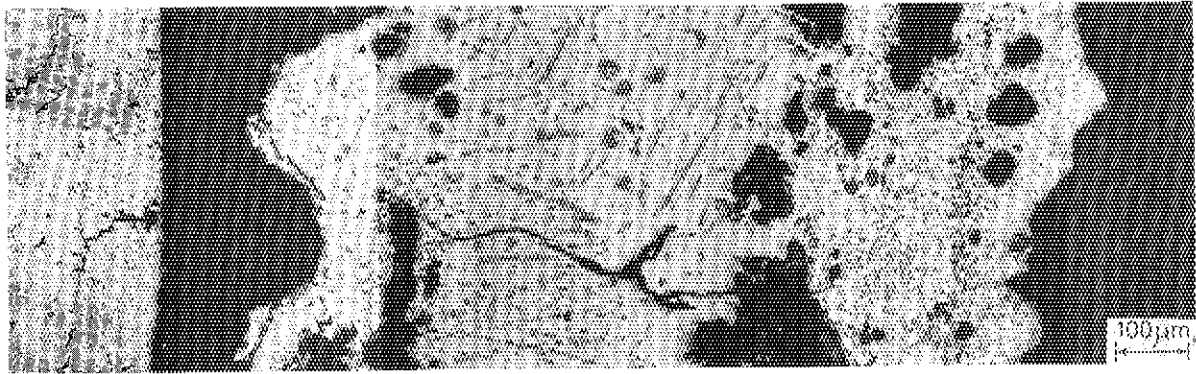
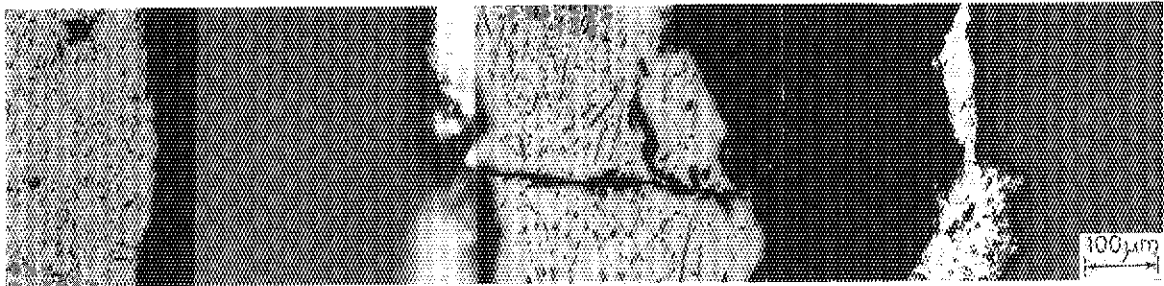


Photo. A.8 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1873 K; lots of white spots at fuel edge location are observed.



