

JAERI-Research

95-077



出力暴走条件下における
アルミニウム被覆ウランシリサイド板状燃料の
溶融及び機械的エネルギーの発生

1995年10月

更田豊志・石島清見・藤城俊夫
曾山和彦・市川博喜・古平恒夫

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

本レポートは、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。

入手の問い合わせは、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、お申し越してください。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。

This report is 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, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

出力暴走条件下における
アルミニウム被覆ウランシリサイド板状燃料の
熔融及び機械的エネルギーの発生

日本原子力研究所東海研究所原子炉安全工学部

更田 豊志・石島 清見・藤城 俊夫

曾山 和彦⁺・市川 博喜⁺・古平 恒夫⁺⁺

(1995年10月16日受理)

燃料全体に及ぶ熔融、更には微粒子化に伴って機械的エネルギーの発生に至る苛酷な出力暴走条件下で、アルミニウム被覆ウラン・シリサイド板状燃料のNSRRにおけるパルス照射実験を実施した。即発発熱量 $1.68\text{kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ で、発熱部に貫通口を生じ、下部に熔融物の塊を生ずるなど著しい変形が見られたが、この条件では U_3Si_2 燃料粒子は外周部にアルミニウム母材との反応相を形成するものの完全な熔融には至っておらず、即発発熱量が $1.99\text{kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ 以上に達すると U_3Si_2 粒子は完全に熔融し、凝固後広い範囲に亘って樹状晶が観察された。一方、燃料の微粒子化及び機械的エネルギー発生しきい値は約 $3.4\text{kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ で、即発発熱量の上昇に伴って機械的エネルギー転換率は増大し、最大4.3%に達した。また、この微粒子化及び機械的エネルギーの発生は、試験燃料に $2.1\sim 2.2\text{kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ の発熱を生じた時点で起こっており、試験後の燃料粒子は、機械的エネルギーの発生に対するアルミニウムの寄与が大きいことを示している。

Fuel Melting and Mechanical Energy Generation
during Power Burst Experiments
with Aluminum-cladding Uranium Silicide Fuel Plate

Toyoshi FUKETA, Kiyomi ISHIJIMA, Toshio FUJISHIRO
Kazuhiko SOYAMA⁺, Hiroki ICHIKAWA⁺ and Tuneso KODAIRA⁺⁺

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

(Received October 16, 1995)

Fuel melting and dispersion resulting in mechanical energy generation were investigated through NSRR pulse irradiation experiments with aluminum-cladding uranium silicide fuel plate. In the experiment with the prompt energy deposition of $1.68 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$, plate through opening and once-molten debris clot are generated due to fuel melting and relocation. In this condition, however, U_3Si_2 fuel particles are not completely molten, and produce reaction phases with aluminum matrix in the particle periphery. When the prompt energy deposition exceeds $1.99 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$, the fuel particles become molten, and dendrite structure is observed in extensive area. The results indicate that the threshold of materials dispersion and resulting mechanical energy generation in terms of the prompt energy deposition is approximately $3.4 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$. The nuclear energy to mechanical energy conversion ratio becomes higher in the increased energy deposition level, and reaches 4.3% at maximum in this series of experiments. The fuel fragmentation and mechanical energy generation occurs when the stored nuclear energy reaches 2.1 to 2.2 $\text{kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$. Post-test debris particles show significant contribution of aluminum melt in fuel/coolant interaction process.

Keywords: Uranium Silicide Fuel, Aluminum Cladding, Fuel Behavior, Fuel Melting, Fuel Dispersion, Fuel/Coolant Interaction, NSRR, Pulse Irradiation

⁺ Department of Research Reactor

⁺⁺ Department of Hot Laboratories

目 次

1. 緒 論	1
2. 試験燃料及び実験方法	1
3. 実験結果及び考察	3
3.1 燃料の溶融挙動	3
3.2 燃料の微粒子化及び機械的エネルギーの発生	4
4. 結 論	6
謝 辞	7
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Test Fuel and Experimental Method	1
3. Results and Discussion	3
3.1 Fuel Melting	3
3.2 Fuel Dispersion and Mechanical Energy Generation	4
4. Conclusion	6
Acknowledgement	7
References	8

1. 緒 論

NSRRでは、異常過渡あるいは事故条件下におけるアルミニウム被覆ウラン・シリサイド板状燃料（以下シリサイド燃料）の挙動を実験的に解明することを目的として、シリサイド燃料ミニプレートのパルス照射実験を実施している。シリサイド燃料を使用する研究炉におけるシビアアクシデント時の燃料挙動に関する炉内実験はこれまでにほとんど例が無い。オークリッジ国立研究所（ORNL）で設計・開発が進められていた新型中性子源（Advanced Neutron Source; ANS）の安全評価の中では、冷却材流量の全面喪失を運転中に生じた場合には、4 ms 以内に全炉心溶融に至るといった解析がなされており、燃料の溶融・変形挙動及び溶融燃料と冷却材との直接接触による燃料/冷却材相互作用などに関する知見の蓄積など、シビアアクシデント時の燃料挙動の解明が極めて重要な要求となっていた。ANSの開発及び建設は1995年度限りで計画中止となったが、ORNLは既存の研究炉HFIR（High Flux Isotope Reactor）のシリサイド燃料化を検討しており、シビアアクシデント条件下における燃料挙動に関する研究は、HFIRの安全評価に加えて、より高度の研究、同位体生産及び材料照射能力を実現するための、次世代型試験研究炉の設計・開発に大きく寄与するものと考えられる。そこで、NSRRにおけるシリサイド燃料のパルス照射を実施し、燃料の溶融挙動、微粒子化及び機械的エネルギーの発生しきい値及び機械的エネルギー転換率についての実験的研究を行った。

2. 試験燃料及び実験方法

本研究で使用した試験燃料は、NSRR実験用に製作した全長130 mm、幅35 mm、厚さ1.27 mmの小型板状ウラン・シリサイド燃料（ミニプレート）で、中央部に U_3Si_2 燃料粒子がアルミニウム母材中に担持され、被覆材に挟み込まれている。Fig. 1に試験燃料の概略を、Table 1に主な仕様を示す。単位容積に含まれるウラン質量を示す燃料密度は 4.8 g/cm^3 で、現在使用されているシリサイド燃料の中で最も高密度であり、言い換えればアルミニウム母材中に U_3Si_2 燃料粒子が最も密に配されているものである。この試験燃料をNSRRにおける未照射シリサイド燃料及び未照射アルミナイド燃料実験用カプセル中に、アルミニウム製支持具、冷却水、計装類とともに収め、パルス照射に供した。実験用カプセルは内法高さ759 mm、内径100 mmのステンレス鋼製耐圧容器で、Fig. 2にその概略を示す。NSRRにおけるパルス照

1. 緒 論

NSRRでは、異常過渡あるいは事故条件下におけるアルミニウム被覆ウラン・シリサイド板状燃料（以下シリサイド燃料）の挙動を実験的に解明することを目的として、シリサイド燃料ミニプレートのパルス照射実験を実施している。シリサイド燃料を使用する研究炉におけるシビアアクシデント時の燃料挙動に関する炉内実験はこれまでにほとんど例が無い。オークリッジ国立研究所（ORNL）で設計・開発が進められていた新型中性子源（Advanced Neutron Source; ANS）の安全評価の中では、冷却材流量の全面喪失を運転中に生じた場合には、4 ms 以内に全炉心溶融に至るといった解析がなされており、燃料の溶融・変形挙動及び溶融燃料と冷却材との直接接触による燃料/冷却材相互作用などに関する知見の蓄積など、シビアアクシデント時の燃料挙動の解明が極めて重要な要求となっていた。ANSの開発及び建設は1995年度限りで計画中止となったが、ORNLは既存の研究炉HFIR（High Flux Isotope Reactor）のシリサイド燃料化を検討しており、シビアアクシデント条件下における燃料挙動に関する研究は、HFIRの安全評価に加えて、より高度の研究、同位体生産及び材料照射能力を実現するための、次世代型試験研究炉の設計・開発に大きく寄与するものと考えられる。そこで、NSRRにおけるシリサイド燃料のパルス照射を実施し、燃料の溶融挙動、微粒子化及び機械的エネルギーの発生しきい値及び機械的エネルギー転換率についての実験的研究を行った。

2. 試験燃料及び実験方法

本研究で使用した試験燃料は、NSRR実験用に製作した全長130 mm、幅35 mm、厚さ1.27 mmの小型板状ウラン・シリサイド燃料（ミニプレート）で、中央部に U_3Si_2 燃料粒子がアルミニウム母材中に担持され、被覆材に挟み込まれている。Fig. 1に試験燃料の概略を、Table 1に主な仕様を示す。単位容積に含まれるウラン質量を示す燃料密度は 4.8 g/cm^3 で、現在使用されているシリサイド燃料の中で最も高密度であり、言い換えればアルミニウム母材中に U_3Si_2 燃料粒子が最も密に配されているものである。この試験燃料をNSRRにおける未照射シリサイド燃料及び未照射アルミナイド燃料実験用カプセル中に、アルミニウム製支持具、冷却水、計装類とともに収め、パルス照射に供した。実験用カプセルは内法高さ759 mm、内径100 mmのステンレス鋼製耐圧容器で、Fig. 2にその概略を示す。NSRRにおけるパルス照

射中の計装としては、素線径 0.2 mm の R 型熱電対を被覆材表面の 5 ヶ所に直接スポット溶接し、その温度を測定したほか、カプセル底部及び上部カバーガス部に圧力センサーを取り付け、燃料破損に伴って発生する圧力波及びカバーガスの圧力上昇をそれぞれ測定した。更に、機械的エネルギーを評価するために Fig. 3 に示す水塊速度計を備え、水撃力の発生による水塊の移動速度を測定した。水塊速度計は、磁石を備えた冷却材表面に浮かぶフロートと、等間隔に並ぶ直列コイルを配した中心棒から構成されており、各々のコイルは隣接するコイルと逆方向に巻かれている。冷却材の吹き上げによって水塊が移動し、水とほぼ同程度の密度を持つフロートが水塊とともに移動すると、フロートに取り付けられた磁石の移動に伴ってコイルに正弦波状の起電力を生ずる。この正弦波の波長の $1/2$ が一つのコイルをフロートが通過する時間に相当し、コイルの間隔と通過時間から水塊の移動速度が得られる。NSRR 実験では、試験燃料中心から冷却材表面までの水塊質量を仮定し、水塊速度計から得た最大速度から水塊の運動エネルギーを算出し、機械的エネルギーを評価している。

実験は全て大気圧・静止水冷却条件下で行い、パルス照射時の投入反応度を変化させ、パルス照射中に生ずる即発的な発熱量をパラメータとした。NSRR 実験では、試験燃料の仕様（寸法、濃縮度、燃料密度、燃焼度など）と実験体系（実験カプセルの寸法・形状・材質、減速材の量・密度など）とが同一であれば、複数の実験において、実験孔に挿入された実験カプセル内の試験燃料の発熱量（出力の時間積分値）と、NSRR の積分出力との間に比例関係が成り立つ。即ち、実験孔内も含めて炉心体系が同じであれば、出力の絶対値は異なっても、その分布は相似であり、NSRR の炉心燃料部と試験燃料部の中性子束の比は一定である。従って、NSRR の炉心燃料と試験燃料との出力比は近似的に一定となる。しかしながら、ここで比例関係が成り立つのは、以下に述べる無限時間までの積分出力 NVT_{∞} と無限時間までの発熱量（全発熱量） Q_{∞} との間である。核計算や実験後の試験燃料に対する放射線強度測定あるいは化学分析から評価される発熱量は、運転開始から 1 秒以降も続いている NSRR ランアウト出力部分での発熱を含んだもの（無限時間までの発熱量：全発熱量 Q_{∞} ）となっている。ランアウト出力部分での単位時間当たりの発熱量は、パルス部分に比べて $10^{-2} \sim 10^{-3}$ のオーダーであり、極めて緩やかなものであるが、パルス後、長時間に亘って持続するために積分量としてはかなりのものになり、投入反応度 β 1.5 程度の小さなパルス運転では全発熱量のおよそ半分が、NSRR の最大パルスでも 2 割程度がランアウト出力部分の発熱となる。これに対して、NSRR の単一パルス運転においては、核計装における炉出力積分回路は運転開始から 1 秒で

計算を打ち切るため、実験の際に計測されるNSRR積分出力は1秒までのもの(NVT_{1s})となっている。このため本研究では、EUREKAコードによる解析⁽¹⁾に基づいて、計測された1秒までの積分出力 NVT_{1s} より、無限時間までの積分出力 NVT_{∞} を求めるとともに、パルス照射後の試験燃料に対する γ 線測定から得られた核分裂数により全発熱量 Q_{∞} を求め、発熱量換算係数 Q_{∞}/NVT_{∞} を定めた。この方法により求めた換算係数は $75.8 \text{ J}/(\text{MW}\cdot\text{s}\cdot\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2)$ であり、VIMコード⁽²⁾を用いた核計算⁽³⁾により求めた値 $83.0 \text{ J}/(\text{MW}\cdot\text{s}\cdot\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2)$ との間で10%以内の範囲で一致を見た。本研究では実験的に求めた発熱量換算係数 $75.8 \text{ J}/(\text{MW}\cdot\text{s}\cdot\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2)$ 及び各実験毎に評価した NVT_{∞} よりそれぞれの実験における即発発熱量 Q_{∞} を求めた。

更に、ランアウト出力部分における発熱は、前にも述べたようにパルスにおける即発的な発熱に比べて極めて緩やかに続くものであるため、燃料温度の上昇などにはほとんど寄与しない。このため、ランアウト出力の寄与並びに遅発的な発熱分を全発熱量から除いた即発的な発熱量(以下、即発発熱量: Prompt Energy Deposition) Q_p をEUREKAコードによる解析⁽¹⁾に基づく評価⁽⁴⁾から各実験毎に求め、これをパラメータとした。なお、NSRRにおける軽水炉燃料実験では一般に、パルスが半値幅数msと極めて急峻なものであることや、燃料ペレットがギャップを介して被覆管に収められていることなどから、この間の除熱を無視し、即発発熱量をピーク燃料エンタルピとしている。 NVT_{∞} 並びに Q_p を求める方法の詳細については文献^(1, 5)を参照されたい。

