

JAERI-M
92-177

ヨウ素を添加した未照射燃料による
出力急昇試験

1992年11月

内田 正明・中村 仁一・石井 忠彦

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、お申し込みください。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）で複写による実費領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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1992

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 ニッセイエプロ株式会社

ヨウ素を添加した未照射燃料による出力急昇試験

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

内田 正明・中村 仁一・石井 忠彦⁺

(1992年10月22日受理)

主にBWR燃料で問題にされてきた出力急昇破損について、炉外でのヨウ素応力腐食実験とベース照射を伴う出力急昇試験の接点を調べるため、未照射燃料にヨウ素を富化した状態で出力急昇試験を行った。ペレット-被覆ギャップ幅の調整などにより、応力的には実際の燃料破損が起こる条件よりやや低めの条件を設定した。ヨウ素雰囲気は、 UO_{2+x} 、 MoO_3 とCsIの粉末の混合によって制御した。3本の燃料棒を用い、次第に条件をつよめて最後はヨウ素分圧を1気圧程度まで高めたが破損は起こらなかった。この結果および過去の炉内応力腐食実験結果の考察から、炉外応力腐食実験は必ずしも実際の条件を模擬したものとはいえず、実際の出力急昇破損においてはヨウ素の寄与は小さいものと考えられる。

Power Ramp Testing of Fresh Fuel Rods
with Added Iodine

Masaaki UCHIDA, Jin-ichi NAKAMURA and Tadahiko ISHII⁺

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

(Received October 22, 1992)

In order to study the relationship between the power ramp failure, which has been mainly an issue of BWR fuel integrity, and the out-pile iodine stress corrosion (SCC) experiments, a series of power ramp experiments was performed using fresh fuel rods enriched with iodine. By adopting narrow fuel-clad gap and other measures, cladding stress condition was set to a level somewhat lower than the prototypic condition in irradiated fuels. Iodine atmosphere was adjusted by mixing UO_{2+x} or M_2O_3 with CsI powder. Three rods were ramp-tested one by one, in which conditions leading to SCC failure were gradually strengthened. No fuel failure occurred, however, even under iodine partial pressure as high as about 1 atm.. From this result and a survey of past in-pile stress corrosion experiments, it was concluded that contribution of iodine to power ramp failure is actually small, vast number of iodine SCC experiments not simulating the actual fuel conditions.

Keywords: Fuel, Failure, Zircaloy, Power Ramp, Irradiation, Iodine, Cesium Iodide, Stress Corrosion

⁺ Department of JMTR Project, Oarai Research Establishment

目 次

1. 序 論	1
2. 実験方法	3
3. 結果と考察	5
3.1 ヨウ素分圧の推定	6
3.2 被覆管の応力の推定	7
3.3 出力急昇破損と応力腐食に関する一般的考察	9
4. 結 論	15
謝 辞	15
文 献	16
付録 ヨウ素分圧の計算方法	37

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	3
3. Results and Discussion	5
3.1 Estimation of Iodine Partial Pressure	6
3.2 Estimation of Cladding Stress	7
3.3 General Discussion on Power Ramp Failure and Stress Corrosion	9
4. Conclusion	15
Acknowledgement	15
References	16
Appendix Calculation Method of Iodine Partial Pressure	37

1. 序論

出力急昇による軽水炉燃料の破損が知られて以来、F Pハロゲン元素（ヨウ素によって代表される）によるジルカロイの応力腐食（Stress Corrosion Cracking, SCC）という説明が一貫して主流を占め、破損対策もこの説明の上になっで行われてきた。工学的には出力急昇による破損はすでに解決済みであるが、高燃焼度化にともなって予想される設計や運転条件の変化の中で、この問題が別の形で取り上げられないとも限らない。そこで問題点はできるだけ明らかにしておくことが望ましい。同じような観点から、Coxが最近出力急昇、SCCに関する膨大な報告をレビューしている⁽¹⁾。しかしこのレビューは大部分がSCC機構を前提とした議論であり、出力急昇破損がSCCによるという根拠についてはあまり厳密な論証を行っていない。

ヨウ素によるSCCという説明が重きをなす理由は、主として次のようなものである。

- 1) 出力急昇で破損したジルカロイ被覆管の周方向破断歪はきわめて小さい（脆性破壊）。一方、被覆管のみの引張試験を行った場合、中性子照射量が大きくてもかなり延性が大きく、ペレットの熱膨張程度の変形量では、破断しない。
- 2) しかしヨウ素雰囲気では応力を加えると、未照射被覆管でも脆性破壊が起こり、破面の組織も出力急昇破損の場合と似ている。

炉外でのいわゆるヨウ素SCC実験は膨大な数にのぼるが、宇根が要領よくまとめている⁽²⁾。それによればSCCは約250 MPa以上の応力で起こる。ヨウ素の量はジルカロイの表面積あたりの量で記述された場合には、約0.05 mg/cm²以上、圧力で記述される場合には約10⁻⁴気圧以上でSCCが起こっている。ただしこれらのしきい値はかなりあいまいである。実験報告の多くは「SCCが起こった」とする判定基準を明らかにしていないか、または基準があっても統一的でないからである。

一般に、自然におこる破損現象を人工的な手段で模擬する事はむずかしい問題を伴う。ヨウ素の存在がジルカロイ被覆管の脆性破壊を促進することはまちがいない。また炉外実験の条件をそのまま炉内に持ち込んだとすれば、破損が起こるであろう。しかしそれでは出力急昇破損におけるヨウ素の重要性を証明したことにはならない。

燃料を低出力で10、000-20、000 MWd/tまで照射すると、様々な変化が起こる。ペレット被覆相互作用（PCI）の観点から重要な変化は、まずUO₂ペレットが硬化することで、これは被覆管にかかる応力を長時間保持する効果をもつ。また被覆管が照射硬化するが、これは応力の絶対値を増大させ、延性を低下させる効果をもつ。これら

に加えてFP, とくにハロゲン元素の蓄積が破断にどの程度の寄与をするかが問題なのである。もしこれらの条件をすべて実際通り模擬した実験が可能であるとしたら、それ以上にヨウ素を富化した実験には意味がない。

実際の燃料内で、単体ヨウ素の分圧がどれだけ高くなっているかは常に問題にされてきた。FP元素の収率から見ると、ハロゲン元素の量にくらべてアルカリ金属元素の量のはるかに大きい(1年間の照射で比率は約10倍以上になる)。またヨウ素(今後ハロゲンはヨウ素で、アルカリ金属はセシウムで代表させる)は、セシウムに対して大きな親和力を持ち、ヨウ化セシウム(CsI)の化学的安定性は大きい。ヨウ素が被覆管の応力腐食、クラック形成に寄与するためにはヨウ素は何らかの形で化合物から解離し、被覆管の元素と反応しなければならない。

Cubicciottiらは、CsIのガンマ線による分解を測定し、G値を吸収エネルギー100 eVあたり約 10^{-3} 原子と見積もった⁽³⁾。彼らはさらに進んで、軽水炉燃料棒の中に銀と銅の板をマーカーとして入れて照射し、単体ヨウ素がこれらのマーカーと反応しているかどうかを調べた。結果は否定的で、ヨウ素分圧は 10^{-5} 気圧以上ではありえないと結論された⁽⁴⁾。これは炉外SCC実験で設定されているヨウ素圧レベルよりかなり低い。

一方、Hofmannらは、燃料中の酸素ポテンシャルが高いとCsIが分解して、セシウムの錯酸化物と単体ヨウ素が生成することを考慮し、CsIと様々の金属酸化物の共存下でジルカロイ被覆管のバースト試験をおこない、破断歪が低下することを示した⁽⁵⁾。しかし彼らの実験は、SCCが起こったことの判断基準の問題の他、温度が700°C付近と高すぎることで、また実際の燃料で酸素ポテンシャルがそれほど高くなるかといった問題を含んでいる。

実際の燃料に比較的近い条件で炉内SCC実験を行った例として、Daviesらの実験がある⁽⁶⁾。彼らは特殊な被覆管に中空UO₂ペレットを装荷し、中心部に最初ヨウ化パラジウム粉末を、次いで高燃焼度まで照射したUO₂を粉碎した粉末を添加し、いずれも全体としては未照射燃料の状態で出力急昇試験を行い、破損させるのに成功した。これはライナー被覆管採用のきっかけとなった有名な実験であるが、ヨウ素SCC説の根拠となるかといういろいろな問題がある。

Daviesらはまた、照射した被覆管に未照射のUO₂ペレットを装荷して出力急昇を行ったが、破損は起こらなかった。おなじような実験はMacDonald等によっても行われている⁽⁷⁾。

またCoxらは、応力をかけた被覆管試料をCsI粉末に埋め込んだ状態で照射し、SCC破損が起こったとしている⁽⁸⁾。これらについても実験結果の解釈上の問題がある。これらについては、本実験の結果とともに第3章で詳しく検討する。

いずれにしても、炉外のS C C実験結果だけでは、出力急昇破損の機構に関するひとつの示唆が得られるのみであって、S C C機構によるという直接的な根拠にはなり難いことは明かである。本実験はDaviesらの実験と同様に、未照射燃料にヨウ素を富化した状態で出力急昇試験を行い、実際の出力急昇破損と炉外S C C実験との接点を調べようとするものである。

本実験で重視したひとつの問題は照射前の被覆管の延性である。BWR燃料では強度が小さく延性の大きい再結晶焼き鈍しジルカロイ-2被覆管を用い、PWR燃料では強度が大きく延性のやや小さい歪取り焼き鈍しジルカロイ-4被覆管を用いている。炉外応力腐食破損の起こりやすさは、ジルカロイ-2と4のちがいよりも強度・延性と大きな相関をもち、降伏応力が大きい被覆管ほど起こりやすくなっている。ところが出力急昇破損は反対に、特に工夫をしない限りBWR燃料のほうがPWR燃料より起こりやすい。これはBWR燃料とPWR燃料に関する並列的な出力急昇実験であるインターランプ計画⁽⁹⁾とオーバーランプ計画⁽¹⁰⁾の結果を比較すれば明かであり、じっさいPWRではこの破損モードはあまり問題にされてこなかった。

再結晶材でも、照射によって硬化が起こり、強度や伸びは未照射の歪取り焼き鈍し材と同程度になる。しかし模擬実験としてヨウ素圧を高める代償には、再結晶材において照射硬化によってもたらされる脆化より、弱い条件で破損を起こさなければ意味がないと考えられる。そこで本実験では、非ライナーのBWR用再結晶ジルカロイ-2被覆管を用いた。またHofmannらが主張するように、燃料内の酸素ポテンシャルを高めることによりヨウ素を発生させることにした。酸化物との平衡によってヨウ素を発生させると分圧が制御しやすいことに加えて、被覆管の内面酸化とヨウ素の作用の競合する効果を調べることになるからである。

2. 実験方法

試験燃料棒は当初4本製作する予定であった。これらは、機械的相互作用(P C I)を新燃料としては強めになるよう設計しておき、ヨウ素圧は先行する試験結果をみながら高めまたは低めに変えてゆく方針を取ったものである。結果としては1本は不要となり、3本だけ照射が行われた。これら3本の設計諸元を第1表に示す。これらの燃料棒の番号はキャプセル番号にあわせて38A、39A、40Aとする。また燃料棒の全体概念図を第1図に示す。

いずれにしても、炉外の S C C 実験結果だけでは、出力急昇破損の機構に関するひとつの示唆が得られるのみであって、S C C 機構によるという直接的な根拠にはなり難いことは明かである。本実験は Davies らの実験と同様に、未照射燃料にヨウ素を富化した状態で出力急昇試験を行い、実際の出力急昇破損と炉外 S C C 実験との接点を調べようとするものである。

本実験で重視したひとつの問題は照射前の被覆管の延性である。B W R 燃料では強度が小さく延性の大きい再結晶焼き鈍しジルカロイ-2 被覆管を用い、P W R 燃料では強度が大きく延性のやや小さい歪取り焼き鈍しジルカロイ-4 被覆管を用いている。炉外応力腐食破損の起こりやすさは、ジルカロイ-2 と 4 のちがいよりも強度・延性と大きな相関をもち、降伏応力が大きい被覆管ほど起こりやすくなっている。ところが出力急昇破損は反対に、特に工夫をしない限り B W R 燃料のほうが P W R 燃料より起こりやすい。これは B W R 燃料と P W R 燃料に関する並列的な出力急昇実験であるインターランプ計画⁽⁹⁾とオーバーランプ計画⁽¹⁰⁾の結果を比較すれば明かであり、じっさい P W R ではこの破損モードはあまり問題にされてこなかった。

再結晶材でも、照射によって硬化が起こり、強度や伸びは未照射の歪取り焼き鈍し材と同程度になる。しかし模擬実験としてヨウ素圧を高める代償には、再結晶材において照射硬化によってもたらされる脆化より、弱い条件で破損を起こさなければ意味がないと考えられる。そこで本実験では、非ライナーの B W R 用再結晶ジルカロイ-2 被覆管を用いた。また Hofmann らが主張するように、燃料内の酸素ポテンシャルを高めることによりヨウ素を発生させることにした。酸化物との平衡によってヨウ素を発生させると分圧が制御しやすいことに加えて、被覆管の内面酸化とヨウ素の作用の競合する効果を調べることになるからである。

2. 実験方法

試験燃料棒は当初 4 本製作する予定であった。これらは、機械的相互作用 (P C I) を新燃料としては強めになるよう設計しておき、ヨウ素圧は先行する試験結果をみながら高めまたは低めに変えてゆく方針を取ったものである。結果としては 1 本は不要となり、3 本だけ照射が行われた。これら 3 本の設計諸元を第 1 表に示す。これらの燃料棒の番号はキャプセル番号にあわせて 3 8 A、3 9 A、4 0 A とする。また燃料棒の全体概念図を第 1 図に示す。

燃料棒の設計はBWR 8 x 8型を基本としているが、スタック全長約400 mmの短尺燃料棒である。UO₂ペレットのO/U比は通常より高めの2.021とした。(2.00のペレットも用意したがこれが不要になったものである。)PCIを強めるために、ペレットと被覆管のギャップ幅は35 μmまで狭めた。またチャンファーをなくした。ペレットの顕微鏡組織を第2図に示す。

被覆管の特性値を第2表に示す。被覆管の材質、熱処理は通常のBWR燃料に使われるもの(非ライナー管)で、内外面のオートクレーブ処理を行った。さらに第3図に示すような特殊加工を行った。ひとつは内面のオートクレーブ酸化膜を部分的に除去して金属面を露出させるためにつけた内面傷であり、1母線に沿って剃刀を用いた治具により傷をつけた。第3図(a)はモックアップ試料における傷を示すもので、これから傷の深さは5-20 μmと推定される。さらにPCIによる応力を局所的に強めるために、第3図(b)に示すように同じ母線に沿って外面から平面状減肉を行った。減肉量は最大0.26 mmであり、スタック中央部に対応する100 mmの区間について行った。この区間は第1図に示されており、また第4図の部品外観写真により実際の区間を見ることができる。

これらの特殊な加工や狭いギャップ幅の採用は、実際のプロセスの模擬性という観点からは好ましいものではない。しかし一方、ヨウ素圧以外すべて実際の新燃料と同じ条件にしたのでは何もおこらないことは、最初から予想できることである。10,000 MWd/t程度まで照射された実際の燃料のPCI条件よりゆるい範囲で、PCIを強めることは、模擬性の観点からも許されるであろう。外面減肉も、残りの肉厚が最小でも0.60 mm確保されており、それほど極端な条件ではない。

