

JAERI-Research  
98-064



室温における水素吸収ジルカロイ-4  
燃料被覆管の高速加圧バースト試験

1998年11月

永瀬文久・大友 隆・上塚 寛

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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 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（〒319-1195 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 Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所

室温における水素吸収ジルカロイ-4 燃料被覆管の高速加圧バースト試験

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター原子炉安全工学部

永瀬 文久・大友 隆・上塚 寛

(1998年10月7日受理)

高燃焼度軽水炉燃料棒の反応度事故条件下における破損挙動を調べるために、被覆管を急速加圧できる装置を製作した。本装置は高燃焼度燃料棒でNSRRパルス照射時に生じるペレット/被覆管機械的相互作用(PCMI)を模擬することができる。本装置を用いた最初の実験として、室温で水素吸収ジルカロイ-4管に内圧を最大1.9MPa/msの高速で負荷する高速バースト試験を行った。その結果、水素吸収被覆管には軸方向に長い破損開口が生じた。この破損形態は高燃焼度燃料に対するNSRR実験で見られた被覆管破損と酷似していた。被覆管の破損挙動に及ぼす水素の影響が明瞭に観察された。破裂後に最大膨れ位置で測定した円周方向の残留ひずみは、水素濃度が高い試料ほど明確に低下した。また、水素化物を被覆管外表面に偏析させた試料では1%未満の極めで小さな値であった。水素化物偏析試料は、相対的に低い内圧で破損した。一方、試験した範囲では、加圧速度の破損挙動に及ぼす影響は比較的小さかった。本試験の結果は、NSRR実験やCABRI実験で見られたパルス照射時の高燃焼度燃料棒の破損が被覆管の水素吸収及び被覆管外面への水素化物偏析と深く関連していることを示している。

High-pressurization-rate Burst Test of Hydrided Zircaloy-4 Fuel Cladding at Room Temperature

Fumihisa NAGASE, Takashi OTOMO and Hiroshi UETSUKA

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

(Received October 7, 1998)

A test apparatus which can rapidly pressurize the fuel cladding was constructed to investigate the failure behavior of the high burnup LWR fuel rod under a reactivity initiated accident condition. The apparatus can simulate pellet/cladding mechanical interaction that occurs during a pulse irradiation on a high burnup fuel rod at the NSRR. As the first test series, burst tests of hydrided Zircaloy-4 cladding samples have been performed with high pressurization rates up to 1.9MPa/ms at room temperature. Axially extended failure opening was formed in the hydrided cladding sample. The failure morphology was quite similar to that observed in the NSRR experiment on the high burnup PWR fuel rods. The influence of hydrogen on the failure behavior was clearly observed. Residual hoop strain at the rupture position where the maximum cladding expansion occurred was obviously reduced with increase of hydrogen concentration, and it was as low as less than 1% for the cladding samples with accumulated hydrides in the vicinity of the outer surface. The cladding samples with accumulated hydrides failed at relatively low pressures. On the other hand, the pressurization rate showed the relatively small influence on the failure behavior in the examined range. The present test results indicate that the high burnup fuel rod failure observed in both the NSRR and CABRI experiments is strongly connected to hydrogen absorption and hydride accumulation beneath the outer surface of the cladding.

Keywords: LWR, Fuel Cladding, Zircaloy-4, Burst Test, Failure Behavior, Pulse Irradiation, NSRR, Hydrogen, Hydride Accumulation, Hoop Strain

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験方法 .....	2
2.1 試料 .....	2
2.2 試験装置と試験方法 .....	3
3. 試験結果と考察 .....	4
3.1 試験機の加圧特性 .....	4
3.2 高速加圧試験 .....	5
3.3 低速加圧試験 .....	6
3.4 残留周方向ひずみの測定 .....	7
4. まとめ .....	9
参考文献 .....	10

## CONTENTS

1. Introduction .....	1
2. Experimental Procedure .....	2
2.1 Sample .....	2
2.2 Test Apparatus and Test Procedure .....	3
3. Result and Discussion .....	4
3.1 Pressurization Characteristics of Test Apparatus .....	4
3.2 High Pressurization Rate Test .....	5
3.3 Low Pressurization Rate Test .....	6
3.4 Measurement of Residual Hoop Strain .....	7
4. Summary .....	9
Reference .....	10

This is a blank page.

## 1. はじめに

燃料サイクルコストの低減化などのために軽水炉燃料の高燃焼度化が進められている。高燃焼度化は燃料の健全性を確認した上で段階的に認可されているが、安全審査においては高燃焼度化に伴う燃料被覆管の機械的性質の劣化、特に延性の低下が検討課題となっている。これは、高燃焼度化すなわち炉内滞在期間の長期化によって、ジルカロイ製燃料被覆管の水側腐食量が増大し、腐食に伴って発生する水素の一定割合（10～20%）は被覆管中に吸収されるので水素吸収量も増加し、さらに中性子照射量による硬化あるいは脆化が進むためである。このような被覆管機械特性の劣化は、通常運転時における燃料の健全性のみならず事故条件下での被覆管挙動にも影響する。

高燃焼度燃料の反応度事故（RIA）時挙動に関連して、フランス・カダラッシュ研究所の CABRI-Rep Na 実験計画と原研の NSRR 実験計画において、高燃焼度 PWR 燃料を用いたパルス照射実験が行われた[1-5]。これらの実験で、50～60GWd/t 程度まで燃焼の進んだ燃料棒が予想されたより低い投入エネルギーで破損する例が示された。この結果は、RIA 指針における燃焼の進んだ燃料に対する暫定的な破損しきい値を再検討する必要性を示唆するものであった。高燃焼 PWR 燃料に対する NSRR/HBO 実験で破損した燃料の外観を Fig. 1 (a) に示す[1-3]。発熱部（燃料有効長）全長に渡る長い破損開口が生じているが、この破損形態はパルス照射で破損した高燃焼度燃料に特徴的な形態であり、未照射燃料や低燃焼度燃料においては見られなかったものである。被覆管の延性低下が著しいために、発生したクラックの伝播が停止せず軸方向に伸びたものと予想される。Fig. 1 (b) に破損部近傍の被覆管切断面（半径方向）のマイクロ組織を示す。高燃焼度燃料では、運転中に生じる被覆管半径方向の温度勾配により水素化物が外面近傍に偏析する傾向がある[6]。NSRR で試験した燃料でも酸化膜直下で水素化物の密度が高い。水素化物が偏析する領域では外表面に対して垂直なクラックが生じており、被覆管の内面側では破断面は周方向に対して 45 度程度の角度を有している。被覆管の肉厚を貫通するクラックは 1 カ所しか観察されないが、破断部以外の水素化物偏析領域でも外表面に垂直方向の小さなクラックが複数個見られた。これらの観察結果は、外面近傍での水素化物偏析領域の延性が非常に低く、この領域が被覆管破損の起点になった可能性を示している。

NSRR 実験では、燃料棒（全長約 4 m）の軸方向の数カ所から試験用の短尺燃料セグメントを採取している。著者らは、NSRR パルス照射試験に供された燃料棒が採取された同一の燃料集合体から得た燃料棒の照射後試験[6]を行い、パルス照射により破損した燃料棒セグメントは被覆管の水側腐食量と水素吸収量が最大の軸方向位置から採取されたものであること、すなわちパルス照射による燃料棒破損には被覆管脆化の要因となる水素吸収量が強く関連していることを示した。

高燃焼度燃料の反応度事故時における破損挙動を明らかにするには、NSRR のような原子炉を用いた実験は不可欠である。しかし、原子炉を利用した実験には試験回数が限られ

る等の多くの制約がある。また、発電炉から取り出される高燃焼度燃料を試料とする場合、水素吸収量をはじめとする様々な影響因子をパラメトリックに選択することは実際的には不可能である。さらに、現時点では NSRR 実験には、商用炉の反応度事故を模擬するという点で限界がある。例えば、NSRR 実験ではパルス照射前の燃料温度は室温であり、パルス照射中に高燃焼度燃料が破損した例では被覆管温度は高々 370K であった。これに対して商用炉で反応度事故が生じると想定される条件には、通常運転時温度の場合もある。また、NSRR 実験で燃料が破損した場合のパルス幅は 4 ~ 15ms であり、これは商用炉で予想されるパルス幅 (PWR で 20 ~ 70ms、BWR で 100 ~ 200ms) よりも短い。低い燃料被覆管温度と短いパルス幅に起因する変形速度は、何れもパルス照射時における被覆管の破損挙動に影響を及ぼす可能性と NSRR 実験データを実炉へ適用することの限界が指摘されている。

そこで、RIA 時の燃料破損挙動を解明する基礎データを取得し、かつ NSRR 実験結果を補完することを目的に、炉外におけるジルカロイ被覆管の高速加圧バースト試験を実施した。高速加圧バースト試験は、高燃焼度燃料のパルス照射時の破損が、急激なペレットの膨張により過大な応力を受けた被覆管が破損するというペレット/被覆管機械的相互作用 (PCMI) による点に着目した試験である。この試験では、被覆管の破損挙動に及ぼす水素吸収量、試験温度、変形速度などの影響を明らかにすることを計画している。

本報告書は、第一段階の試験として実施した室温における試験結果をとりまとめたものである。

## 2. 実験方法

### 2. 1 試料

試験に用いた被覆管はわが国の PWR で使用されている内径 8.36mm、外形 9.50mm のジルカロイ-4 管で、耐食性を改善するために規格の範囲内でスズの添加量を抑えたいいわゆる低スズ・ジルカロイ-4 (スズ含有量: 1.2wt%) である。長さ 160mm 程度に切出した管を約 600K で水素-アルゴン混合気中に数時間保持する水素添加処理を施し、200 ~ 600wtppm の水素を含有する試料を作製した。水素添加処理後、各試料の両端部を切断し採取した 2 個の分析試料をガス分析し、その平均値を被覆管試料の水素濃度とした。同一バッチで処理した比較試料を詳細に水素分析した結果では、水素濃度の被覆管軸方向における変化は± 30%以内に収まっている。本研究では、水素化物の存在状態が破損挙動に及ぼす影響を調べるために 2 種類の水素添加試料を作成した。一つは水素化物を被覆管肉厚中に均一に分布させた試料であり、他は高燃焼度 PWR 燃料被覆管において一般に見られる水素化物の析出状態、すなわち外表面の酸化膜直下に偏析した状態を模擬した試料で



