

JAERI-Review

JP0250562

2002-027



燃料安全研究 2001

2002年11月

(編) 上塙 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。

入手の問合せは、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.

燃料安全研究 2001

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
(編) 上塙 寛

(2002年 9月 4日受理)

燃料安全研究室では、原研における水炉燃料の安全性に関するほとんどの研究課題を担当しており、原研が有する原子炉施設、すなわち NSRR(Nuclear Safety Research Reactor)、JMTR(Japan Material Testing Reactor)、JRR-3(Japan Research Reactor 3)及び燃料試験施設(RFEF(Reactor Fuel Examination Facility))などを利用して様々な実験を実施している。これらの中では、高燃焼度燃料及び MOX 燃料の事故時における安全性の確認研究が中心課題である。多岐に渡る実験研究、解析研究を行っており、研究対象分野に対応した研究体制として下記の 5 グループを設けている。

- ・ 反応度事故時挙動研究グループ(RIA グループ)
- ・ 冷却材喪失事故時挙動研究グループ(LOCA グループ)
- ・ 通常運転時挙動研究グループ(JMTR/BOCA グループ)
- ・ 燃料挙動解析研究グループ(FEMAXI グループ)
- ・ 照射済燃料からの放射性物質放出・移行挙動研究グループ(VEGA グループ)

2001 年に実施した研究では、NSRR における BWR 出力振動試験の成功、水素吸収被覆管の LOCA 急冷時耐破断特性を調べる実験の進展、シビアアクシデントの炉心雰囲気を模擬した水蒸気雰囲気下での放射性物質放出を評価する VEGA 実験の成功等、有用な成果が得られた。

本報告書は、燃料安全研究室が 2001 年に実施した研究の概要と主な成果をまとめたものである。

Fuel Safety Research 2001

(Ed.) 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, September 4, 2002)

The Fuel Safety Research Laboratory is in charge of research activity which covers almost research items related to fuel safety of water reactor in JAERI. Various types of experimental and analytical researches are being conducted by using some unique facilities such as the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR), the Japan Material Testing Reactor (JMTR), the Japan Research Reactor 3 (JRR-3) and the Reactor Fuel Examination Facility (RFEF) of JAERI. The research to confirm the safety of high burn-up fuel and MOX fuel under accident conditions is the most important item among them. The laboratory consists of following five research groups corresponding to each research fields ;

- Research group of fuel behavior under the reactivity initiated accident conditions (RIA group)
- Research group of fuel behavior under the loss-of-coolant accident conditions (LOCA group)
- Research group of fuel behavior under the normal operation conditions (JMTR/BOCA group)
- Research group of fuel behavior analysis (FEMAXI group)
- Research group of radionuclides release and transport behavior from irradiated fuel under severe accident conditions (VEGA group)

The research conducted in the year 2001 produced many important data and information. They are, for example, the fuel behavior data under BWR power oscillation conditions in the NSRR, the data on failure-bearing capability of hydrided cladding under LOCA conditions and the FP release data at very high temperature in steam which simulate the reactor core condition during severe accidents.

This report summarizes the outline of research activities and major outcomes of the research executed in 2001 in the Fuel Safety Research Laboratory.

Keywords : Fuel, Safety, NSRR, RIA, LOCA, JMTR, BOCA, FEMAXI, VEGA

目次

1.はじめに.....	1
2.反応度事故時の燃料挙動研究.....	5
2.1 研究の概要.....	5
2.2 高燃焼度 BWR 燃料実験.....	8
2.3 高燃焼度 PWR 燃料実験.....	11
2.4 出力振動実験.....	14
2.5 水素添加被覆管付 PWR 燃料の PCMI 実験.....	28
2.6 ROX 燃料実験.....	33
2.7 水素吸収 BWR 被覆管バースト試験.....	35
2.8 リング引張試験.....	39
2.9 高燃焼度 PWR 燃料の炉外アニーリング試験.....	42
2.10 NSRR 試験の高度化計画.....	46
2.11 共同研究及び国際協力.....	59
参考文献.....	60
3.冷却材喪失事故時挙動研究.....	62
3.1 研究の概要.....	62
3.2 急冷破断試験.....	64
3.3 機械特性試験.....	69
3.4 酸化実験.....	71
3.5 照射済み試料の試験に関する準備.....	76
3.6 共同研究及び国際協力.....	78
参考文献.....	78
4.通常運転時挙動研究.....	80
4.1 研究の概要.....	80
4.2 JMTR を用いた照射研究.....	80
4.3 高燃焼度燃料の熱拡散率.....	82
4.4 共同研究及び国際協力.....	85
参考文献.....	88
5.燃料解析コードの開発研究.....	89
5.1 研究の概要.....	89
5.2 通常運転時燃料ふるまい解析コードの開発.....	89
5.3 事故時燃料ふるまい解析コードの開発.....	96
5.4 共同研究.....	98
参考文献.....	99

6.	照射済燃料からの放射性物質放出・移行挙動研究	101
6.1	研究の概要	101
6.2	圧力の影響	102
6.3	温度の影響	104
6.4	雰囲気の影響	105
6.5	既存の放出モデルと実験結果との比較	107
6.6	放射性物質移行挙動解析	109
6.7	まとめ	110
	参考文献	111
7.	研究成果一覧	113
	付録1 各研究分野の概要の英訳	115
	付録2 研究成果概要	123

