

JAERI-M
89-078

外面腐食燃料棒の反応度事故 (R I A)
時の挙動に関する研究

1989年6月

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、お申しこしてください。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, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

外面腐食燃料棒の反応度事故 (R I A) 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

笹島 栄夫

(1989年5月25日受理)

燃料の燃焼度を高め、炉内滞在時間を長くしようとする際に、燃料棒の健全性上問題となるものに被覆管の外面腐食がある。

現在、高燃焼度燃料においては、燃焼度の増加とともに増加する被覆管の酸化膜が水側腐食の問題として重要となってきた。

本実験では、酸化膜厚さをパラメータとした模擬実験の第1段階として、燃焼度を関数とした酸化膜厚さが三乗則に変わるしきい値と考えられる酸化膜厚さ $10\mu\text{m}$ 、及び我が国の大多数のPWR型原子炉の燃料が現在までに経験している最大の酸化膜厚さに近い $20\mu\text{m}$ を選ぶこととした。このため、PWR型燃料棒の被覆管外面に $10\mu\text{m}$ 及び $20\mu\text{m}$ の酸化膜を有する未照射の酸化膜を模擬した燃料棒(加圧範囲 $3.47\sim 3.55\text{MPa}$)を準備し、パルス照射によって反応度事故(R I A)時における燃料挙動を研究した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 本実験の燃料棒加圧範囲では、外面腐食燃料棒の破損しきいエンタルピー値は $110\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ ($0.46\text{kJ/g}\cdot\text{fuel}$)となった。この値は、外面腐食のないNSRR加圧標準燃料棒の破損しきい値と同程度であった。
- (2) 外面腐食燃料棒の破損形態は、ふくれによる破裂破損であった。これは、従来のNSRR加圧標準燃料棒の破損形態と同じであった。
- (3) 酸化層ではクラックを生じたが、それが金属母材の中まで進行することはなく、破損のイニシエーターにはならなかった。
- (4) 本実験の範囲内では、金属母材の酸化膜厚みの増加による破覆管厚みの減少は、破損しきい値には影響をあたえなかった。

Study on the Behavior of Waterside
Corroded PWR Fuel Rods under Reactivity
Initiated Accident Conditions

Hideo SASAJIMA

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

(Received May 25, 1989)

One of the highlighted problems from the fuel reliability point of view is a waterside corrosion of fuel cladding which becomes more significant at extended burnup stages.

To date, at highly burned fuel, waterside corrosion was recognized as important because cladding oxidation increased with increasing burn-up.

In experiments, as the basic research for the study of high burn-up fuel, the test fuel rods were prepressurized to ranges from 3.47 to 3.55 MPa, oxidized artificially to both 10 and 20 μm in thickness.

Regarding fabricated oxide thickness of 10 μm , it is corresponded to be transition point from cubic law to linear law as a function of burn-up.

Pulse irradiation experiments by NSRR were carried out to study the behavior of waterside corroded PWR type fuels under RIA conditions.

Obtained results are:

- (1) The failure threshold of tested fuels was 110 cal/g·fuel (0.46 kJ/g·fuel) in enthalpy. This showed that the failure threshold of tested fuels was same as that of the past NSRR experimental data.
- (2) The failure mechanisms of the tested fuel rods was cladding rupture induced by ballooning. No differences in failure mechanisms existed between the past NSRR prepressurized standard fuels and the tested fuels.
- (3) Cracks were existed without propagating into cladding matrix, so that it was judged that these were not initiation of failure.

(4) Whithin this experimental condition, reduction of cladding thickness being attributed to the increase of oxidation did not failure threshold.

Keywords: NSRR, Waterside Corrosion, Cladding, Burnup, Oxidation PWR, Failure Threshold, Bollooning

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	1
2.1 燃料棒	1
2.2 実験マトリクス	2
2.3 酸化膜厚の決定	2
2.4 パルス照射	3
3. 実験結果と考察	3
3.1 破損しきい値	3
3.2 照射後試験	3
3.3 燃料の過渡挙動	4
4. 結言	5
謝辞	6
参考文献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental method	1
2.1 Fuel rod	1
2.2 Experimental matrix	2
2.3 Determination of oxide thickness	2
2.4 Pulse irradiation	3
3. Experimental results and discussion	3
3.1 Failure threshold	3
3.2 Post-irradiation examination	3
3.3 Fuel behavior	4
4. Conclusions	5
Acknowledgement	6
References	7

1. はじめに

発電用軽水型原子炉燃料棒では、燃料の高燃焼度化や負荷追従運転といった、これまでよりもより柔軟な条件下で燃料を使用する機運が高まりつつある。

燃焼度の伸長とともに、燃料破損に対する防止の観点から考慮すべき技術的検討課題の1つに、被覆管の水側腐食と水素化の問題がある。

炉内高温水中で、ジルカロイ被覆管は外面からの酸化が進み酸化ジルコニウムの皮膜が表面に形成され、「水側腐食」として問題となる。また、酸化反応によって生成された水素は、その一部が皮膜を通じて金属中に侵入し水素化物として析出する。この水素化物は金属水素化物中最も安定で、ジルカロイの特定結晶面に板状に析出するため、延性低下をもたらす。^(5,10,11,22)

反応度事故における急激な過度出力上昇時における燃料棒の安全基準に関しては、「発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針」が定められているが、水側腐食のある燃料に関するデータベースは、現在必ずしも十分ではない。

高燃焼度燃料においては、燃焼度とともに増加する被覆管の酸化膜が、被覆管の脆化に重要な問題となってきているが、本報告書では、酸化膜厚をパラメータとして、我が国の発電炉で使用されている17×17型PWR燃料の設計仕様をベースに、高燃焼度燃料の酸化膜厚を模擬した実験の第1段階として、被覆管外面の酸化膜厚さ10μm、水素吸収量50ppm及び、被覆管外面の酸化膜厚さ20μm、水素吸収量120μmの2種の燃料棒を作製し、指針作成時にデータベースとなったNSRR加圧標準燃料棒との性能を相互比較することによりRIA条件下での水側腐食及び水素化による影響を調べた。さらに、実験に用いた燃料の破損しきい値と燃料許容設計限界値との比較も行った。ここで、10μmの酸化膜厚さというのは、燃焼度を関数とした酸化膜厚さが三乗則から線形則に変わるしきい値と考えられるものであり、また、20μmの酸化膜厚さというのは、我が国の大多数のPWR型原子炉の燃料が現在までに経験している酸化膜厚さである。

なお、反応度投入事故に対する安全評価指針では発熱量のかわりに燃料エンタルピ（以下、エンタルピ値）を用いているので、本実験でも破損しきい値の比較の場合には、発熱量をエンタルピ値に変換し、これを用いた。

2. 実験方法

2.1 燃料棒

実験に用いた燃料棒は、Table 1 及び Fig.1 に示すようなNSRR標準燃料（PWR仕様）である。燃料棒はすべて3.47～3.55MPaの範囲で加圧した。加圧ガス組成は95% He + 1% Kr + 4% Xeとしたが、これは商用炉（PWR）において40MWd/kgまで照射し、0.6%のFP

1. はじめに

発電用軽水型原子炉燃料棒では、燃料の高燃焼度化や負荷追従運転といった、これまでよりもより柔軟な条件下で燃料を使用する機運が高まりつつある。

燃焼度の伸長とともに、燃料破損に対する防止の観点から考慮すべき技術的検討課題の1つに、被覆管の水側腐食と水素化の問題がある。

炉内高温水中で、ジルカロイ被覆管は外面からの酸化が進み酸化ジルコニウムの皮膜が表面に形成され、「水側腐食」として問題となる。また、酸化反応によって生成された水素は、その一部が皮膜を通じて金属中に侵入し水素化物として析出する。この水素化物は金属水素化物中最も安定で、ジルカロイの特定結晶面に板状に析出するため、延性低下をもたらす。^(5,10,11,22)

反応度事故における急激な過度出力上昇時における燃料棒の安全基準に関しては、「発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針」が定められているが、水側腐食のある燃料に関するデータベースは、現在必ずしも十分ではない。

高燃焼度燃料においては、燃焼度とともに増加する被覆管の酸化膜が、被覆管の脆化に重要な問題となってきているが、本報告書では、酸化膜厚をパラメータとして、我が国の発電炉で使用されている17×17型PWR燃料の設計仕様をベースに、高燃焼度燃料の酸化膜厚を模擬した実験の第1段階として、被覆管外面の酸化膜厚さ10μm、水素吸収量50ppm及び、被覆管外面の酸化膜厚さ20μm、水素吸収量120μmの2種の燃料棒を作製し、指針作成時にデータベースとなったNSRR加圧標準燃料棒との性能を相互比較することによりRIA条件下での水側腐食及び水素化による影響を調べた。さらに、実験に用いた燃料の破損しきい値と燃料許容設計限界値との比較も行った。ここで、10μmの酸化膜厚さというのは、燃焼度を関数とした酸化膜厚さが三乗則から線形則に変わるしきい値と考えられるものであり、また、20μmの酸化膜厚さというのは、我が国の大多数のPWR型原子炉の燃料が現在までに経験している酸化膜厚さである。

なお、反応度投入事故に対する安全評価指針では発熱量のかわりに燃料エンタルピ（以下、エンタルピ値）を用いているので、本実験でも破損しきい値の比較の場合には、発熱量をエンタルピ値に変換し、これを用いた。

2. 実験方法

2.1 燃料棒

実験に用いた燃料棒は、Table 1 及び Fig.1 に示すようなNSRR標準燃料（PWR仕様）である。燃料棒はすべて3.47～3.55MPaの範囲で加圧した。加圧ガス組成は95%He+1%Kr+4%Xeとしたが、これは商用炉（PWR）において40MWd/kgまで照射し、0.6%のFP

ガス放出率を示した17×17 PWR燃料を燃料⁽⁷⁾をモデルにしたものである。

濃縮度は10w/oであり、燃料有効長は135mmである。この燃料棒を6本製造した。このうち4本の燃料棒については、450°Cの酸素雰囲気中で被覆管外面に酸化膜を形成し、400°Cの水素ガス雰囲気中に一定時間保持し水素吸収を行った。

各燃料棒には、燃料棒の内圧変化を測定するための内圧計、被覆管の長手方向の伸びを測定するための被覆管伸び計、ペレットの長手方向の伸びを測定するための変位及びムーブメントマーカー並びに被覆管表面温度計の計装を取り付けて燃料挙動を観察した。

2.2 実験マトリクス

準備した6本の燃料棒を二組に分けて、Table 2の様にした。即ち、実験525-1では、外面酸化膜厚さ10μm及び20μmを施した燃料棒と外面酸化膜を付けない燃料棒（以下、レファレンス棒）計3本を大気圧カプセルに装荷し、同時にパルス照射し、129 cal/g・fuelの発熱量を与えた。また同様に実験525-2でも外面酸化膜厚さ10μm及び20μmを設した燃料棒と外面酸化膜を付けない燃料棒計3本を大気圧カプセルに装荷し、同時にパルス照射し、158 cal/g・fuelの発熱量を与えた。

Fig.2は、本実験に用いた大気圧カプセルの概要を示している。また、Fig.3は、実験に於て被覆管に取り付けたPt/Pt-13%Rh熱電対の軸方向位置と取り付け角度及びカプセルの軸方向中央位置に於ける断面図を示している。図から分かる様に、外面酸化膜を付けない1本の燃料棒に3本の熱電対を取り付け、被覆管の表面温度データを測定した。なお、外面酸化膜を付けた燃料棒には酸化膜除去による燃料挙動への影響を避けるため熱電対は取り付けなかった。3本の燃料棒は半径18mmピッチ円上に120°の角度でセットした。

2.3 酸化膜厚の決定

被覆管外面に施した酸化膜の厚さは、Fig.4に示すGarzarolliらのC-E/KWUの包絡線⁽¹⁾の上限値を用いて決定した。これによれば、燃焼度10及び20 MWd/kg Uに対する酸化膜厚さはそれぞれ10μm及び20μmとなる。また、水素吸収量については、Fig.5に示すGarzarolliらの酸化膜厚さと水素吸収量の関係⁽¹⁰⁾を参考にして、腐食反応で生成した水素量の10～15%が被覆管に吸収されるとした。酸化膜厚さ10μmの水素吸収量は50ppm、酸化膜厚さ20μmの水素吸収量は120ppmとし、Fig.5に星印として示した。また、Photo.1には酸化膜と水素化物のパルス照射前の金相写真を示す。

ここで、実際に炉内照射された燃料の被覆管に付いた酸化膜の形態と比べてみると、酸化膜の微細な割れ及び被覆管の温度勾配により生じる水素化物の径方向分布⁽⁸⁾を除けば、燃焼度10及び20 MWd/kg・Uの燃料棒を良く模擬できたと考えられる。

2.4 パルス照射

実験は、Fig.2 に示す大気圧カプセルに、レファレンス棒及び酸化膜厚さの異なる2本の外面酸化膜付燃料棒の計3本を装荷し同時にパルス照射を行った。実験は発熱量を $129 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ 及び $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ と変え、Table 3 に示すように2回行った。燃料棒に与えられた発熱量については、後に発熱量較正試験を行い決定した。

パルス照射後、使用カプセルは約4週間冷却され、除荷された。除荷後、照射燃料棒を取り出し、詳細な照射後試験を実施した。

3. 実験結果と考察

3.1 破損しきい値

外面腐食燃料棒及びレファレンス燃料棒に関する発熱量（燃料エンタルピ値で表示）及び燃料棒と冷却材間の圧力差の関係をFig.6に示す。図には、NSRRの標準試験燃料によって得られた破損しきい値も示した。図からわかるように、外面腐食燃料棒の破損しきい値は、 $110 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ であった。これは、従来のNSRR実験の結果とほぼ同じであり、本実験の範囲内では、被覆管表面を腐食した燃料棒に対して従来の値は十分適用可能であることが明らかとなった。

Fig.7は、酸化膜厚さの影響を明らかにするために、破損しきい値を酸化膜厚さでプロットしたものである。この図からも、本実験の範囲内では、外面腐食燃料棒の破損しきいエンタルピ値が約 $110 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ であることがわかる。

3.2 照射後試験

3.2.1 軸方向の出力分布

外面腐食燃料棒の軸方向出力分布を測定したところ、Fig.8の様な結果を得た。図から分かる様に、燃料棒には底部と頂部の2箇所に出力ピーキングが生じた。このピーキング係数は1.06であった。

これまでの記述で用いて来た発熱量の値は、燃料中央部に関するものであるから、底部及び頂部位置の局所発熱量は、平均 $129 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ に対し $137 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ 、また、平均 $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ に対し $168 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ となっている。この出力ピーク位置は、燃料棒が大きくふくれたり、または破損が生じた位置である。

3.2.2 金相検査

Photo.2は発熱量 $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ でパルス照射した燃料棒の照射後の横断面写真を示したものである。レファレンス棒は若干のふくれを生じたが破損にはいたらなかった。一方、外面腐

2.4 パルス照射

実験は、Fig.2 に示す大気圧カプセルに、レファレンス棒及び酸化膜厚さの異なる2本の外面酸化膜付燃料棒の計3本を装荷し同時にパルス照射を行った。実験は発熱量を $129 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ 及び $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ と変え、Table 3 に示すように2回行った。燃料棒に与えられた発熱量については、後に発熱量較正試験を行い決定した。

パルス照射後、使用カプセルは約4週間冷却され、除荷された。除荷後、照射燃料棒を取り出し、詳細な照射後試験を実施した。

3. 実験結果と考察

3.1 破損しきい値

外面腐食燃料棒及びレファレンス燃料棒に関する発熱量（燃料エンタルピ値で表示）及び燃料棒と冷却材間の圧力差の関係をFig.6に示す。図には、NSRRの標準試験燃料によって得られた破損しきい値も示した。図からわかるように、外面腐食燃料棒の破損しきい値は、 $110 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ であった。これは、従来のNSRR実験の結果とほぼ同じであり、本実験の範囲内では、被覆管表面を腐食した燃料棒に対して従来の値は十分適用可能であることが明らかとなった。

Fig.7は、酸化膜厚さの影響を明らかにするために、破損しきい値を酸化膜厚さでプロットしたものである。この図からも、本実験の範囲内では、外面腐食燃料棒の破損しきいエンタルピ値が約 $110 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ であることがわかる。