ある。2種類の被覆管試料の半径方向切断面における水素化物析出形態を Fig.2 に比較して示す。均一分布試料(Fig.2(a))では水素化物が肉厚中にほぼ均一に分布し、高燃焼度 PWR 燃料被覆管を模擬した試料 (Fig.2(b)) では外表面から 50 ~ 150  $\mu\text{m}$  の範囲に水素化物が偏析している。水素化物が偏析した領域を本報告書においては、水素化物リムと呼ぶことにする。水素化物リム領域の水素濃度は分析していないが、平均水素濃度 400wtppm の試料で水素化物リムの厚さが 100  $\mu\text{m}$  の場合、リム以外の領域での濃度を 600K におけるジルカロイ中の水素固溶度[7]とほぼ等しい 100wtppm と仮定すると、水素化物リム領域の平均水素濃度は 2400wtppm と評価することができる。

## 2. 2 試験装置と試験方法

NSRR 実験で破損した高燃焼度燃料棒のペレットを調べた結果[1-3]、ペレットの一部は結晶粒径と同程度のサイズに微粒子化したり、粉化しなかった部分では明確な粒界分離が生じたことなどが報告されている。この結果は、パルス照射時に生じる PCMI は燃料昇温に伴う熱膨張で固体のペレットの一部が被覆管内面と接触するタイプの相互作用ではなく、ペレットの結晶粒界や粒内に蓄積した FP ガスバブルとペレット/被覆ギャップ部のガスの熱膨張により被覆管内面にほぼ均一な応力が作用するタイプの相互作用であることを示唆している。したがって、本研究では被覆管内面に急速に応力を負荷する手段として、マンドレル試験法などの機械的拡張試験ではなく、圧力媒体として油を用いて被覆管試料を内面から加圧する手法を選択し、そのための装置を考案・製作した。

本研究に用いたバースト試験機の概略系統図を Fig.3 に示す。被覆管試料を、上下の固定具を用いて材料試験機（島津製作所製、油圧式試験機 EHF-EB5KN）に固定した。試料固定のために材料試験機を用いたのは、試験条件の一つとして、試料に作用する軸方向の拘束力を調整することができるからである。試料の下端は、下部固定具を通して、電磁弁、高圧ポンプ、増圧器、高圧タンクからなる高圧系に接続した。これに対し、試料上端側は上部固定具に接続することで圧力系の閉じた末端となっている。パルス照射時に起こる PCMI を模擬するためには、パルス幅に相当する非常に短い時間で試料内圧を上昇させなければならない。そこで、まず電磁弁を閉じたまま高圧タンク内の圧力を高め（最高 200MPa）、その後電磁弁を開放し瞬時に試料内圧を高める方式とした。試験中の試料内圧の変化は、試料の上下端近傍に取り付けた周波数 100kHz の圧力セルを用いて測定した。なお、電磁弁を通らず試料と高圧タンクを結ぶバイパス系や電磁弁の下流に設けた流量調整バルブにより、試料加圧速度を調整することが可能である。なお、油圧を用いることで被覆管を破裂させるために必要な 150MPa 以上までの加圧や 600K 以上での高温試験への対応も可能である。室温での試験には圧力媒体として拡張ポンプ油を用いた。

Fig. 4 に試料取り付け部を示す。スウェージロックを用いて試料を上下固定具に接続した。下部固定具は試験機に完全に固定されるが、上部固定具は軸方向について固定・非固定が選択できる。試験の第 1 段階として実施した本シリーズでは試料上端部を固定しない

非拘束条件を選択した。ただし、試料には上部固定具の重量約 3kg が軸方向に対する圧縮力として作用している。被覆管破裂時の油の飛散を防ぐための覆いとして、試料外周位置に透明石英管を設置した。図の試料後方に赤外線イメージ炉が見えるが、これは高温試験で用いるものであり、試験時には前方にスライドさせて使用する。試験機全体の外観を Fig.5 に示す。材料試験機、電磁弁、試料圧力測定系はコントロールパネル上で制御することができる。また、圧力測定値等のデータ処理はパーソナルコンピュータを用いて行った。

バースト試験後に試料の外観を観察・写真撮影した後、膨れ破裂により被覆管直径の増大が最大となった軸方向位置で試料を半径方向に切断し、断面のマイクロ組織観察や破断面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察及び画像解析処理による周方向残留ひずみの測定を行った。

### 3. 試験結果と考察

#### 3. 1 試験機の加圧特性

水素添加処理を施していない被覆管試料（以下では非水素添加試料と記述する）を用いて、高速加圧バースト試験機の加圧速度性能（試料内の圧力応答）を調べる予備試験を行った。予備試験で測定した圧力変化を Fig.6 に示す。このデータは、電磁弁を開放し試料を加圧する前段の、高压タンクへの蓄圧を 70 ~ 170MPa まで変化させた 4 試験の結果である。高压条件で実施した 2 試験（蓄圧値 140 及び 170MPa）で試料が破損した。これらの試験では試料内圧がまず直線的に増大し、その後圧力上昇速度が減少しピーク値に至った。ピーク後圧力は僅かに低下し、試料破損により圧力は大気圧まで急激に低下した。タンク圧を 170MPa とした試験では 40ms 以内に、140MPa とした試験では 70ms 以内に圧力上昇はほぼ飽和した。したがって、高压タンク内の圧力を高めることでより高い加圧速度が得られることになる。圧力上昇の飽和までの平均加圧速度は、それぞれの試験で 3.4 及び 1.9MPa/ms であった。また、試料が破損するまでの時間も、高压タンク圧力が増大するにつれて短くなり、タンク圧力を 170MPa とした試験では、試料の加圧開始から破損までに要した時間は約 70ms であった。

蓄圧値を 70 及び 110MPa とした試験では、試料の塑性変形はほとんど見られなかった。しかし、試料加圧開始から圧力上昇速度の飽和までの圧力変化は、試料が破損した場合とほとんど同じであった。したがって、圧力の直線的増加から飽和に至る圧力変化は、本試験体系における固有の圧力応答と考えることができる。

### 3. 2 高速加圧試験

水素濃度と水素化物分布の異なる被覆管試料の破損特性を、高速加圧試験（加圧速度 1.9MPa/ms）により調べた。非水素添加試料、水素化物均一分布試料（試料中平均水素濃度 312wtppm）及び水素化物リムを有する試料（同 305wtppm）で生じた破損開口を Fig.7 に比較して示す。非水素添加試料では開口部長さ 20 ～ 30mm の典型的なバースト開口が生じた。一方、水素化物均一分布試料ではクラックが軸方向に長く伝播し、非水素添加試料とは全く様相の異なる破損開口が生じた。クラックの軸方向伝播距離、すなわち開口の長さは、水素濃度が小さくなるにしたがって短くなる傾向があった。水素化物リムを有する試料でも、同様に軸方向に長い破損開口が生じた。ここで観察された破損形態は、NSRR パルス照射により破損した高燃焼度燃料棒で見られた破損開口に酷似したものである。すなわち、本試験装置を用いる実験は、水素添加により脆化させた被覆管試料の破損形態を比較する限りにおいては、NSRR パルス照射実験を再現できている、若しくは良く模擬していると言える（Fig.1 参照）。

Fig. 8 に水素添加試料に対する高速加圧試験で測定された試料内圧の時間変化を非水素添加試料のデータと比較して示す。Fig.8(a)では、水素濃度約 148 ～ 461wtppm の水素化物均一分布試料に対する試験で得られた圧力変化（実線及び一点鎖線）と非水素添加試料に対する圧力変化（点線）と比較している。非水素添加試料を含む全試料に対する試験において、圧力上昇過程での圧力カーブは一致した。しかし、水素濃度が高くなるに伴って、圧力が急激に低下する破損までの時間が短くなり、水素濃度約 461wtppm の試料は試験開始後約 70ms で破損した。一般に水素濃度が高くなると、室温におけるジルカロイの延性がかかなり低下する（脆化する）。このため、破損までの時間が被覆管の延性に関する情報を含んでいることは明らかである。しかし、圧力変化から塑性変形時間（特に塑性変形開始時点）を特定することはできない。したがって、本研究では、圧力変化データから直接、延性に関する定量的な検討を行うことはできなかった。Fig.8(b)では、水素化物リムを有する試料で測定した圧力変化を非水素添加試料に対するデータと比較している。水素化物リムを有する試料の試料中平均水素濃度は、302 及び 305wtppm であった。2つの試料はいずれも、加圧開始後 25 ～ 30ms の時点で、昇圧過程途中で破損した。これらより水素濃度の高い水素化物均一分布試料（Fig.8(a)）に比べても、破損までの時間は短かく、最高圧力も顕著に低下した。このことは、水素化物リムの存在により、破損に至る被覆管の強度と変形量が小さくなることを示している。

Fig.6 や Fig.8(a)に示すように、一般に試料内圧は一旦ピーク値に達した後、僅かに低下して破損に至った。ピーク後の圧力低下は、主に試料の膨張に伴う肉厚減少に起因すると考えられる。したがって、被覆管の耐破損強度に関する比較は、破損直前の圧力ではなく、測定された最高圧力を用いて行うべきであろう。Table 1 に、高速加圧試験（加圧速度 1.9MPa/ms）で得られた最高試料内圧とこの値から計算した周方向応力及び破損直前の試料内圧（バースト圧力）をまとめて示す。周方向応力の計算には、薄肉管の円周方向応力算出に適用される次式を用いた。

$$\sigma_h [\text{MPa}] = P [\text{MPa}] \cdot R_i [\text{mm}] / t [\text{mm}]$$

ここで、 $\sigma_h$ は周方向応力、 $P$ は内圧、 $R_i$ は被覆管内径、 $t$ は被覆管肉厚である。非水素添加試料では、測定された最高圧力は約 125MPa であり、上式により周方向応力は 902MPa と計算される。なお、割管試験片を用いた軸方向引張り試験とリング引張り試験で測定した非水素添加試料の引張り強さは、各々 830 ~ 890MPa、820 ~ 870MPa の範囲にあった。本試験での応力条件（応力負荷方向）は、リング引張り試験のものに近いが、本試験で得られた最大周方向応力はリング引張り試験で求められた引張り強さよりも若干大きかった。水素化物均一分布試料では、水素濃度の増大によっても最高圧力に変化はほとんど見られず、最高圧力は非水素添加試料と同等であった。Fig.8(b)に示したように、水素化物リムを有する試料では最高圧力が顕著に低下した。試験した試料では、最高圧力は約 100MPa にまで減少した。すなわち本高速加圧バースト試験で測定された試料内圧変化から、水素化物リムが被覆管強度を低下させることが明らかになった。