Contents

1.	Introduction.....	1
2.	Fuel Behavior under Reactivity Initiated Accident (RIA) Conditions.....	5
2.1	Outline.....	5
2.2	Experiments of High Burn-up BWR Fuels.....	8
2.3	Experiments of High Burn-up PWR Fuels.....	11
2.4	Experiments under Power Oscillation Conditions.....	14
2.5	PCMI Experiments of PWR Fuels with Hydrogen Absorbed Cladding.....	28
2.6	Experiments of ROX Fuels.....	33
2.7	Burst Tests of Hydrogen Absorbed BWR Cladding.....	35
2.8	Ring Tensile Tests.....	39
2.9	Out-of-pile Annealing Tests of High Burn-up PWR Fuels.....	42
2.10	Future Program of NSRR Experiments.....	46
2.11	Joint Research and International Cooperation.....	59
	References.....	60
3.	Fuel Behavior under Loss-of-coolant Accident (LOCA) Conditions.....	62
3.1	Outline.....	62
3.2	Integral Thermal Shock Tests.....	64
3.3	Mechanical Property Tests.....	69
3.4	Oxidation Tests.....	71
3.5	Preparation of Irradiated Fuel Cladding Experiments.....	76
3.6	Joint Research and International Cooperation.....	78
	References.....	78
4.	Fuel Behavior under Normal Operation Conditions.....	80
4.1	Outline.....	80
4.2	Irradiation Research Using JMTR.....	80
4.3	Thermal Diffusivity of High Burn-up Fuels.....	82
4.4	Joint Research and International Cooperation.....	85
	References.....	88
5.	Development of Fuel Behavior Analysis Code.....	89
5.1	Outline.....	89
5.2	Development of Fuel Behavior Analysis Code under Normal Operation Conditions.....	89
5.3	Development of Fuel Behavior Code under Accident Conditions.....	96

5.4	Joint Research.....	98
	References.....	99
6.	Radionuclides Release and Transport Behavior from Irradiated Fuel.....	101
6.1	Outline.....	101
6.2	Effect of Pressure.....	102
6.3	Effect of Temperature.....	104
6.4	Effect of Atmosphere.....	105
6.5	Comparison between Existing Release Models and Experimental Results.....	107
6.6	Analysis of Radionuclides Transport Behavior.....	109
6.7	Summary.....	110
	References.....	111
7.	List of Publications.....	113
Appendix 1	English Translation of the Outline of Each Research Activity.....	115
Appendix 2	Abstracts of Publications.....	123

1. はじめに

本報告書は、燃料安全研究室が 2001 年に実施した研究の概要と主な成果をまとめたものである。燃料安全研究室における研究課題は、後述する国の安全研究年次計画に沿って進めている。これらは、主に我が国における軽水炉燃料の利用・開発状況に対応して策定されたものである。

我が国において、軽水炉燃料には既に長年の使用実績があり、初期に生じた燃料破損等の不具合を設計・製造技術の改良によって克服し、現時点では極めて低い燃料破損率に見られるよう、その性能は世界的に定評がある。これに止まらず、産業界では高い信頼性と高い経済性の両立を目指した高性能燃料の開発が進められている。とくに、経済性向上の観点から、燃料サイクル費の低減、使用済燃料発生量の低減、長期運転サイクルへの対応を目指した高燃焼度化燃料の開発が行われている。

BWR 用燃料の燃焼度は、 9×9 型燃料(ステップ III)で、取出平均燃焼度で約 45GWd/t、集合体最高燃焼度としては 55GWd/t が実現されている。更に、高燃焼度を目指した燃料の開発が行われている他、現行規制の枠内で集合体最高燃焼度を抑えたまま取出平均燃焼度の向上を狙った高性能燃料の開発も進められている。

PWR 用燃料では、取出平均燃焼度 48GWd/t(ステップ 1)が実用化しており、更にステップ 2 として取出平均燃焼度 55GWd/t への引き上げに向けて、平成 9 年から少数体による先行照射が実施されており、平成 14 年度以降の導入が計画されている。また、BWR 燃料同様、更なる高燃焼度化を目指した燃料の開発も行われている。

高燃焼度化に伴う燃料挙動において検討すべきは、燃料の健全性を損なう可能性のある要因の出現、あるいはこれら要因の燃料健全性に対する影響の顕在化である。例えば、炉内滞在時間が長期化することから被覆管の水側腐食量が増大し、これに伴う水素吸収量の増大と高速中性子照射量の増大により被覆管の機械的性質は劣化する(一般に強度低下及び延性の減少が生じる)。また FP ガス放出によって燃料棒内圧が増大するため被覆管への機械的負荷が増加し、設計基準に対する裕度は減少する。

これに対する方策として、ジルカロイ被覆管の耐食性改善と FP ガス放出抑制ペレットの開発が進められている。すなわち、BWR 燃料被覆管では製造工程で熱処理条件を最適化した高耐食性被覆管が開発され、また PWR 被覆管では合金組成の最適化(低スズ化)や少量の Nb などを添加した Zr 系新合金(国内では、MDA、NDA、海外では ZIRLO、M5 など)の開発による耐食性向上が図られている。また、FP ガス放出を抑制し被覆管への機械的負荷の増加を抑えるために高燃焼度用改良ペレット(大粒径ペレット)の開発も行われている。

軽水炉燃料の高度化として、高燃焼度化の他、社会的な要請(核不拡散への配慮、資源有効利用の観点)から、プルトニウムの軽水炉利用(プルサーマル)が国策として進められている。海外再処理により蓄積されるプルトニウムは 2010 年までに合計 34 トンに上ると見積もられており、これに六ヶ所再処理工場の運転開始(2005 年頃の見込み)によるプルトニウムが加わる。FBR の実用化が先送りとなった現状では、長期的且つ大量のプルトニウム利用が軽水炉に求められ、プルサーマルの確実かつ本格的な実施が重要となっている。プルトニウム燃料すなわち MOX 燃料は、 UO_2