3.2 照射後試験

3.2.1 軸方向の出力分布

外面腐食燃料棒の軸方向出力分布を測定したところ、Fig.8の様な結果を得た。図から分かる様に、燃料棒には底部と頂部の2箇所に出力ピーキングが生じた。このピーキング係数は1.06であった。

これまでの記述で用いて来た発熱量の値は、燃料中央部に関するものであるから、底部及び頂部位置の局所発熱量は、平均 $129 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ に対し $137 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ 、また、平均 $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ に対し $168 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ となっている。この出力ピーク位置は、燃料棒が大きくふくれたり、または破損が生じた位置である。

3.2.2 金相検査

Photo.2は発熱量 $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ でパルス照射した燃料棒の照射後の横断面写真を示したものである。レファレンス棒は若干のふくれを生じたが破損にはいたらなかった。一方、外面腐

食燃料棒は卵型にふくれ、破裂破損をおこした。

Photo.3は、発熱量 $129 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ で照射した後のレファレンス燃料棒に関する酸化膜の状態を観察したものであり、Photo.4及びPhoto.5は、同発熱量で照射した外面腐食燃料棒に関するものである。また、Photo.6は、発熱量 $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ でパルス照射した後のレファレンス燃料棒に関する酸化膜の状態を観察したものであり、Photo.7及びPhoto.8は、同発熱量で照射した外面腐食燃料棒に関するものである。外面酸化膜及び水素化物に関しての観察結果を以下に示す。

(1) 外面酸化膜

Photo.3は、レファレンス燃料棒の照射後の写真である。被覆管外面に約 $1 \mu\text{m}$ の酸化膜が形成されており、部分的に割れが観られた。Photo.4は、酸化膜厚さ $10 \mu\text{m}$ の外面腐食燃料棒の写真である。酸化膜は被覆管全周に渡って表面が不均一となり、また 30° 方向には1箇所だけ割れが観られた。Photo.5は、酸化膜厚さ $20 \mu\text{m}$ の外面腐食燃料棒の写真である。酸化膜は被覆管全周に渡って部分的な割れが生じており、 90° 及び 180° 方向では欠落が観られた。

Photo.6はレファレンス燃料棒の照射後の写真である。被覆管外面に約 $2 \mu\text{m}$ の不均一な酸化膜が形成されている。Photo.7は、酸化膜厚さ $10 \mu\text{m}$ の外面腐食燃料棒の写真である。酸化膜は、 0° 及び 90° 方向で剥離し、 180° 方向で割れが観られた。また、 270° 方向つまり破損した方向の反対側では健全であった。Photo.8は、酸化膜厚さ $20 \mu\text{m}$ の外面腐食燃料棒の写真である。酸化膜は、被覆管全周に渡って大きな剥離が観られた。

これらのことから、酸化層ではクラックを生じていたが、それが金属母材の中まで進行することはなく、破損のイニシエーターにはならなかった。また、金属母材の厚みの減少も破損しきい値に影響を与えなかった。ということがわかった。

破損した外面腐食燃料棒に関して、本実験の範囲内では、破損メカニズムは、酸化膜厚さに関係なく、ふくれによる破裂破損であった。また、これは過去のNSRR加圧標準燃料実験データの破損メカニズムと一致した。

(2) 水素化物

Photo.9及びPhoto.10は、パルス照射前後の被覆管水素化物の分布の状態を示す。水素吸収量50及び120 ppmの両者ともに照射前後の分布を比較してみると、被覆管の内側で水素化物の量が若干減少していることが分かるが、方位に変化はなかった。

3.3 燃料の過渡挙動

3.3.1 燃料棒の内圧変化

Fig.9に供試燃料棒の内圧増加量と発熱量の関係を示す。この図より、発熱量 $129 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ 及び $158 \text{ cal/g} \cdot \text{fuel}$ のそれぞれについて、レファレンス燃料棒と外面腐食燃料棒の内圧増加量は、ほぼ同程度であったことが分かった。このことから、本実験の範囲内では、内圧増加量は酸化膜厚さに依存しなかったと言える。また、内圧増加量は発熱量の増加と共に増加する傾向にあった。

Fig.10～Fig.15に、供試燃料棒内圧の経時変化を示す。図には燃料棒の外観写真も一緒に示す。

Fig.10~Fig.12は、発熱量 $158 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ で照射したレファレンス燃料棒である。両者ともにパルス照射後1秒以内で内圧が約3.5から4.0MPaまで上昇しているが、その後著しい圧力減少は生じなかった。写真からは、下部側のピーキング部でふくれたことがわかる。

Fig.13~Fig.15は、発熱量 $158 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ で照射したレファレンス燃料棒及び外面腐食燃料棒である。レファレンス燃料棒は照射後1秒以内で内圧上昇が起こり、その後著しい圧力減少は生じず非破損であったが、外面腐食燃料棒は1秒以内で内圧上昇が起こり、その後、被覆管破損による著しい圧力減少を生じた。写真からは外面腐食燃料棒が下部側のピーキング部でふくれて、破損していたことが分かる。

3.3.2 被覆管外面温度

Fig.16~Fig.18は、発熱量 $129 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ でパルス照射した時のレファレンス燃料棒の上部、中央部及び下部に取り付けた燃料棒被覆管表面温度データである。図から分かるように、燃料下部側が一番温度が高く、速くクエンチした。また、Fig.19~Fig.21は発熱量 $158 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ でパルス照射した時のレファレンス燃料棒の被覆管表面温度データである。なお、本実験においては、外面腐食燃料棒には熱電対は取り付けなかった。

4. 結 言

NSRRの標準仕様未照射燃料棒に、外面酸化膜 $10 \mu\text{m}$ 及び $20 \mu\text{m}$ を施し、また、それぞれに水素を50ppm及び120ppmを吸収させた燃料を準備し、燃料棒内に95%He+1%Kr+4%Xeのガスを加圧量3.0~3.6MPaで充填した。

この燃料棒を用いて、RIA実験条件下で破損が発生するか、また、どのような破損形態かを確認する分離効果実験を実施した。得られた結果は、以下の通りである。

- (1) 本実験の燃料棒加圧範囲では、外面腐食燃料棒の破損しきいエンタルピ値は $110 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ ($0.46 \text{ kJ/g}\cdot\text{fuel}$)となった。この値は、外面腐食のないNSRR加圧標準燃料棒の破損しきい値と同程度であった。
- (2) 外面腐食燃料棒の破損形態は、ふくれによる破裂破損であった。これは、従来のNSRR加圧標準燃料棒の破損形態と同じであった。
- (3) 酸化層ではクラックを生じたが、それが金属母材の中まで進行することではなく、破損のイニシエーターにはならなかった。
- (4) 本実験の範囲内では、金属母材の酸化膜厚みの増加による被覆管厚みの減少は、破損しきい値には影響をあたえなかった。

Fig.10~Fig.12は、発熱量 $158 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ で照射したレファレンス燃料棒である。両者ともにパルス照射後1秒以内で内圧が約3.5から4.0MPaまで上昇しているが、その後著しい圧力減少は生じなかった。写真からは、下部側のピーキング部でふくれたことがわかる。

Fig.13~Fig.15は、発熱量 $158 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ で照射したレファレンス燃料棒及び外面腐食燃料棒である。レファレンス燃料棒は照射後1秒以内で内圧上昇が起こり、その後著しい圧力減少は生じず非破損であったが、外面腐食燃料棒は1秒以内で内圧上昇が起こり、その後、被覆管破損による著しい圧力減少を生じた。写真からは外面腐食燃料棒が下部側のピーキング部でふくれて、破損していたことが分かる。

3.3.2 被覆管外面温度

Fig.16~Fig.18は、発熱量 $129 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ でパルス照射した時のレファレンス燃料棒の上部、中央部及び下部に取り付けた燃料棒被覆管表面温度データである。図から分かるように、燃料棒下部側が一番温度が高く、速くクエンチした。また、Fig.19~Fig.21は発熱量 $158 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ でパルス照射した時のレファレンス燃料棒の被覆管表面温度データである。なお、本実験においては、外面腐食燃料棒には熱電対は取り付けなかった。

4. 結 言

NSRRの標準仕様未照射燃料棒に、外面酸化膜 $10 \mu\text{m}$ 及び $20 \mu\text{m}$ を施し、また、それぞれに水素を50ppm及び120ppmを吸収させた燃料を準備し、燃料棒内に95%He+1%Kr+4%Xeのガスを加圧量3.0~3.6MPaで充填した。

この燃料棒を用いて、RIA実験条件下で破損が発生するか、また、どのような破損形態かを確認する分離効果実験を実施した。得られた結果は、以下の通りである。

- (1) 本実験の燃料棒加圧範囲では、外面腐食燃料棒の破損しきいエンタルピ値は $110 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$ ($0.46 \text{ kJ/g}\cdot\text{fuel}$)となった。この値は、外面腐食のないNSRR加圧標準燃料棒の破損しきい値と同程度であった。
- (2) 外面腐食燃料棒の破損形態は、ふくれによる破裂破損であった。これは、従来のNSRR加圧標準燃料棒の破損形態と同じであった。
- (3) 酸化層ではクラックを生じたが、それが金属母材の中まで進行することはなく、破損のイニシエーターにはならなかった。
- (4) 本実験の範囲内では、金属母材の酸化膜厚みの増加による被覆管厚みの減少は、破損しきい値には影響をあたえなかった。

謝 辞

論文のとりまとめに際し、有益な助言を反応度安全研究室室長藤城俊夫氏並びに、同研究室副主任研究員柳澤和章氏から賜りました。また、燃料棒の照射後試験に関しては、千代田メンテナンス（株）の吉田敏幸氏の協力を賜りました。データ整理に関しては、（財）原子力データセンターの加藤浩子嬢に協力を賜りました。

パルス照射実験等は、NSRR管理室の堀木欧一郎室長をはじめとする諸氏の協力のもとで実施されました。ここに御礼申し上げます。

参 考 文 献

- (1) GARZAROLLI, F., STEHLE, H.: IAEA International Symposium on Improvement on Water Reactor Fuel Technology and Utilization, Stockholm, Sweden (1986)
- (2) TULENKO, T.S., et al.: ANS Topical Mtg. on Light Water Reactor Fuel Performance, Portland, Oregon, U.S.A. (1979)
- (3) ANDREWS, M.G., et al.: ANS Topical Mtg. on Light Water Reactor Fuel Performance, Williamsburg, Virginia, U.S.A. (1988)
- (4) BALFOUR, M.G., et al.: WCAP-10180 (1982)
- (5) DYECHEA, T.D., et al.: IAEA Technical Committee Mtg. on External Cladding Corrosion in Water Power Reactor, Cadarache France (1985)
- (6) RESHETNIKOV, F.G., et al.: IAEA Technical Committee Mtg. on External Cladding Corrosion in Water Power Reactor, Cadarache France (1985)
- (7) SUZUKI, S., et al.: IAEA International Symposium on Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization, Stockholm, Sweden (1986)
- (8) IRISA, Y., et al.: ANS Topical Mtg. on Light Water Reactor Fuel Performance, Williamsburg, Virginia, U.S.A. (1988)
- (9) 原子力安全委員会：発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針について（昭和59年1月19日）
- (10) YANAGISAWA, K., et al.: J. Nucl. Sci. Technol. 25[5], 500 (1988)
- (11) SAITO, S., et al.: J. Nucl. Sci. Technol. 19[4], 289 (1982)
- (12) 柳澤和章, 近藤吉明, KOLSTAD, E., : 原子力誌, 28[7], 641, (1986)
- (13) 柳澤和章, DEVOLD, H., : 原子力誌, 28[8], 771 (1986)
- (14) ICHIKAWA, M., et al.: ANS Topical Mtg. on LWR Fuel Performance, Williamsburg, Virginia U.S.A. (1988)
- (15) F, Garnyarolli., et al.: The main causes of fuel element failure in water-cooled power reactors; Atomic Energy Review 171 (1979).
- (16) Assmann, H., Mathieu, N., 79th Ann. Meeting American Ceramic Soc., Cincinnati, AED-Conf-76-197-007 (1976)
- (17) Shannon, D.W., Rep. HW-76562 Rew. (1963)
- (18) Joon, J., Reaktortagung Hamburg (1972) 233.
- (19) R, Ballinger., et al.: Clad failure modeling; ASTM STP 154, (1980)
- (20) H.S. Rosenbaum, et al.: Interaction of iodine with zircaloy-2, GEAP-5100-5 (1966)

- (21) Hall M., Martin S., Rees A. Trans. Faraday, Soc., V.41 (1962)
- (22) 石森富太郎, 原子炉工学講座 4 (1971)
- (23) 原子力安全研究協会, 軽水炉 燃料のふるまい (1985)
- (24) 三島良績, 核燃料工学 (1982)
- (25) Brian A. Cheadle, et al.: Orientation of hydrides in zirconium alloy tubes, ASTM STP 824 (1982)
- (26) D. Cubicciotti, et al.: Chemical aspects of iodine-induced stress corrosion cracking of zircalloys, ASTM STP 754 (1980)

Table 1 Characteristics of Fuel Rods Used

Fuel Rod Type Fuel rod No.	Oxidation/Hydridding P13/P14 P15/P16	Standard P7, P8
1. Fuel Pellet Enrichment(w/o) Density (% TD) Outer diameter(mm) Length (mm) End form Grain size (μm)	10.0, 3.4(end pellet only) 95.10 8.19 13.5 Double Dishing (diameter = 5.97mm, depth = 0.3mm) 8.0	
2. Cladding Outer diameter(mm) Inner diameter(mm) Wall thickness(mm) Oxide thickness(μm) Absorbed hydrogen(ppm)	Stress relieved Zircaloy-4 9.50 8.36 0.57 10 50 20 120	
3. Fuel Rod Diametral gap(mm) Prepressurization(20°C) Fill gas composition Plenum volume(ml) Fuel column(mm)	0.170 3.0~3.6 MPa 95%He + 1%Kr + 4%Xe (volumetric) 2.7 116mm (10.0) + 19mm (3.4) * Enrichment	

Table 2 Outline of Experiment

Experiment	525-1				525-2			
Deposited energy (cal/g fuel) (Peak enthalpy : cal/g fuel)	129 (95)				158 (125)			
Fuel rod number	P7	P13	P15	P8	P14	P16		
Oxide thickness (μ m)	0	10	20	0	10	20		
Hydrogen absorption (ppm)	-	50	120	-	50	120		
Fill gas pressure at 20°C immediately before pulse (MPa)	3.55	3.47	3.52	3.55	3.51	3.54		
Fill gas composition (volume %)	95%He + 1%Kr + 4%Xe							
Instrumentation equipped	PF ⁽¹⁾ EC ⁽²⁾ EF ⁽³⁾ T/C ⁽⁴⁾	○ ○ ○ ○	○ ○ ○ -	○ ○ ○ -	○ - ○ ○	○ ○ ○ -	○ ○ ○ -	○ ○ ○ -
Failure (F) / no failure (NF)	NF	NF	NF	NF	NF	NF	F	F

Note: (1) PF: Strain gauge type pressure sensor
 (2) Cladding elongation sensor
 (3) Movement marker to measure fuel column maximum expansion
 (4) Pt/Pt-13%Rh thermocouples to measure cladding outer surface temperature
 (5) Experiments performed under the same condition as others in order to increase (standard) rod data

Table 3 Summary of Fuel Behavior on PIE and In-core Instrumentations

Deposited Energy (cal/g fuel)	129	158
Peak Enthalpy (cal/g fuel)	95	125
Fuel rod no.	P7 P13 P15	P8 P14 P16
Oxidation (μm)	- 10 20	- 10 20
Filler gas pressure immediately before pulse (MPa, 20°C)	3.55 3.47 3.52	3.55 3.51 3.54
Peak pressure reached during pulse (MPa)	3.96 3.88 3.95	4.01 3.94 3.96
Pressure increase (MPa)	0.41 0.41 0.43	0.46 0.43 0.42
Peak cladding surface temperature (°C)	738 - -	810 - -
Peak elongation reached during pulse (%)	- - -	- 2.50 2.71
Residued diametral strain (%)	3.2 4.4 5.2	4.9 9.4 10.0
Maximum fuel column movement (%)	2.0 1.9 2.1	2.2 2.6 2.0
Failure (F)/ no failure (NF)	NF NF NF	NF F F