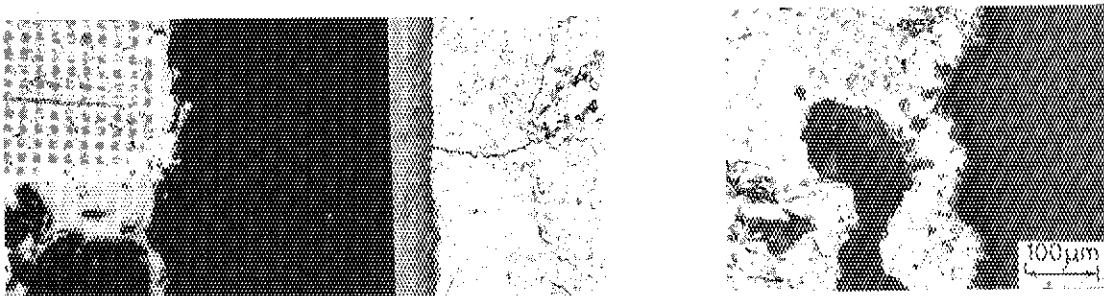
ORIENTATION: 0°



90°

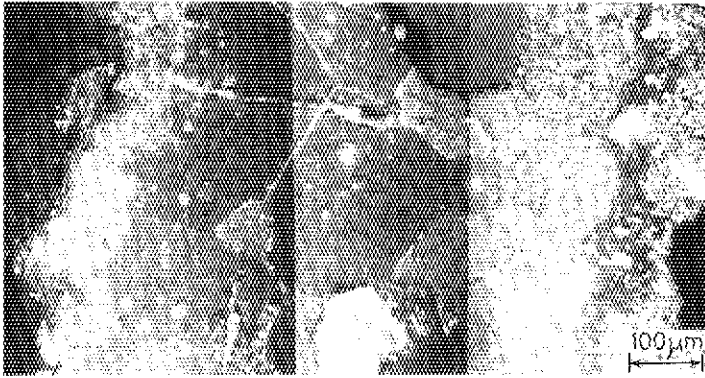


180°



270°

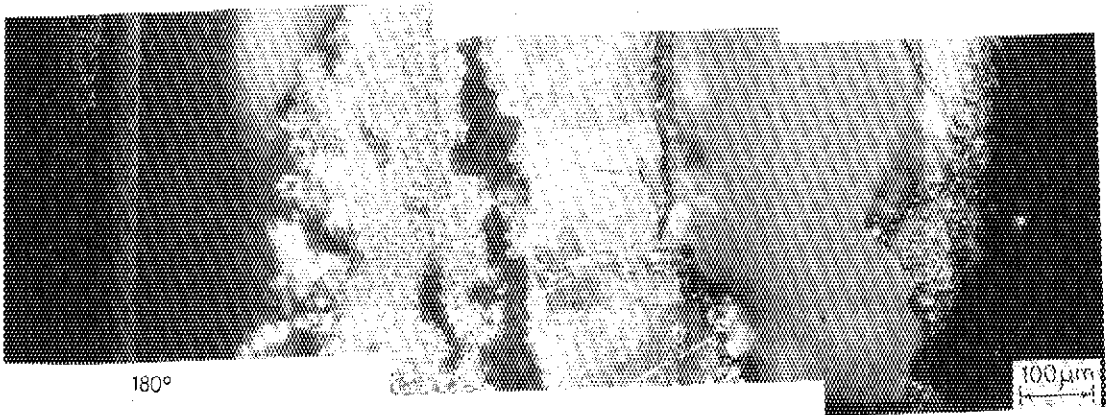
Photo. A.9 Detail condition of cladding annealed to 1873 K or more; photographs were taken at representative four different orientations: as-polished



ORIENTATION: 0°



90°



180°



270°

Photo. A.10 Polarized cladding condition, annealed at 1873 K or more;

