

JAERI - M
90-164

Nb₂O₅添加UO₂燃料の反応度
事故時ふるまいに関する研究

1990年9月

柳澤 和章・三村 英明・木村 康彦

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, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

Nb₂O₅添加UO₂燃料の反応度事故時ふるまいに関する研究

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

柳澤 和章・三村 英明⁺・木村 康彦⁺

(1990年8月28日受理)

Nb₂O₅ (以下、本報ではナイオビアと称す) を微量添加すると、結晶粒が粗大化 (9 μm→25 μm) し、クリープ速度が10²オーダー程速くなり、さらには塑性流動効果が増して、燃料のPCMIが低減される傾向にある事が知らされている。しかしこれらは、いずれも通常運転下のナイオビア燃料に関するものであり、反応度事故 (RIA) 条件下で同じ様な効果が期待されるかどうか不明である。また、それらについて研究した成果は見当たらない。そこで、ナイオビア0.29w/o添加したUO₂燃料 (添加燃料) を準備し、そのRIA時ふるまいを研究した。

実験では、性能比較のため、ナイオビアを添加しないUO₂燃料 (無添加燃料) も準備した。供試燃料棒は14×14PWR型仕様とし、混合ガス95%He+1%Kr+4%Xeを平均3.4MPaまで加圧充填したのち、発熱量をかえてパルス照射した。PCMIの観点からみれば、非加圧又は0.6MPa程度までの僅かな加圧を行った状態における燃料ふるまいも重要であるが、これについては、現在実験が進行中であり、後日別報にて報告する。本加圧燃料実験から得られた知見は以下のとおりである。

- (1) 照射したナイオビア添加燃料の結晶組織形態観察から、結晶粒界ですべり (塑性流動) が起こった形跡が認められた。また、長手方向の最大変形歪量についても、添加燃料の歪 (0.64%) の方が無添加燃料の歪 (0.90%) よりも小さく、PCMI低減効果が認められた。すなわち、RIAにおいても、ナイオビア添加による燃料の塑性流動効果の向上により、PCMIが低減することが明らかになった。
- (2) 本実験条件下、すなわち加圧混合ガスによる実験においては、ナイオビア添加燃料の破損メカニズムは、被覆管の局所的なふくれによる破裂破損となった。ナイオビア添加の効果は、塑性流動の向上によるPCMI低減において一部観られたものの、ふくれの影響があまりに大きく、その他の燃料ふるまいについては明確には表れなかった。この破損メカニズムは、安全審査指針作成時にデータベースとなったNSRR標準加圧燃料の破損メカニズムと一致した。また、その破損しきい値は、RIA指針値を下回らなかった。
- (3) パルス照射前後で、燃料中におけるNbの分布は一部偏析はあるもの全体的に均一であり、安定化していた。

Study on Behavior of Niobia Dopant UO₂ Fuel Under
Reactivity Initiated Accident Conditions

Kazuaki YANAGISAWA, Hideaki MIMURA⁺ and Yasuhiko KIMURA⁺

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

(Received August 28, 1990)

An addition of small amounts of niobia (Nb₂O₅) is known to cause the grain growth (from 9 to 25 μm), to increase the creep rate by two orders of magnitude, and to enhance the fuel plasticity. Regarding fuel performance under steady-state condition, this niobia doping is quite effective to reduce pellet-cladding mechanical interaction. However, no data exists to show the merit of niobia dopant under reactivity initiated accident (RIA) conditions. Therefore, study was made on the behavior of niobia (Nb₂O₅, 0.29w/o) doped UO₂ fuel under RIA conditions. For comparison, non-doped UO₂ fuel was used. The prepared fuel rods were 14×14 type PWR. Filler gas was 95%He+1%Kr+4%Xe prepressurized to 3.4MPa.

From the viewpoint of PCMI, the use of un-pressurized or pressurized fuel to less than 0.6MPa is also important. The results for this case will be described in a separate report. Pulse irradiation was carried out by changing the energy deposition as the major parameter. Obtained results are:

- (1) From microstructural study, it was found that there existed the trace of grain boundary gliding in the dopant fuel. Maximum axial strain in the dopant fuel (0.64%) is less than that in non-dopant fuel (0.90%). Thus, the dopant fuel is effective to reduce the magnitude of pellet-cladding mechanical interaction by enhancing

⁺ Department of Reactor Fuel Examination

fuel plasticity, even though under RIA conditions.

- (2) The failure mechanism of tested niobia dopant fuel was cladding rupture accompanied with local ballooning. This tended to mask the effects of fuel plasticity at higher energy deposition levels. No significant difference in failure mechanisms was observed between niobia dopant fuels and the prepressurized fresh fuels used in past NSRR experiments. Failure threshold of the tested niobia dopant fuel is not less than that of past NSRR experimental data line presented in the Licensing Guide for RIA.
- (3) Although there existed a partial segregation at very small amounts of niobia, most niobia distributed uniformly in the observation before and after the pulse irradiation.

Keywords: Niobia, Dopant Fuel, RIA, PCMI, Cladding Ballooning

目 次

1. 序 論	1
2. 実験方法	2
2.1 ナイオビア添加燃料の製作及びその基本的特性	2
2.2 燃料棒の特性とパルス照射	3
2.3 燃料計装	3
2.4 発熱量	4
3. 実験結果及び考察	4
3.1 燃料破損しきい値	4
3.2 燃料の過渡ふるまい	4
3.3 照射後試験	7
4. 結 言	11
謝 辞	12
参考文献	12

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Method	2
2.1 Fabrication of niobia additive fuels and its fundamental properties	2
2.2 Characteristic of test fuel rod and pulse irradiation	3
2.3 Instrumentation of fuel rod	3
2.4 Energy deposition	4
3. Experimental Results and Discussion	4
3.1 Fuel failure threshold	4
3.2 Transient behavior of fuel rod	4
3.3 Post-pulse irradiation examination	7
4. Conclusion	11
Acknowledgments	12
References	12

1. 序 論

我が国の発電用軽水型原子炉（以下、軽水炉）では、 UO_2 燃料ペレット—ジルカロイ被覆管型の燃料棒が用いられている。燃料棒は、束ねられたのち、燃料集合体として原子炉に装荷される。この燃料集合体（Assembly又はCluster）には、利用燃焼度に制限（規制）が設けられている。例えば、BWR型燃料棒については 40MWd/kgU 、一方、PWR型燃料棒については 39MWd/kgU が現行規制レベルとなっている。このPWR型燃料集合体については、 39MWd/kgU から 48MWd/kgU まで現行燃料棒仕様のまま燃焼度を引き上げる計画があり、一部では実行に移されている。将来的には、 48MWd/kgU から 55MWd/kgU までさらに燃焼度を引き上げる計画もあり⁽¹⁾、これについては改良燃料棒の採用によりそれが実現可能とされている^(2,3)。BWR型燃料棒についても同様である。すなわち、改良燃料棒の採用により、現行規制燃焼度 40MWd/kgU から 50MWd/kgU 、さらに 60MWd/kgU への引き上げが計画されている^(4,5)。我が国では、これに対応した実証試験も進行中である⁽⁶⁾。

燃料の高燃焼度化の傾向は、我が国のみならず諸外国においても同様のようである^(7,8)。

燃焼度の引き上げは、BWR及びPWRを問わず、いずれも改良燃料の採用により行われる予定である。この改良燃料の候補として着目されているものの1つに、微量ナイオビア (Nb_2O_5) を UO_2 中に添加 (dope) した燃料がある。この燃料に関しては、英国の中央電力庁 (Central Electricity Generating Board : CEGB) 等の研究歴が長く、また燃料ふるまいに関して、数多くの成果があげられている。それによれば、燃料ふるまいの観点からナイオビア添加燃料に関して、以下の様な知見が現在までに得られている^(9,12)。

- (1) ナイオビア添加によって、 U^{4+} イオンのモビリティが増加して焼結時に燃料の結晶粒界が大きくなる。このため、FPガス気泡のシンクとしての粒界が少なくなるとともに、粒内気泡の粒界への拡散経路が長くなって、FPガスが放出されにくくなる⁽⁹⁾。
- (2) Nb_2O_5 の添加により U^{5+} イオン濃度が抑制されるとともに、 Nb^{5+} イオンの添加により結晶体中の欠陥構造に変化が生じる。このため、燃料ペレットのクリープ速度がニオブ添加を行わない燃料に較べて2桁以上も大きくなる⁽¹⁰⁾。
- (3) Nb_2O_5 の添加によって塑性流動 (plasticity) 効果が顕著になり、PCMI低減が一層すすむ⁽¹¹⁾。
- (4) 燃焼度 16MWd/kgU で実施した出力急昇試験 (最高線出力 61kW/m)では、Fig.1に示す様に、 Nb_2O_5 入り燃料にはPCI破損が生じなかった⁽¹²⁾。

これらの知見からナイオビア添加燃料の改良燃料としての位置付けは有望であると考えられる。

しかしながら、反応度事故 (Reactivity Initiated Accident, 以下RIA) 時の燃料安全性の観点からみた場合、結晶粒が大きくなったり、クリープ速度が早くなったり、塑性流動効果が増加したりする事が、どの程度、燃料の安全性を向上させるかは、現在までのところ明らかでない。また、これに関するデータは皆無である。そこで、我々は、(1)ニオブ添加燃料の塑性流動効果が、RIA時の燃料PCMI低減にも期待できるのか、(2)燃料破損メカニズムにニオブ添加の影響が何ら

かの形で現れるのか、(3)燃料リロケーションに添加の影響が出るのか、(4)パルス照射前後で、燃料中のNb分布に大きな変化が生ずるのか、等に着目した実験を行うこととした。

さらに、RIA模擬条件下でナイオビア添加燃料がRIA指針⁽¹³⁾の基準に適合するかどうかを判断できるデータがないので、これについても実験から入手することにした。

今回の実験では、PWR燃料が製造時に3.2MPaまで加圧されることを考慮し、14×14PWR型の加圧燃料(3.3~3.4MPa、常温)を供試試料とした。一方、PCMIの観点からは実際の運転条件を考慮した外圧支配下での実験も重要であろう。そこで、非加圧か加圧しても0.6MPaまでのPWR型燃料棒を準備し、別途実験を行うこととした。この結果については、後日別報にて報告する。

2. 実験方法

Table 1 に示す様に、14×14PWR型仕様をもった、ナイオビア添加燃料棒(以下、添加棒と略称する)と、ナイオビアを添加しない燃料棒(以下、標準棒と略称する)の2種類を製作した。標準棒としては、G22~G27及びG42~G44を準備した。前者には3.4w/o濃縮のエンドペレットが1ケづつ入っているのに対し、後者ではエンドペレットに天然のUを使用している点だけである。

これまでのNSRR加圧燃料棒実験では、充填ガスとして100%Heを使用してきた。このときの加圧範囲は0.1~5.0MPaであった。本実験で用いた燃料棒の内圧とガス組成に関しては、商用炉にて燃焼度40MWd/kgUまで照射したPWR型燃料棒の照射末期状態を模擬⁽¹⁴⁾、前者について3.3~3.4MPa、後者については95%He+1%Kr+4%Xeとした。

2.1 ナイオビア添加燃料の製作及びその基本的特性

原料のUO₂粉末は、ADU (Ammonium Diuranate) 法にて作製したものであり、その純度は99.9%である。この粉末を用いたNb₂O₅添加燃料ペレットの成形・加工工程をFig. 2 に示す。Nb₂O₅粉末は、添加量が0.29w/o (0.29mol/o)と微量であった為、3回の機械混合で所定量に達する様に、工夫がなされた。続いて、通常の造粒、成形で得た圧粉体を加湿水蒸気流中において1750℃で3時間加熱し、焼結した。

このNb₂O₅ 0.29w/oの根拠は、CEGBのSawbridgeらが行った、Nb₂O₅添加燃料のクリープ特性実験結果⁽¹⁵⁾に基づいている。Fig. 3はその実験結果から引用した。Nb₂O₅は1mol%程度まではUO₂中に固溶体を作るとされている。図から分かる様に、Nb₂O₅添加量の増加と共に二次クリープ速度が増加する傾向にあるが、0.3~0.4mol%程度で殆んど二次クリープ速度が飽和する。そこで、本報は、この二次クリープ速度が飽和するNb₂O₅添加量0.29w/oに着目し、所期添加量とした。なお、CEGB実験結果では、0.29w/o Nb₂O₅添加により、二次クリープ速度は2オーダー程度増加した。

かの形で現れるのか、(3)燃料リロケーションに添加の影響が出るのか、(4)パルス照射前後で、燃料中のNb分布に大きな変化が生ずるのか、等に着目した実験を行うこととした。

さらに、RIA模擬条件下でナイオビア添加燃料がRIA指針⁽¹³⁾の基準に適合するかどうかを判断できるデータがないので、これについても実験から入手することにした。

今回の実験では、PWR燃料が製造時に3.2MPaまで加圧されることを考慮し、14×14PWR型の加圧燃料(3.3~3.4MPa、常温)を供試試料とした。一方、PCMIの観点からは実際の運転条件を考慮した外圧支配下での実験も重要であろう。そこで、非加圧か加圧しても0.6MPaまでのPWR型燃料棒を準備し、別途実験を行うこととした。この結果については、後日別報にて報告する。

2. 実験方法

Table 1 に示す様に、14×14PWR型仕様をもった、ナイオビア添加燃料棒(以下、添加棒と略称する)と、ナイオビアを添加しない燃料棒(以下、標準棒と略称する)の2種類を製作した。標準棒としては、G22~G27及びG42~G44を準備した。前者には3.4w/o濃縮のエンドペレットが1ケづつ入っているのに対し、後者ではエンドペレットに天然のUを使用している点だけである。

これまでのNSRR加圧燃料棒実験では、充填ガスとして100%Heを使用してきた。このときの加圧範囲は0.1~5.0MPaであった。本実験で用いた燃料棒の内圧とガス組成に関しては、商用炉にて燃焼度40MWd/kgUまで照射したPWR型燃料棒の照射末期状態を模擬⁽¹⁴⁾、前者について3.3~3.4MPa、後者については95%He+1%Kr+4%Xeとした。

2.1 ナイオビア添加燃料の製作及びその基本的特性

原料のUO₂粉末は、ADU (Ammonium Diuranate) 法にて作製したものであり、その純度は99.9%である。この粉末を用いたNb₂O₅添加燃料ペレットの成形・加工工程をFig. 2 に示す。Nb₂O₅粉末は、添加量が0.29w/o (0.29mol/o)と微量であった為、3回の機械混合で所定量に達する様に、工夫がなされた。続いて、通常の造粒、成形で得た圧粉体を加湿水蒸気流中において1750℃で3時間加熱し、焼結した。

このNb₂O₅ 0.29w/oの根拠は、CEGBのSawbridgeらが行った、Nb₂O₅添加燃料のクリープ特性実験結果⁽¹⁵⁾に基づいている。Fig. 3はその実験結果から引用した。Nb₂O₅は1mol%程度まではUO₂中に固溶体を作るとされている。図から分かる様に、Nb₂O₅添加量の増加と共に二次クリープ速度が増加する傾向にあるが、0.3~0.4mol%程度で殆んど二次クリープ速度が飽和する。そこで、本報は、この二次クリープ速度が飽和するNb₂O₅添加量0.29w/oに着目し、所期添加量とした。なお、CEGB実験結果では、0.29w/oNb₂O₅添加により、二次クリープ速度は2オーダー程度増加した。

焼きしまり特性を調べる目的で再焼結試験（条件， $1700^{\circ}\text{C}\times 24\text{h}$ ，寸法密度の比較）を行った結果，添加燃料の密度増加は $0.88\%\text{TD}$ であった。一方，標準燃料の密度増加は $1.74\%\text{TD}$ であった。その差が生じたのは，前者に気孔形成材（ポアフォーマ）が意図的に混入されていて，焼きしまりが生じにくいような微細構造組織になっていたためと理解される。

Fig. 4 に示す様に，ナイオビアを微量添加すると燃料焼結時の酸素ポテンシャルが増加し，焼結が活性化することが分かる。すなわち，標準燃料に比較して，添加燃料は極く僅かの焼結時間で高密度でかつ大粒径のペレットになる。Table 1 に示す様な仕様（密度は $95\%\text{TD}$ 等）を満足するためには，ある程度の密度制御を行いつつ，熱的寸法安定性のある燃料を作ることが重要である。気孔形成剤の添加は，この密度制御を容易する目的で行ったものである。

燃料ペレットについては，焼結後に化学成分の分析を行った。その結果をTable 2 に示す。この表から分かる様に，添加 Nb_2O_5 量は 0.29w/o （モル%でも同じ値）となった。以下，本報では Nb_2O_5 濃度を記述する場合，基本的には 0.29w/o とするが，時には 0.30w/o とも記述する。

Photo.1は，エッチング後の添加燃料と標準燃料の微細構造組織を比較した写真である。2次元切断法による添加燃料の平均結晶粒径は $25\mu\text{m}$ であり，標準燃料のそれは $9\mu\text{m}$ であった。（Table 1 参照）。添加燃料に対し，二次クリープ速度を測る目的で，圧縮試験を行った。その結果をFig. 5 に示す⁽¹¹⁾。CEGBの実験と同様，添加燃料のクリープ速度は，標準燃料のそれより約2オーダー速かった。

2.2 燃料棒の特性とパルス照射

供試燃料は，Table 1 に示す様に，外径 9.29mm ，高さ 15.2mm の両端ディッシュ形状を有している。また，被覆管は応力除去ジルカロイ-4で，外径 10.72mm ，被覆管肉厚 0.62mm であった。

供試燃料棒の外観を，Fig. 6 に示す。燃料有効長は 135mm （天然Uをエンドペレットとした標準棒は 112mm ）であり，頂部側の約 2.7ml をプレナム空間としている。

実験では，Fig. 7 に示す様な照射カプセル中に，標準棒2本及び添加棒1本の合計3本の燃料棒を同時に装荷し，大気圧条件下（冷却水温度 $\sim 20^{\circ}\text{C}$ ）で同時にパルス照射した。このパルス照射実験の概要をTable 3 に示す。実験は発熱量を変えて，合計3回実施した。

2.3 燃料計装

供試燃料棒には，Fig. 6 に示す様に，内圧計，被覆管伸び計，燃料伸び計（ムーブメントマーカー），被覆管表面温度測定用のPt/Pt-13%Rh型熱電対といった計装を施した。ムーブメントマーカーはジルカロイ製の円環（幅約 2mm ）で，照射前後の燃料スタックの移動量から，最大変位量を推定するものである。また，熱電対は，燃料の有効発熱部の軸方向中央点に取り付けた。

燃料棒はパルス照射後， $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ 等の核種により長手方向 γ スキニングを行い，発熱量の長手方向分布を求めた。その結果，Fig. 8 に示す様に，燃料スタック長 121mm を形成する 10% の濃縮ペレットとその両端 14mm の 3.4% 濃縮エンドペレットとの境界面付近で，発熱量のピー

ク（頂部側及び底部側とも約1.3）が生じているのが分かった。しかし、それ以外の場所では、出力分布はほぼ平坦（ピーキング係数1.0）であった。

2.4 発熱量

燃料棒の平均発熱量は、燃料棒中央位置で照射済燃料ペレット1個を抜き取り、溶解して燃焼度分布⁽¹⁶⁾測定を行うことにより求めた。本報でこれ以後用いる発熱量の値は、この燃焼度分析から得た平均値である。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ー（エンタルピー値）を用いているので、本実験でも指針との比較の場合には、発熱量をエンタルピー値に変換し、これを用いた。

燃料破損が比較的多かったのは、Fig. 8で示した燃料底部のピーキング箇所付近であり、そこでの局所発熱量（ピーキング係数1.3）は平均発熱量よりも約3割近くも高かった。平均発熱量を得るため燃焼度分析の過程で生じた実験誤差は±5%の範囲内にあった。

3. 実験結果及び考察

3.1 燃料破損しきい値

Fig. 9は、供試燃料棒の発熱量（燃料エンタルピー値で表示）を燃料棒と冷却材間の圧力差でプロットしたものである。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に加え、発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事故に関する評価指針⁽¹³⁾から引用した「燃料棒の許容設計限界」（燃料エンタルピー値で表示）も併せて示した。

これから明らかなように、添加棒の破損エンタルピーはいずれも従来のNSRR実験の結果の値を下回らず、現指針の許容設計限界の値が、 Nb_2O_5 を添加した燃料棒に対して十分適用可能であることが明らかにされた。

特に、エンタルピー $116\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ （発熱量 $149\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ ）では、用いた2本の標準燃料棒が2本とも破損してしまったのにも拘らず、添加棒は破損しなかった事が注目される。

本実験に用いた添加棒の破損しきい値は、少なくともRIA指針値よりも高いところ（ $149\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ と $161\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ の間）にある。

3.2 燃料の過渡ふるまい

燃料棒に取り付けた計装機器からRIA時の燃料ふるまいデータを得た。それらをまとめてTable 4に示す。表中には、本実験の標準燃料と同一仕様で、同時期に行われた参考実験からのデータ（表中P2, P5~P9）も参考のため含めた。以下、この表に基づいて、燃料の過渡ふるまいについて考察する。

ク（頂部側及び底部側とも約1.3）が生じているのが分かった。しかし、それ以外の場所では、出力分布はほぼ平坦（ピーキング係数1.0）であった。

2.4 発熱量

燃料棒の平均発熱量は、燃料棒中央位置で照射済燃料ペレット1個を抜き取り、溶解して燃焼度分布⁽¹⁶⁾測定を行うことにより求めた。本報でこれ以後用いる発熱量の値は、この燃焼度分析から得た平均値である。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ー（エンタルピー値）を用いているので、本実験でも指針との比較の場合には、発熱量をエンタルピー値に変換し、これを用いた。

燃料破損が比較的多かったのは、Fig. 8で示した燃料底部のピーキング箇所付近であり、そこでの局所発熱量（ピーキング係数1.3）は平均発熱量よりも約3割近くも高かった。平均発熱量を得るため燃焼度分析の過程で生じた実験誤差は±5%の範囲内であった。

3. 実験結果及び考察

3.1 燃料破損しきい値

Fig. 9は、供試燃料棒の発熱量（燃料エンタルピー値で表示）を燃料棒と冷却材間の圧力差でプロットしたものである。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に加え、発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事故に関する評価指針⁽¹³⁾から引用した「燃料棒の許容設計限界」（燃料エンタルピー値で表示）も併せて示した。

これから明らかなように、添加棒の破損エンタルピーはいずれも従来のNSRR実験の結果の値を下回らず、現指針の許容設計限界の値が、 Nb_2O_5 を添加した燃料棒に対して十分適用可能であることが明らかにされた。

特に、エンタルピー $116\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ （発熱量 $149\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ ）では、用いた2本の標準燃料棒が2本とも破損してしまったのにも拘らず、添加棒は破損しなかった事が注目される。

本実験に用いた添加棒の破損しきい値は、少なくともRIA指針値よりも高いところ（ $149\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ と $161\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ の間）にある。

3.2 燃料の過渡ふるまい

燃料棒に取り付けた計装機器からRIA時の燃料ふるまいデータを得た。それらをまとめてTable 4に示す。表中には、本実験の標準燃料と同一仕様で、同時期に行われた参考実験からのデータ（表中P2, P5~P9）も参考のため含めた。以下、この表に基づいて、燃料の過渡ふるまいについて考察する。

3.2.1 燃料棒の長手方向変形

Fig.10は発熱量に対して、燃料棒長手方向の最大変形歪をプロットしたものである。図中破線は、商用炉にてPWR型燃料棒が照射された場合、照射中に経験すると思われる最大歪(0.1%)を示している⁽¹⁷⁾。それとの比較から、RIA条件でのPWR型燃料棒の長手方向変形は通常運転の4~9倍にも達することが分かる。さらに、図から、次の事が分かる。

- (1) 発熱量121cal/g・fuel付近(添加棒も標準棒も非破損)での長手方向変形では、標準棒の最大伸び歪は0.90%であり、添加棒の最大伸び歪は0.64%であった。
すなわち、ペレット-被覆管相互作用(PCMI)の観点からみると、添加棒のPCMIは、標準棒より小さかった。この差は、燃料の塑性流動特性等の差異によって生じたものと思われる。
- (2) 発熱量が149cal/g・fuel(添加棒は非破損、標準棒は2本とも破損)及び161cal/g・fuel(添加棒も標準棒も破損)付近では、添加棒及び標準棒間に伸び歪の差異があまりなく、最大伸び歪で約0.4%になっていた。これは、後述する様に、燃料棒の破損メカニズムがふくれによる破裂破損であるため、長手方向の伸びが0.4%歪程度で終息してしまったものと思われる。

Fig.11~Fig.13は、発熱量121, 149, 及び161cal/g・fuelにおける供試燃料棒の長手方向伸び変形を、時間に対してプロットしたものである。

Fig.11から、極めて短い時間に燃料棒の長手方向PCMIがピークに達し、それ以降は緩和によって減少しているのが分かる。また、添加棒及び標準棒の変形モードに差異はあまりみられない。

Fig.12において、実線で示す添加棒は非破損、また破線で示す標準棒は破損となっている。図には、圧力データから推定した燃料破損時刻が、矢印にて示されている。これより、標準棒の破損はPCMI変形の最大時刻にて生じたこと、また破損後も緩和が進行した事が分かる。

Fig.13では、図中の燃料棒は2本とも、ふくれによって破裂破損している。推定破損時刻は、前図と同様矢印にて示した。最大歪レベルは両者で大きな差異はないが、添加棒は歪緩和に入ってから破損しているのが特徴的である。一方、標準棒は、最大歪到達時に破損している。

以上から、RIAでの長手方向PCMIはパルス照射直後の極めて短い時間内で生じるが、それはふくれ変形が支配的になった時点で、ほぼ終息することが分かる。

この応力・歪緩和と破損との関係について、もう少し考察する。

出力上昇によって燃料棒に発生したPCMIは、その後出力が一定になったり減少したりすると応力や歪の緩和により減少する。燃料破損(例えば、PCI破損)が応力・歪緩和の過程で発生すると、そこで、急激に応力・歪の開放がおこり、緩和量が急激に減少したりすることもある。通常運転状態の燃料棒には、この様なことが破損時に生じることが良く知られている。この現象は、“ONCHI効果”と通称されている^(18,19)。

RIA条件で、燃料棒が破損した場合、ONCHI効果が観られるかどうかは、これまで明らかにされなかった。しかし、最近著者らが行ったRIA実験によって、RIA時においても燃料破損があると、ONCHI効果がみられることもあることが確認された⁽²⁰⁾。

このRIA時にONCHI効果がみられるのは、どうやらPCMI増加時に燃料破損が生じた場合の様である。本実験の様に、長手方向の歪が最大値に到達して応力・歪緩和が開始されてしまうと、

ONCHI効果が生じないこともある可能性を、Fig.12及び13の緩和データが示している。このような場合、燃料棒にとりつけた長手方向伸びセンサーは破損モニターとして活用することはできない様である。

3.2.2 燃料棒径方向の残留歪と燃料スタックの伸縮

燃料棒のPCMI変形に関しては、長手方向変形モードのみならず径方向の変形データも重要である。しかし、本実験では径方向変形データを得るための計装機器はなかった。そこで、照射後試験（以下、PIEと称す）において、燃料棒外径を測定し、照射前データとの比較により径方向変形（残留直径歪）を推定することとした。

一方、燃料スタックの長手方向伸縮データは、照射前後のムーブメントマーカの移動量をX線写真から判定することで得られた。

両者のデータプロットをFig.14に示す。同図(1)から分かる様に、添加棒と標準棒がともに非破損で、かつ大きな長手方向変形がみられた121cal/g・fuelでは、径方向の残留変形は小さかった。また、添加棒と標準棒間にあまり差異はなかった。

発熱量の増加と共に、ふくれが発生し、径方向の残留歪も大きくなっている。しかし、添加棒のデータは2つの標準棒データ点の間にあった。これより添加棒と標準棒の残留直径歪に、著しい差異はないと判断される。

同図(2)から分かる様に、燃料スタックの伸びは、添加棒と標準棒間で差異がなく、また発熱量にもあまり依存していない。これは、パルスの極く初期において、燃料がスウェリングして被覆管に接触し、その後は燃料スタックが固着してしまったため、このような結果になったと思われる。