燃料と比べ、高燃焼度化による大幅なコスト低減効果が期待できるため、将来的には UO_2 燃料同等あるいはそれ以上の高燃焼度化が指向されると考えられる。しかしながら、この実現には通常運転時のみならず異常過渡あるいは事故時における MOX 燃料の健全性・安全性の確認が不可欠である。

上述した状況は、国の原子炉施設等安全研究年次計画(平成13年-17年度計画)に反映されている。すなわち、重要課題の一つとして下記の課題が設定されている。

① 高燃焼度燃料・MOX 燃料の安全性に関する研究

燃料安全研究室は、この課題に正面から取り組むと共に、水炉燃料と関連した燃料安全研究の課題として、下記の2課題に関する研究も実施している。

② 研究炉燃料の安全性に関する研究

③ 燃料からのFP放出移行挙動に関する研究(VEGA 計画)

上記の課題に対応して燃料安全研究室では、原研が有する原子炉施設、すなわち NSRR、JMTR 及び JRR-3 と照射後試験施設などを利用した多くの実験・解析研究を行っており、研究対象分野に対応した研究体制として下記の5グループを設けている。

- ・反応度事故時挙動研究グループ(RIA グループ)
- ・冷却材喪失事故時挙動研究グループ(LOCA グループ)
- ・通常運転時挙動研究グループ(JMTR/BOCA グループ)
- ・燃料挙動解析研究グループ(FEMAXI グループ)
- ・照射済燃料からの FP 放出・移行挙動研究グループ(VEGA グループ)

2001年における各研究分野の研究は、ほぼ当初の予定通り進捗した。具体的な成果については、次章以降に記述するが、概略を以下にまとめる。

1. 1反応度事故時挙動研究

照射済燃料実験では、燃焼度 61GWd/t の BWR 及び 50GWd/t の PWR 燃料を用いた RIA 実験をそれぞれ 1 回、BWR の核熱的不安定性による出力振動を模擬した実験を 56GWd/t の BWR 燃料及び 25GWd/t の JMTR 予備照射燃料を用いてそれぞれ 1 回行った。RIA 実験では、トランジエント時の燃料挙動把握のために被覆管周方向の過渡歪みやプレナムガス温度の測定が課題となっていたが、今年度の実験において、これらの測定に初めて成功した。また、BWR の出力振動を模擬した実験では沸騰遷移が生じない条件で、定格出力の 2~4 倍までの出力振動が数回繰り返された条件での実験を成功させ、燃料の健全性を評価するための基礎データを取得することができた。この種の実験は、NSRR が世界に先駆けて成功させたものである。

未照射燃料を用いた個別効果実験では、PCMI 破損における被覆管の水素脆化の影響を定量的に明らかにする実験として、水素添加ジルカロイ被覆燃料の RIA 模擬実験を行った。これにより FP ガスの蓄積などの燃焼による負荷の増加が無くとも、水素脆化した被覆管は燃料ペレットの熱

膨張のみで高燃焼度燃料と類似の PCMI 破損を生じることを確認した。しかしながら、破損を生じる水素吸収量、破損エンタルピや被覆管の変形量は高燃焼度燃料に比べて有意に大きいことから、水素脆化のみならず中性子照射による被覆脆化の影響が無視できないことがわかった。また、中心温度測定用熱電対を付した未照射燃料棒を用いた出力振動実験を実施し、照射済燃料の出力振動実験を補完するデータを得た。

1. 2 冷却材喪失事故時挙動研究

高燃焼度燃料の LOCA 時挙動を解明するための試験として、(a)ジルカロイ被覆管の急冷時耐破損特を評価するための急冷破断試験、(b)LOCA 時の温度遷移による被覆管の機械特性を調べる試験、(c)ジルカロイ被覆管の高温酸化試験を実施した。急冷破断試験は、LOCA の過程で生じる一連の現象(膨れ・破裂、酸化、冠水による熱衝撃など)を経験した被覆管が破損に至る限界の酸化条件(酸化温度と酸化時間)を実験的に決定する目的で実施している。2001 年には、高燃焼度化の影響を模擬するために水素を吸収させた被覆管を用いて、被覆管の急冷時耐破断特性に対する水素吸収と急冷時に働く軸方向拘束力の影響を定量的に評価できる知見を取得した。温度遷移を経験した高燃焼度被覆管の機械特性に関しては、影響因子を系統的に調べるために、水素添加した被覆管を用いて、被覆管のタイプ、水素濃度、加熱温度、保持時間、機械試験温度をパラメータとする試験を実施した。また、酸化試験を効率的に進め、高温酸化メカニズムに関する基礎知見を取得するために、酸化による重量変化を連続的に測定できる熱天秤を用いた酸化試験を実施している。

1. 3 通常運転時挙動研究

JMTR を用いた照射研究では、関西電力大飯 1 号炉で照射された UO_2 燃料を短尺加工して沸騰水キャップセル(BOCA)を用いて照射する試験を行った。現行の商用炉での許認可燃焼度を超える燃焼度を得るための大飯 1 号燃料の無計装キャップセルによる追加照射を終了し、最高燃焼度約 63GWD/t を達成した。

高燃焼度燃料の照射後試験では、大飯 2 号炉で照射されたガドリニア添加燃料(燃焼度約 28GWD/t)及び UO_2 燃料(燃焼度約 36GWD/t)の熱拡散率の測定を行い、室温から 1800K にわたってのデータを得た。