3. 実験結果及び考察

3. 1 燃料の溶融挙動

Photographs 1から6に、即発発熱量 $1.68 \text{ kJ}/\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ から $3.48 \text{ kJ}/\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ の範囲で段階的に投入反応度を上昇させた6回の実験におけるパルス照射後の試験燃料の外観を示す。いずれの実験でも試験燃料全体に及ぶ著しい変形・移動を生じており、即発発熱量 $3.48 \text{ kJ}/\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ では微粒子化に至っている。被覆材表面に取り付けた熱電対信号の一例として、即発発熱量 $1.68 \text{ kJ}/\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ の実験で発熱部中央に配した熱電対の出力波形を、NSRRのパルス出力の過渡記録とともにFig. 4に示す。パルス照射開始とともに被覆材表面温度は速やかに上昇し、アルミニウムの融点(933.5 K)を超えたところで温度上昇が緩やかになった後、熱電対が破損する。このような試験燃料全体に亘るような変形・溶融を伴う実験では、溶融の進展に伴って、被覆

計算を打ち切るため、実験の際に計測されるNSRR積分出力は1秒までのもの(NVT_{1s})となっている。このため本研究では、EUREKAコードによる解析⁽¹⁾に基づいて、計測された1秒までの積分出力 NVT_{1s} より、無限時間までの積分出力 NVT_{∞} を求めるとともに、パルス照射後の試験燃料に対する γ 線測定から得られた核分裂数により全発熱量 Q_{∞} を求め、発熱量換算係数 Q_{∞}/NVT_{∞} を定めた。この方法により求めた換算係数は $75.8 \text{ J}/(\text{MW}\cdot\text{s}\cdot\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2)$ であり、VIMコード⁽²⁾を用いた核計算⁽³⁾により求めた値 $83.0 \text{ J}/(\text{MW}\cdot\text{s}\cdot\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2)$ との間で10%以内の範囲で一致を見た。本研究では実験的に求めた発熱量換算係数 $75.8 \text{ J}/(\text{MW}\cdot\text{s}\cdot\text{g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2)$ 及び各実験毎に評価した NVT_{∞} よりそれぞれの実験における即発発熱量 Q_{∞} を求めた。

更に、ランアウト出力部分における発熱は、前にも述べたようにパルスにおける即発的な発熱に比べて極めて緩やかに続くものであるため、燃料温度の上昇などにはほとんど寄与しない。このため、ランアウト出力の寄与並びに遅発的な発熱分を全発熱量から除いた即発的な発熱量(以下、即発発熱量: Prompt Energy Deposition) Q_p をEUREKAコードによる解析⁽¹⁾に基づく評価⁽⁴⁾から各実験毎に求め、これをパラメータとした。なお、NSRRにおける軽水炉燃料実験では一般に、パルスが半値幅数msと極めて急峻なものであることや、燃料ペレットがギャップを介して被覆管に収められていることなどから、この間の除熱を無視し、即発発熱量をピーク燃料エンタルピとしている。 NVT_{∞} 並びに Q_p を求める方法の詳細については文献^(1, 5)を参照されたい。

3. 実験結果及び考察

3. 1 燃料の溶融挙動

Photographs 1 から 6 に、即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ から $3.48 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ の範囲で段階的に投入反応度を上昇させた6回の実験におけるパルス照射後の試験燃料の外観を示す。いずれの実験でも試験燃料全体に及ぶ著しい変形・移動を生じており、即発発熱量 $3.48 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ では微粒子化に至っている。被覆材表面に取り付けた熱電対信号の一例として、即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$ の実験で発熱部中央に配した熱電対の出力波形を、NSRRのパルス出力の過渡記録とともに Fig. 4 に示す。パルス照射開始とともに被覆材表面温度は速やかに上昇し、アルミニウムの融点 (933.5 K) を超えたところで温度上昇が緩やかになった後、熱電対が破損する。このような試験燃料全体に亘るような変形・溶融を伴う実験では、溶融の進展に伴って、被覆

材表面よりもむしろ発熱部に相当する温度を測定する可能性が考えられる。即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ 及び $1.99 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の2回の実験では、共に発熱部下部に熔融物の塊を形成しているが、ここで特徴的な点は、**Photo. 7**からわかるように、即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験では個々の U_3Si_2 粒子がアルミニウム母材中にほぼ一様に分散しているのに対して、即発発熱量 $1.99 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験では燃料が幾つかの部位に凝集していることである。即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験では、**Photo. 8**に示すように U_3Si_2 粒子は周辺部に新たな2つの相を形成しているものの、ほぼ元の形を保っているのに対して、即発発熱量 $1.99 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験では **Photo. 9**のように、粒子形状は消え、樹状晶の形成が広い範囲に亘って観察される。

即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験における貫通口の形成や塊の形成などの著しい変形は、主に被覆材及び U_3Si_2 燃料粒子を担持しているアルミニウム母材の熔融の寄与によるものと考えられる。この実験で燃料粒子周辺部に見られた新たな層に関しては、EPMAによる線分析及び定量分析を実施した。**Photo. 10**に線分析の結果を、そして**Fig. 5**に定量分析で測定した各相の組成を示す。

一方、即発発熱量 $1.99 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ 以上の実験では、**Photo. 11**に見られるような樹状晶の形成及び燃料の凝集が広い範囲に亘って観察され、 U_3Si_2 燃料粒子はほぼ完全な熔融に至っている。 U_3Si_2 燃料粒子とアルミニウムとの反応は 860 K 以上で $0.29 \sim 0.36 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の発熱を伴うため、⁽⁶⁾ 全燃料粒子の反応を仮定するとこれに相当する発熱が付加されることになる。また、即発発熱量が $1.99 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ あるいは $2.37 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ と、即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験よりも高い2実験において貫通口を生じなかった理由としては、 U_3Si_2 燃料粒子の熔融、アルミニウムとの混合に伴い、アルミニウム単体の場合と比較して熔融時の粘性が高まったためと考えられる。

3. 2 燃料の微粒子化及び機械的エネルギーの発生

Photograph 6で見られたように、即発発熱量 $3.48 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験では試験燃料発熱部分の微粒子化を生じ、冷却材の吹き上げによる機械的エネルギーの発生に至った。これまでに実施した実験で、機械的エネルギーの発生に至らなかった最も高い即発発熱量は $3.30 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ であることから、機械的エネルギー発生しきい値は、 $3.30 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ から $3.48 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の範囲にあるといえる。一方、カプセル底部で測定した圧力については、機械的エネルギーが発生した実験では、 0.2 MPa から 0.8 MPa の範囲で、より発熱量の高い実験ほど高い衝撃圧力が測定されて

いるが、機械的エネルギーの発生に至らなかった実験でも 0.2 MPa から 0.6 MPa の圧力波の発生が測定されており、機械的エネルギー発生の有無による顕著な変化は見られない。

機械的エネルギーを評価するための水塊速度計の出力信号の一例として、Fig. 6 に即発発熱量 $3.48 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験における出力信号記録を示す。水撃力の発生に伴う水塊の加速及び減速、更にはカプセル上部に衝突後の降下の際の信号が得られている。このような水塊速度計出力信号から各実験における水塊上昇時の移動速度を求めると Fig. 7 のようになる。そして、水塊の最大速度から機械的エネルギーを求め、機械的エネルギーと試験燃料全体の即発発熱量との比である機械的エネルギー転換率を下式のように定義する。

$$\eta = \frac{Ke}{m \cdot Q_p} \times 100$$

ここで、それぞれ η は機械的エネルギー転換率 (%)、 Ke は機械的エネルギー (kJ)、 m は試験燃料中の U_3Si_2 質量 ($\text{g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$)、 Q_p は即発発熱量 ($\text{kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$) である。Figure 8 に即発発熱量と機械的エネルギー転換率との関係を示す。機械的エネルギー転換率は即発発熱量の増加とともに指数関数的に上昇しており、即発発熱量 $4.74 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の実験では 4.3% に至った。NSRRにおける未照射酸化ウラン燃料実験では、 $500 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ を超える発熱量で、機械的エネルギー転換率は標準試験燃料に対して 0.5% 以下、⁽⁷⁾ 高加圧燃料棒でも 1.3% 程度となっており、⁽⁸⁾ これらと比較してシリサイド燃料実験で測定された機械的エネルギー転換率は高い値といえる。酸化ウラン燃料実験の場合、被覆管は溶融せず、燃料/冷却材相互作用は被覆管の破損口から噴出した燃料と冷却水の間で生ずる。この際、燃料/冷却材相互作用に寄与する溶融した燃料の割合は、全体の20%以下であると評価されている。これに比べて、本研究で対象としたシリサイド燃料は被覆材並びに燃料粒子及びその担体ともに低融点の物質 (アルミニウム: 933.5 K, A6061 合金: 925 K, U_3Si_2 : 1938 K, U_3Si : 1258 K) で構成されており、燃料/冷却材相互作用に寄与する溶融部分の割合ははるかに大きくなる。更に板状燃料は、その形状から表面積/質量比が大きく、冷却材との初期接触面積が大きいことなどが、高い機械的エネルギー転換率の発生に寄与しているものと考えられる。また、前にも述べたように、860 K 以上で U_3Si_2 とアルミニウムとの間に反応熱 $0.29 \sim 0.36 \text{ kJ/g} \cdot \text{U}_3\text{Si}_2$ の発熱反応が生ずる。これまでのところ、機械的エネルギー転換率の分母となる試験燃料全体の即発発熱量 $m \cdot Q_p$ にはこの反応熱を考慮しておらず、このことも高い機械的エネルギー転換率を与える一因となっているものと考えられる。

この U_3Si_2 /アルミニウム反応の寄与に関する評価は今後の課題である。

Figure 9 に即発発熱量 $4.03 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の実験における NSRR パルス出力、カプセル底部で測定した圧力及び水塊速度計の過渡記録を示す。この実験では、試験燃料の微粒子化とこれに伴う機械的エネルギーの発生は、NSRR 出力がピークに達する直前に生じていることがわかる。そこで、圧力の上昇開始と水塊速度計の起動をもって微粒子化を生じたものとし、その時点における NSRR 積分出力から破損時発熱量を求めた。即発発熱量と破損時発熱量との関係を **Fig. 10** に示す。この図で、破損時発熱量は即発発熱量に係わらずほぼ一定となっており、 $2.1 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ から $2.2 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の間で試験燃料は微粒子化し、機械的エネルギーの発生に至っていることがわかる。

実験後、カプセル内部から冷却材とともに回収した微粒子化した試験燃料を篩分し、粒子径分布を測定するとともに、各粒子径範囲毎に樹脂固定し、粒子断面の金相試験観察を行った。**Figure 11** に 4mm 以下に微粒子化した試験燃料の粒子径分布を示す。より高い即発発熱量、即ちより大きな機械的エネルギーの発生に至った実験ほど、激しい微粒子化を生じている様子がわかる。**Photograph 12** は、即発発熱量 $3.48 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の実験における微粒子の金相写真の一例であるが、一旦溶融したことを示している球形粒子には、燃料/冷却材相互作用（水蒸気爆発）実験で一般に観察される中空粒子の特徴が観察される。⁽⁸⁾ また、金相試料研磨面の腐食前後（腐食後の面では、アルミニウムは黒くなる）を比較した **Photo. 13** から、微粒子化した粒子のかなりの部分がアルミニウムで占められていることがわかる。微粒子化を生じた実験では、極めて細かい粒子による冷却水の白濁を生じており、この細かい粒子の発生は、アルミニウムの着火（水蒸気爆発に起因するアルミニウムの爆発的化学反应）に至った米国の高温溶融アルミニウム/水反応実験⁽⁹⁾でも観察されており、実験後のカプセルカバーガスが昇圧していることと併せて、アルミニウム着火の可能性を示唆するものといえる。

4. 結 論

燃料全体に及ぶ溶融、更には微粒子化に伴って機械的エネルギーの発生に至る苛酷な出力暴走条件下で、即発発熱量をパラメータとしたアルミニウム被覆ウラン・シリサイド板状燃料のパルス照射実験を実施した。即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の実験で、発熱部に貫通口を生じ、下部に溶融物の塊を生ずるなど著しい変形が見られたが、この条件では U_3Si_2 燃料粒子は外周部に

この U_3Si_2 /アルミニウム反応の寄与に関する評価は今後の課題である。

Figure 9 に即発発熱量 $4.03 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の実験における NSRR パルス出力、カプセル底部で測定した圧力及び水塊速度計の過渡記録を示す。この実験では、試験燃料の微粒子化とこれに伴う機械的エネルギーの発生は、NSRR 出力がピークに達する直前に生じていることがわかる。そこで、圧力の上昇開始と水塊速度計の起動をもって微粒子化を生じたものとし、その時点における NSRR 積分出力から破損時発熱量を求めた。即発発熱量と破損時発熱量との関係を **Fig. 10** に示す。この図で、破損時発熱量は即発発熱量に係わらずほぼ一定となっており、 $2.1 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ から $2.2 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の間で試験燃料は微粒子化し、機械的エネルギーの発生に至っていることがわかる。

実験後、カプセル内部から冷却材とともに回収した微粒子化した試験燃料を篩分し、粒子径分布を測定するとともに、各粒子径範囲毎に樹脂固定し、粒子断面の金相試験観察を行った。**Figure 11** に 4mm 以下に微粒子化した試験燃料の粒子径分布を示す。より高い即発発熱量、即ちより大きな機械的エネルギーの発生に至った実験ほど、激しい微粒子化を生じている様子がわかる。**Photograph 12** は、即発発熱量 $3.48 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の実験における微粒子の金相写真の一例であるが、一旦溶融したことを示している球形粒子には、燃料/冷却材相互作用（水蒸気爆発）実験で一般に観察される中空粒子の特徴が観察される。⁽⁸⁾ また、金相試料研磨面の腐食前後（腐食後の面では、アルミニウムは黒くなる）を比較した **Photo. 13** から、微粒子化した粒子のかなりの部分がアルミニウムで占められていることがわかる。微粒子化を生じた実験では、極めて細かい粒子による冷却水の白濁を生じており、この細かい粒子の発生は、アルミニウムの着火（水蒸気爆発に起因するアルミニウムの爆発的化学反应）に至った米国の高温溶融アルミニウム/水反応実験⁽⁹⁾でも観察されており、実験後のカプセルカバーガスが昇圧していることと併せて、アルミニウム着火の可能性を示唆するものといえる。

4. 結 論

燃料全体に及ぶ溶融、更には微粒子化に伴って機械的エネルギーの発生に至る苛酷な出力暴走条件下で、即発発熱量をパラメータとしたアルミニウム被覆ウラン・シリサイド板状燃料のパルス照射実験を実施した。即発発熱量 $1.68 \text{ kJ/g} \cdot U_3Si_2$ の実験で、発熱部に貫通口を生じ、下部に溶融物の塊を生ずるなど著しい変形が見られたが、この条件では U_3Si_2 燃料粒子は外周部に