水素化物リムを有する試料の破損部近傍断面（径方向）での水素化物析出形態と破損形態を Fig.9 に示す。水素化物リム層では、内圧負荷により被覆管に応力の作用する方向である周方向に垂直のクラックが生じている。これはリム層の低延性破断を示している。一方、リム層より内側の領域では、リム層から進展してきたクラックがそのまま直線的に伝播するのではなく、周方向に対して概ね 45 度の傾きを持つクラックが数段階連続して貫通している。この破損形態は、NSRR 実験で破損した燃料で観察された破損形態 (Fig.1) と極めて良く類似していることから、同一のメカニズムで破損したものと考えられる。

同一試料における破断面の SEM 像を Fig.10 に示す。破断面には小さなクラックが数多く見られるが、それらは水素化物の存在位置に対応していると考えられ、外面近傍の水素化物リム領域でその密度が増加している。Fig.10(b)は被覆管の内面に近い領域の拡大写真であるが、この部分では延性破断の特徴であるディンプル（多数の小さいくぼみ）が確認できる。一方、Fig.10(a)に示されるように、水素化物リム領域では、非リム領域との境界でディンプルが僅かに見える程度であり、破断面は脆性破壊の様相（へき開段またはリバー・パターン）を呈している。

断面ミクロ組織観察や破断面の SEM 観察、さらには試験中の圧力変化に関する知見を総合すると、圧力上昇過程の比較的早い時期に低延性の水素化物リム領域でクラックが発生し、クラック先端部に応力が集中したために短時間のうちにクラックの伝播が生じて被覆の肉厚を貫通するという破損過程を推定することができる。同様の破損が高燃焼度燃料棒の NSRR パルス照射時にも生じたと考えられる。

### 3. 3 低速加圧試験

NSRR パルス照射試験結果の実炉への適用性に関して、検討課題として指摘されていることの一つに、パルス幅が短すぎるという点がある。すなわち、実炉で生じる現象に比較して、パルス時の燃料棒内圧上昇速度が大きすぎるということである。この因子が燃料棒

の破損挙動にどの程度影響するのかを調べる目的で、低速加圧試験も実施した。本試験装置では、電磁弁は閉じた状態で、高圧ポンプと増圧器により直接試料を加圧した場合、加圧速度約 0.002MPa/ms という条件を作り出すことができる。この条件での低速加圧試験を行った。非水素添加試料に対する試験では、加圧開始から試料破損までに約 60s を要した。低速加圧試験で破損させた非水素添加試料、水素化物均一分布試料、水素化物リム試料の試験後外観の例を Fig.11 に示す。非水素添加試料 (Fig.11 (a)) では、十分な延性を有する被覆管の破裂試験で一般に観察される形態の破裂開口が生じた。一方、水素化物均一分布試料 (平均水素濃度 352wtppm、Fig.11 (b)) と水素化物リム試料 (同 520wtppm、Fig.11 (c)) では軸方向に長い破損開口が生じた。これらの破損形態は、高速加圧試験で観察された結果 (Fig.7) とほとんど変わらない。したがって、加圧速度が約 1000 倍異なることによる破損形態の変化は生じなかったことになる。

本試験の結果は、NSRR パルス照射で破損した高燃焼度燃料棒に見られる軸方向の長い破損開口 (Fig.1) は、NSRR のパルス幅が著しく小さいために生じた特異な破損形態ではないことを示している。なお、商用炉で予想される RIA 時のパルス幅は 200ms 以下であり、RIA 時に生じる燃料棒内圧の上昇速度は本試験における高速加圧試験の条件に近い。Garde は、高燃焼度燃料被覆管に対する従来手法のバースト試験 (推定加圧速度は 0.001MPa/ms 以下) でも軸方向に長い破損開口が生じたことを報告している [8]。

低速試験においては、試料破損 (バースト) 直前の圧力と最高圧力はほぼ一致した。得られた最高 (バースト) 圧力を Table 2 に示す。非水素添加試料と水素化物均一分布試料での最高圧力は 123 ~ 126MPa であり、400 ~ 500wtppm 程度までの範囲ではあるが、水素を添加した影響はほとんど見られなかった。また、Table 1 に示す高速加圧試験の結果と比較しても、最高圧力に差は見られない。なお、非水素添加試料と水素化物均一分布試料の最高圧力から計算される周方向応力は、902 ~ 924MPa である。一方、水素化物リム試料 (水素濃度 520wtppm) で測定された最高圧力は 77MPa であり、このときの周方向応力は 565MPa と評価された。水素化物リム試料については、高速加圧試験の場合と同様に明らかな最高圧力、すなわち強度の低下が見られた。ここで測定された最高圧力 77MPa は、高速加圧試験で破損した水素化物リム試料 (水素濃度約 300wtppm) の値 (最高圧力 104MPa) と比べて小さかった。この差は水素濃度の差に起因すると考えられる。

### 3. 4 残留周方向ひずみの測定

破損試料の全長について、膨れによる直径の増大を測定し、最大の増大を示した軸方向位置での径方向断面を写真撮影 (マクロ写真) し、画像解析装置を用いて被覆管内周及び外周を測定した。非変形試料と破損試料の測定結果を比較することで、内面及び外面での周方向残留ひずみを評価した。破損試料断面のマクロ写真例を Fig.12 に、また低速及び高速加圧試験で破損した試料の周方向ひずみ量測定結果をそれぞれ Table 3 と 4 に示す。測定したすべての試料で、内面及び外面での残留ひずみ量は同一値ではなく、常に内面で

の残留ひずみ量の方が大きい値となった。このような内外両面での残留ひずみ量の差は、おそらくクラックの発生位置が外表面であることに起因していると思われる。すなわち外表面においてクラックが発生した後も、内表面はクラックが貫通するまでの間、変形し続けるからである。

Fig.13 に測定した残留ひずみ量を試料の水素濃度を関数として示す。残留ひずみ量は最大値（内面での測定値）と最小値（外面での測定値）を幅（エラーバー）で表示し、単純平均値を点で示している。水素濃度は残留ひずみを測定した位置の直近の位置から採取した試験片を分析した値である。図中では、低速加圧試験（0.002MPa/ms）で破損した水素化物均一分布試料で測定した残留ひずみ量を白丸（○）で示している。ばらつきはあるものの、水素濃度の増大に伴って残留ひずみ量が低下する傾向があり、約 300wtppm 以上の水素濃度範囲での残留ひずみ量の低下は顕著である。高速加圧試験（1.9MPa/ms）で破損した水素化物均一分布試料で測定した残留ひずみを黒丸（●）で示す。この試料では水素濃度の増大に伴う残留ひずみの低下傾向がより明確に見られる。高速加圧試験で得られたデータは、低速加圧試験で得られたデータのばらつきの範囲（図中で灰色に着色した領域）にはほぼ含まれるが、非水素添加試料を除く全てのデータはこの範囲の下限にあった。したがって、加圧速度増大により残留ひずみ量は低下すると言える。しかし、加圧速度が約 1000 倍上昇した割には、その低下はさほど顕著ではないとも言える。

水素化物リム試料を低速及び高速加圧で破損させた場合の残留ひずみ量は、それぞれ白三角（△）と黒三角（▲）で示している。データ点は少ないが、いずれも水素化物均一分布試料に比べて低い残留ひずみ量を示した。水素化物リム試料で測定した残留ひずみ量の絶対値は著しく小さく、0.5%以下であった。

ところで、本研究における残留ひずみ量測定で得たデータにはある程度の誤差が含まれるはずである。誤差はいくつかの要因によるものであるが、それらの主なものは、

1. 断面マクロ写真による誤差（撮影倍率など）
2. 画像解析処理で生じる誤差

である。後者には、画像解析処理が標準試料と試験済試料を比較する手法に基づくものであるため、燃料被覆管試料外径及び内径の不均一性も誤差要因として含まれる。測定においては、試験済み試料を標準試料を同一の過程で処理し比較測定を実施し、また繰り返して測定することで誤差を最小限にする努力をした。本試験における測定誤差は、比較的小さいと考えられるが、それを定量的に示すことは困難である。Table 3 及び 4 にまとめた残留ひずみ量において、水素化物リム試料の外表面（水素化物リム部）で、マイナスの評価値（最大：-0.5%）が見られる。しかし、バースト試験により外径が収縮することは考え難い。一方、ミクロ組織観察や SEM 観察結果などから、水素化物リム部の破損は脆性的であることが示されている。したがって、外周のリム部にはほとんど変形せずにクラックが生じたことになり、残留ひずみ量はゼロに近い値であると考えられる。したがって、水素化物リムで測定された残留ひずみ量の範囲± 0.4% (-0.5 ~ 0.2%) 程度を誤差と考えることもできる。なお、高濃度の水素吸収により被覆管直径は僅かに増加する。水素吸収試料の残留ひずみ量評価では、試験前にマイクロメータを用いて測定した試料外径の差を参

考に、画像解析から求めた外周長を補正した。

## 4. まとめ

高燃焼度燃料棒のパルス照射時における被覆破損挙動に及ぼす様々な因子の影響を評価するために、高速加圧バースト試験装置を製作し、水素添加ジルカロイ-4被覆管（平均水素濃度 200 ~ 600wtppm）に対する室温での試験を実施した。その結果、以下のことが明らかになった。

- (1) 水素化物添加試料の試験において、高燃焼度 PWR 燃料棒に対する NSRR パルス照射試験で見られた破損形態（軸方向に長い破損開口）を再現した。このような破損形態は加圧速度に依存せず生じたことから、水素吸収により脆化した被覆管が内部からの応力により破損する場合には一般的に起こる現象であると考えられる。
- (2) 周方向残留ひずみ量は、水素濃度の増大と水素化物の外面への偏析（水素化物リムの形成）によって明確に低下した。
- (3) 水素化物リムを有する試料では、残留ひずみ量だけではなく、内圧に対する被覆管の耐破損強度も低下した。
- (4) 被覆管破損挙動に及ぼす加圧速度の影響は比較的小さかった。すなわち、破損形態には影響せず、変形量（周方向残留ひずみ量）は高速加圧試験において若干小さくなった。
- (5) 高濃度の水素や水素化物リムの形成は、パルス照射時の高燃焼度燃料破損挙動に極めて大きな役割を果たすと考えられる。

## 参考文献

- [1] T. Fuketa, Y. Mori, H. Sasajima, K. Ishijima, and T. Fujishiro; Proc. CSNI Specialist Mtg. On Transient Behavior of High Burnup Fuel, Cadarache, France, Sept. 12-14, 1995, NEA/CSNI/R(95)22, 1996, pp.59-85.
- [2] T. Fuketa, H. Sasajima, Y. Mori, and K. Ishijima; J.Nucl.Mater. 248 (1997) 249-256.
- [3] T. Fuketa, H. Sasajima, Y. Tsuchiuchi, Y. Mori, T. Nakamura, and K.Ishijima; Proc. 1997 Int. Topical Mtg. LWR fuel Performance, Portland, Oregon, Mar. 2-6, 1997, pp.669-676.
- [4] F. Schmitz, Ch., Gonner, and J. Papin; Proc. 24th Water Reactor Safety Information Mtg., Bethesda, Maryland, Oct. 21-23, 1996, NUREG/CP-0157, Vol.1, 1997, pp.107-130.
- [5] J.M. Frizonnet, J.P. Breton, H. Rigat, and J. Papin; Proc. 1997 Int. Topical Mtg. LWR fuel Performance, Portland, Oregon, Mar. 2-6, 1997, pp.685-692.
- [6] F. Nagase and H. Uetsuka; Proc. 1997 Int. Topical Mtg. LWR fuel Performance, Portland, Oregon, Mar. 2-6, 1997, pp.677-684
- [7] J.J. Kearns; J.Nucl.Mater. 22(1967) 292.
- [8] A.M. Garde; "Zirconium in the nuclear industry," ASTM STP 1023, L.F.P. Van Swam and C.M. Eucken, Eds., ASTM, Philadelphia, 1989, pp.548-569.