国際協力では、第12期ハルデン原子炉計画(2000年1月から2002年12月)に引き続き加盟し、高燃焼度燃料の熱特性の劣化、MOX 燃料の照射挙動、被覆管の腐食挙動・クリープ特性等に関する知見を得るとともに、国内諸機関との共同研究として 7 件の燃料・材料照射試験を実施した。

1. 4 燃料挙動解析研究

通常時の燃料ふるまいの解析においては、燃料解析コード FEMAXI-6 の開発を進めた。すなわ

ち、機構論的モデルとしてFPガスバブルスエリングモデル、高燃焼度組織モデルを導入し、燃焼計算コードPLUTONのファイル読み込み機能などを付加し、商用炉燃料データでの検証計算を進めた。

事故時燃料ふるまい解析においては、LOCA時燃料ふるまい解析コードFURBELの開発を進め、基本構造及びモデルを組み込んだ最初のバージョンを開発し、テストランに着手した。

1.5 照射済燃料からの FP 放出・移行挙動研究

シビアアクシデント条件下における照射済燃料からの放射性物質放出を調べるVEGA計画では、これまでに装置の限界性能である温度・圧力条件(燃料の融点に達する温度(約3100K)、最高圧力1.0Mpa)を含む条件下で4回の実験を実施した。2001年度には、第4回目の実験であるVEGA-4を、VEGA実験シリーズとしては初めて水蒸気雰囲気下で実施した。この実験には水蒸気雰囲気用に開発したトリア製加熱炉を用い、燃料温度は最高2,773Kまで昇温させた。また、2000年までに実施したVEGA-1～VEGA-3の実験後試料分析およびデータ解析も実施した。これらの実験結果の比較から、高圧条件で実施したVEGA-2では、大気圧下のVEGA-1に比べて、Csの放出割合が約30%減少すること、高温のVEGA-3では、試験燃料の溶融開始と同時にCsの全量放出が観測されたが、低揮発性のEuは溶融状態を約20分保持した後でもほとんど放出しないこと、また水蒸気雰囲気下のVEGA-4では、燃料の酸化によりCsの放出割合が増加し、Ruの放出割合も揮発性の高い酸化物が形成されるために増加することなどが明らかになった。

(上塚 寛)

2. 反応度事故時の燃料挙動研究

2.1 研究の概要

燃料安全研究室では、RIA 指針の安全裕度の合理化、軽水炉燃料の燃焼度制限延伸(高燃焼度化)、MOX 燃料の軽水炉利用(プルサーマル)等に対応するため、反応度事故による出力暴走を模擬したパルス運転を最大の特徴とする NSRR を用い、燃焼の進んだ燃料を対象とした実験を中心に研究を進めている。この実験は、広い燃焼度範囲における燃料の破損しきい値、破損機構、ならびに破損の影響を解明することを目的としている。

2000 年までに行った実験では、燃焼度 50GWd/t の PWR 燃料及び 61GWd/t の BWR 燃料被覆管の低いエンタルピでの世界初の破損例を観察し、破損しきい値や破損影響の解明に成果を得た。これらの成果の一部は原子力安全委員会の定めた事故時評価指針に反映されているが、現在、進められている集合体最高燃焼度 55GWd/t までの高燃焼度化に十分対応するためには、ペレット燃焼度 70GWd/t 程度までの燃料についての知見が必要である。このため、2001 年には、より高い燃焼度の燃料を用いた試験の準備を進めるほか、破損機構解明のための研究を実施した。更に、近年、原子炉の安全評価上重要な事象と認識されつつある BWR の出力振動時の燃料挙動に着目し、試験炉では世界初となる出力振動試験に成功した。

BWR では、外乱による炉心流量の低下がボイドの発生による出力低下をもたらし、その後流量の回復、ボイドの消滅による出力上昇といった流動条件の変動に伴う気泡の生成・消滅による反応度の変化を介して、核的な出力変動をもたらす。高出力のまま冷却水の流量が低下したような特殊な条件では、これら熱流動と核的な相互作用による出力振動が生じる。こうした事例は、米国 La Salle 2 号機などで過去十数例が報告されている。いずれの事例もスクラムにより原子炉は停止し、燃料の健全性に問題は生じなかった。しかしながら、スクラムに失敗した場合には、数分程度の短時間に定格出力の 10 倍程度の出力振動が生じる⁽¹⁾。BWRにおいては、こうした事象が起こる確率は反応度事故が起こる確率に比べて大きいことから、この際の燃料の健全性が燃料の高燃焼度化に伴い問題となりうる。この課題に応えるため、NSRR の台形パルス運転において BWR の出力振動を模擬する運転の手法を確立し、燃料の照射実験を新たに開始した。

照射済燃料実験では、燃焼度 61GWd/t の BWR 燃料を用いたパルス照射実験(2.2 参照)及び 50GWd/t の PWR 燃料を用いたパルス照射実験(2.3 参照)をそれぞれ 1 回、BWR の核熱的不安定性による出力振動を模擬した実験を 56GWd/t の BWR 燃料(2.4.2 参照)及び 25GWd/t の JMTR 予備照射燃料(2.4.3 参照)を用いてそれぞれ 1 回行った。パルス照射実験(2.4.4 参照)では、被覆管周方向の過渡歪みやプレナムガス温度の過渡測定に初めて成功した。また、BWR の出力振動を模擬した実験では、沸騰遷移が生じない条件で定格出力の 2~4 倍までの出力振動が数回繰り返された条件での被覆管伸び、ペレットスタック伸び等の PCMI 挙動や、FP ガス放出挙動等に世界初のデータを得た。Table 2.1-1 に照射済燃料実験の条件と結果をまとめた。