アルミニウム母材との反応相を形成するものの完全な溶融には至っておらず、即発発熱量が 1.99 kJ/g·U₃Si₂ 以上に達すると U₃Si₂ 粒子粒子は完全に溶融し、凝固後広い範囲に亘って樹状晶が観察される。一方、燃料の微粒子化及び機械的エネルギー発生しきい値は約 3.4 kJ/g·U₃Si₂ で、即発発熱量の上昇に伴って機械的エネルギー転換率は増大し、最大 4.3% に達した。また、この微粒子化及び機械的エネルギーの発生は、試験燃料に 2.1 ~ 2.2 kJ/g·U₃Si₂ の発熱を生じた時点で起こっている。試験後の燃料粒子は、機械的エネルギーの発生に対するアルミニウムの寄与が大きいことを示しており、水素の発生並びにアルミニウムの爆発的な着火の可能性が、U₃Si₂/アルミニウム間の化学反応による発熱の寄与の究明と併せて、今後の課題となる。

謝 辞

本報告書の作成にあたって、資料の提供や御教示を戴いた Rusi P. Taleyarkhan 氏 (Oak Ridge National Laboratory), Gerard L. Hofman 氏 (Argonne National Laboratory), James L. Snelgrove 氏 (Argonne National Laboratory) 及び鈴木敏夫氏 (前燃料研究部分析センター) に謝意を表します。

実験の実施にあたっては、原子炉安全工学部反応度安全研究室及びNSRR管理室並びに原子力エンジニアリング㈱の多くの方々に御尽力戴きました。また、照射後試験の実施に際しては、吉田敏幸氏 (千代田メンテナンス㈱) に、EPMAによるU₃Si₂粒子反応相の特定に際しては、花田也寸志、金沢浩之、木村康彦各氏をはじめとするホット試験室実用燃料試験課の方々に御協力戴きました。深く感謝の意を表します。

最後に、研究の遂行全般に亘って、御指導・御助力を賜りました、鴻坂厚夫安全性試験研究センター長及び大西信秋研究炉部長に深く感謝致します。

アルミニウム母材との反応相を形成するものの完全な溶融には至っておらず、即発発熱量が 1.99 kJ/g·U₃Si₂ 以上に達すると U₃Si₂ 粒子粒子は完全に溶融し、凝固後広い範囲に亘って樹状晶が観察される。一方、燃料の微粒子化及び機械的エネルギー発生しきい値は約 3.4 kJ/g·U₃Si₂ で、即発発熱量の上昇に伴って機械的エネルギー転換率は増大し、最大 4.3% に達した。また、この微粒子化及び機械的エネルギーの発生は、試験燃料に 2.1 ~ 2.2 kJ/g·U₃Si₂ の発熱を生じた時点で起こっている。試験後の燃料粒子は、機械的エネルギーの発生に対するアルミニウムの寄与が大きいことを示しており、水素の発生並びにアルミニウムの爆発的な着火の可能性が、U₃Si₂/アルミニウム間の化学反応による発熱の寄与の究明と併せて、今後の課題となる。

謝 辞

本報告書の作成にあたって、資料の提供や御教示を戴いた Rusi P. Taleyarkhan 氏 (Oak Ridge National Laboratory), Gerard L. Hofman 氏 (Argonne National Laboratory), James L. Snelgrove 氏 (Argonne National Laboratory) 及び鈴木敏夫氏 (前燃料研究部分析センター) に謝意を表します。

実験の実施にあたっては、原子炉安全工学部反応度安全研究室及びNSRR管理室並びに原子力エンジニアリング(株)の多くの方々に御尽力戴きました。また、照射後試験の実施に際しては、吉田敏幸氏(千代田メンテナンス(株))に、EPMAによるU₃Si₂粒子反応相の特定に際しては、花田也寸志、金沢浩之、木村康彦各氏をはじめとするホット試験室実用燃料試験課の方々に御協力戴きました。深く感謝の意を表します。

最後に、研究の遂行全般に亘って、御指導・御助力を賜りました、鴻坂厚夫安全性試験研究センター長及び大西信秋研究炉部長に深く感謝致します。

参 考 文 献

- (1) Ohnishi, N. and Inabe, T., "Evaluation of Effective Energy Deposition in Test Fuel during Power Burst Experiment in NSRR", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.19, No.7, pp.528-542, July 1982.
- (2) Milton, L. J., "VIM user's guide", Applied Physics Division, Argonne National Laboratory, 1981.
- (3) Soyama, K. et al., "Evaluation of Energy Deposition on NSRR Silicide Test Fuel Plates", JAERI-Tech, in preparation.
- (4) 稲邊, 研究室資料, 1985.
- (5) 更田ほか, NSRRウラン水素化ジルコニウム燃料実験における発熱量の解析及び実験用カプセル最大負荷の評価, JAERI-Research 95-005, January 1995.
- (6) Snelgrove, J. L. et al., "Evaluation of Existing Technology Base for Candidate Fuels for the HWR-NPR", ANL/NPR-93/002, Argonne National Laboratory, February 1993.
- (7) Fujishiro, T. and Fuketa, T., "NSRR Experimental Results of Fuel/Coolant Interaction during a Severe Reactivity Initiated Accident", Proc. 4th Int. Topical Mtg. Nucl. Reactor Thermal-Hydraulics (NURETH-4), Karlsruhe, Germany, Oct. 10-13, Vol.1, pp.297-303, 1989.
- (8) Fuketa, T. and Fujishiro, T., "Generation of Destructive Forces during Fuel/Coolant Interactions Under Severe Reactivity Initiated Accident Conditions", Nucl. Eng. Des., Vol.146, pp.181-194, 1994.
- (9) Nelson, L. S., "Steam Explosions of Single Drops of Pure and Alloyed Molten Aluminum", Proc. CSNI Specialist Meeting on Fuel-Coolant Interactions, Santa Barbara, Jan. 5-8, NUREG/CP-0127 NEA/CSNI/R(93)8, pp.259-270, 1993.

Table 1 Primary specifications of uranium silicide fuel miniplate tested in the NSRR

PLATE	
Height	: 130 mm
Width	: 35 mm
Thickness	: 1.27 mm
Total mass	: 18.8 to 19.2 g
Manufacturer	: Babcock & Wilcox
FUELED CORE	
Material	: U_3Si_2 particle dispersed in aluminum matrix
Height	: 70 mm
Width	: 25 mm
Thickness	: 0.51 mm
U-235 enrichment	: 20%
U_3Si_2 mass	: 4.49 to 4.64 g
Uranium mass	: 4.16 to 4.30 g
Uranium density	: 4.8 g-U/cm ³
CLADDING	
Material	: A6061 (Al-1Mg-0.6Si-0.3Cu-0.3Cr)
Thickness	: 0.38 mm

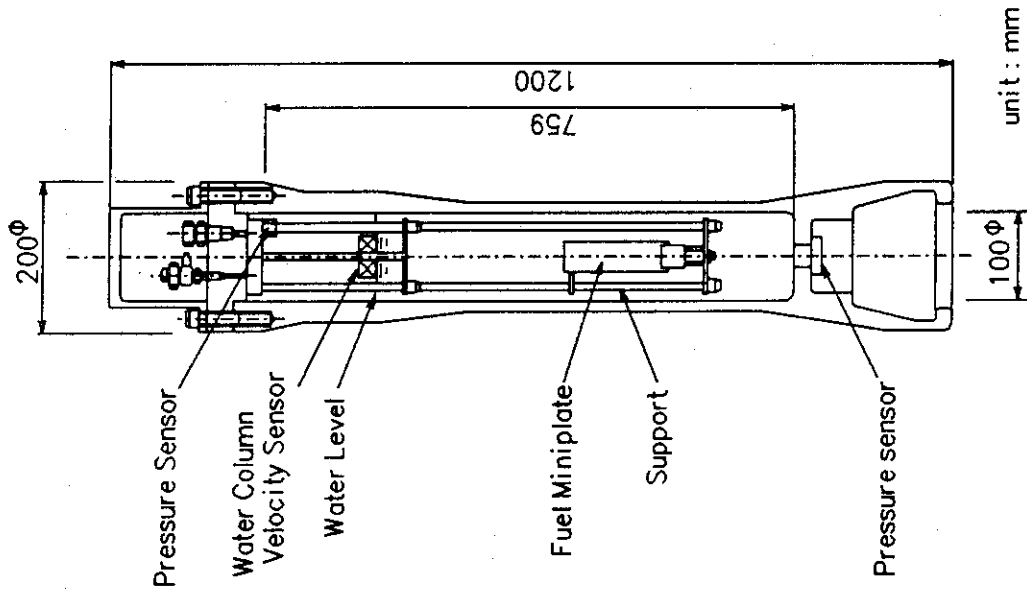


Fig. 2 Schematics of test capsule for pulse irradiation in the NSRR

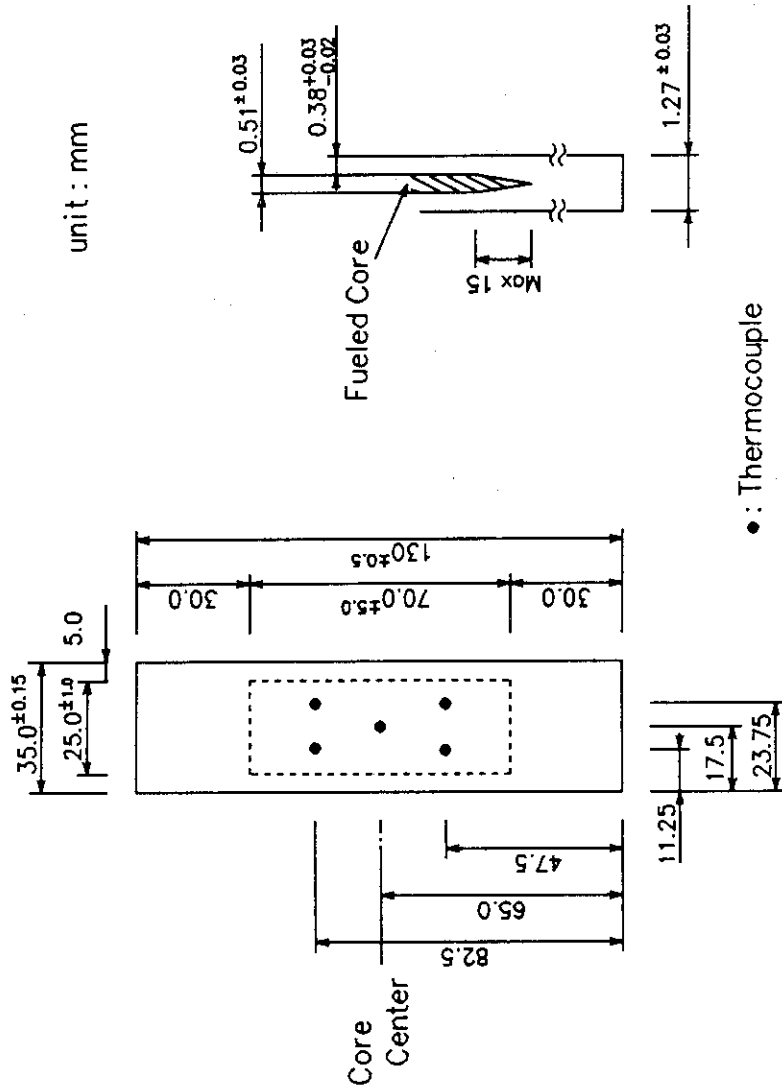


Fig. 1 Schematics of uranium-silicide fuel miniplate tested in the NSRR

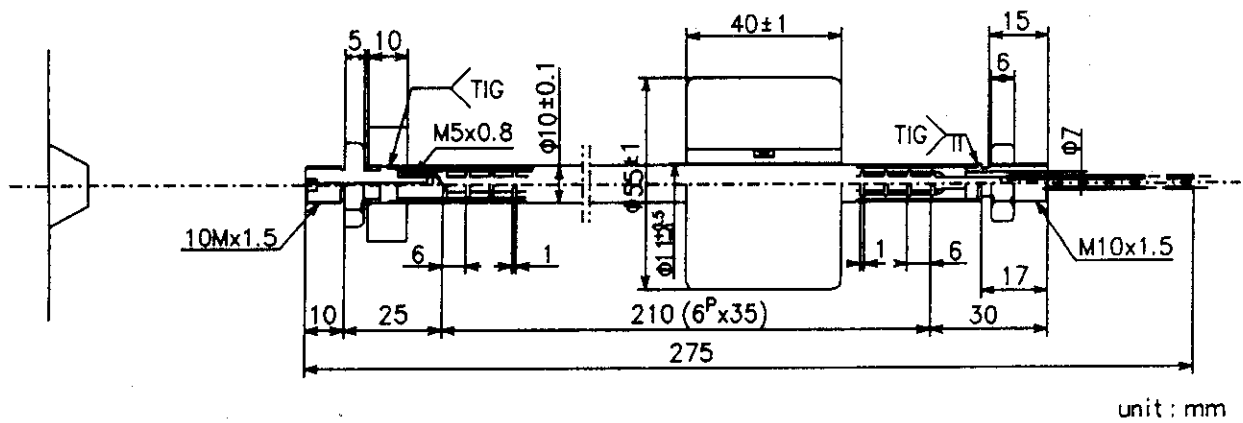


Fig. 3 Water column velocity sensor for mechanical energy evaluation

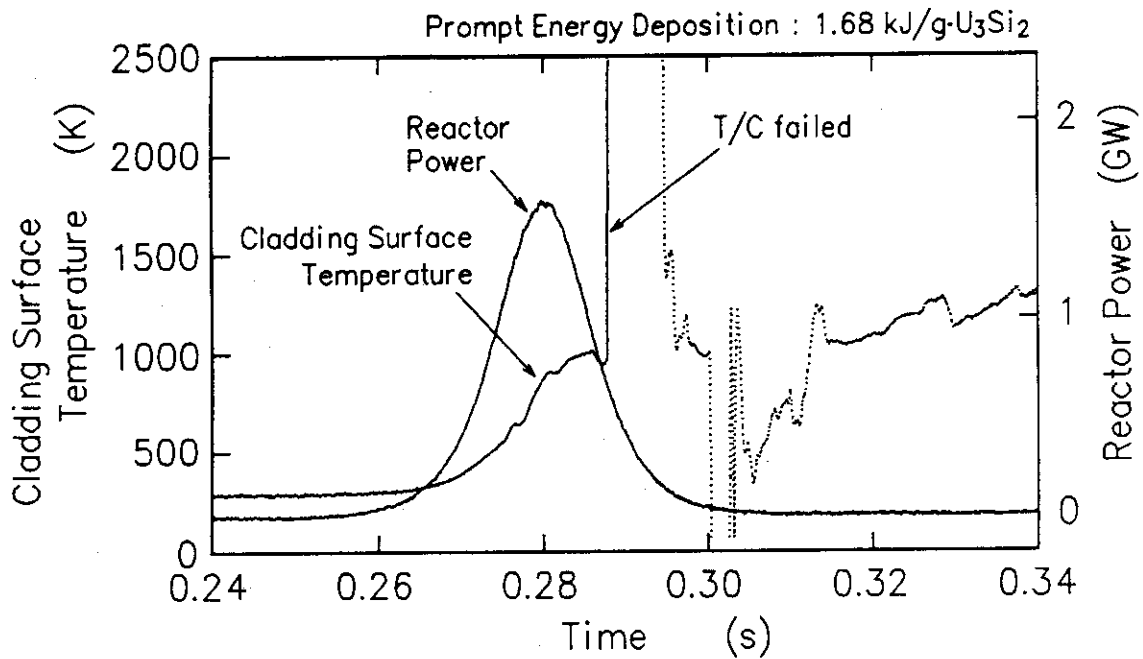


Fig. 4 Temperature history measured with thermocouple spot-welded on cladding surface