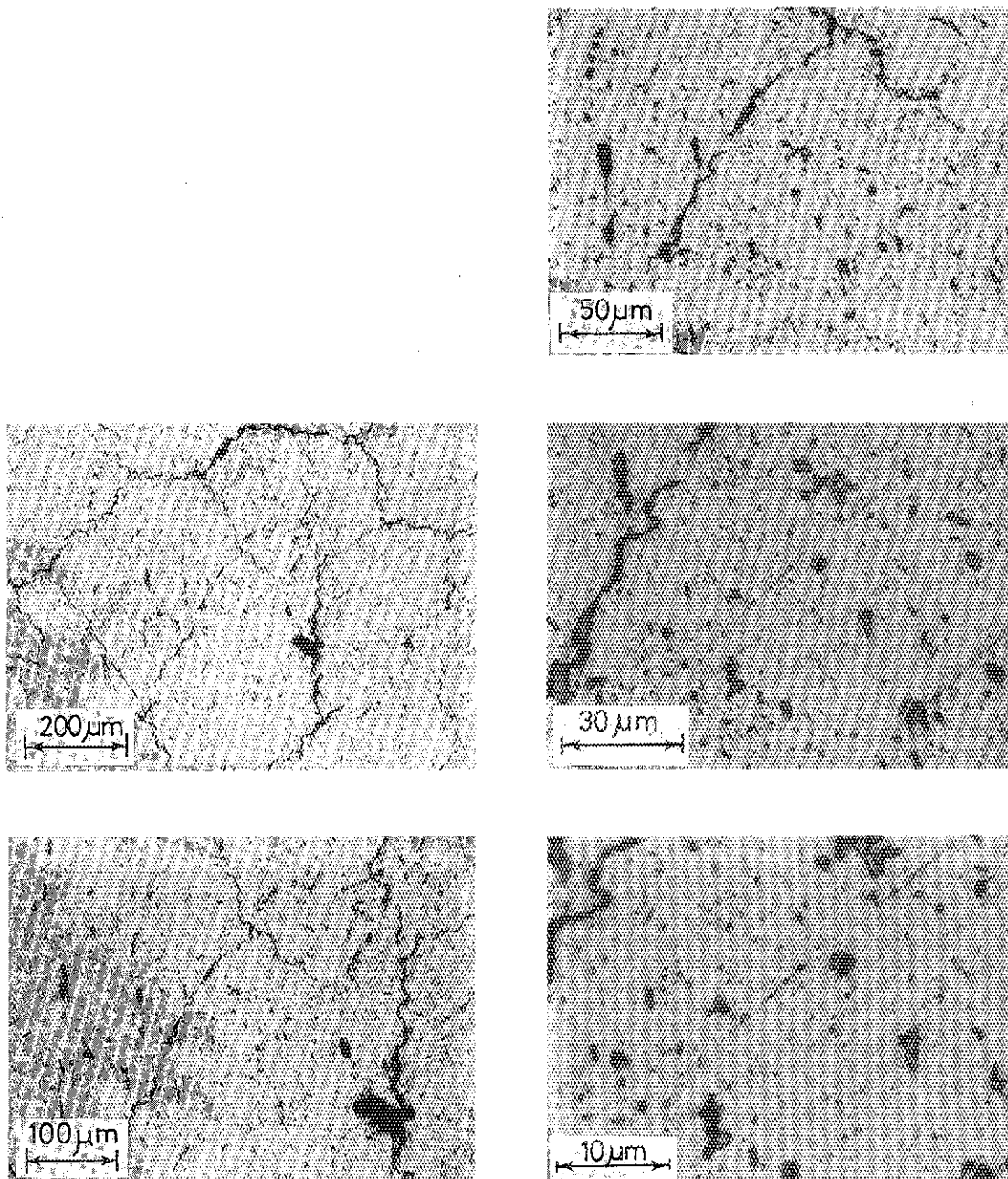
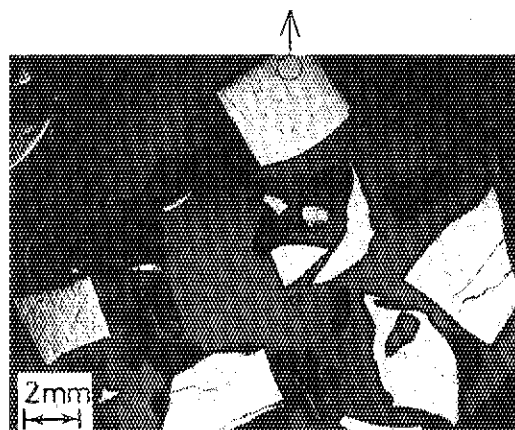


Photo. A.11 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1913 K; microphotographs were taken from marked region in the macrophotograph (right bottom); as-polished