ヨウ素発生剤は、CsIと酸化物粉末を混合し、中央部の2つのペレットの間に置く形で装填した。まず38Aでは、CsIとUO_{2+x}を20 mgずつ混合した。このUO_{2+x}粉末は、スタックに用いたペレットを粉砕したもので、平衡論的にはCsIだけを添加しても同じことであるが、粉末を用いたのは接触を良くするためである。39Aでは、CsIとMoO₃粉末を20 mgずつ用いた。さらに40Aでは、CsIを100 mgとMoO₃を200 mgずつ用いた。これらは平衡ヨウ素圧を順次高めていったものである。

照射はJMTRの出力急昇試験設備(BOCA/OSF-1)で行った。この装置はいわゆる沸騰キャプセル(BOCA)装置で、燃料棒1本が水冷却回路をもつキャプセル(BOCAキャプセル)に挿入され、出力制御装置をもつ照射位置に装荷される。燃料から発生する熱はまずキャプセルの1次冷却水に伝えられるが、1次冷却水は破損検出のためにわずかな循環量しかなく、熱の大部分は外側のOSF-1冷却水、またさらに外側のJMTR冷却水(50°C)に流れる。従って燃料棒の表面は、ごく出力の低い場合を除い

て核沸騰状態になるが、一方冷却水は強いサブクール状態になる。燃料棒表面温度は冷却水のバルク温度とほとんど関係なく、システム圧力に対応した飽和温度で決定される（約 290°C ）。したがって燃料温度の推定は冷却水温度と関係なく行うことができる。しかしキャプセル構造物の各部の温度を見積もるのは、複雑な熱流のため非常に困難である。

本実験では、第1図に示されているように燃料棒の先端に磁性をもつSUS-403製の伸び計コアを取り付け、キャプセル側に設置された差動トランスとの間の相対的な変位の形で燃料棒の伸びを測定するようにした。しかし支持構造が出力上昇とともに延びるうえ、上記のような複雑な温度分布のため、その量を見積もって補正することも困難である。したがって本実験における燃料棒伸び測定では、一定出力保持中の変化（伸びの緩和）だけが意味のある量である。

キャプセルを収納するOSF-1照射装置には、円筒形のガスギャップが設けられ、この中に中性子吸収の大きい ^3He ガスを圧入することによって出力を抑制し、その状態から急速に排気する事によって出力を急昇させている。BOCA/OSF-1装置における照射条件は第3表にまとめてある。

照射（出力急昇試験）は、38A、39A、やや間隔をおいて40Aの順に行われた。照射中の出力履歴を第5図-第8図に示す。出力急昇の基本パターンは、JMTR定格出力で ^3He 加圧をした状態（約 $300\text{W}/\text{cm}$ ）を出発点とし、 $100\text{W}/\text{cm}$ 間隔のステップ状になるよう急速に（約 $240\text{W}/\text{cm}/\text{min}$ ）出力を上昇させ、各ステップで数時間の一定出力保持を行うものである。本実験では新燃料の状態でヨウ素による破損が起るかどうかを調べることを目的としていたため、38Aと39Aではいわゆるベース照射（出力急昇前の低出力照射）を行わずに出力急昇を行った。しかしこれらの結果、破損が起らなかったので、40Aでは条件を強めるためJMTR1サイクルの大半をベース照射にあて、最後に出力急昇を行った。これは中性子照射により、被覆管の降伏応力を増大させることをねらったものである。出力急昇開始までの高速中性子照射量は約 $2 \times 10^{19}\text{n}/\text{cm}^2$ である。

3. 結果と考察

BOCA/OSF-1照射装置では、燃料の破損は循環冷却水の放射能レベルを監視することで検出している。38A、39A、40Aのいずれの出力急昇試験においても、放射能の放出はみられなかった。ハルデン炉での燃料棒伸び計をつけた出力急昇試験で、燃料破損と同時またはこれに先立って燃料棒長さの急激な減少（収縮）が起こることが知ら

て核沸騰状態になるが、一方冷却水は強いサブクール状態になる。燃料棒表面温度は冷却水のバルク温度とほとんど関係なく、システム圧力に対応した飽和温度で決定される（約 290°C ）。したがって燃料温度の推定は冷却水温度と関係なく行うことができる。しかしキャプセル構造物の各部の温度を見積もるのは、複雑な熱流のため非常に困難である。

本実験では、第1図に示されているように燃料棒の先端に磁性をもつSUS-403製の伸び計コアを取り付け、キャプセル側に設置された差動トランスとの間の相対的な変位の形で燃料棒の伸びを測定するようにした。しかし支持構造が出力上昇とともに延びるうえ、上記のような複雑な温度分布のため、その量を見積もって補正することも困難である。したがって本実験における燃料棒伸び測定では、一定出力保持中の変化（伸びの緩和）だけが意味のある量である。

キャプセルを収納するOSF-1照射装置には、円筒形のガスギャップが設けられ、この中に中性子吸収の大きい ^3He ガスを圧入することによって出力を抑制し、その状態から急速に排気する事によって出力を急昇させている。BOCA/OSF-1装置における照射条件は第3表にまとめてある。

照射（出力急昇試験）は、38A、39A、やや間隔をおいて40Aの順に行われた。照射中の出力履歴を第5図-第8図に示す。出力急昇の基本パターンは、JMTR定格出力で ^3He 加圧をした状態（約 $300\text{W}/\text{cm}$ ）を出発点とし、 $100\text{W}/\text{cm}$ 間隔のステップ状になるよう急速に（約 $240\text{W}/\text{cm}/\text{min}$ ）出力を上昇させ、各ステップで数時間の一定出力保持を行うものである。本実験では新燃料の状態でヨウ素による破損が起るかどうかを調べることを目的としていたため、38Aと39Aではいわゆるベース照射（出力急昇前の低出力照射）を行わずに出力急昇を行った。しかしこれらの結果、破損が起らなかったので、40Aでは条件を強めるためJMTR1サイクルの大半をベース照射にあて、最後に出力急昇を行った。これは中性子照射により、被覆管の降伏応力を増大させることをねらったものである。出力急昇開始までの高速中性子照射量は約 $2 \times 10^{10}\text{n}/\text{cm}^2$ である。

3. 結果と考察

BOCA/OSF-1照射装置では、燃料の破損は循環冷却水の放射能レベルを監視することで検出している。38A、39A、40Aのいずれの出力急昇試験においても、放射能の放出はみられなかった。ハルデン炉での燃料棒伸び計をつけた出力急昇試験で、燃料破損と同時またはこれに先立って燃料棒長さの急激な減少（収縮）が起こることが知ら

れており⁽²⁴⁾、この現象を一種の破損検出器とすることができる。第5図—第8図には、出力履歴と並んで燃料棒伸び計データと計算値がプロットされているが、一定出力保持中にみられるのは連続的な収縮のみで不連続的な収縮はみられない。さらに照射後、ホットケーブルにおいて非破壊試験と金相試験からなる照射後試験が行われているが、現在までに終了した非破壊試験（リーク・ロケーション、渦電流探傷）ではとくに異常は発見されていない。

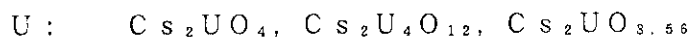
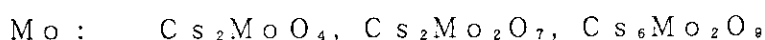
要するに応力腐食破損がおりやすい方向に順次条件を強めていったにもかかわらず、破損は起こらなかったものと考えられる。これはひとつの結果である。模擬実験の結果としては、条件を変えたことによって破損と非破損が別れるのが望ましいが、全く破損が起こらないという結果も場合によっては意味をもち得る。そこでヨウ素圧、被覆管の応力条件などを詳しく検討することにする。

3. 1 ヨウ素分圧

CsI と MoO_3 の混合粉末が約 300°C 以上で反応し、単体ヨウ素を発生することは炉外実験で確認済である。燃料ペレットの温度は、最外周部でも 400°C 以上になるので、単体ヨウ素の発生には問題はない。また燃料棒のプレナム部の温度はかなり低いが、混合粉末からいったん単体ヨウ素が解離すれば、単体ヨウ素の平衡圧は非常に高いので、プレナム部の温度でヨウ素分圧が決定されることはない。ヨウ素分圧を決定するのは混合粉末とペレットの反応である。しかし実際のヨウ素分圧の評価には、かなりの不確定性がある。

運転時の燃料棒内には温度勾配があるので、厳密には化学平衡は成り立たない。しかしヨウ素圧のめやすを得るために、適当な温度を仮定して、化学平衡計算コードMPEC2⁽¹¹⁾による計算を行った。このコードは種々の考えられる化合物を、標準自由エネルギーデータとともに列挙しておき、体系の全自由エネルギー最小の原理から独立相の有無、気体を含めた混合物中の化学種の濃度を計算するものである。計算法の詳細は付録に記載する。

この体系では、 UO_{2+x} または MoO_3 による CsI の分解と Cs の錯酸化物の生成がヨウ素分圧を決定する。 Cs の錯酸化物としてつぎのものを候補にあげた。



これらの化合物の熱力学データは、Lindemerらのもの⁽¹²⁾を用いた。

38A、39A、40Aの添加物組成に対応する、 $400-600^\circ\text{C}$ での平衡ヨウ素圧

(I_1 、 I_2) の計算値を第9図から第11図に示す。結果は実線と破線で示されているが、これらはそれぞれ添加混合粉末のみでヨウ素圧が決まる場合と、 UO_2 ペレットも含めて平衡が決まる場合に対応している。これらは両極端の場合である。添加粉末だけで平衡が決まると考えるのは、多少無理があるが、全ペレットが平衡に関与することは、特に短期間照射では全く考えられない。実際のヨウ素圧は、添加粉末だけで決まる平衡圧より若干低めのレベルであろうと考えられる。

このような判断基準で計算結果をみると、少量の CsI と UO_2 の平衡で定まる38Aでは、ヨウ素分圧は 10^{-6} 気圧程度 (I_1 は $1/2 I_2$ として考える) であるのに対して、 CsI の蒸気圧はかなり高くなっている。一方、 CsI と MO_3 の平衡である39A、40Aでは CsI はほとんど分解され、ヨウ素圧は1気圧程度にまで高くなるという計算結果になっている。

この計算に関連して、39Aの照射後ガンマスキャン結果を第12図に示す。第12図(a)は ^{137}Cs によるスキャン結果で、照射中の出力分布を示している。燃焼度が低いため、高出力であるにもかかわらずペレット境界部への偏析はみられない。(b)は ^{134}Cs によるスキャン結果であり、(a)の ^{137}Cs の分布とは著しく異なっている。スタックの大部分の位置で ^{134}Cs 放射能はほぼゼロであり、中央部に鋭いピークをもつ分布になっている。このピーク位置は混合粉末を添加した位置である。

このピークを形成する ^{134}Cs は、じつはFPではなく、はじめに添加した CsI によるものである。天然のセシウムは全部が ^{135}Cs からなる。これが炉内で(n, γ)反応によって、 ^{134}Cs に変わったものである。第12図(b)をさらに詳しく調べると、中央の鋭いピークの上下に約10mmずつ(ペレット約1個分ずつ)放射能分布がすそ野を引いていることが分かる。これはペレット間に装填した混合粉末中のセシウムの一部がペレット一被覆ギャップ部に移行したことを示すものである。このセシウムは、化学形に関する計算結果から判断して CsI の蒸気であった可能性がおおきい。本実験では、非常に狭いギャップ幅を採用したので、発生した単体ヨウ素がギャップ部に移行するかどうかはひとつの問題であった。しかし上の事実から、ヨウ素についてももし発生すれば、少なくともペレット1個分のギャップ部へは移行するだろうという推定が得られる。

3.2 被覆管の応力の推定

PCIにより被覆管にかかる応力は、コード計算により推定するしかない。軸対称2次元有限要素法による応力解析機能を有するコードFEMAXI-IV⁽¹³⁾を用いて、各燃

料棒毎に出力急昇試験の履歴を追った計算を行った。本実験に用いた被覆管は1母線にそって外面から減肉加工を行っているので、軸対称モデルを適用するのは厳密には正しくないが、概略の応力レベルと緩和の速度を知るのには十分役に立つと考えられる。すなわち減肉加工の履歴を無視した計算を行い、あとで減肉の効果を定性的に考慮することができる。

被覆管にかかる応力は、用いた被覆管の性質に大きく依存する。第2表に示した本実験の被覆管の強度は、FEMAXI-IVにモデル化された被覆管の強度よりもやや大きくなっている。そこで本解析においては、FEMAXI-IVの被覆管強度モデルを実物に合わせて変更した。また40Aでは、多少のベース照射を加えて被覆管を照射硬化させているが、低照射量による硬化の程度を良く模擬するため、鈴木による被覆管のJMT R照射データ⁽¹⁴⁾にあわせて硬化モデルも変更した。用いた計算式は

$$\sigma_y = \sigma_y^t + \Delta \sigma_y^{irr} \quad (1)$$

$$\sigma_y^t = 23.0 - 0.0213 T \quad (2)$$

$$\Delta \sigma_y^{irr} = 52.5 \{1 - \exp(-B \phi t)\}^{1/2} \quad (3)$$

$$B = 2.92 \times 10^{-21} \exp(-1.6 \times 10^{-14} \phi) \quad (4)$$

である。ここで σ_y は降伏応力 (kg/mm^2)、 T は温度 ($^{\circ}\text{C}$)、 ϕ は高速中性子束 ($\text{n}/\text{cm}^2/\text{s}$)、 t は照射時間 (s)である。

38A、39A、40Aの3本の燃料棒は、添加物を除くと同じ設計である。これらの燃料棒の燃料内の温度分布と線出力密度の関係について、FEMAXI-IVで計算した結果を第13図に示す。

燃料棒の変形に関する計算結果のうち、応力腐食との関連でもっとも重要な変数は被覆管の円周方向応力と歪であるが、燃料棒伸びの計算値と実測値を比較することにより、これらの計算結果の妥当性を検討することができる。第5図—第8図には、燃料棒の伸びの実測値と計算値が出力履歴とともにプロットされている。前に述べたように、出力の変化とともに伸び計の支持構造が伸縮するために、実測データから伸びの絶対量を求めることはできない。一定出力保持中の変化だけを比較することができる(38Aでは伸び計が故障していたので、一定出力下のデータにも問題がある)。39A、40Aにおいて伸び(収縮)の実測値と計算値を比べると、計算では300W/cmの出力保持中にはほとんど収縮が起こらないことになっているが、実測ではスタック長さの1—2%に相当するかなり大きな収縮が起こっている。計算はペレットの剛性を過大評価していることになる。

しかし 400 W/cm 以上での出力保持中の収縮に関しては、計算と実測結果は非常に良く一致している。応力腐食に関連して応力のレベルおよび緩和速度を問題にするのは、主として 400 W/cm 以上での出力保持中についてであるから、この一致は FEMAX I - I V の被覆管応力計算値の信頼性を高めるものである。

被覆管円周方向応力の変化の計算値を第 14 図 - 第 16 図に示す。この結果は、 600 W/cm の出力下では、応力はペレットのクリープによってほとんど瞬時に緩和してしまうが、 500 W/cm 以下では、数時間はかなり一定の応力が保持されることを示している。この応力緩和は、被覆管の性質よりもペレットの性質できまるものである。応力の絶対値に着目すると、 38 A 、 39 A では 200 MPa 以下であるが、 40 A では 400 W/cm 保持と 500 W/cm 保持でほとんど差がなく約 250 MPa になっている。これはベース照射による硬化がそのように計算されたものである。