3.2.3 燃料棒内圧変化

Fig.15は、パルス照射中の燃料棒の内圧増加量である。これから分かる様に、燃料内圧は発熱量の増加によって増加する傾向にはある。しかしそれはあまり顕著でない。その理由は、もともと未照射燃料を使用しているために、FPガス等の追加放出がないためである。

Fig.16は、発熱量121cal/g・fuelにおける燃料棒内圧の経時変化データである。0.5sec付近でパルス照射があり、その後内圧が3.5から4.0MPaまで急激に立ち上がった。それ以後は、両燃料棒の内圧は徐々に低下している。

Fig.17は、発熱量149cal/g・fuelにおける燃料棒内圧の経時変化データである。パルス後、両燃料棒の内圧は急激に立ち上がったが、標準棒はピーク圧力到達後0.56sec後に圧力値が0.1MPa（大気圧）になった。すなわち破損した。しかし、添加棒は、ゆるやかに圧力値を低下させたものの、大気圧には至らなかった。すなわち非破損だった。

Fig.18は、発熱量161cal/g・fuelにおける燃料棒内圧の経時変化データである。0.5sec付近でパルス照射があり、その後両燃料棒の内圧は急激に立ち上がった。標準棒についてはピーク圧力到達後0.44secで、また添加棒については0.67secで燃料破損が発生し、両者の燃料棒内圧が大気圧になっている。

この様に、圧力センサーは、燃料棒内圧の経時変化を追跡できるだけでなく、破損モニターと

しても利用可能な事が、本実験の結果から明らかである。

Fig.19は、燃料棒が破裂破損に至るまでの時間を、内圧データから推定してプロットしたものである。図から、破裂破損に至る時間と発熱量に関しては相関がみられる。すなわち発熱量が大きい程破損時間が短くなっている。この時間は極めて低く、全体的に0.3~0.7secのオーダーである。LWR燃料が急激な過渡を受けた場合、時としてPCI破損する。この破損に至るまでに必要な時間を調べたMogardらによる実験によれば⁽²¹⁾、最高線出力60kW/mまでの出力急昇(10kW/m・min)において、破損が発生するのに50~60secが必要であったとされている。この様に、破損メカニズムによって燃料の破損時間には差異があり、RIA時の燃料破損は極めて短時間で発生することが知れる。

3.2.4 被覆管表面温度

Fig.20は、燃料被覆管の最大表面温度を発熱量に対してプロットしたものである。図から分かる様に、標準棒と添加棒間には、著しい温度差は観られなかった。また、最大表面温度は発熱量の増加とともに増加する傾向がある。

Fig.21は、発熱量121cal/g・fuelにおける被覆管表面温度の経時変化データである。パルスと共に被覆管温度は急昇し、核沸騰離脱(DNB)をおこしている。標準棒と添加棒の間に著しい温度差はないが、燃料温度が急激に低下するクエンチに関しては、添加棒の方が時間的に早かった。

Fig.22は、発熱量149cal/g・fuelにおける被覆管表面温度の経時変化データである。最高到達温度に関して両者に差はないが、破損した標準棒よりも非破損であった添加棒の方が、早くクエンチに至った。

Fig.23は、発熱量161cal/g・fuelにおける被覆管表面温度の経時変化データである。最高到達温度については、両者に著しい差異はない。両燃料棒はともに破損したが、クエンチは添加棒の方が早かった。

すなわち、いずれの発熱量においても、添加棒の方が標準棒よりも、早くクエンチに至ったが、これが添加棒に特有の現象であるかどうかはデータベースが少ないので、現時点では判断できない。

3.3 照射後試験

照射キャプセルを解体し、燃料棒を取り出して照射後試験を行った。項目としては、外観、目視検査、X線検査、切断、金相とセラモグラフィ、走査型電子顕微鏡(SEM/XMA)を用いた微細構造組織の観察等である。すでに3.2節で報告したが、この他X線によるムーブメントマーカー移動量の読み取り、⁹⁵Zr-⁹⁵Nbによる長手方向発熱量分布及び燃料溶解による発熱量の評価もPIEの1つである。寸法測定等の結果については、Table 4にまとめたが、これについては、PCMI変形の観点から前節で評価した。

3.3.1 X線検査

Fig. 24は、発熱量 $161\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ で照射され、全て破損した3本の燃料棒に対するX線写真からのスケッチである。1本の燃料棒につき8ヶ～10ヶ近くの燃料ペレットが封入されていたが、燃料と燃料の間の長手方向ギャップは燃料破損箇所以外ではあまり観られなかった。図から分かる様に、破損箇所には燃料のリロケーションや一部長手方向ギャップも生じていた。また、標準棒と添加棒間に著しいリロケーションの差異は観られなかった。

3.3.2 金相組織観察

燃料の破損メカニズムを明らかにするため、主として破損部に対する金相試験を実施した。

3.3.2.1 燃料破損メカニズム

(1) 発熱量 $161\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$

Photo.2は、標準棒 (Table 4 のG22)の破損部に関する、外観及び破損断面輪切り写真である。これより、破損はふくれによる破裂破損であること、断面形状は卵型であること、被覆管は延性破損したことが明らかである。この破損形態は、反応度事故に関する安全審査指針のデータベースとなった過去のNSRR加圧燃料実験データ⁽¹⁶⁾の破損メカニズムとも一致している。

Photo.3は、標準棒 (Table 4 のG42) の破損部に関する、外観及び破損断面輪切り写真である。これより、破損はふくれによる破裂破損であること、破損断面は卵型にふくれていること、被覆管は延性破損したことが分かる。すなわち、製造会社の異なる標準燃料棒間にあっても、破損メカニズムは共通であり、再現性があった。

両標準燃料棒とも、破損部には燃料のリロケーションが一部おきている。このため、切断・樹脂注入等の金相試験準備中に、一部の燃料が別の場所に移動したり、別の場所から移動して来たりする可能性も考えられる。

Photo.4は、添加棒 (Table 4 のG25) の破損部に関する外観及び破損断面の輪切り写真である。これより、破損はふくれによる破裂破損であること、破断面の形状は卵型であること、被覆管は延性破損したことが分かる。すなわち、この破損形態は、標準棒と同じであり、反応度事故に関する安全審査指針のデータベースとなった過去のNSRR加圧標準燃料実験データ⁽¹⁶⁾の破損メカニズムとも一致している。

これは、ナイオビア 0.29w/o の添加があっても、破損メカニズムには何ら、影響が及ばなかった事を示唆している。

(2) 発熱量 $149\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$

Photo.5は、標準棒 (Table 4 のG23) の破損部に関する、外観と破損断面輪切り写真である。破損形態及び破損メカニズムは(1)で記述した標準棒のそれらと変わりはない。

Photo.6は、標準棒 (Table 4 のG43) の破損部に関する、外観と破損断面輪切り写真である。破損形態及び破損メカニズムは、(1)で記述した標準棒のそれらと変わらない。

Photo.7は、非破損であった添加棒 (Table 4 のG26) の、外観と長手方向中央部における断面輪切り写真である。マクロ写真(1)において燃料ペレットの欠損があるが、これは切断時に生じたものである。

発熱量 $121\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ に関しては、金相試験を行わなかった。

3.3.2.2 燃料ペレットの割れ形態

NSRRでは、 Nb_2O_5 以外に燃料ペレット中に添加物を入れた実験⁽²²⁾、ヨウ素ガスを封入した実験⁽²³⁾、等を実施している。その添加剤入り燃料実験で特徴的だった事は、燃料ペレットの外縁で結晶粒が極端に成長して柱状晶を作ったこと⁽²³⁾、数多くのヘアークラックが発生したこと、半月状の割れが出現したこと、等である。

本実験でも、添加物入り燃料を使用したので、それらが再現されるかどうか形態研究を行ってみた。

Photo.8は、 $161\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ で破損した添加棒の、破損部近傍横断面写真である。この写真が破損部近傍であることは、マクロ写真において被覆管の肉厚が極端に薄くなっている事からも理解される。写真から、本実験に用いた添加棒にも、燃料外縁部において半月状の割れやヘアークラックが生じているのが分かる。写真の(1)で、ペレットと被覆管の間に、大きな燃料チップがあるが、これは試料切断時に別の場所から移動してきたものと思われる。

Photo.9は、同一断面に対して、SEM観察を行った結果である。この場所に対してはNbの分布も測定したが、その結果については後述する。

Photo.10は、同一燃料に対して、破損部を輪切りにした写真である。ここでは、燃料が部分的に欠損しているが、半月形の割れはない。しかし、燃料外縁には沢山のヘアークラックがみられた。

Photo.11は、発熱量 $149\text{cal/g}\cdot\text{fuel}$ における、添加棒の輪切り断面写真である。ここでもペレット外縁に沢山のヘアークラックがあった。

Photo.12は、標準棒の金相写真である。この写真と添加棒の写真（前出）を比較すると、添加棒のヘアークラックが相当多いことが分かる。但し、標準棒においても、半月状の割れらしきものは存在しており、この割れパターンは、添加棒特有のものではないかも知れない。

標準棒のみならず添加棒について、燃料ペレットと被覆管間で化学的ゆ着（ボンディング）が生じた傾向は全くない。

3.3.2.3 照射前後の粒界形状比較

ナイオビア添加によって、燃料ペレットの塑性流動（Plasticity）性能が向上することは、クリープ速度が加速されることからして当然予測されることである。パルス照射によって、燃料ペレットの組織上何らかの形でこれが観られるかどうかに着目して、照射前後の同一燃料に対するエッチング写真を撮った。

Photo.13は、その結果である。この写真から分かる様に、標準棒については照射前後で何ら著しい形態上の差異は生じていない。しかし、添加棒には、照射後結晶粒界形状がより丸みをおびていることが分かる。この様に、照射前は角ばっていた粒径形状がパルス照射によって、丸味をおびる傾向は燃料に添加物を入れた別のNSRR実験でも観察されている⁽²²⁾。これは、添加物の存在により、燃料の塑性流動が増して結晶がよりすべりやすくなった結果だと解釈される。

3.3.3 ニオブの燃料ペレット内分布

ナイオビア添加は、製造時に機械混合によって行われている。従って、極めて希ではあるが、

ニオブの微量小片が燃料ペレット中に偏析している事も考えられる。

Photo.14は、添加棒の製造時金相写真である。この写真では、偏析したニオブが認められた。一方、Photo.15は、149cal/g・fuelでパルス照射した添加燃料ペレットのSEM写真である。これら3枚の写真は燃料の外縁部において撮影したが、1番上の写真から、ニオブの偏析が認められた。またそれが確かにニオブである事は、同写真の右側に示したXMA分析写真からも明らかである。

もちろん、殆どどのニオブは、同写真中の下2枚及びPhoto.16に示す様に、 UO_2 中に均一に分布している。また、Photo.16中のZrは、パルス時に隣接した被覆管から燃料中に移動して来たものと考えられる。

そこで、燃料ペレット外縁部0.1~0.5mmの範囲内（SEM/XMAで観察可能な範囲内）において、ニオブがどの様に分布しているかをSEMにて更に観察した。

Fig.25~Fig.27は、未照射の添加棒に対し、ニオブ特性X線を用いてその分布を調べたものである。Fig.25は、写真(1)で測定対象とした燃料の表面状態を示している。同写真中の横断線上でニオブ分布を追跡した。分布追跡は、横線右端から左端に移動しつつ行った。図(2)の、横軸は写真右端からの移動距離を、また、縦軸はニオブの放射能強度を1秒当りのカウント数で示している。縦軸のゼロはニオブのバックグラウンドレベルに相当している。以下、全てこれと同じ方式にてデータプロットを行った。図中(2)のニオブ強度データから分かる様に、この0.0~0.5mmの測定範囲において、ニオブ（以下、Nb）は殆んど均一に分布していた。

Fig.26は、別の測定位置におけるNb分布データである。図中(2)から分かる様に、Nbの分布は殆んど均一であるが、①と示された右端より約0.065mmの位置で、比較的大きなピークが出た。この①の位置は、図中(1)にも示してある。

また0.30~0.32mm付近で、Nbの放射能強度がバックグラウンドレベルより低下してしまっている。

これは、写真から分かる様に、表面が凹の形状となっている気孔に追跡点が入ってしまったためである。

Fig.27は、0.0~0.12mmの追跡範囲でNbの分布を測定した結果である。図中(1)が追跡位置を、(2)がNbに対する面分析の結果を示している。(2)では、白点の数がNbの放射線強度を代表しており、この点が多い程Nbが沢山存在することになる。図(3)は、殆んど均一なNb分布に対し、約0.05~0.06mmの位置でNbが偏析している事を示している。この位置は、図中(1)に①として示してある。

この様に、未照射 UO_2 中も、僅かではあるがNbは偏析していることが明らかになった。

Fig.28~Fig.30は、発熱量161cal/g・fuelで照射した添加棒に対するSEM/XMA分析結果である。Fig.28は、半月形の割れが観られた燃料外縁0.0~0.36mmの範囲でNb強度を測定した結果である。図(c)から分かる様に、①~⑤位置でNbのピークが観られた。このピーク位置は図(b)の写真にも示した。0.33mm測定位置付近で、Nbのカウント数がバックグラウンド以下となってしまうのは、写真(b)から分かる様に、燃料ペレットの割れ位置に追跡点が入ったからである。

Fig.29は、前図で用いたものと同じ試料の、燃料中心側におけるSEM/XMA分析結果である。全体的にNbの分布は均一であるが、①の箇所ピークが生じている。

Fig.30は、測定範囲を0.0~0.12mmに限定した、同試料のSEM/XMA分析結果である。図③から分かる様に、小さなピーク（①と②）がみられた。

パルス照射した燃料のNb分布は、燃料中心側よりもヘアークラックの多い燃料外縁側に、より多くのピークが発生する傾向にあったが、測定試料数が少ないので、全体的にはどうなのかは判断できなかった。

Fig.31~Fig.33は、発熱量149cal/g・fuelで照射した添加棒に対するSEM/XMA分析結果である。

Fig.31は、燃料外縁のヘアークラックが多数存在する部分について、SEM/XMA分析を行った結果である。0.0~0.38mmの測定範囲において、①~⑥のピークがみられ、特に⑥のピークは相対的に大きかった。

Fig.32は、同試料の燃料中心領域に対するSEM/XMA分析結果である。0.0~3.6mmの測定範囲において、①~③のピークがみられ、特に①のピークは相対的に大きい。その他の箇所ではNbの強度は平均5 cps以下である。

Fig.33は、同一試料ではあるが別の領域で測定した燃料外縁部のSEM/XMA結果である。図(d)の②の箇所において大きなNb偏析を示すピークがみられる。

燃料ペレットの平均結晶粒径を25 μ mと仮定し、結晶粒中心から結晶粒界までのNbの相対分布強度を、これまで得られたデータを用いて推定すると、Fig.34のようになる。すなわち、相対的ではあるが、Nbは結晶粒界上に比較的多く存在している事が、図から示唆される。

4. 結 言

ナイオブリア(Nb₂O₅)を0.29w/o機械混合して作製したUO₂燃料棒(添加棒)を準備し、その反応度事故時ふるまいを研究した。実験では性能比較のため、ナイオブリアを添加しないUO₂燃料棒(標準棒)も準備した。供試燃料棒は14×14PWR型仕様とし、混合ガス95%He+1%+4% Xeを平均3.4MPaまで充填加圧したのち、発熱量を変えてパルス照射した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 発熱量121cal/g・fuelで、添加棒のPCMIふるまいを調べた。軸方向の最大変形歪は、添加棒で0.64%、標準棒で0.90%あった。これよりNb₂O₅添加によって、PCMI低減効果があらわれることがわかった。パルス前後の燃料組織の比較から、添加棒の結晶粒界は丸味をおびており、より大きな塑性流動が起こった形跡が認められた。すなわちRIAにおいても、Nb₂O₅添加による塑性流動効果(PCMI低減効果)が期待できることが明らかになった。
- (2) 残留直径及び燃料スタックの最大変位量については、添加棒と標準棒との間に、著しい差異はなかった。これは、実験で用いた燃料の破損が破裂破損メカニズムに基づいており、その状況下では、Nb₂O₅添加の効果が明確に表れなかったものと理解される。
- (3) 燃料棒内圧や被覆管表面温度については、添加棒と標準棒との間に、著しい差異は生じないことが明らかになった。

Fig.30は、測定範囲を0.0~0.12mmに限定した、同試料のSEM/XMA分析結果である。図③から分かる様に、小さなピーク（①と②）がみられた。

パルス照射した燃料のNb分布は、燃料中心側よりもヘアークラックの多い燃料外縁側に、より多くのピークが発生する傾向にあったが、測定試料数が少ないので、全体的にはどうなのかは判断できなかった。

Fig.31~Fig.33は、発熱量149cal/g・fuelで照射した添加棒に対するSEM/XMA分析結果である。

Fig.31は、燃料外縁のヘアークラックが多数存在する部分について、SEM/XMA分析を行った結果である。0.0~0.38mmの測定範囲において、①~⑥のピークがみられ、特に⑥のピークは相対的に大きかった。

Fig.32は、同試料の燃料中心領域に対するSEM/XMA分析結果である。0.0~3.6mmの測定範囲において、①~③のピークがみられ、特に①のピークは相対的に大きい。その他の箇所ではNbの強度は平均5 cps以下である。

Fig.33は、同一試料ではあるが別の領域で測定した燃料外縁部のSEM/XMA結果である。図(d)の②の箇所において大きなNb偏析を示すピークがみられる。

燃料ペレットの平均結晶粒径を25 μ mと仮定し、結晶粒中心から結晶粒界までのNbの相対分布強度を、これまで得られたデータを用いて推定すると、Fig.34のようになる。すなわち、相対的ではあるが、Nbは結晶粒界上に比較的多く存在している事が、図から示唆される。

4. 結 言

ナイオビア(Nb₂O₅)を0.29w/o機械混合して作製したUO₂燃料棒(添加棒)を準備し、その反応度事故時ふるまいを研究した。実験では性能比較のため、ナイオビアを添加しないUO₂燃料棒(標準棒)も準備した。供試燃料棒は14×14PWR型仕様とし、混合ガス95%He+1%+4% Xeを平均3.4MPaまで充填加圧したのち、発熱量を変えてパルス照射した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 発熱量121cal/g・fuelで、添加棒のPCMIふるまいを調べた。軸方向の最大変形歪は、添加棒で0.64%、標準棒で0.90%あった。これよりNb₂O₅添加によって、PCMI低減効果があらわれることがわかった。パルス前後の燃料組織の比較から、添加棒の結晶粒界は丸味をおびており、より大きな塑性流動が起こった形跡が認められた。すなわちRIAにおいても、Nb₂O₅添加による塑性流動効果(PCMI低減効果)が期待できることが明らかになった。
- (2) 残留直径及び燃料スタックの最大変位量については、添加棒と標準棒との間に、著しい差異はなかった。これは、実験で用いた燃料の破損が破裂破損メカニズムに基づいており、その状況下では、Nb₂O₅添加の効果が明確に表れなかったものと理解される。
- (3) 燃料棒内圧や被覆管表面温度については、添加棒と標準棒との間に、著しい差異は生じないことが明らかになった。

- (4) X線検査の結果、添加棒のリロケーションの程度は、標準棒のそれと大きく変わらないことが判明した。
- (5) 金相試験の結果、燃料と被覆管との間には、 Nb_2O_5 添加に起因するボンディング等の不具合は生じなかったことが判明した。
- (6) XMA解析から、ニオブ (Nb) の分布に関するデータを得た。その結果、Nbの分布はペレット全体に亘って均一であるが、ところどころに極く微量の偏析も存在することが明らかになった。
- (7) 本実験条件下での添加棒の破損メカニズムは、被覆管の局所的なふくれによる破裂破損であることが明らかになった。この破損メカニズムは安全審査指針作成時にデータベースとなったNSRR標準加圧燃料の破損メカニズムと一致した。また、本実験に用いた添加棒の破損しきい値は、RIA指針値を下回らないことが、明らかになった。
- (8) パルス照射開始後ふくれ破損に至るまでの時間は、発熱量の増加と共に短くなることが明らかになった。

謝 辞

本実験遂行に際し、燃料安全工学部反応度安全研究室長の藤城俊夫氏からは有益な助言を、また同部NSRR管理室長堀木欧一郎氏他の職員の皆様からは、炉内実験に関する多大な協力を、賜りました。

照射後試験のうち、SEM/XMA分析は実用燃料試験室で実施しましたが、これに関しては燃料試験課長菊地章氏他の皆様に御協力を賜りました。

実験データの整理は、千代田メンテナンス(株)吉田敏幸、黒沢義明及び(財)原子力データセンターの児玉純子嬢に御世話になりました。

ここに、御礼申し上げます。

参 考 文 献

- (1) 福田秀敬, 青木利昌: “軽水炉燃料の高度化”, 原子力工業 34 [6], 7 (1989)
- (2) 三菱原子力技報: “55GWd/t高燃焼度燃料使用炉心について”, No52, p20 (1989)
- (3) 松岡由了: “PWR燃料の高燃焼度”, 火力原子力発電, 41 [3], 335 (1990)
- (4) 宮本俊樹, 他: “炉心・燃料技術”, 東芝レビュー44 [4], 310 (1989)
- (5) 野村正博: “沸騰水型原子炉用高燃焼度燃料の開発”, 火力原子力発電, 41 [1], 57 (1990)
- (6) Mishima, T: “Latest Safety Related LWR Fuel Behaviour Studies in Japan, Overviewed”, J. Nucl. Sci. Technol., 27 [1], 1 (1990)

- (4) X線検査の結果、添加棒のリロケーションの程度は、標準棒のそれと大きく変わらないことが判明した。
- (5) 金相試験の結果、燃料と被覆管との間には、 Nb_2O_5 添加に起因するボンディング等の不具合は生じなかったことが判明した。
- (6) XMA解析から、ニオブ (Nb) の分布に関するデータを得た。その結果、Nbの分布はペレット全体に亘って均一であるが、ところどころに極く微量の偏析も存在することが明らかになった。
- (7) 本実験条件下での添加棒の破損メカニズムは、被覆管の局所的なふくれによる破裂破損であることが明らかになった。この破損メカニズムは安全審査指針作成時にデータベースとなったNSRR標準加圧燃料の破損メカニズムと一致した。また、本実験に用いた添加棒の破損しきい値は、RIA指針値を下回らないことが、明らかになった。
- (8) パルス照射開始後ふくれ破損に至るまでの時間は、発熱量の増加と共に短くなることが明らかになった。

謝 辞

本実験遂行に際し、燃料安全工学部反応度安全研究室長の藤城俊夫氏からは有益な助言を、また同部NSRR管理室長堀木欧一郎氏他の職員の皆様からは、炉内実験に関する多大な協力を、賜りました。

照射後試験のうち、SEM/XMA分析は実用燃料試験室で実施しましたが、これに関しては燃料試験課長菊地章氏他の皆様に御協力を賜りました。

実験データの整理は、千代田メンテナンス(株)吉田敏幸、黒沢義明及び(財)原子力データセンターの児玉純子嬢に御世話になりました。

ここに、御礼申し上げます。

参 考 文 献

- (1) 福田秀敬, 青木利昌: “軽水炉燃料の高度化”, 原子力工業 34 [6], 7 (1989)
- (2) 三菱原子力技報: “55GWd/t高燃焼度燃料使用炉心について”, No52, p20 (1989)
- (3) 松岡由了: “PWR燃料の高燃焼度”, 火力原子力発電, 41 [3], 335 (1990)
- (4) 宮本俊樹, 他: “炉心・燃料技術”, 東芝レビュー44 [4], 310 (1989)
- (5) 野村正博: “沸騰水型原子炉用高燃焼度燃料の開発”, 火力原子力発電, 41 [1], 57 (1990)
- (6) Mishima, T: “Latest Safety Related LWR Fuel Behaviour Studies in Japan, Overviewed”, J.Nucl.Sci.Technol., 27 [1], 1 (1990)

- (7) Ronnberg.G., et al., : "Principles, design and performance of light water reactor fuel", Nucl.Energy, 28[1], 35 (1989)
- (8) OPEN group : "Higher burnup offers attractive possibilities", Nucl. Eng. Int. 35 [428], 24 (1990)
- (9) Ainscough J.B.et al., : "Fission gas retentive UO₂ fuels", Fabrication of Water Reactor Fuel Elements, IAEA Specialists Mtg.Prague, IAEA-SM-223/16, P53 (1978)
- (10) Reynolds G.L.et al., : "The creep of UO₂ fuel doped with Nb₂O₅" RD/B/N 4702 (1979)
- (11) 原田雄平, 他 : "酸化物添加燃料ペレットの開発"三菱原子力技報第48号, p2 (1987)
- (12) Franklin D.G. et al., : "Performance of niobia-doped fuel in power-ramp tests", Nuclear Fuel Performance, BNES London, p141 (1985)
- (13) 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故に関する評価指針について", (昭和59年1月)
- (14) Suzuki.S.et al., : "PWR Fuel Performance and Burnup Extension Program in Japan", IAEA Int.Symp.on Improvement on Water Reactor Fuel Technology and Utilization, Stockholm, Sweden (1986)
- (15) Sawbridge.P.T., Killeen.J.C. : "The Development of Large Grain Sized UO₂ Fuels Doped with Nb₂O₅", RD/B/N4866 (1980)
- (16) Saito.S.et al., J.Nucl.Sci.Technol., 19[4], 289 (1982)
- (17) 柳澤和章, 他 : "軽水炉燃料のペレット-被覆管相互作用, (I) PWR型燃料棒", 原子力誌, 28[7], 641 (1986)
- (18) Yanagisawa.K : "An Evaluation of the Influence of Fuel Design Parameters and Burnup on Pellet/Cladding Interaction for BWR Fuel Rod Through In Core Diameter Measurement", Nucl.Technol.73, 361 (1986)
- (19) 柳澤和章, 他 : "軽水炉燃料のペレット-被覆管相互作用, (II) BWR型燃料棒", 原子力誌, 28[8], 771 (1986)
- (20) 柳澤和章, 他 : "反応度事故条件下における燃料棒内圧及び伸び測定による破損検出", JAERI-M 89-055 (1989)
- (21) Mogard.H.et al., : "The International Trans-Ramp II Project-A Study on the Effect of Rapid Power Ramping on the PCI Resistance of PWR Fuel", Proc. ANS Topl.Mtg.LWR Fuel Performance, Williamsburg, USA p232 (1988)
- (22) Yanagisawa.K.et al., : "Behavior of PCI-Resistant Additive Fuel for BWR under Reactivity Initiated Accident Conditions", J.Nucl.Sci. Technol., 27[1], 56 (1990)
- (23) 笹島栄夫, 他 : "ヨウ素-127を充填した軽水炉型未照射燃料棒の反応度投入事故 (RIA) 時の挙動に関する研究", JAERI-M 88-139 (1988)

Table 1 Characteristics of fuel rods used

Fuel Rod Type	Non-doped standard (1)	Niobia doped
Fuel rod No.	G22, G23, G24,	G42, G43, G44 G25, G26, G27
1. Fuel Pellet	Sintered and ground UO ₂ pellet	
Enrichment(w/o)	10.0, 3.4(end pellet) 10.0, 0.7(end pellet) 10.0, 3.4(end pellet)	
Density (% TD)	94.55	
Outer diameter(mm)	9.29	
Length (mm)	15.2	
End form	Double dishing (6.7mm diameter X 0.3mm depth)	
Niobia dopant	None	
Grain size (μm) (2)	9 0.29w/o(Nb ₂ O ₅) 25	
2. Cladding	Stress relieved zircaloy-4	
Outer diameter(mm)	10.72	
Inner diameter(mm)	9.48	
Wall thickness(mm)	0.62	
3. Fuel Rod	14x14type PWR fuel rod	
Diametral gap(mm)	0.19	
Fill gas pressure(20°C)	3.3~3.4 MPa	
Fill gas composition	95%He+1%Kr+4%Xe(Volumetric percent)	
Plenum volume(ml)	2.7	
Fuel column(mm)	112mm (10.0°) + 23mm (3.4°)	112mm (10.0°) + 23mm (naU°)
	* Enrichment	

(1) Fuel rods G22, G23, G24 and G42, G43, G44 are fabricated by different fuel vendors.

(2) Determined by two dimensional linear intercept method.