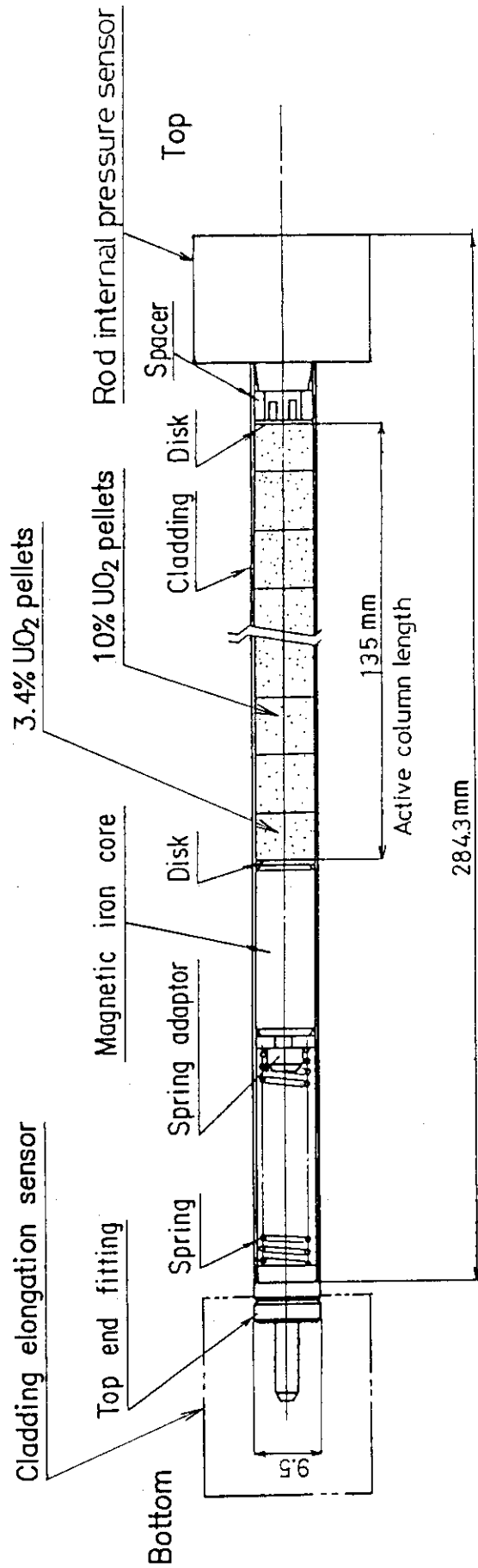


Fig. 1 Schematic of test fuel rod.

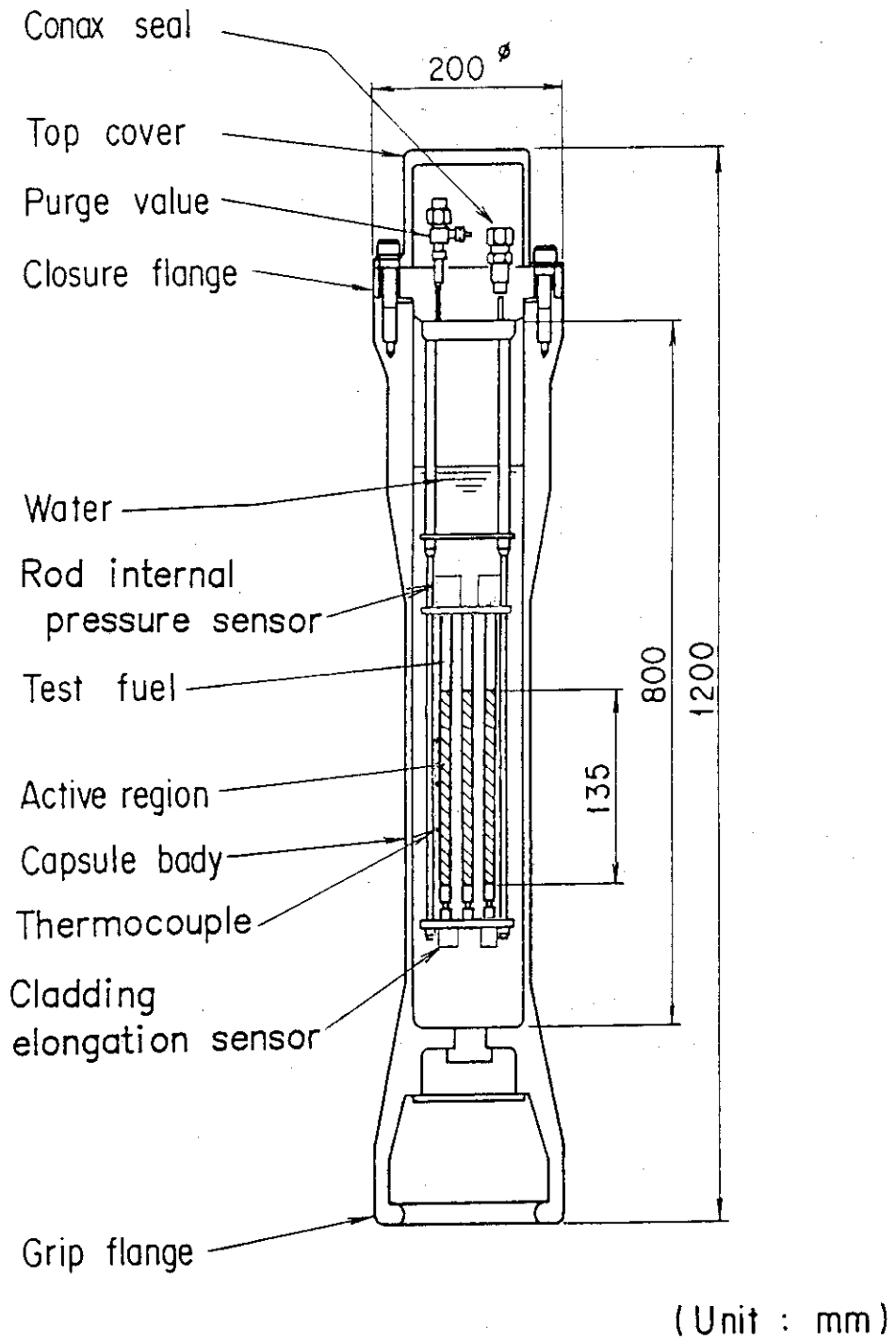


Fig. 2 Schematic of test capsule

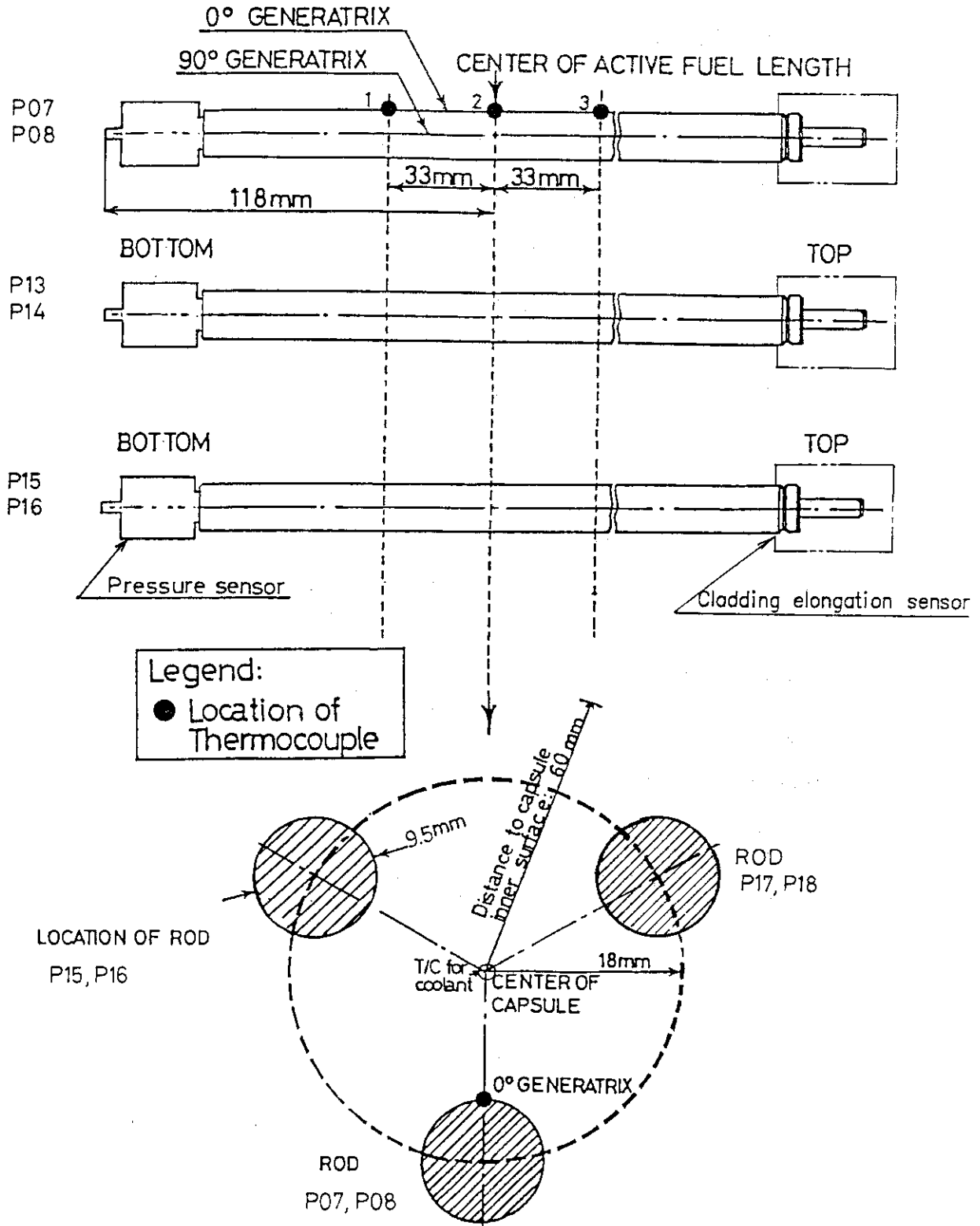


Fig. 3 Axial and radial locations of the thermocouples in a dual rod assembly

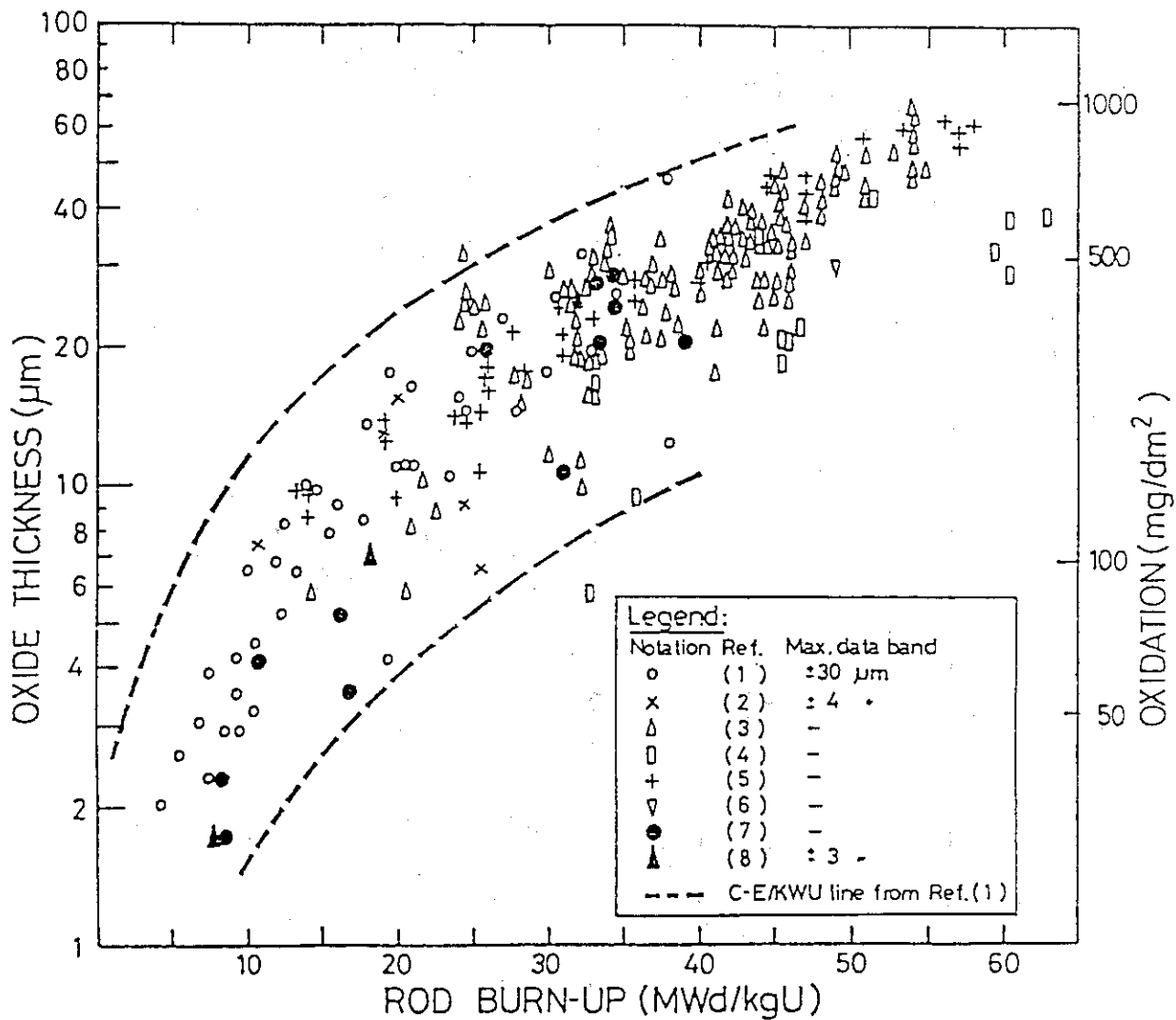


Fig. 4 The oxide thickness of PWR type rods as a function of rod accumulated burn-up: Ref(1) ~ Ref(8)

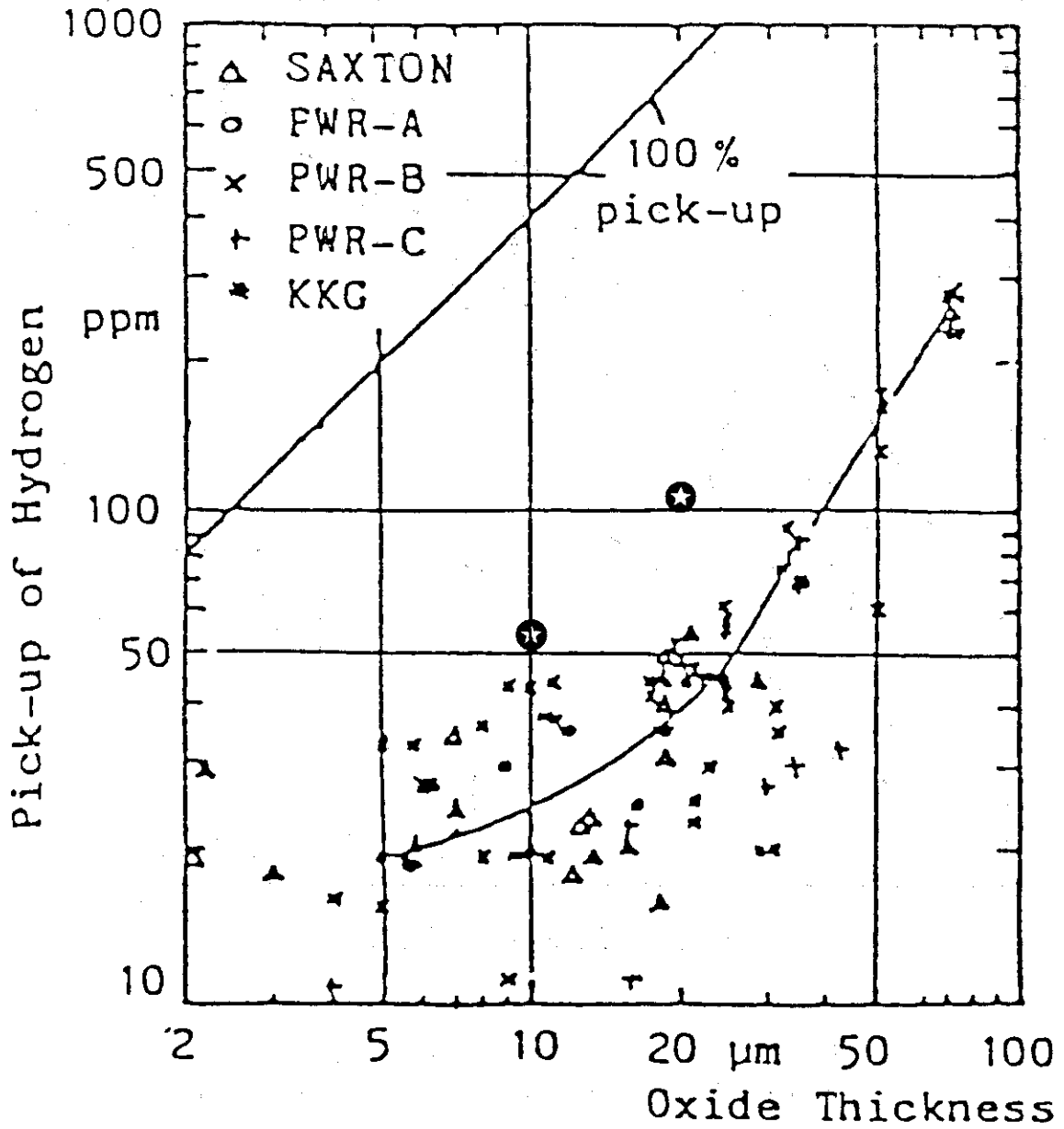


Fig. 5 Hydrogen pick - up of zircaloy - 4 cladding in PWR : Ref (10)