円周方向歪については、外面の減肉加工による非軸対称性化がいっそう著しくなると考えられるので、FEMAX I - I V の軸対称モデルによる計算は応力の場合より無意味なものになる。そこで 40 A に関する結果のみ第 17 図に示す。外面減肉がなかったとした場合の円周方向塑性歪は約 1% である。ここで減肉の効果を考えてみると、平均で 1% の歪はとうぜん最小肉厚の部分に集中し、この部分は歪硬化が大きくなる。平均肉厚と最小肉厚の比は 1.43 である。ジルカロイは歪硬化が大きいので、ペレットの熱膨張が十分大きければ被覆管の局所的な降伏応力はこの程度の比率まで増大することができ、減肉しない部分からの引張力とつり合うことができる。局所応力がどこまで増大するか正確に見積もることは困難であるが、仮に 20% 増大したとして円周方向応力は 300 MPa となる。

もうひとつの効果として、コード計算では軸方向と円周方向に引張られる 2 軸応力状態が計算されるが、軸方向にのびた減肉の結果として、円周方向応力の比重が大きい 1 軸応力状態に近い状態になると考えられる。一定の降伏応力のもとで（これは等価応力に等しくとられる）、円周方向応力だけに着目すれば計算値より大きくなる効果をもつ。

要約すると、 40 A においては、 300 MPa 程度の円周方向応力が約 10 時間にわたって保持された可能性が大きい。

3.3 出力急昇破損と応力腐食に関する一般的考察

このような観点から本実験の条件を検討してみると、 $250 - 300\text{ MPa}$ という被覆管の円周方向応力は確かに低めである。照射しない歪取り焼き鈍し材の降伏応力より低め

である。しかしこのレベルは、炉外実験で応力腐食が起こるとされる応力の範囲内である。また序論で述べたように、実際の出力急昇破損は再結晶材に照射硬化が加わった条件で起こる例がおおく、歪取り焼き鈍し材が照射硬化した状態ではあまり起こっていない。ヨウ素分圧条件を強めた模擬実験において、応力条件を低めに設定することは正当である。もし応力条件を実際と同じに設定することができたならば、ヨウ素はむしろ逆に徹底的に除去した状態で試験し、破損が起こらないことを示さなければならない。

本実験におけるヨウ素分圧は実測はされていないが、実際の燃料で考えられるレベルよりはるかに高い。Hofmannらは、照射とともに燃料内の酸素ポテンシャルが高くなることを前提として、CsI分解のメカニズムを考え、本実験はその論理にしたがってヨウ素を富化したものである。しかし軽水炉燃料においては、酸素ポテンシャルが照射とともに増加するかどうかについてさえ問題がある。プルトニウムが燃焼する高速炉燃料においては酸素ポテンシャルは明らかに増加するが、 ^{235}U が主として燃焼する低中燃焼度の軽水炉燃料では、ペレット中の酸素バランス自体あまり酸素過剰の方向に動かないとされている⁽¹⁵⁾。さらにジルカロイ被覆管の内面酸化の影響が加わるため、高出力燃料におけるFP分布実測に基づく推定では、O/U比はむしろ減少の方向であるとされている⁽¹⁶⁾。

かりに酸素ポテンシャルが増加するとしても、モリブデン酸化物平衡でいえば、 Mo/MoO_2 平衡が成立する程度が限度であり、 MoO_3 が存在することは全くありえない。 Mo/MoO_2 平衡の下でも、 Cs_2MoO_4 生成によるCsI分解は起こり得るが、これによるヨウ素分圧は $500-600^\circ\text{C}$ で 10^{-7} 気圧程度である。

すなわち本実験では、多くの炉外SCC実験と同じように、ヨウ素分圧を全く非現実的なレベルまで高めたものであるが、応力条件の不足のために破損が起こらなかったものと解釈される。この結果はまた、過去に炉内でSCC破損を起こしたとする実験結果と矛盾するように見える。そこでそのような実験例について検討を加えておく。

Daviesらの中空ペレットを用いた炉内SCC実験⁽⁶⁾は、いくつかのステップによって行われたが、大きく3つに分けて考えることができる。第1のステップでは、照射された通常の被覆管に未照射 UO_2 ペレットを装填して出力急昇するという、MacDonaldら⁽⁷⁾と同じような実験が行われた。MacDonaldらと同様、燃料は破損しなかった。第2、第3のステップでは、未照射の被覆管に特殊な燃料ペレットを装荷して、出力急昇が行われた。しかしこれらのステップで使われた未照射「被覆管」は、スウェージ加工されたジルカロイ丸棒に全く熱処理を加えず、機械的に削りだした非常に特殊なものであった。さらに外径 13.4mm にたいして肉厚が 0.51mm と、本実験の被覆管の最大減肉部より薄肉になって

いた。

第2のステップでは、中空未照射ペレットの中心孔にヨウ化パラジウム (PdI_2) が添加され、第3のステップでは高燃焼度ペレットを粉碎した粉末が添加された。第2のステップでは破損が起こったが、第3のステップではそのままでは破損せず、高燃焼度燃料粉末に加えてニオブ線を装荷してはじめて破損が起こった。

Daviesらの第1のステップおよびMacDonaldらの結果は、「被覆管の硬化は十分であったが、FPが十分に存在しないため破損しなかった。」と解釈されたが、不足していたのはFPだけではない。後で述べるように未照射 UO_2 ペレットはクリープ速度が大きく、高い応力を長時間保持することができないのである。

第2のステップの結果がSCC破損であることは疑いないであろう。しかし非常に特殊な被覆管を使った上、 PdI_2 の解離圧でできるヨウ素圧は、約1気圧と非常に高い。つまり第2のステップでは力学的な条件とヨウ素条件を両方高めてしまっているため、炉内でSCCが起こるといふ証明になっても、出力急昇破損の説明にはなっていないのである。

第3のステップはさらに問題である。ペレットの中心孔に高燃焼度ペレットの粉末に加えてニオブ線を装填して出力急昇を行ったのは、DaviesらがHofmannとは逆に未照射ペレットの酸素ポテンシャルが実際の照射ペレットより高いことが破損しない原因だと考えたためである。

特殊な「被覆管」の使用の問題は別にして、ニオブ線の追加によって破損したという事実がどうしてヨウ素SCCに結びつくだろうか。ヨウ素は電気陰性度の高い元素である。金属ニオブの添加による酸素ポテンシャルの低下によって、単体ヨウ素の解離が抑制されることがあっても、促進されることはありえない。燃料破損という事実が中心孔に装填された照射済ペレットによるものだとしても、それはむしろヨウ素の効果ではないということを実証したようなものである。

金属ニオブの添加によって破損が起こったのは事実であるが、これは実は水分破損だったということも考えられる。照射済みペレットの粉末化によって、湿分が導入されることが考えられる。水分破損は水が還元され、水素が解離することによって起こるとされている。中心の高温部にニオブ線を添加することによって、水の還元は大いに促進されるであろう。出力急昇破損は外見上必ずしも水分破損と区別できないし、水分破損も照射開始後かなり短時間で起こることが知られている⁽¹⁷⁾。

Coxらの実験⁽⁸⁾は、CANDU型の被覆管から切りだしたリングの一部を切り欠き、くさびを入れて応力をかけたものをCsI粉末の中に埋め込み、原子炉内で1400時間照射したところ、破断や初期クラックが見いだされたというものである。ひとつの問題は破

断に至った試料はすべて、あらかじめ炉外 S C C によって初期クラックを与えたものばかりだったということである。またヨウ素がジルカロイと反応するメカニズムとして考えられるのは放射線分解であるが、放射線分解による単体ヨウ素発生量は、熱平衡の場合と異なり、C s I の存在量に比例する。燃料棒中の自由空間にある C s I の量はごく微量であり、C s I 粉末に埋め込んだ条件とは大きく異なる。

このようにこれまでに行われた S C C 実験は、炉外、炉内を問わず、何らかの条件下で S C C が起こるか否かということにのみ関心が集中し過ぎているきらいがある。燃料破損に対するヨウ素の寄与に関する議論は混乱している。数式を用いて整理してみると、基本的に次の 3 つの形の寄与が考えられる。

$$P_f = A \sigma^\mu \sigma_y^\nu p_1^n \quad (5)$$

$$P_f = A \sigma^\mu \sigma_y^\nu \{1 - \exp(-a p_1^n)\} \quad (6)$$

$$P_f = A \sigma^\mu \sigma_y^\nu (1 + a p_1^n) \quad (7)$$

これらの式の関数関係は正確なものではなく、言葉による議論を明確化するだけの目的のものである。ここで P_f は出力急昇による燃料破損の確率、 σ は応力条件を 2 軸性、持続時間を含めて漠然と表現したものである。 σ_y は被覆管の降伏応力、 p_1 はヨウ素分圧であり、 A 、 a 、 μ 、 ν 、 n は定数である。

炉外 S C C 実験の知見を整理すれば、ヨウ素圧の寄与の仕方は (5) 式に近いものになるだろう。しかし出力急昇破損に対する適用性に関しては、今回の実験結果は否定的である。高いヨウ素圧が応力条件の多少の不足を補償していないからである。(6) 式は「ごく微量のヨウ素は燃料破損に対して不可欠の要素であるが、それ以上増しても効果はない。」という考え方を表現したものである。しかしこれでは出力急昇破損と炉外 S C C 実験の関連を否定することになる。一般に炉外実験の結果では、ヨウ素圧が 10^{-5} 気圧から 1 気圧程度の範囲で、その効果が飽和などしていないからである。

結局、出力急昇破損とヨウ素 S C C の関係は、(7) 式のような形しかないと考えられる。これは、ヨウ素は破損に寄与するが、力学的な条件が満たされればヨウ素がなくても破損が起こると考えるものである。

もともとヨウ素 S C C 説が有力になった最大の原因は、照射した被覆管の引張試験やバースト試験ではあのような脆性破壊は起こらないという事実である。しかし炉外での試験条件はかならずしも実際の被覆管がおかれる応力条件を模擬したものになってはいない。

ここで最後に、実際の出力急昇破損におけるヨウ素の役割は小さいという前提に立った場合、照射後被覆管の単純な機械的試験における延性をどう説明できるか検討してみる。出力急昇時と機械的試験における被覆管の条件には次のような相違がある。

1) 応力の二軸性と局所性

実際の被覆管には、ペレット被覆相互作用による強い軸力がかかる⁽¹⁸⁾。この軸力が出力急昇破損に密接な関係があると考えられる根拠はいくつもある。軸力は燃料棒が長いほど大きくなる。動力炉燃料の出力急昇破損が研究炉での出力急昇試験において確立された条件より低い条件で起こる⁽¹⁹⁾のは、軸力の相違がひとつの原因であると考えられる。また PWR 燃料の出力急昇破損研究計画であるオーバーランプ計画⁽¹⁰⁾でも、長い試験燃料棒は短いものより低い出力で破損している。また筆者らがハルデン炉で実施した、燃料棒の長さや直径の測定付きの出力急昇試験では、燃料の破損、非破損の別は燃料棒の伸びと強い相関を示したが、直径増加とはあまり相関はみられなかった⁽²⁰⁾。

軸力と円周方向応力のために、被覆管は二軸応力状態におかれる。バースト試験では、 $\sigma_r / \sigma_\theta = 2$ の二軸応力状態が実現される。この場合でも、破断歪は単純な引張試験の場合よりもかなり小さくなる。5 x 10²⁰ n/cm²まで照射した CANDU 型被覆管の 300°C でのバースト試験で、破断歪が 1% 程度まで低下した例もある⁽²¹⁾。さらに二軸応力としても、PCI による応力状態はかなり特殊なものである。外圧の寄与もあり、燃料棒全体としてはむしろ軸力の方が優勢であるのに対して、円周方向応力はペレット境界やペレットクラック部などに非常に局所的にかかる。したがって円周応力優位の領域が軸方向応力優位の領域に囲まれた形になる。このような状態では、局所的な破断歪が大きくても、平均的な意味での破断歪が大きくなれないのはあきらかである。（「破断歪」は、歪の定義域を小さくとればいくらかでも大きくなる。）

2) 応力のかかる期間

10、000 MWd/t 程度まで照射される間の、UO₂ペレットのバルク剛性の増加は著しいものがある。剛性の増したペレットによって引き起こされた PCI の応力は長時間持続することになる。本実験における応力条件の不足は、円周応力の絶対値よりも緩和の速さが問題だったのではないかと考えられる。10、000 MWd/t まで照射された燃料棒の PCI 伸びは、もっとゆっくり回復する^{(18)、(22)}。

持続する応力が重要であることは出力急昇破損が時間遅れを伴う現象であることからして当然である。しかしある時間経過後の応力は、絶対値の大きさよりも当初の最大応力に

比べてあまり低下しないことが重要なのではないかと考えられる。出力急昇破損を起こす条件は、最大線出力密度で規定されることが多い。線出力密度は燃料棒の太さにかかわらず燃料最高温度をほぼ規定し、被覆管についても瞬時最大応力はほぼこれによってきまる。しかしその後の緩和速度は燃料棒の直径が大きいほど小さくなると考えられる。一般にBWR燃料はPWR燃料より出力急昇破損しやすく、CANDU燃料ではさらに低い燃焼度で出力急昇破損するが、この順番は直径の順にもなっている。

照射後被覆管の引張試験では、変形とともに応力は増大する一方である。バースト試験でも、いったん変形やクラック形成が起これば応力は増大する。これはペレット被覆相互作用における応力の時間変化とは異なる。

3) 照射効果

被覆管におよぼす照射効果は、現に高速中性子照射を受けて原子のはじき出しが起こる時々刻々の効果と、はじき出しによる欠陥が蓄積されたことによる効果に分けて考えることができる。照射後の機械的な試験でみられるのは蓄積的な効果のみである。時々刻々の照射効果が重要であることは、照射中のクリープが照射後試料のクリープより大きいことからわかる。クラックの先端も転位と同様に一種の線欠陥とみることができる。しかし転位はあるマクロな領域に無数にあり、それらが協調して移動しなければ大きな変形が起きない。これに対してクラックは1本しかないため、ある瞬間にクラック先端のある位置で起こった原子のはじき出しは、マクロなプロセス（クラック進展）にたいしてより大きな重みをもつと考えるのが自然である。すなわちクラックの進展速度およびそのパターンにとって、照射後試験では再現できない照射効果が大きく寄与していることが考えられる。

これらの考察を総合すると、もし炉内での被覆管の応力状態を完全に模擬した機械的試験が可能であったとしたら、平均的な破断歪は非常に小さくなり、脆性を説明するのにヨウ素を持ち出す必要がなくなることは十分考えられる。このような考えが正しいとすれば、Zrライナー被覆管の成功は、ヨウ素雰囲気遮断よりも約100 μ mの純金属層の存在による応力分散効果によるところが大きいことになり、高燃焼度においてなお効果を保つかどうかは、この層の照射硬化の程度できまることになる。

4. 結論

未照射燃料を用い、被覆管の応力条件を実際の出力急昇破損条件よりやや低めにする代わりに、燃料内のヨウ素分圧を高めた条件で出力急昇試験を行ったが、燃料破損は起こらなかった。出力急昇破損におけるヨウ素の寄与は、機械的な要素にくらべて小さいものと考えられる。