Table 2 Result of chemical analysis

Items	UO ₂ pelett	Nb ₂ O ₅ doped UO ₂ pellet
Enrichment (w/o)	9.998	
U content (%)	88.11	87.82
O/U ratio	2.00	
Impurities (ppm)		
F	<5	
Mg	<1	
Ca	<10	
Mg+Ca	<11	
N	<10	
C	<5	
B	<0.6	
Cd	<0.4	
Si	21	
Dy	<0.1	
Eu	<0.05	
Gd	2	
Sm	<0.1	
Nb ₂ O ₅ content (w/o)	None	0.29
Equivalent H ₂ O (ppm)	1.94	
Bulk density (%TD)	94.55	94.95
Density increase by out-of-pile resintering (%TD)	1.74	0.88

Table 4 Summary of fuel behavior derived from PIE and from in-core instrumentations

Experimental Parameter	Non-doped standard										Niobia doped			
	14x14 G22	14x14 G23	14x14 G24	17x17 P2	17x17 P5	17x17 P7	17x17 P8	17x17 P9	14x14 G42	14x14 G43	14x14 G44	14x14 G25	14x14 G26	14x14 G27
Fill gas composition (volume %)	95%He + 1%Kr + 4%Xe										95%He + 1%Kr + 4%Xe			
Deposited Energy (cal/g fuel)	161	149	121	154	137	129	158	174	161	149	121	161	149	121
Peak Enthalpy (cal/g fuel)	129	116	86	121	103	95	125	142	129	116	86	129	116	86
Fill gas pressure: P ₀ (MPa) ⁽¹⁾	3.41	3.36	3.37	3.16	3.26	3.55	3.55	3.51	3.33	3.33	3.37	3.30	3.32	3.43
Reached peak pressure: P _m (MPa)	3.97	3.86	3.82	3.57	3.63	3.96	4.01	3.98	3.79	3.78	3.75	3.82	3.80	3.90
Pressure increase: P _m -P ₀ (MPa)	0.56	0.50	0.45	0.41	0.37	0.41	0.46	0.47	0.46	0.45	0.38	0.52	0.48	0.47
Peak cladding surface temperature (°C)	770	769	645	768	712	738	810	-	777	792	691	762	779	676
Time to peak (sec)	(0.61)	(0.55)	(0.91)	(0.91)	(1.5)	(1.2)	(1.2)	(1.2)	(0.55)	(0.61)	(1.2)	(0.55)	(0.60)	(0.91)
Time to quench (sec)	(1.8)	(2.1)	(3.9)	(3.9)	(1.5)	(3.0)	(3.0)	(3.0)	(1.5)	(1.6)	(3.0)	(0.91)	(1.6)	(3.2)
Peak (%)	0.47	0.36	0.90	-	-	-	-	-	-	-	-	0.41	0.39	0.64
(Time to peak:sec)	(0.8)	(0.7)	(1.0)	-	-	-	-	-	-	-	-	(0.3)	(0.6)	(1.0)
Axial elongation	0.16	0.00	0.10	-	-	-	-	-	-	-	-	0.00	0.13	0.03
(Time to residual level:sec)	(5.0)	(3.0)	(5.0)	-	-	-	-	-	-	-	-	(2.0)	(4.0)	(5.0)
Residued at failure	34.0	13.8	3.1	-	-	-	-	-	25.2	21.5	3.5	30.7	15.2	2.9
diametral location (peak)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
strain (%)	12.6	5.5	2.3	7.6	3.3	3.2	4.9	6.6	9.1	6.2	2.4	11.0	7.4	2.0
Maximum fuel column movement (%)	2.5	1.0	1.8	0.5	1.2	2.0	2.2	2.6	-	-	-	1.9	1.8	1.5
Failure(F)/no failure (NF)	F	F	NF	F	NF	NF	NF	F	F	F	NF	F	NF	NF
(Time to failure:sec)	(0.44)	(0.56)	(-)	(0.58)	(0.30)	(0.44)	(0.58)	(0.30)	(0.44)	(0.58)	(-)	(0.67)	(-)	(-)

Note: (1) Value at 20°C
 (2) - Not measured

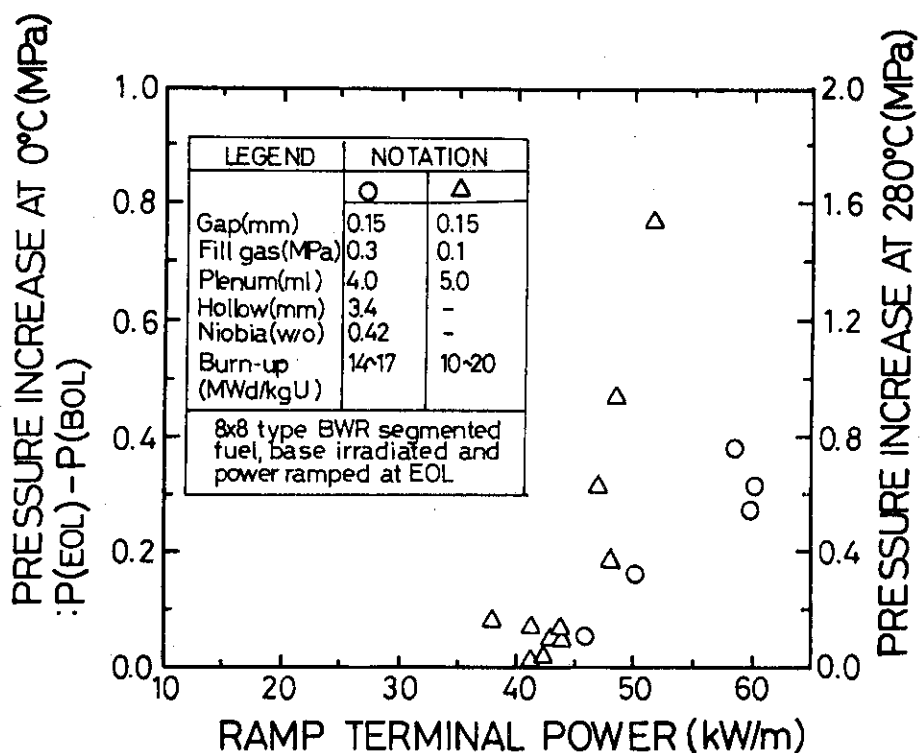


Fig. 1 Internal pressure increase of power ramped BWR fuel rod, showing less release of FP gas in doped fuel than in non-doped fuel. Ramped five doped fuels were intact: Ref(12)

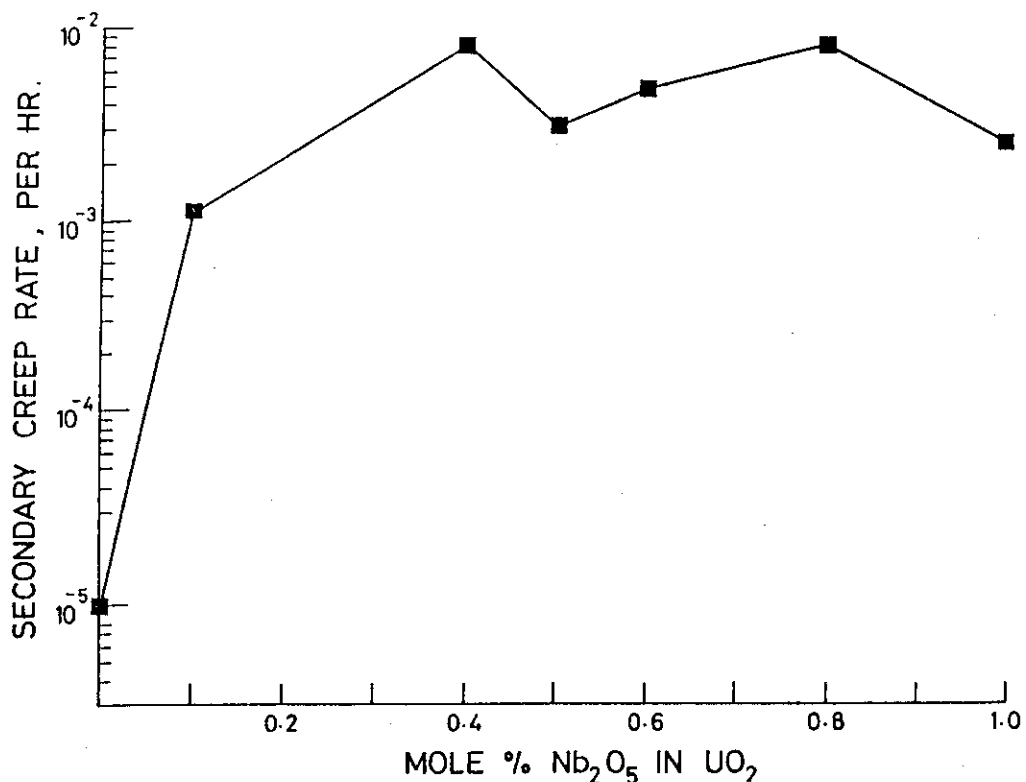
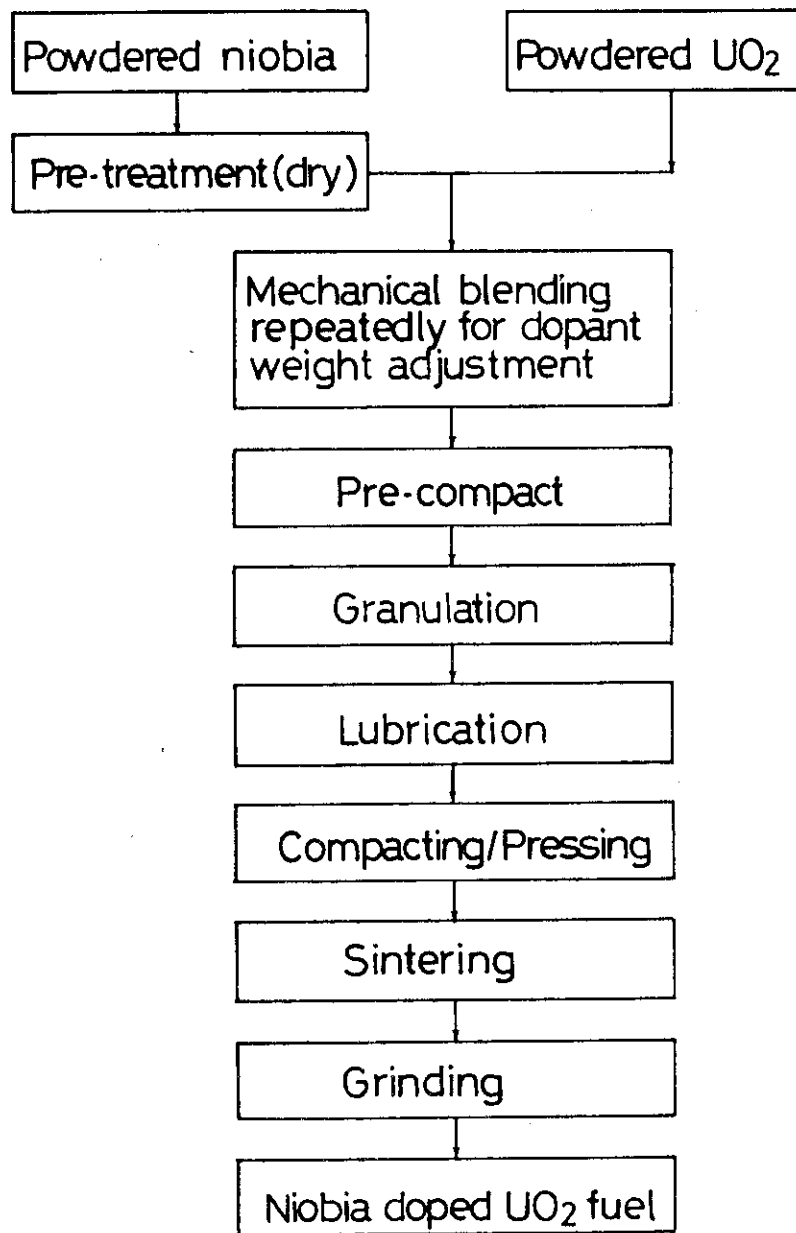


Fig. 3 Variation of secondary creep rate with Nb₂O₅ content in UO₂: Ref(13)



Fabrication process of the niobia dopant fuel

Fig. 2 Fabrication process of the niobia dopant fuel

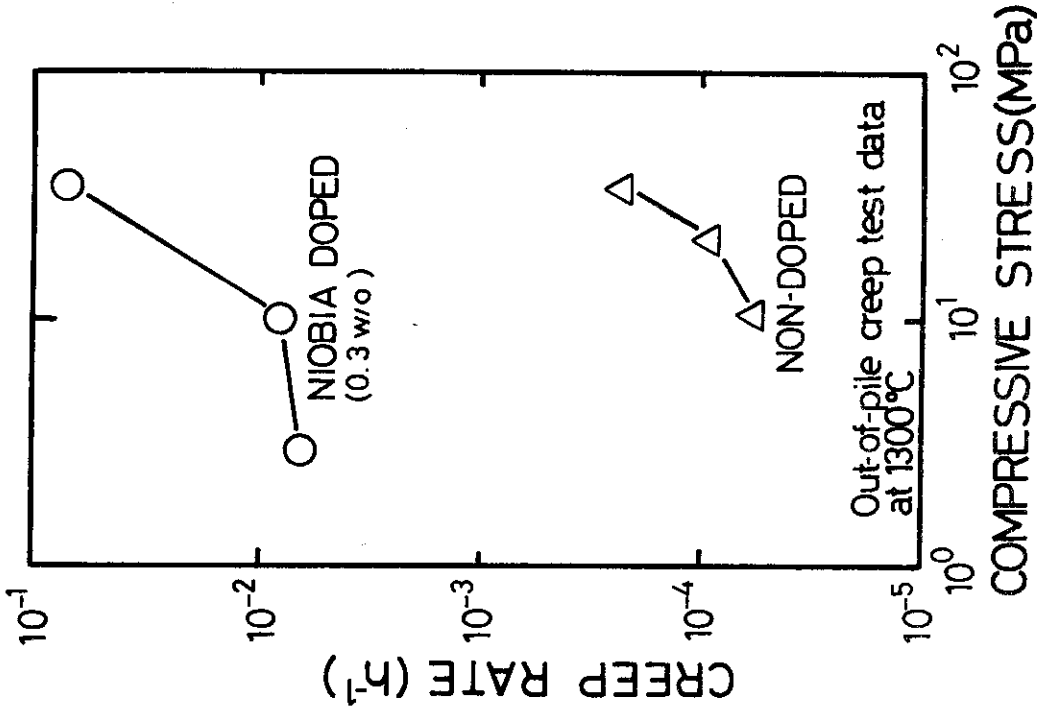


Fig. 5 Creep rate with 0.29 w/o Nb₂O₅ content in UO₂: Ref(11)

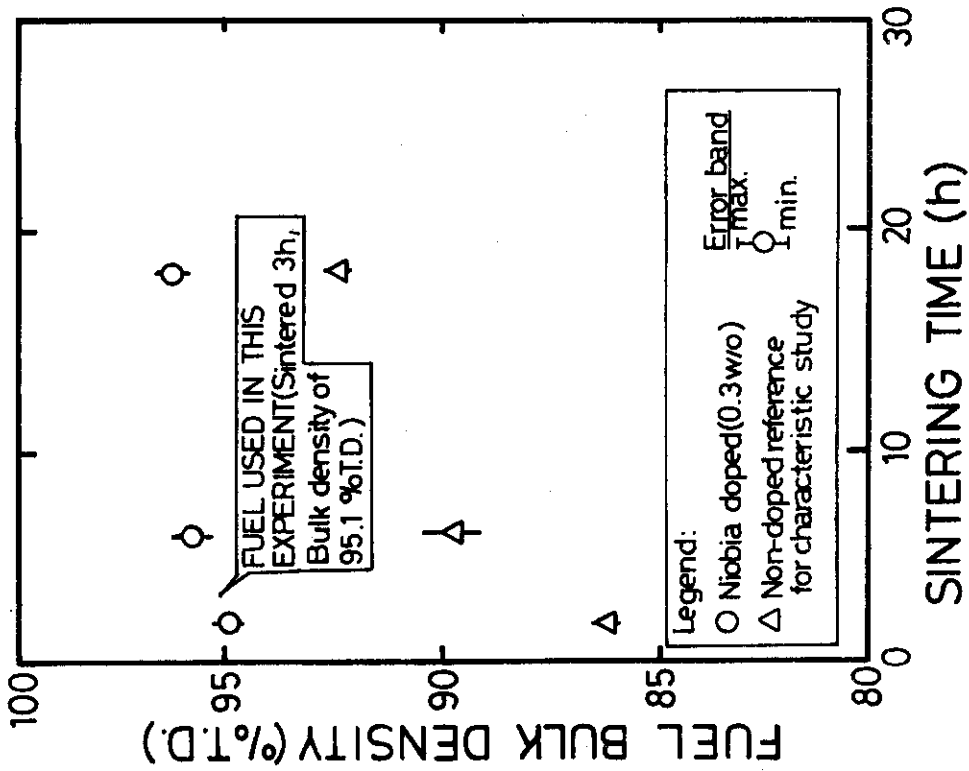
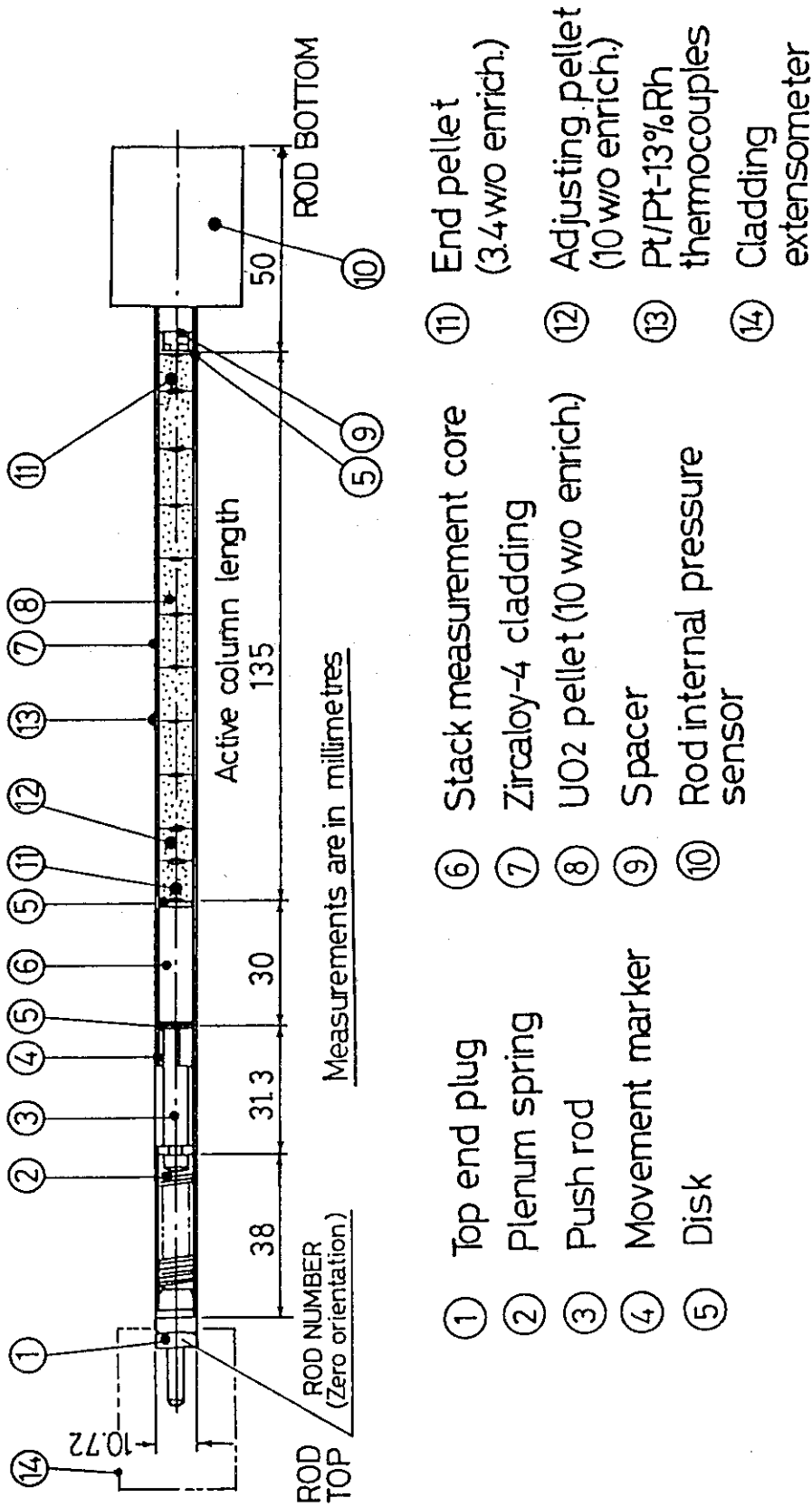


Fig. 4 Fuel bulk density as a function of sintering time



- ① Top end plug
- ② Plenum spring
- ③ Push rod
- ④ Movement marker
- ⑤ Disk
- ⑥ Stack measurement core
- ⑦ Zircaloy-4 cladding
- ⑧ UO₂ pellet (10 w/o enrich.)
- ⑨ Spacer
- ⑩ Rod internal pressure sensor
- ⑪ End pellet (3.4 w/o enrich.)
- ⑫ Adjusting pellet (10 w/o enrich.)
- ⑬ Pt/Pt-13%Rh thermocouples
- ⑭ Cladding extensometer

Fig. 6 Longitudinal cross section of fuel rod

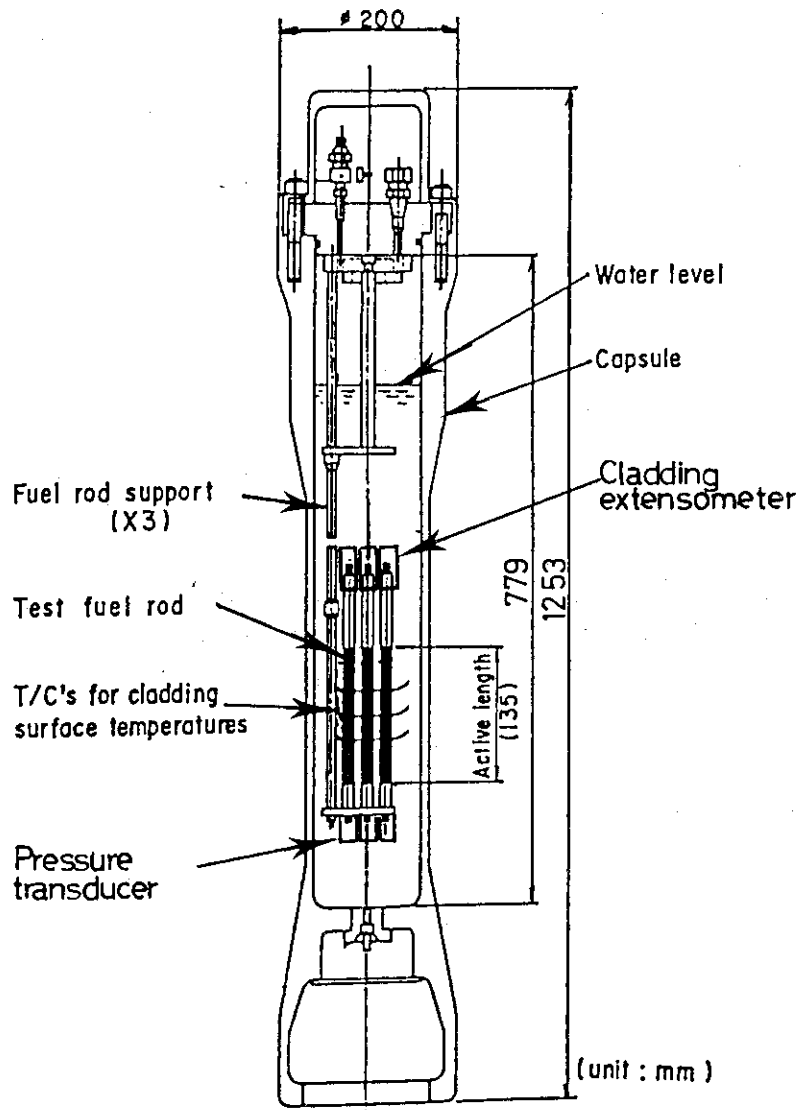


Fig. 7 Irradiation capsule for triplet rod configuration and attached in-core instrumentations

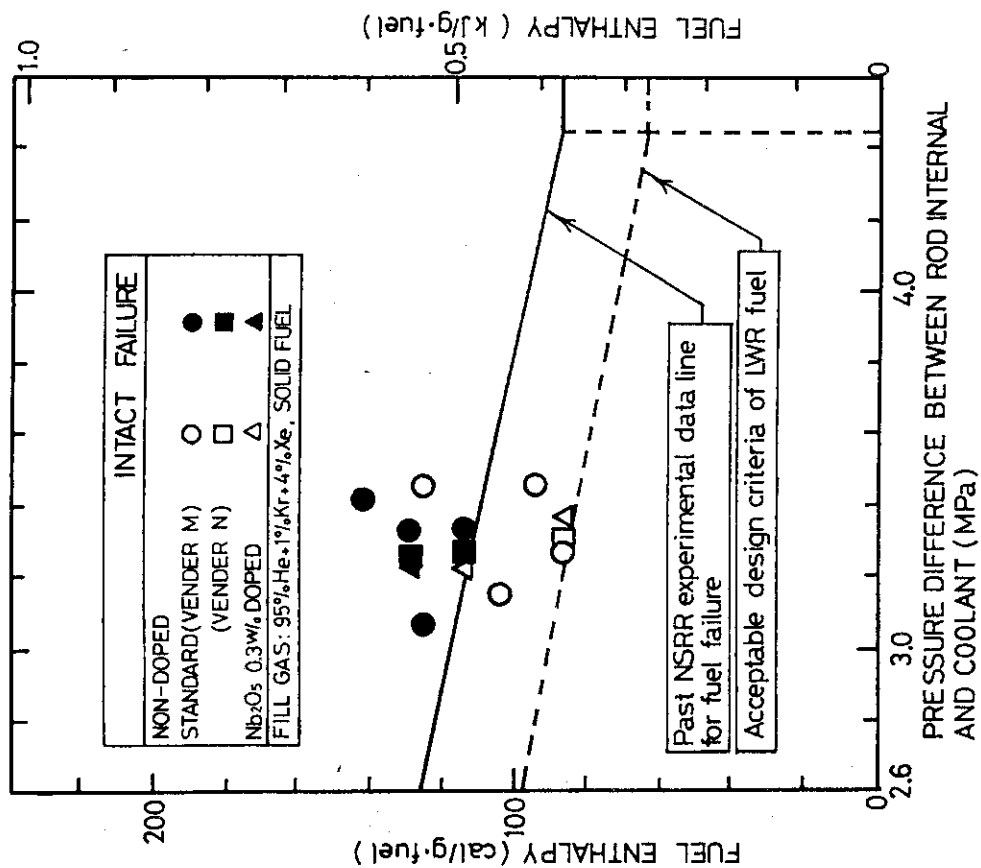


Fig. 9 Deposited enthalpy of the fuel rod vs. pressure difference between rods internal and coolant, where conventional LWR fuel design criteria under RIA standard is also shown

