

JAERI-M

9178

NSRRにおける混合酸化物燃料
予備実験の結果

1980年11月

稲辺 輝雄・斎藤 伸三・柳原 敏

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

NSRR における混合酸化物燃料予備実験の結果

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

稻辺 輝雄 • 斎藤 伸三 • 柳原 敏

(1980年10月16日受理)

NSRRにおいては、これまで軽水炉用酸化ウラン燃料の反応度事故時における破損挙動を調べるための実験研究を進めてきたが、これに加えて、熱中性子炉用プルトニウム—ウラン混合酸化物燃料の破損挙動に関する実験研究を動力炉・核燃料開発事業団との共同研究として計画し、そのための準備作業を進めてきた。この一環として混合酸化物燃料実験用に開発・試作した燃料収納カプセルを用い、 UO_2 燃料を試験燃料として、NSRR のパルス出力照射により最大 340 cal/g・ UO_2 までの発熱量を与える実験を 4 回実施した。この予備実験は、実験物の核特性の把握および燃料破損に対するカプセルの健全性の確認を目的として行ったものであるが、実験の結果以下の事項を確認した。

- (1) 試験燃料発熱量の較正值と計算による予測値は比較的良好一致を示し、今後の混合酸化物燃料実験において、予測した最大発熱量 300 cal/g・fuel を十分達成できる見通しを得た。また、実験物の反応度価値は約—2.2 \$で、制限値に対し十分余裕がある。
- (2) 最大 340 cal/g・ UO_2 までの発熱量を与えて燃料を破損させても、予想通りカプセル内に圧力波や水撃力の発生は全く無く、カプセルの健全性上問題はない。
- (3) 燃料の 1 次収納容器である内部カプセルは小型で上部空間体積が小さいため、ジルカロイ被覆材—水反応によって生ずる水素により、カプセル圧力の上昇は比較的顕著となる。しかし、この外圧条件は燃料の破損しきい値に影響を及ぼす程度のものではない。

Results of the Preliminary Tests for Mixed Oxide
Fuel Test Program at NSRR

Teruo INABE, Shinzo SAITO and Satoshi YANAGIHARA

Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received October 16, 1980)

Light water reactor fuel behaviors under reactivity-initiated accident (RIA) conditions have been investigated at the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) utilizing uranium oxide fuel rods. Furthermore, the NSRR program will be initiating RIA tests for uranium-plutonium mixed oxide fuel rods in 1981 in cooperation with the Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC).

As part of the preparation for the mixed oxide fuel test program, new test capsules consisting of dual containers were designed and fabricated. Employing these capsules, preliminary tests were conducted with uranium oxide fuel rods in order to examine the feasibility and nuclear characteristics of these experiments. The test results indicate the following:

- (1) The measured and predicted test rod energy depositions are in a relatively good agreement. This provides a confidence in the prediction of the maximum attainable energy deposition in the future tests (300 cal/g·fuel).
- (2) There is no mechanical energy generation (pressure pulse, water hammer) in a test at 340 cal/g. UO₂ or less as expected.
- (3) Due to the hydrogen gas generated by Zircaloy-water reaction, rather conspicuous pressure rise takes place in the inner capsule. However, this does not change the fuel failure threshold.

Keywords : NSRR, RIA, Mixed Oxide Fuel, Preliminary Tests, Dual Capsule, Nuclear Characteristics, Mechanical Energy, Zircaloy-Water Reaction, Hydrogen Gas.

目 次

1. 序 論.....	1
1.1 NSRR における混合酸化物燃料実験計画	1
1.2 予備実験の目的.....	1
2. 実験装置および実験方法.....	2
2.1 NSRR 炉の概要	2
2.2 実験物および実験計装.....	2
2.3 実験方法.....	3
3. 実験結果.....	9
3.1 実験No. 700—1 および 700—2 の結果.....	9
3.2 実験No. 700—3 の結果.....	9
3.3 実験No. 700—4 の結果.....	9
4. 検討および考察.....	15
4.1 実験物の核的特性.....	15
4.2 内部カプセルの設計の妥当性.....	15
4.3 ジルカロイ一水反応による発生水素圧.....	15
5. 結 論.....	17
謝 辞.....	17
付 錄 ジルカロイ一水反応による発生水素圧の検討.....	18
参考文献.....	23

CONTENTS

1. Introduction	1
1.1 NSRR Test Program for Mixed Oxide Fuel Behaviors	1
1.2 Objectives of the Preliminary Tests for Mixed Oxide Fuel Test Program	1
2. Test Environments and Methods	2
2.1 Description of the NSRR	2
2.2 Experiments and Instrumentation	2
2.3 Test Method	3
3. Test Results	9
3.1 Results of Tests 700-1 and 700-2	9
3.2 Results of Test 700-3	9
3.3 Results of Test 700-4	9
4. Discussions	15
4.1 Nuclear Characteristics of the Experiments	15
4.2 Propriety of the Capsule Design	15
4.3 Hydrogen Gas Pressure Resulting from Zircaloy-Water Reaction	15
5. Conclusions	17
Acknowledgments	17
Appendix Examination of the Hydrogen Gas Pressure Resulting from Zircaloy-Water Reaction	18
References	23

1. 序論

1.1 NSRR における混合酸化物燃料実験計画

日本原子力研究所（原研）の NSRR（Nuclear Safety Research Reactor）においては、これまで、軽水炉の反応度事故時の燃料挙動および燃料の破損限界、破損機構等を解明するための炉内実験を行ってきているが、昭和54年から、その一環として、プルトニウム－ウラン混合酸化物燃料の破損挙動に関する実験を、動力炉・核燃料開発事業団（動燃）との共同研究として実施することとした。¹⁾ この計画は、プルトニウムの熱中性子炉への利用に鑑み、混合酸化物燃料の反応度事故条件下における破損挙動、破損しきい値を究明し、ウラン燃料の場合と比較するとともに、プルトニウム・スポット径の燃料破損に及ぼす影響を実験的に解明することにより、安全性評価に資することを目的としたものである。混合酸化物燃料の破損実験は、昭和55年度末に開始し、昭和58年度末までに合計約30回の実験を行う予定である。現在はこのために必要な準備を原研側および動燃側の双方で進めているところであり、ここで報告する予備実験も、この準備作業の一環として行ったものである。

1.2 予備実験の目的

NSRR 実験においては、試験燃料を冷却材とともにカプセルあるいはループに納め、これを炉心中央部の実験孔に設置して、反応度事故を模擬した速い過渡変化を有するパルス出力によって照射する。従来 UO_2 燃料を対象とした NSRR 実験においては、気密性および耐圧性を有する一重のカプセルを、試験燃料の収納容器として用いてきた。しかし、混合酸化物燃料を実験の対象とする場合には、プルトニウムの特殊性に鑑み、二重の気密容器（以後これを二重カプセルとよぶことにする）を用いることとし、その開発を進めてきた。これは、実験物からのプルトニウムの漏洩に対して、二重の障壁を設ける必要性に基くものである。二重カプセルは、気密性を有する外部容器および気密性と耐圧性を有する内部カプセルから成り、外部容器としては通常 NSRR 実験で使用しているステンレス鋼製カプセルを用いることとして、新たに内部カプセルの設計、試作を行ってきた。また、これと並行して、二重カプセル内における試験燃料の発熱特性の予備解析も進めてきた。

この新たに開発した二重カプセルに UO_2 燃料を試験燃料として装填し、NSRR のパルス出力照射に供して、カプセルの設計の妥当性および核的特性を確認した。ここでは、この UO_2 燃料を用いた実験を「予備実験」とよぶこととする。これまでに、特に以下の事項を目的として、合計4回の予備実験を実施した。

- (i) 二重カプセルの反応度価値の把握
- (ii) 二重カプセル内試験燃料の発熱量の把握
- (iii) 試験燃料に高発熱量を与えて破損させた場合の、内部カプセルの健全性の確認

(iv) その他、カプセルの設計上問題となる事項の把握

以下には、この予備実験の方法、結果、および得られた結果に対する考察を述べる。

2. 実験装置および実験方法

2.1 NSRR 炉の概要²⁾

NSRR は、米国 General Atomic 社によって開発された熱中性子パルス炉 TRIGA-ACPR を改良したもので、Fig. 2.1 に示すように、水深約 9 m を有するスイミング・プール型の原子炉である。炉心はプール底部に位置しており、炉心燃料の冷却はプール水の自然循環によって行う。この炉心の中央部を、内径約 22 cm の中空実験孔が垂直に貫通している。