謝辞

この実験は多くの方々のご助力によって実施された。工作課の沢畠求氏には、燃料棒の溶接に関して多大のご協力をいただいた。燃料棒の製作に関しては、またNSRR管理室の堀木欧一郎氏、小林晋昇氏その他のの方々にもご協力いただいた。照射に関しては、照射一課の方々に、照射後試験に関してはホットラボ課の方々にお世話になった。最後に燃料挙動安全研究室長、古田照夫氏には、この結果をまとめるように激励をいただいた。ここにあわせてお礼申し上げます。

4. 結論

未照射燃料を用い、被覆管の応力条件を実際の出力急昇破損条件よりやや低めにする代わりに、燃料内のヨウ素分圧を高めた条件で出力急昇試験を行ったが、燃料破損は起こらなかった。出力急昇破損におけるヨウ素の寄与は、機械的な要素にくらべて小さいものと考えられる。

謝辞

この実験は多くの方々のご助力によって実施された。工作課の沢畠求氏には、燃料棒の溶接に関して多大のご協力をいただいた。燃料棒の製作に関しては、またNSRR管理室の堀木欧一郎氏、小林晋昇氏その他のの方々にもご協力いただいた。照射に関しては、照射一課の方々に、照射後試験に関してはホットラボ課の方々にお世話になった。最後に燃料挙動安全研究室長、古田照夫氏には、この結果をまとめるように激励をいただいた。ここにあわせてお礼申し上げます。

文献

- (1) Cox, B., "Pellet-clad interaction (PCI) failures of zirconium alloy fuel cladding - a review", J. Nucl. Mater. 172(1990) 249
- (2) Une, K., "Threshold values characterizing iodine-induced SCC of Zircalloys", Res Mechanica 12(1984) 161
- (3) Cubicciotti, D. and Davies, J.H., "The release of iodine salts by gamma radiolysis", Nucl. Sci. Eng. 60(1976) 314
- (4) Davies, J.H., Frydenbo, M.G. and Adamson, M.G., "Determination of the chemical activity of fission product iodine in Zircaloy clad UO_2 fuel rods", J. Nucl. Mater., 80(1979) 366
- (5) Hofmann, P. and Spino, J., "Conditions under which CsI can cause SCC failure of Zircaloy tubing", J. Nucl. Mater., 127(1985) 205
- (6) Davies, J.H. et al, "Irradiation tests to characterize the PCI failure mechanism", Halden Project Report HPR-211 Vol. II, Paper 41 (1977)
- (7) MacDonald, R.D. et al, "Unirradiated UO_2 in irradiated zirconium alloy sheathing", AECL-6579 (1979)
- (8) Cox, B., Surette, B.A. and Wood, J.C., "Stress corrosion cracking of Zircalloys in unirradiated and irradiated CsI", J. Nucl. Mater., 138(1986) 89
- (9) Mogard, H. et al, Final Report of the Inter-Ramp Project, STIR-53 (1979)
- (10) Mogard, H. et al, The Over-Ramp Project (Final Report), Stdsvik-STOR-37 (1981)
- (11) Uchida, M., "MPEC2: A code for multi-phase chemical equilibria", Comput. Chem. 11(1987) 19
- (12) Lindemer, T.B. and Besmann, T.M., "Thermodynamic review and calculations - alkali-metal oxide systems with nuclear fuels, fission products, and structural materials", J. Nucl. Mater. 100(1981) 178

- (13) Nakajima, T., "FEMAXI-IV: A computer code for the analysis of fuel rod behavior under transient conditions", Nucl. Eng. Des. 88(1985) 69
- (14) 鈴木元衛、木崎実、高田文樹、「照射済みジルカロイ管の変動応力下におけるヨウ素 SCC挙動」 JAERI-M 88-217 (1988)
- (15) Davies, J.H. and Ewart, F.T., "The chemical effects of composition changes in irradiated oxide fuel materials", J. Nucl. Mater. 41(1971) 143
- (16) Kleykamp, H., "The chemical state of LWR high-power rods under irradiation", J. Nucl. Mater. 84(1979) 109
- (17) Uchida, M. and Ichikawa, M., "Irradiation of the Japanese hydride failure experiment, IFA-225", HPR-193 (1975)
- (18) Uchida, M. and Ichikawa, M., "In-pile diameter measurement of light water reactor test fuel rods for assessment of pellet-cladding mechanical interaction", Nucl. Technol., 51(1980) 33
- (19) Almgren, B., "Oskarshamn I and II experience", HPR-211, Paper11 (1977)
- (20) Ichikawa, M. et al., "Studies of LWR fuel performance under power ramping and power cycling utilizing in-pile measurement and fuel modeling", Proc. ANS Topical Meet. on LWR FUEL PERFORMANCE, Williamsburg, Virginia, 1988, p253
- (21) Hardy, D.G., "Burst testing of zircaloy cladding from irradiated Pickering-type fuel bundles", Effects of Radiation on Substance and Mechanical Properties of Metals and Alloys, ASTM STP 529 (1973) 415
- (22) Ichikawa, M. et al., "Uranium dioxide fuel pin elongation behavior under irradiation", J. Nucl. Sci. Technol., 8(1971) 528
- (23) Rand, M.H. and Kubachewski, O., The thermodynamic properties of uranium compounds, Oliver & Boyd, Edinburgh, 1963, pp29
- (24) Onchi, T., "Fuel rod elongation behaviour during overpower ramp experiments", ibid., Paper 29

第1表 燃料棒製造データ

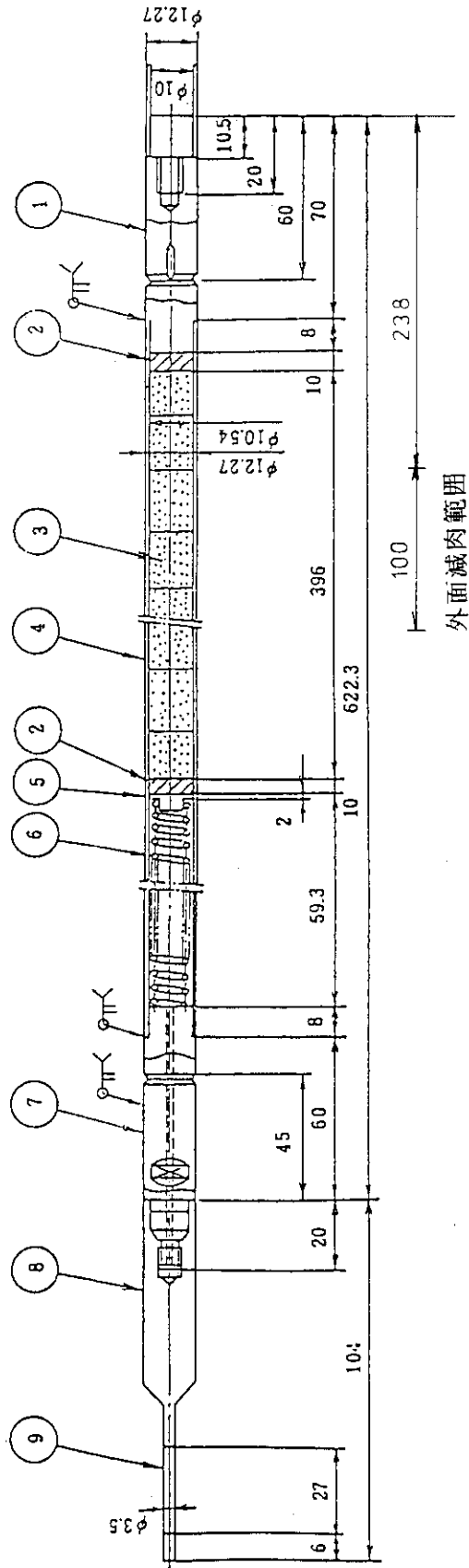
燃 料 棒		3 8 A	3 9 A	4 0 A
ペレット	材質	UO _{2+x}		
	濃縮度 (%)	3.986		
	O/U比	2.021		
	形状	円筒 (ディッシュ、チャンファーなし)		
	外径 (mm)	10.515		
	密度 (g/cm ³)	10.49		
スタック	長さ (mm)	396	396	396
	重量 (g)	361.2	360.9	360.7
被覆管	材質	ジルカロイ-2		
	熱処理	577 °C、2.5 hr		
	オートクレーブ処理	内外面、400°C、0.5 atm、24 hr		
	内径 (mm)	10.550		
	肉厚 (mm)	0.860		
	特殊処理	内面傷 (深さ 5 - 20 μm) 外面減肉 (0.26 mm x 100 mm)		
スプリング	材質	インコネル X-750		
	寸法 (mm)	線径 1.2、外径 10.3、自由長 70		
断熱	材質	緻密質アルミナ		
ペレット	寸法 (mm)	10.5φ x 10		
燃料棒	ギャップ幅 (mm)	0.035		
	プレナム長 (mm)	61		
	封入ガス	ヘリウム 1 atm		
	V溝間距離 (mm)			518.4
	全長 (mm)	623.3	623.3	623.4
添加粉末	CsI (mg)	20	20	100
	UO _{2+x} (mg)	20		
	MoO ₃ (mg)		20	200

第2表 被覆管の特性

項 目	データ	
結晶粒径 (ASTM No.)	12.5	
水素化物方位 (Fn値)	0.15、0.08	
硬さ (30t)	79	
引張試験	室温	343°C
降伏応力 (kg/mm ²)	41.7	15.7
抗張力 (kg/mm ²)	57.3	27.6
全伸び (%)	34.2	42.5
バースト試験 (室温)		
圧力 (kg/cm ²)	1170	
周方向伸び (%)	47.0、51.1	

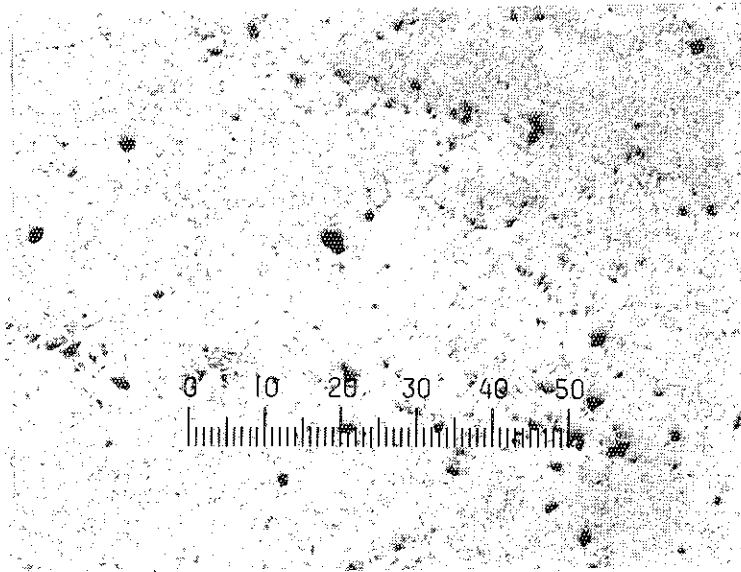
第3表 BOCA/OSF-1における照射条件

項 目	データ
高速中性子束 (1MeV以上)	2×10^{13} n/cm ² ·s
熱中性子束	$2-7 \times 10^{13}$ n/cm ² ·s
冷却水圧力	7.2 MPa
冷却水流量	1 cc/s
冷却水温度 (OSF-1 出入口付近)	約50°C
(燃料棒付近)	160-260°C
³ He圧力	0.6-3.9 MPa

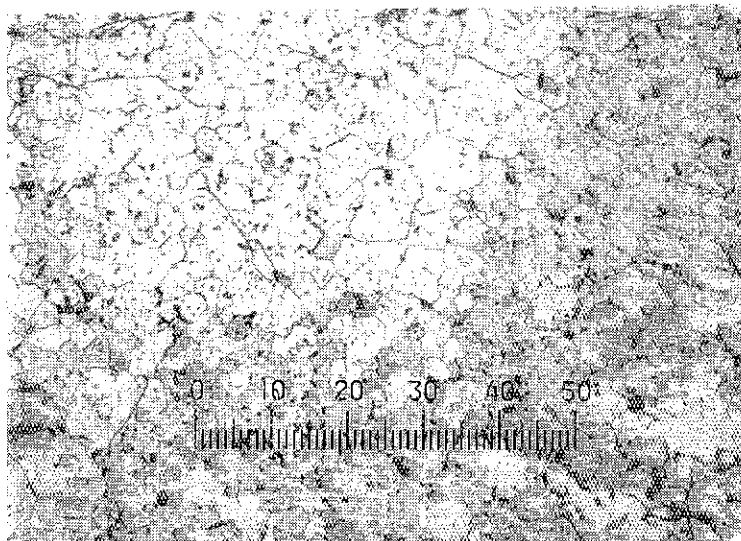


番号	品名	材質
9	送動トランス用コア	SUS403
8	コア支持棒	SUS304L
7	上部端栓	ジルカロイ-2
6	スプリング	インコネル-600
5	押工板	インコネル-600
4	披覆管	ジルカロイ-2
3	ベレット	UO ₂ φ10.5×12
2	絶縁ベレット	Al ₂ O ₃
1	下部端栓	ジルカロイ-2