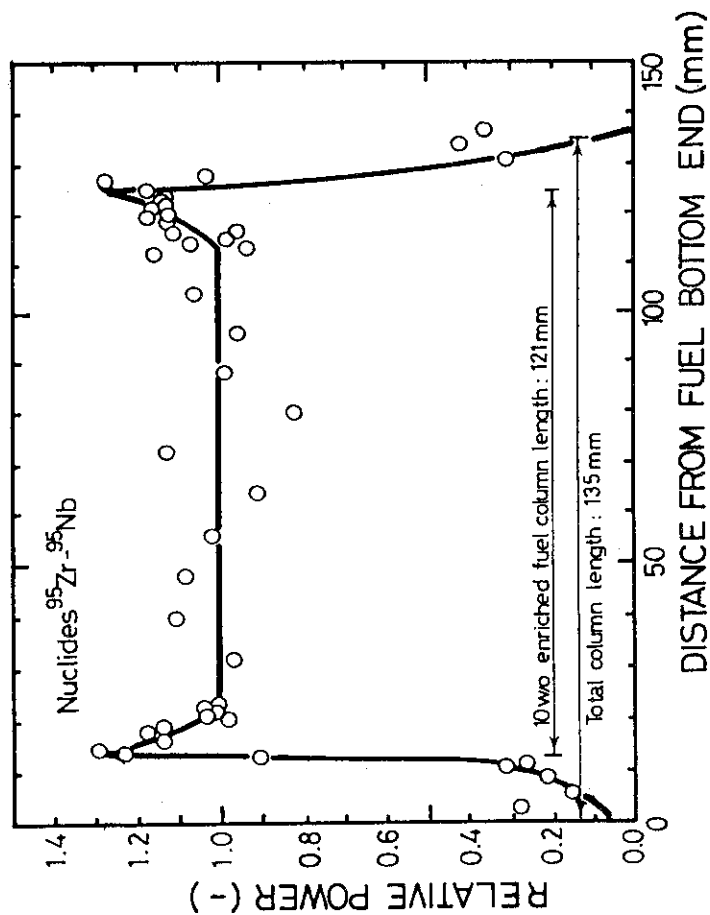


Fig. 8 Relative power distribution of fuel rods determined by axial γ -scanning

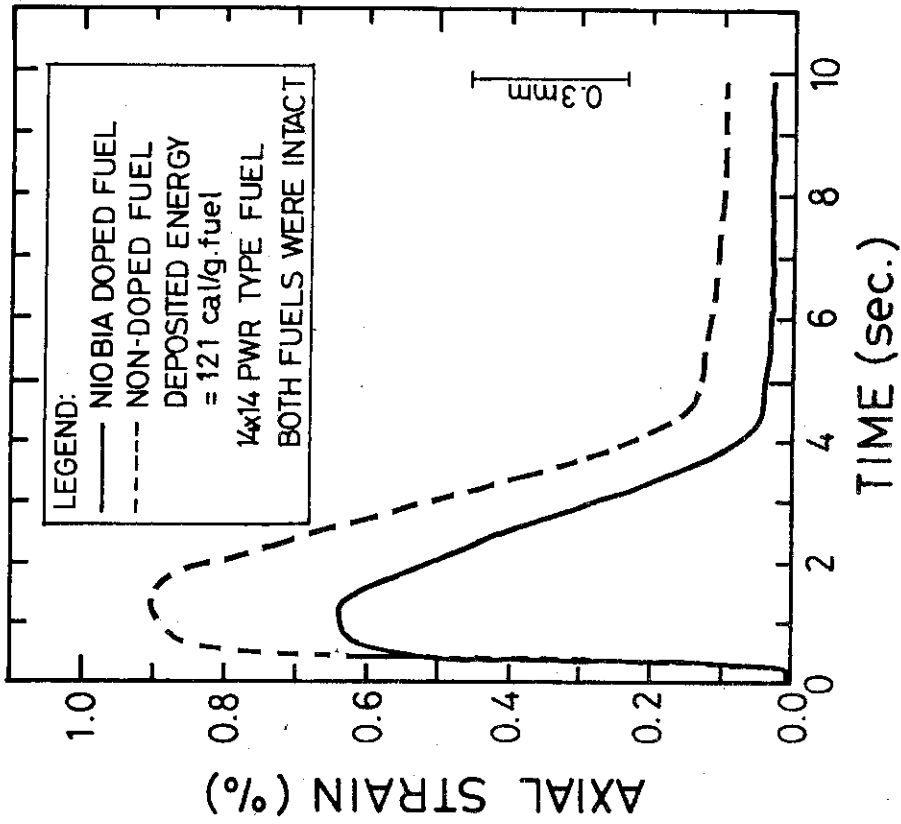


Fig. 11 Axial strain of fuel rod at 121 cal/g.fuel as a function of time

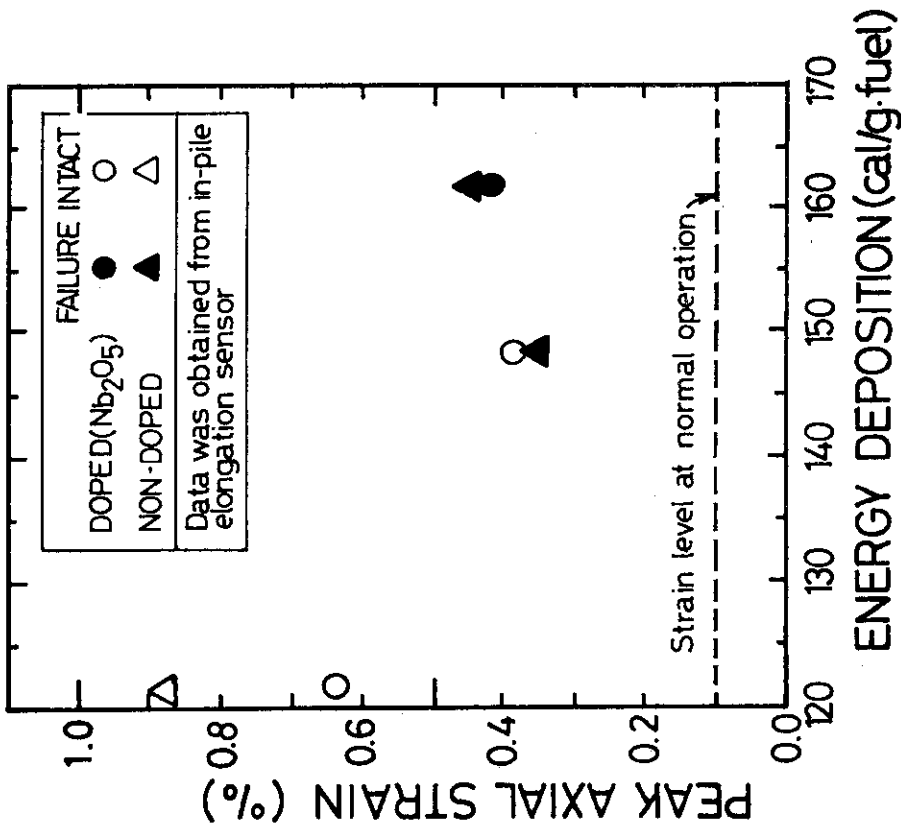


Fig. 10 Peak axial strain as a function of energy deposition

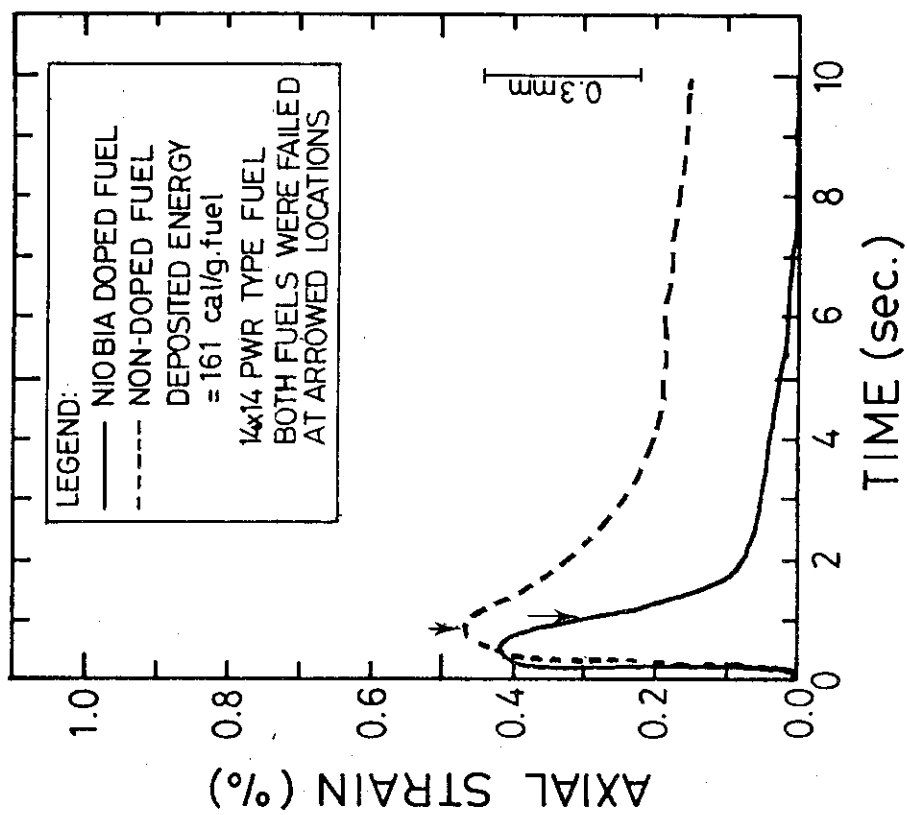


Fig. 13 Axial strain of fuel rod at 161 cal/g·fuel as a function of time

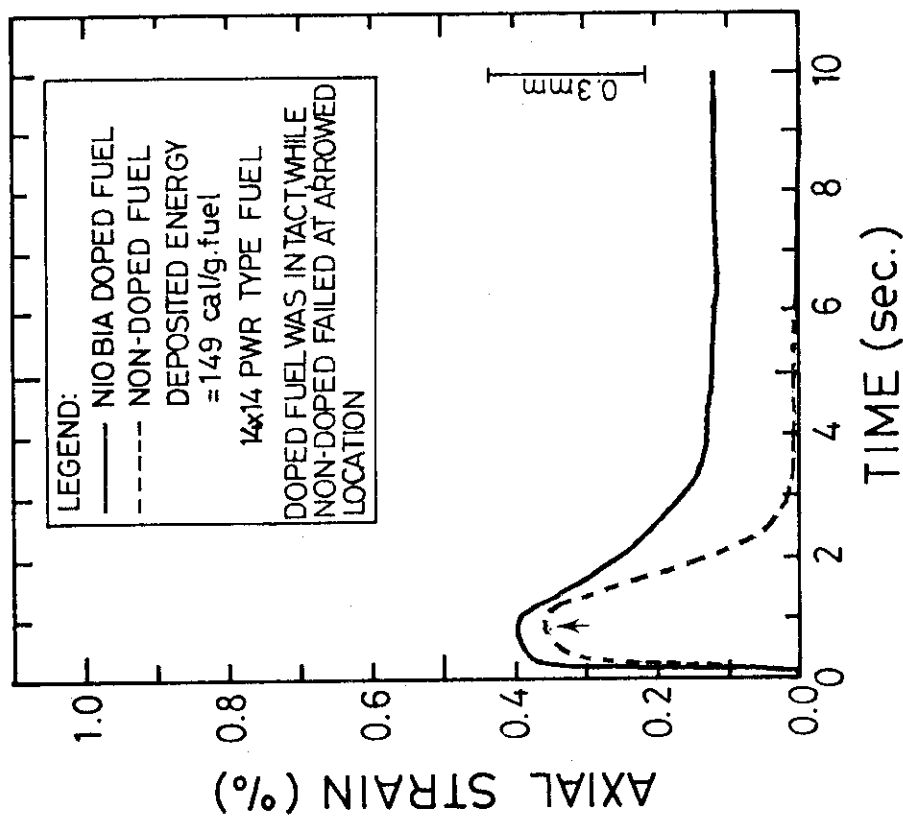
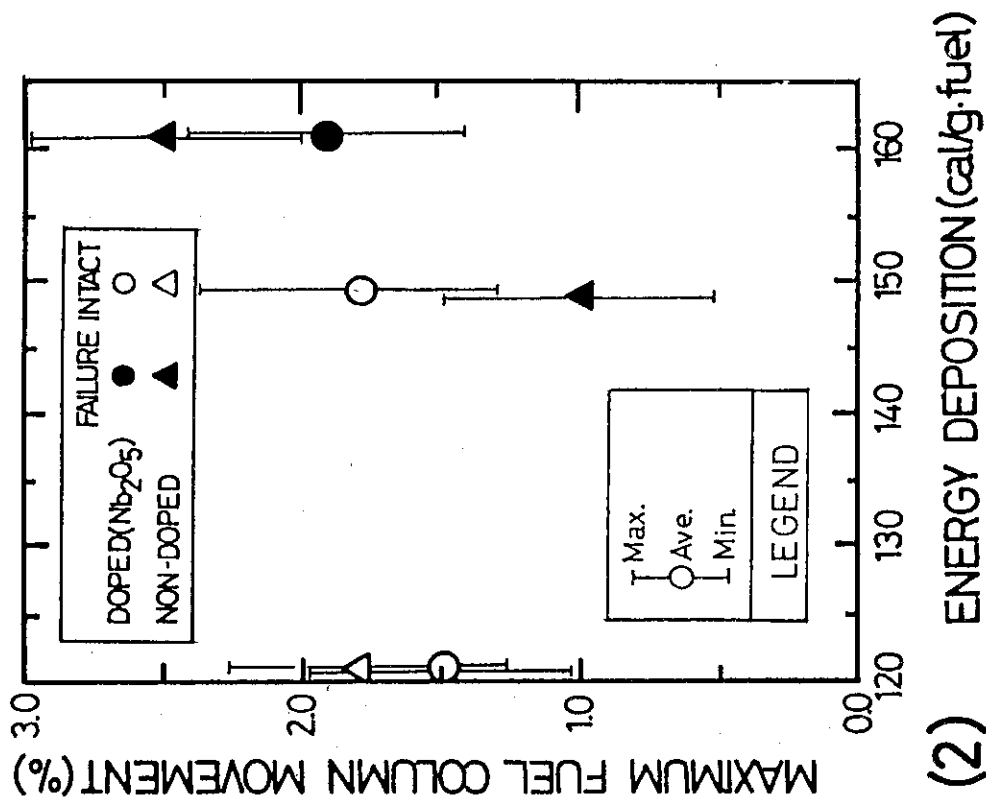
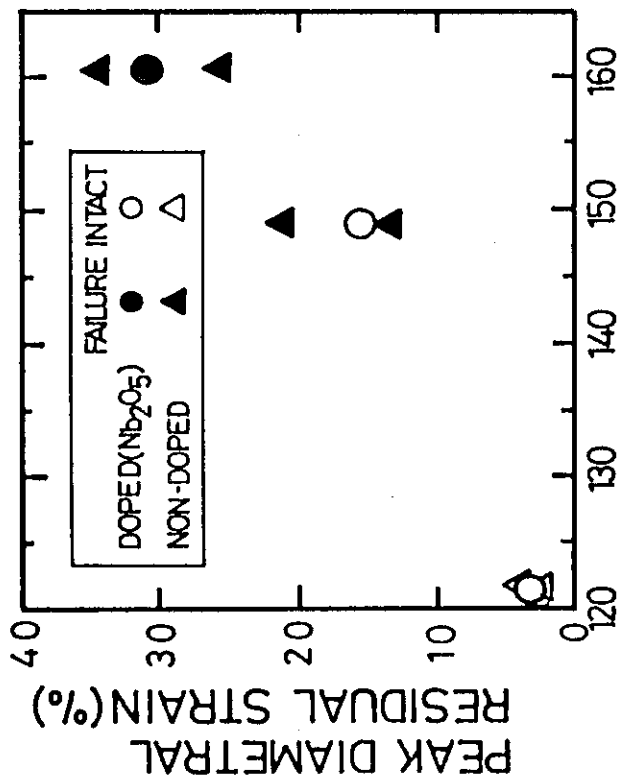


Fig. 12 Axial strain of fuel rod at 149 cal/g·fuel as a function of time



(1) ENERGY DEPOSITION (cal/g.fuel)



(2) ENERGY DEPOSITION (cal/g.fuel)

Fig. 14 (1) Peak radial residual strain vs. energy deposition, (2) Maximum fuel column movement vs. energy deposition, where error band was derived from travelled distance of movement marker with different X-ray angles

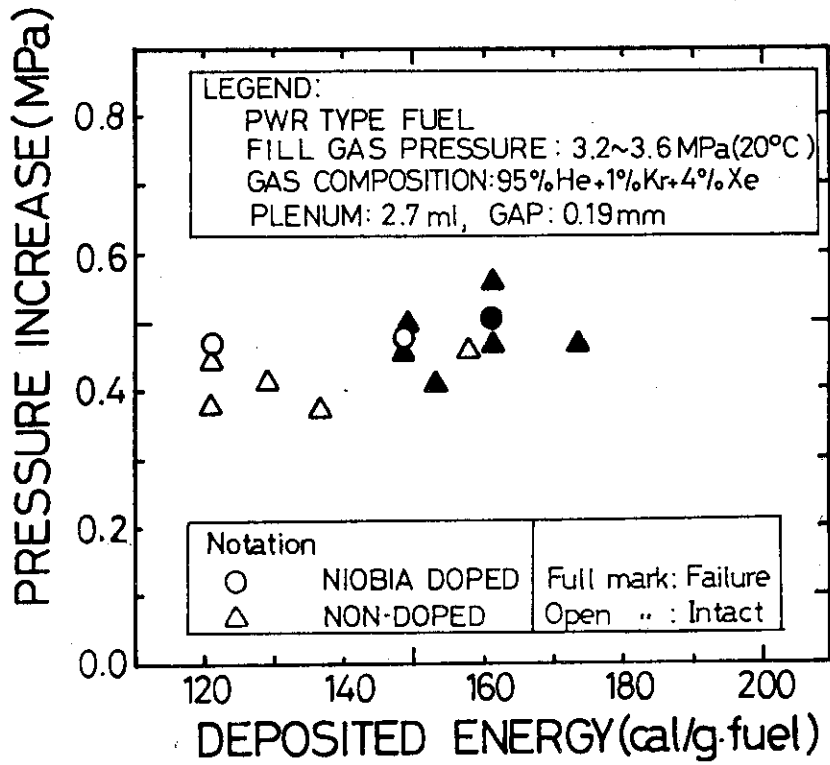


Fig. 15 Pressure increase during pulse as a function of deposited energy

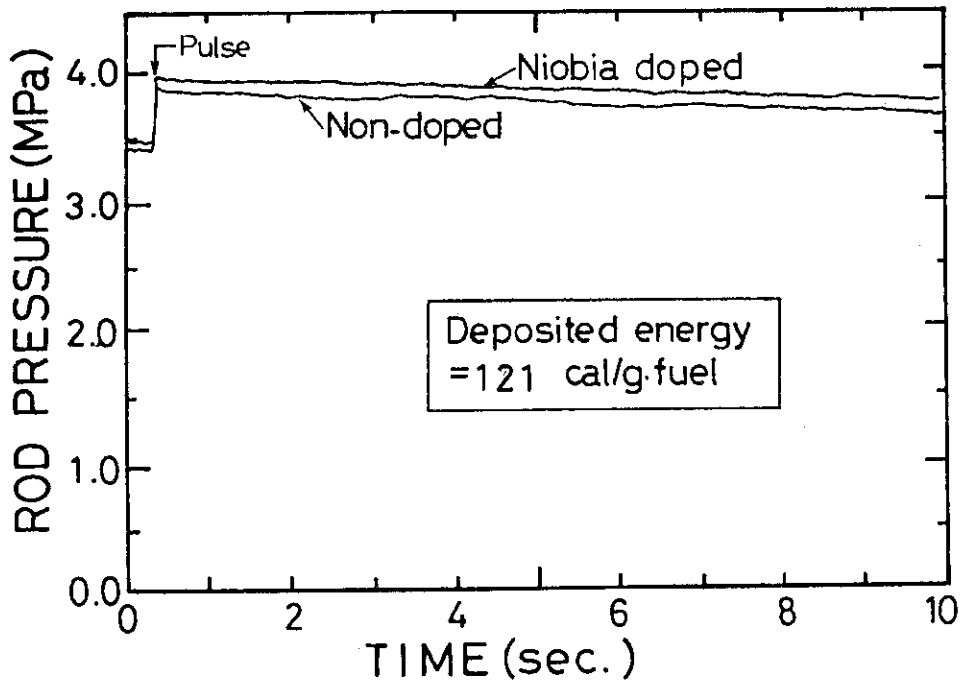


Fig. 16 Rod pressure at deposited energy of 121 cal/g-fuel as a function of time

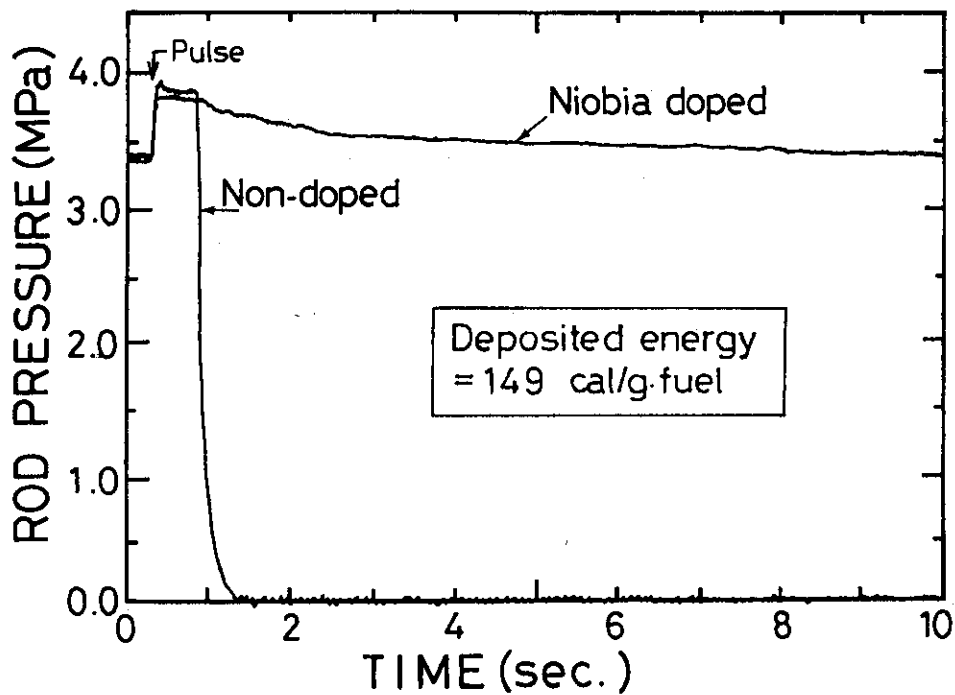


Fig. 17 Rod pressure at deposited energy of 149 cal/g·fuel as a function of time

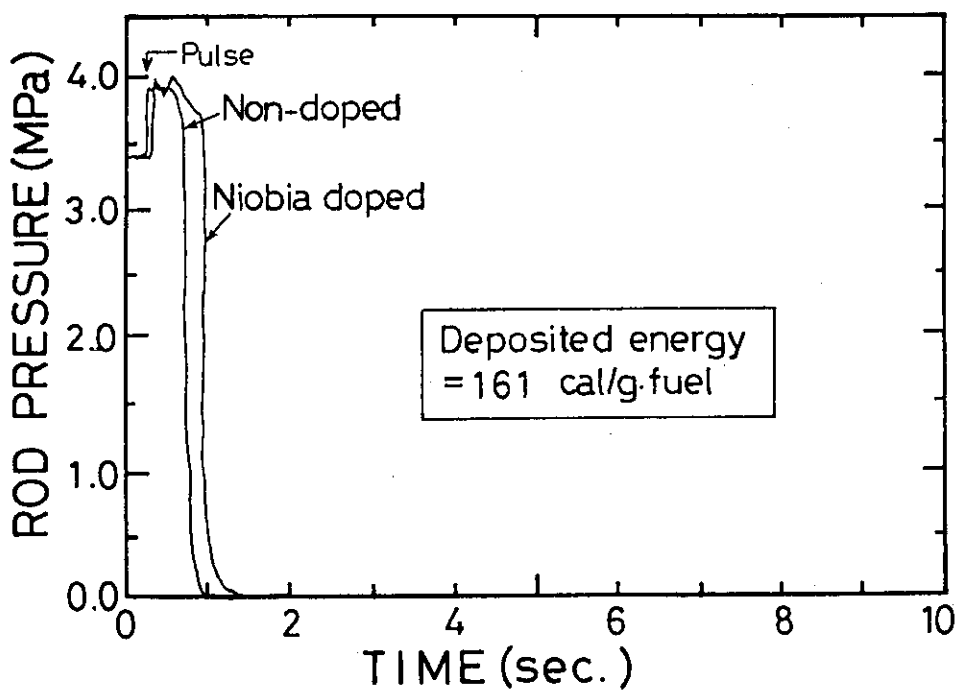


Fig. 18 Rod pressure at deposited energy of 161 cal/g·fuel as a function of time

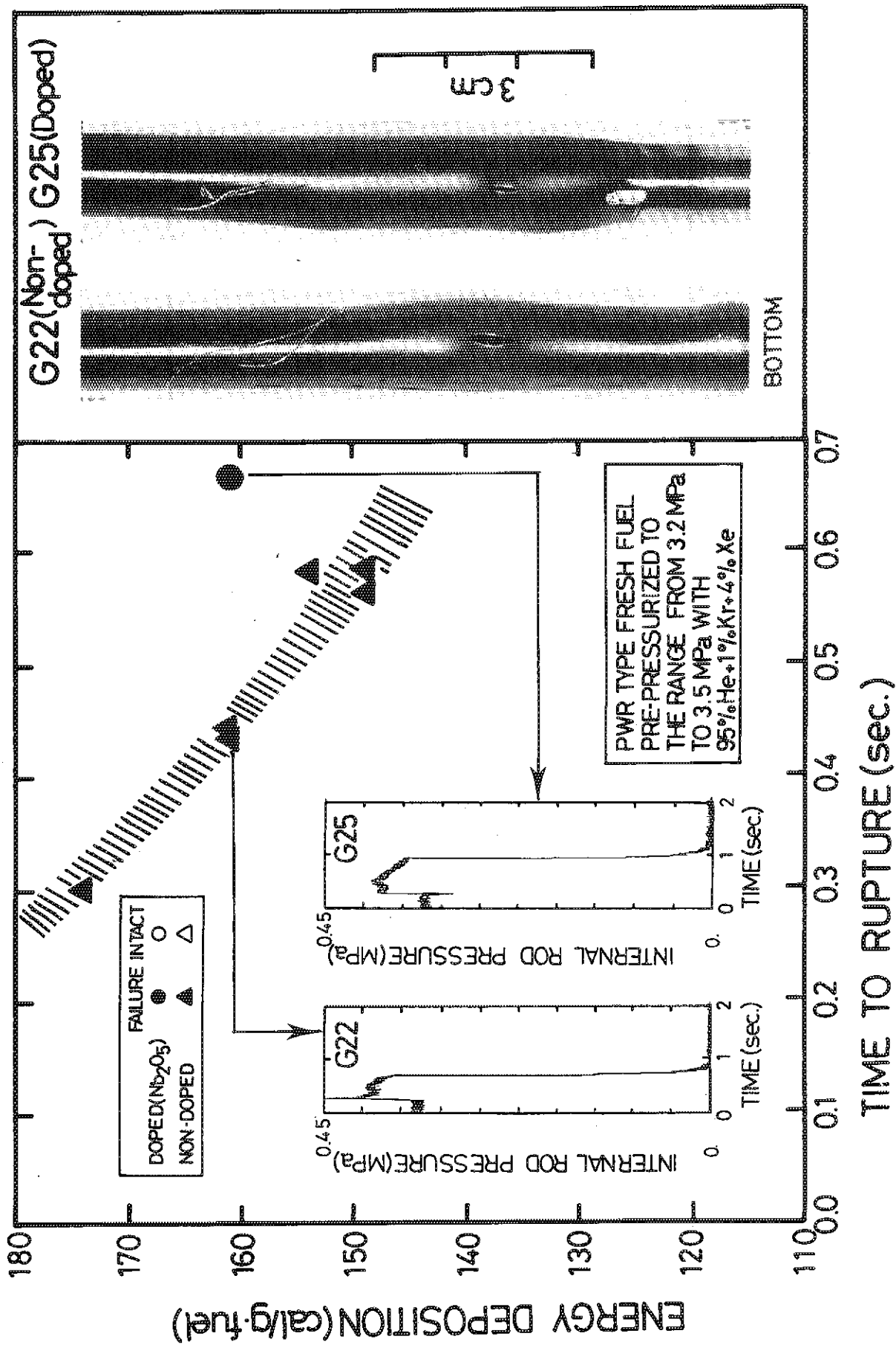


Fig. 19 Time to rupture of ballooned fuel rod

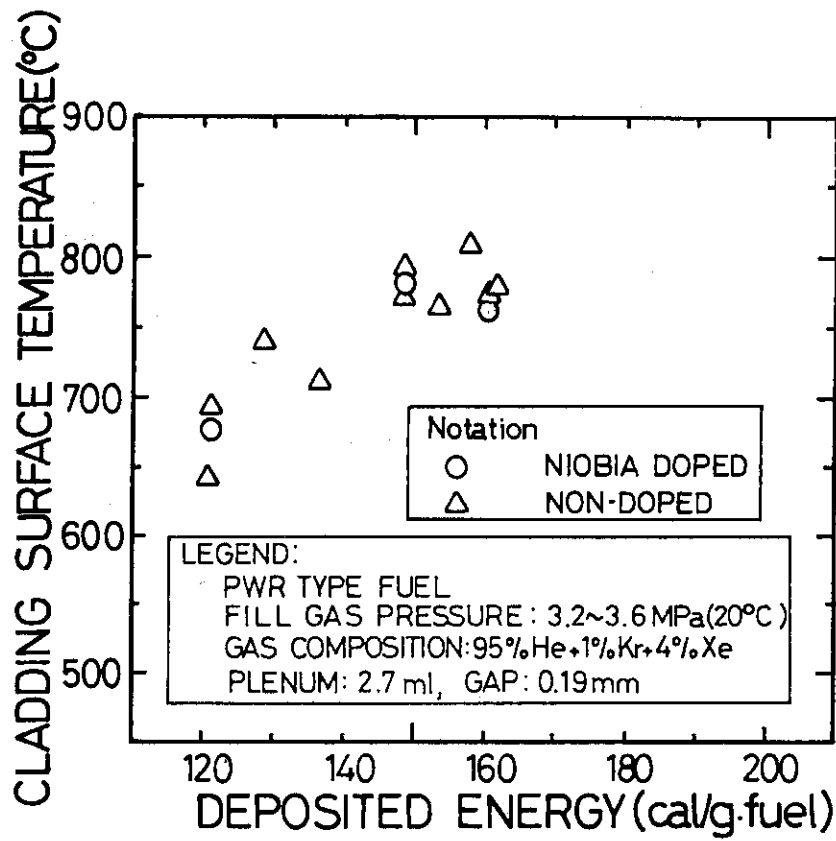


Fig. 20 Rod peak surface temperature vs. deposited energy

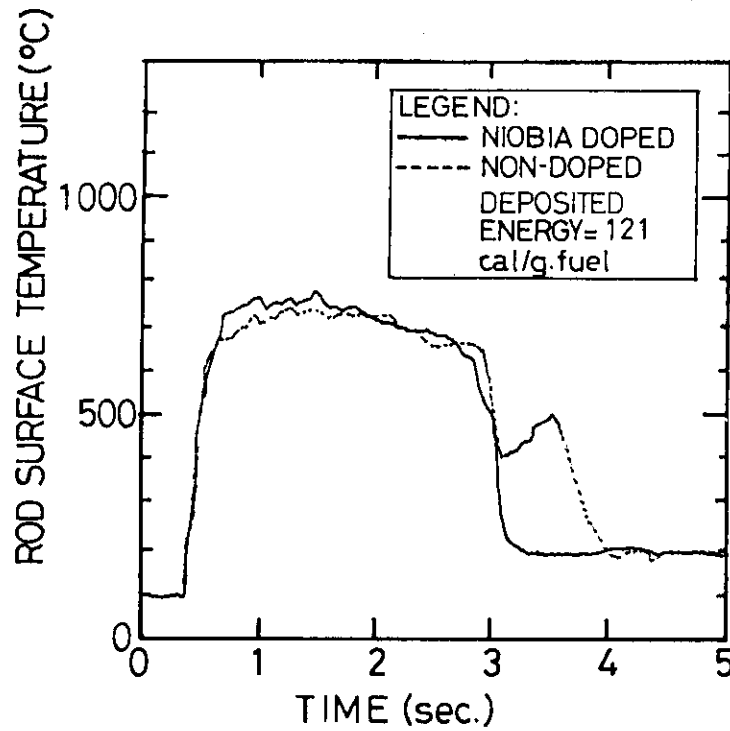


Fig. 21 Rod surface temperature at deposited energy of 121 cal/g.fuel as a function of time