Table 1 Peak and burst pressure measured in burst tests with the pressurization-rate of 1.9 MPa/ms

Type of sample, hydrogen concentration [wtppm]	Peak pressure [MPa]	Estimated hoop stress (peak) [MPa]	Burst pressure [MPa]
Non-hydrided	120 - 125	880 - 902	120 - 123
Without hydride rim			
148	123	902	120
172	125	917	121
312	123	902	123
461	127	924	126
With hydride rim			
302	104	763	104
305	97	712	97

Table 2 Burst pressure measured in burst tests with the pressurization-rate of 0.002 MPa/ms

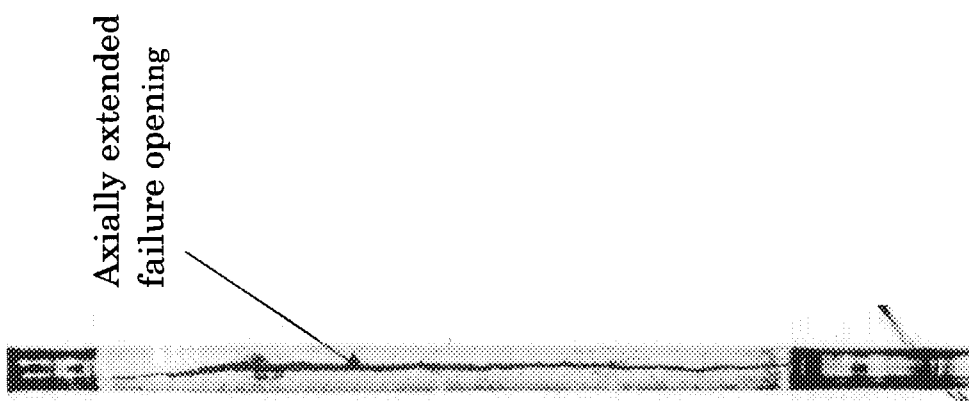
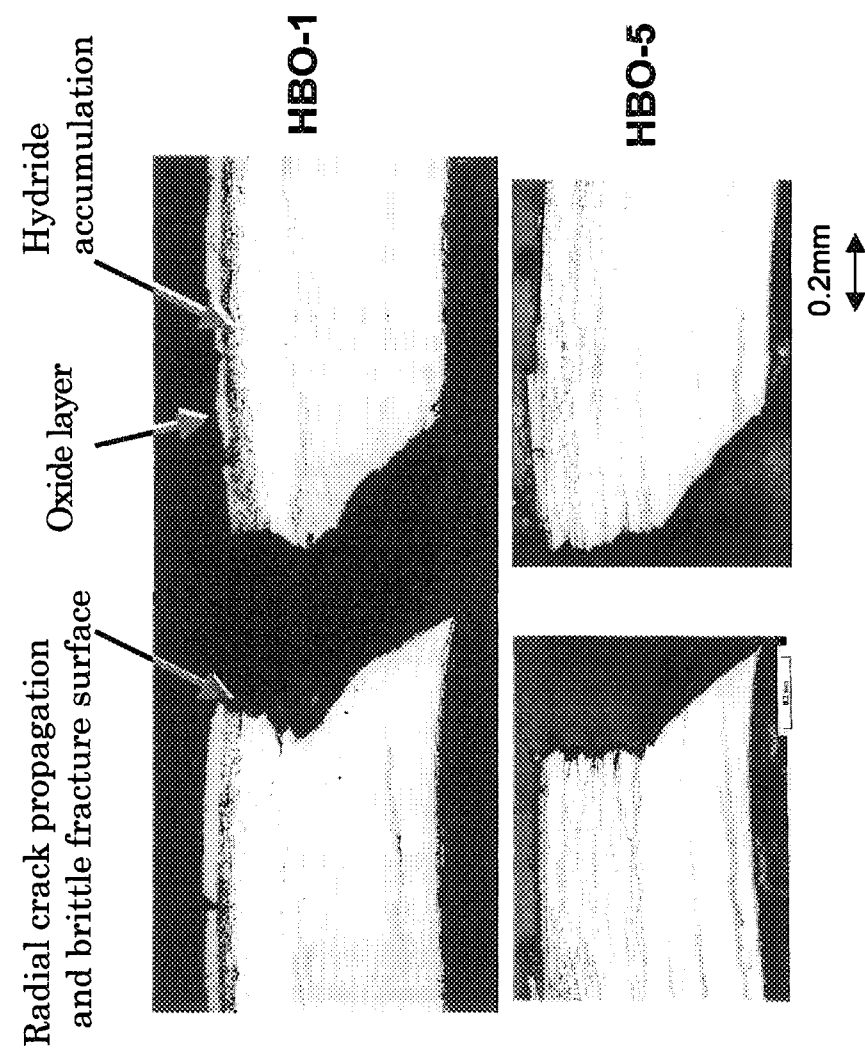
Type of sample, hydrogen concentration	Peak / Burst pressure [MPa]	Estimated hoop stress [MPa]
Non-hydrided , 10	123 - 124	902 - 910
Without hydride rim,		
166	124	910
352	124	910
461	126	924
With hydride rim,		
520	77	565

Table 3 Residual hoop strain measured in sample failed in the burst test with the pressurization-rate of 1.9 MPa/ms

Type of sample	Hydrogen concentration [wtppm]	Residual hoop strain [%]	
		at Outer - Inner surface	Average
Non-hydrided	10	5.8 - 10.7	8.3
	10	6.2 - 10.2	8.2
Without hydride rim	148	3.5 - 7.1	5.3
	172	3.9 - 8.0	5.9
	461	0.3 - 2.0	1.2
	312	-0.1 - 2.8	1.4
With hydride rim	305	-0.5 - 1.0	0.5
	302	0.2 - 1.2	0.7

Table 4 Residual hoop strain measured in sample failed in the burst test with the pressurization-rate of 0.002 MPa/ms

Type of sample	Hydrogen concentration [wtppm]		Residual hoop strain [%]	
	<i>Average in sample (Local at failure position)</i>		at Outer - Inner surface	<i>Average</i>
Non-hydrided	10	(10)	6.4 - 12.2	9.3
	10	(10)	4.3 - 8.9	6.6
Without hydride rim	230	(166)	6.7 - 11.3	9.0
	445	(461)	0.5 - 2.7	1.6
	445	(352)	1.7 - 5.7	3.7
With hydride rim	300	(520)	-0.1 - 0.8	0.4



(a) Post-test appearance of NSRR/HBO-5 fuel segment

(b) Hydride morphology and wall-through cracks observed in radial cross section of NSRR/HBO-1 and -5 fuel segment

Fig.1 Post-test appearance and radial cross sections of the high burnup PWR fuels pulse-irradiated at the NSRR[1-3]

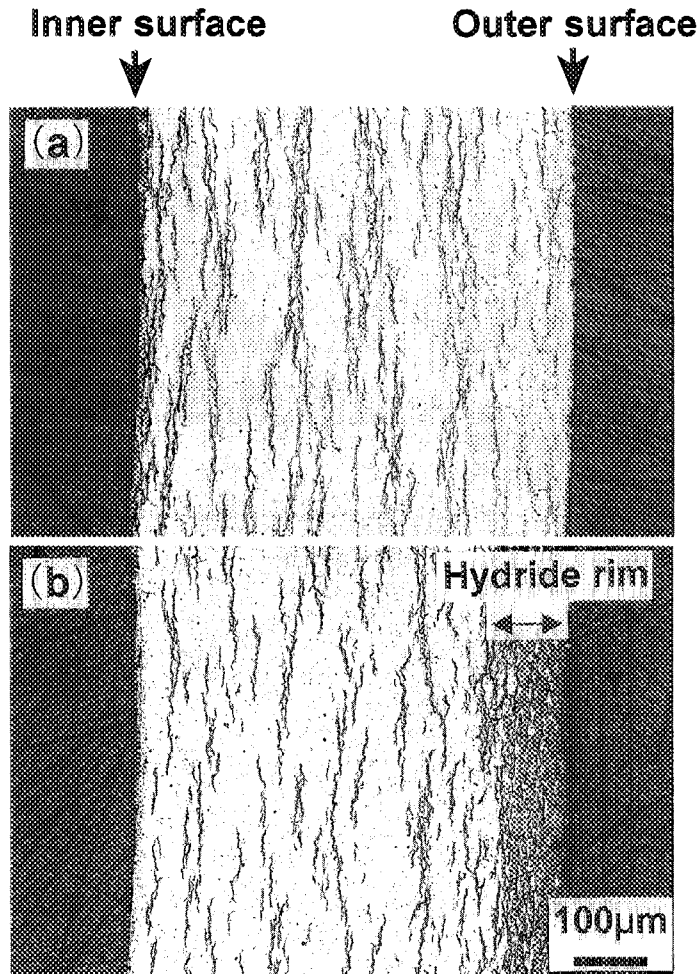


Fig.2 Hydride morphology in the radial cross sections of hydrided samples; (a)sample without hydride rim, (b)simulated high burnup fuel cladding with hydride rim