第1図 燃料棒組立図

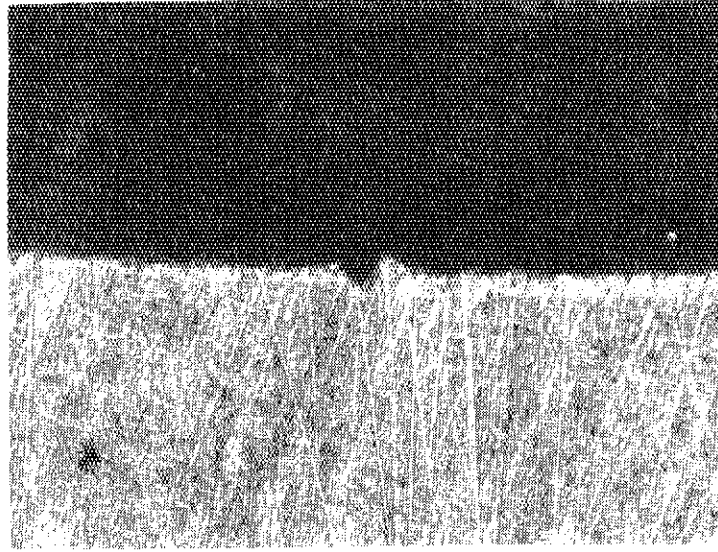


(a) 研磨後 X 100



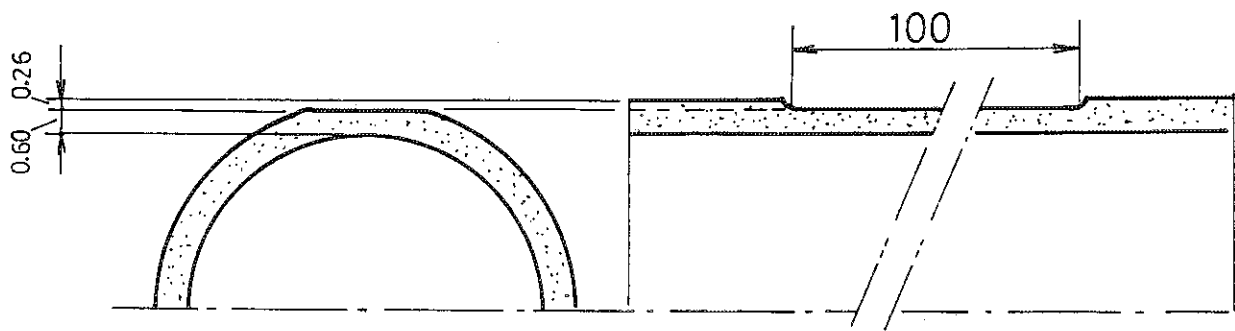
(b) エッチ後 X 400

第2図 燃料ペレットの組織



X 200

(a) 内面傷

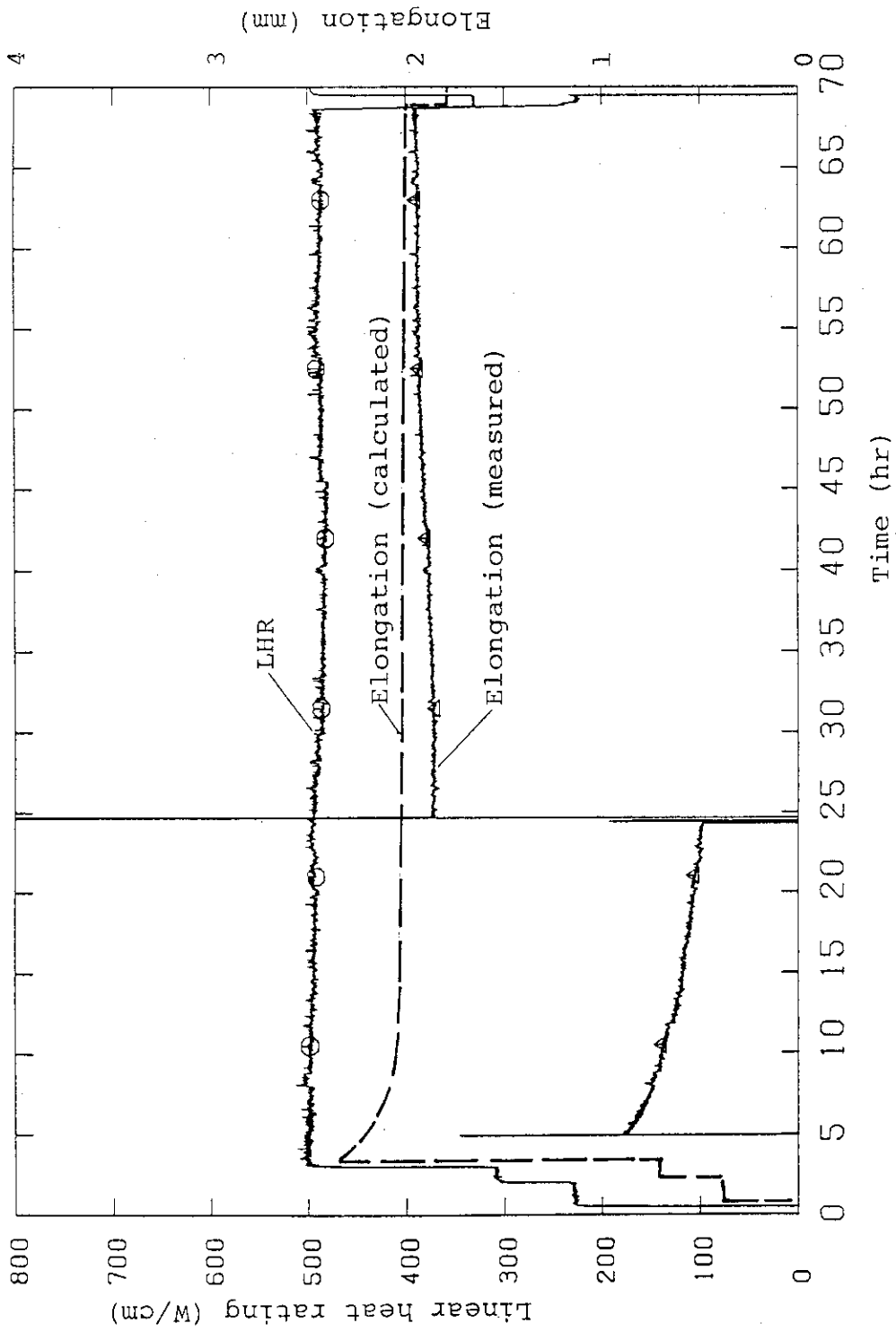


(b) 外面減肉 (スケール: mm)

第3図 被覆管の特殊加工

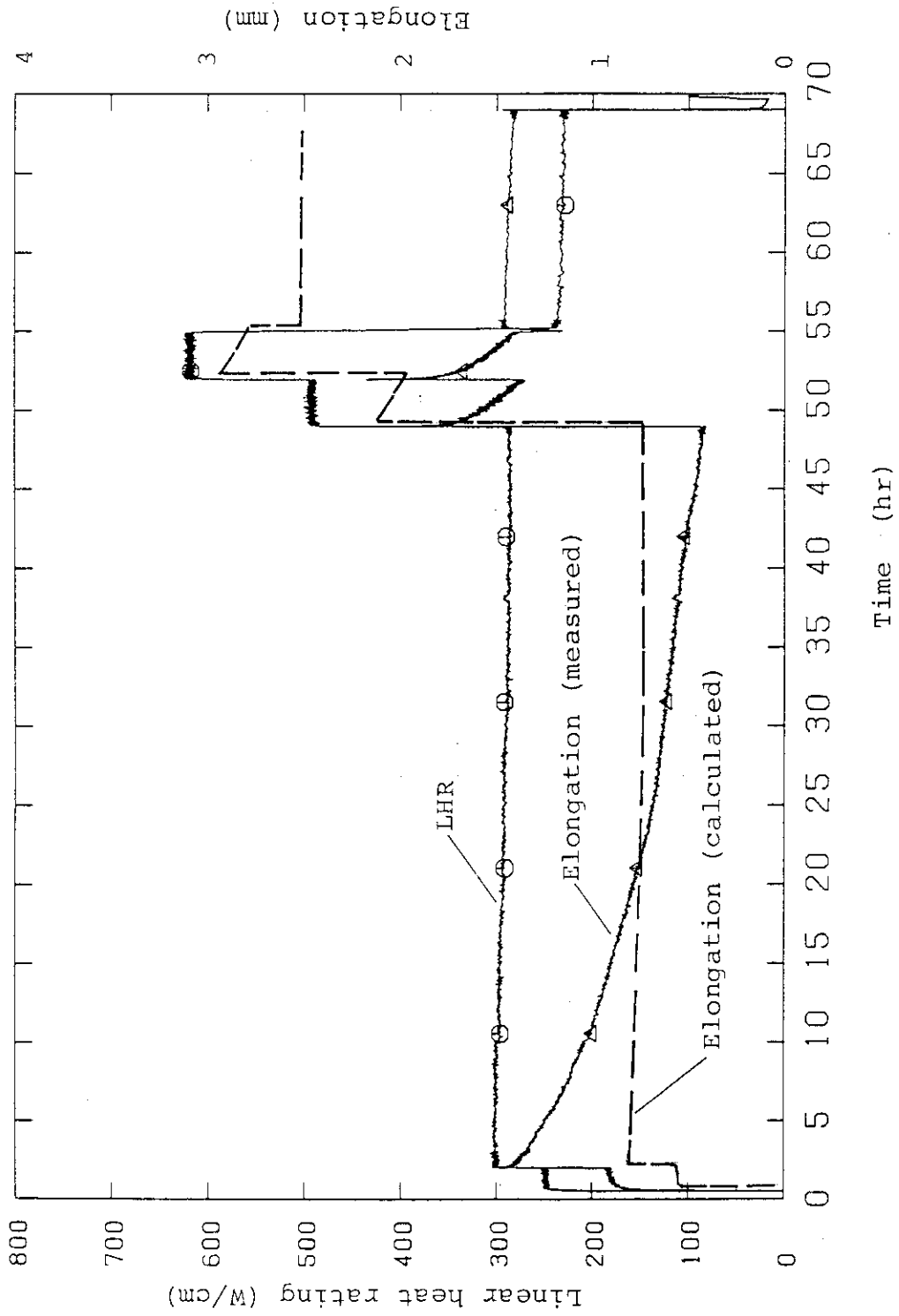


第4図 燃料棒部品写真

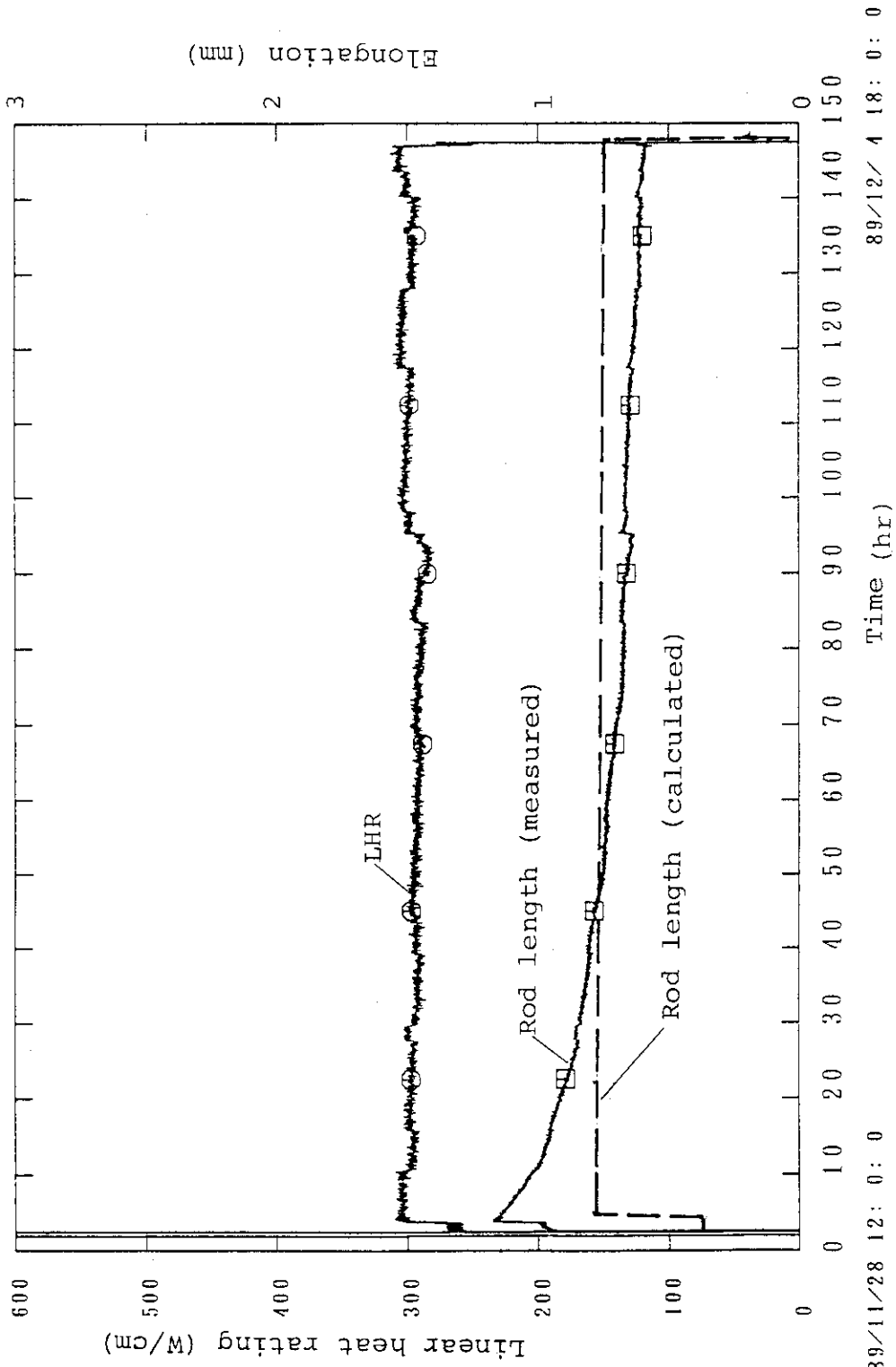


第5図 38Aの出力履歴と燃料棒伸び

(伸び計の不調により実測値は信頼できない。)