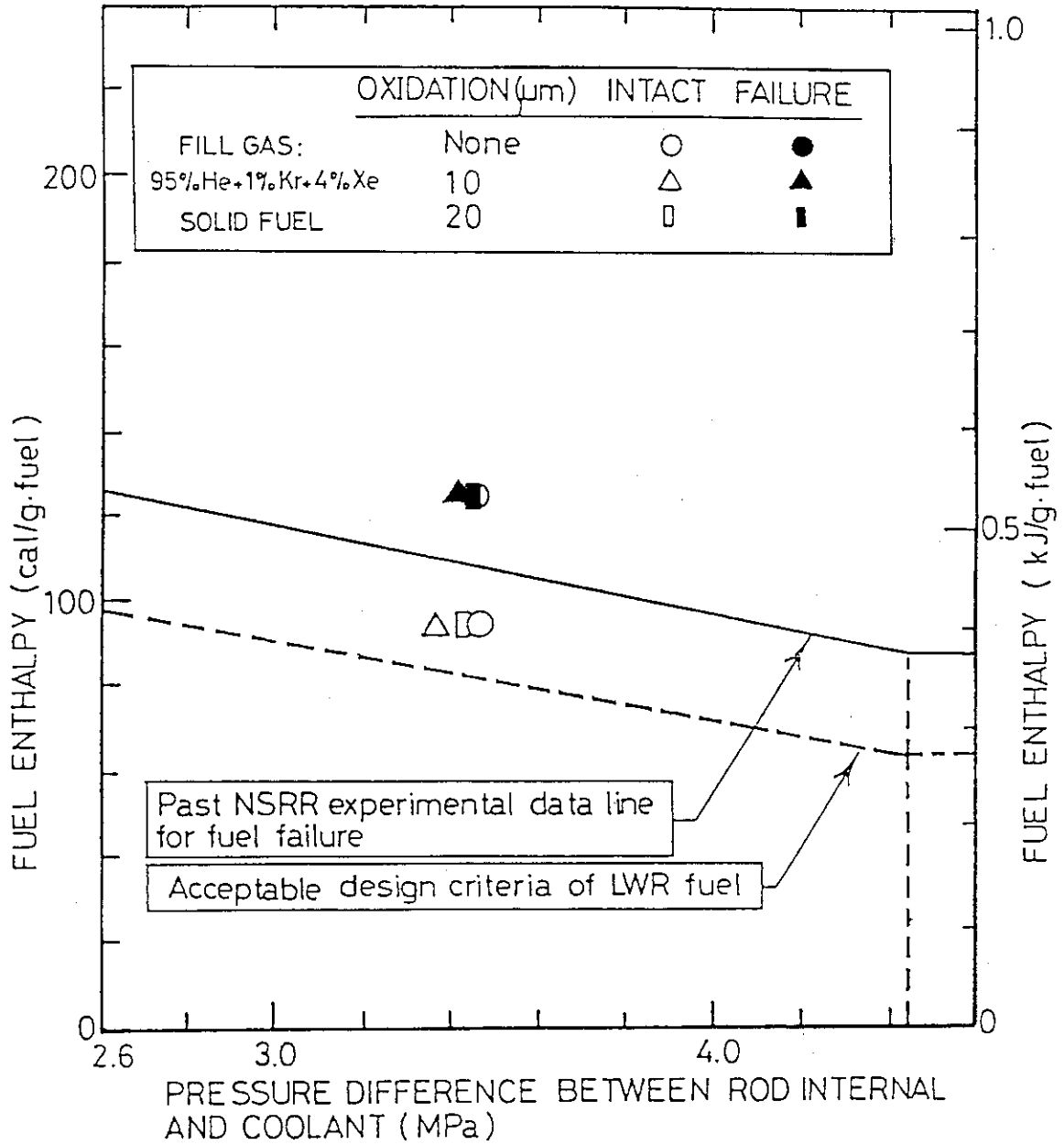


Fig.6 Deposited enthalpy of the fuel rods vs pressure difference between rod internal and coolant where conventional LWR fuel design criteria under RIA standard is also shown

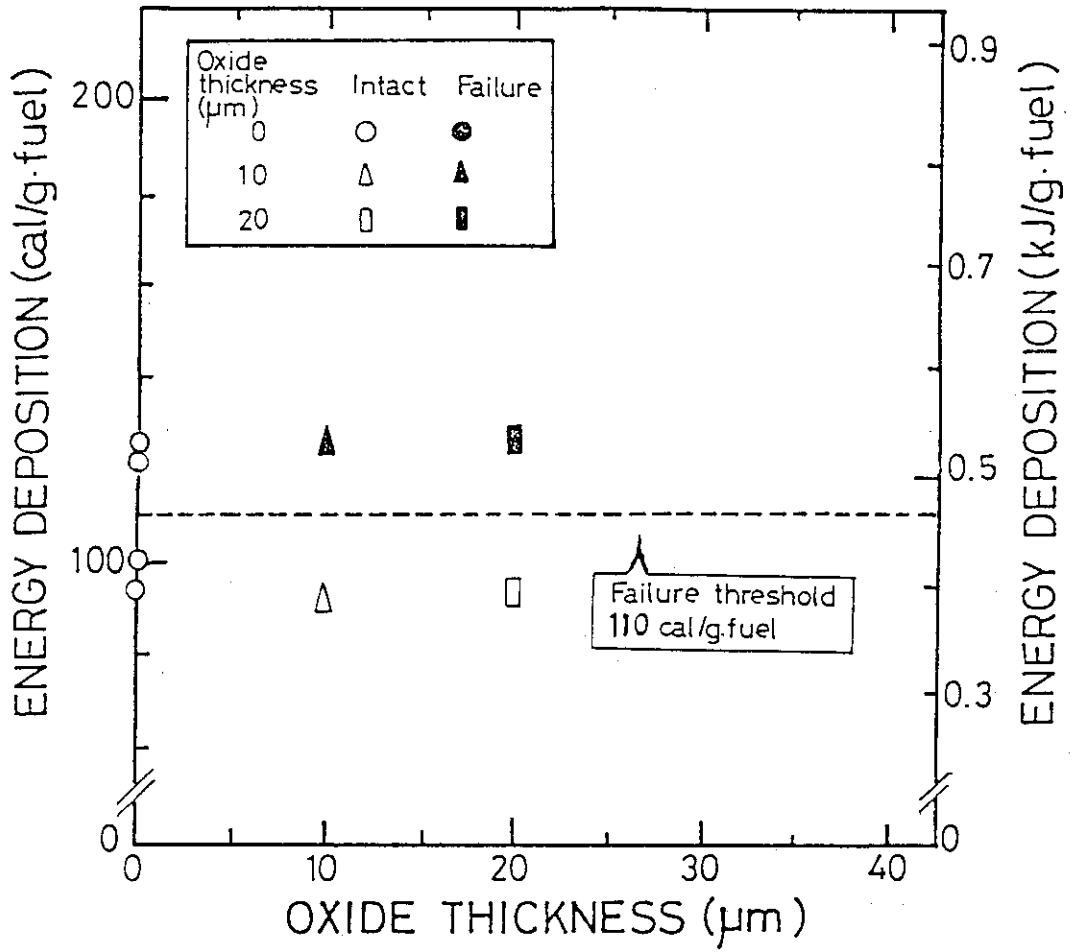


Fig.7 Energy deposition of the fuel rods as a function of oxide thickness. Dotted line shows failure threshold level of 110 cal/g·fuel.

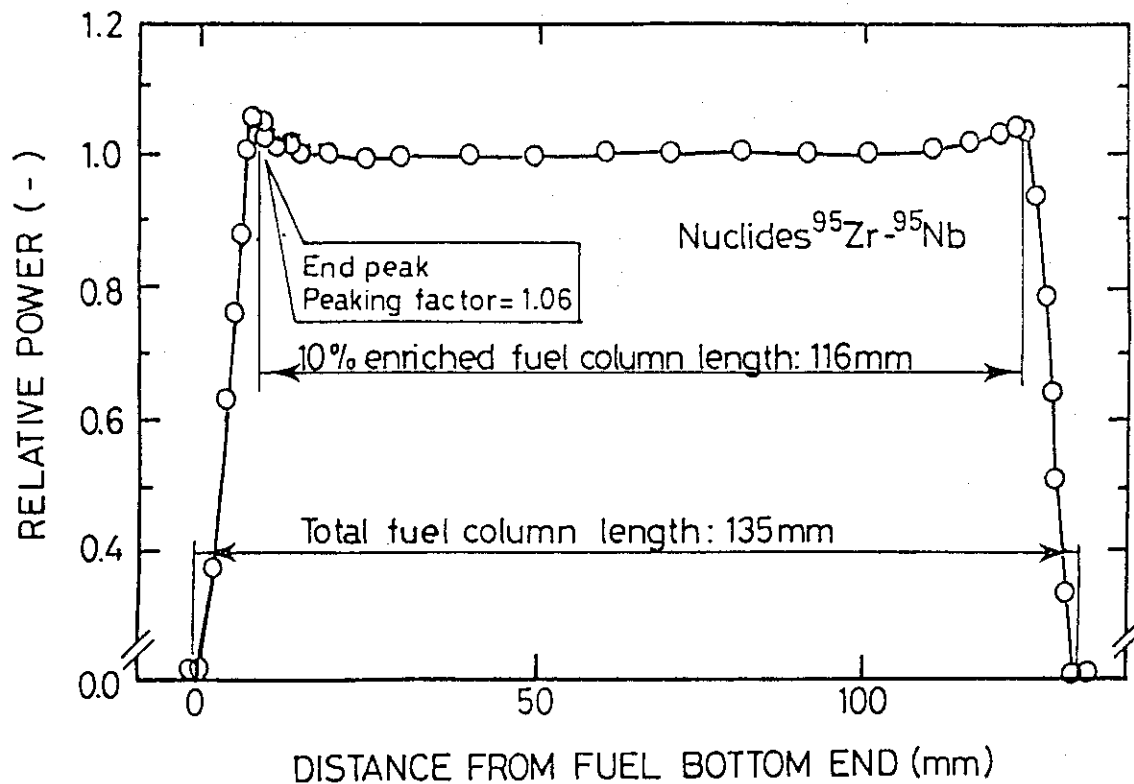


Fig. 8 Axial gamma-scan

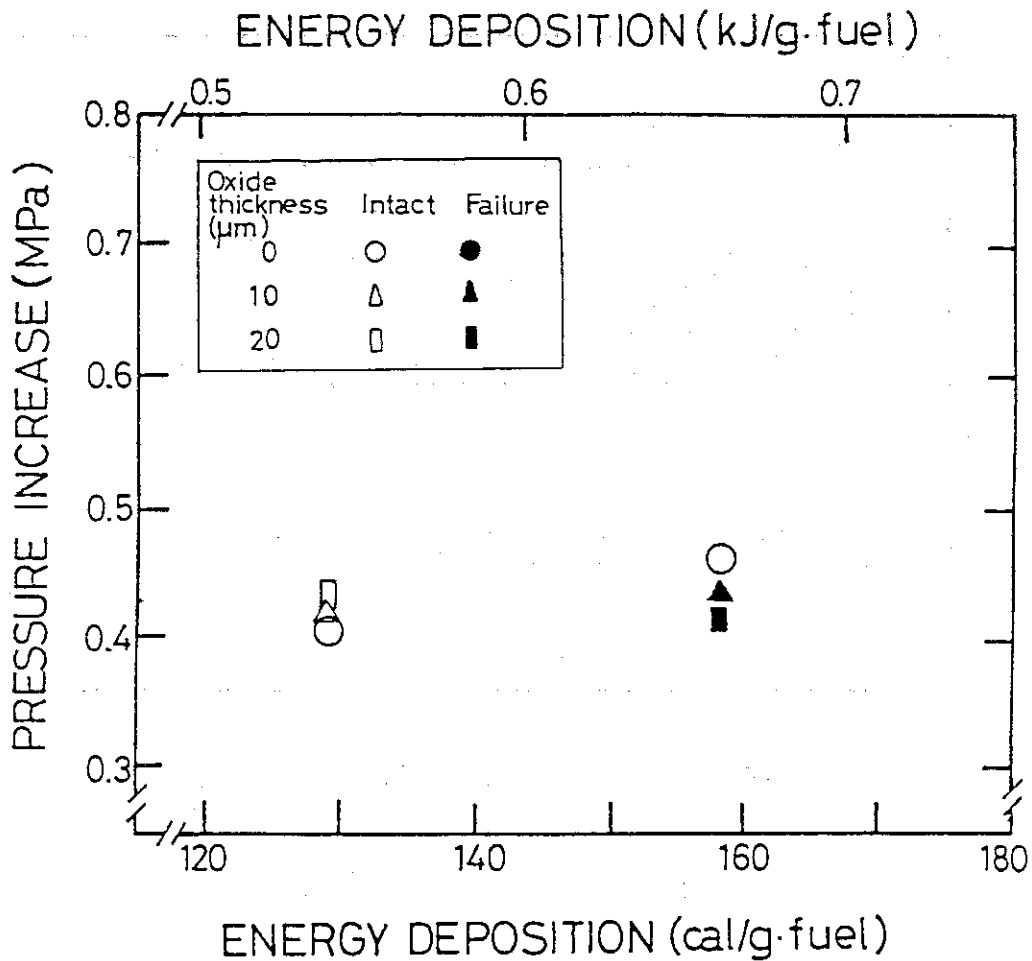


Fig. 9 Energy deposition of the fuel rods as a function of maximum pressure increase from original prepressurization level.