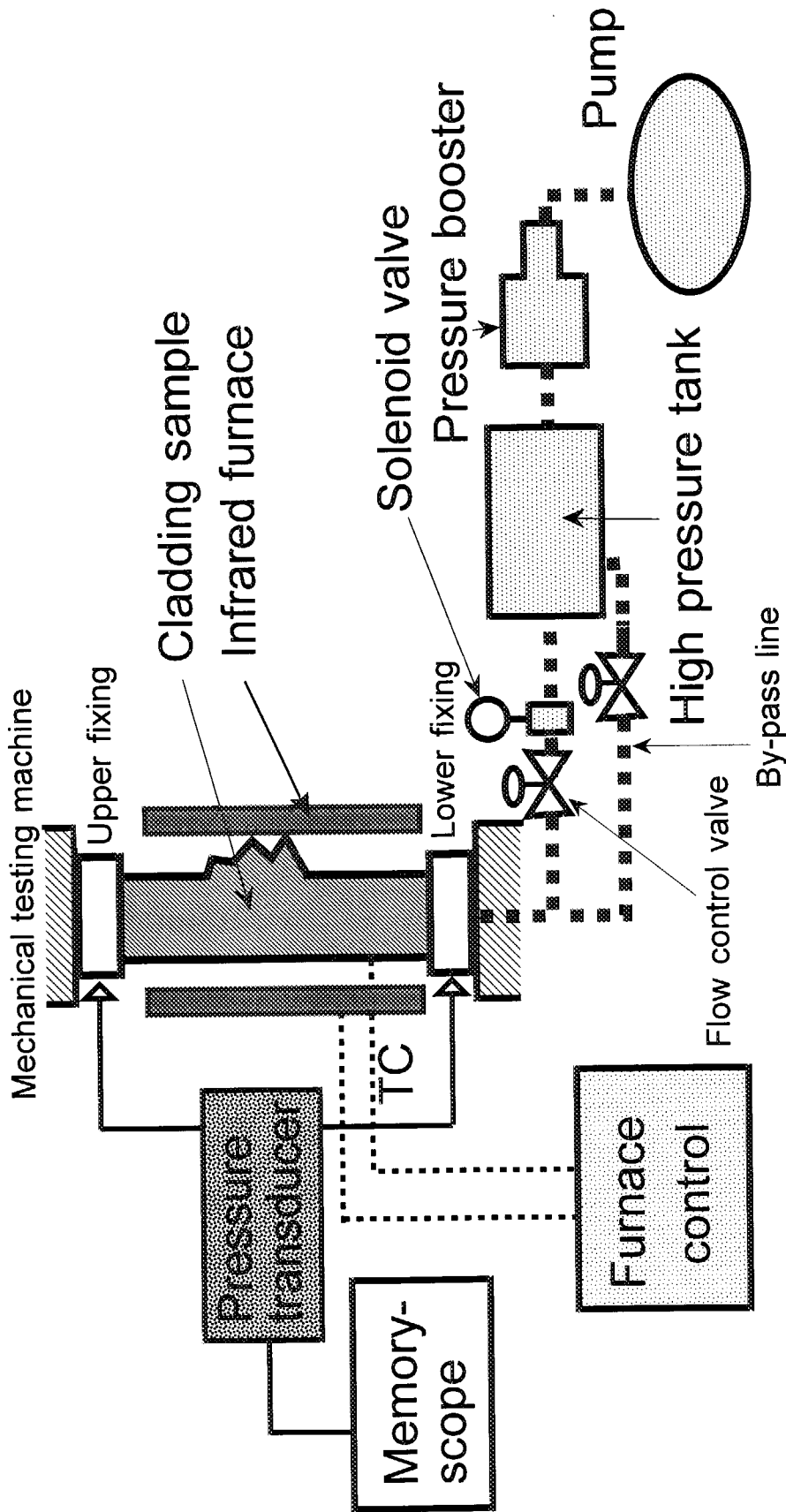


Fig.3 Schematic drawing of burst test apparatus (Upperr end of the sample was not fixed in the present study.)