NSRR の炉心燃料は、直経約 3.6 cm、有効長約 38 cm のウラン-水素化ジルコニウム (U-ZrH) を、ステンレス鋼製被覆材で覆ったものである。炉心燃料は、Fig. 2.2 に示すように、六角形の実験孔の周囲に稠密に配列され、外径約 63 cm の炉心を構成する。また、炉心内には、安全棒 2 本、調整棒 6 本の制御棒のほかに、パルス出力発生のために用いるトランジェント棒（中性子吸収体）3 本がある。パルス運転の際には、これらのトランジェント棒を圧縮空気で炉心から急速引き抜きすることにより、最大 4.7 \$ (3.43 % Δk) までの正の反応度を炉心に印加することができる。パルス出力は、NSRR の持つ強い自己制御性、すなわち、燃料体に含まれる減速材 (ZrH) の大きな負の反応度温度係数によるフィードバック効果によって、自動的に抑制される。

Fig. 2.3 には、約 4.7 \$ の最大反応度を印加した際の、パルス出力の時間的変化と出力の時間積分値（積分出力）を示す。この場合のパルス出力の最高値（ピーク出力）と種分出力は、それぞれ約 21,000 MW および約 105 MW·s である。また、パルス出力の最短炉周期と半値幅は、それぞれ 1.1 ms および 4.4 ms であり、これらはいずれも熱中性子パルス炉としては最も速く、かつ狭い部類に属する。

2.2 実験物および実験計装

(1) 試験試料

予備実験に用いた試験燃料の仕様および構成を、Table 2.1 および Fig. 2.4 に示す。これは、14 個のチャンファ型 UO_2 ペレットをジルカロイ-4 被覆管に収納したものであり、ペレットのスタック長を 135 mm、U-235 の濃縮度を 20%，燃料棒の初期内圧を 1 気圧とした点を除いて、基本的には 14 × 14 型 PWR 燃料棒と同一の仕様を有する。この仕様の燃料は、NSRRにおいて標準型試験燃料とよび、これまで数多くの実験に用いてきた。今後の NSRR 実験用の混合酸化物燃料も、ペレットの素材を除き、この標準型試験燃料と同一の仕様を有する。

(2) 二重カプセル

試験燃料の収納容器としては、Fig. 2.5 に示すように、外部容器および内部カプセルから成る二重カプセルを用いた。外部容器は、通常の NSRR 実験に用いているステンレス鋼製のカプセ

ル(特にこれを大気圧水カプセルとよんでいる³⁾)であり、内径120 mm、胴体中央部肉厚7 mm、内部有効長約800 mmの寸法的特徴を有する。また、内部カプセルは、今回混合酸化物燃料用に試作したステンレス鋼製のカプセルであり、内径65 mm、胴体中央部肉厚4 mm、内部有効長約300 mmの寸法を有する。

内部カプセルの中心部には、前記試験燃料1本を装填し、カプセルの内部には常温常圧の純水を850 cm³注入した(内部カプセル内自由空間100 cm³)。この内部カプセルを、3本の支柱によって外部容器に取り付け、外部容器の中にも常温常圧の純水(約4400 cm³)を注入した。

(3) 実験計装

試験燃料および内部カプセルには、照射実験時の過渡的な挙動を調べるために、以下のような計装を施した。

- (a) 試験燃料被覆管表面の有効発熱長中心位置2個所(0°および180°方向)に、Pt/Pt-13%Rhの熱電対素線(素線径0.2 mm)を、それぞれ点溶接した。
- (b) 燃料有効発熱長の中心と一致する高さで、燃料被覆管表面から約20 mm離れた水中に、シース付クロメル-アルメル熱電対(シース外径1 mm)1本を取り付けた。
- (c) 燃料有効発熱長の中心と一致する高さの内部カプセル外表面に、(b)と同一仕様の熱電対1本を取り付けた(パテ止め)。
- (d) 内部カプセル底部に圧力検出器(最大検出圧力5 MPa)を取り付けた。
- (e) 内部カプセル上蓋下面に、水撃力を測定するために、ネオプレン・ゴム板を台座として歪ゲージを取り付けた。
- (f) その他、適宜内部カプセル表面に歪ゲージを取り付けた。

2.3 実験方法

(1) 照射前試験

内部カプセルは、実験物の組立てに用いる前に、プロファイル・メータによって詳細に寸法を測定した。また、内部カプセルの組立て後は、ヘリウム漏洩試験を行い、カプセルの気密性を確認した。外部容器についても、組立て後ヘリウム漏洩試験を行い、その気密性を確認した。また、計装系として本実験用に新たに取り入れた水撃力測定用歪ゲージ(ゴム台座付)について、基準圧力と出力電圧との関係を較正した。

(2) 照射実験

予備実験は、実験No.700-1から700-4までの4回の実験から成る。このうち、はじめの700-1実験では、実験物(この場合に限り試験燃料なし)をNSRRの中央実験孔に挿入し、反応度値のみを測定した。続く3回の実験では、実験孔内に挿入した実験物をパルス出力によって照射し、試験燃料に160 cal/g·UO₂、340 cal/g·UO₂および253 cal/g·UO₂の発熱量をそれぞれ与えた。これらの照射実験の条件をTable 2.2に示す。

(3) 照射後試験

照射実験後、試験燃料の外観・寸法検査を行った。特に、実験No.700-4に供した燃料は、破損しなかったが、被覆管の変形が認められたので、プロファイル・メータを用いて詳細な寸法測

定を行った。また、この後、燃料棒を切断し、顕微鏡観察によって被覆材中に形成された酸化層の厚さを測定した。実験に使用した内部カプセルについては、各実験後に永久歪みの有無を確認するために、プロファイル・メータによって詳細な寸法測定を行った。

Table 2.1 Test Fuel Rod Design Characteristics

UO₂ Pellet

Diameter	9.29 mm
Length	10 mm
Density	95% TD
U-235 enrichment	20%
End configuration	Chamfered

Cladding

Material	Zircaloy-4
Outer diameter	10.72 mm
Wall thickness	0.62 mm

Fuel Element

Overall length	265 mm
Fuel stack length	135 mm
Weight of pellets	95.5 g
Filler gas	Helium
Initial gas pressure	0.10 MPa

Table 2.2 PRELIMINARY TESTS FOR MIXED OXIDE FUEL - TEST CONDITIONS

<u>Test No.</u>	<u>Test Fuel</u>	<u>Reactivity Insertion (\$)</u>	<u>Reactor Period (ms)</u>	<u>Core Energy Release (MW·s)</u>	<u>Energy Deposition in Test Fuel (cal/g·UO₂)</u>	<u>Test Objectives</u>	<u>Remarks</u>
700-1	—	—	—	—	—	Measurement of experiment reactivity worth (without fuel).	Steady-state operation only.
700-2	UO ₂	2.08	3.9	34.7	160	Measurement of test fuel energy deposition.	Subjected to FP analysis.
700-3	UO ₂	3.42	1.7	73.5	340	Verification of capsule integrity at high energy fuel failure.	
700-4	UO ₂	2.93	2.2	54.6	253	Determination of system pressure rise due to Zircaloy-Water reaction and its influence to fuel failure behavior.	