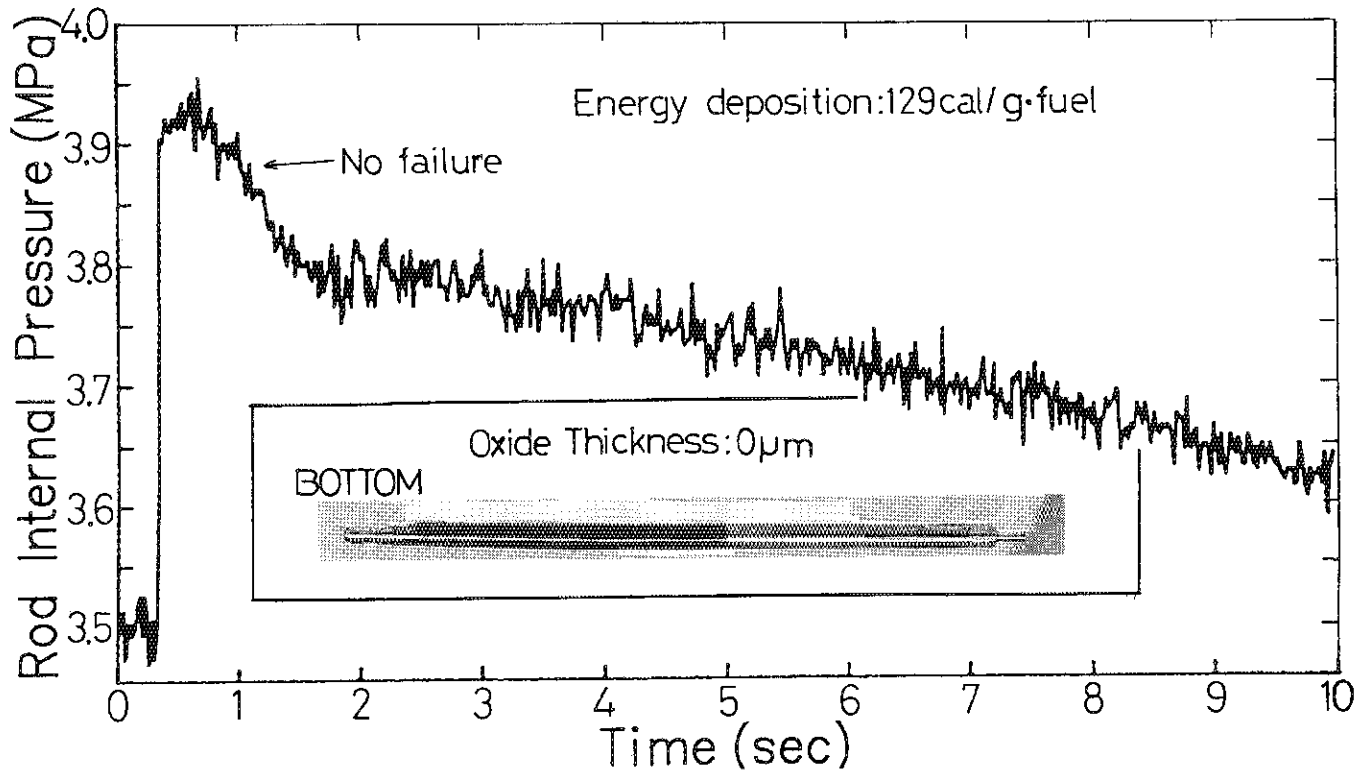


Fig.10 Change of rod internal pressure vs. time as a function of initial amounts of oxidation, in which rod outer view from post-irradiation examination is included.

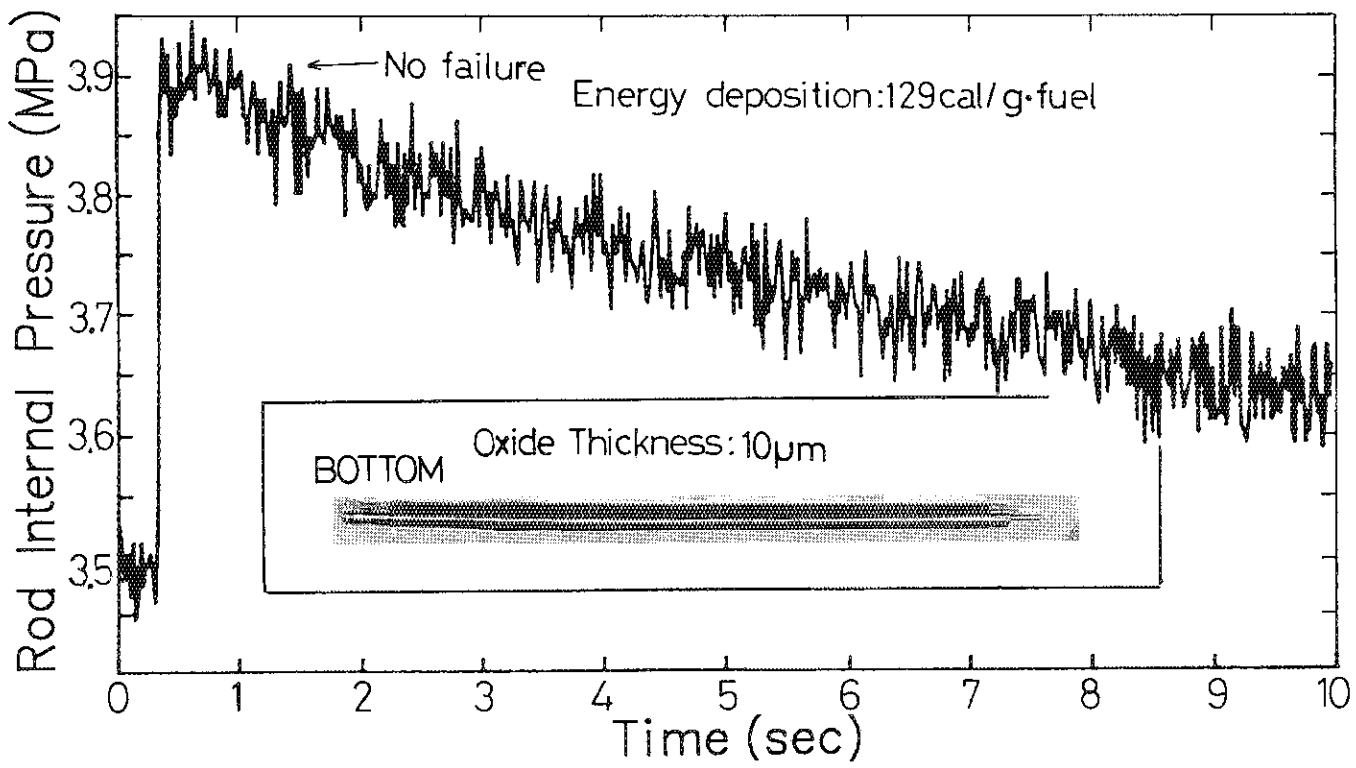


Fig.11 Change of rod internal pressure vs. time as a function of initial amounts of oxidation, in which rod outer view from post-irradiation examination is included.

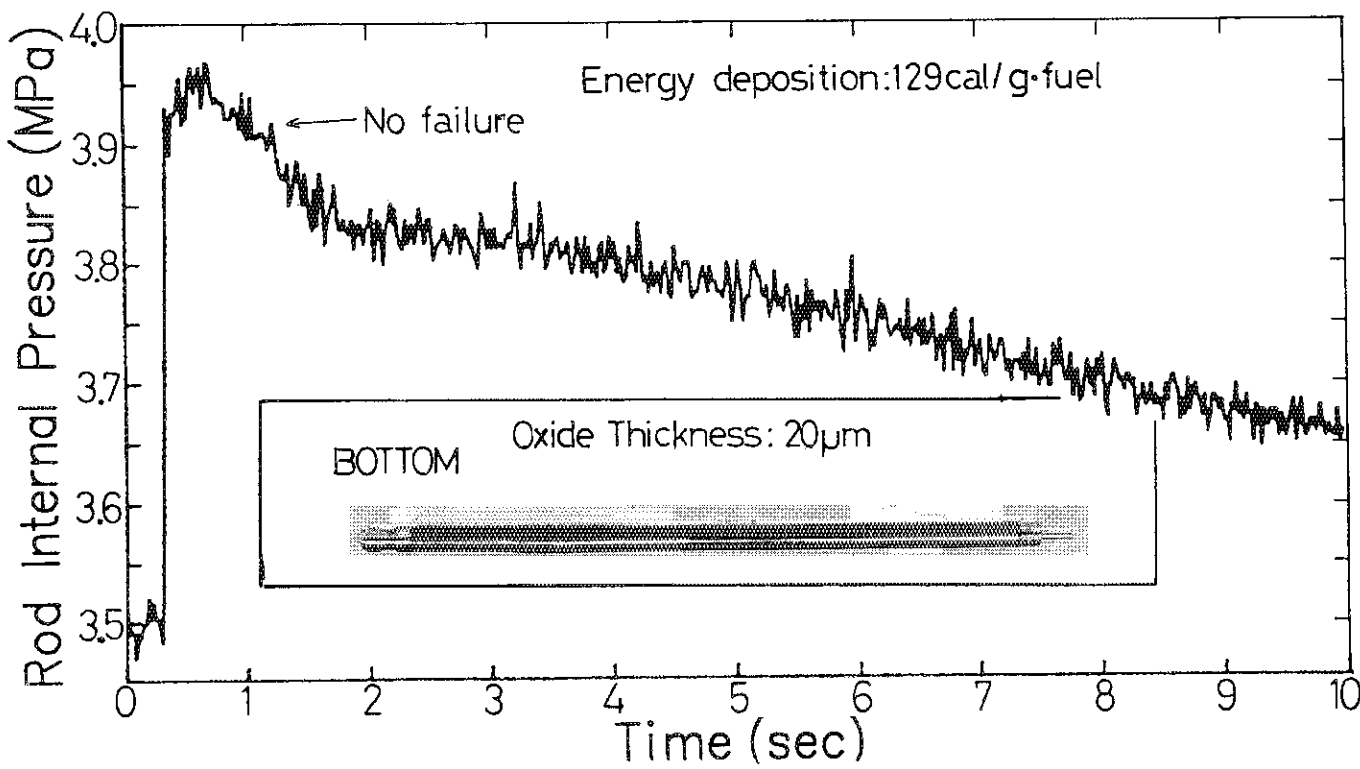


Fig.12 Change of rod internal pressure vs. time as a function of initial amounts of oxidation, in which rod outer view from post-irradiation examination is included.

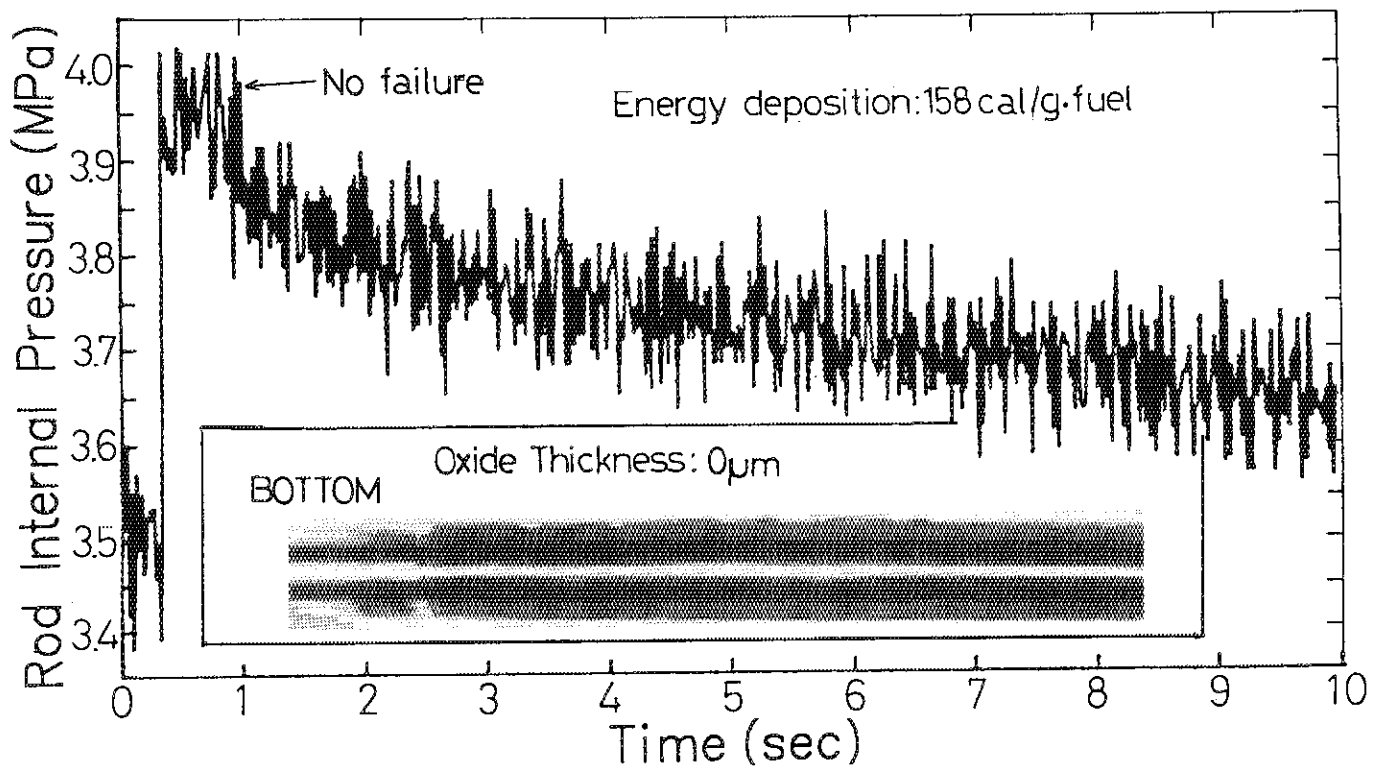


Fig.13 Change of rod internal pressure vs. time as a function of initial amounts of oxidation, in which rod outer view from post-irradiation examination is included.

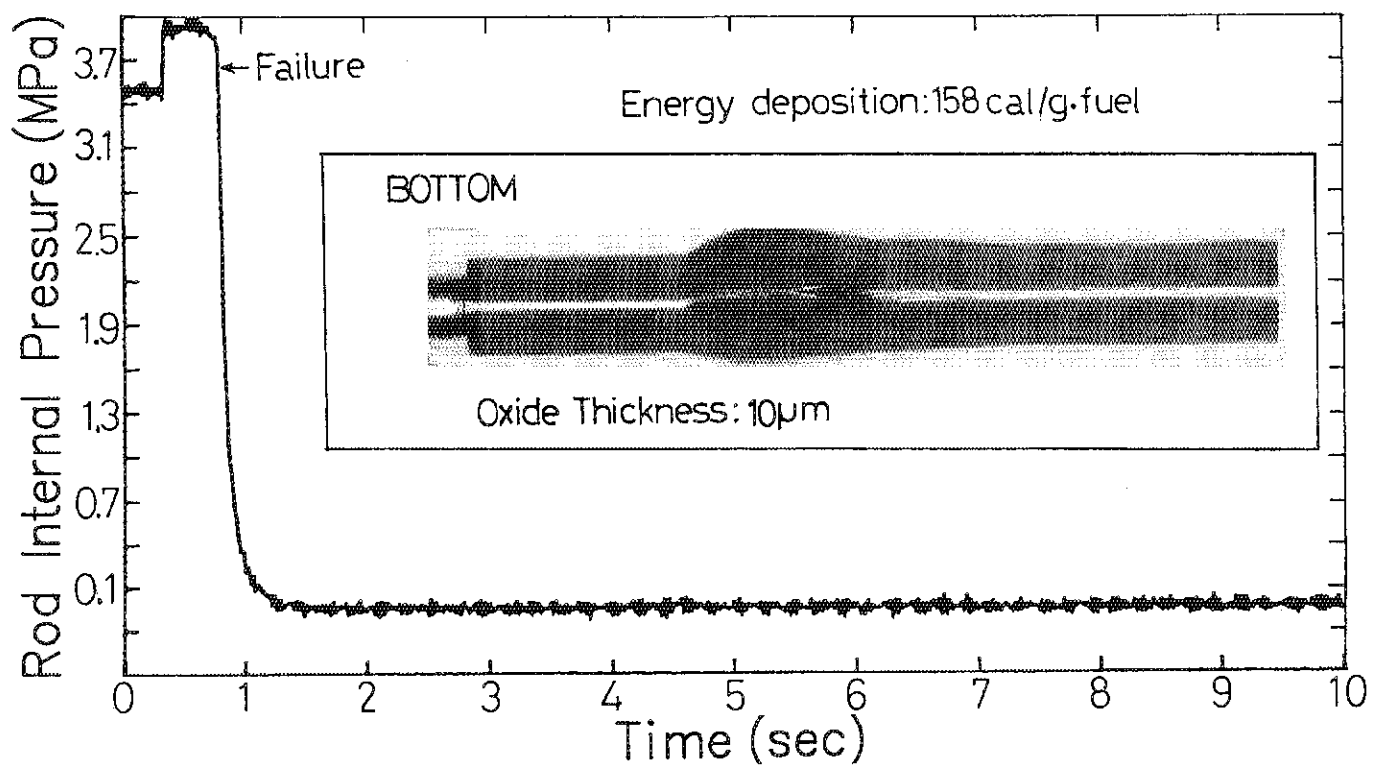


Fig.14 Change of rod internal pressure vs. time as a function of initial amounts of oxidation, in which rod outer view from post-irradiation examination is included.