第6図 39Aの出力履歴と燃料棒伸び

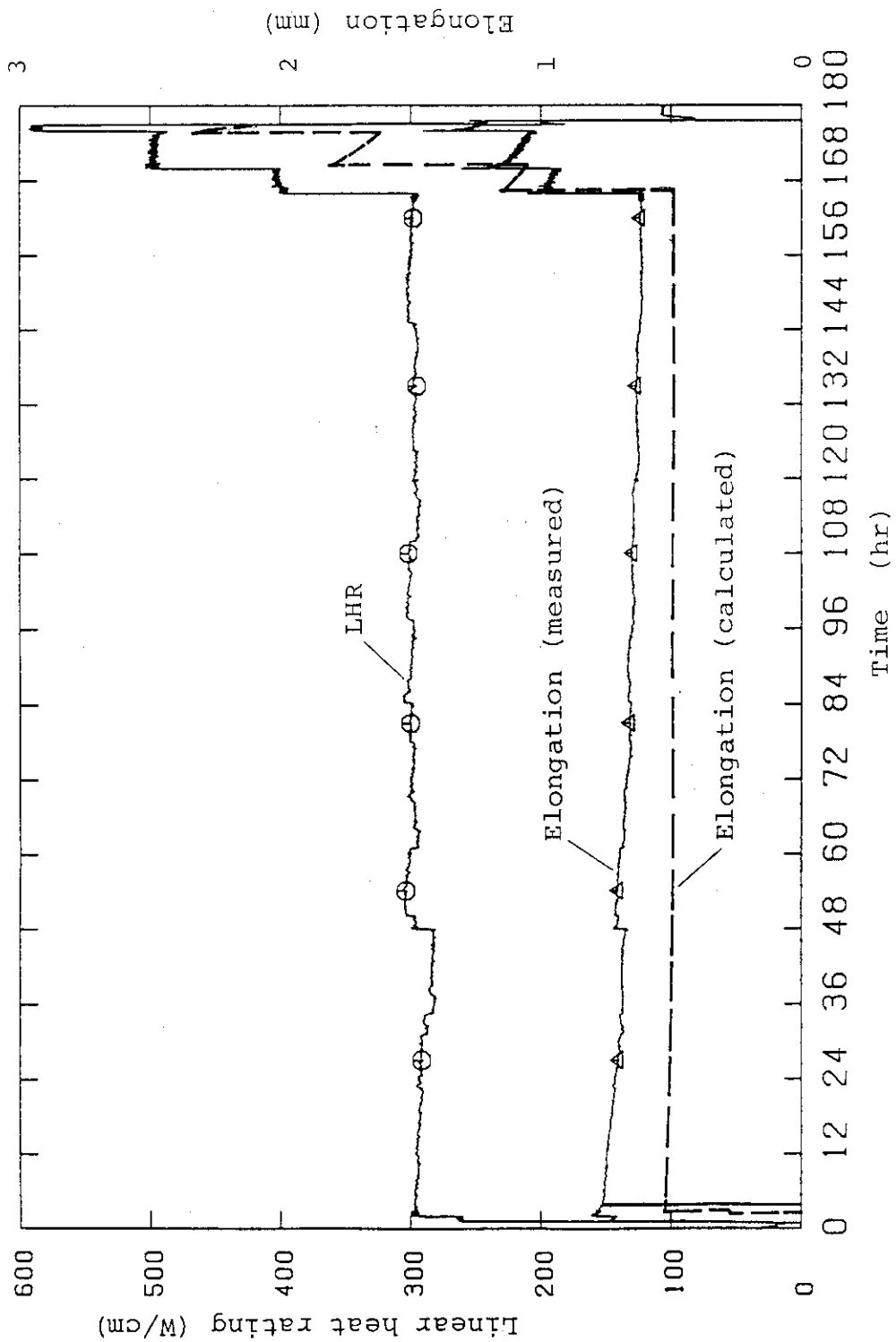


89/11/28 12: 0: 0

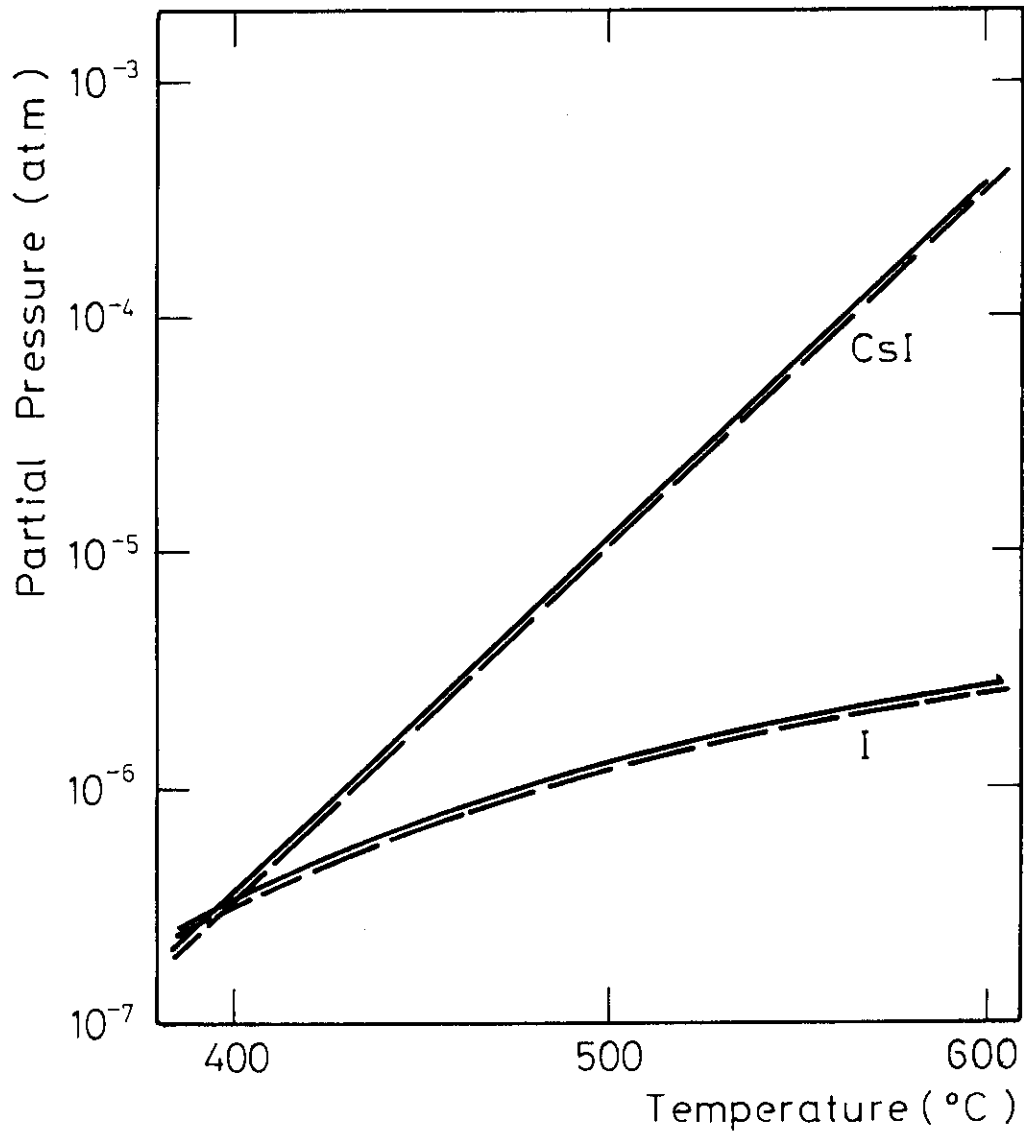
Time (hr)

89/12/ 4 18: 0: 0

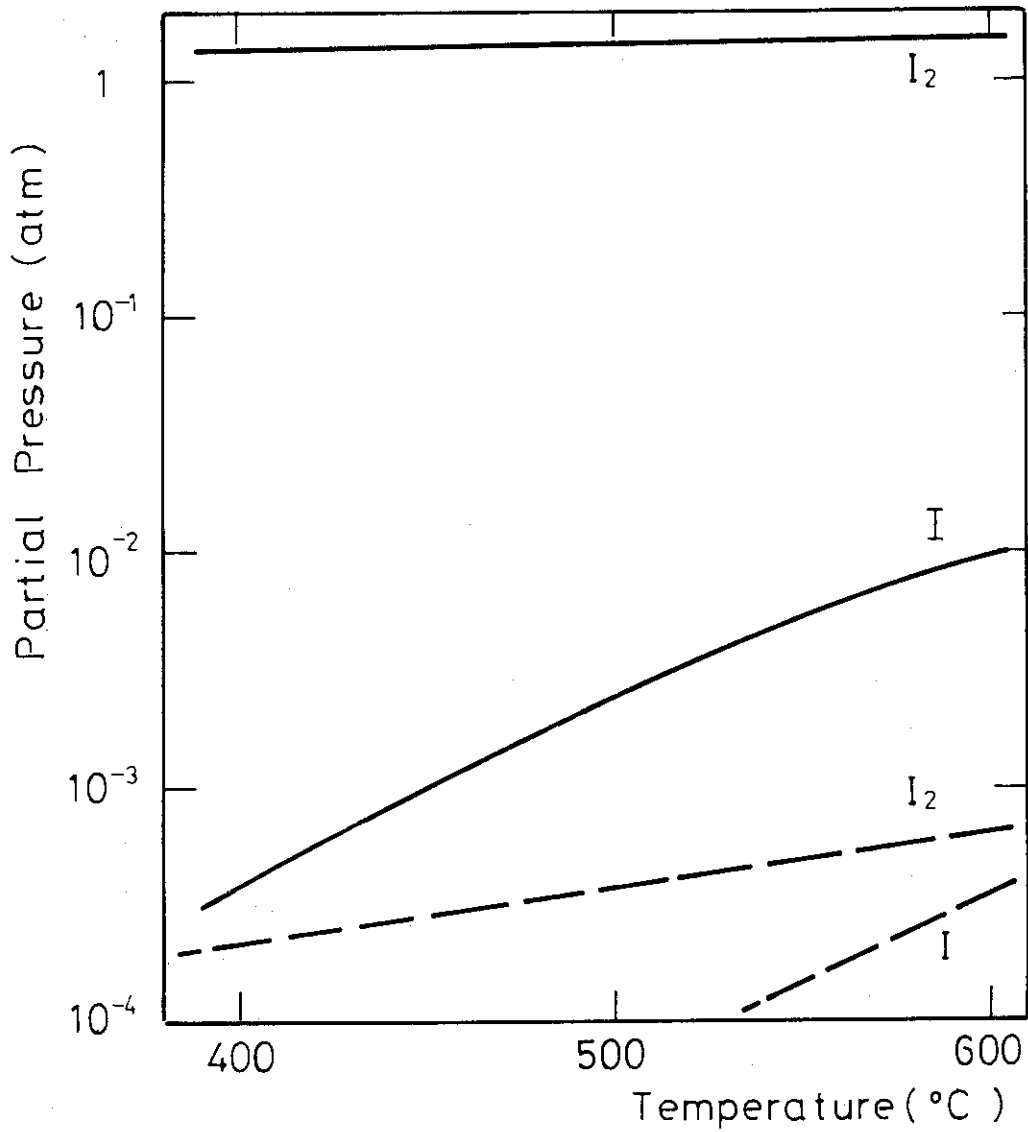
第7図 40Aの出力履歴と燃料棒伸び(ベース照射期間)



第8図 40Aの出力履歴と燃料棒伸び(出力急昇期間)

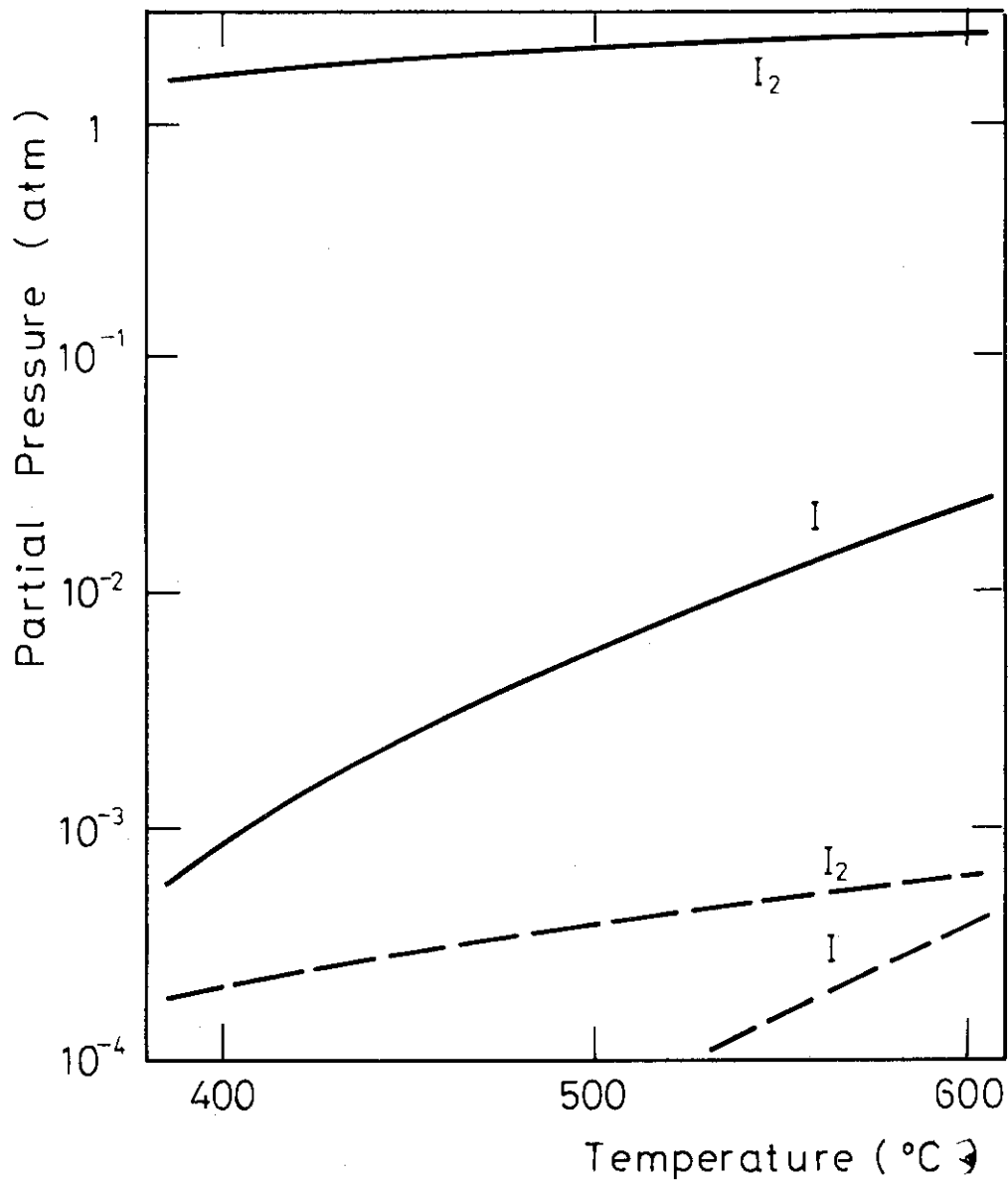


第9図 38 Aにおけるヨウ素分圧計算値
 (実線は粉末のみの平衡、破線はペレットを含めた平衡を示す)



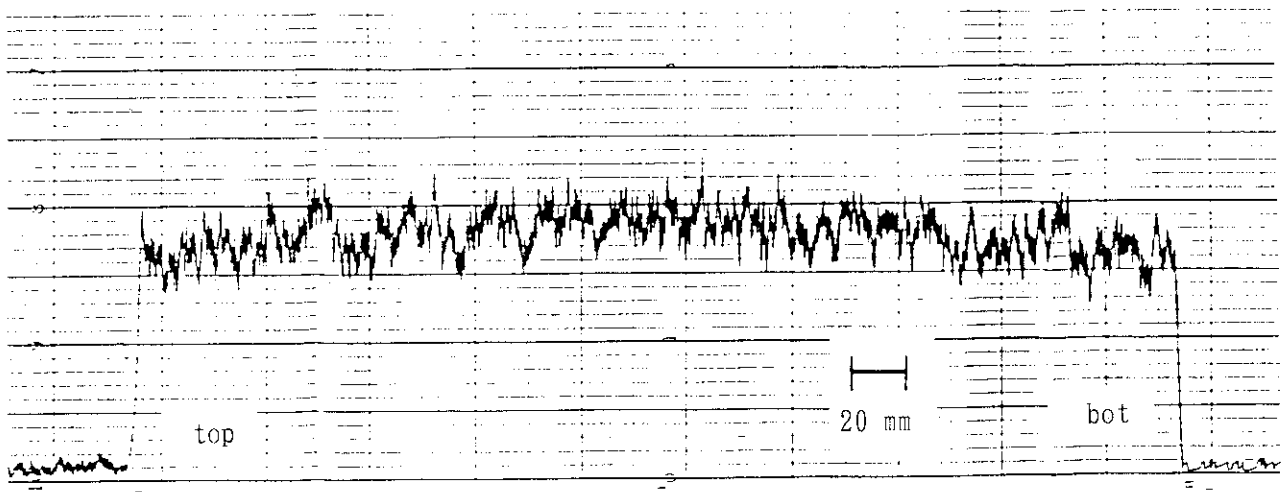
第10図 39Aにおけるヨウ素分圧計算値

(実線は粉末のみの平衡、破線はペレットを含めた平衡を示す)