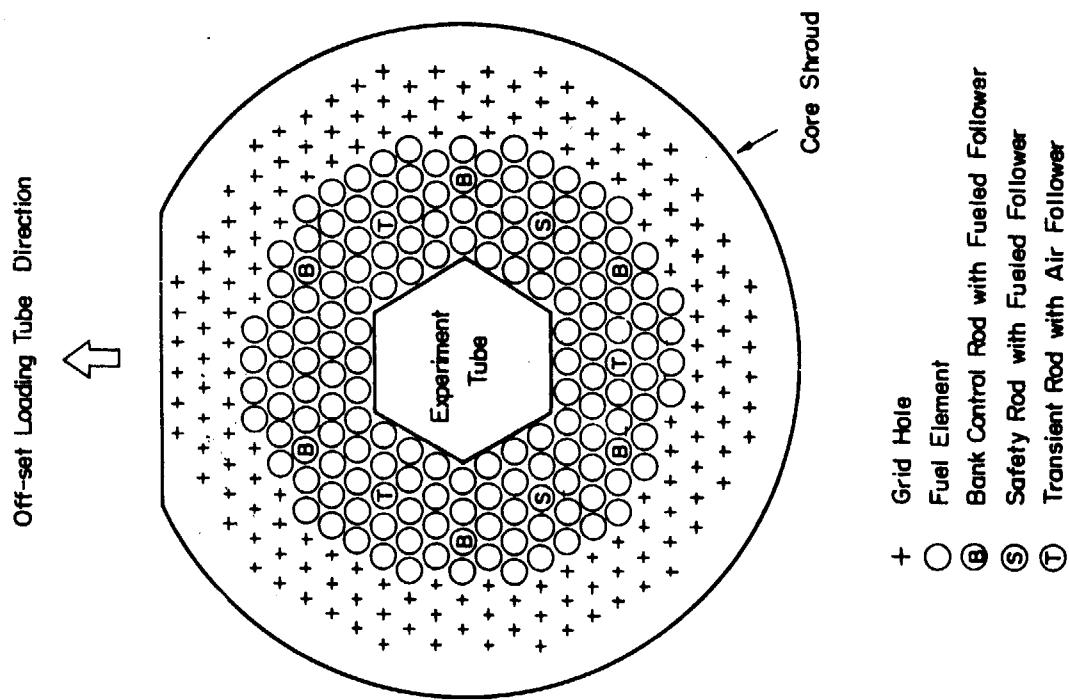


Fig. 2.2 Plane View of the NSRR Core

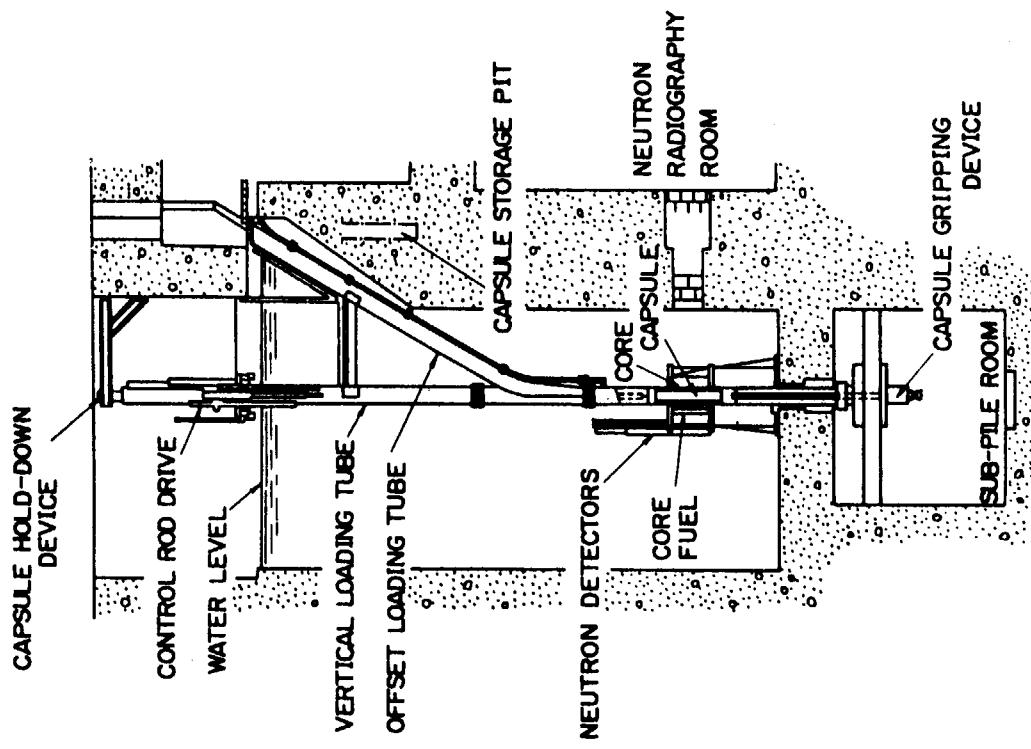


Fig. 2.1 Vertical Cross Section of NSRR

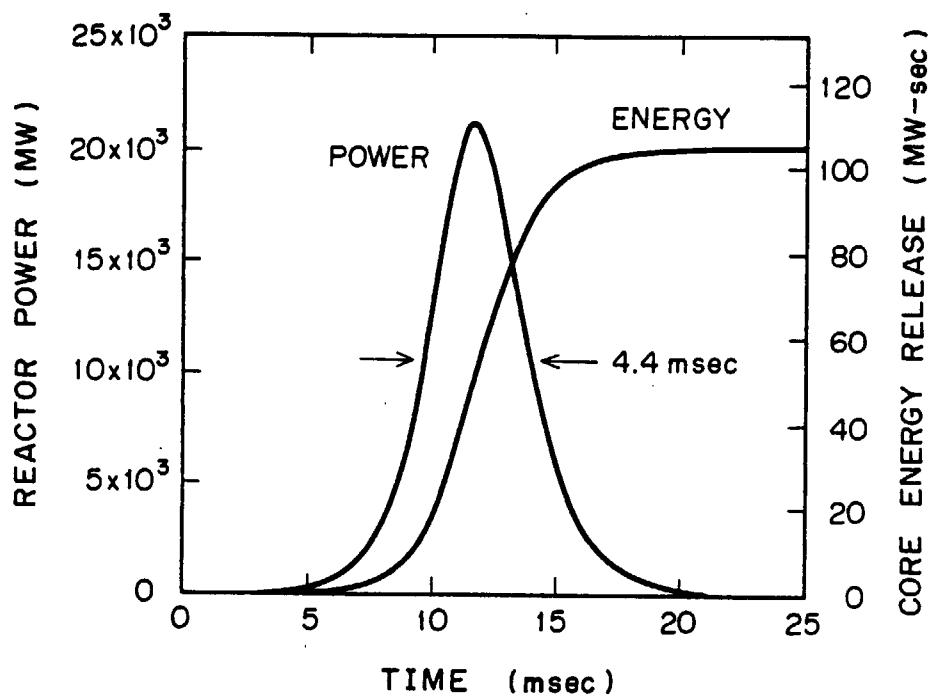


Fig. 2.3 Reactor Power and Core Energy Release Attained in the Pulsing Operation with 4.7\$ Reactivity Insertion