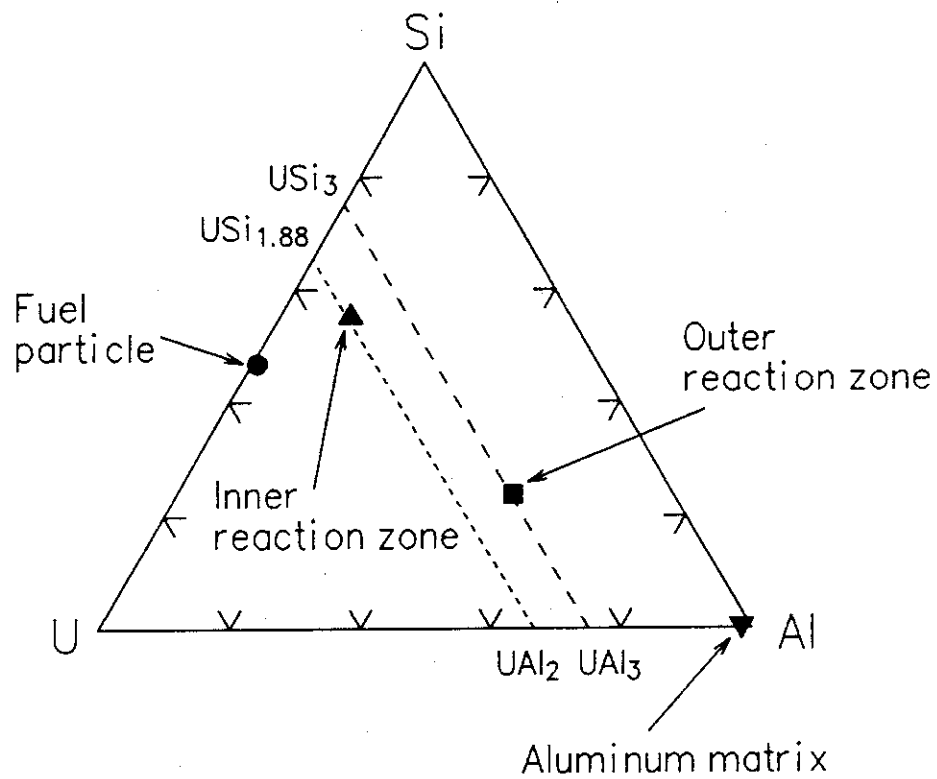


Fig. 5 Three phase diagram of post-test U_3Si_2 particle, reaction phases and aluminum matrix

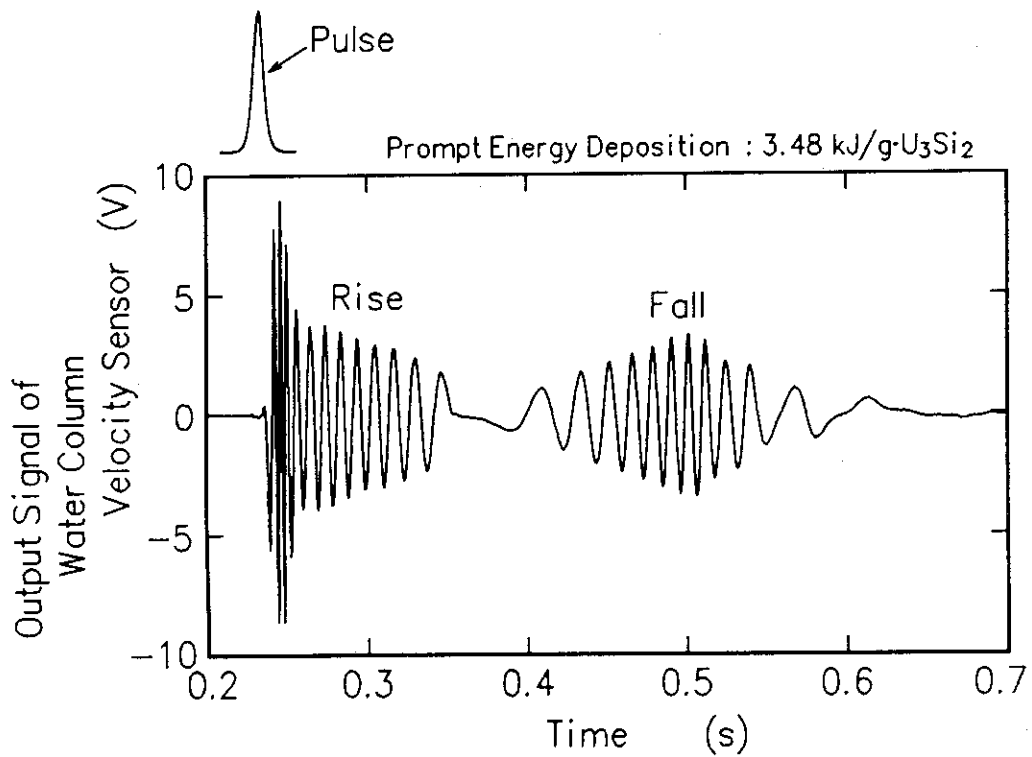


Fig. 6 Out-put signal from water column velocity sensor

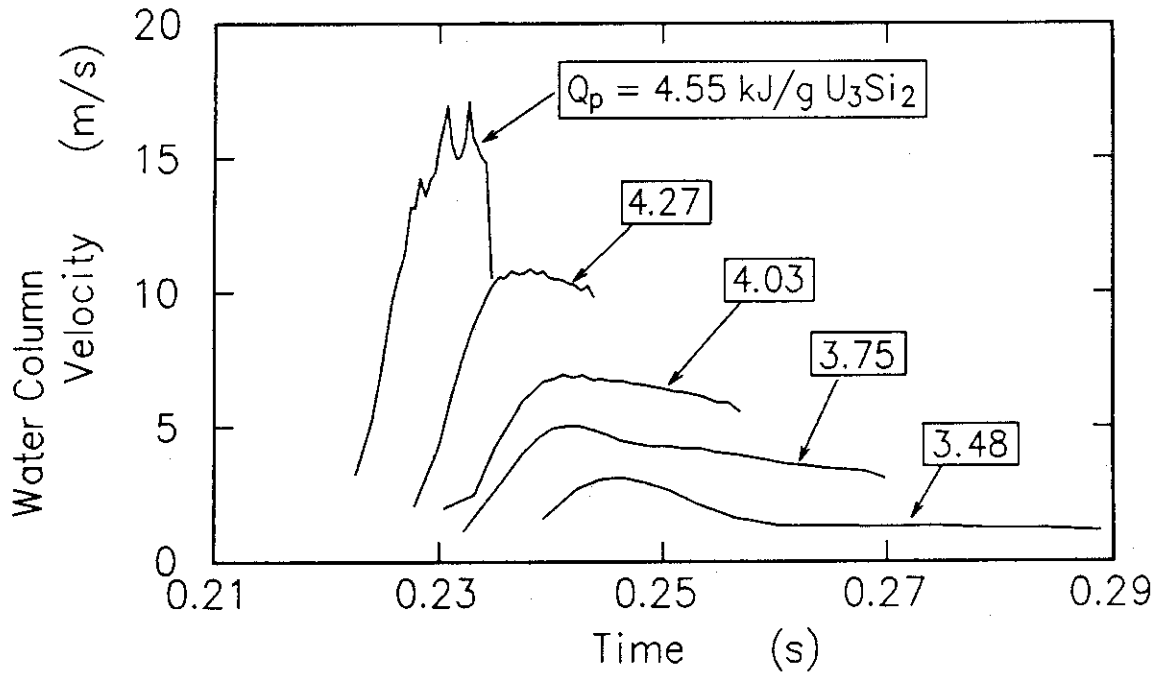


Fig. 7 Water column velocity during materials dispersion

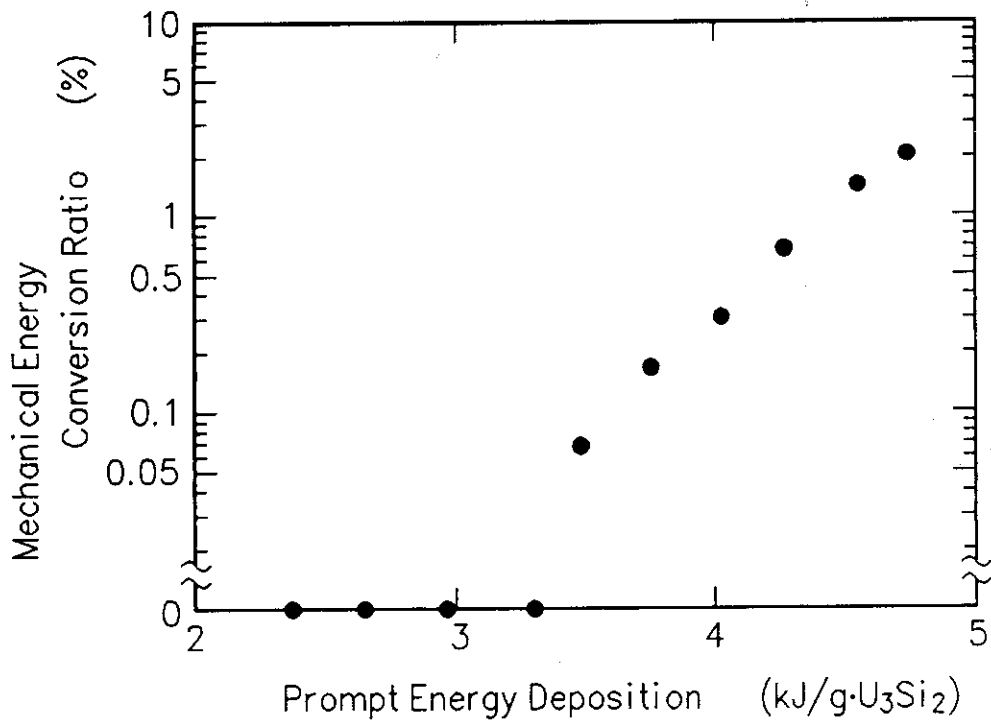


Fig. 8 Nuclear-to-mechanical energy conversion ratio as a function of prompt energy deposition

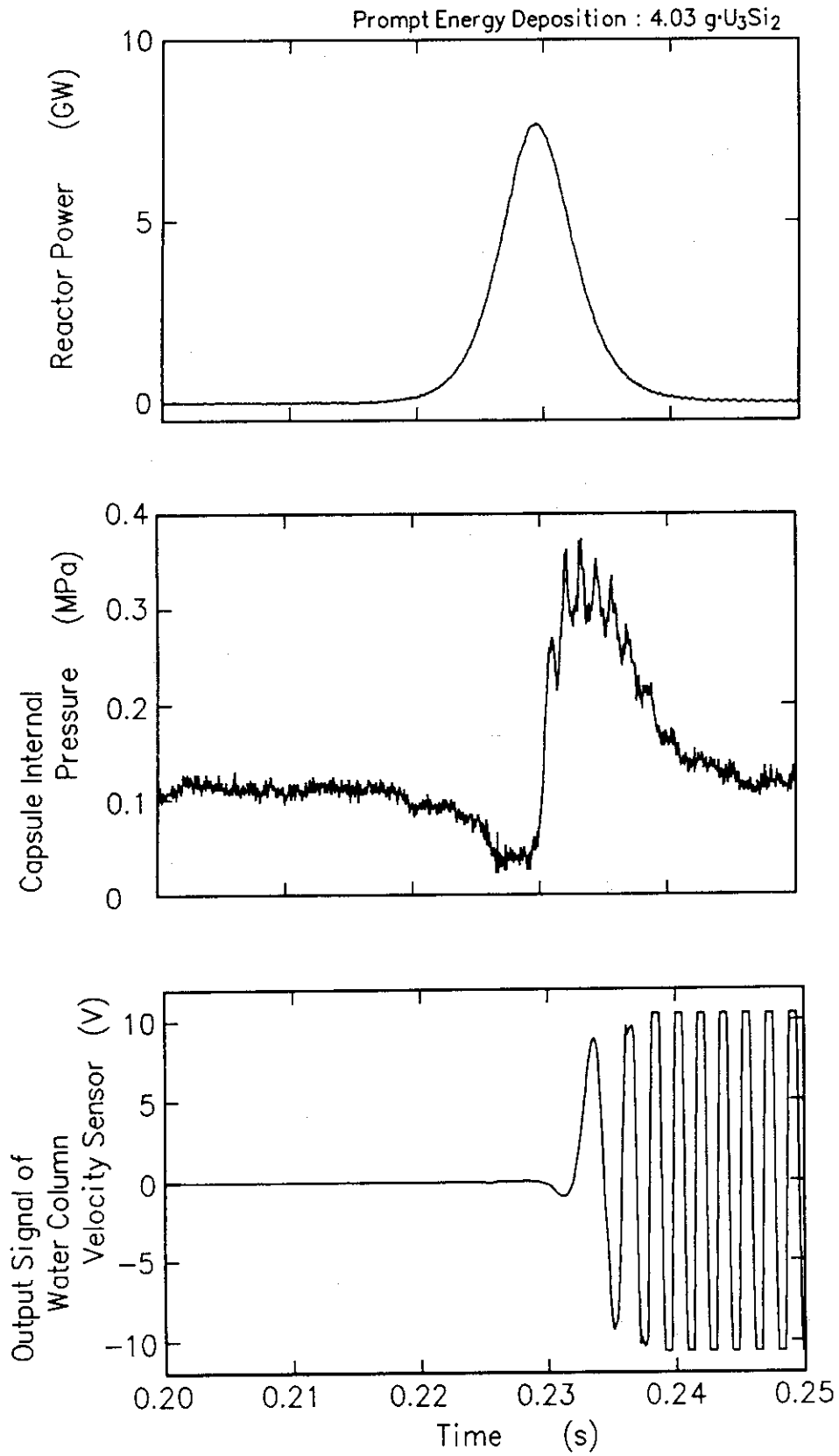


Fig. 9 Transient records of reactor power, capsule internal pressure and water column velocity sensor signal