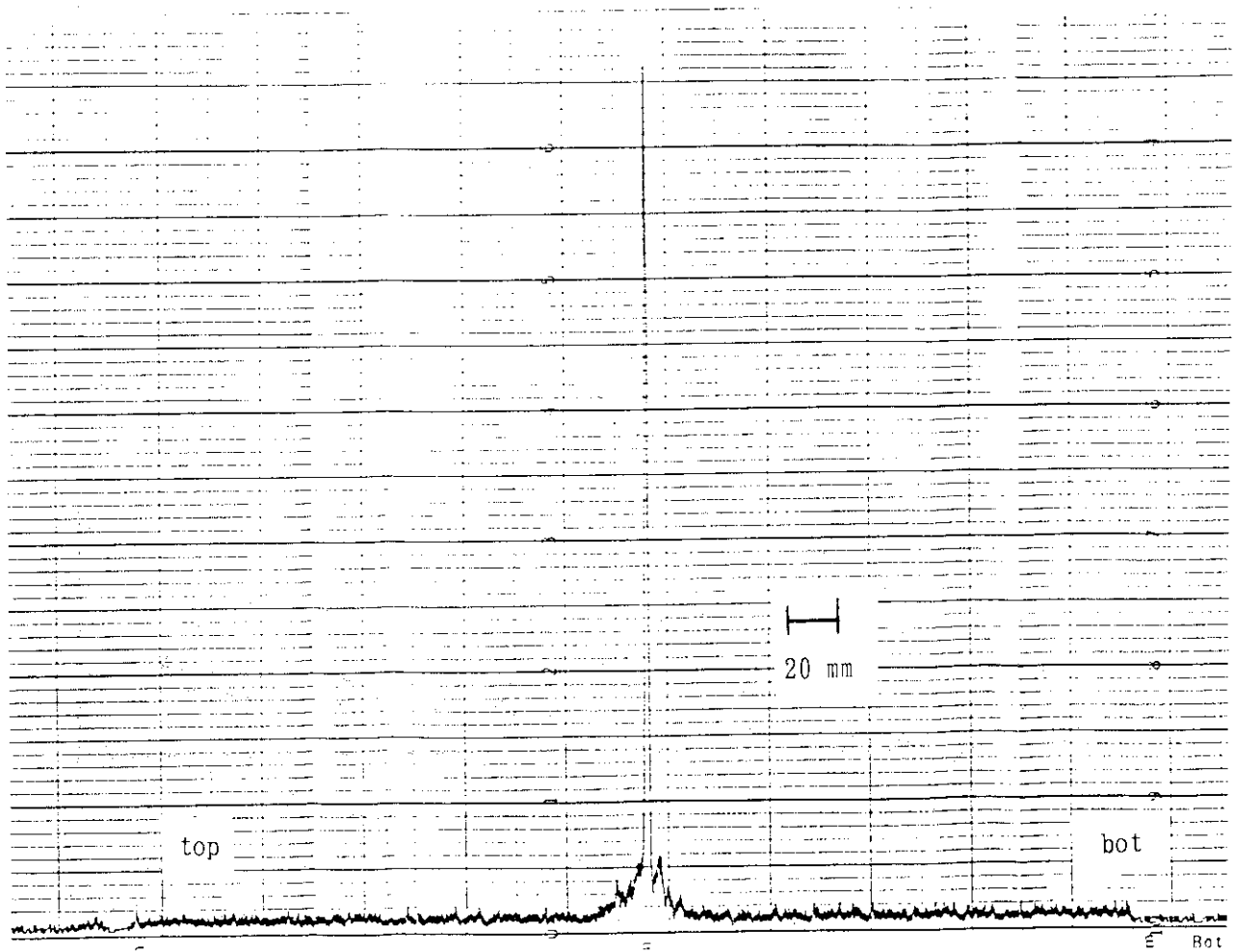


第11図 40 Aにおけるヨウ素分圧計算値

(実線は粉末のみの平衡、破線はペレットを含めた平衡を示す)