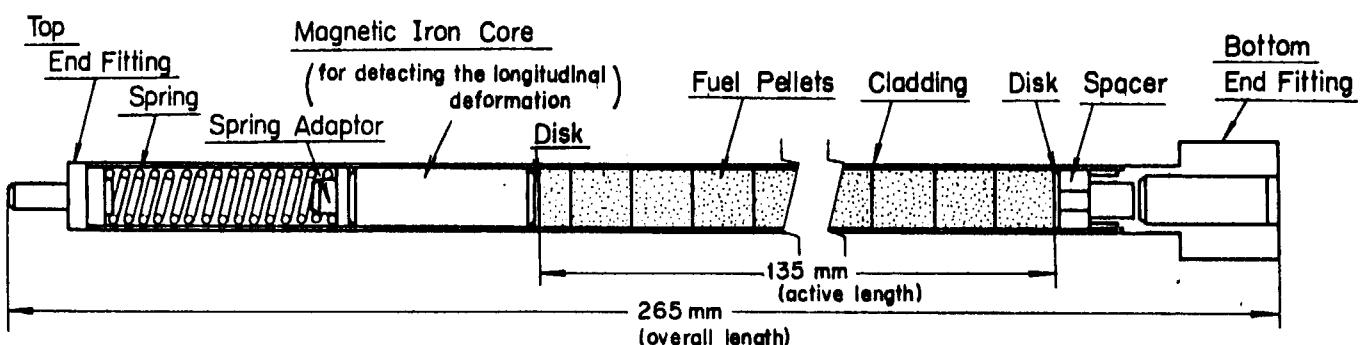


Fig. 2.4 NSRR Standard Test Fuel Rod

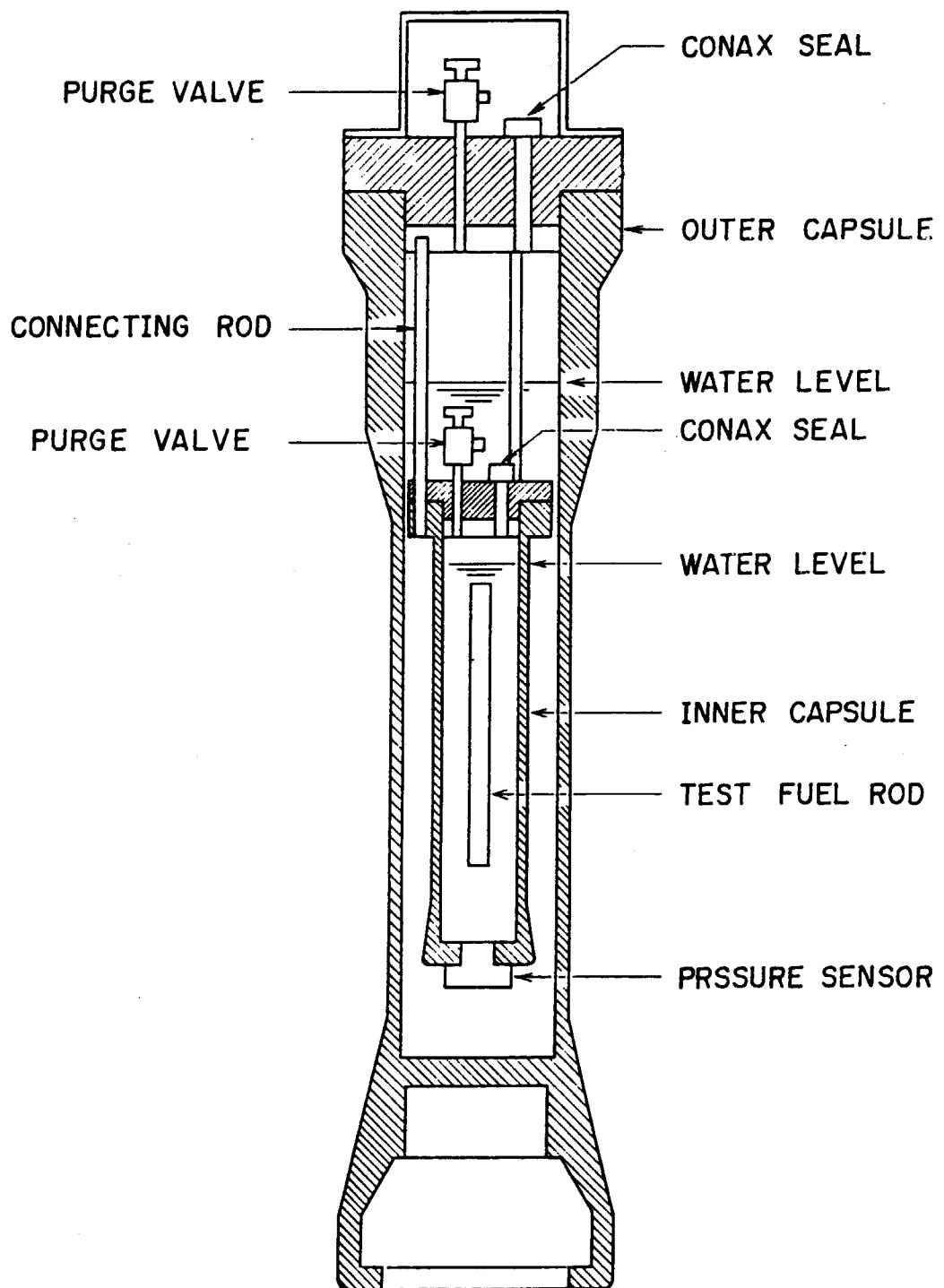


Fig. 2.5 Dual Capsule Container for Mixed Oxide Fuel Preliminary Tests

3. 実験結果

3.1 実験No.700-1および700-2の結果

実験No.700-1は、カプセル内に試験燃料を入れない場合の実験物の反応度価値を測定する目的で行った実験であるが、反応度価値の測定値は-2.25 \$であった。なお、カプセル内に試験燃料を入れた場合（実験No.700-2～700-4）の実験物の反応度価値は、平均的に-2.05 \$であった。

実験No.700-2は、二重カプセル内の試験燃料発熱量を把握する目的で行った実験であるが、照射後燃料のFP分析の結果得られた発熱量の値は、炉心の放出エネルギー34.7 MW·sに対して161 cal/g·UO₂であった（炉心放出エネルギー100 MW·s当り464 cal/g·UO₂）。この照射後燃料の外観写真をFig.3.1に示す。

3.2 実験No.700-3の結果

実験No.700-3は、燃料の破損に伴って生ずる恐れのある圧力波、水撃力等の衝撃力を測定するとともに、これらが内部カプセルの健全性を損うことがないことを確認するために行った実験である。実験においては、実際の混合酸化物燃料実験で与える予定の最大発熱量（300 cal/g·fuel）を上回る340 cal/g·UO₂の発熱量を与えた。この結果、試験燃料の有効発熱部は、Fig.3.2に示すように比較的粗大な破片状に分断し、また一部の燃料は微細な粒子状と化していた。

この照射実験時に測定した計装類の記録の主なものを、Fig.3.5に実線で示す。被覆材表面に取り付けた熱電対は、パルス出力のピーク後約100 msに1750 °Cの最高温度を指示し、その後に破損してしまった。水温は、パルス出力発生後徐々に上昇し、10秒程度で最高値65 °Cに達した（温度増分40 °C）。またカプセル内圧力については、パルス的な圧力波の発生はなく、代って比較的ゆるやかな圧力の上昇が生じ、約10秒後には最高値1.3 MPa（ゲージ圧）に達した。内部カプセルの内圧は、この後約1分間1.3 MPaの一定値を保持し、その後水温の降下と一致して、微少ながら徐々に減少はじめた。内部カプセル蓋下面に取り付けた歪ゲージの信号も、内圧計によって測定したカプセル内圧の挙動と類似した挙動を示し、圧力対歪量の較正曲線から評価した最高圧力（ゲージ圧）は約1.3 MPaであった。なお、この歪ゲージの信号から判断して、水撃力の発生は全くなかった。

実験後、プロファイル・メータを用いて内部カプセルの寸法を測定した結果、カプセルの永久歪みは全く認められなかった。

3.3 実験No.700-4の結果

実験No.700-3の結果では、試験燃料の照射と同時にカプセル内圧力の上昇が生じ、長時間こ

の圧力が保持されるという現象が生じたので、この外圧条件が、燃料の破損挙動にどのような影響をもたらすかを確認するために、破損しきい値近傍の発熱量を試験燃料に与える実験を、実験No. 700-4として実施した。常温常圧水中における20%濃縮 UO_2 燃料の破損しきい値は約250 cal/g· UO_2 であるので、⁴⁾ 実験No. 700-4においては、試験試料に253 cal/g· UO_2 の発熱量を与えた。

この結果、試験燃料は、Fig. 3.3に示すように有効発熱部の全長が酸化によって黒色化したものの、破損には至らなかった。ただし、被覆管のペレット界面位置に相当する部分数個所では、Fig. 3.3(b)に見られるように、極めて浅い円環状のくびれ(waisting)が生じていた。プロファイルメータで測定した結果、このくびれの深さは0.05～0.1 mm程度であった(Fig. 3.4)。

照射実験時に測定した計装類の記録の主なものを、Fig. 3.5に破線で示す。試験燃料の被覆管表面温度は、パルス出力の発生後約1秒で最高値約1600°Cに達し、その後約1秒間1000°C以上の高温を保った後急降下(クエンチ)している。水温は、パルス出力発生後徐々に上昇し、10秒程度で最高値約55°Cに達した(温度増分約30°C)。またカプセル内圧力については、実験No. 700-3の場合と類似して比較的ゆるやかな圧力上昇が生じ、約10秒後には最高値約0.6 MPa(ゲージ圧)に達した。

実験後プロファイル・メータを用いて内部カプセルの寸法を測定した結果では、この実験の場合にもカプセルの永久変形は全く認められなかった。

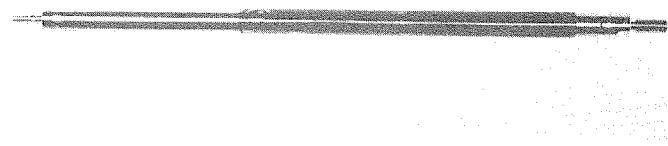
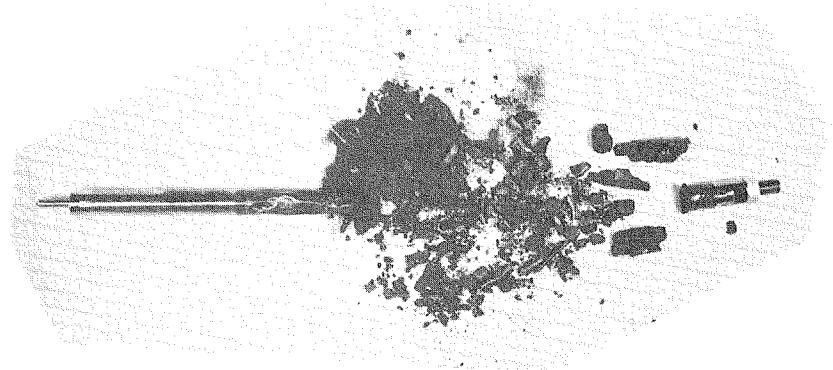
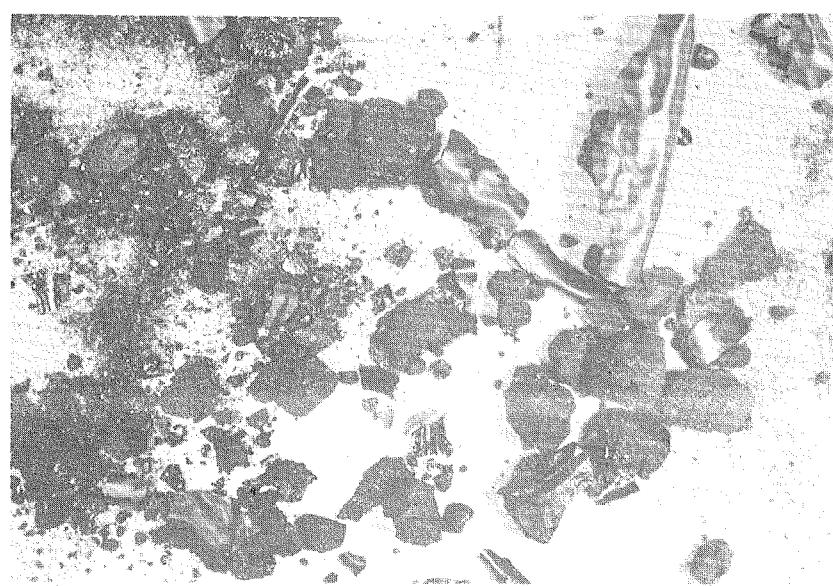