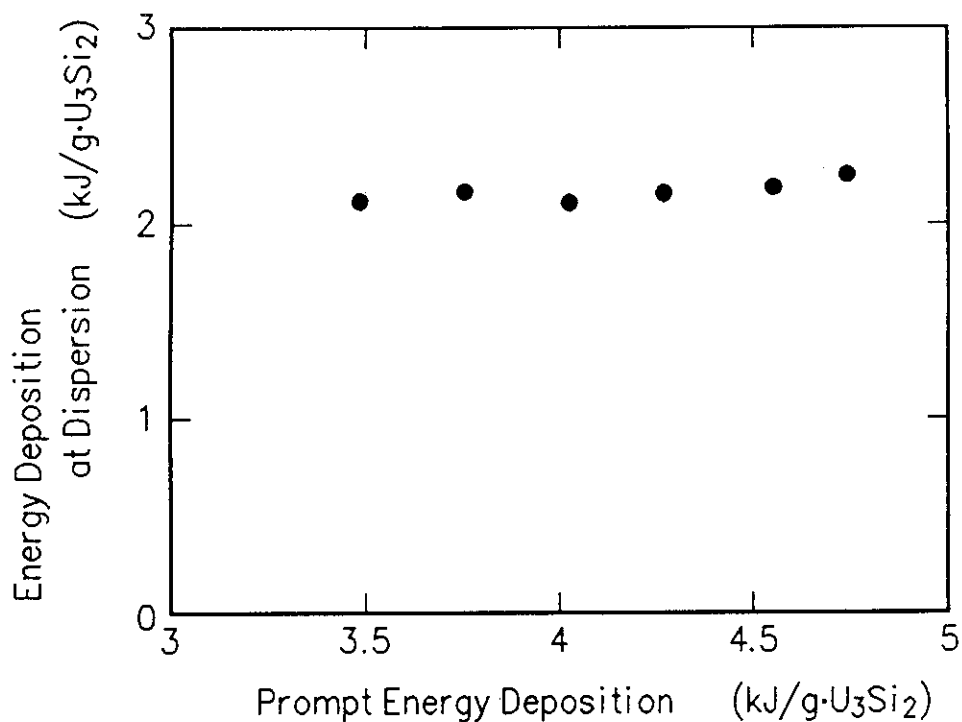


Fig. 10 Deposited energy at materials dispersion as a function of prompt energy deposition

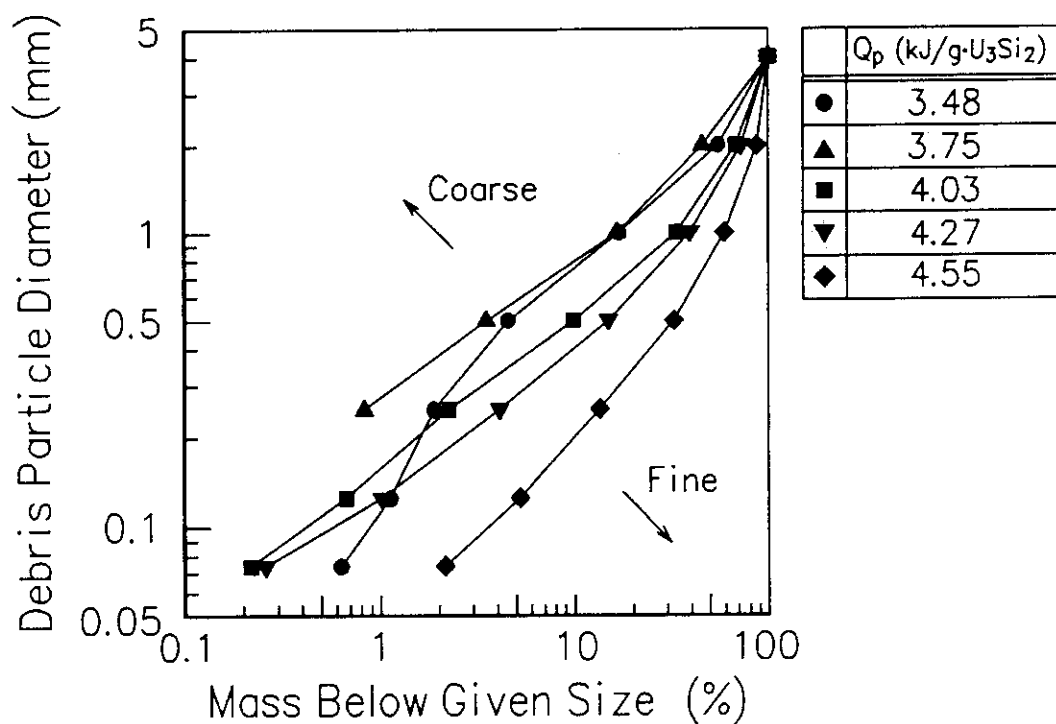


Fig. 11 Particle size distribution of fragmented debris

Prompt Energy Deposition = 1.68 kJ/g·U₃Si₂

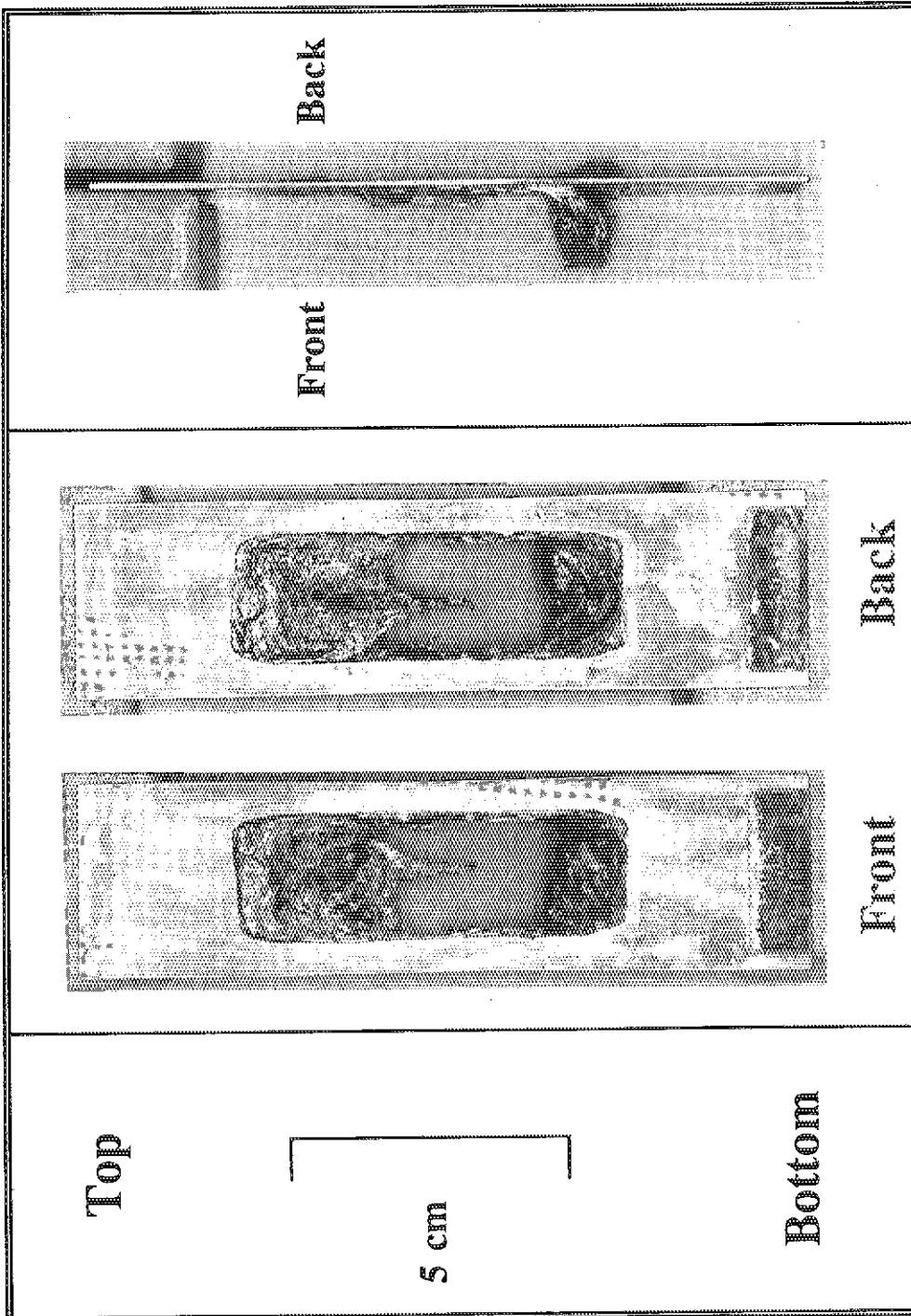


Photo. 1 Post-test appearance of fuel miniplate (Prompt energy deposition : 1.68 kJ/g·U₃Si₂)

Prompt Energy Deposition = 1.99 kJ/g·U₃Si₂

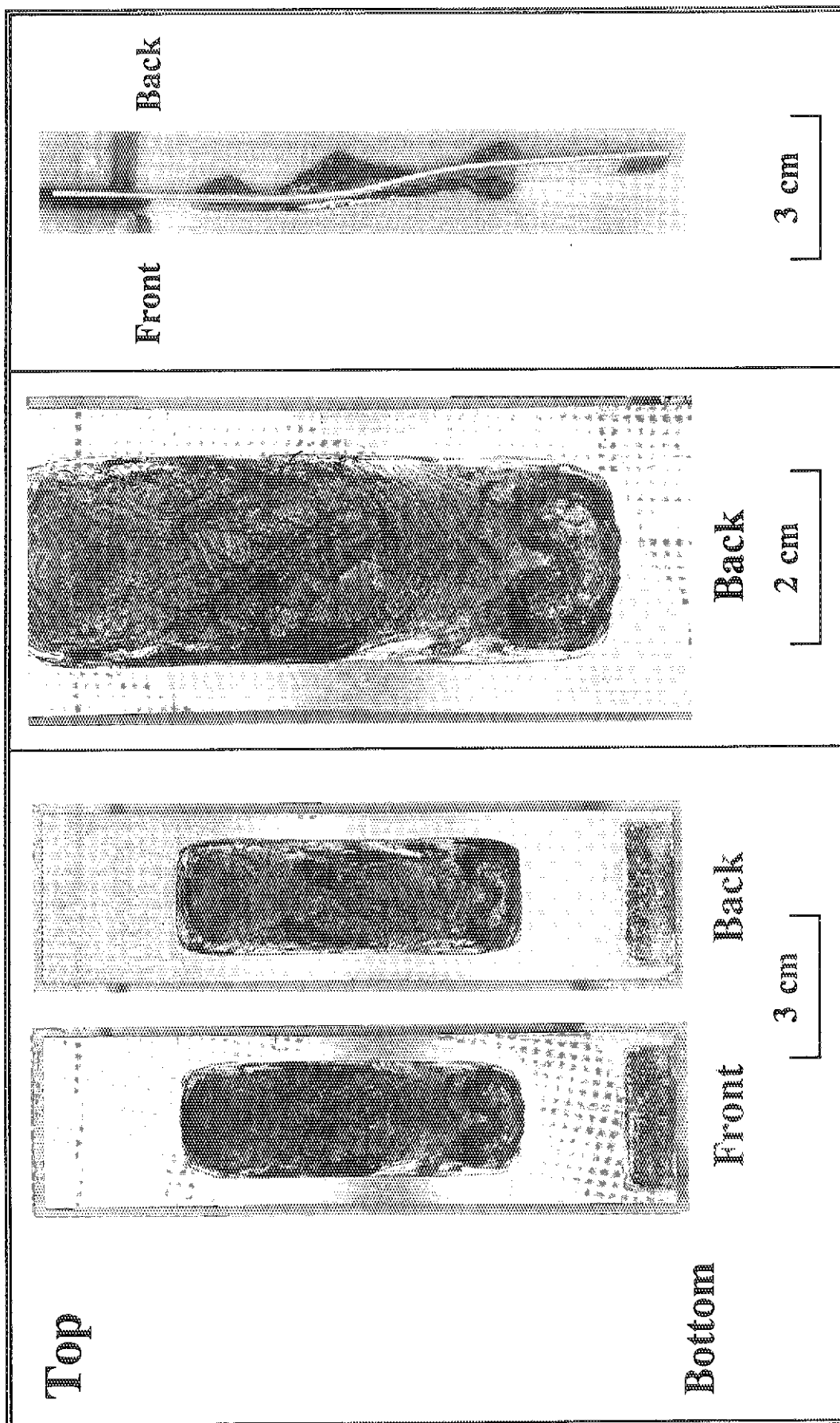


Photo. 2 Post-test appearance of fuel miniplate (Prompt energy deposition : 1.99 kJ/g·U₃Si₂)

Prompt Energy Deposition = $2.37 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$