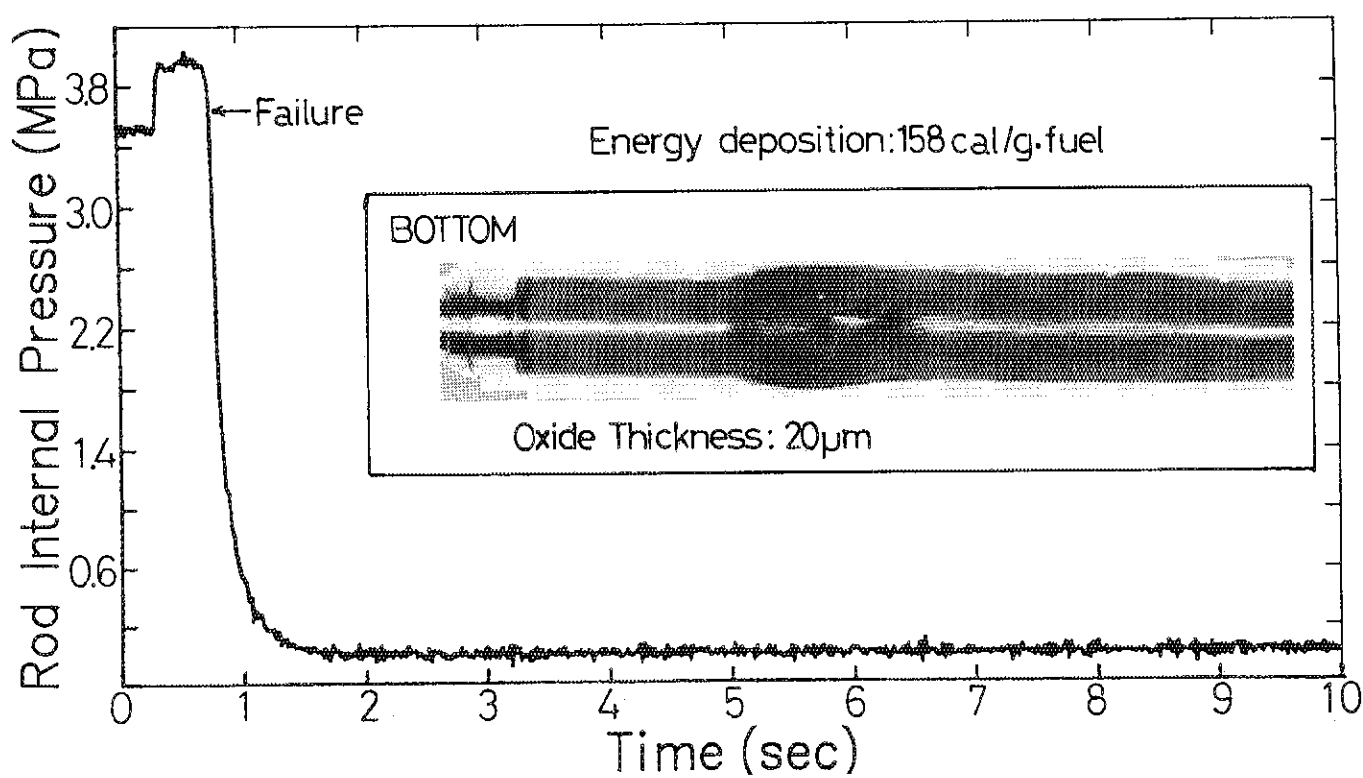


Fig.15 Change of rod internal pressure vs. time as a function of initial amounts of oxidation, in which rod outer view from post-irradiation examination is included.

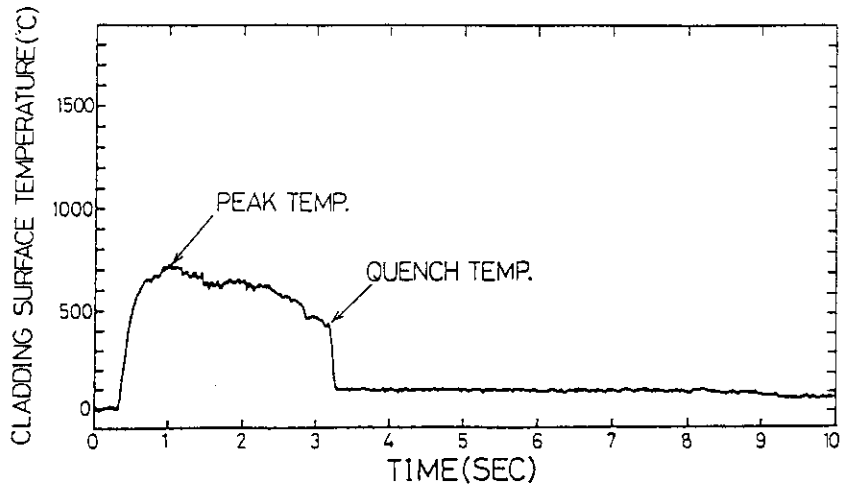


Fig.16 Example of cladding surface temperature of reference fuel rod (Top of active length, Ex. 525- 1)

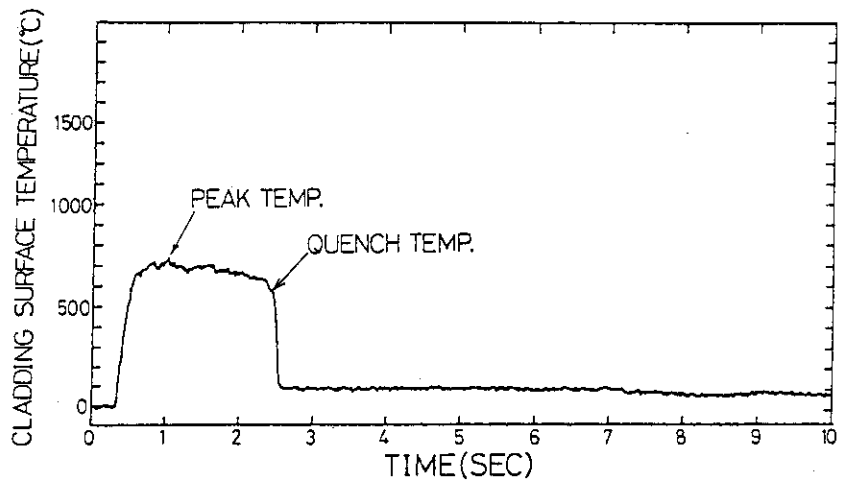


Fig.17 Example of cladding surface temperature of reference fuel rod ((Middle of active length, Ex. 525- 1)

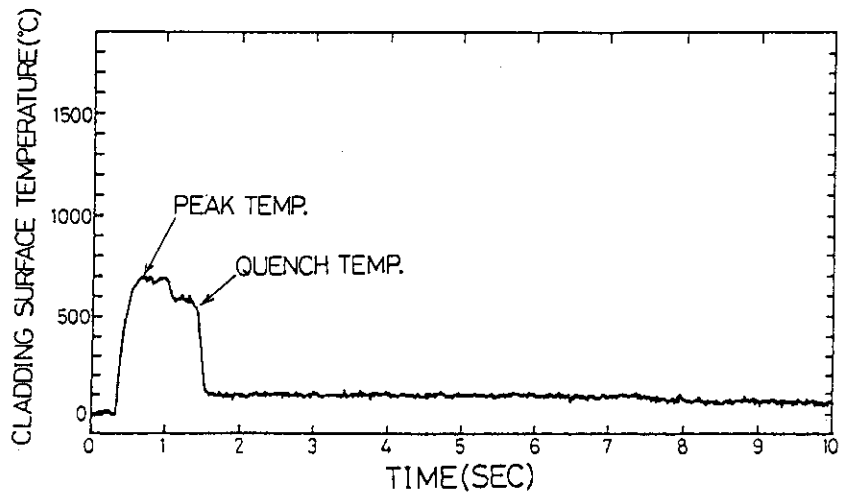


Fig.18 Example of cladding surface temperature of reference fuel rod (Bottom of active length, Ex. 525- 1)

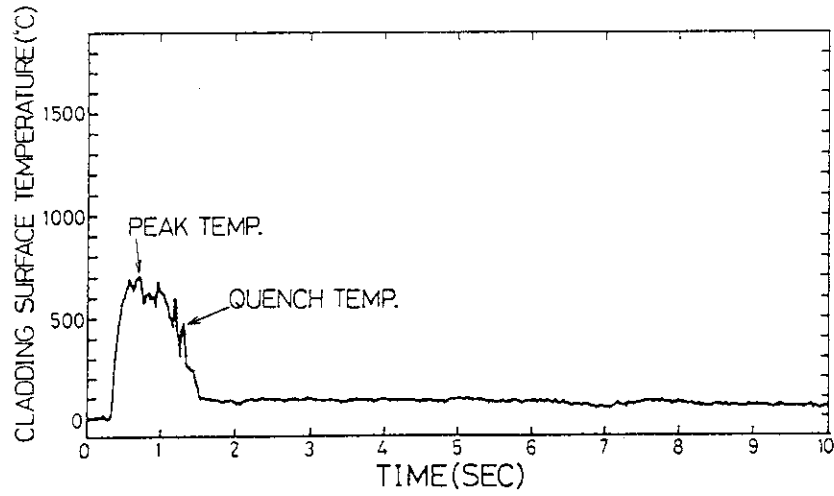


Fig.19 Example of cladding surface temperature of reference fuel rod (Top of active length, Ex. 525- 2)

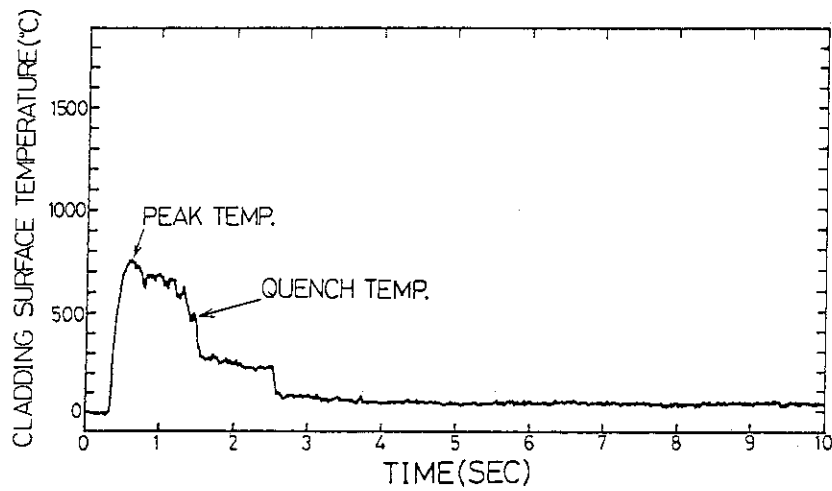


Fig.20 Example of cladding surface temperature of reference fuel rod (Middle of active length, Ex. 525- 2)

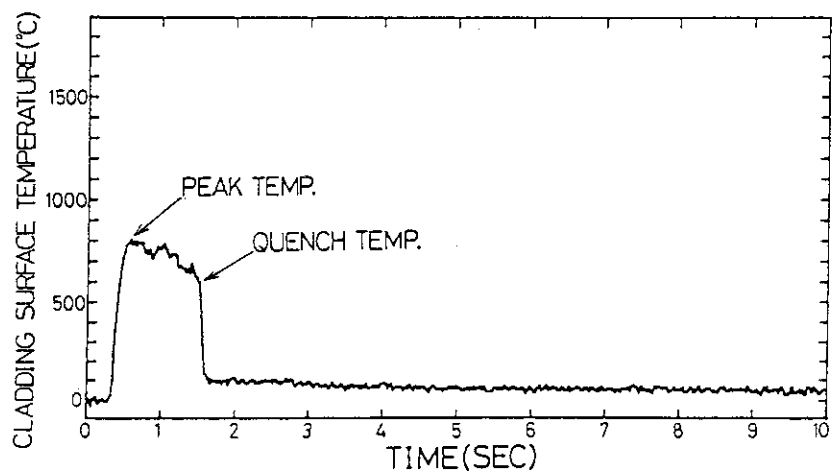


Fig.21 Example of cladding surface temperature of reference fuel rod (Bottom of active length, Ex. 525- 2)

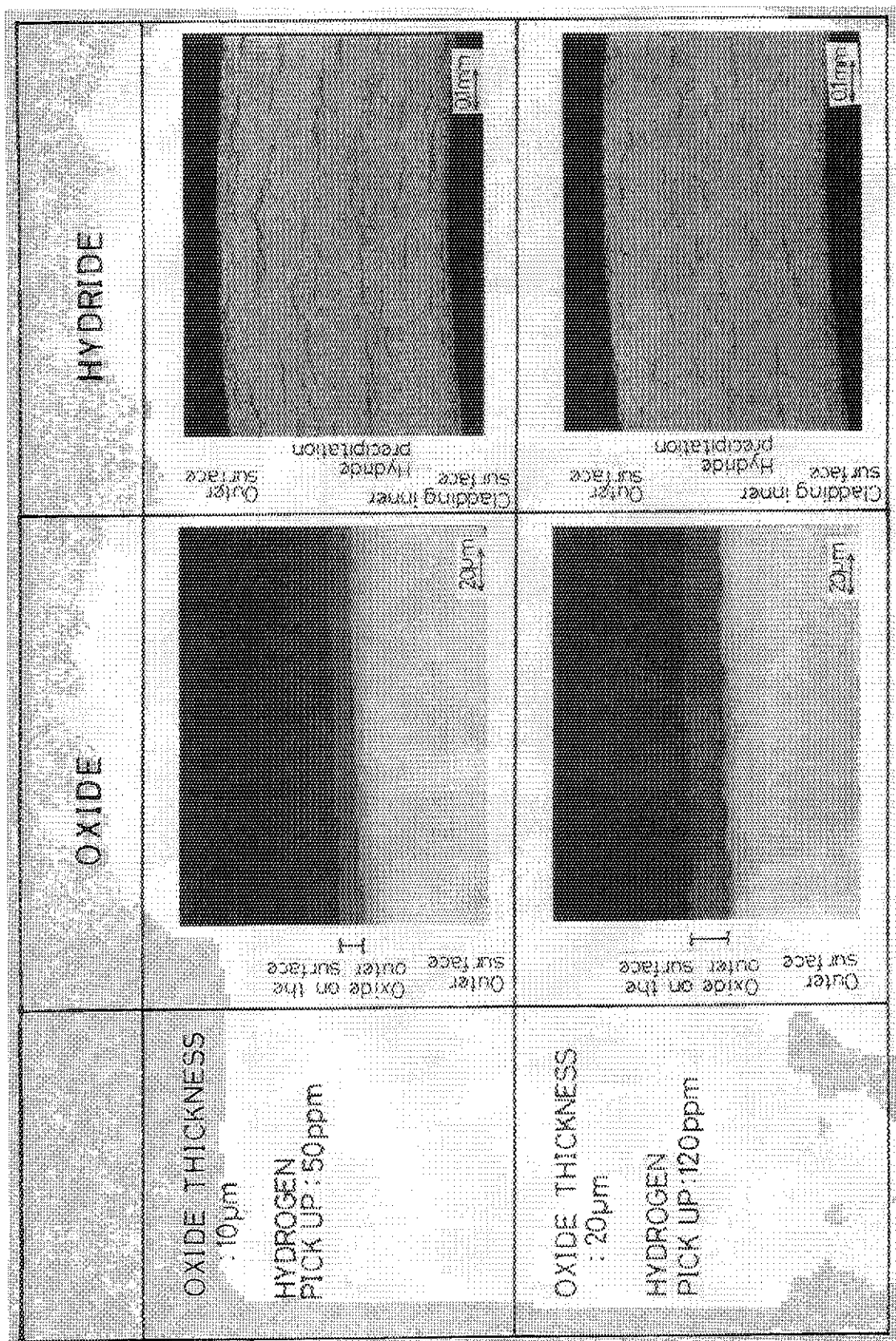


Photo.1 The fabricated oxidation and hydriding of the unirradiated fuel rods used in this experiments.