未照射燃料を用いた個別効果実験では、FP ガスの膨脹などの燃焼による負荷の増加が無くとも、燃料ペレットの熱膨張のみによる PCMI により、水素吸収により脆化した被覆管は高燃焼度燃

料と類似の破損を生じることを確認した。しかしながら、破損を生じる水素吸収量、破損エンタルピ^oや被覆管の変形量は高燃焼度燃料に比べて有意に大きいことから、水素脆化のみならず中性子照射による被覆脆化の影響が無視できないことがわかった。また、照射済燃料を用いた出力振動実験を補完し、燃料エンタルピ^oの評価に用いる解析コードの検証のため、中心温度測定用熱電対を配した未照射燃料棒を用いた出力振動実験を実施した。未照射燃料を用いた実験の一覧をTable2.1-2にまとめた。

高燃焼度燃料の破損の支配要因と考えられる被覆管の機械的性質の劣化を定量化するための炉外機械特性試験として、水素吸収により脆化を模擬したBWR被覆管及びPWR被覆管を用いて、バースト試験及びリング引張り試験をそれぞれ実施した。

(中村 武彦)

Table 2.1-1 Experiments of irradiated Fuel Rods in NSRR
(From Jan. 2001 to Feb. 2002)

Test No.	Date of pulse irradiation	Test fuel rod	Objective	Result
UC-1	Feb. 14, 2001	PWR 17×17 (type B) Takahama-3, 3cycle irradiation, 50 GWd/tU	Fission gas release behavior under unconstrained conditions	No failure
FK - 10	Oct. 12, 2001	BWR 8×8 (type A) Fukushima Daini-2, 5 cycle irradiation, 61 GWd/tU	Tini=50°C Cladding dynamic strain measurement	Failure
FK - 11	Nov.17, 2001	BWR 8×8 (type A) Fukushima Daini-2, 4 cycle irradiation, 56 GWd/tU	Power oscillation, 48kW/m	No failure
JMH-6	Dec.15, 2001	PWR 14×14 (type B) JMTR capsule irradiation, 25 GWd/tU	Power oscillation, 95kW/m	No failure
TK -10	Feb. 25, 2002	PWR 17×17 (type B) Takahama-3, 3cycle irradiation, 50 GWd/tU	Gas plenum temp./cladding dynamic strain measurement	No failure

**Table 2.1.2 Experiments of Fresh Fuel Rods in NSRR
(From Jan. 2001 to Feb. 2002)**

Test No.	Date of pulse irradiation	Test fuel rod	Objective	Result
357-1	Feb. 6, 2001	PWR 17 x 17 Hydrogen : 400ppm	Measurement of PCMI deformation of fuel with hydrided	No failure
357-2	Feb. 6, 2001	PWR 17 x 17 Hydrogen : 800ppm	Measurement of PCMI deformation of fuel with hydrided	No failure
563-1	Sep.27, 2001	PWR 17 x 17 Center T/C	Power oscillation simulation test	No failure
357-3	Oct.15, 2001	PWR 17 x 17 Hydrogen : 400ppm	Measurement of PCMI deformation of fuel with hydrided	No failure
563-2	Oct.16, 2001	PWR 17 x 17 Center T/C	Power oscillation simulation test	No failure
357-4	Jan.21, 2002	PWR 17 x 17 Hydrogen : 800ppm	Measurement of PCMI deformation of fuel with hydrided	No failure
357-5	Feb.18, 2002	PWR 17 x 17 Hydrogen : 400ppm	Measurement of PCMI deformation of fuel with hydrided	
357-6	Feb.18, 2002	PWR 17 x 17 Hydrogen : 800ppm	Measurement of PCMI deformation of fuel with hydrided	

2. 2 高燃焼度 BWR 燃料実験

2001 年には高燃焼度 BWR 燃料を用いた 2 回の実験、FK-10 及び FK-11 を実施した。FK-10 は燃焼度 61GWd/t の燃料を用いてコールドスタートアップ条件での反応度事故を模擬した実験であり、FK-11 は 56GWd/t の燃料を用いて出力振動条件での燃料の健全性を調べる新たな種類の実験である。以下、FK-10 実験について、その目的と結果の概要を示す。FK-11 の結果については 2.4 章に詳しくまとめた。

燃焼度 61GWd/t の Step II 5 サイクル照射燃料を用いて昨年度までに行った 4 回の反応度事故模擬実験では、内 3 回で燃料破損が生じた。これらの実験ではパルス照射中に被覆管温度が有意な上昇を見せる前に脆性的な亀裂を生じ破損した^(2, 3)。この破損の原因は、大きく分けて①燃焼に伴う被覆管の脆化、及び②通常運転中の FP ガス等の蓄積に伴うパルス照射時のペレット膨脹量の増加(被覆管に対する負荷の増加)が考えられる。

これらの要因の重要度を検討するにあたり、昨年までの実験から以下のようないくつかの知見が得られている。すなわち、これらの破損した被覆管を照射後試験した結果、塑性変形は殆どゼロであった。また、この実験結果及び FRAP-T6 コードによる解析により、破損時点での変形量は約 1%程度であったものと推定された⁽²⁾。これらの結果は、被覆管の破損をもたらしたペレット変形はあまり大きくは無く、主に固体としての熱膨張で十分説明出来るものであり、ペレット内部に蓄積された FP ガスの寄与は小さいことを示すものであった。つまり、破損の原因は①燃焼に伴う被覆管の脆化が支配的であったことを示した。しかしながら、この熱膨張解析ではペレットを剛体と仮定したものであり、弾性変形を含めた破損時の変形量については実験的に確認する必要があった。