Fig. 3.1 Fuel Rod after Irradiation in Test 700-2 at 160 cal/g.UO₂

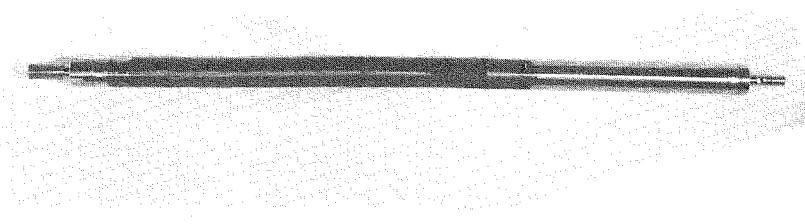


(a) Overall view



(b) Fuel fragments

Fig. 3.2 Fuel Rod after Irradiation in Test 700-3 at 340 cal/g.UO₂



(a) Overall view



(b) Active region, showing slight
cladding collapses (waisting)

Fig. 3.3 Fuel Rod after Irradiation in Test 700-4 at 253 cal/g.UO₂

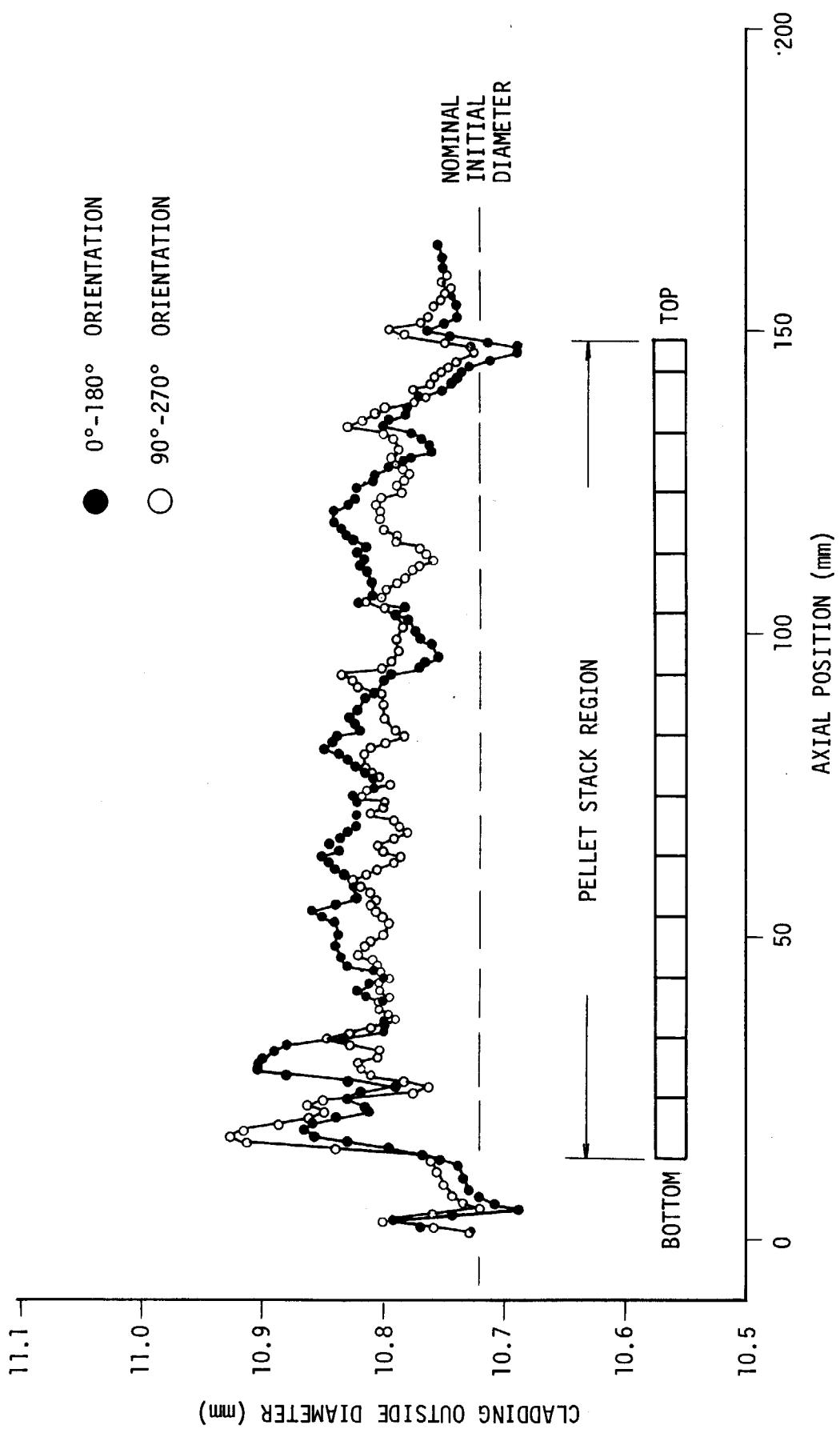


Fig. 3.4 Measured Cladding Outside Diameters along Axial Direction (Test 700-4).