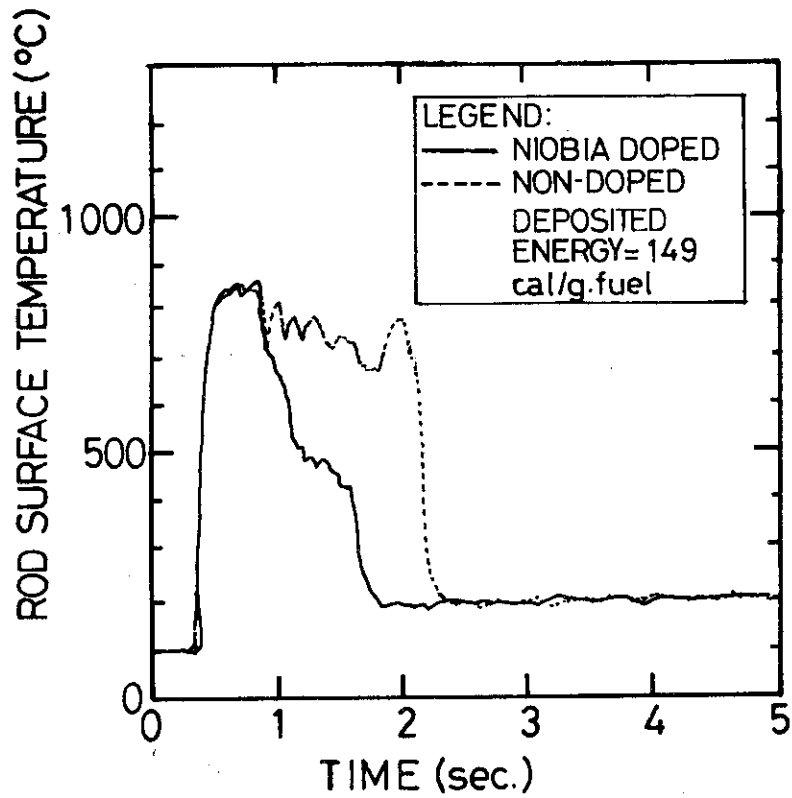


Fig. 22 Rod surface temperature at deposited energy of 149 cal/g·fuel as a function of time

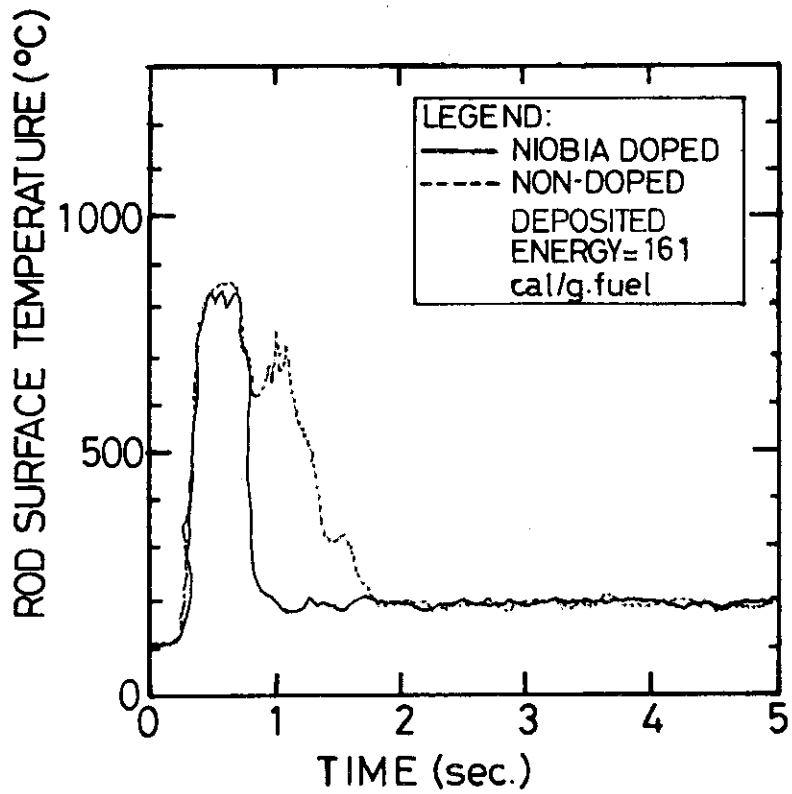
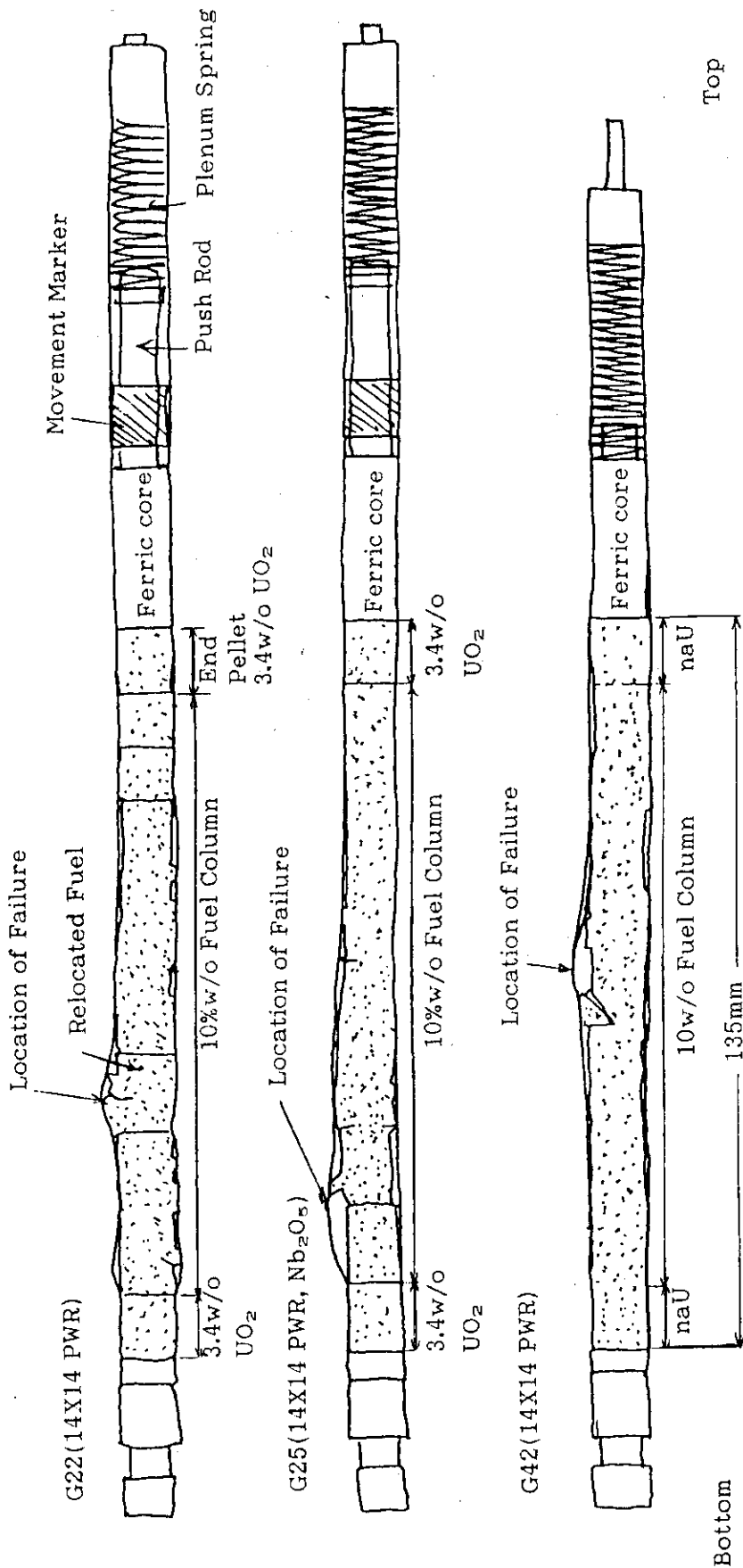


Fig. 23 Rod surface temperature at deposited energy of 161 cal/g·fuel as a function of time



- 1) The fuel rods shown in the above were defected by rupture at single location. Thus, failure mode is common.
- 2) Fuel pellet at failed location was relocated greatly than others. Axial relocation was also seen.
- 3) No other abnormalities were seen.

Fig. 24 Inspection by X-ray photograph on fuel rods pulsed at 161 cal/g·fuel

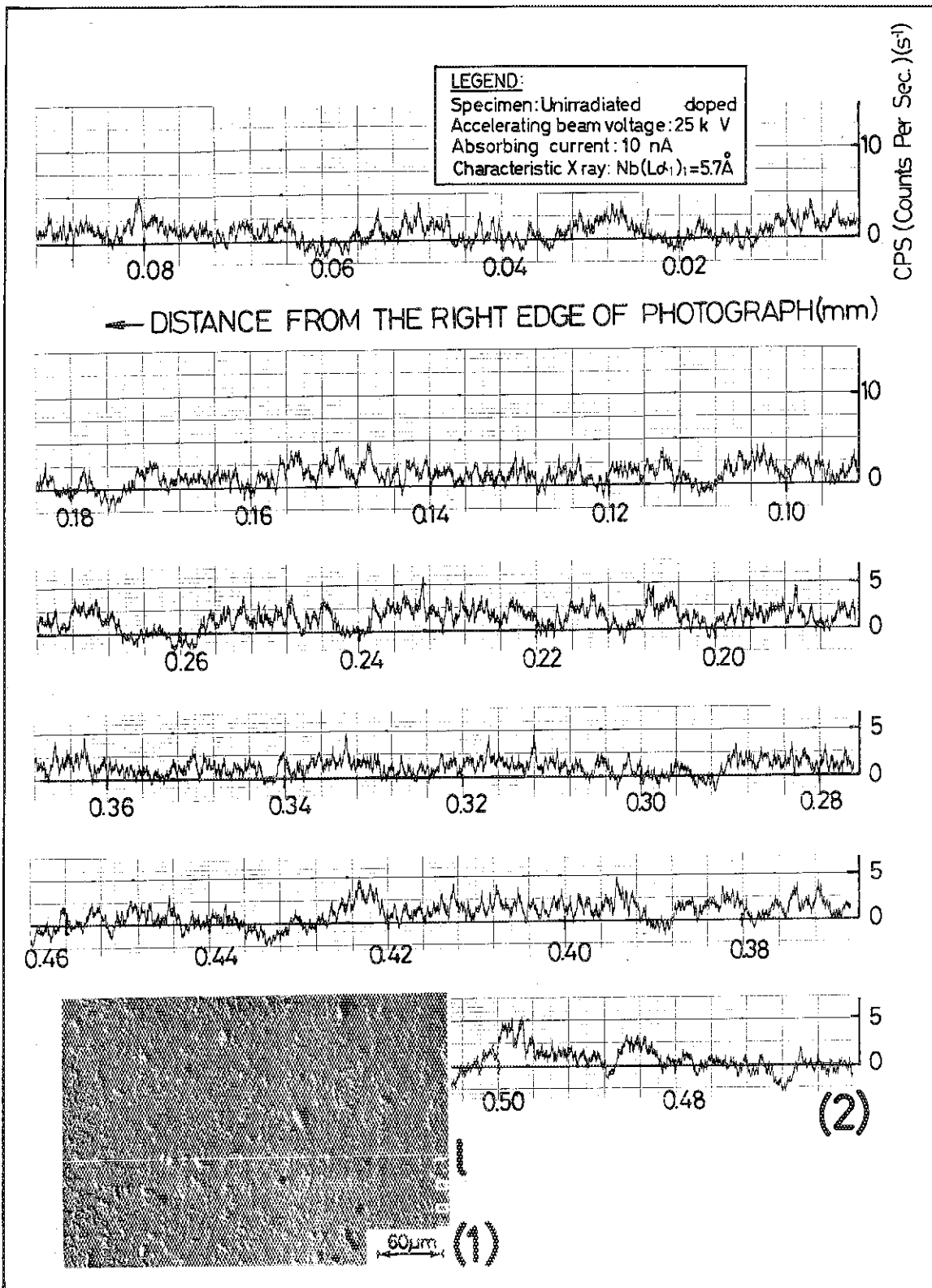


Fig. 25 (1) Cross-sectional microphotograph of as-fabricated niobia dopant fuel, taken from fuel center location, (2) Intensity of existed niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level

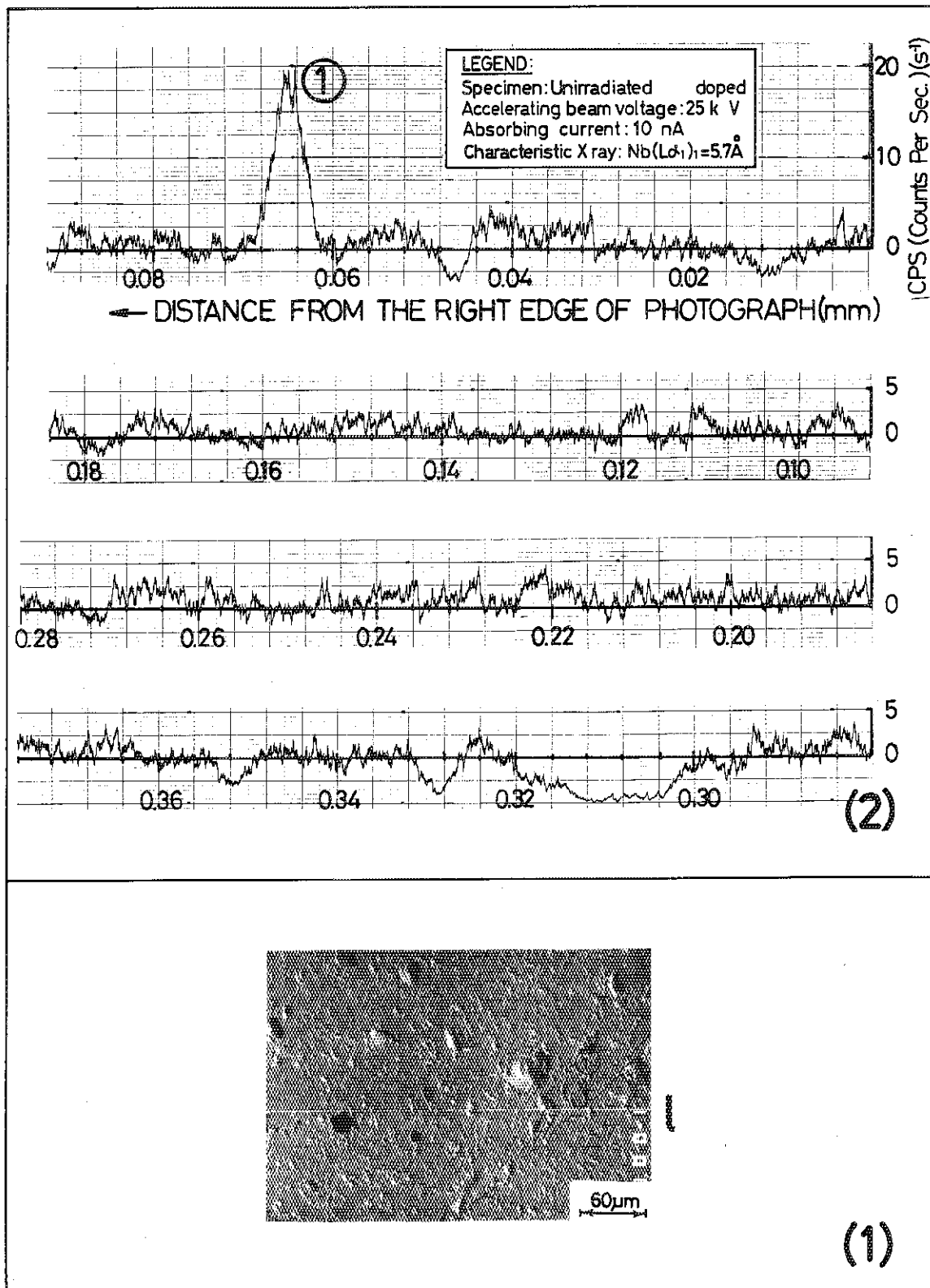


Fig. 26 (1) Cross-sectional microphotograph of as-fabricated niobia dopant fuel, taken from fuel edge location, (2) Intensity of existed niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level and circled number in the photograph is indicative of which shown in (2)

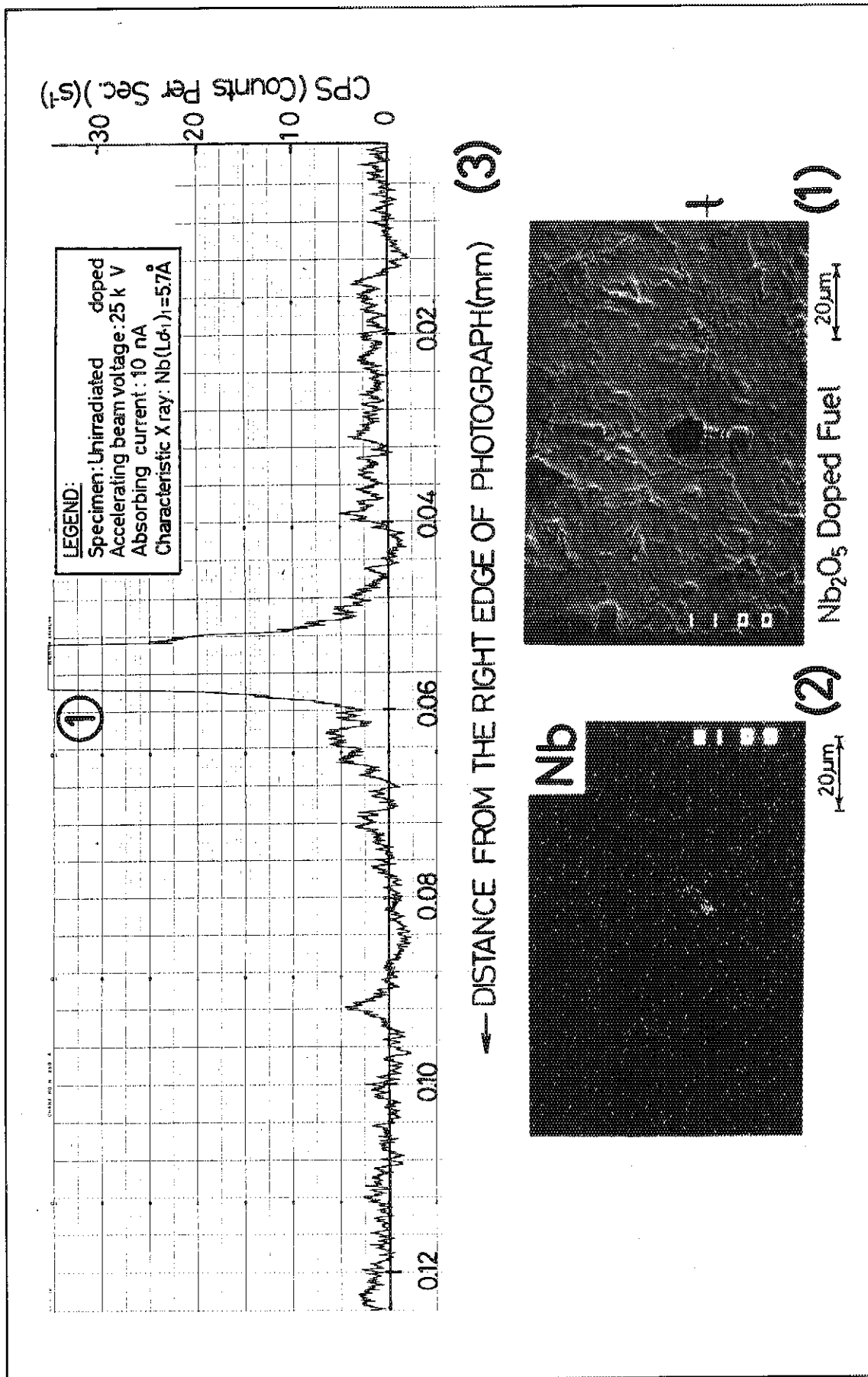


Fig. 27 (1) Cross-sectional microphotograph of as-fabricated niobia dopant fuel, taken from fuel edge location, (2) Intensity of niobium (white spot) in the place and (3) Intensity of niobium along line shown in the photograph: Circled number in the photograph is indicative of which shown in (3)

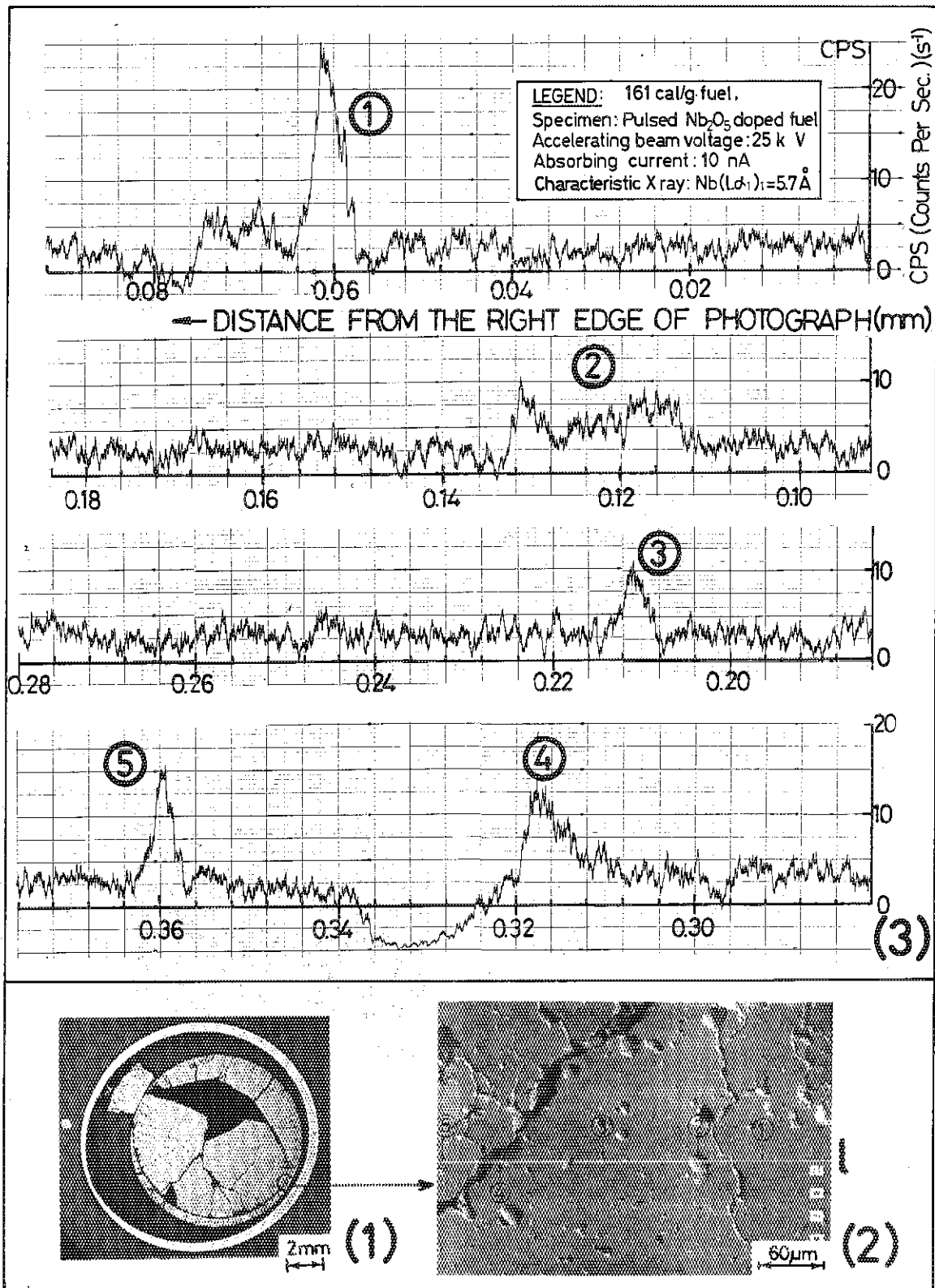


Fig. 28 (1) Cross-sectional microphotograph of pulsed niobia dopant fuel at 161 cal/g·fuel, (2) Magnified microstructure taken from fuel edge location, and (3) Intensity of niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level and circled number in the photograph is indicative of which shown in (3)