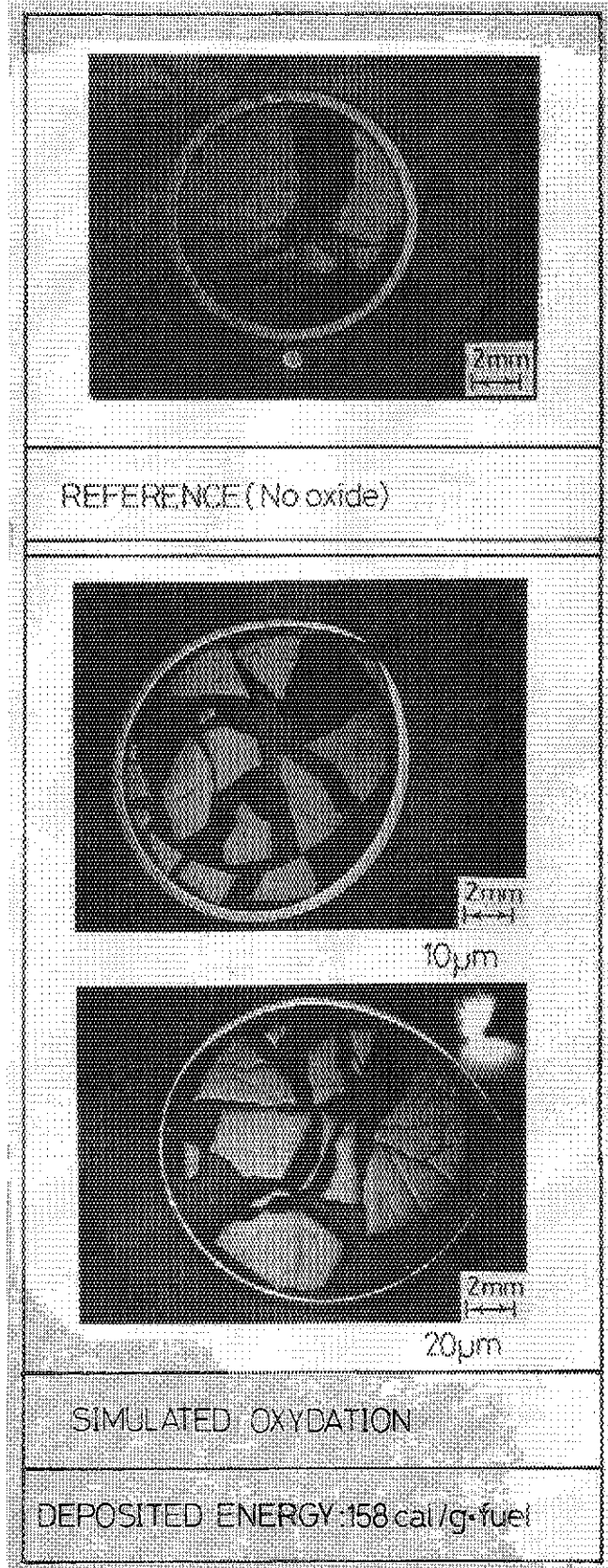


Photo.2 Outerview of fuel rod in deposited energy levels of 158cal/g·UO₂, fuel rod P8 (Top), P14(middle), P16(bottom), from Ex. 525-2.

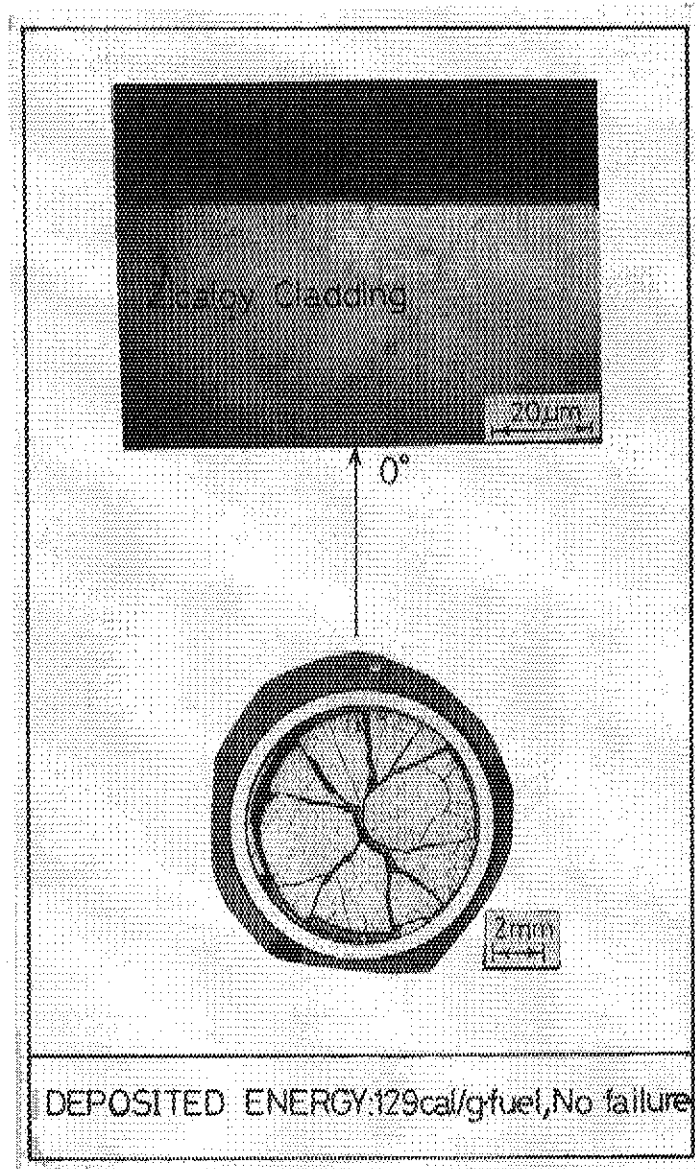


Photo.3 The reference fuel rod and magnified photograph at one orientation after pulse irradiation, fuel rod P7 from Ex. 525-1.

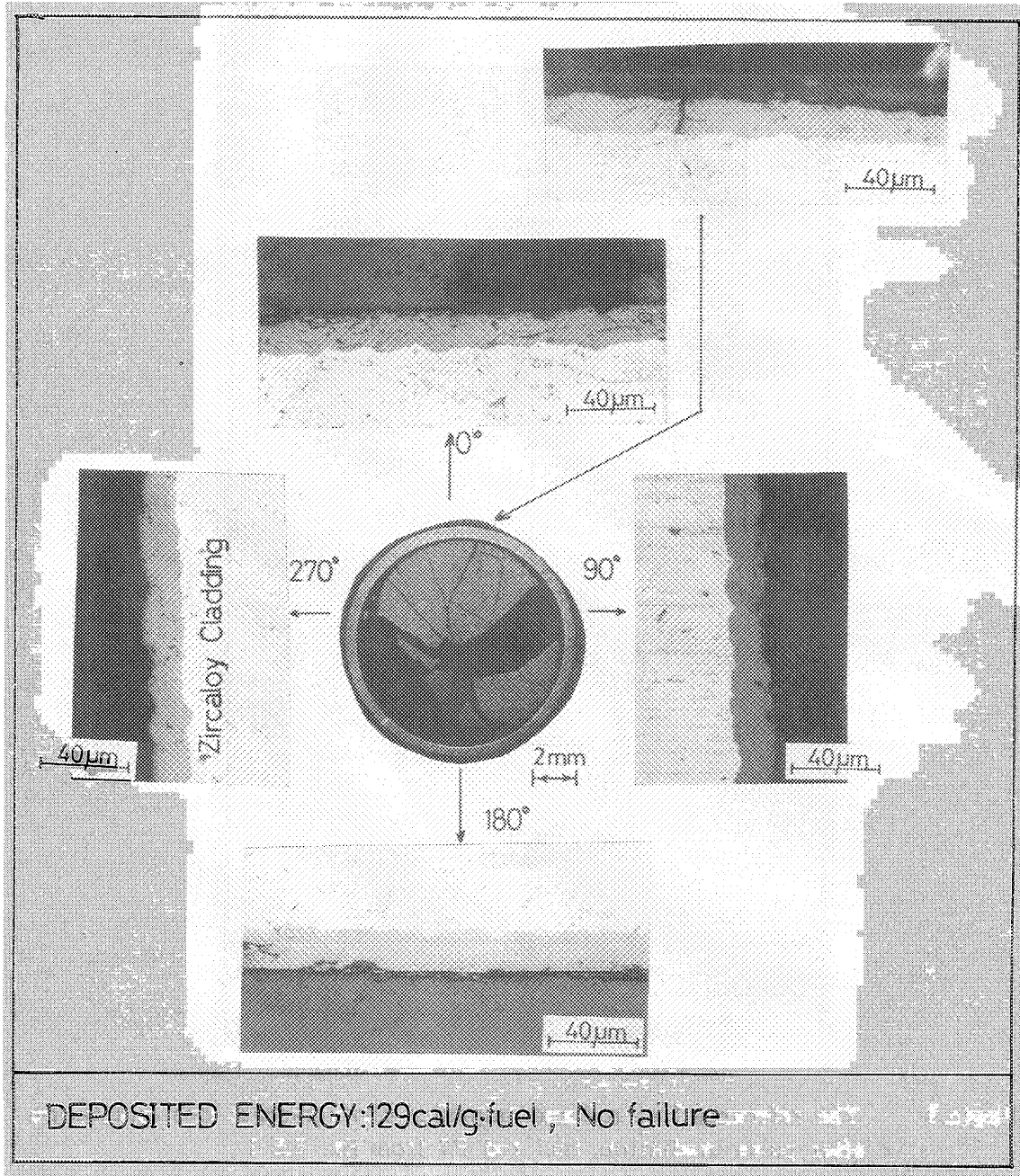


Photo.4 The oxidized fuel rod and magnified photograph at five orientations after pulse irradiation, fuel rod P13 from Ex. 525-1.

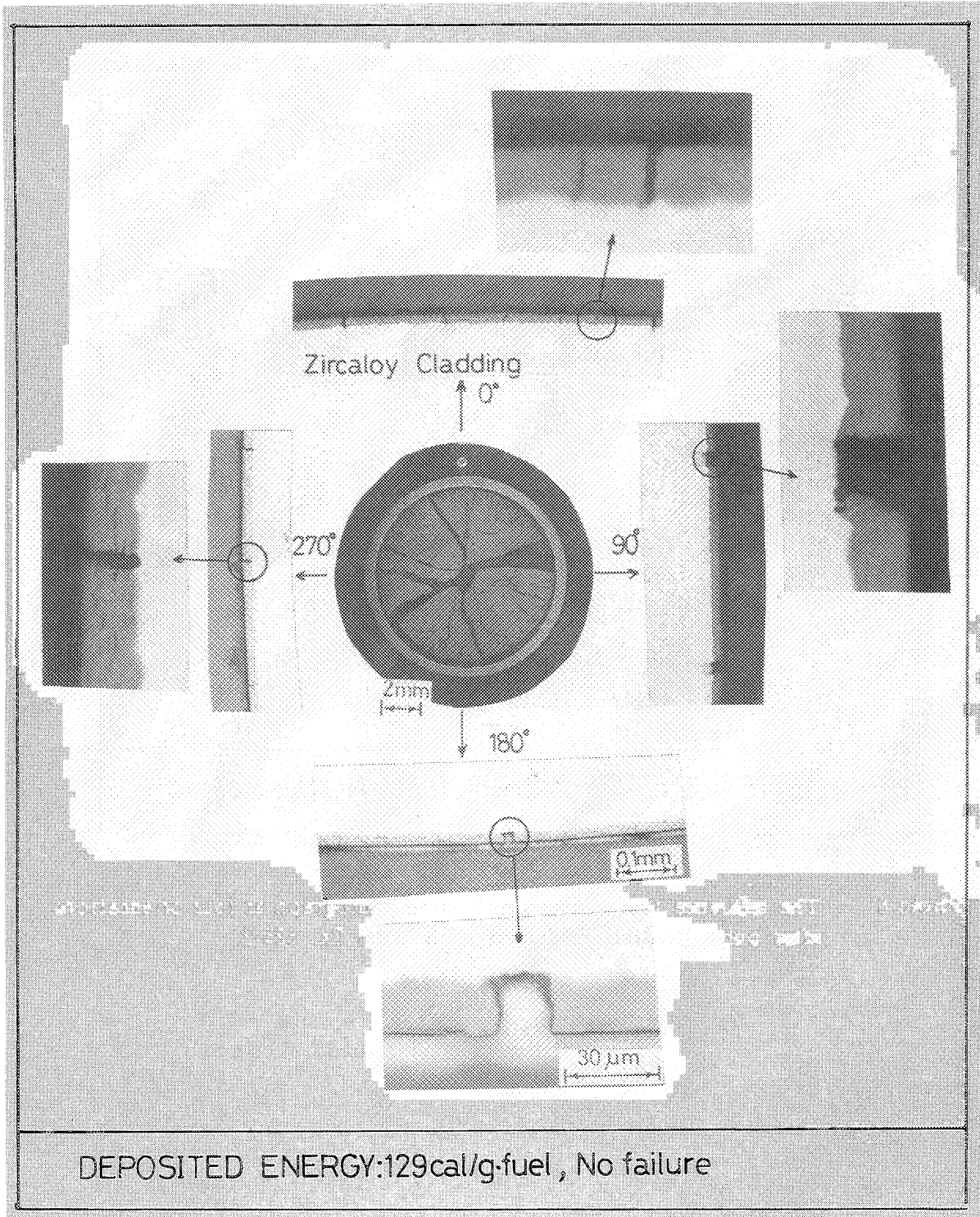


Photo.5 The oxidized fuel rod and magnified photograph at four orientations after pulse irradiation, fuel rod P15 from Ex. 525-1

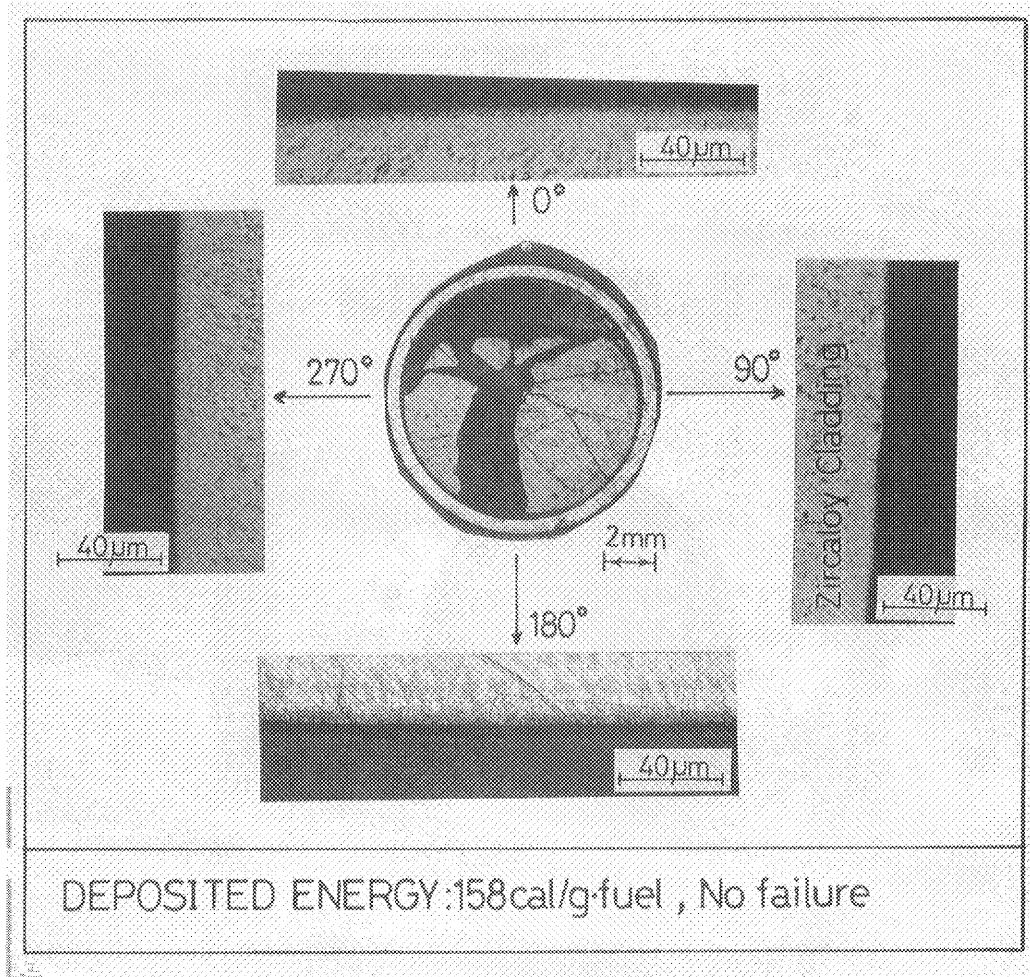


Photo.6 The reference fuel rod and magnified photograph at four orientations after pulse irradiation, fuel rod P8 from Ex. 525-2.