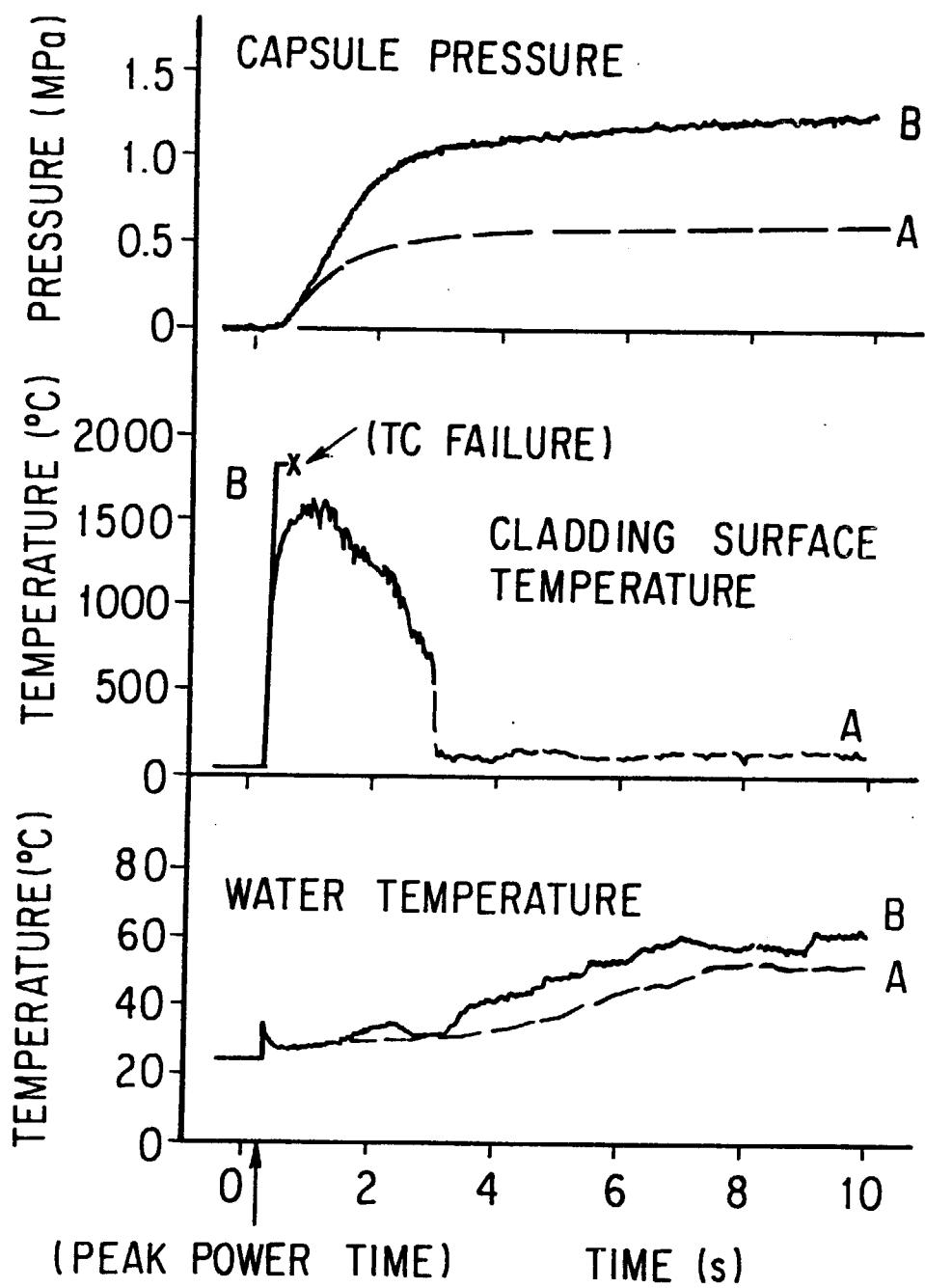


Fig. 3.5 Capsule Pressure, Cladding Surface Temperature, and Water Temperature Measured during Tests (A) 700-4 and (B) 700-3

4. 検討および考察

4.1 実験物の核的特性

大気圧水力カプセルのみを収納容器とする通常の実験物の反応度価値は、試験燃料なしで約-2.20 \$であるが、この内部にさらに小型のカプセルを組み込んで二重カプセル構造としても、反応度価値はほとんど変らず-2.25 \$であることが、今回の実験結果から確認できた。なお、20%濃縮の UO_2 試験燃料をカプセル内に挿入した場合には、反応度価値は 0.15 ~ 0.20 \$ プラス側となる。これらは、いずれも実験物に関する反応度価値上の制限値（負の最大値 3.50 \$）を下まわる値であって問題はない。なお、核計算によって予測した二重カプセルの反応度価値は -2.0 \$（試験燃料あり）であり、上記の実測値と極めて良い一致を示した。

二重カプセル内における 20% 濃縮 UO_2 燃料の発熱量の較正值は、炉心の放出エネルギー 100 MW·s 当り 464 cal/g· UO_2 であった。これは核計算によって予測した発熱量 (422 cal/g· UO_2 / 100 MW·s) より 11%ほど大きい値である。一方、今後の実験に予定している 6 w/o PuO_2 -94 w/o U (天然ウラン) O₂ の仕様の混合酸化物燃料に対する発熱量の予測値は約 320 cal/g·fuel / 100 MW·s である。したがって、上記発熱量の計算値と実測値との比較から、今後の実験の目標としている最大発熱量 300 cal/g·fuel は十分達成できるという見通しを得ることができた。

4.2 内部カプセルの設計の妥当性

予備実験に用いた内部カプセルは、試験燃料の最大発熱量を 320 cal/g·fuel と想定し、最大 9 MPaまでの静圧に耐えるように設計してある。今回の予備実験では、これを上まわる 340 cal/g· UO_2 までの発熱量を与えて試験燃料を破損させたが、カプセル内では水撃力や圧力波といった衝撃力の発生は無く、代って約 1.3 MPa 程度までの比較的ゆるやかな圧力上昇があったものの、これとても上記設計圧力に比べて十分小さく、内部カプセルの健全性を損う恐れは全く無かった。実際、照射実験前後にプロファイル・メータを用いて測定した内部カプセルの寸法の比較からも、カプセルの永久歪みは全く認められず、その健全性が確認できた。また、内部カプセルのヘリウム漏洩試験の結果、カプセルの気密性に関しても構造上問題ないことを確認することができた。前述した実験物の核的特性も含めて判断すると、今回設計・試作した内部カプセルは、今後の混合酸化物燃料実験用のカプセルとして、十分な機能と健全性を有すると結論できる。

4.3 ジルカロイ一水反応による発生水素圧

実験 No. 700-4 の結果から分るように、試験燃料の照射と同時に、カプセル内には比較的ゆるやかな圧力の上昇が生じ、この圧力は一定値に達した後長時間保持されることが明らかとなった。実験 No. 700-3 および 700-4において、前者の場合に燃料は破損し、後者の場合には燃料は破

損していないことから、このカプセル内圧力の上昇は、燃料の破損の有無とは関係なく生じ、したがって、燃料内部からの FP ガスあるいは気体性不純物の放出等といったものとも直接的に関係ないことは明らかである。

この圧力上昇の原因は、燃料被覆材（ジルカロイ）と冷却水との反応の結果生ずる水素にあると考えられる。ジルコニウムは、高温になるほど水によって酸化されやすく、被覆管表面部には ZrO_2 層が形成される。さらに ZrO_2 層の内部にも酸素の拡散は進み、酸素によって安定化された α -ジルカロイ層（以後これを $\alpha-Zry$ と表す）の形成も起こる。 ZrO_2 および $\alpha-Zry$ を形成する酸化反応は、一般化して次の形に表すことができる。



この反応式から分るように、 x モルの酸素原子がジルカロイ被覆材に吸収されると、 x モルの水素分子（水素ガス）が発生し、発生した水素ガスはカプセル内上部空間にたまって、カプセル内圧力を高めることになる。

実験No. 700-3 および 700-4において生じたカプセル内圧力の増加は、それぞれ 1.3 MPa および 0.6 MPa であり、この圧力増分を水素ガスの発生によるものと仮定すると、発生水素量はそれぞれ 0.040 ~ 0.048 モルおよび 0.020 ~ 0.024 モルとなる（各数値の幅は、水素ガスの冷却水に溶解する効果を考慮したものであり、下限値は水素ガスが全く溶解しない場合、上限値は十分に溶解する場合の発生水素量である）。一方、照射実験によって分断せず健全なままであった実験 No. 700-4 の燃料を軸方向 5 個所にわたって切断し、顕微鏡観察によって被覆材中に形成された酸化層を測定した結果、被覆管表面部には平均的に $40 \mu m$ の ZrO_2 層および $35 \mu m$ の $\alpha-Zry$ 層が形成されていた。この酸化層の厚さに基いて評価した被覆材中の吸収酸素量は 0.020 モルとなり、上記圧力測定値に基いて算出した発生水素量のモル数と極めて良く一致する。（以上に示した諸計算の詳細については付録に示す。）

以上のことから、実験No. 700-4（燃料は非破損）において観測された内部カプセルの圧力上昇は、ジルカロイ-水反応によって生じた水素ガスによるものであると結論することができる。また、燃料が小片化した実験No. 700-3 の場合には、ジルカロイ-水反応による水素ガスの発生に加えて、まだ定量的には明らかにできないが UO_2 -水反応による水素ガスの発生もカプセルの内圧上昇に寄与した可能性が考えられる。なお、本予備実験を通して、カプセル内にジルカロイ-水反応による圧力増加があっても、燃料の破損挙動に影響はなく、破損しきい値が変化しないことを確認することができた。

5. 結 論

混合酸化物燃料実験用に開発した二重カプセルを用い、 UO_2 燃料を試験燃料として予備実験を行った結果以下の知見を得た。

- (1) 二重カプセルの反応度価値は、通常 NSRR 実験で使用している一重の大気圧水カプセルの反応度価値と大差なく約 -2.3 \$ であり、カプセル内に試験燃料を挿入した場合には負の反応度価値の絶対値はさらに 0.1 ~ 0.2 \$ 程度小さくなることを確認した。これらは、実験物の反応度価値に関する制限値（負の最大値 3.5 \$）を下まわる値であって問題はない。
- (2) 二重カプセルにおける UO_2 燃料発熱量の較正の結果、核計算によって予測した発熱量を幾分上まわる値が得られ、今後の実験に予定している混合酸化物燃料について予測した最大発熱量 300 cal/g・fuel (最大実験目標値) を達成できる見通しが得られた。同時に、今回の予備実験によって、二重カプセルにおける燃料発熱量の詳細計算を進めるための基準となるデータを得ることができた。
- (3) 予備実験においては、内部カプセルの設計上想定した最大発熱量を上まわる 340 cal/g・ UO_2 までの発熱量を試験燃料に与えたが、燃料破損に起因する衝撃力（圧力波ならびに水撃力）の発生は予想通り全く無く、また実験前後にカプセルの詳細な寸法測定を行った結果からも永久歪みは全く認められず、最大 9 MPa までの圧力に耐えるように設計した現カプセルは十分な強度上の安全裕度を有することが確認できた。
- (4) 約 100 cm² の上部空間を有する内部カプセルにおいては、燃料照射時に最大 13 MPa 程度までの比較的ゆるやかな圧力上昇の生ずることを観測した。この圧力上昇は、燃料の破損の有無とは無関係に生ずるものであり、燃料被覆材であるジルカロイと冷却水との反応によって発生する水素に起因することが判明した。ただし、この程度の圧力上昇は、上記内部カプセルの設計圧力に比べて十分小さく、カプセルの健全性を損う恐れは全くなく、かつ、燃料の破損挙動ならびに破損しきい値にもなんら影響を及ぼさないことが実験的に確認できた。なお、今回の予備実験の結果を反映し、今後の内部カプセルの設計に当っては上部空間体積を数倍大きなものとし、圧力上昇を無視しえる程度に小さくする方針である。