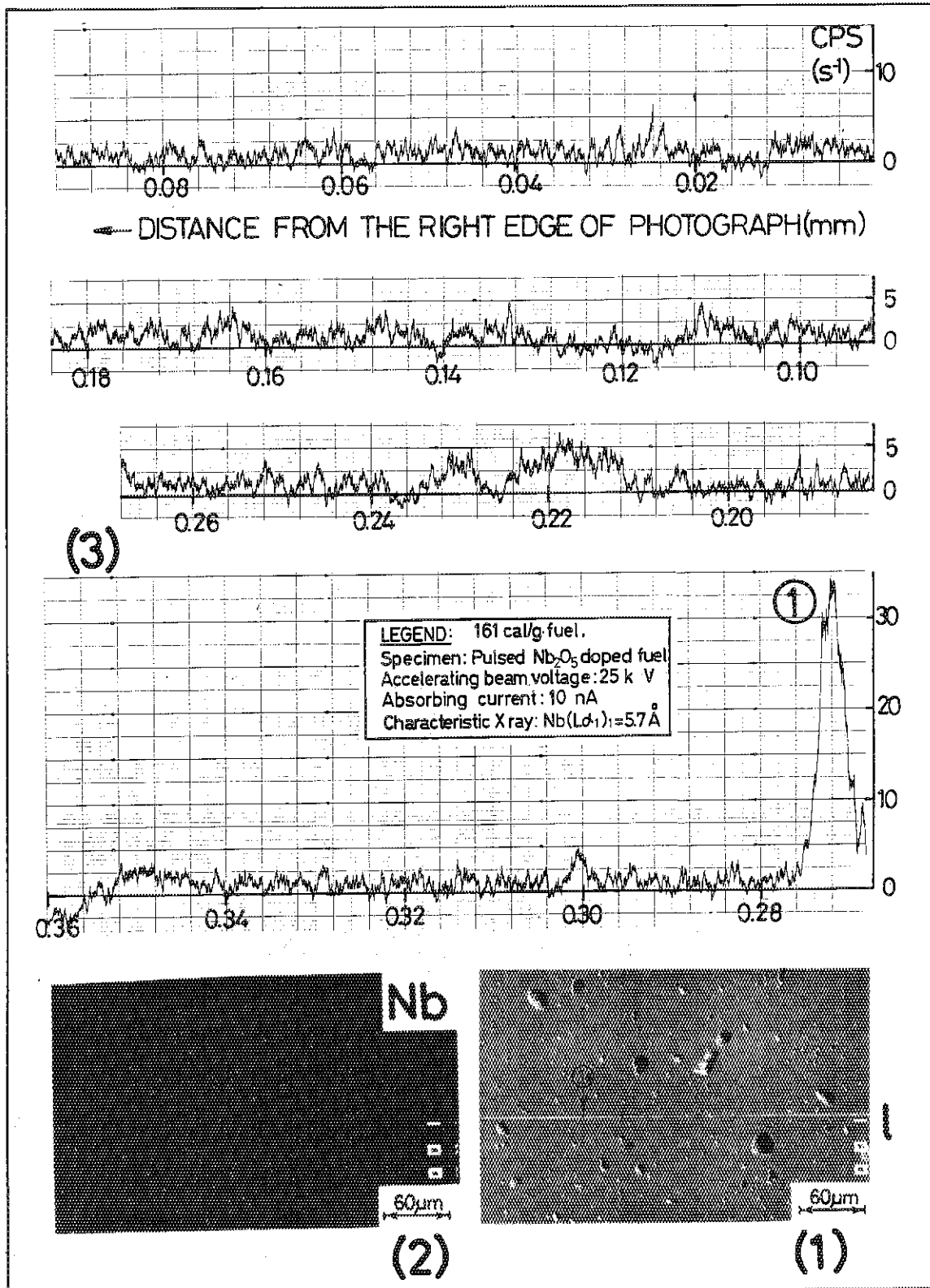


Fig. 29 (1) Magnified cross-sectional microstructure of niobia doped fuel, taken from fuel edge location. This was pulsed at 161 cal/g·fuel, (2) Intensity of niobium (white spot) in the place, and (3) Intensity of niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level and circled number in the photograph is indicative of which shown in (3)

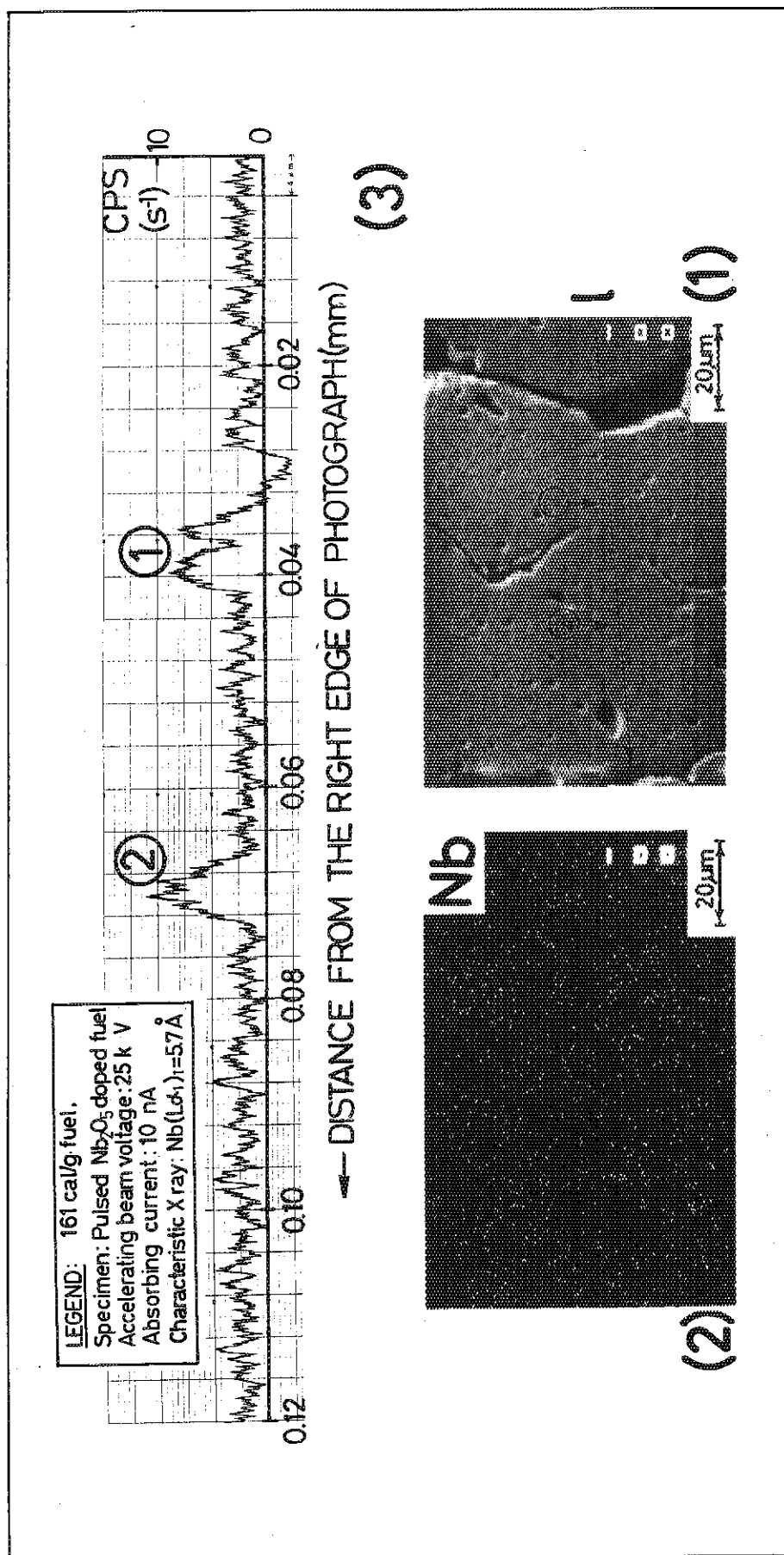


Fig. 30 (1) Magnified cross-sectional microstructure of niobia doped fuel, taken from fuel edge location. This was pulsed at 161 cal/g·fuel and failed, (2) Intensity of niobium (white spot) in the place and (3) Intensity of niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level and circled number in the photograph is indicative of which shown in (3)

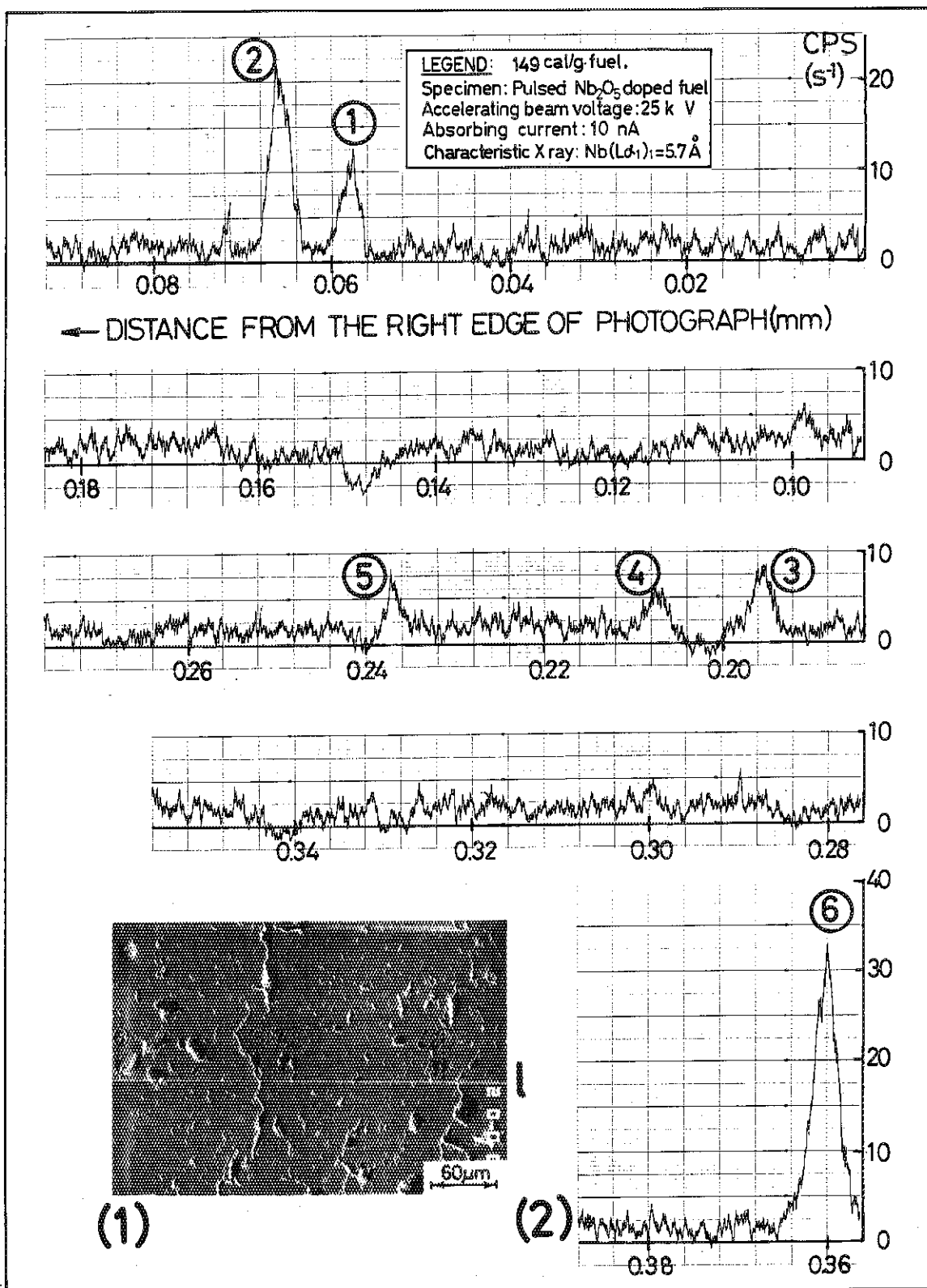


Fig. 31 (1) Magnified cross-sectional microstructure of niobia doped fuel, taken from fuel edge location. This was pulsed at 149 cal/g·fuel without failure, (2) Intensity of niobium (white spot) in the place, and (3) Intensity of niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level and circled numbers in the photograph are indicative of these shown in (3)

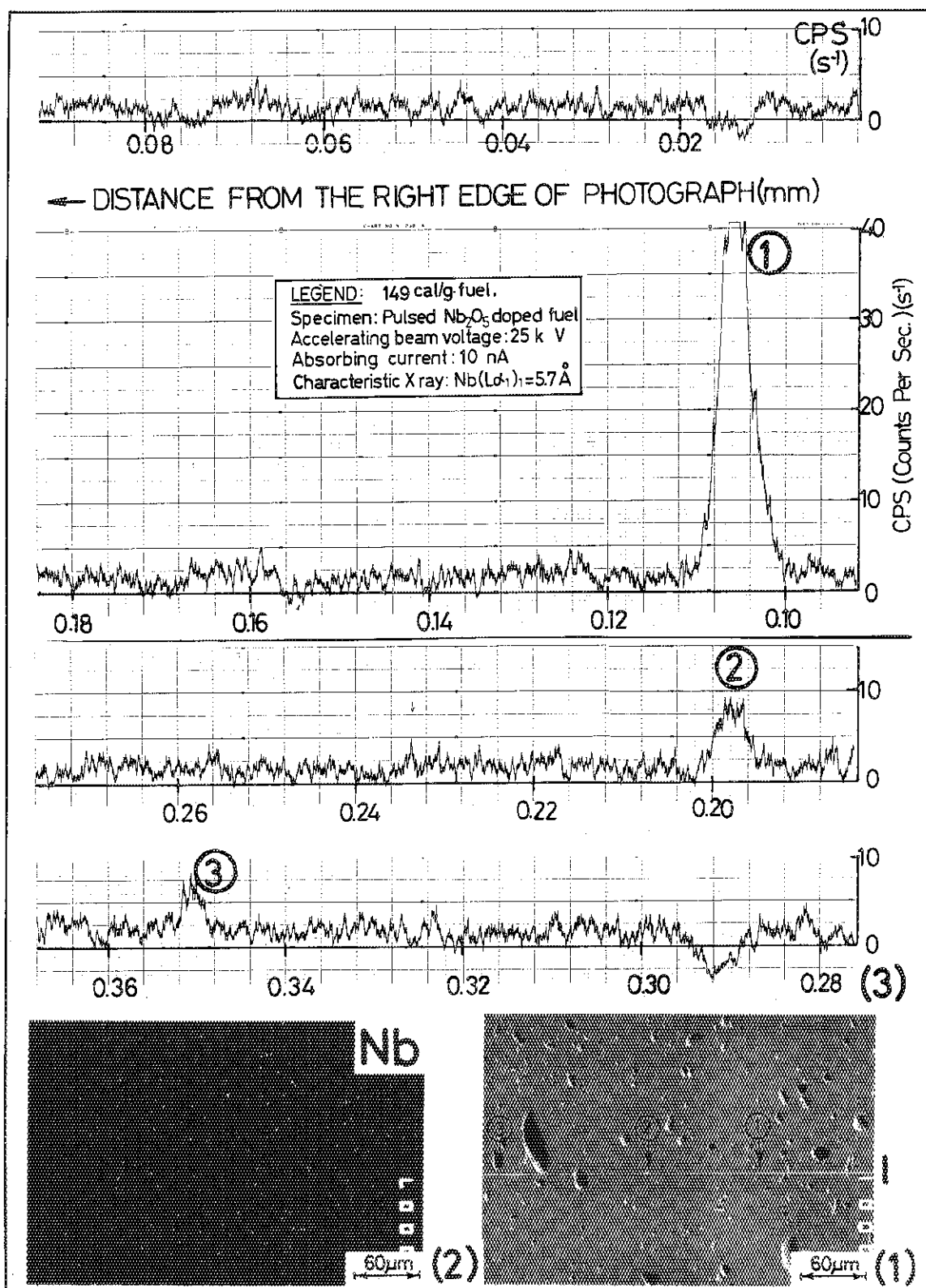


Fig. 32 (1) Magnified cross-sectional microstructure of niobia doped fuel, taken from fuel edge location. This was pulsed at 149 cal/g·fuel, (2) Intensity of niobium (white spot) in the place, and (3) Intensity of niobium along line shown in the photograph: Intensity zero corresponded to background level and circled numbers in the photograph are indicative of these shown in (3)

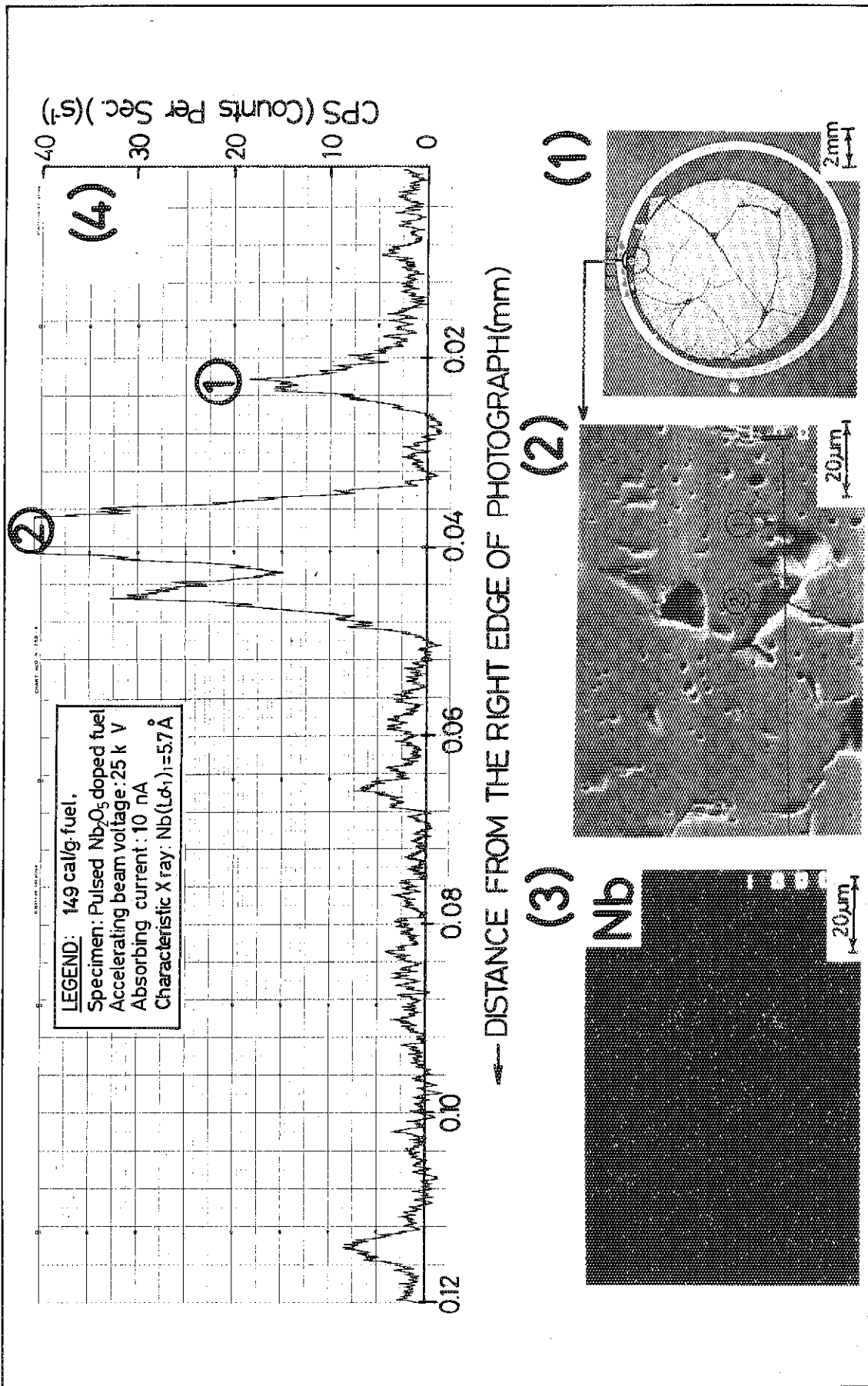


Fig. 33 (1) Cross-sectional view of niobia doped fuel after pulsing of 149 cal/g.fuel without failure, (2) Magnified microstructure of fuel edge, (3) Intensity of niobium (white spot) in the place and (4) Intensity of niobium along line shown in (2), where intensity zero corresponded to niobium background level and circled numbers in the photograph (2) are indicative of these shown in (4)

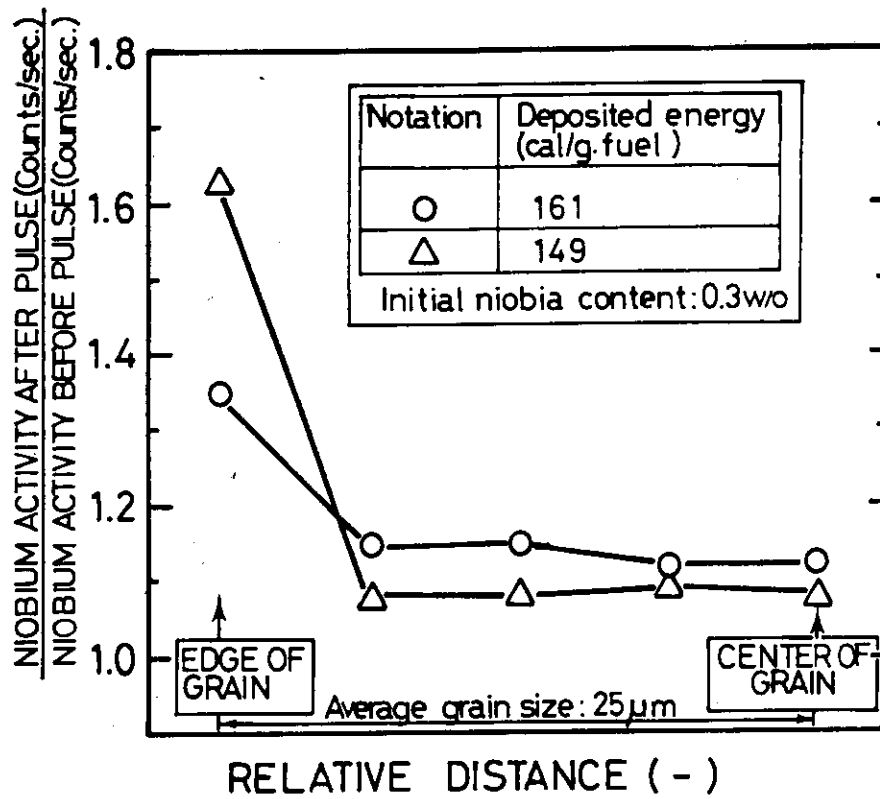


Fig. 34 Relative intensity of niobium, measured by XMA analysis as a function of relative distance in the grain, where grain size was assumed to be 25 μm

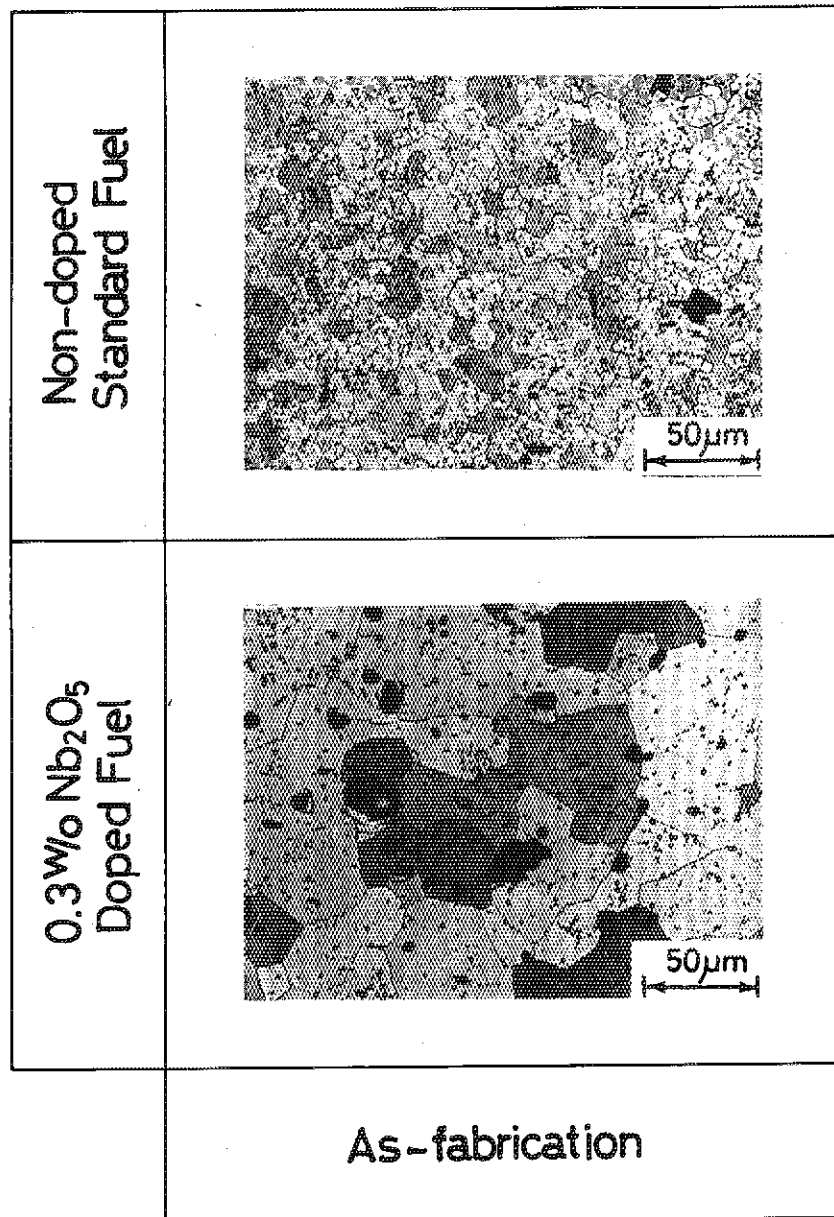


Photo. 1 Photomicrograph of non-doped standard fuel (top), and 0.29w/o niobia doped fuel; Averaged grain size by linear intercept method was 9 μ m and 25 μ m for non-dopant and dopant. Etched by 90% H₂SO₄ and 10% H₂O₂

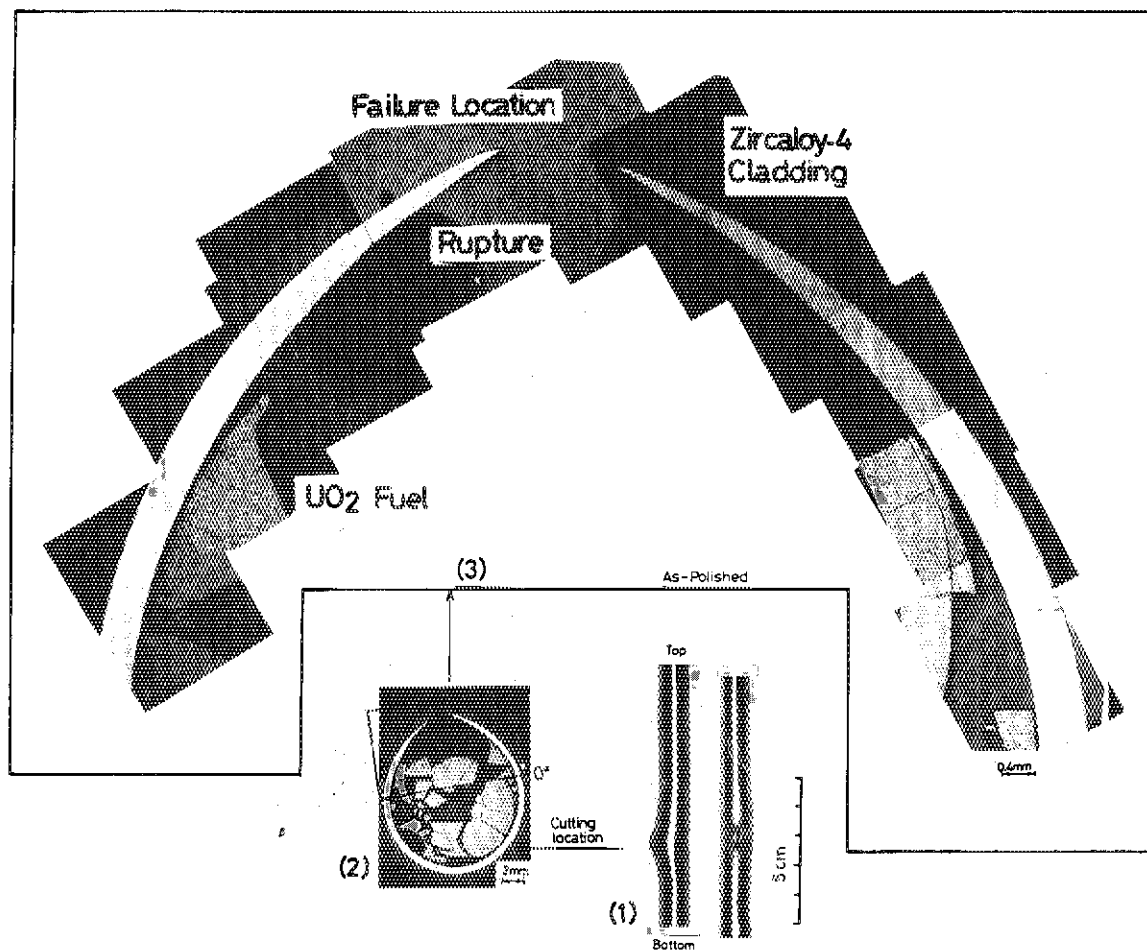


Photo. 2 Photomicrograph of non-doped standard fuel (3.4w/o enriched fuel at column ends), failed at deposited energy of 161 cal/g·fuel; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples and white spot in (2) the zero orientation mark; As-polished