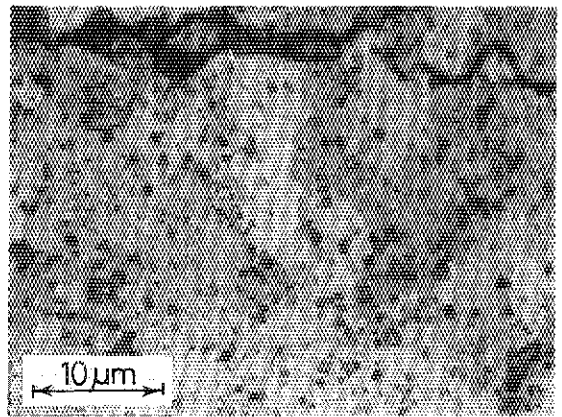
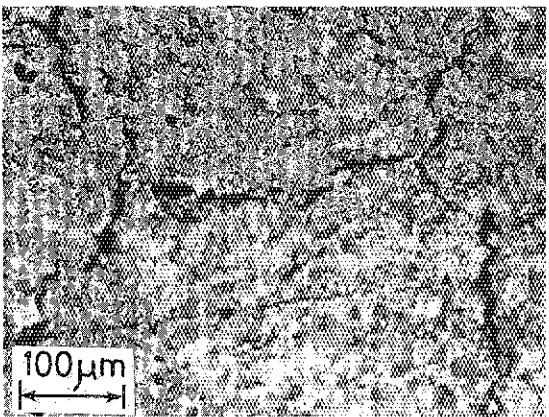
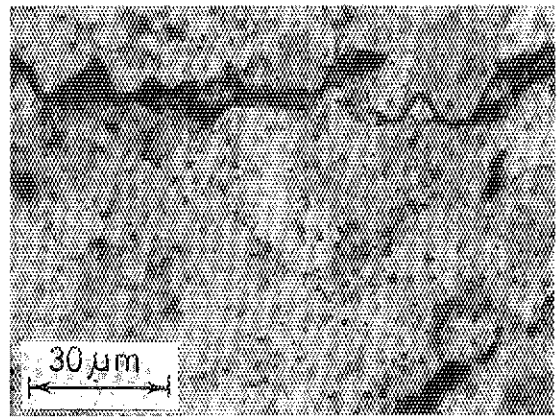
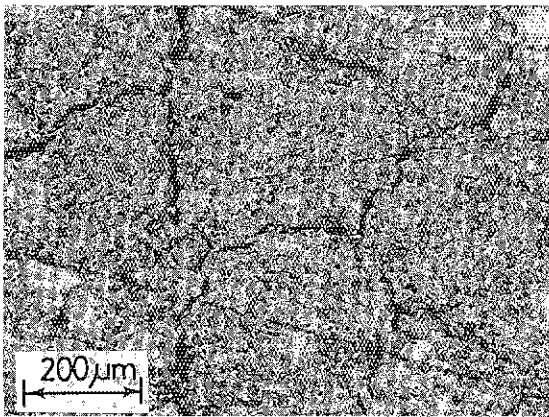
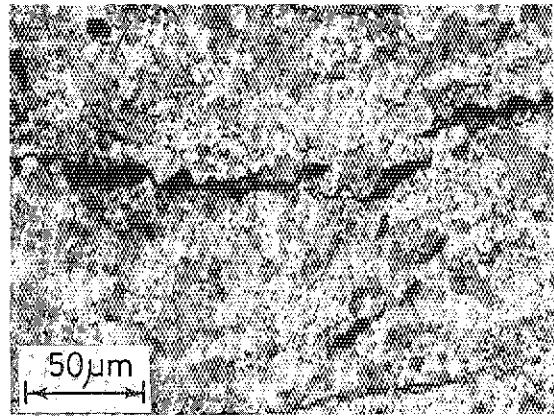
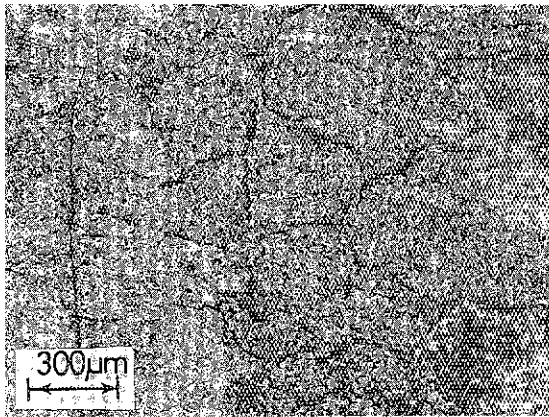


Photo. A.12 Cross sectional overview of annealed fuel specimen to 1913 K; as-etched.