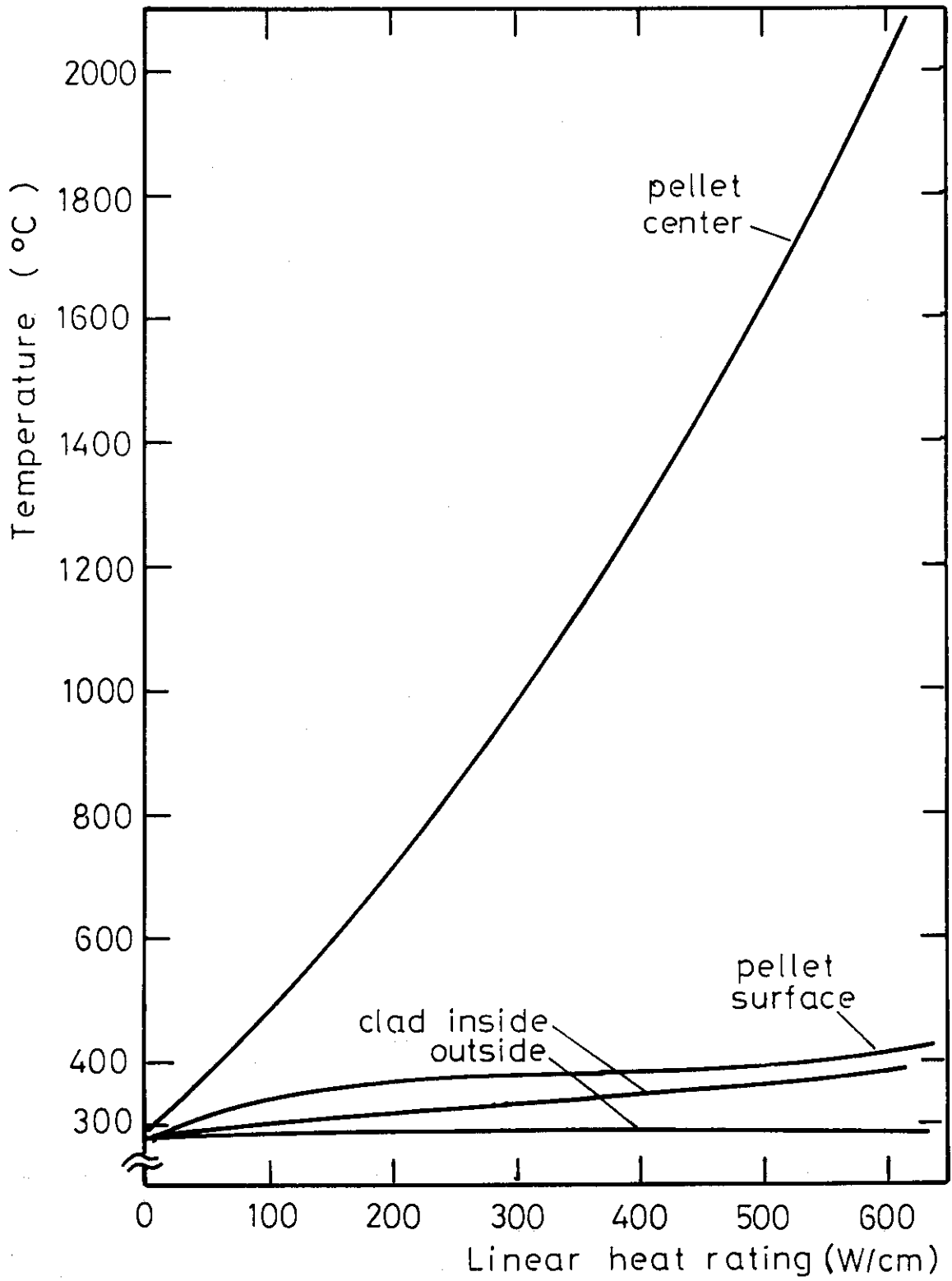


(a) Cs-137

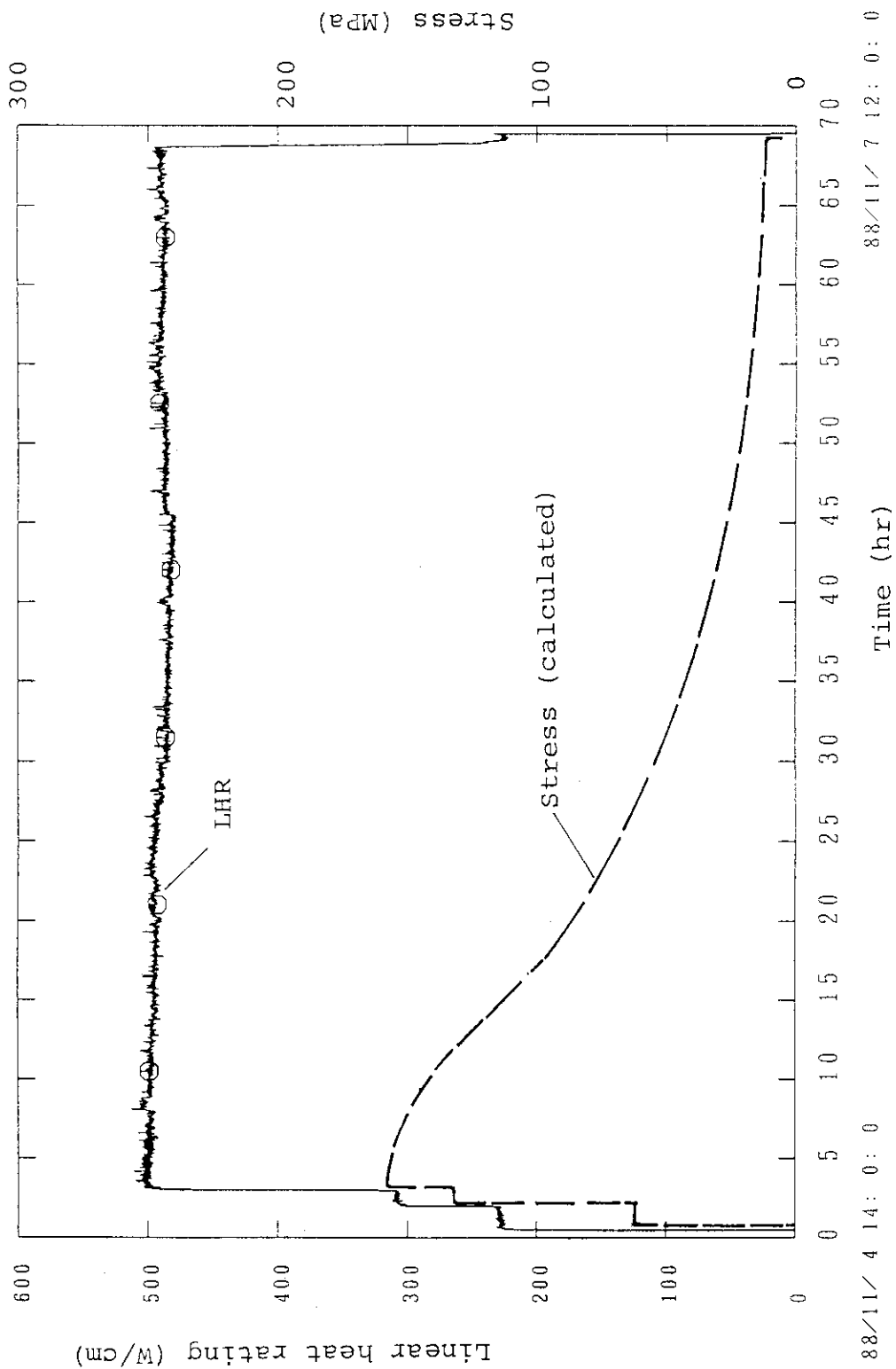


(b) Cs-134

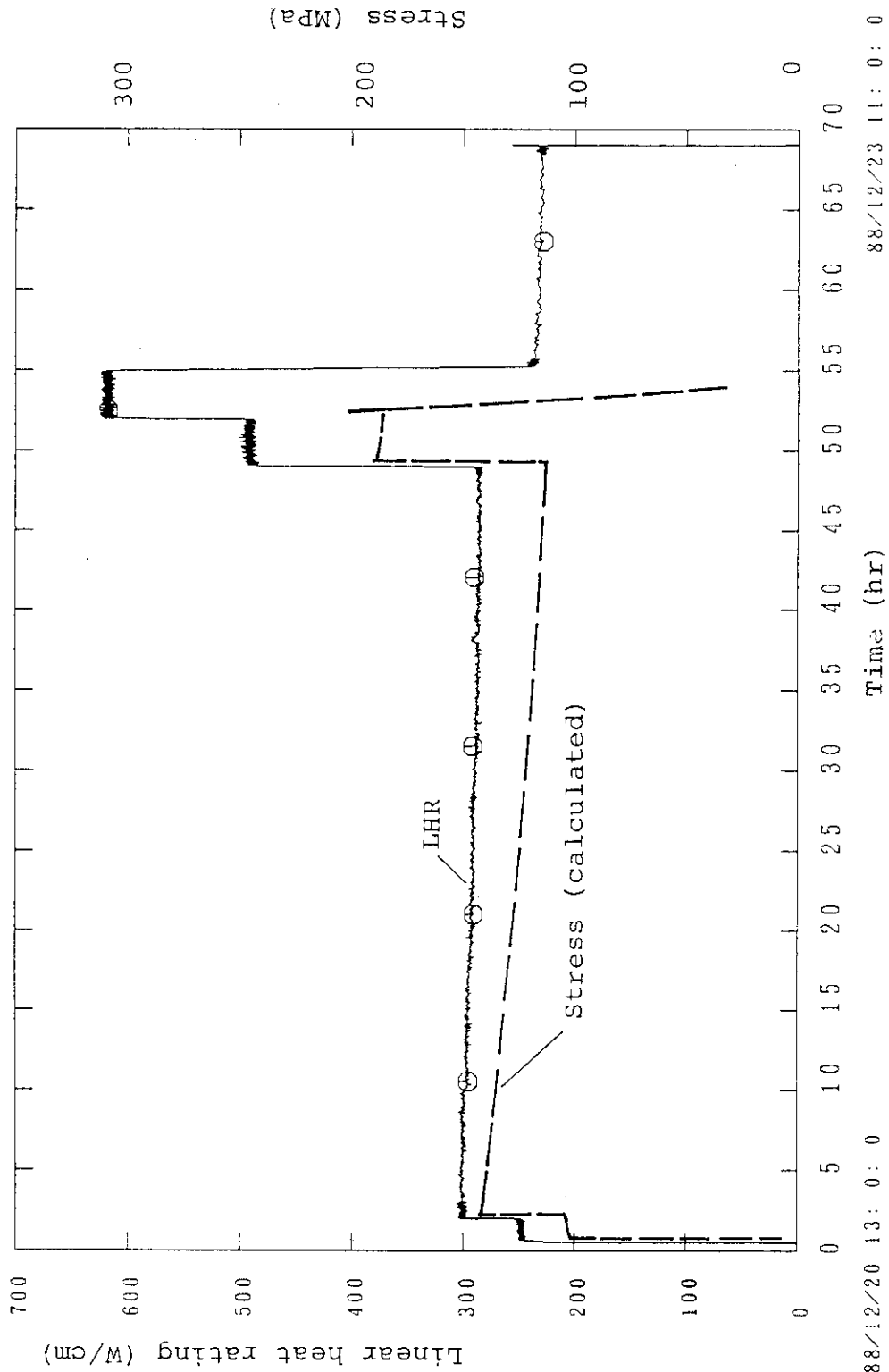
第12図 39Aのガンマスキャン結果



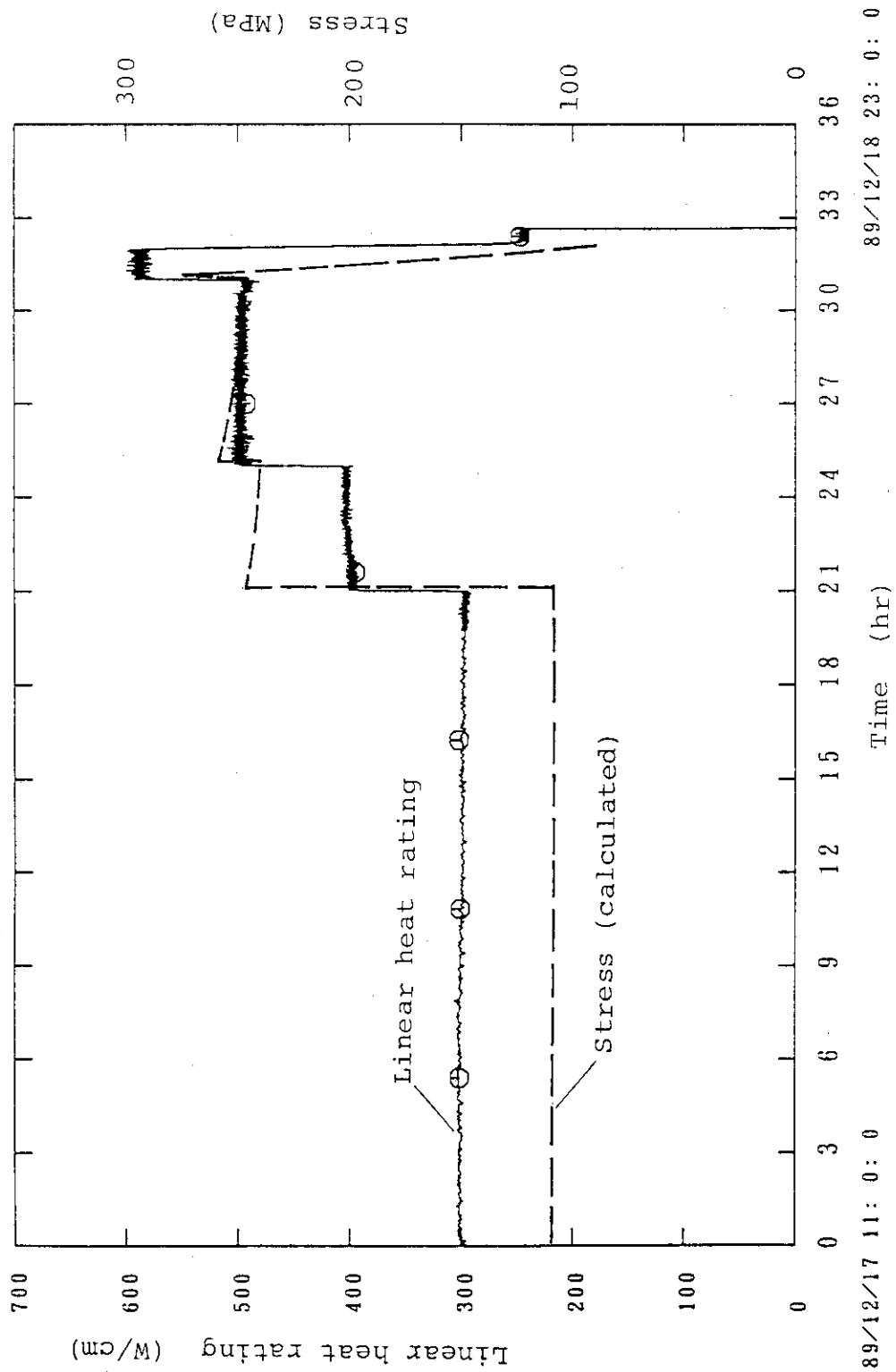
第13図 燃料温度計算値



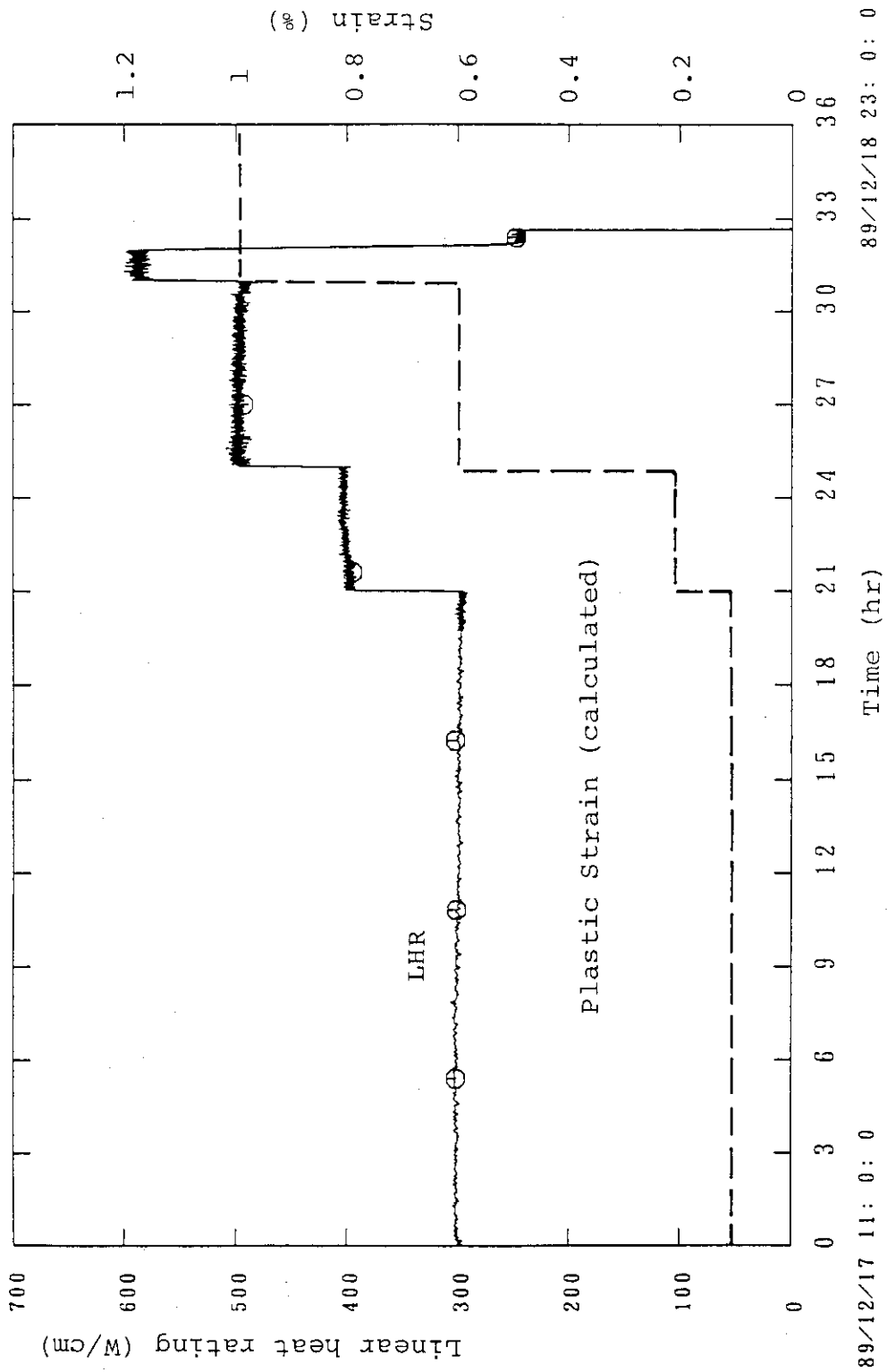
第14図 38Aの出力履歴と被覆管門周応力計算値



第15図 39Aの出力履歴と被覆管円周応力計算値



第16図 40Aの出力履歴と被覆管周芯力計算値(出力急昇期間)



第17図 40Aの塑性歪(等価歪)計算値

付録 ヨウ素分圧の計算方法

燃料棒内のヨウ素分圧は、化学平衡計算コードMPEC2の計算結果から推定した。このコードは、体系を構成する元素組成と考えられる化学種を、熱力学データとともに与えておき、体系の自由エネルギー（ヘルムホルツまたはギブズ）を最小にする化学種の構成を求めるものである。

今問題にする体系は、被覆管を無視して燃料ペレットと添加粉末だけの平衡を考えると、U、O、Mo、Cs、Iの5元系である（全圧を規定する元素としてHeを考慮にいれている）。これらの元素の化合物として、付表1に示すように気相で8、液相で1、固相で24の化学種を考慮した。気相化学種は理想溶体（理想気体）として扱い、液相、固相化学種はそれぞれ純粋物質として扱った。UO_{2-x}は溶体として扱うべきであるが、理想溶体からのずれが非常に大きく⁽²³⁾、また正則溶体としても扱えない。MPEC2は理想溶体と正則溶体しか扱えないので、UO_{2-x}は溶体としてでなく、UO_{2.002}、UO_{2.003}のようにとびとびの組成をもつ純粋物質として列挙する方針をとった。

付表1には熱力学データが記載されているが、これらは標準ギブズ生成自由エネルギー ΔG_f° を

$$\Delta G_f^\circ(T) = \Delta H_f^\circ(298) - T \Delta S_f^\circ(298)$$

により近似した場合の係数、 $\Delta H_f^\circ(298)$ (J/mole)、 $-\Delta S_f^\circ(298)$ (J/mole·K)である。ただし計算は定圧問題ではなく、体積を一定としたヘルムホルツ自由エネルギー最小問題として行った。

計算結果の1例を付表2に示す。これは40Aの組成に対する500°Cでの平衡を示すもので、UO₂ペレットがすべて平衡にかかわるとした場合である。コードは列挙した化学種の中からギブズの相律を満足する範囲の数の、自由エネルギーを最小にする化合物の種類と量を決定する。この例ではCs₂Mo₂O₇が形成されており、これが気相におけるヨウ素(I, I₂)分圧を決定している。

付表 I 平衡計算に用いた化学種と熱力学定数

** MPEC ** CODE FOR EQUILIBRIUM CHEMICAL COMPOSITION

SCC BY OXIDATION OF CSI

THERMODYNAMIC DATA ** IFEF= 1(IF MINUS, FREE ENERGY FUNCTION IS GIVEN BY TDDATA)

NO.	SPECIES	GF298(J/MOL)	T**I	0	1	2	0	0
1	HE	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
2	H2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
3	H2O	0.0	-2.8583E+05	0.0	1.6316E+02	0.0	0.0	0.0
4	O2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
5	CS	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
6	I	0.0	7.6700E+04	0.0	-5.2600E+01	0.0	0.0	0.0
7	I2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
8	CSI	0.0	-1.8822E+05	0.0	-5.9750E+01	0.0	0.0	0.0
9	CS2O(L)	0.0	-3.0450E+05	0.0	7.8800E+01	0.0	0.0	0.0
10	CSI(S)	0.0	-3.8200E+05	0.0	9.5300E+01	0.0	0.0	0.0
11	MO(S)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
12	MOO2	0.0	-5.7820E+05	0.0	1.6650E+02	0.0	0.0	0.0
13	MO4O11	0.0	-2.7760E+06	0.0	8.8600E+02	0.0	0.0	0.0
14	MOO3	0.0	-7.4010E+05	0.0	2.4670E+02	0.0	0.0	0.0
15	CS2MOO4	0.0	-1.5140E+06	0.0	3.6050E+02	0.0	0.0	0.0
16	CS2MO2O7	0.0	-2.3020E+06	0.0	6.0520E+02	0.0	0.0	0.0
17	CS6MO2O9	0.0	-3.5000E+06	0.0	8.6390E+02	0.0	0.0	0.0
18	UO2(2)	0.0	-1.0843E+06	0.0	1.7820E+02	0.0	0.0	0.0
19	UO2.001	0.0	-1.0844E+06	0.0	1.7828E+02	0.0	0.0	0.0
20	UO2.002	0.0	-1.0846E+06	0.0	1.7827E+02	0.0	0.0	0.0
21	UO2.003	0.0	-1.0847E+06	0.0	1.7827E+02	0.0	0.0	0.0
22	UO2.006	0.0	-1.0851E+06	0.0	1.7828E+02	0.0	0.0	0.0
23	UO2.010	0.0	-1.0857E+06	0.0	1.7830E+02	0.0	0.0	0.0
24	UO2.018	0.0	-1.0868E+06	0.0	1.7840E+02	0.0	0.0	0.0
25	UO2.032	0.0	-1.0887E+06	0.0	1.7863E+02	0.0	0.0	0.0
26	UO2.056	0.0	-1.0919E+06	0.0	1.7918E+02	0.0	0.0	0.0
27	UO2.1	0.0	-1.0979E+06	0.0	1.8047E+02	0.0	0.0	0.0
28	U4O9(S)	0.0	-4.5100E+06	0.0	7.8780E+02	0.0	0.0	0.0
29	U3O8(S)	0.0	-3.5740E+06	0.0	6.8910E+02	0.0	0.0	0.0
30	CS2UO4	0.0	-1.9263E+06	0.0	4.1080E+02	0.0	0.0	0.0
31	CS2U4O12	0.0	-5.5739E+06	0.0	1.0750E+03	0.0	0.0	0.0
32	2UO3.56	0.0	-1.7397E+06	0.0	3.4660E+02	0.0	0.0	0.0

*** ELEMENT U WAS REPLACED BY SPECIES UO2(2)

** CONVERGED, ITERATION= 14 (LIMIT=14) TIME (MS)= 65.000 TIME FOR INITIAL GUESS (MS)= 4.000

付表2 平衡計算結果の1例 (40A、500℃の場合)

** MPEC ** CODE FOR EQUILIBRIUM CHEMICAL COMPOSITION
 SCC BY OXIDATION OF CSI

CASE 8 TEMPERATURE (K)= 773.15 (CONSTANT VOLUME) PRESSURE(ATM)= 2.822 GAS VOLUME (M**3)= 5.330E-06
 INPUT GRAM-ATOMS OF ELEMENTS H O I CS MO U HE
 1.000E-10 2.696E+00 3.850E-04 3.850E-04 1.390E-03 1.333E+00 2.370E-04

NO.	SPECIES	MIXTURE	G/RT	MOLES	ACTIVITY	PARTIAL PRESSURE(ATM)
1	HE	1	0.0	2.3700E-04	2.8216E+00	2.8216E+00
2	H2	1	0.0	1.6625E-13	1.9793E-09	1.9793E-09
3	H2O	1	-24.833	4.9834E-11	5.9331E-07	5.9331E-07
4	O2	1	0.0	2.0314E-21	2.4185E-17	2.4185E-17
5	CS	1	0.0	6.4059E-24	7.6267E-20	7.6267E-20
6	I	1	5.604	6.0854E-09	7.2450E-05	7.2450E-05
7	I2	1	0.0	3.2485E-08	3.8676E-04	3.8676E-04
8	CSI	1	-36.455	8.5651E-10	1.0197E-05	1.0197E-05
9	CS2O(L)	2	-37.880	0.0	0.0	0.0
10	CSI(S)	3	-47.948	3.8493E-04	1.0000E+00	0.0
11	MO(S)	4	0.0	0.0	0.0	0.0
12	MO2	5	-69.900	1.3899E-03	1.0000E+00	0.0
13	MO4O11	6	-325.182	0.0	0.0	0.0
14	MO3	7	-85.435	0.0	0.0	0.0
15	CS2MO04	8	-192.106	0.0	0.0	0.0
16	CS2MO207	9	-285.230	3.5520E-08	1.0000E+00	0.0
17	CS6MD209	10	-440.433	0.0	0.0	0.0
18	UO2(2)	11	-147.200	0.0	0.0	0.0
19	UO2.001	12	-147.212	0.0	0.0	0.0
20	UO2.002	13	-147.233	0.0	0.0	0.0
21	UO2.003	14	-147.255	0.0	0.0	0.0
22	UO2.006	15	-147.318	0.0	0.0	0.0
23	UO2.010	16	-147.399	0.0	0.0	0.0
24	UO2.018	17	-147.557	1.1026E+00	1.0000E+00	0.0
25	UO2.032	18	-147.824	2.3039E-01	1.0000E+00	0.0
26	UO2.056	19	-148.265	0.0	0.0	0.0
27	UO2.1	20	-149.042	0.0	0.0	0.0
28	U4O9(S)	21	-606.653	0.0	0.0	0.0
29	U3O8(S)	22	-472.958	0.0	0.0	0.0
30	CS2U04	23	-250.177	0.0	0.0	0.0
31	CS2U4O12	24	-737.575	0.0	0.0	0.0
32	2UO3.56	25	-228.877	0.0	0.0	0.0

*** (CONST. VOLUME) TOTAL HELMHOLTZ FREE ENERGY= -1.2659E+06 JOULE

*** ELEMENT U WAS REPLACED BY SPECIES UO2(2)

** CONVERGED, ITERATION= 14 (LIMIT=14) TIME (MS)= 65.000 TIME FOR INITIAL GUESS (MS)= 4.000