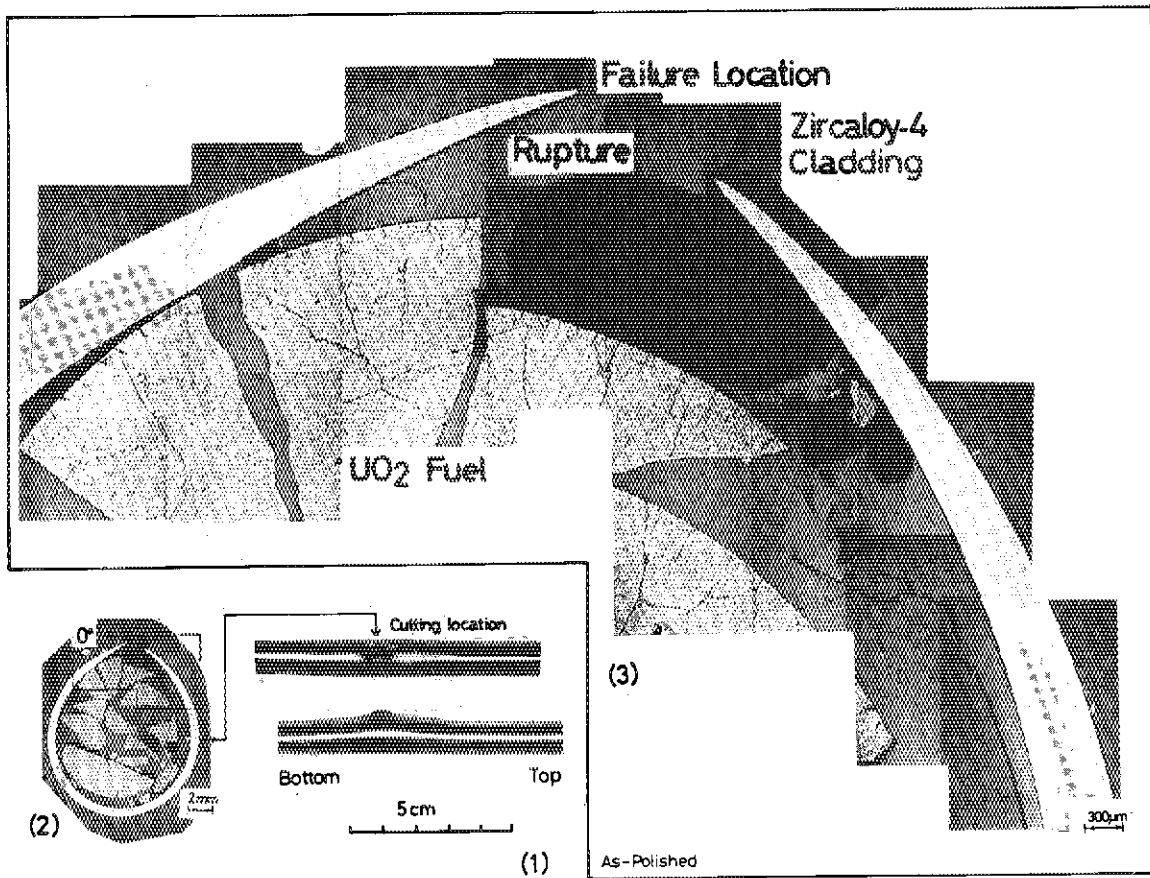


Photo. 3 Photomicrograph of non-doped standard fuel (natural fuel at column ends), failed at deposited energy of 161 cal/g·fuel; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples and white spot in (2) the zero orientation mark; As-polished

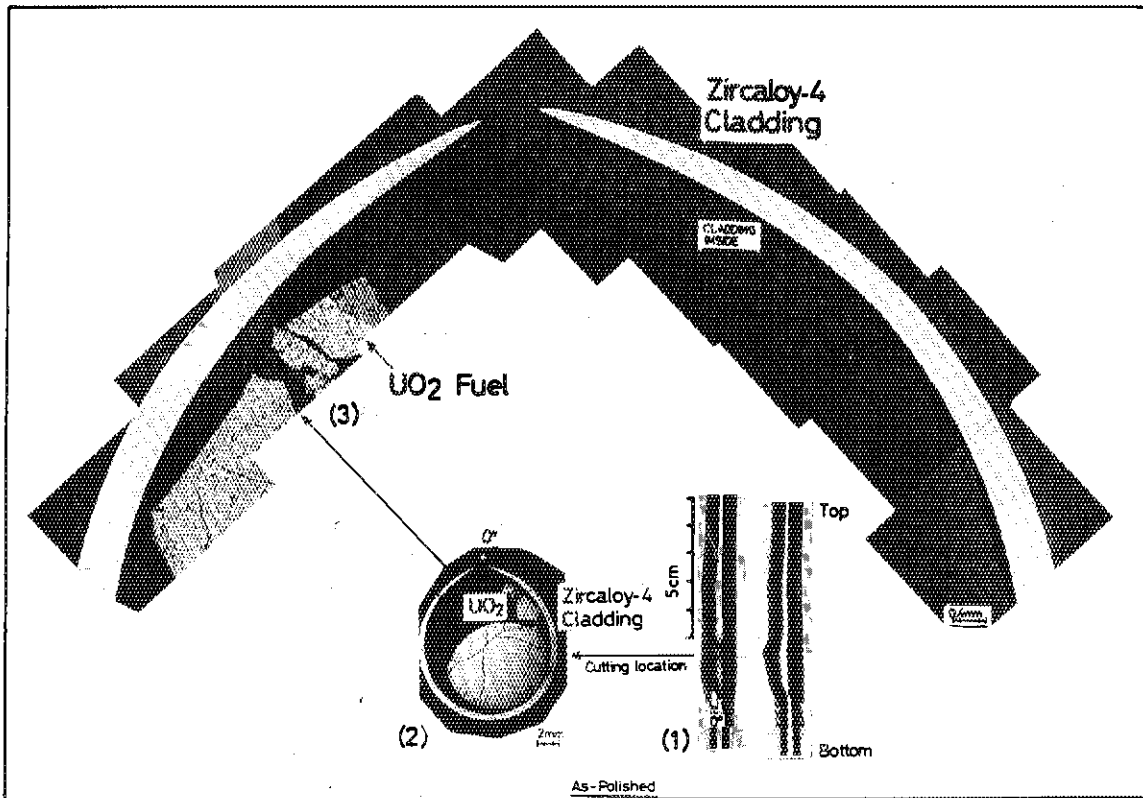


Photo. 4 Photomicrograph of niobia doped fuel (3.4w/o enriched fuel at column ends), failed at deposited energy of 161 cal/g·fuel; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples and white spot in (2) the zero orientation mark; As-polished

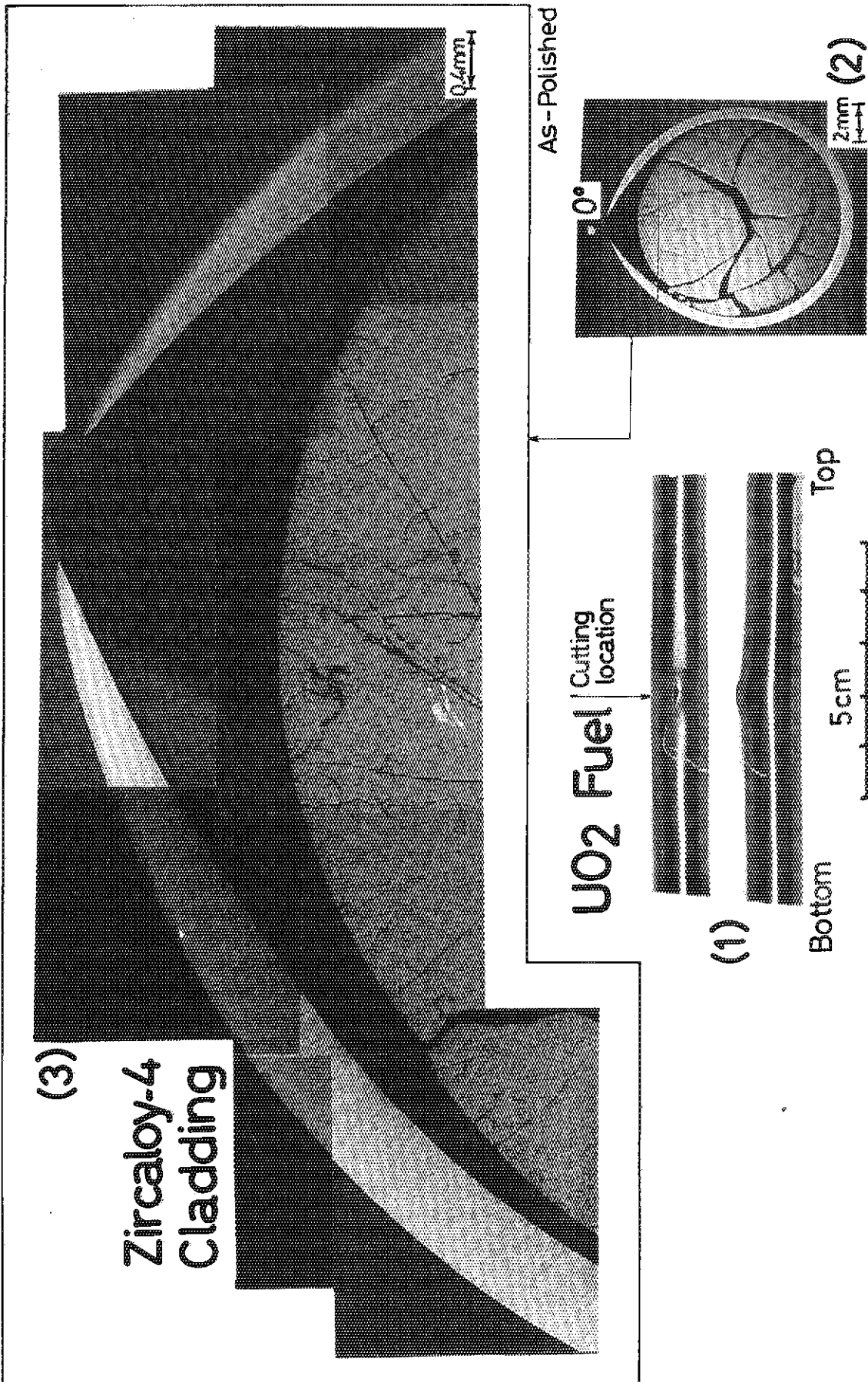


Photo. 5 Photomicrograph of non-doped standard fuel (3.4w/o enriched fuel at column ends), failed at deposited energy of 149 cal/g·fuel; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples and white spot in (2) the zero orientation mark; As-polished

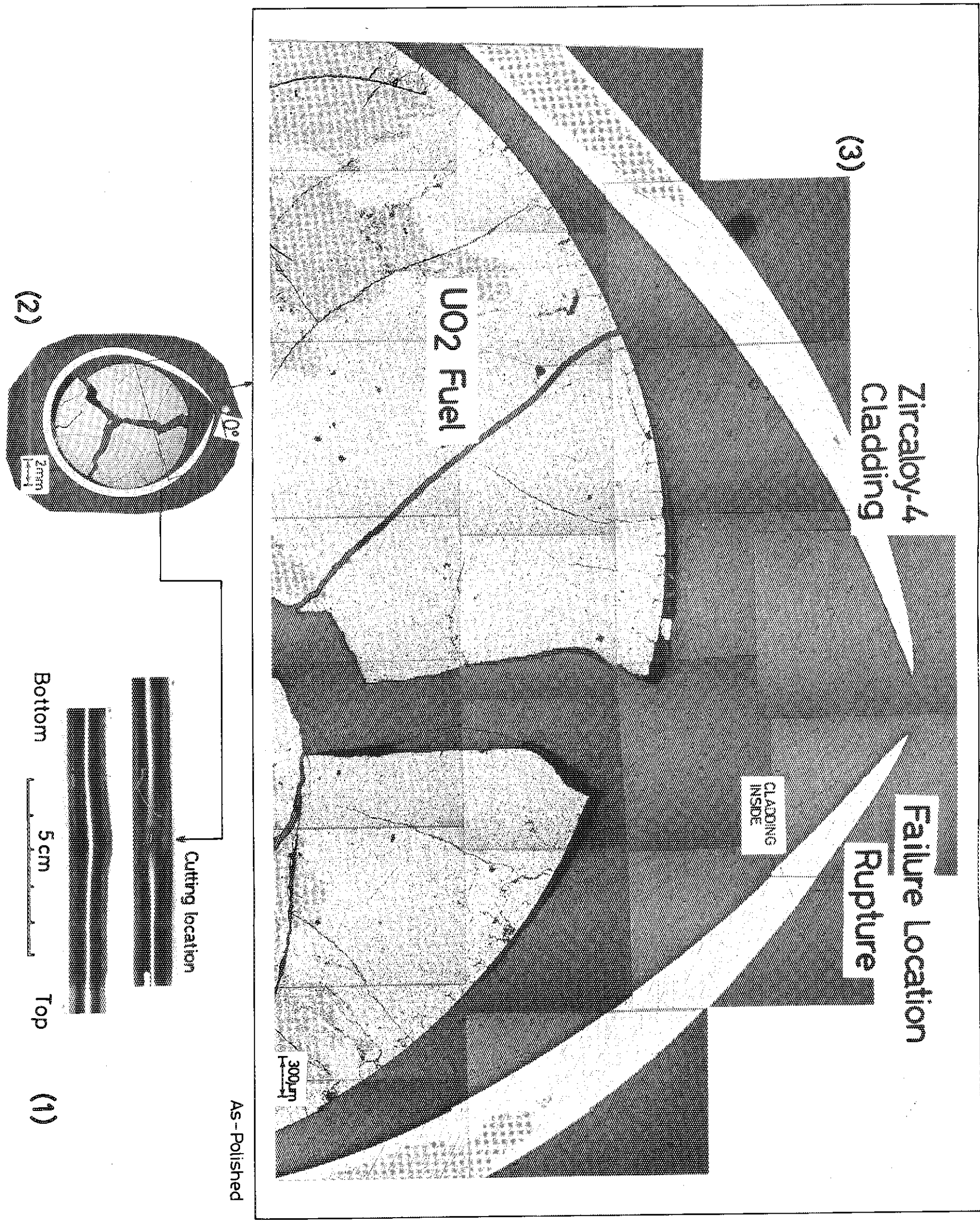


Photo. 6 Photomicrograph of non-doped standard fuel (natural fuel at column ends), failed at deposited energy of 149 cal/g·fuel; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples and white spot in (2) the zero orientation mark; As-polished

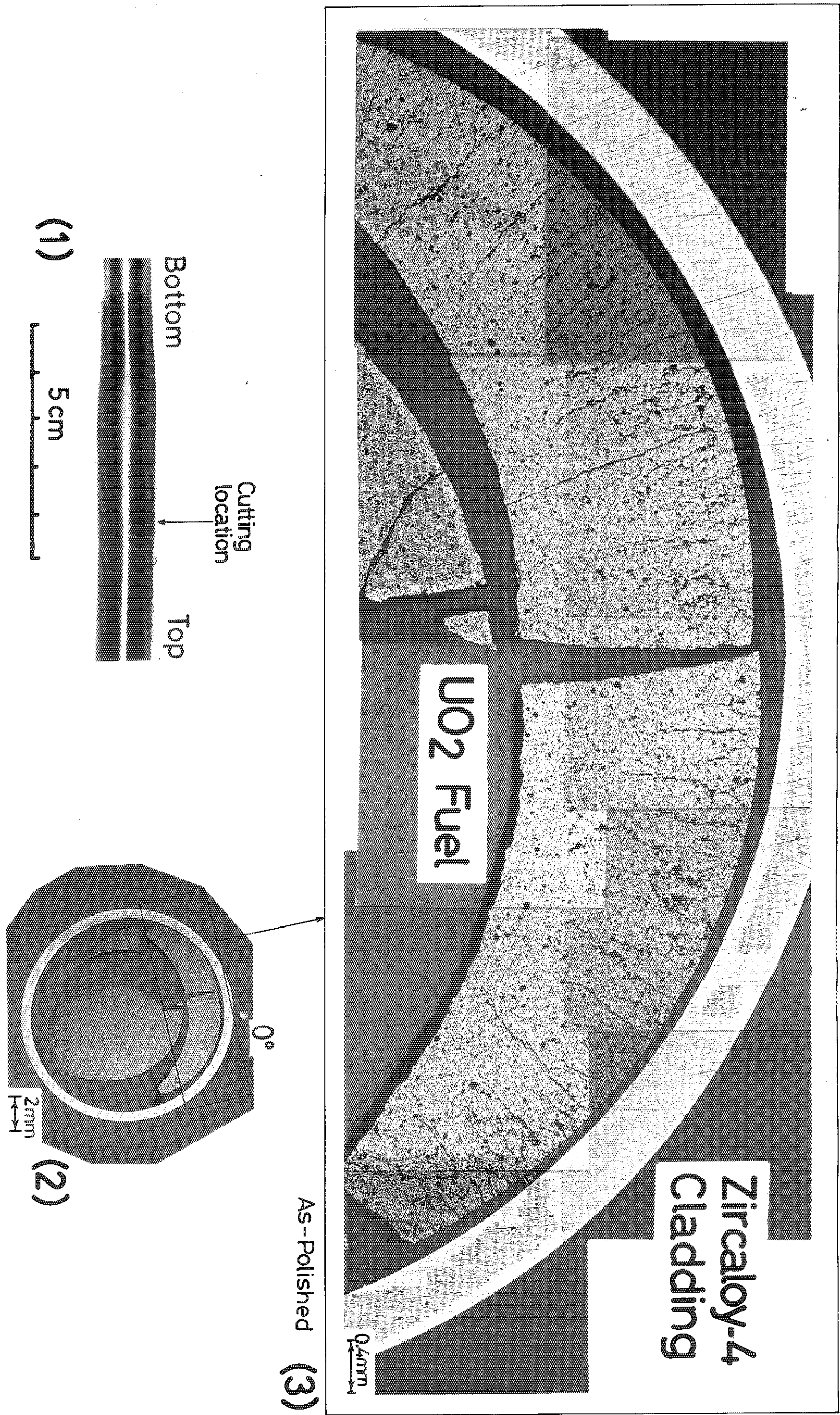


Photo. 7 Photomicrograph of niobia doped fuel (3.4w/o enriched fuel at column ends), intact at deposited energy of 149 cal/g·fuel; White spot in (1) is showing zero orientation mark

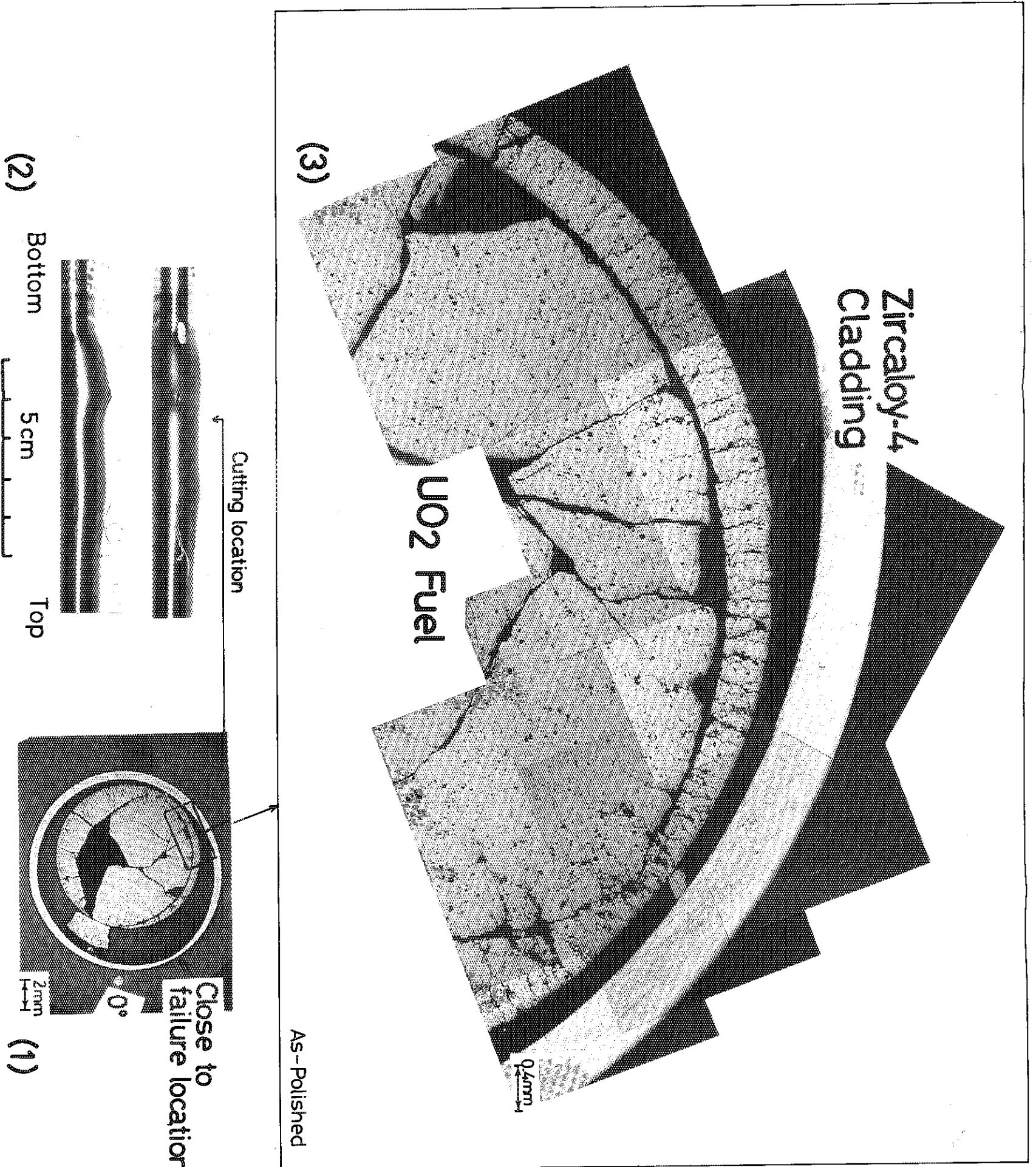


Photo. 8 Photomicrograph of niobia doped defected fuel pulsed at 161 cal/g.fuel (3.4w/o enriched fuel at column ends), cut from the location where its very close to failure location; Wires in (2) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples attached to; As-polished

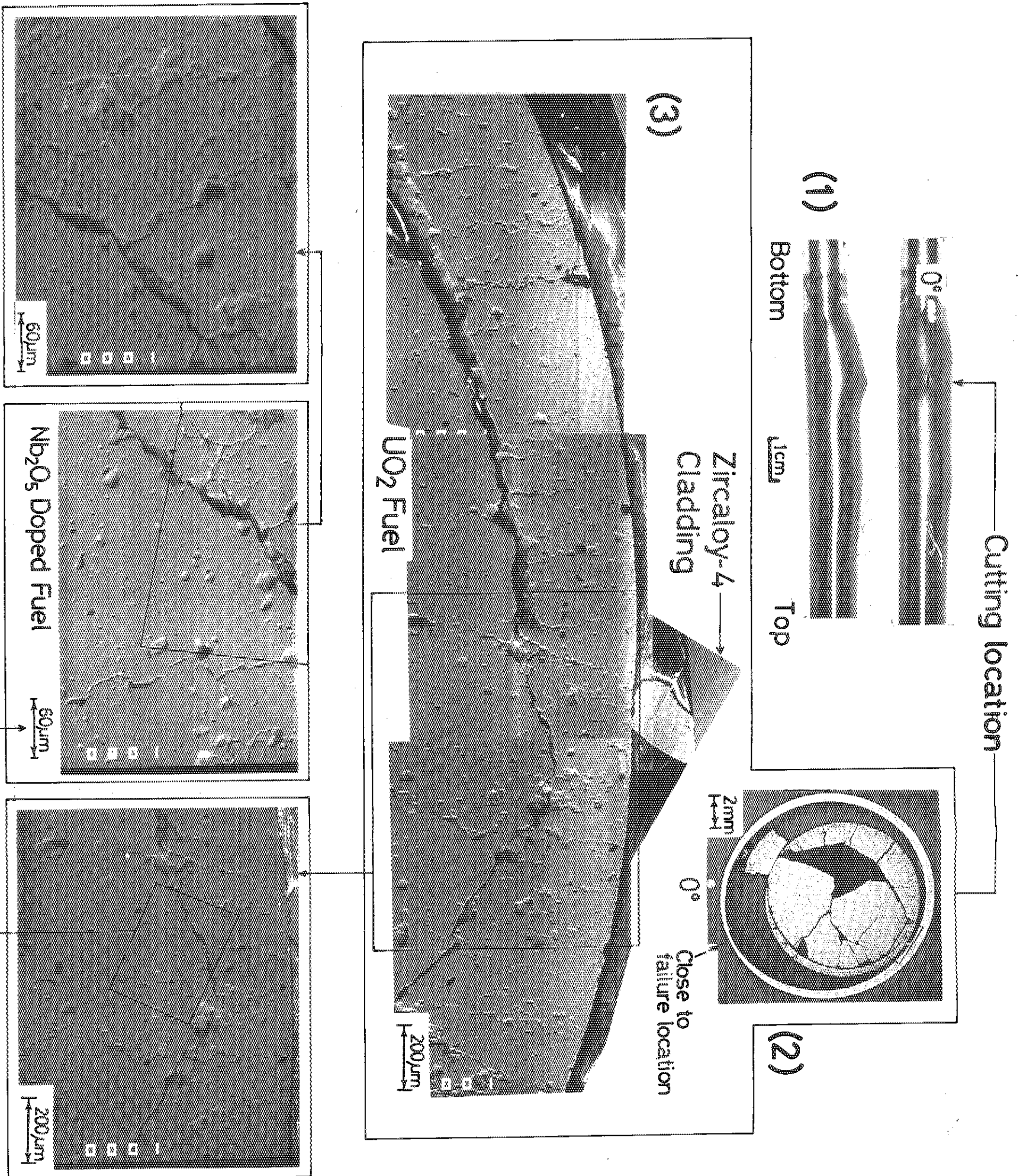


Photo. 9 Photographs by scanning electro microscope (SEM), taken as same location as previous photograph 8; This place was served to measure niobium distribution