謝 辞

本実験は動燃事業団との共同研究の一環として行ったものであり、共同研究の責任者である原研安全工学部次長石川迪夫氏（当時反応度安全研究室長）および動燃プルトニウム燃料部設計課長湯本鎧三氏には総合的な御指導を賜った。反応度安全研究室長星鳶雄氏には、本稿をまとめるに当って有益なる御指導を戴いた。また、実験の実施に当っては NSRR 管理室の皆様の御協力を戴いた。ここに、上記の各位に対し、深く感謝致します。

付録 ジルカロイ—水反応による発生水素圧の検討

実験No. 700-3 および 700-4において、燃料の破損の有無とは無関係に、燃料収納容器であるカプセル（内部カプセル）中で最高値 1.3 MPa および 0.6 MPa（いずれもゲージ圧）に達する比較的ゆるやかな圧力上昇がそれぞれ観測された。この圧力上昇は主として燃料被覆材であるジルカロイと水との反応によって生ずる水素ガスが、カプセル内上部空間に蓄積されたために起きたものと考えられるので、この仮定の妥当性を検討するため、照射後燃料棒の金相観察およびジルカロイの吸収酸素量、発生水素量、水素分圧等の計算を行った。以下にこれらの検討結果を示す。

A-1 実験No. 700-4 に関する検討

(1) カプセル内上部空間空気圧の上昇

ステンレス鋼製内部カプセル（内容積 950 cm³）の内部には常温常圧の純水 850 cm³ および試験燃料 1 本を支持具とともにに入れ（カプセル内上部空間体積 100 cm³），NSRR のパルス出力に供した。この結果、試験燃料は 253 cal/g・UO₂ の熱負荷量（燃料総発熱量約 24000 cal）を受け、冷却水温度およびカプセル温度はそれぞれ 30°C および 25°C 増加した。これらの温度増加に基く水およびカプセルの体積増加率は、それぞれ 1.010 倍および 1.001 倍（ステンレス鋼の線膨張係数 = 16.88×10^{-6} mm/mm・°C）であり、冷却水の体積およびカプセルの内容積は、それぞれ 859 cm³ および 951 cm³ となる。したがって、上部空間体積は初期値 100 cm³ から 92 cm³ に減少する。この体積減少によって、空気の圧力は、初期圧 0.10 MPa から 0.12 MPa へと上昇する（断熱変化および空気温度が冷却水温度と一致して変化すると仮定した場合のいずれにおいても、圧力の上昇値は有効数字の範囲内で一致）。すなわち、冷却水の熱膨張によって圧縮された上部空間内空気の圧力増分は 0.02 MPa となる。

(2) ジルカロイ被覆材の吸収酸素量

試験燃料棒の発熱条件の場所による相違や冷却水による冷却条件の違い等により、被覆管表面に形成される酸化層（ZrO₂ 層および α -Zry 層^{*1)} の厚さは、燃料棒の軸方向や円周方向においてかなりの相違が認められている。⁵⁾ また、部分的には酸化膜が剥離していることもあるため、部分的に測定している過渡温度履歴や、燃料棒の重量変化から直接に被覆管の酸化量を求ることは不可能である。そこで、照射後の燃料棒（非破損）を軸方向の 5 個所で切断して試料を作り、顕微鏡によって被覆管表面に形成された酸化層の厚さを測定した。測定は、円周方向において 5 ~ 36 点実施した。Fig. A-1 に、円周方向において酸化層厚さが異なっている例を示す。また、Fig. A-2 に軸方向の酸化層厚さを測定した結果を示す。なお、軸方向の各点における測定結果は、円周方向に何点か測定した結果の平均値である。

この結果求めた ZrO₂ 層および α -Zry 層の全体的な平均厚さは、それぞれ 40 μm および 35 μm であった。ZrO₂ および α -Zry 層中の酸素濃度は、R. E. Pawel によれば次のように表現

*1) 酸素によって安定化された α 相ジルカロイを、簡便のため α -Zry と表すこととする。

される。⁶⁾

$$C_{o/w} = 1.511$$

$$C_{o/\alpha} = 1.517 - 7.5 \times 10^{-5} T$$

$$C_{\alpha/o} = 0.4537$$

$$C_{\alpha/\beta} = \left\{ -0.2263 + \left[\frac{T}{63.385} - 16.877 \right]^{1/2} \right\} \times 0.0649$$

ここに

$C_{o/w}$: ZrO_2 層外表面の酸素濃度 (g/cm^3)

$C_{o/\alpha}$: ZrO_2 層と α -Zry 層の境界における ZrO_2 層側の酸素濃度 (g/cm^3)

$C_{\alpha/o}$: ZrO_2 層と α -Zry 層の境界における α -Zry 層側の酸素濃度 (g/cm^3)

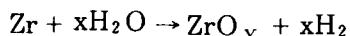
$C_{\alpha/\beta}$: α -Zry 層と Prior- β 層の境界における酸素濃度 (g/cm^3)

T : 被覆材温度 (K)

実測値に基き被覆材温度を 1850 K として上式から平均酸素濃度を求ると、 ZrO_2 層中では $1.45 g/cm^3$ 、 α -Zry 層中では $0.333 g/cm^3$ となる。以上の諸値より吸収酸素量を求ると、 ZrO_2 層中では $0.262 g$ 、 α -Zry 層中では $0.052 g$ となり、これらの合計は $0.314 g$ となる。これは酸素原子量にして 0.0196 モルに相当する。

(3) 水素の発生量およびカプセル内圧

ZrO_2 および α -Zry の形成を含めたジルカロイの酸化反応式は、一般的に次の形に表わされる。



すなわち、被覆が水によって酸化され x モルの酸素原子を吸収すると、 x モルの水素分子が発生する。したがって前項で求めた被覆材の吸収酸素量に基けば、実験No. 700-4において発生した水素ガスの量は 0.0196 モルとなる。 $92 cm^3$ の体積の上部空間にこの水素ガスがたまると、その圧力は $0.58 MPa$ となる。したがって、カプセル内圧の上昇値は、空気圧の上昇分および水素ガスの圧力の合計の $0.60 MPa$ となる。なお、これは水素ガスが水に全く溶解しない場合の圧力値であるが、水素ガスが水に十分溶解すると仮定すれば、水素ガスの圧力は約 15 % 程度減少する。

$40^\circ C$ 以上の水に対する水素の吸収係数 (Bunsen の吸収係数) は 0.016 であり、 $860 cm^3$ の水に水素ガスが十分に溶解して分圧 P_H に達するものとして水素の溶解量および水素分圧を求めるとき、これらはそれぞれ 0.003 モルおよび $0.50 MPa$ となる。すなわち、この場合のカプセル内圧上昇値は、空気圧の上昇分を加えて、 $0.52 MPa$ となる。

以上より、発生した水素ガスの水に対する溶解の程度に応じて、カプセル内圧の上昇値は $0.52 \sim 0.60 MPa$ の範囲の値をとることになる。これは実測したカプセル内圧の上昇値約 $0.6 MPa$ と極めて良く一致する。したがって、実験No. 700-3において観測したカプセルの内圧上昇は、主

としてジルカロイ一水反応によって発生した水素ガスによるものであると説明できる。

A-2 実験No. 700-3に関する検討

実験No. 700-3においては、試験燃料に 340 cal/g・UO₂ の発熱量を与え、この結果燃料は小片状に分断した。このため、燃料被覆材の酸化量を測定することができず、水素の発生量を直接的に求めることができない。この実験において測定した冷却水およびカプセルの温度増加は、それぞれ 40°C および 30°C であり、またカプセル内圧の上昇値は 1.3 MPa であった。前章の場合と同様に、水の熱膨張によって空気が圧縮されることによる圧力上昇を求めるとき 0.02 MPa となり、したがって、残り 1.28 MPa の圧力上昇が水素の発生に起因したものと考えられる。この圧力値に基いて、前章と同様の方法により水素の発生量を逆算すると、その値は 0.040 ~ 0.048 モルとなる（低い方の数値は、水素ガスが水に全く溶解しないとした場合の値であり、高い方の数値は水に十分溶解するとした場合の値である）。この値は、前記実験No. 700-4の場合の発生水素量の約 2 倍に相当する。しかし、このことから実験No. 700-3におけるジルカロイ一水反応が実験No. 700-4の場合の 2 倍に相当するだけあったと結論することはできない。実験No. 700-3においては燃料が小片化し、比較的多くの UO₂ ペレットが冷却水と直接接触した。このため、定量的には明らかにできないが、UO₂ が水を還元して水素ガスを発生させ、ジルカロイ一水反応に加えて、カプセル内圧の上昇に寄与した可能性が考えられる。