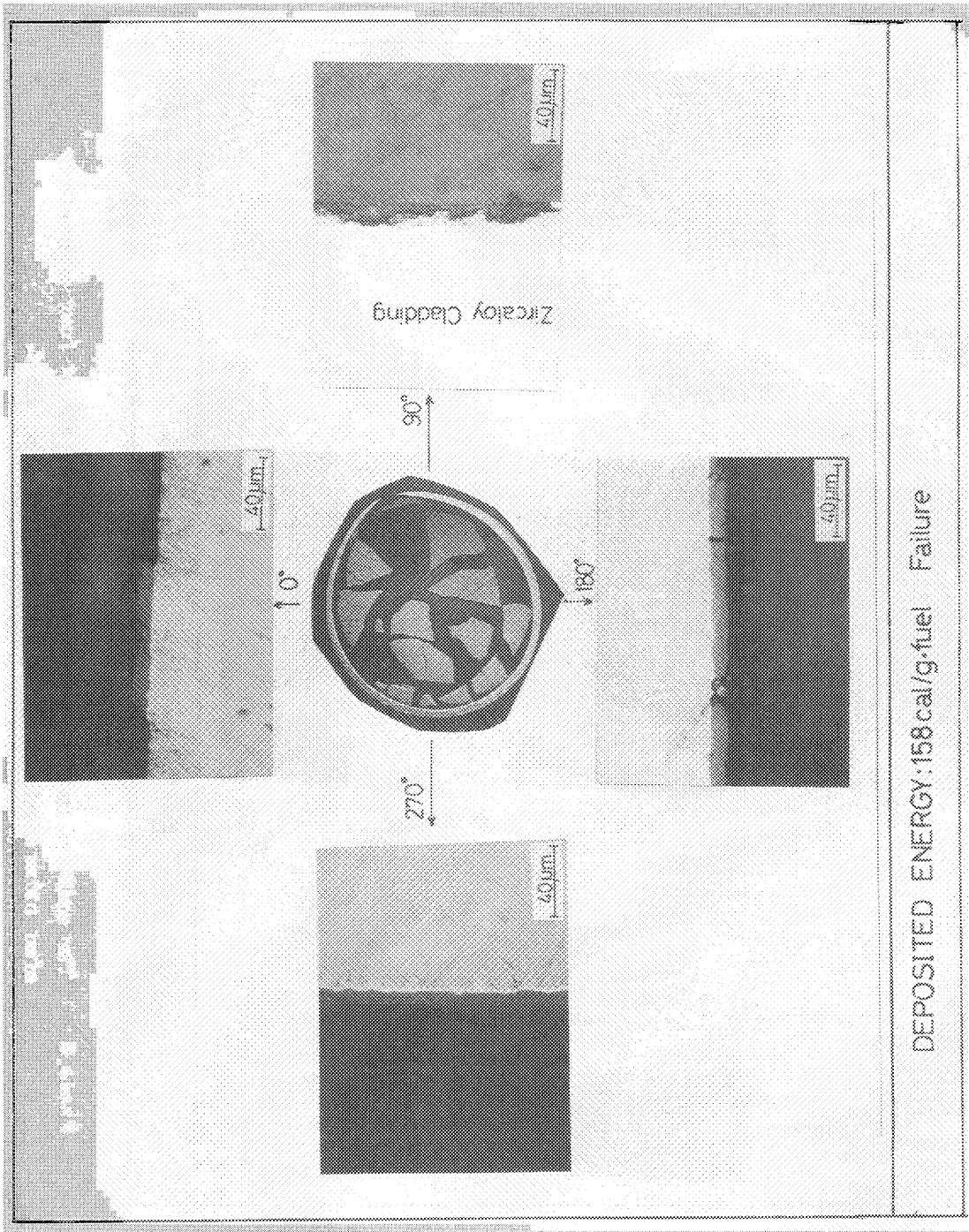


Photo.7 The oxidized fuel rod and magnified photograph at four orientations after pt lse irradiation, fuel rod P14 from Ex. 525-2

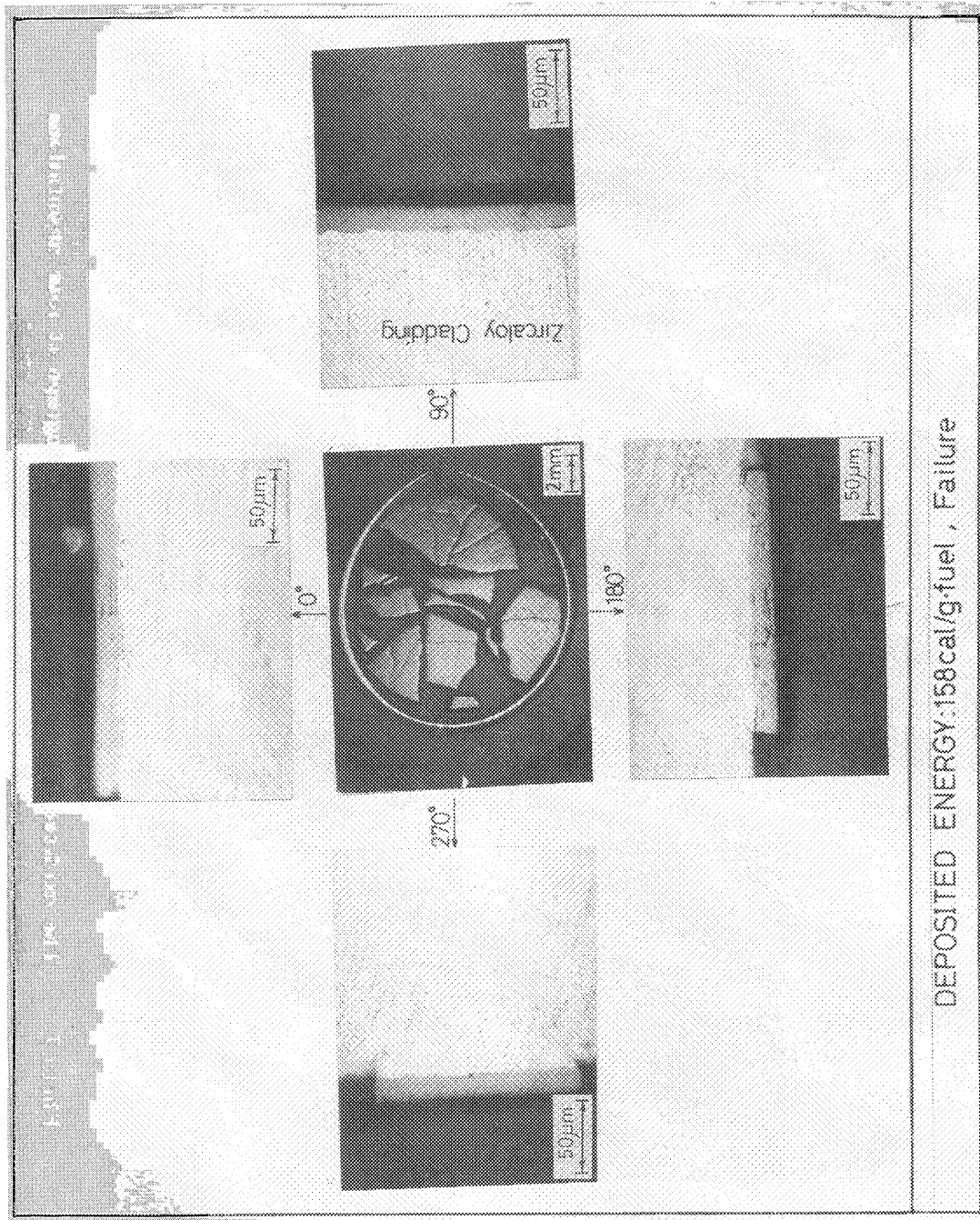


Photo. 8 The oxidized fuel rod and magnified photograph at four orientations after pulse irradiation, fuel rod P16 from Ex. 525-2.

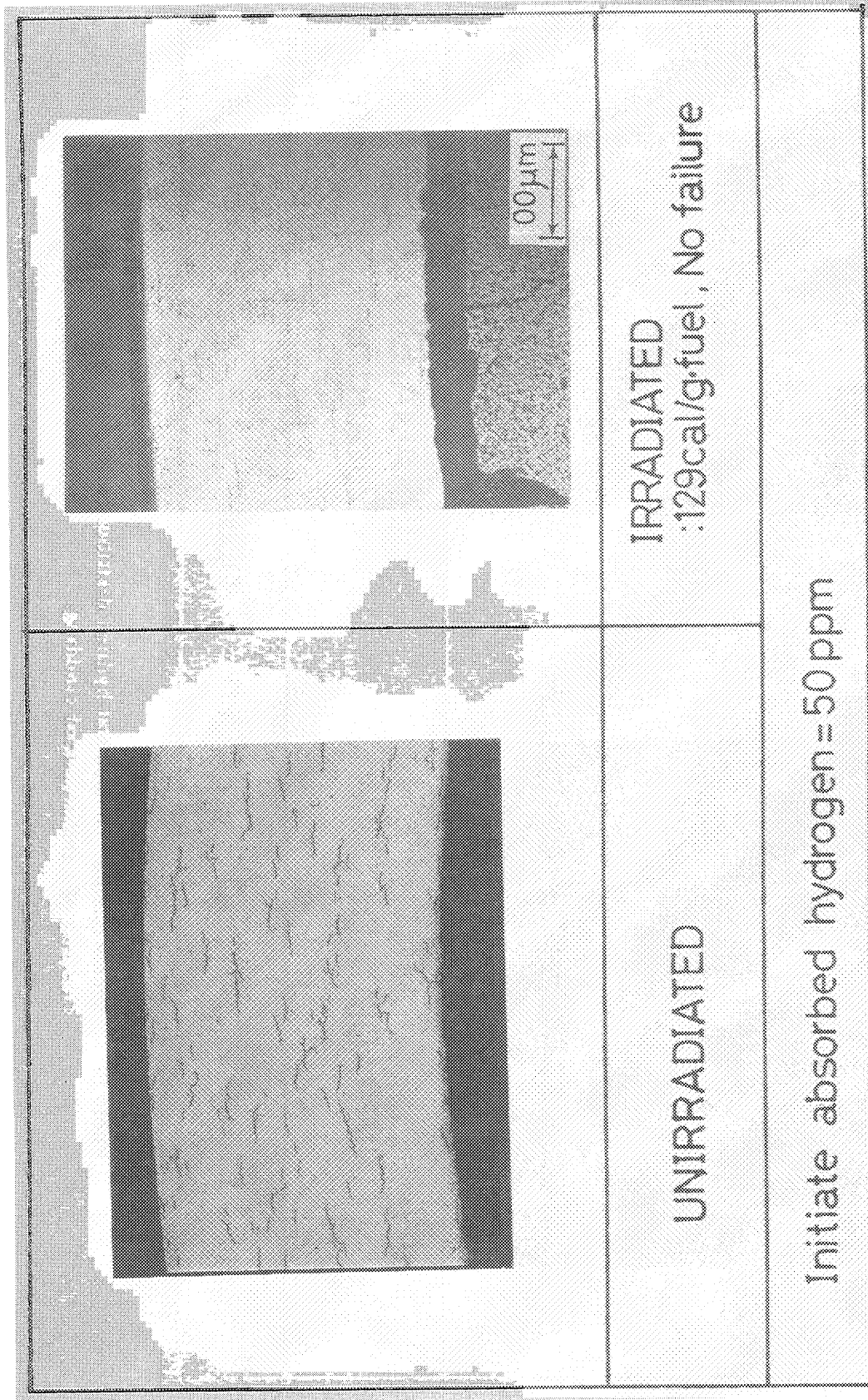


Photo.9 Microstructural comparison hydried distribution between unirradiated cladding and postirradiated cladding.

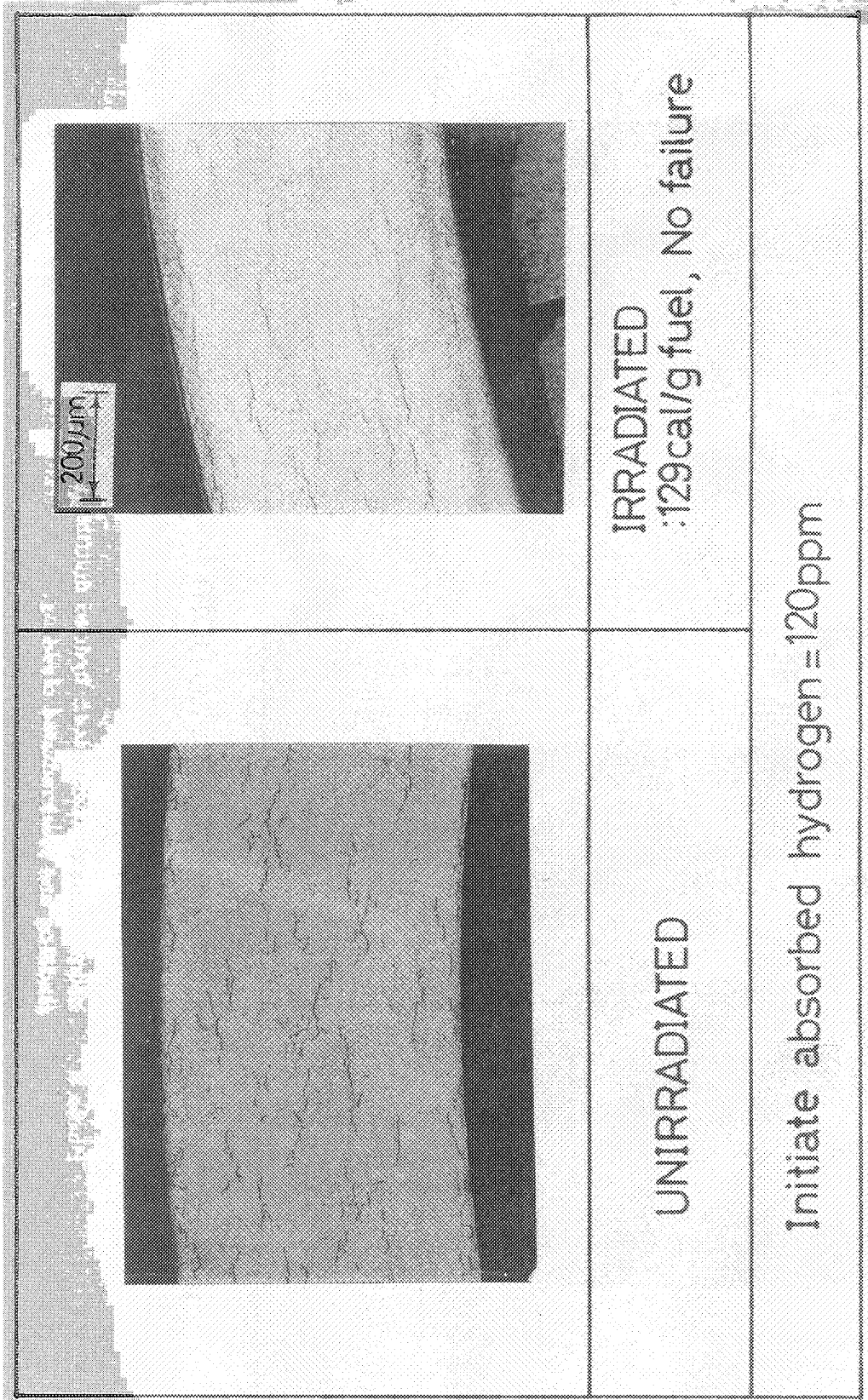


Photo.10 Microstructural comparison hydried distribution between unirradiated cladding and postirradiated cladding.