(1) FK-10 実験

破損時の変形量を実験的に測定するため、FK-10 実験では被覆管に歪みゲージを貼付し、被覆管の過渡変形のオンライン測定を照射済燃料としては初めて実施した。この測定は、従来は遠隔操作による歪みゲージの貼付が困難であること及び貼付に用いる接着剤(樹脂)が燃料からの強い放射線により短期間で劣化するため実現が出来なかつたものであるが、実験技術の向上により可能となつた。

FK-10 実験の主な実験条件と結果を Table 2.2-1 にまとめた。この実験では、被覆管温度が破損挙動に及ぼす影響を調べるために、カプセル内に配したヒータによって水温を約 40°C に上昇させ、ピーク燃料エンタルピが約 417J/g(103cal/g)となる条件でパルス照射を行った。その結果、燃料エンタルピが約 340J/g(82cal/g)に達した時点で燃料破損が生じた。歪みゲージによる測定結果は、Fig.2.2-1 に示すように破損時点での被覆管の周方向歪みは約 0.4% 程度であった。実験後の燃料は Fig.2.2-2 に示すとおり、これまでの 3 回の実験と同様の割れを生じて破損していた。この実験に関しては、FP ガス放出や残留変形などについて詳細な検査を行う予定である。

この実験で観察された破損時の被覆管周方向歪みは、ペレットの熱膨張によって生じるものであり、上記解析等による評価を概ね裏付けるものであるが、絶対値については、測定の再現性、評価におけるペレット-被覆管ギャップの評価法の影響、ペレットの弾性変形による影響を含めて、今

後も検討を続ける。また、2.7章で示すように水素吸収により脆化させた未照射BWR被覆管のバースト試験の結果から、被覆管温度が373K程度に上昇すると破断歪みが有意に大きくなつており、こうした影響を確認するために更に水温を上昇させる実験についても今後実施を検討している。

(中村 武彦)

Table 2.2-1 Summary of test conditions and results of high burnup BWR tests

	FK-6	FK-7	FK-8	FK-9	FK-10
Fuel burnup, GWd/tU			61		
Hydrogen in the cladding, ppm	153~164 194~220		141~160		NA
Peak fuel enthalpy, J/g (cal/g)	548 (131)	540 (129)	272 (65)	377 (90)	430 (103)
Pulse width(FWHM), ms	4.3	4.3	7.3	5.7	5.2
Cladding surface temperature, K	Top mid bottom	— — —	338 369 356	— — —	— — —
Pellet stack elongation, %		— —	— —	— —	— —
Cladding axial strain, % [residual]		— [—]	— [—]	— [0]	— [—]
Cladding hoop strain, % [residual]		— [<0.1]	— [<0.1]	— [<0.02]	— [—]
Rod internal pressure, MPa (initial)	— (0.1 ¹)	— (1.5 ²)	4.0 (1.5 ²)	— (1.5 ²)	— (1.5 ²)
Fission gas release, % (base irradiation)	16.9 (14.2)	17.0 (14.2)	11.3 (12.0)	16.6 (12.0)	NA (NA)
Initial cladding temperature, K	293?	298?	298?	298?	313?
Failure (enthalpy at failure)	Yes (70cal/g)	Yes (62cal/g)	No	Yes (86cal/g)	Yes (80cal/g)

¹ Mixture gas of He/Ar was charged in the rods, which simulated thermal conductivity of the EOL gap gas. The gap gas pressure was set to 0.1MPa, making minimum internal/external pressure difference.

² Mixture gas of He/Ar was charged in the rod at 1.5MPa, which simulated thermal conductivity and pressure of the EOL gap gas.

FWHM: Full width half maximum

NA: not analyzed yet.