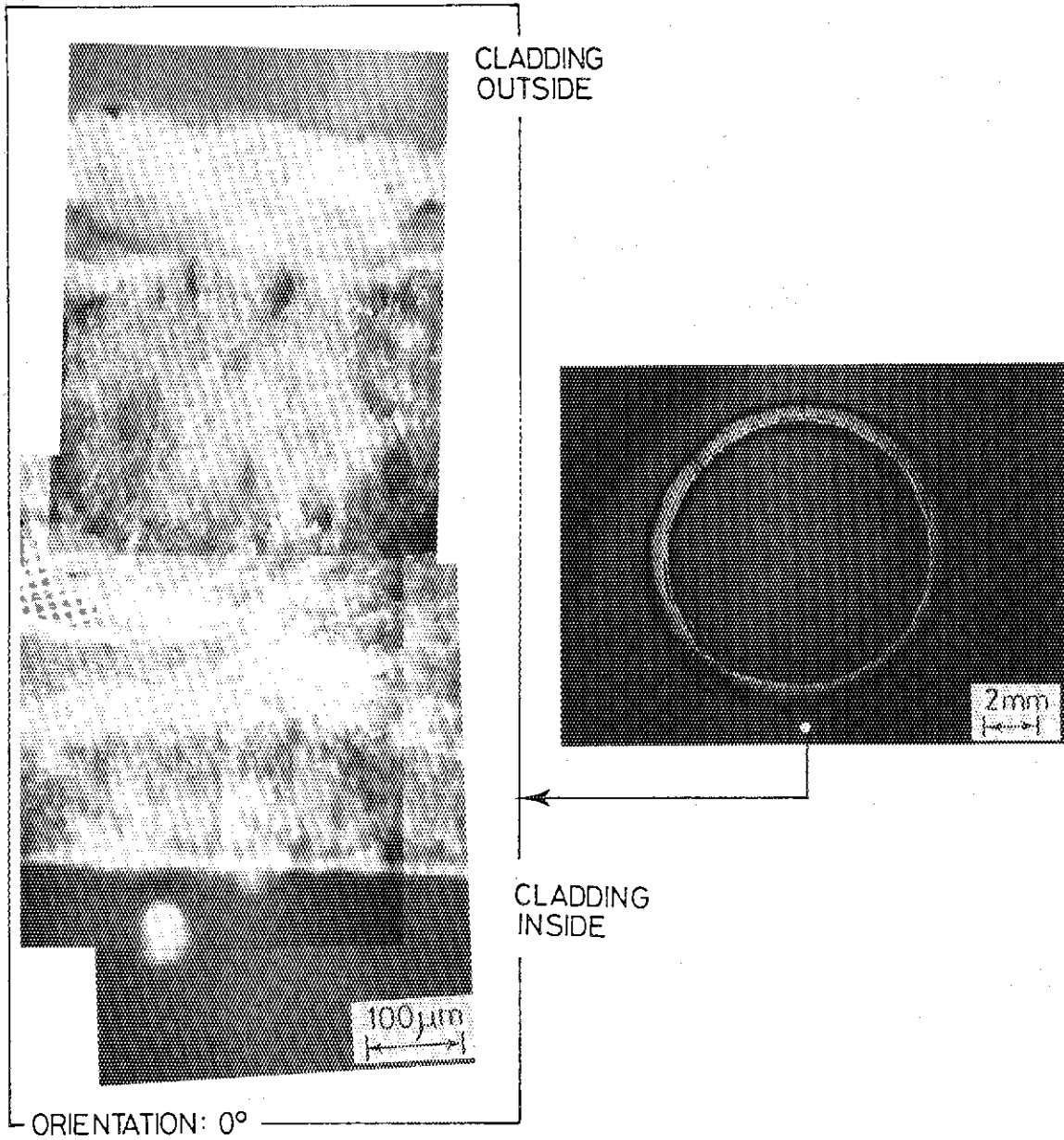


Photo. A.13 (Left) cross section of etched cladding annealed to 1913 K and (right) macrophotograph of the cladding, in which white spot is indicating zero orientation