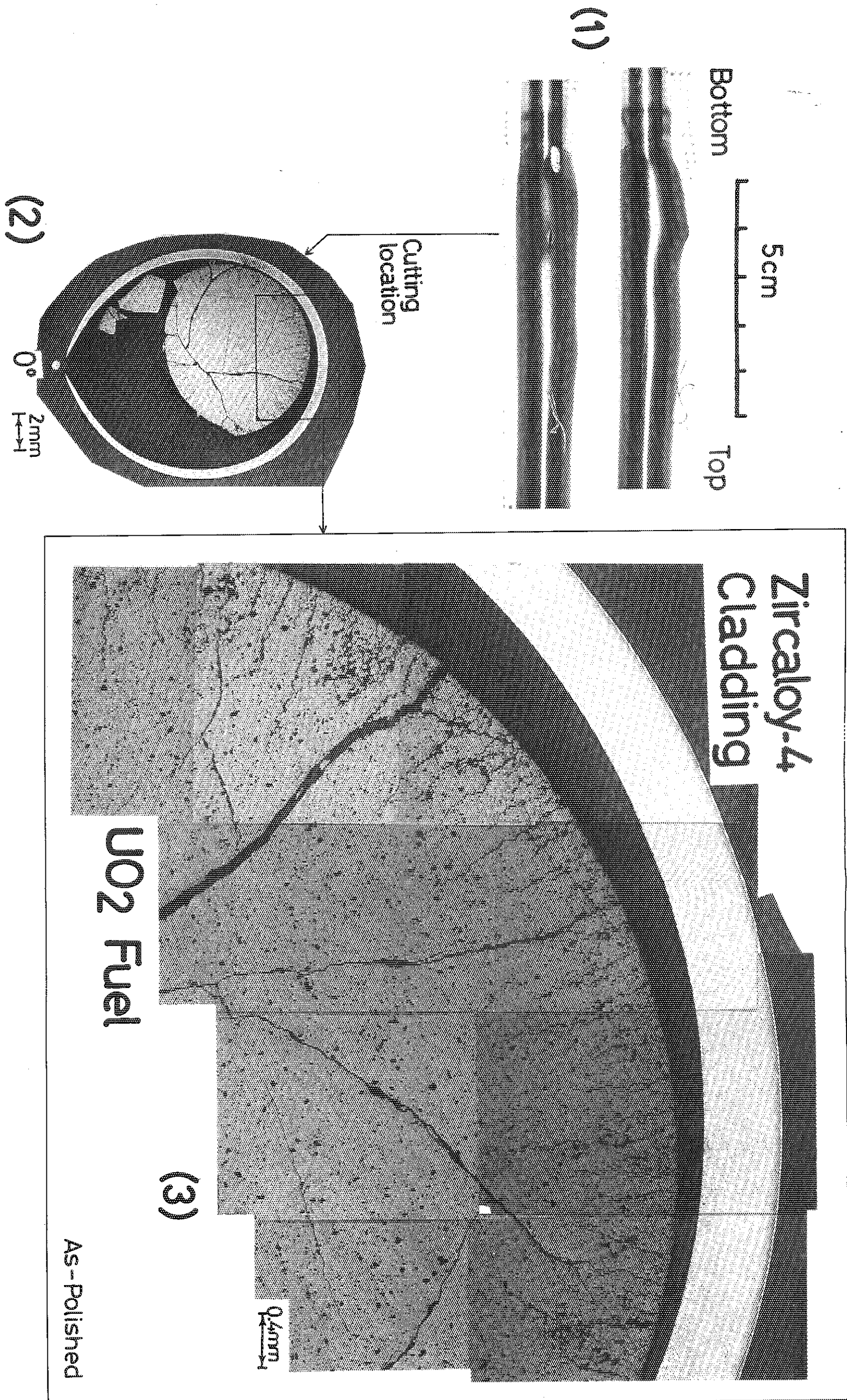


Photo. 10 Photomicrograph of niobia doped defected fuel, pulsed at 161 cal/g·fuel. Cut from failure location; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples attached to; As-polished

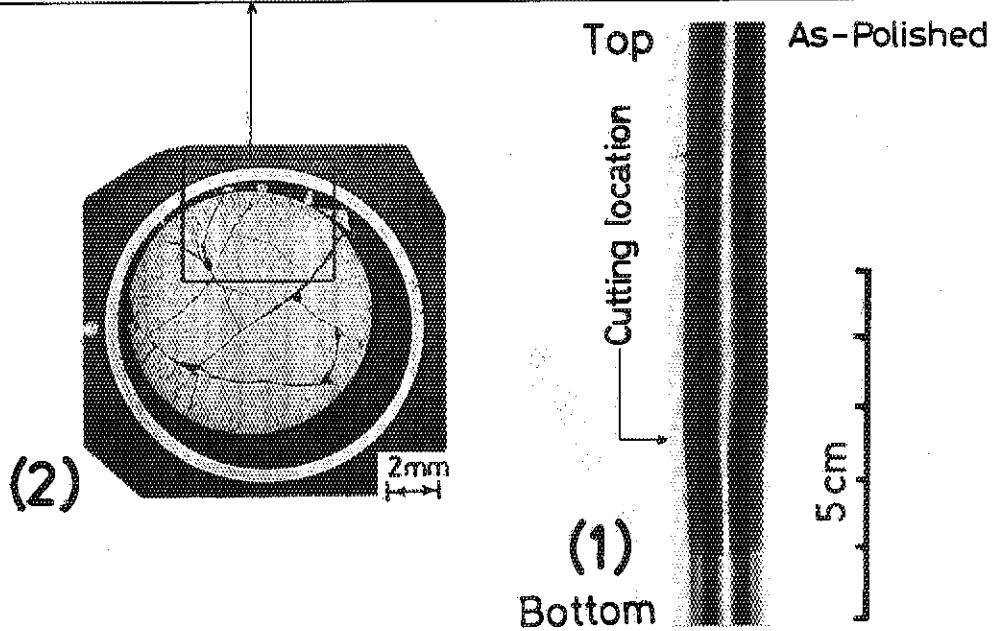
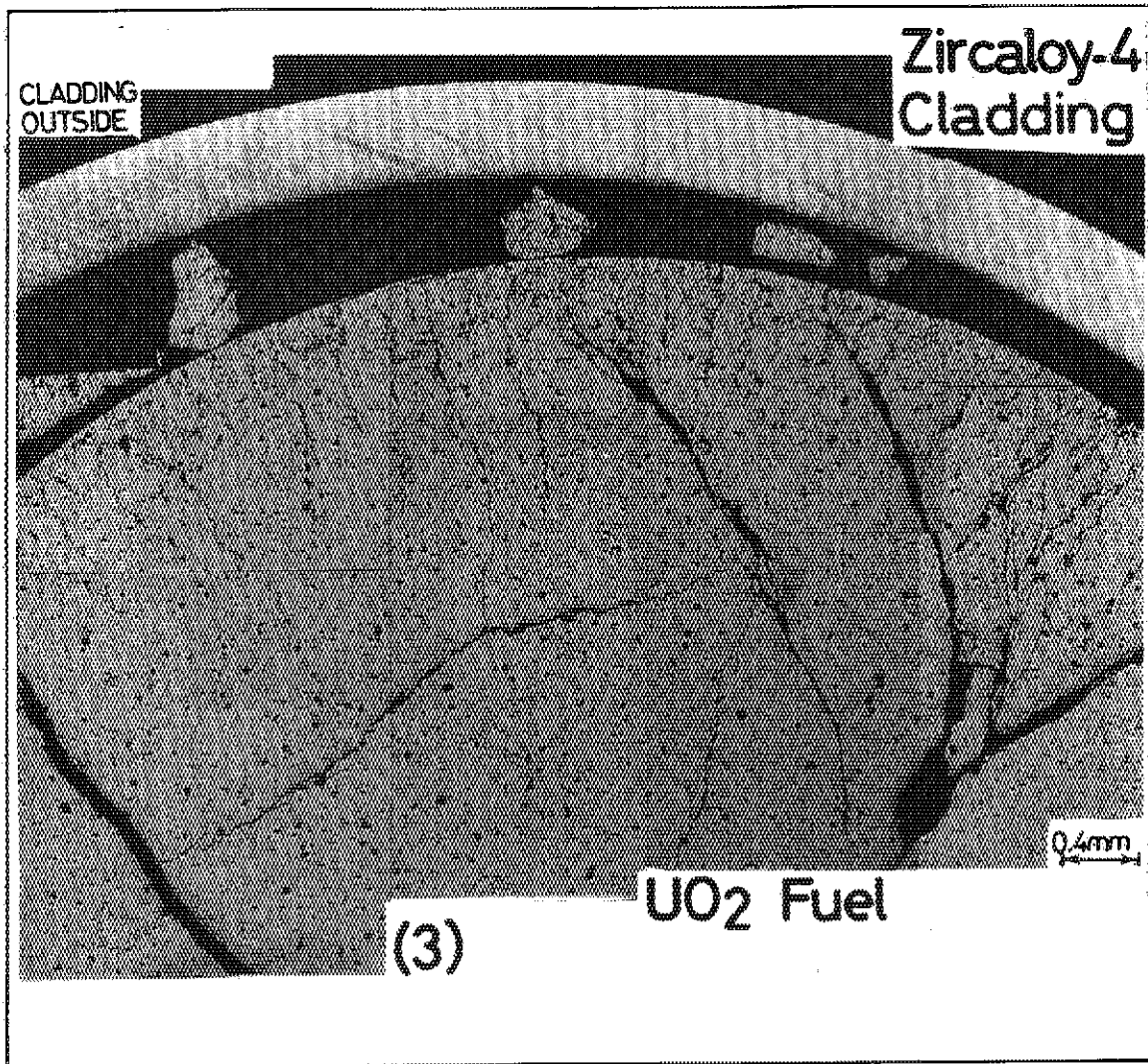


Photo. 11 Photomicrograph of niobia doped intact fuel, pulsed at 149 cal/g fuel

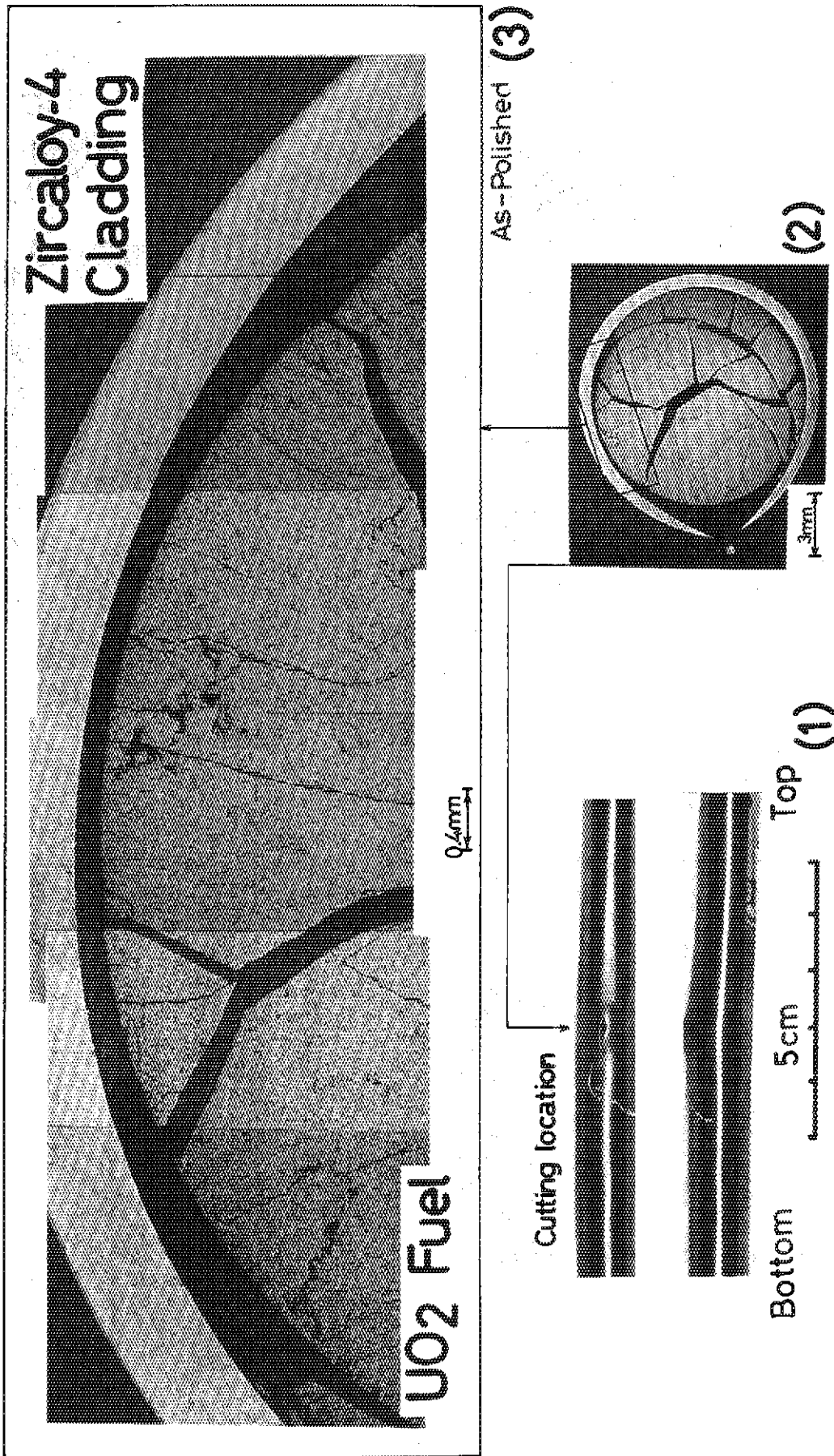


Photo. 12 Photomicrograph of non-doped defected standard fuel at 149 cal/g·fuel, comparable to photograph 11 from the view point of cracking morphology; Wires in (1) is showing the Pt/Pt-13%Rh thermocouples and white spot in (2) the zero orientation mark

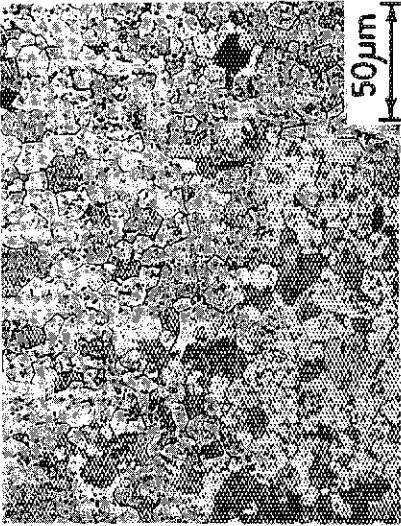
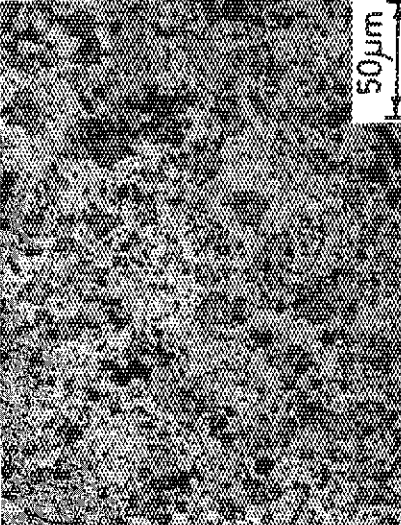
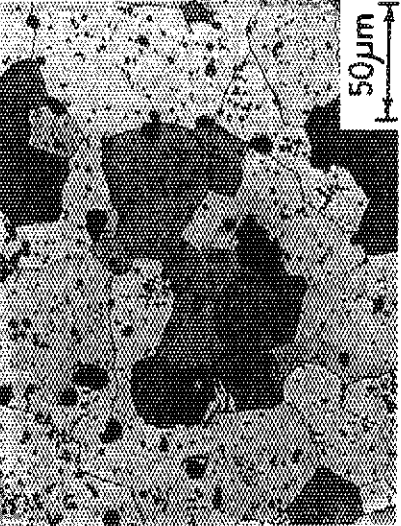
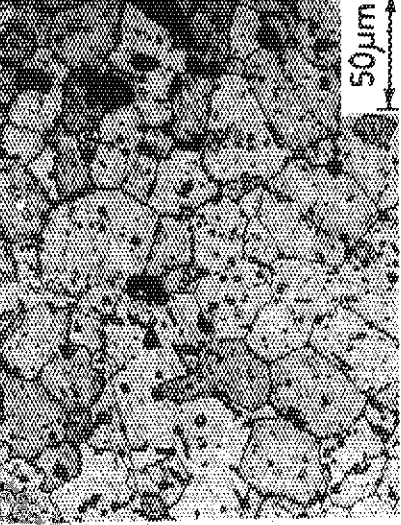
<p>Non-doped Standard Fuel</p>			<p>After pulse, Failure at 161 cal/g·fuel</p>
<p>0.3w/o Nb₂O₅ Doped Fuel</p>			<p>After pulse, Failure at 161 cal/g·fuel</p>

Photo. 13 Morphological comparison between non-dopant fuels (top two) and niobia dopant fuels (bottom two)

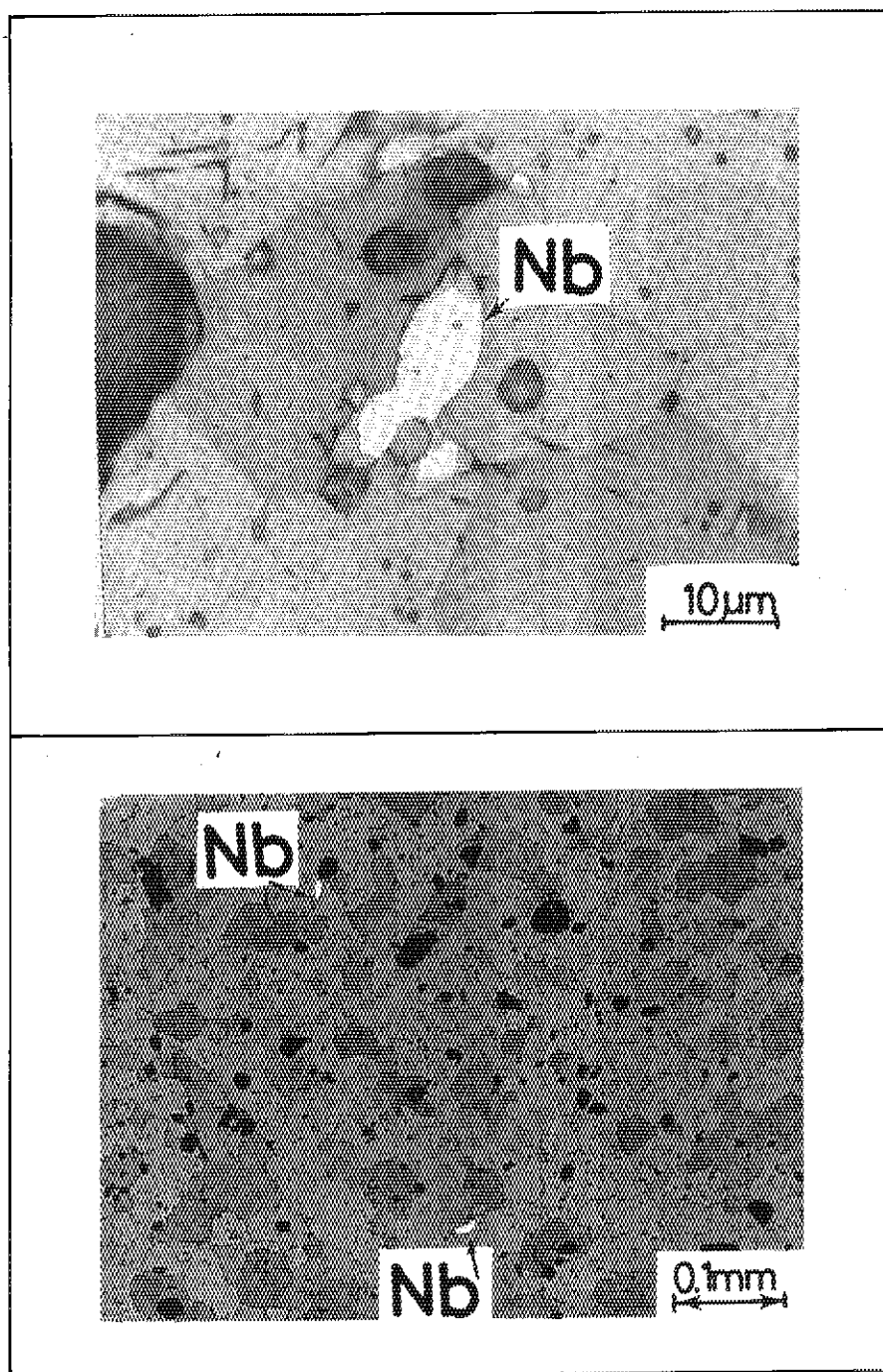


Photo. 14 As-fabricated microstructure of niobia-dopant UO_2 pellet, showing local precipitated small particles of niobium by white area; As-etched

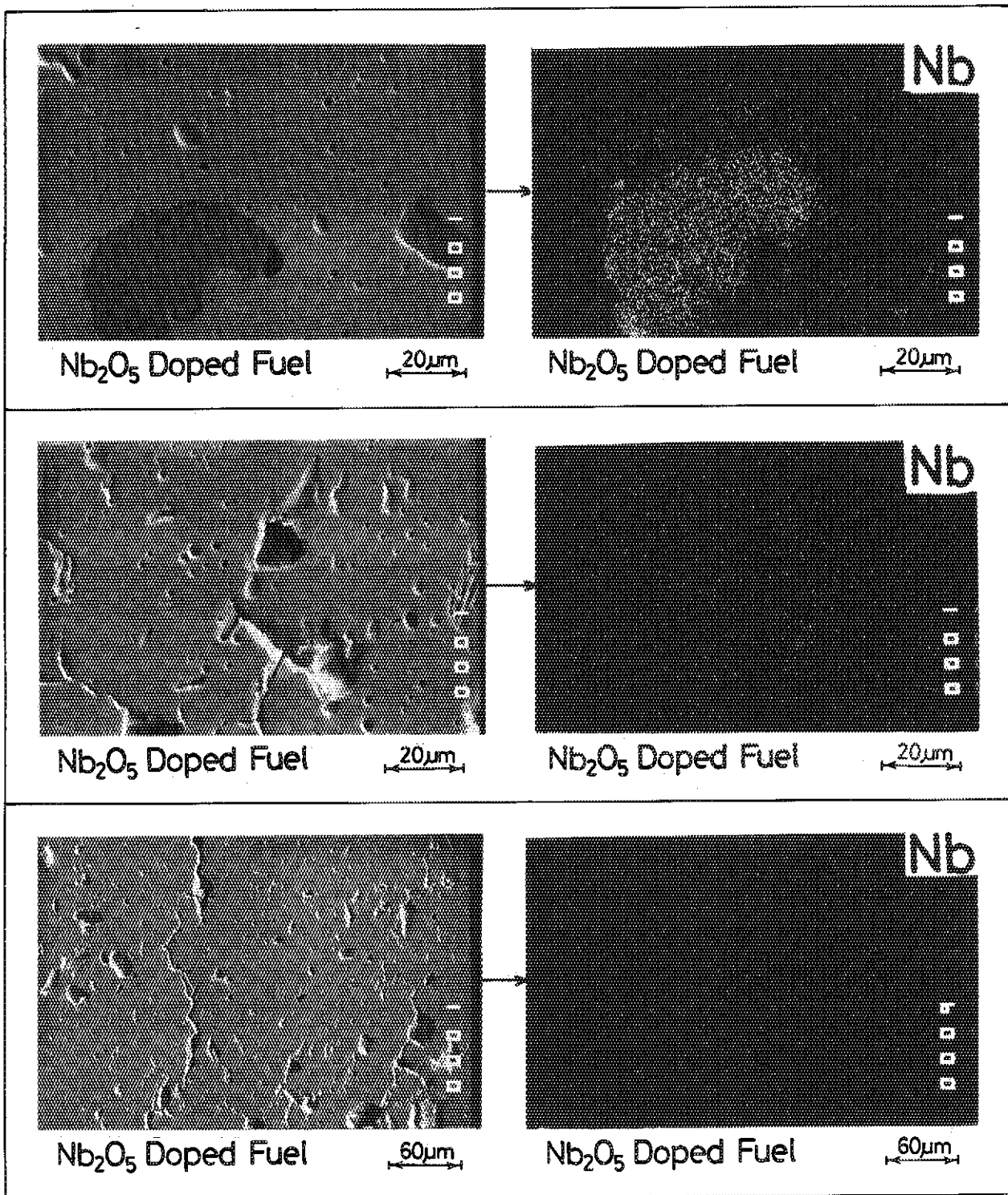


Photo. 15 (Left) SEM macrophotographs taken from doped fuel edge location pulsed at $149 \text{ cal/g}\cdot\text{fuel}$, (Right) Characteristic X-ray of niobium at the place

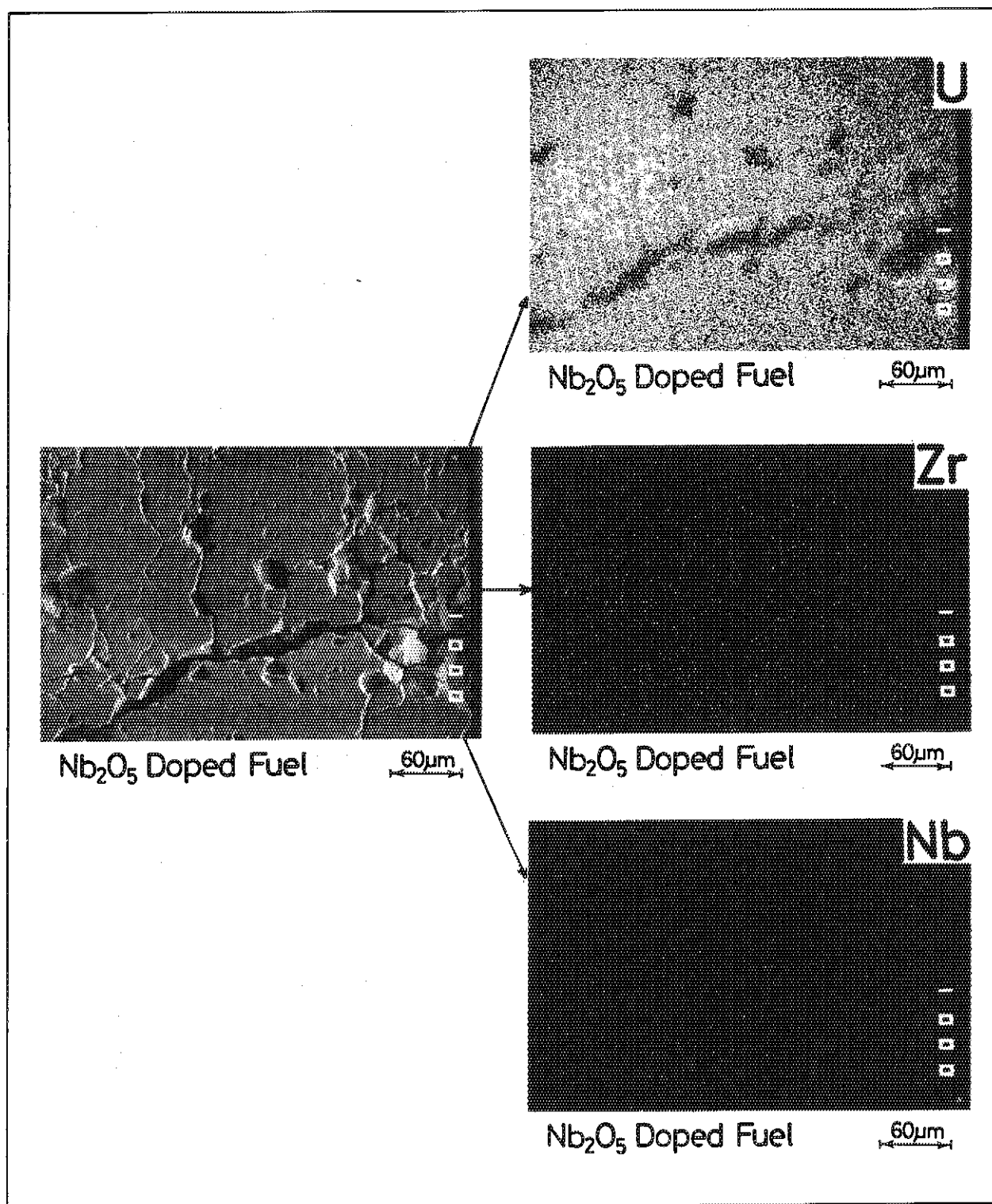


Photo. 16 Characteristic X-ray of U, Zr and Nb from niobia dopant fuel, pulsed at 161 cal/g·fuel