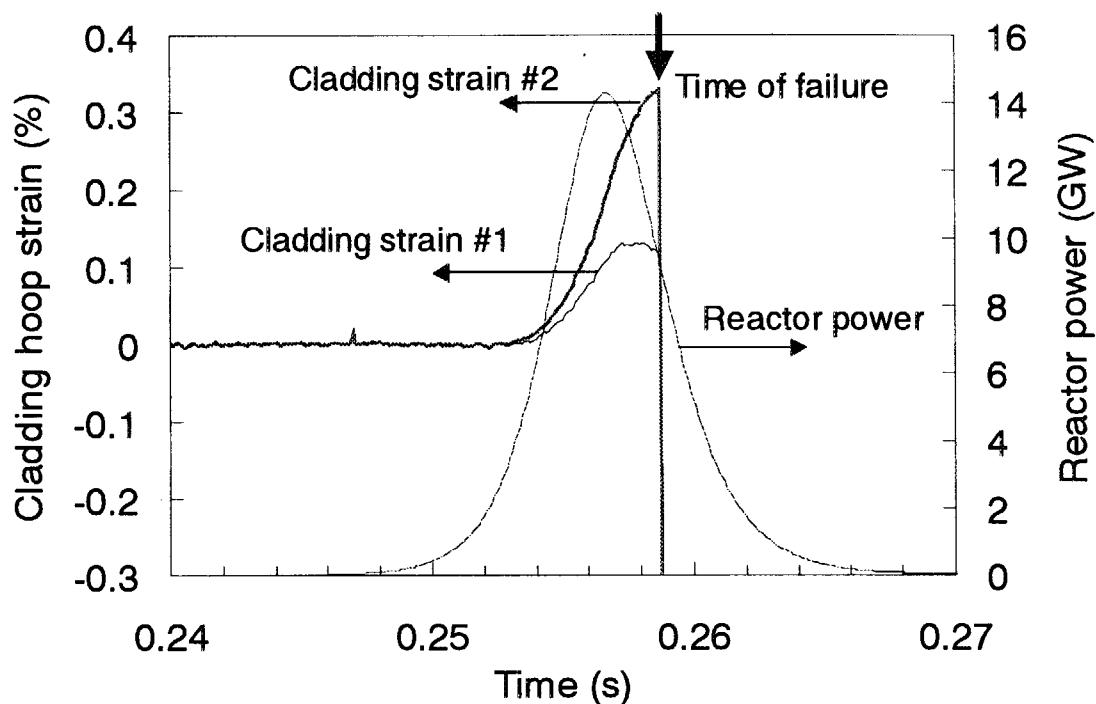


Fig. 2.2-1 Transient cladding hoop deformation measured in Test FK-10
by strain gauges for the first time.

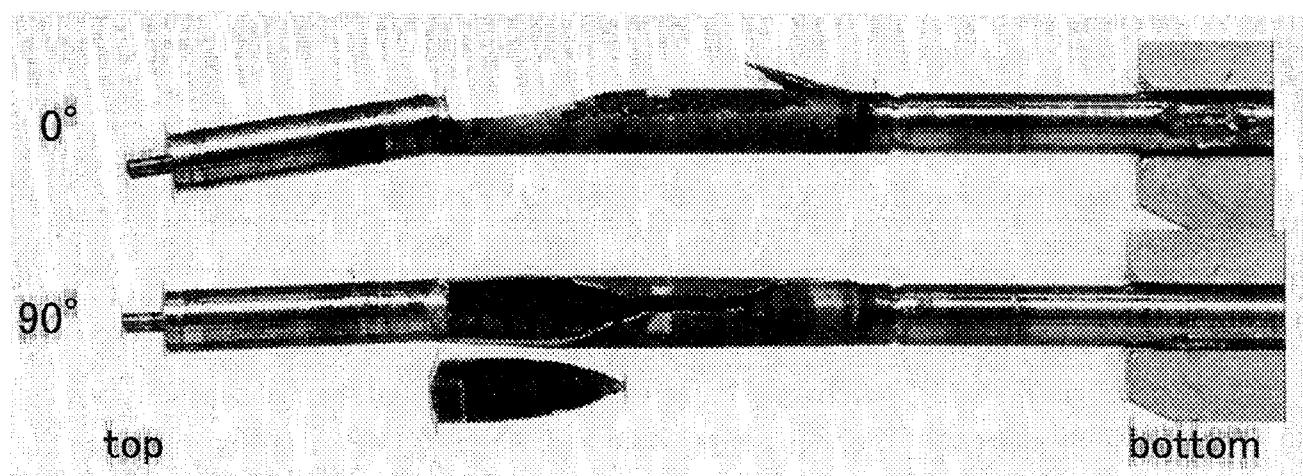


Fig. 2.2-2 Appearance of the FK-10 fuel rod after pulse irradiation.

2. 3 高燃焼度 PWR 燃料実験

NSRR では、国内で入手可能な最も高い燃焼度を有する動力炉照射済 PWR 燃料を用いて、高燃焼度 PWR 燃料実験(TK 実験)⁽⁴⁾を行っている。TK 実験で用いた燃料は、現行の燃焼度制限である 48GWd/t に対して設計され、高浜 3 号機で 3 サイクル照射された燃料である。Table2.3-1 に TK 実験の一覧を示す。TK 実験は低スズ Zry-4 被覆管(1.3%-Sn)を用いた実験で 10 回行われ、このうち 2 回の実験(TK-2 及び TK-7)で破損が生じた。これら燃料棒の破損も PCMI によって生じ、被覆管水素吸収の影響を強く受けたものであることが示された。また DNB を生じ温度が上昇すれば被覆管の延性は回復することから、破損発生の有無は、DNB に至る以前に被覆管にどれだけの機械的負荷をペレットから受けるか、そして、低温時に被覆管がどれだけの延性を有しているかが PCMI 破損の発生に関連した主な論点となっている。

2001 年度は、初期内圧が FP ガス放出に与える影響を調べる TK-9 実験の照射後試験及び過渡時の FP ガス放出挙動を調べるために TK-10 実験を実施した。

(笹島 栄夫)

2.3.1 TK-9 実験

TK-9 実験では、燃料棒内圧を 3MPa まで加圧し、パルス照射を行った。燃料及びパルス照射条件がほぼ同一の TK-3 実験(TK-3 の初期内圧は 0.1MPa)との比較により、燃料棒内圧が FP ガス放出挙動に及ぼす影響を調べた。

非破壊試験の結果、Fig.2.3-1 に示すように、最大周方向残留歪は 15%(TK-3 燃料では 6%)であり、He ガスの熱膨張の影響によるものと考えられる。一方、Fig.2.3-2 に示すように、FP ガス放出率は 6.3% (TK-3 燃料では 10.9%) となり、加圧により結晶粒界内にある FP ガスとの圧力差が減少したため、FP ガスの放出が抑制されたものと考えられる。今後は、金相観察結果に加えてペレット SEM/EPMA 観察結果を考察して、原因を明らかにする予定である。