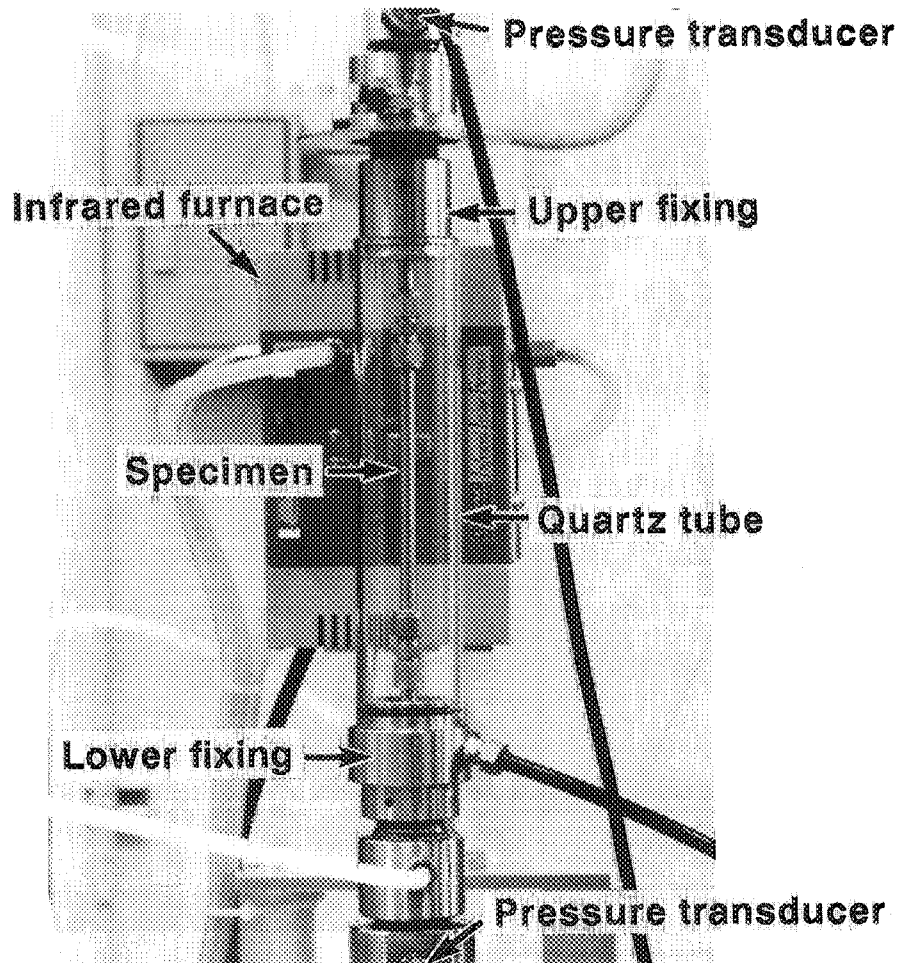


Fig.4 Specimen setup

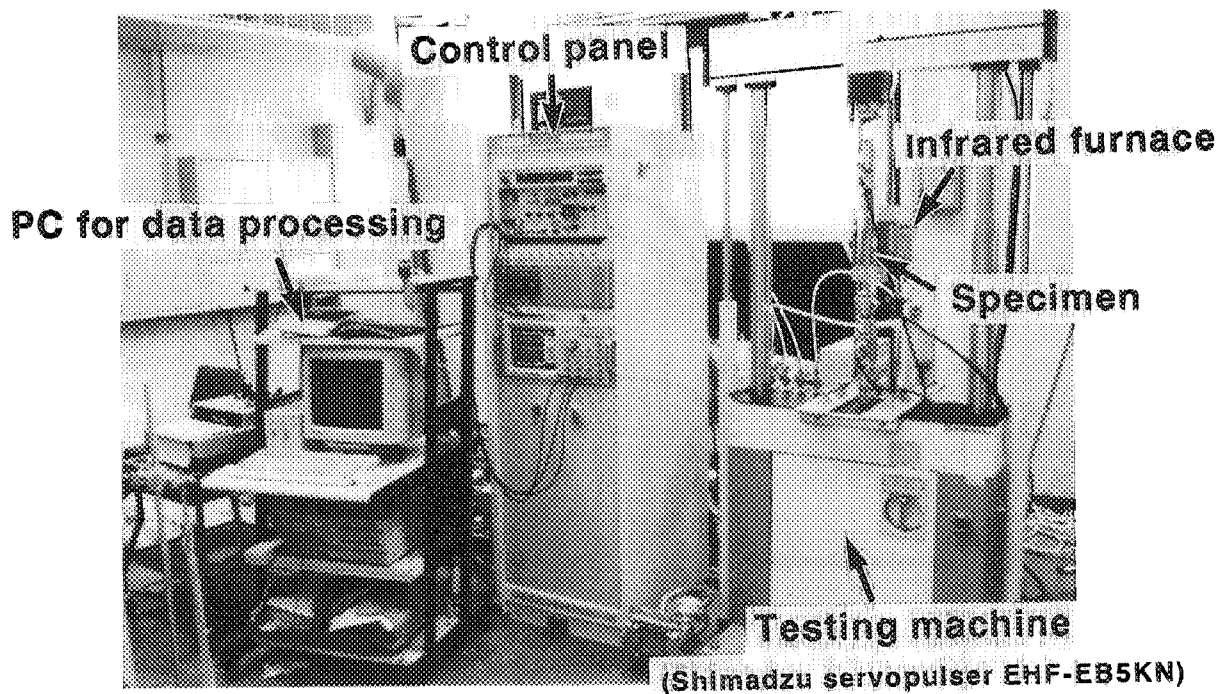


Fig.5 Whole view of the burst test apparatus

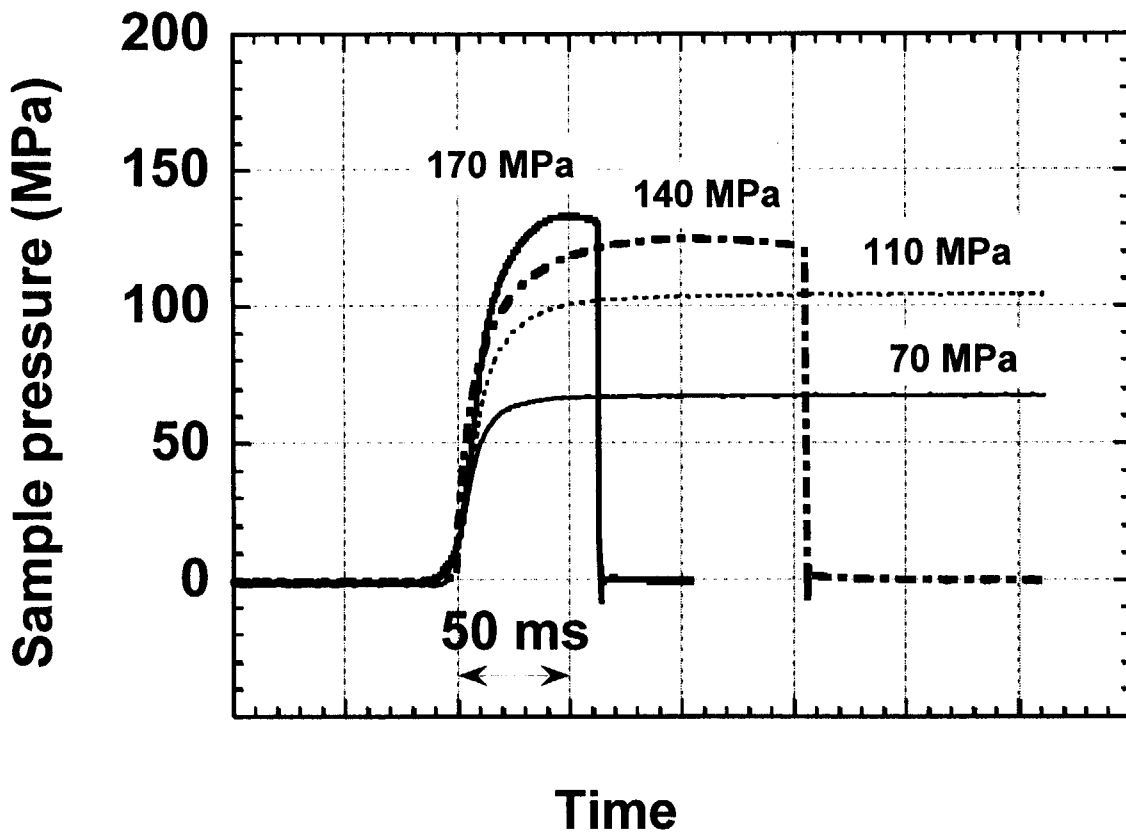
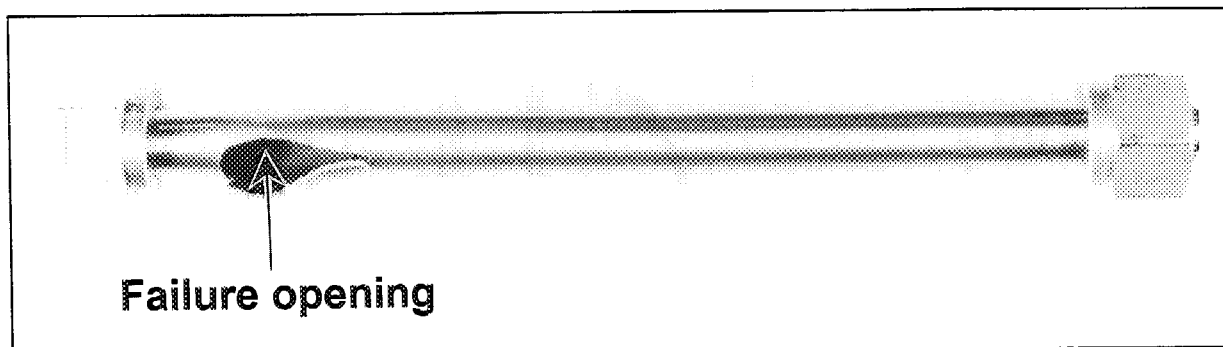


Fig.6 Pressure changes measured in the burst tests on non-hydrated PWR cladding samples. Accumulated pressure of 70 to 170 MPa in the high-pressure tank was introduced to the samples.

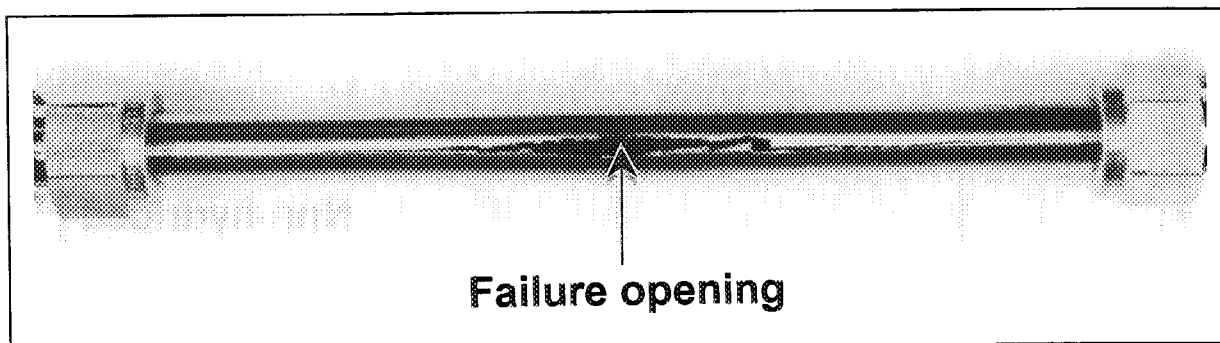


[1.9 MPa/ms]

(a) Non-hydrided cladding sample (10 wtppm)



(b) Hydrided cladding sample without hydride rim (312 wtppm)



(c) Hydrided cladding sample with hydride rim (305 wtppm)

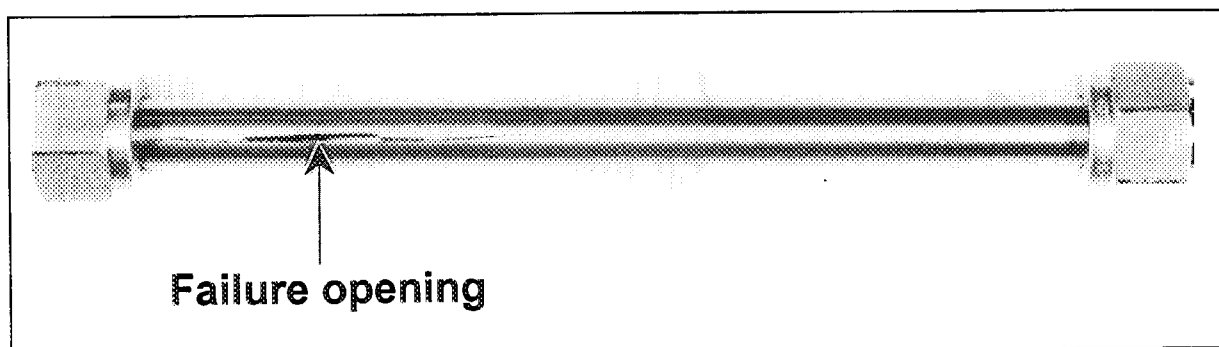


Fig.7 Post-test appearances of cladding samples tested at high pressurization rate (1.9 MPa/ms) at room temperature; (a) non-hydrided sample, (b) hydrided sample without hydride rim (312 wtppm), and (c) hydrided sample with hydride rim (305 wtppm)

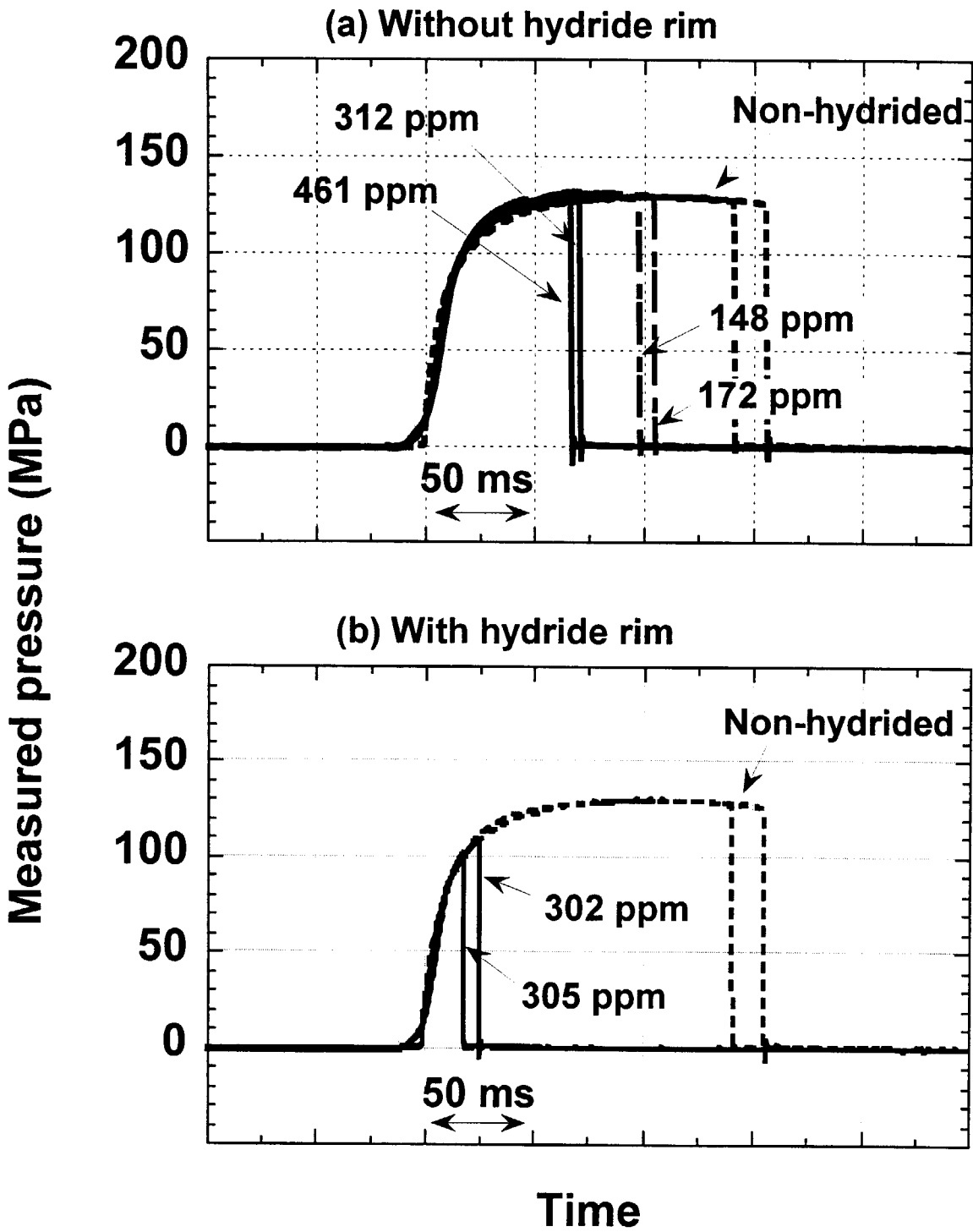


Fig.8 Pressure changes measured in the high pressurization-rate tests(1.9 MPa/ms) at room temperature