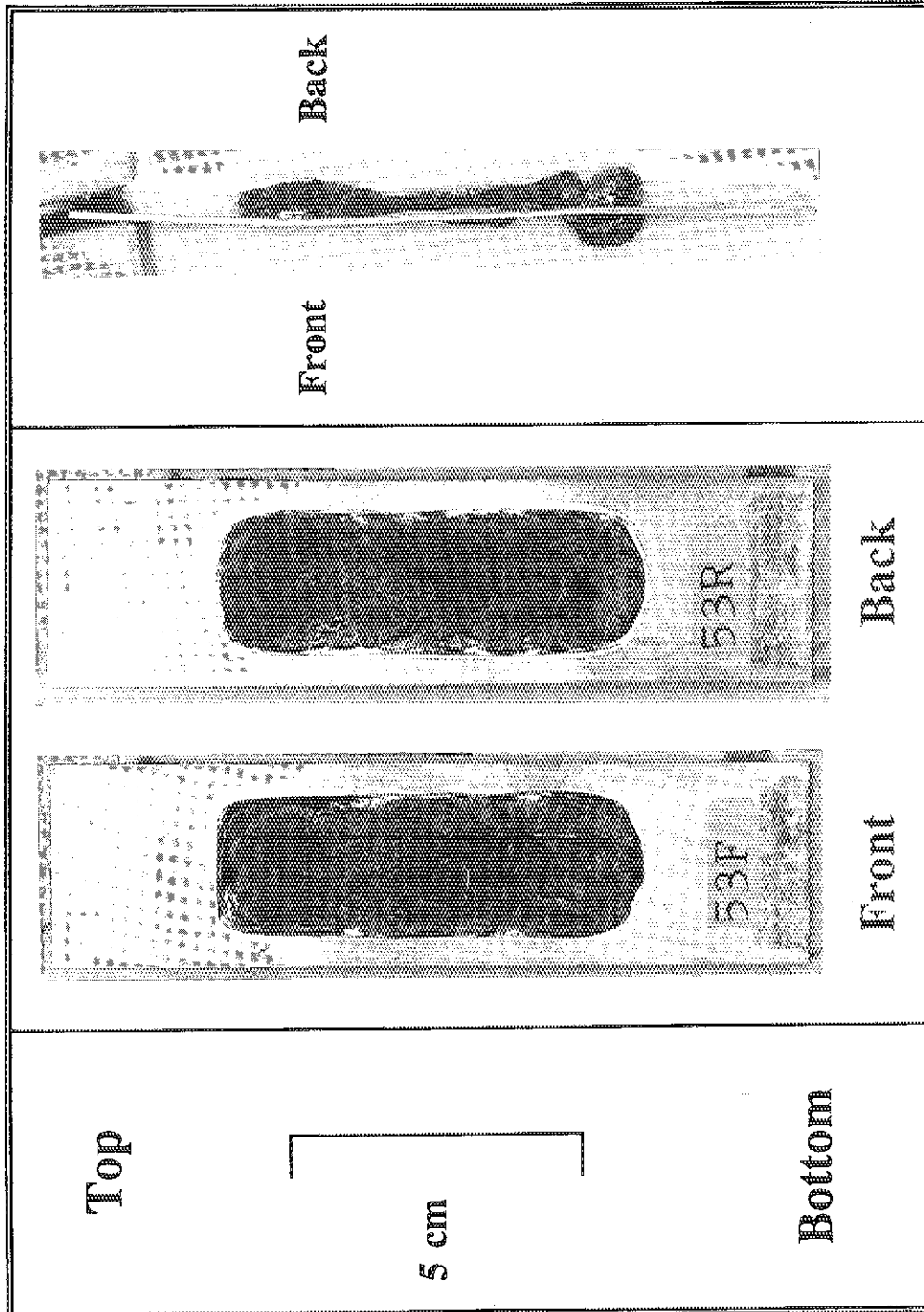


Photo. 3 Post-test appearance of fuel miniplate (Prompt energy deposition : $2.37 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$)

Prompt Energy Deposition = $2.65 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$

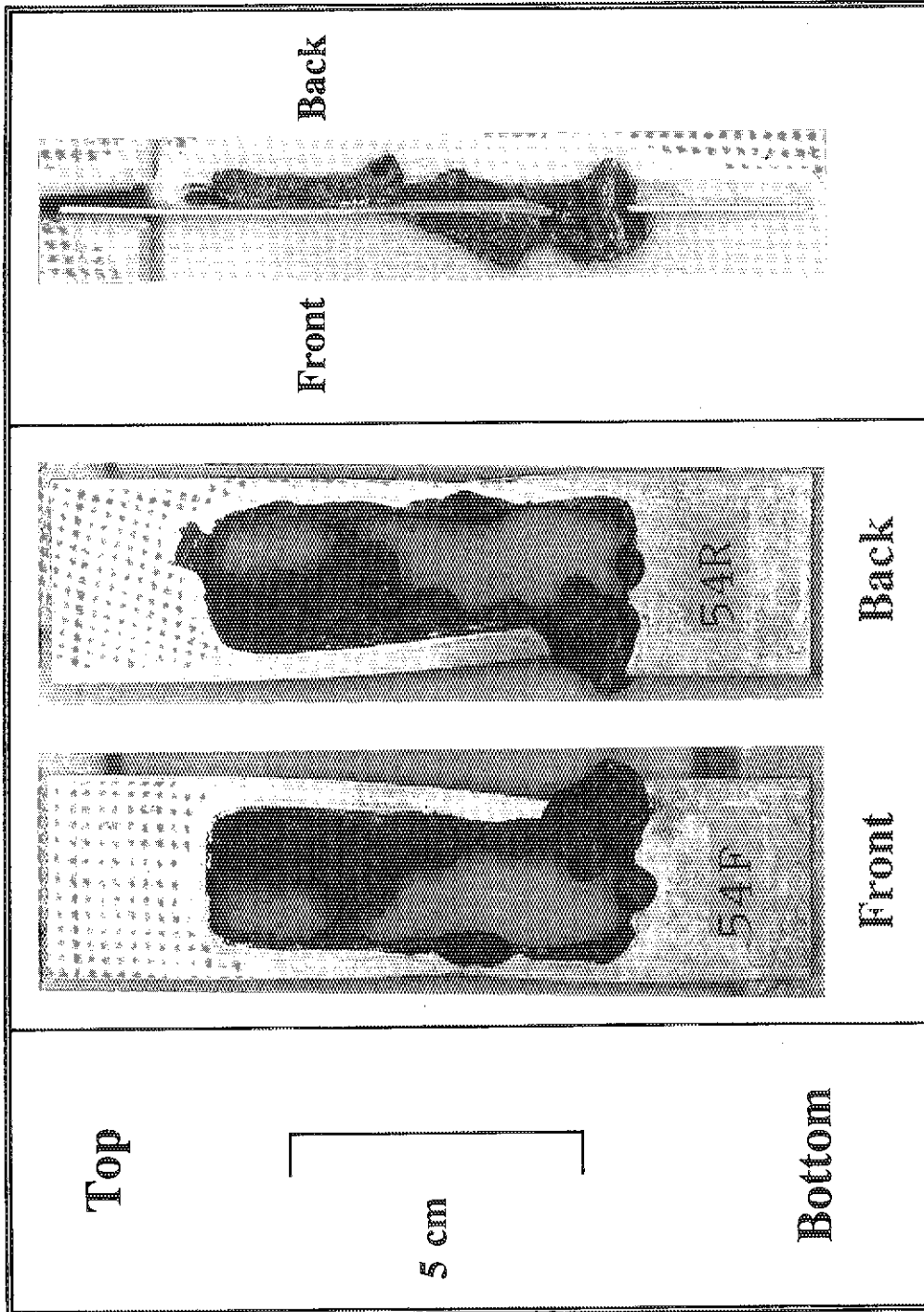


Photo. 4 Post-test appearance of fuel miniplate (Prompt energy deposition : $2.65 \text{ kJ/g}\cdot\text{U}_3\text{Si}_2$)

Prompt Energy Deposition = 2.96 kJ/g·U₃Si₂

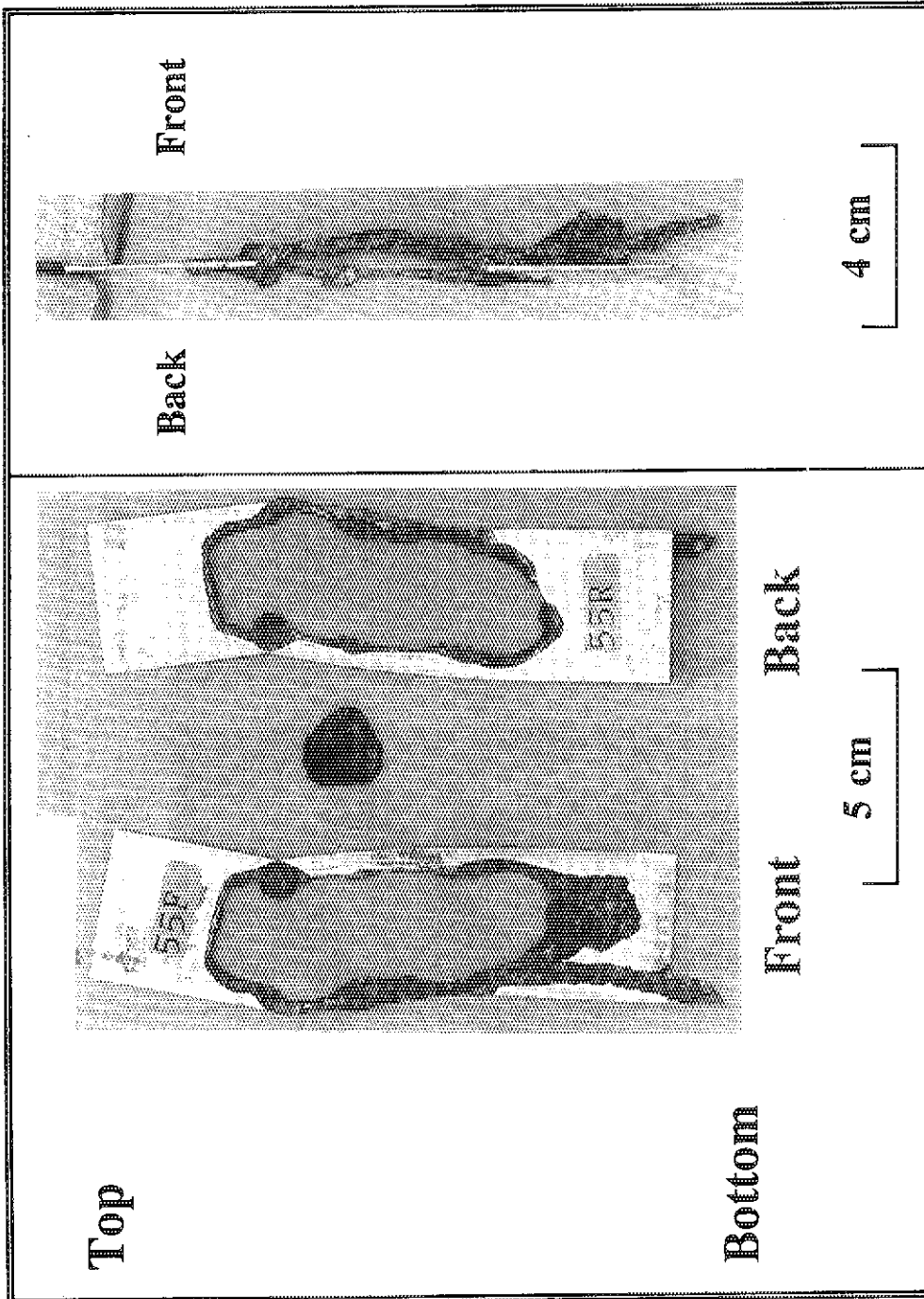


Photo. 5 Post-test appearance of fuel miniplate (Prompt energy deposition : 2.96 kJ/g·U₃Si₂)

Prompt Energy Deposition = 3.48 kJ/g·U₃Si₂

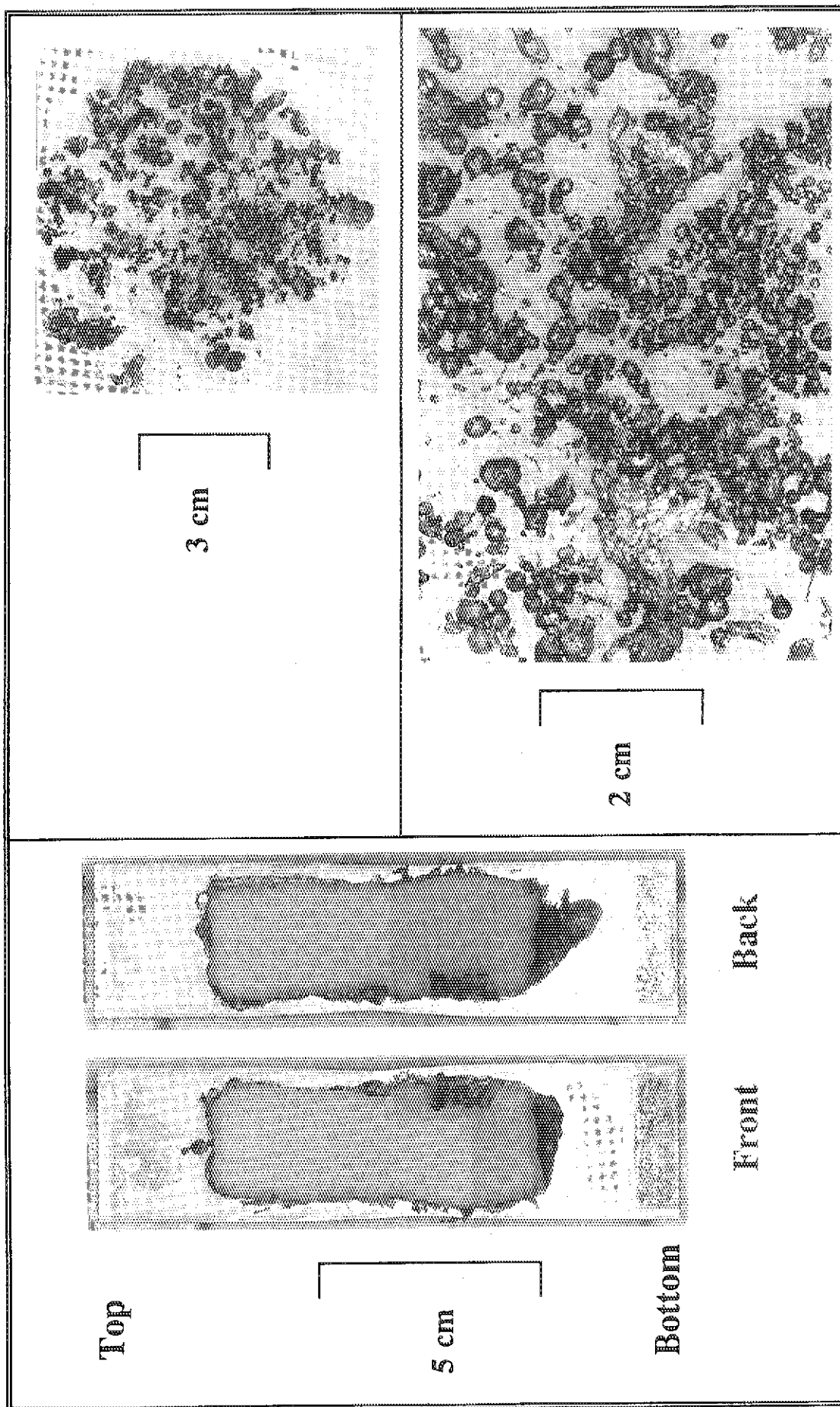
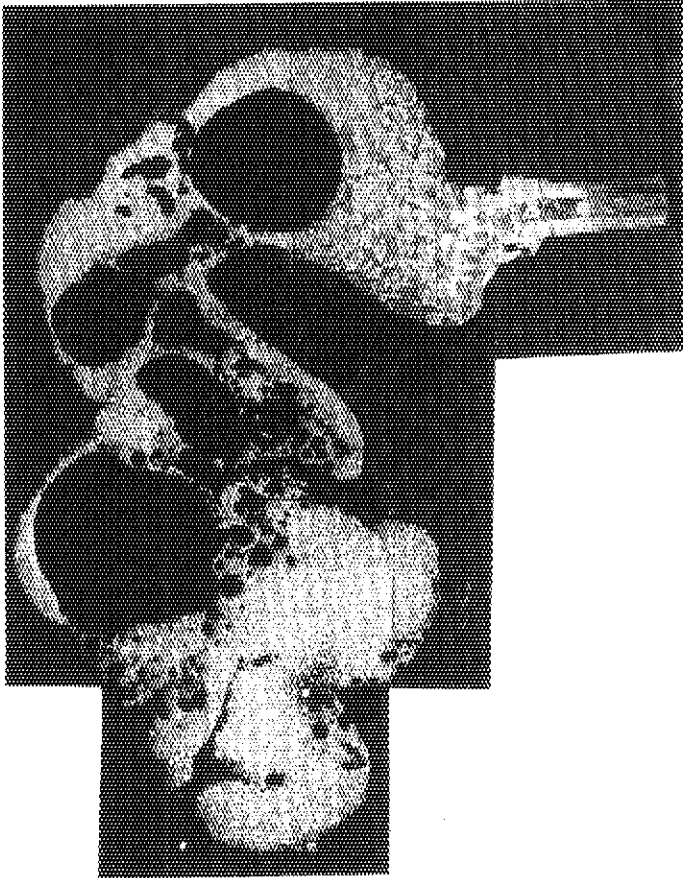
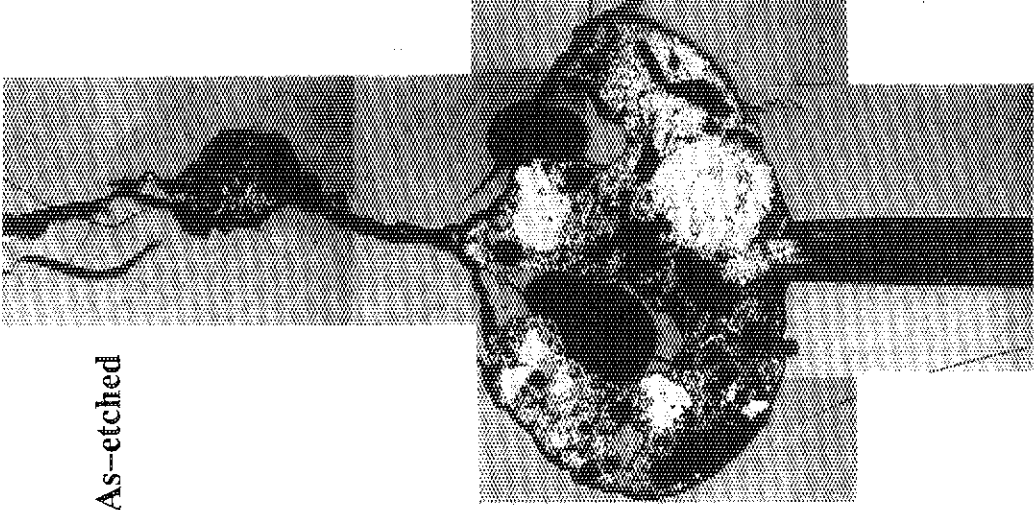