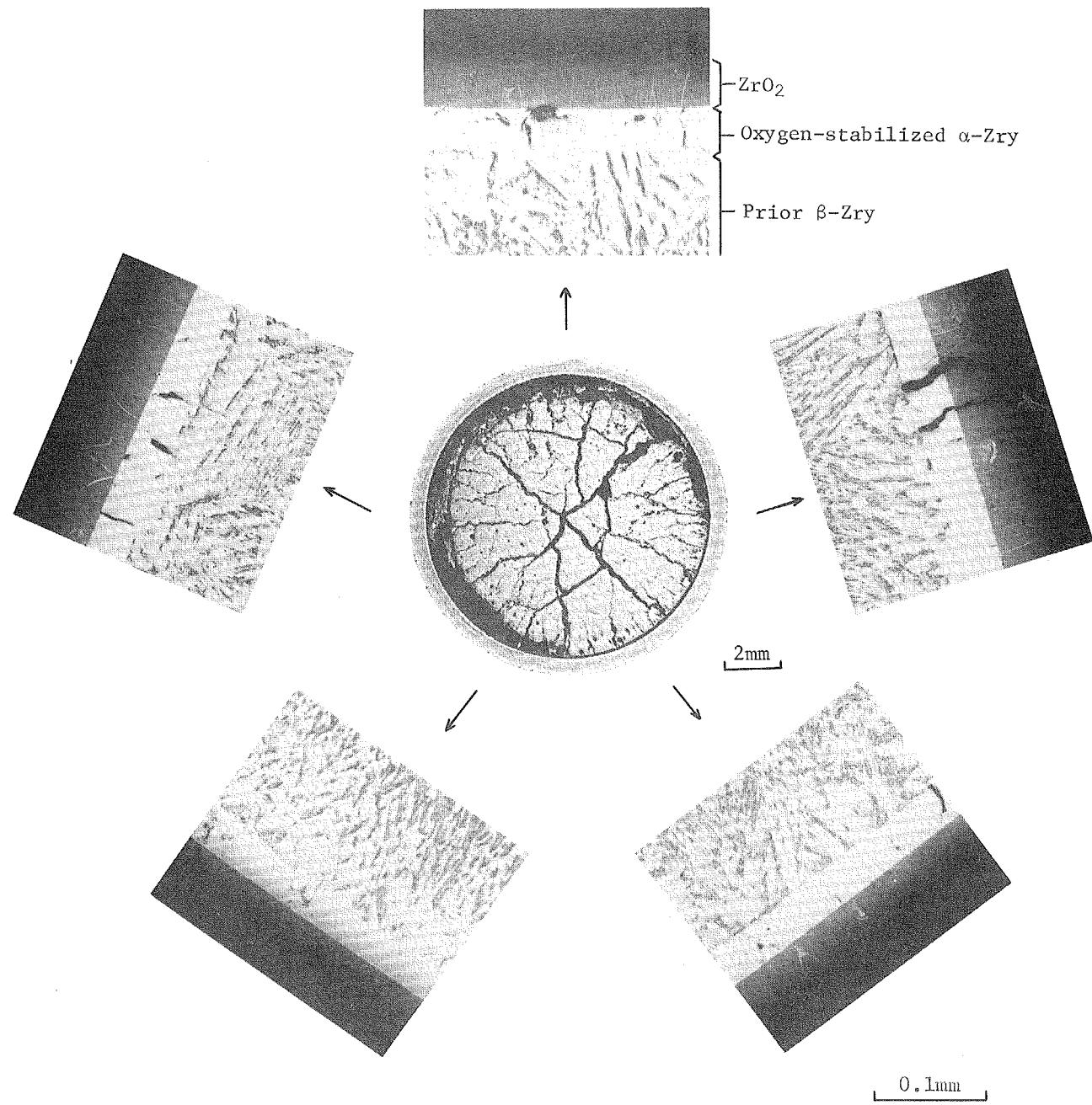


Fig. A-1 Oxide Layer Appearances at Various Orientations.
(Sample No.1)

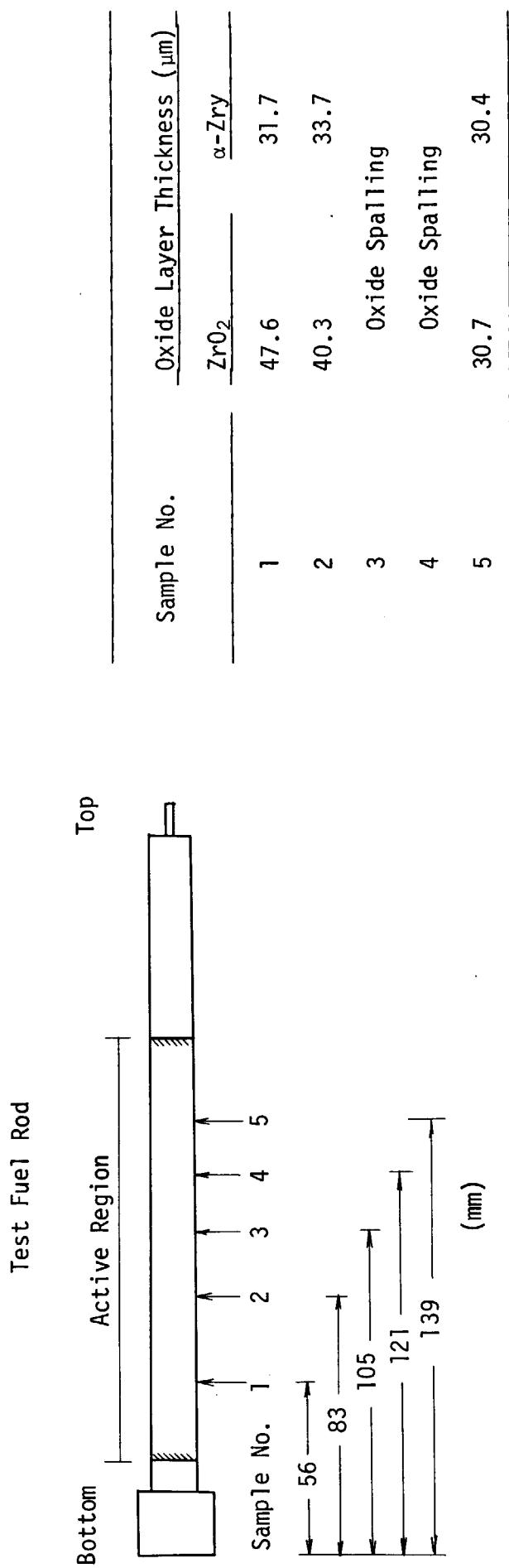


Fig. A-2 Locations of Specimens for Microscopic Observations and Measured Oxide Layer Thicknesses.

参 考 文 献

- 1) 斎藤伸三, 稲辺輝雄, 山下義昭, 大友正一, “NSRR による混合酸化物燃料の破損挙動に関する研究(1)”, JAERI-M 8865 (1980).
- 2) Ishikawa, M., Inabe, T.; “The Nuclear Safety Research Reactor in Japan”, Advances in Nuclear Science and Technology, Vol. 11, Plenum Publishing Co., New York (1979).
- 3) 山崎 利, 菊池 隆, 豊川俊次, 宇野久男, 谷内茂康, 菊池孝行, “NSRR 大気圧カプセル及び実験計装の現状”, JAERI-M 7105 (1977).
- 4) 大西信秋, 丹沢貞光, 北野照明, “反応度事故条件下における燃料破損挙動に及ぼす発熱分布の影響”, JAERI-M 7990 (1978).
- 5) 柳原 敏, 塩沢周策, 斎藤伸三, “NSRR 実験におけるジルカロイ被覆管の酸化膜厚さに基づく円周方向温度分布の評価”, JAERI-M 8200 (1979).
- 6) Pawel, R. E. ; “Zirconium Metal-Water Oxidation Kinetics III : Oxygen Diffusion in Oxide and Alpha Zircaloy Phases”, ORNL/NUREG-5 (1976).