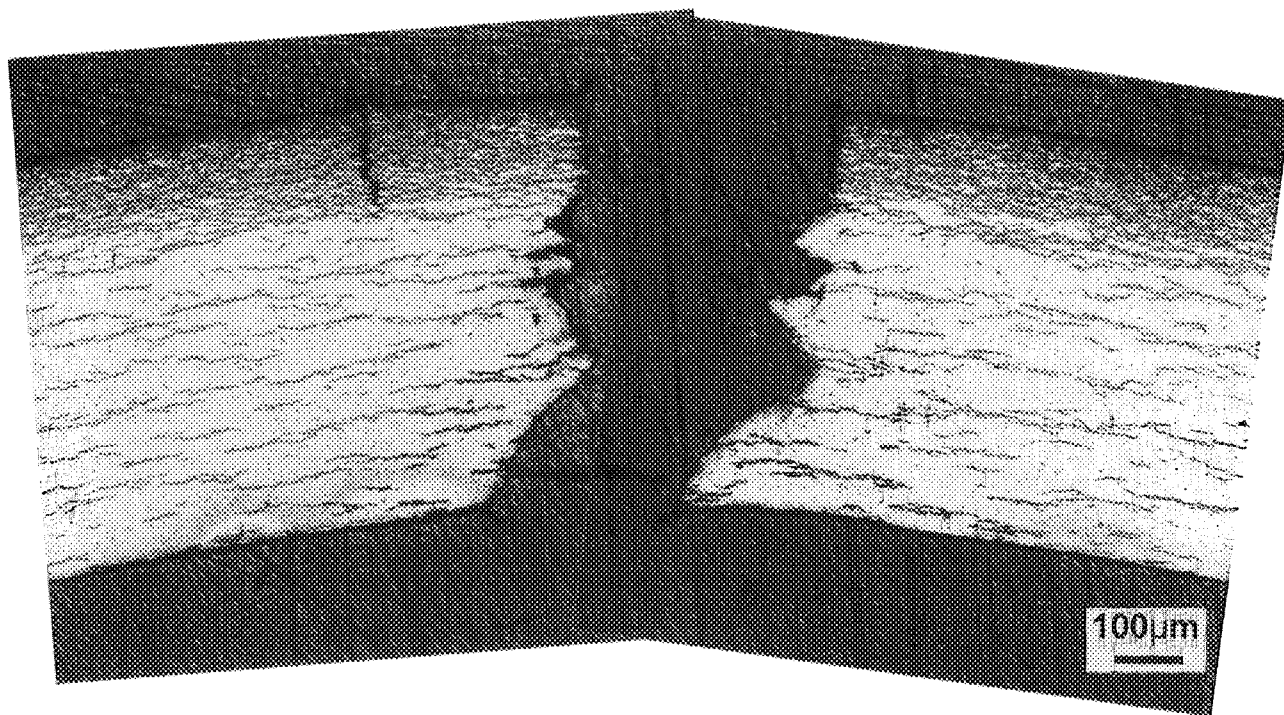


Fig.9 Radial cross section in the vicinity of the failure position in the hydrided sample with hydride rim

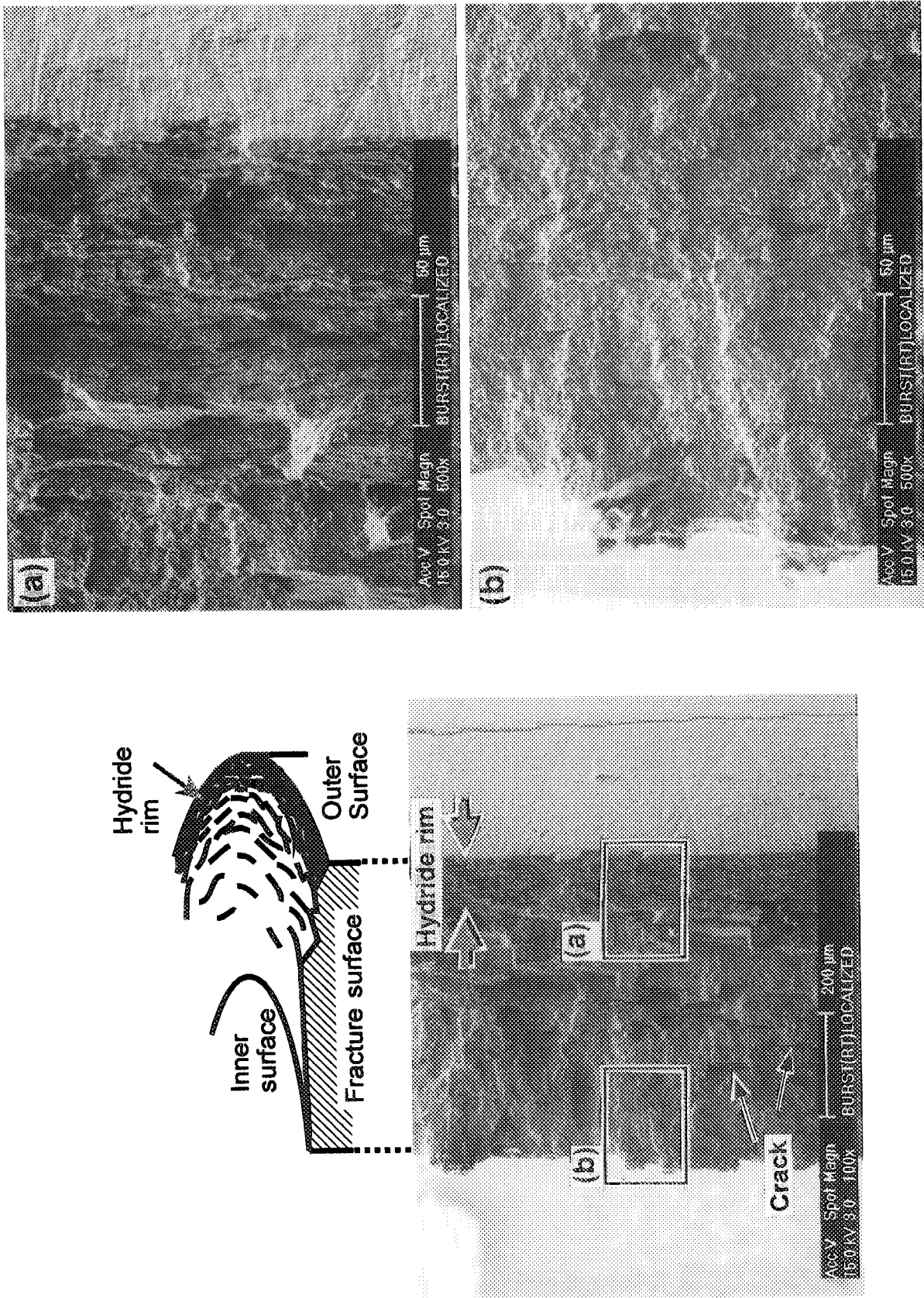
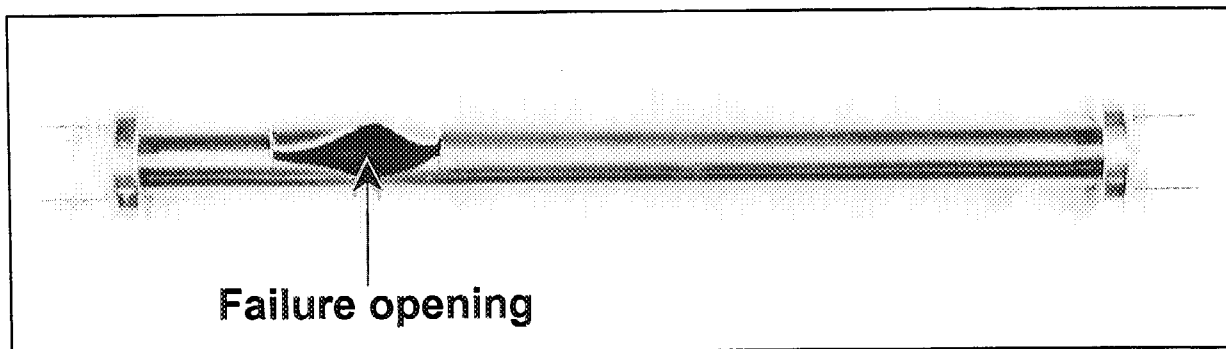


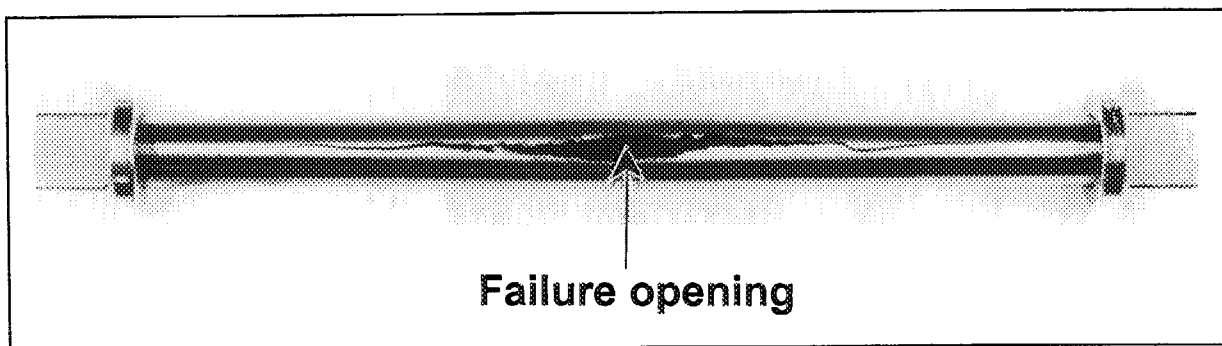
Fig.10 SEM images of the fractured surface in the sample with the hydride rim