Photo. 6 Post-test appearance of fuel miniplate (Prompt energy deposition : 3.48 kJ/g·U₃Si₂)

<p>As-etched</p> 	<p>As-etched</p> 
<p>Prompt Energy Deposition = 1.68 kJ/g·U₃Si₂</p>	<p>Prompt Energy Deposition = 1.99 kJ/g·U₃Si₂</p>

5 mm

Photo. 7 Vertical cross-section of post-test miniplates

Prompt Energy Deposition = 1.68 kJ/g·U₃Si₂

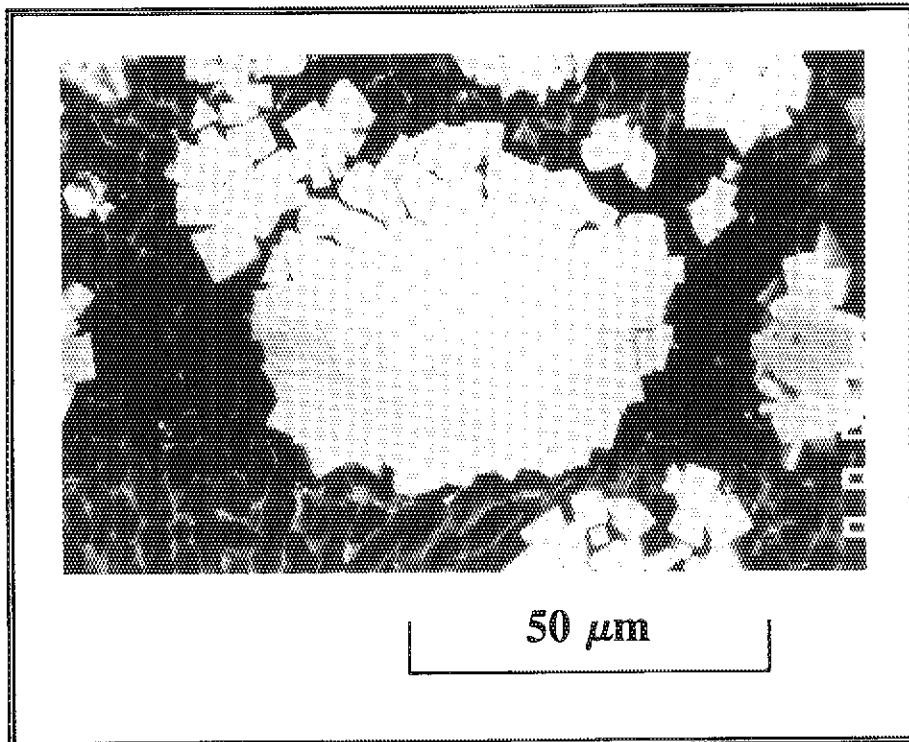
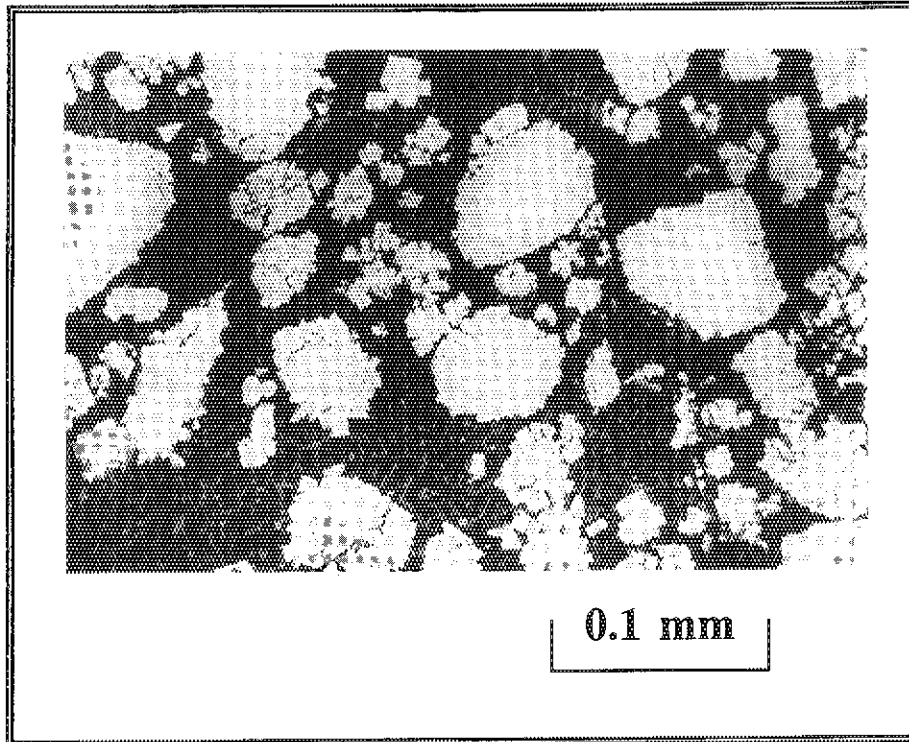


Photo. 8 Post-test U₃Si₂ fuel particle in the experiment with prompt energy deposition of 1.68 kJ/g·U₃Si₂

Prompt Energy Deposition = 1.99 kJ/g·U₃Si₂

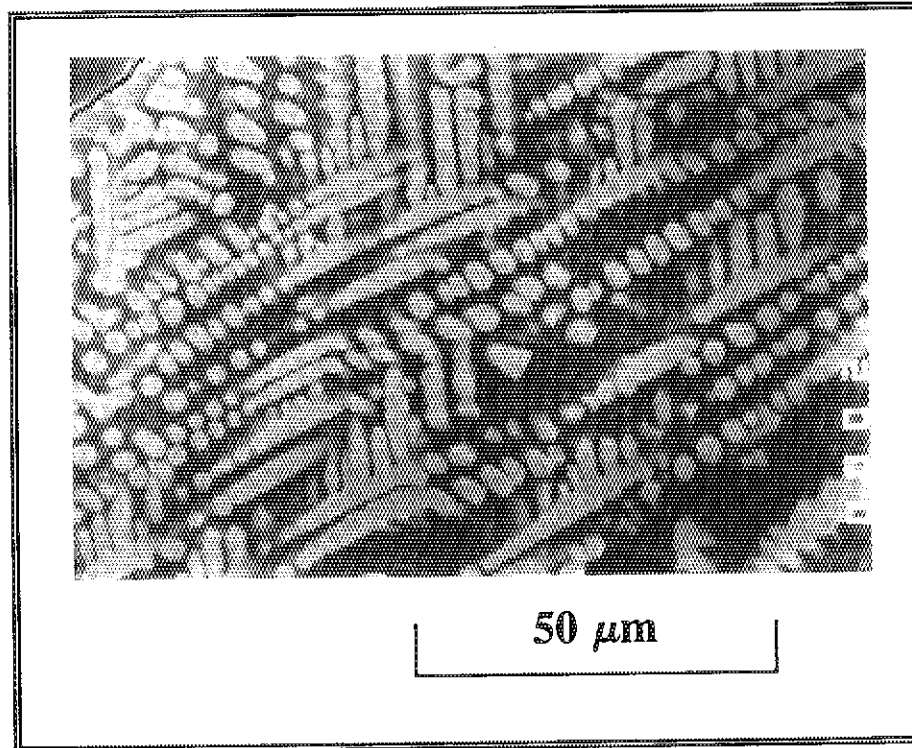
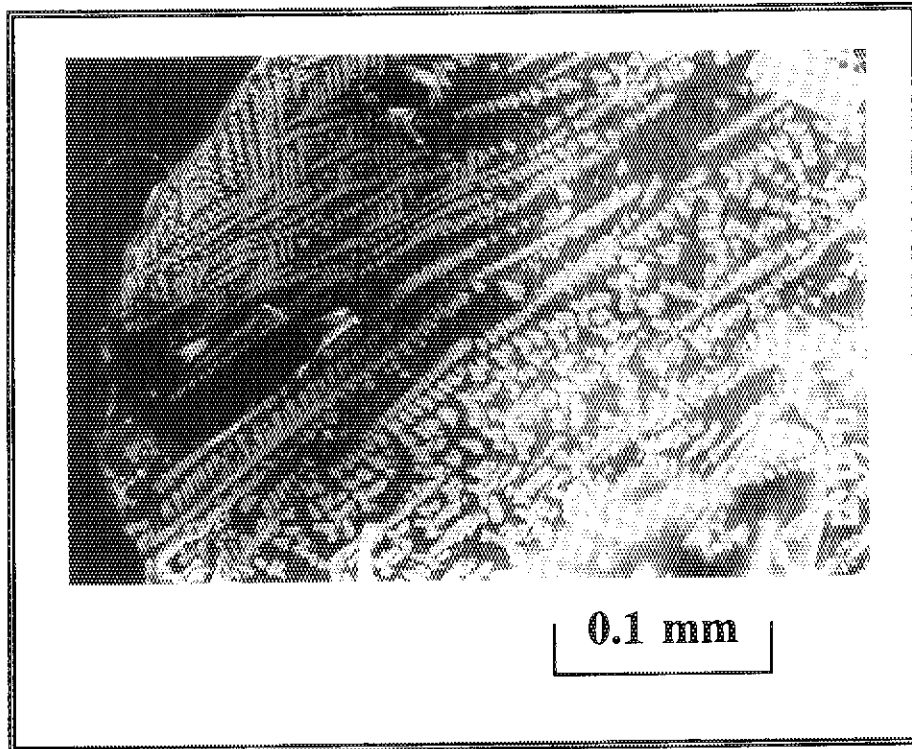


Photo. 9 Dendrite structure in the experiment
with prompt energy deposition of 1.99 kJ/g·U₃Si₂