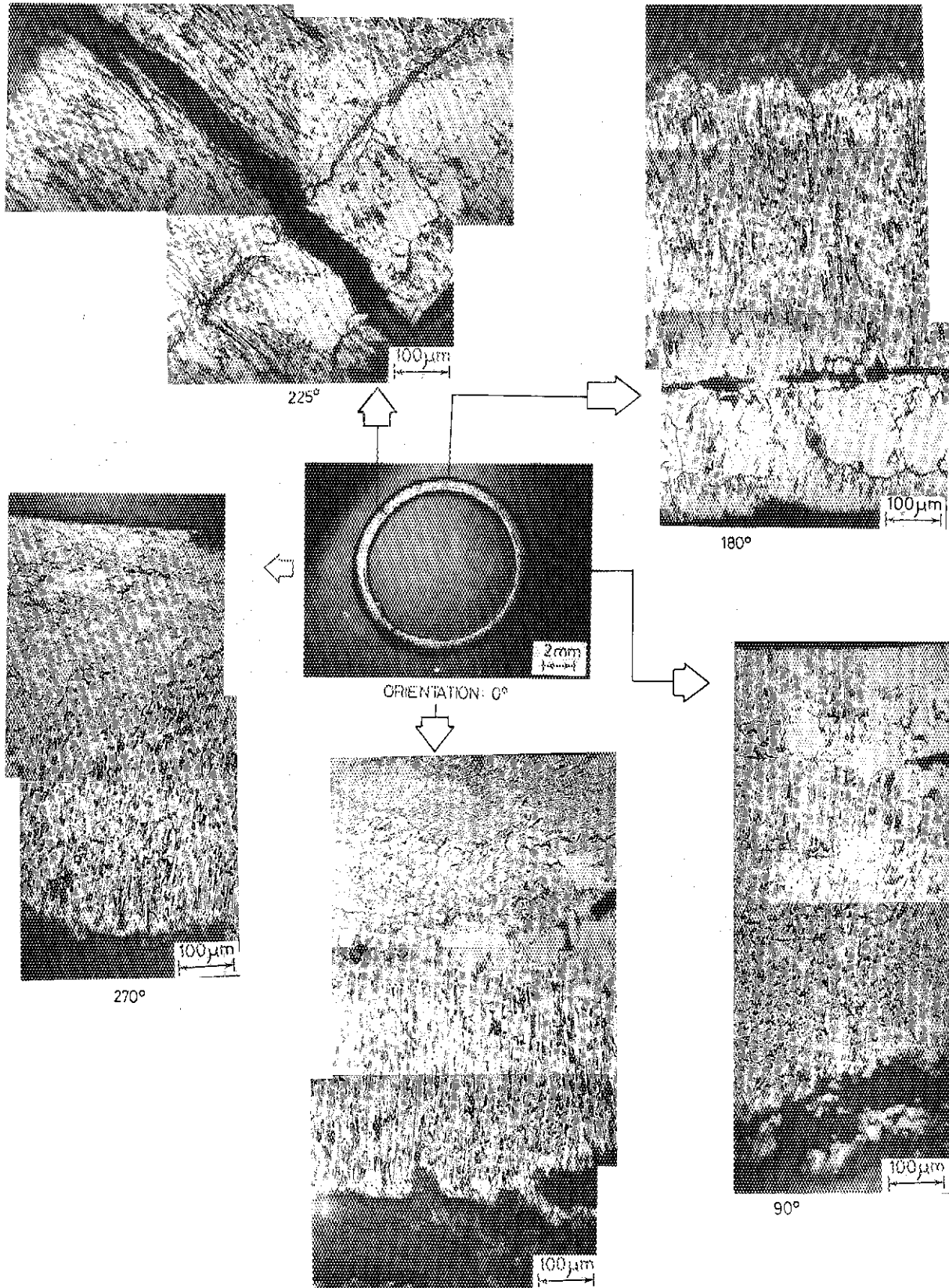


Photo. A.14 Representative cladding condition of fuel specimen annealed to 1913 K; as-polished