**[0.002 MPa/ms]**

**(a) Non-hydrided cladding sample (10 wtppm)**



**(b) Hydrided cladding sample without hydride rim (352 wtppm)**



**(c) Hydrided cladding sample with hydride rim (520 wtppm)**

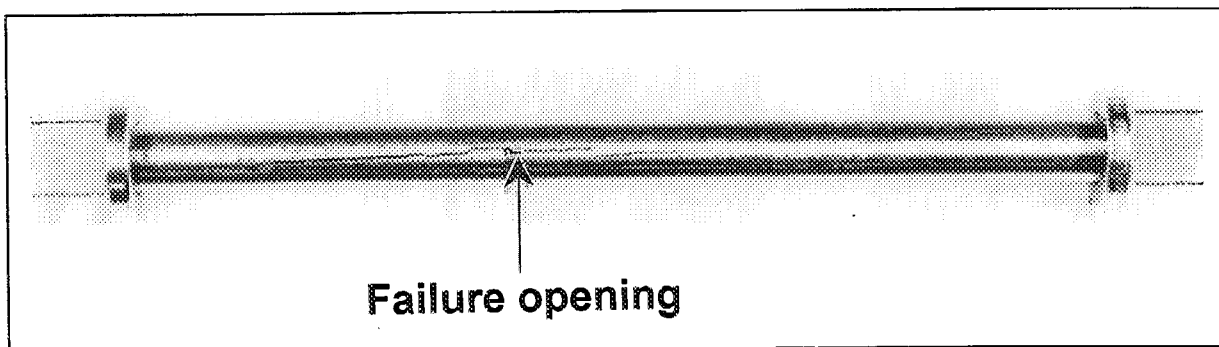
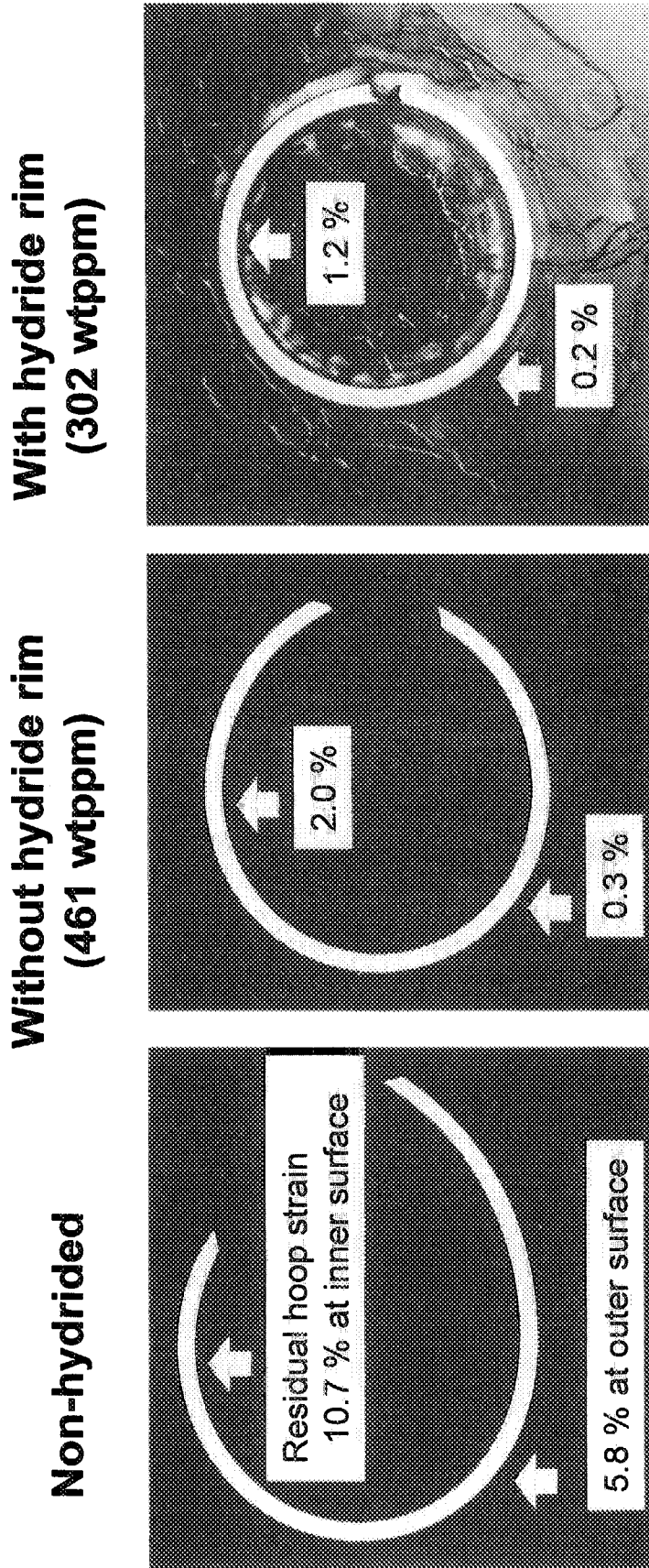


Fig.11 Post-test appearances of cladding samples tested at low pressurization rate (0.002 MPa/ms) at room temperature; (a) non-hydrided sample, (b) hydrided sample without hydride rim (352 wtppm), and (c) hydrided sample with hydride rim (520 wtppm)



### Samples failed in burst test at 1.9 MPa/ms

Fig.12 Cross sections of samples failed in the burst tests at 1.9 MPa/ms at room temperature (Residual hoop strain at inner and outer surfaces are also indicated.)

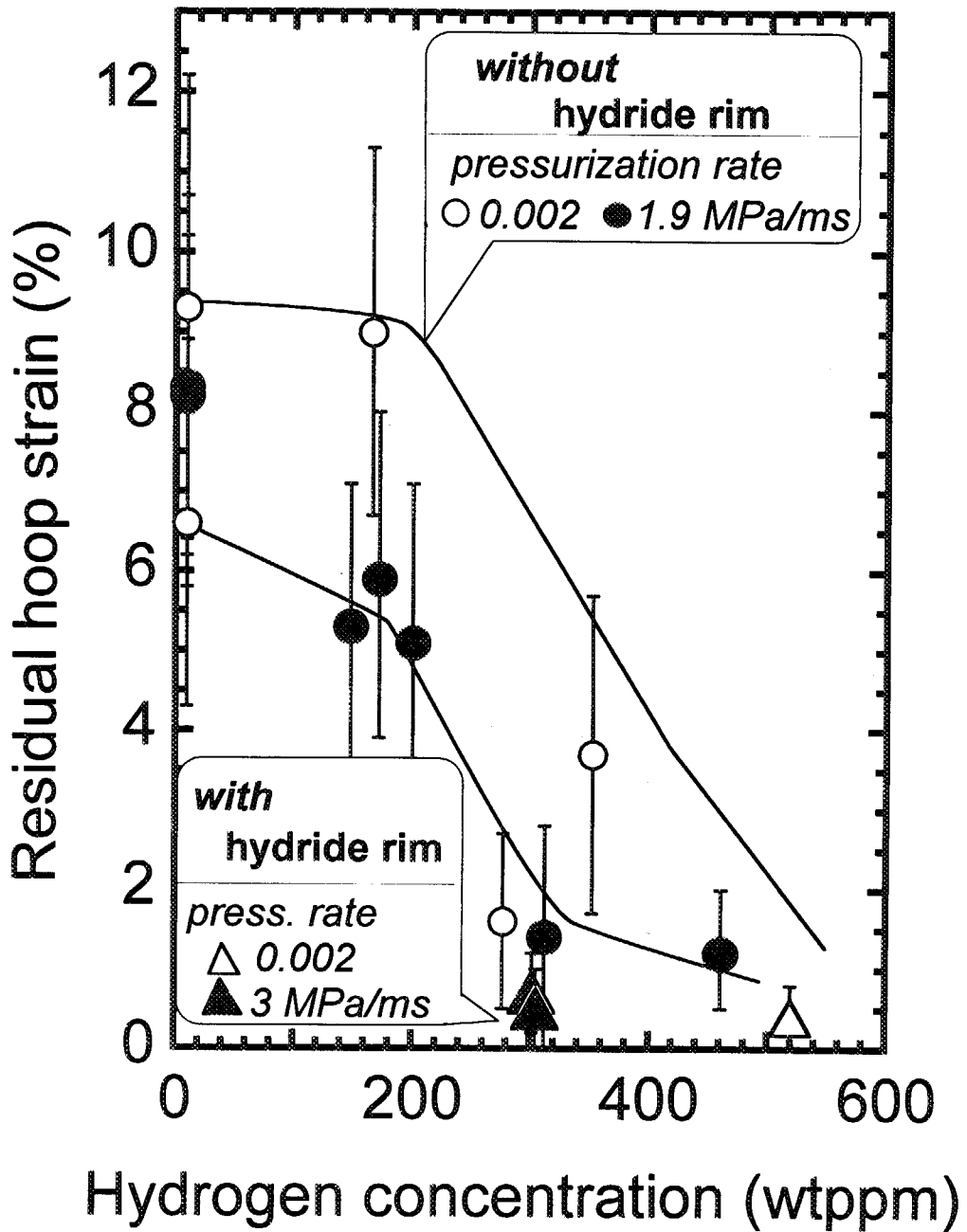


Fig.13 Residual hoop strain measured in failed samples as a function of hydrogen concentration

This is a blank page.



# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	"', ''
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10<sup>-19</sup>J  
1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射線量	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10<sup>-10</sup>m  
1 b=100fm<sup>2</sup>=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>  
1 bar=0.1MPa=10<sup>5</sup>Pa  
1 Gal=1cm/s<sup>2</sup>=10<sup>-2</sup>m/s<sup>2</sup>  
1 Ci=3.7×10<sup>10</sup>Bq  
1 R=2.58×10<sup>-4</sup>C/kg  
1 rad=1cGy=10<sup>-2</sup>Gy  
1 rem=1cSv=10<sup>-2</sup>Sv

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC関係理事会指令ではbar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	N(=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 <sup>1</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 <sup>-4</sup>	1.35951×10 <sup>-3</sup>	1.31579×10 <sup>-3</sup>	1	1.93368×10 <sup>-2</sup>
	6.89476×10 <sup>3</sup>	7.03070×10 <sup>2</sup>	6.80460×10 <sup>2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813×10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150×10 <sup>18</sup>
	9.80665	1	2.72407×10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487×10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082×10 <sup>19</sup>
	3.6×10 <sup>6</sup>	3.67098×10 <sup>5</sup>	1	8.59999×10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522×10 <sup>6</sup>	2.24694×10 <sup>25</sup>
	4.18605	0.426858	1.16279×10 <sup>-6</sup>	1	3.96759×10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272×10 <sup>19</sup>
	1055.06	107.586	2.93072×10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515×10 <sup>21</sup>
	1.35582	0.138255	3.76616×10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506×10 <sup>-3</sup>	1	8.46233×10 <sup>18</sup>
	1.60218×10 <sup>19</sup>	1.63377×10 <sup>20</sup>	4.45050×10 <sup>-26</sup>	3.82743×10 <sup>-20</sup>	1.51857×10 <sup>-22</sup>	1.18171×10 <sup>19</sup>	1

1 cal= 4.18605J (計量法)  
= 4.184J (熱化学)  
= 4.1855J (15°C)  
= 4.1868J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS(仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

室温における水素吸収シリカロイ4燃料被覆管の高速加圧バースト試験