Prompt Energy Deposition = 1.68 kJ/g·U₃Si₂

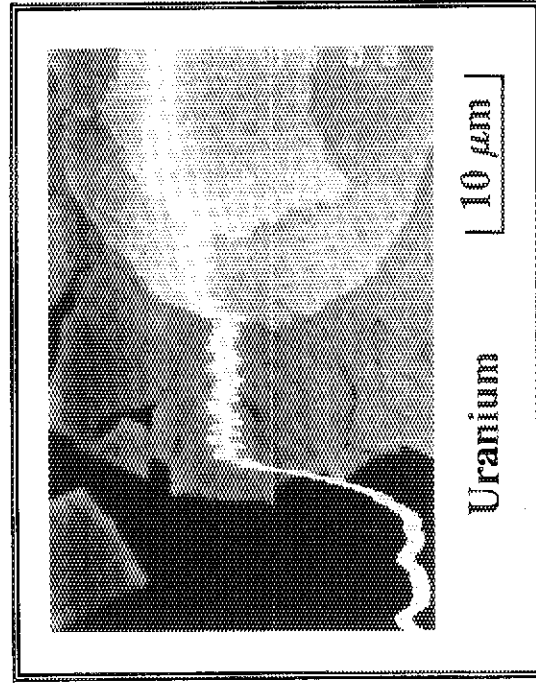
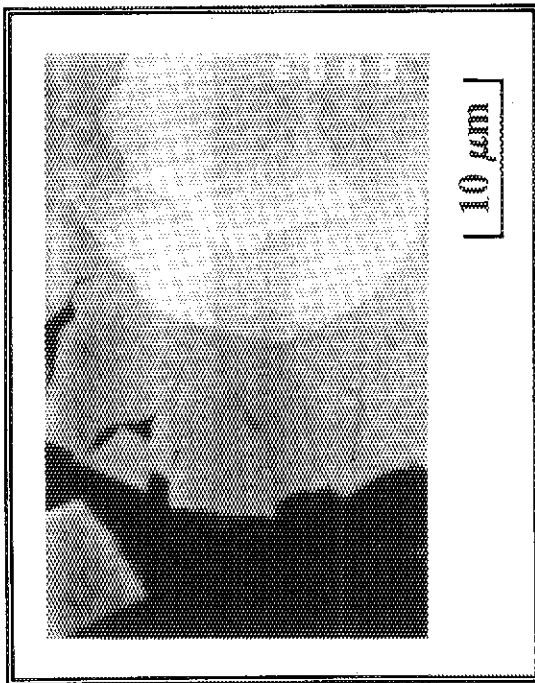
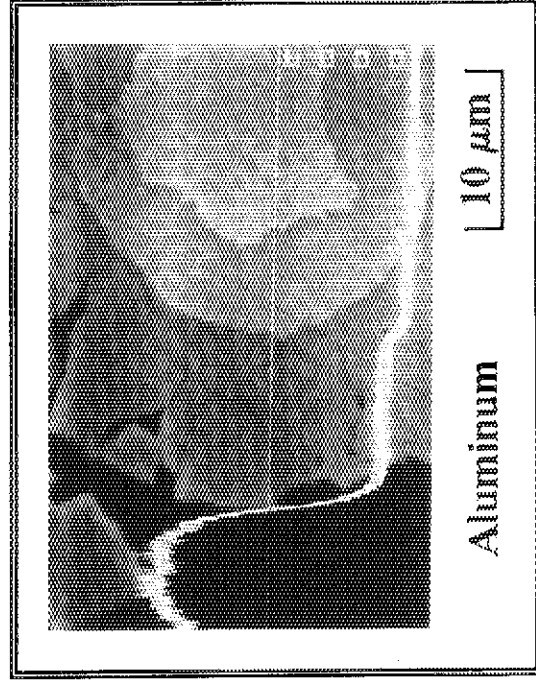
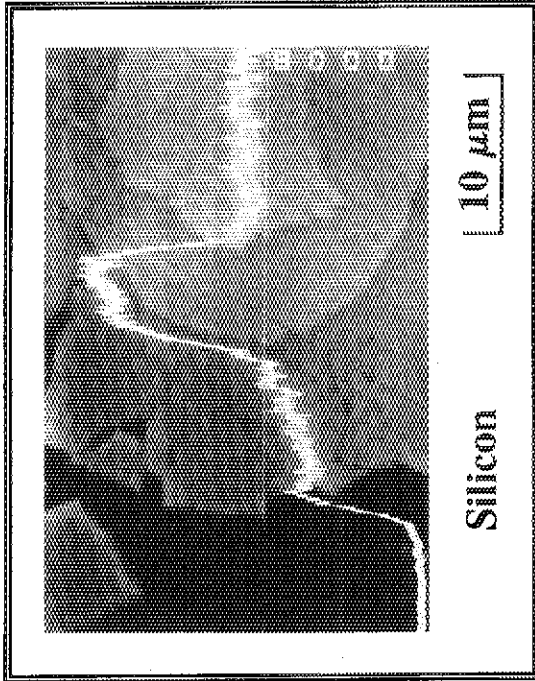


Photo. 10 Results of EPMA line analyses in U₃Si₂ particle periphery (Prompt energy deposition : 1.68 kJ/g·U₃Si₂)

Prompt Energy Deposition = 2.37 kJ/g·U₃Si₂

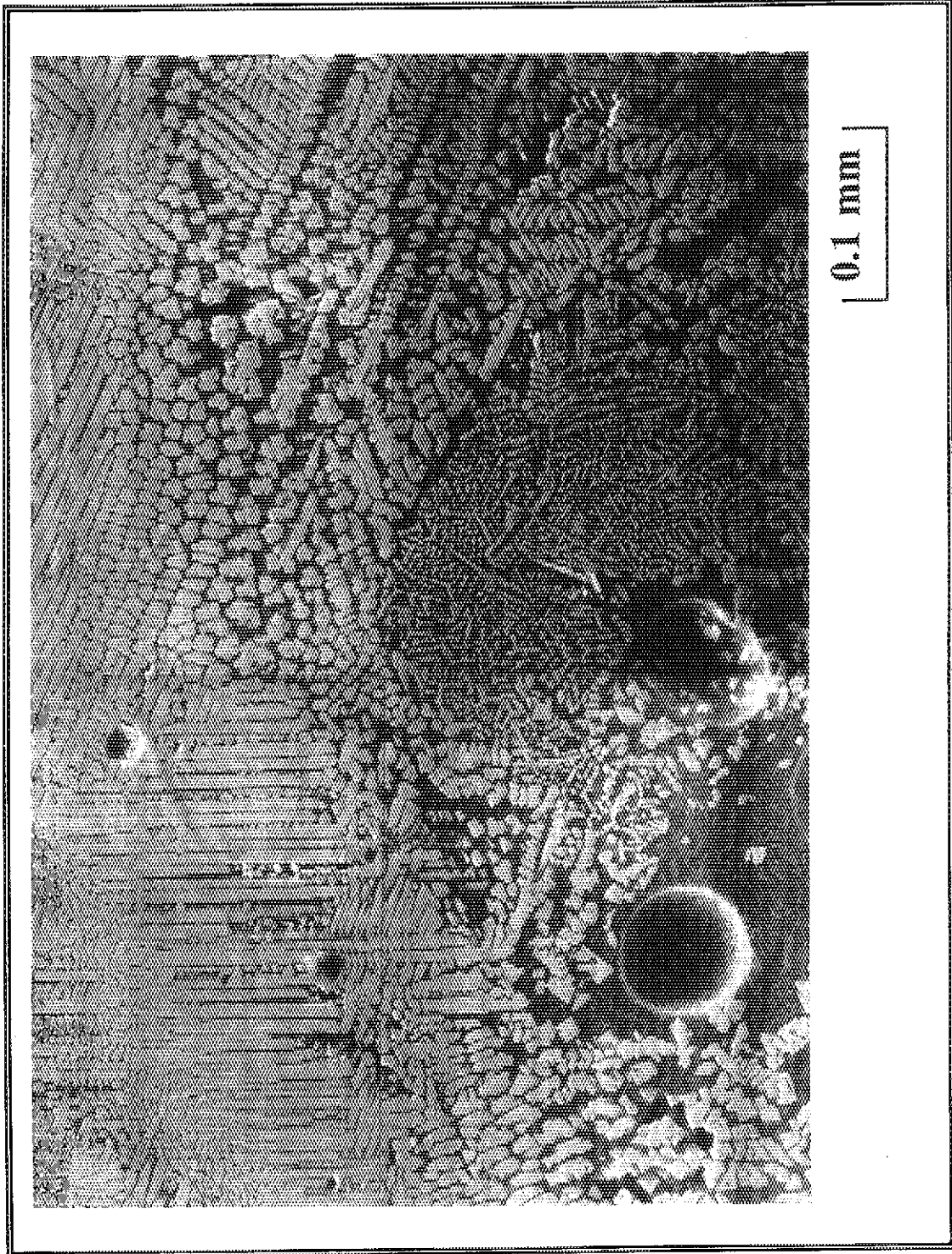


Photo. 11 Dendrite structure in the experiment with prompt energy deposition of 2.37 kJ/g·U₃Si₂

Prompt Energy Deposition = 3.48 kJ/g·U₃Si₂

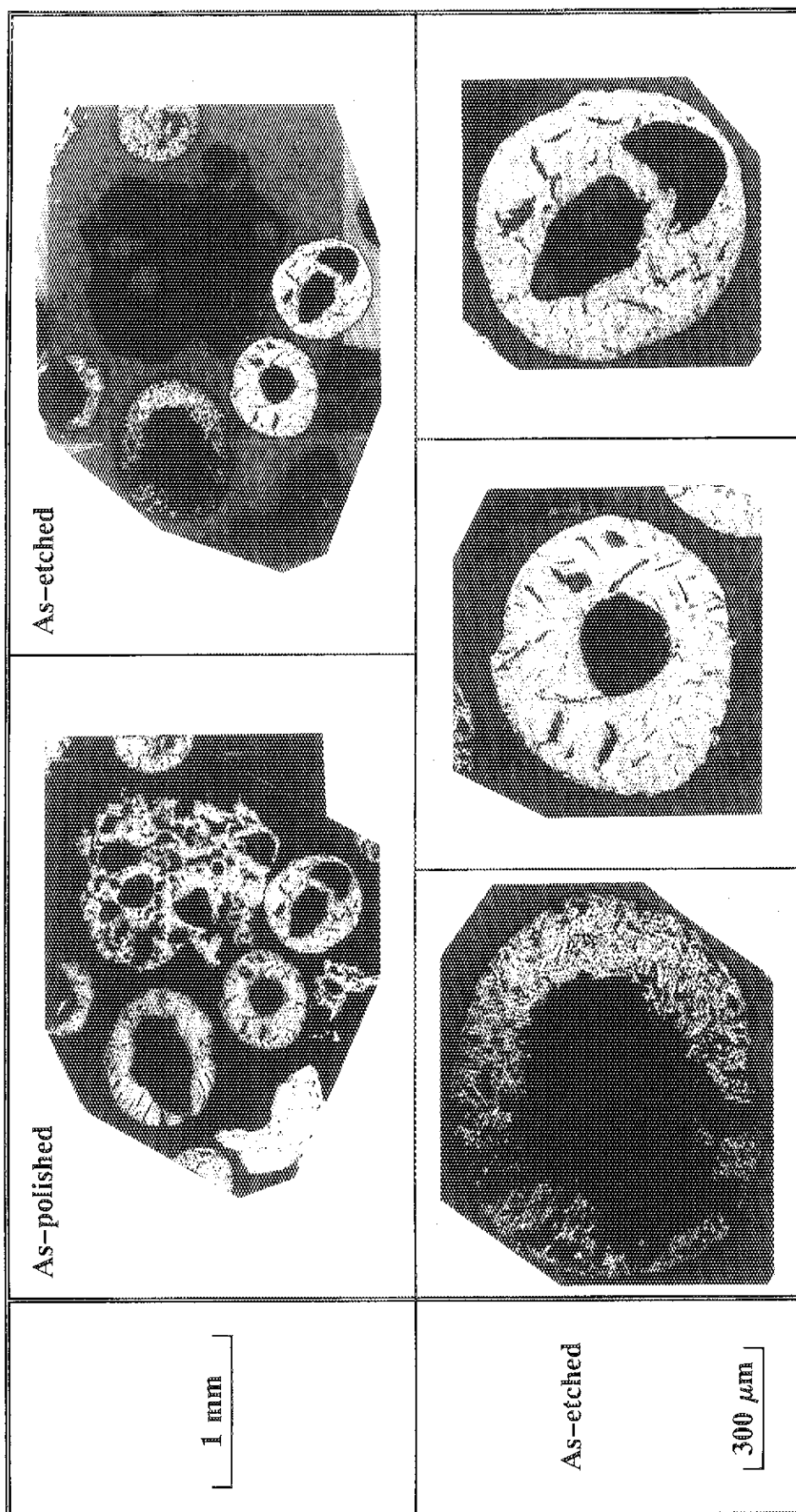


Photo. 12 Cross-sectional view of fragmented debris particles

Prompt Energy Deposition = 3.48 kJ/g·U₃Si₂

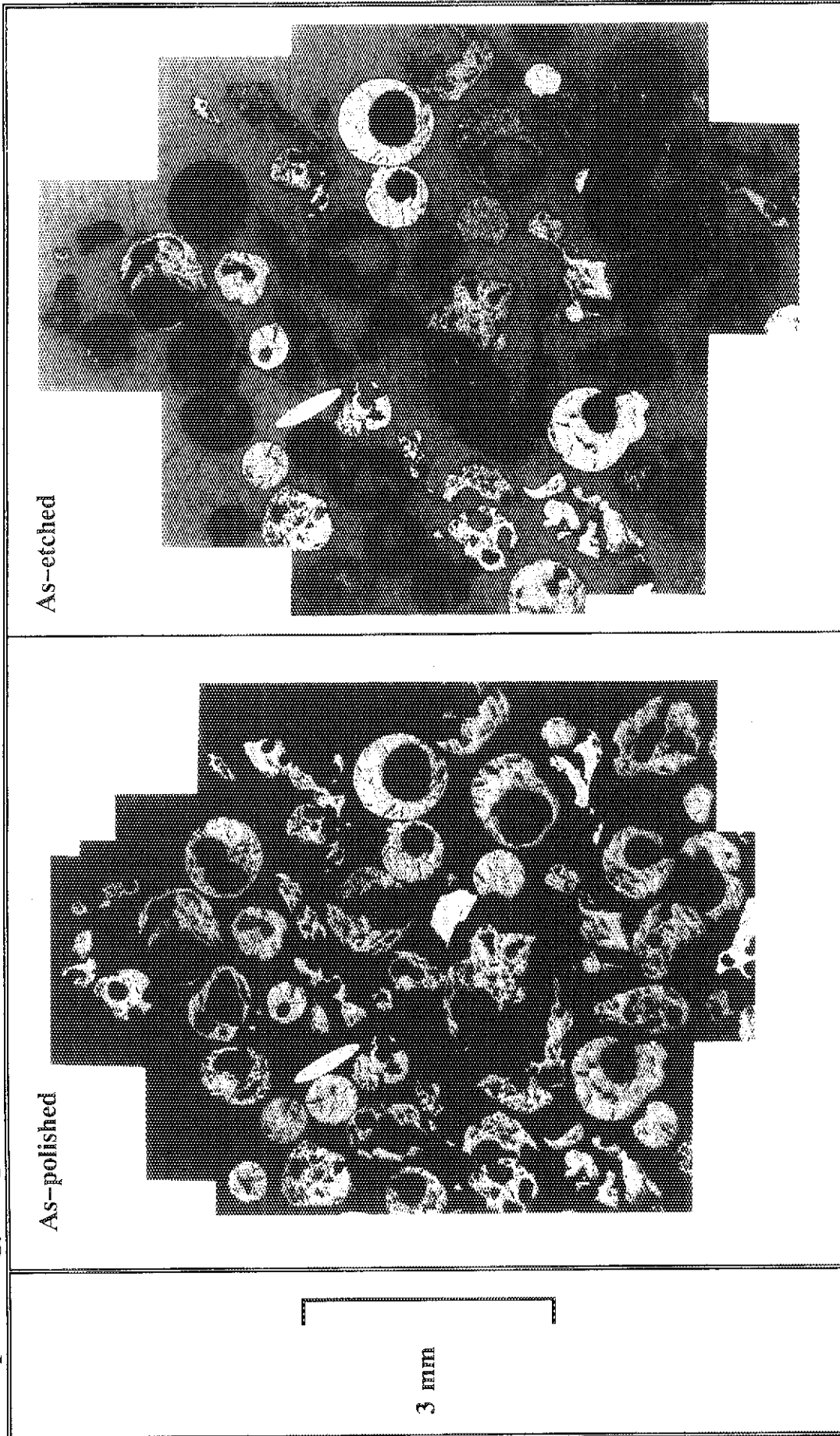


Photo. 13 Polished and etched surfaces of fragmented debris cross-section