2.3.2 TK-10 実験

2002 年 2 月に行われた TK-10 実験では、パルス照射時の FP ガス放出挙動を調べるために、過渡時燃料棒プレナム部ガス温度測定を実施した。Fig.2.3-3 に示すように、試験燃料棒の基本構造は従来の燃料棒と同一とし、燃料棒下部に取り付ける圧力計の構造を変更することにより、下部プレナム温度測定用の熱電対(TC)を装着した。

Fig.2.3-4 及び Fig.2.3-5 に過渡時燃料棒のプレナム部ガス温度及び燃料棒内圧の経時変化を示す。パルス照射直後に FP ガスの発生に伴うプレナム部ガス温度の上昇及び燃料棒内圧の増加が見られた。本実験の成功により、パルス照射中の FP ガスの体積・温度・圧力が明らかになった。今後はこれらのデータを基に、FP ガスの放出量や拡散挙動等を評価する予定である。

(内川 貞之、谷本 政隆)

Table 2.3-1 Summary of conditions and results of TK Tests

Test	Fuel Type	Span	Oxide Layer (μm)	Fuel Burnup (GWd/tU)	Fission Gas Release (%)	Peak Enthalpy (J/g)	Result
TK-1	A	5	7	38	20	527	No failure
TK-2	B	2	15~35	48	-	448	Failed at 251 J/g
TK-3	B	4	4~12	50	10.9	414	No failure
TK-4	A	3	25	50	8.3	410	No failure
TK-5	A	2	30	48	8.7	423	No failure
TK-6	A	3	15	38	19.2	523	No failure
TK-7	B	3	15	50	-	397	Failed at 360 J/g
TK-8	A	4	16	50	5.86	273	No failure
TK-9	B	5	10	50	6.2	414	No failure
TK-10	B	8	10	46	*	360	No failure

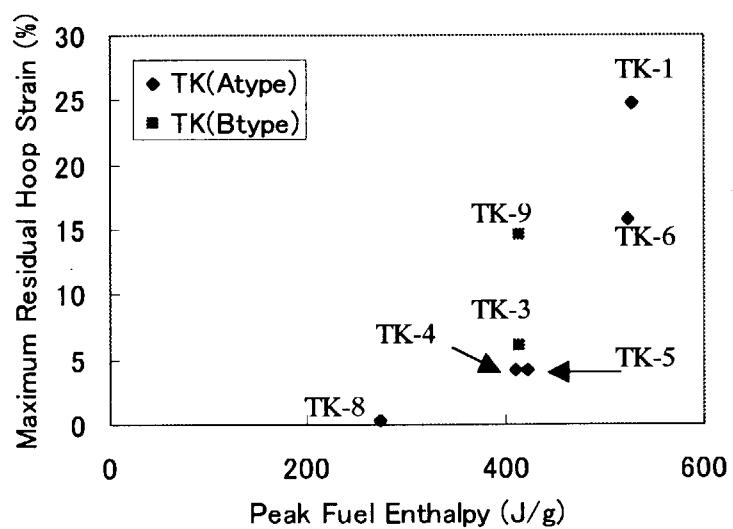


Fig.2.3-1 Residual hoop strain of cladding
as a function of peak fuel enthalpy

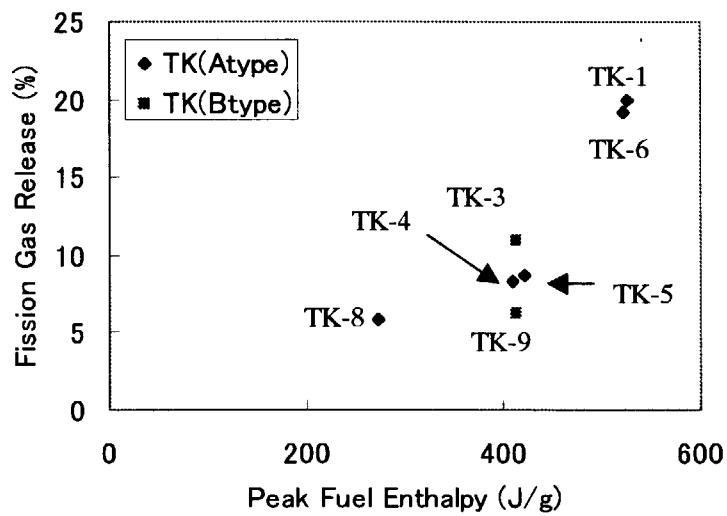


Fig.2.3-2 Fission gas release as a function of peak fuel enthalpy

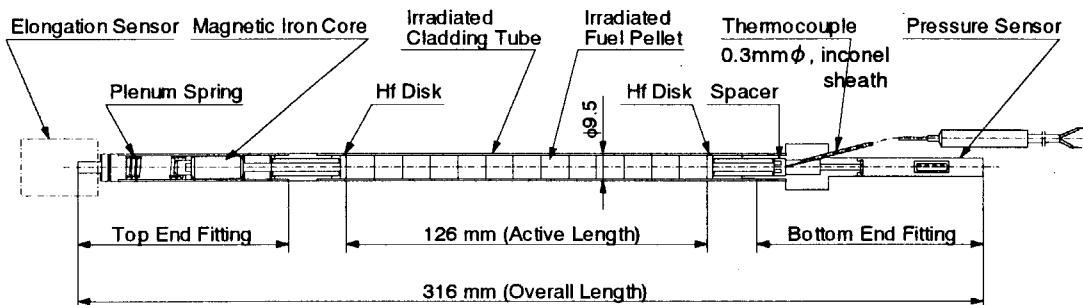


Fig.2.3-3 Schematic diagram of the test fuel rod (TK-10)

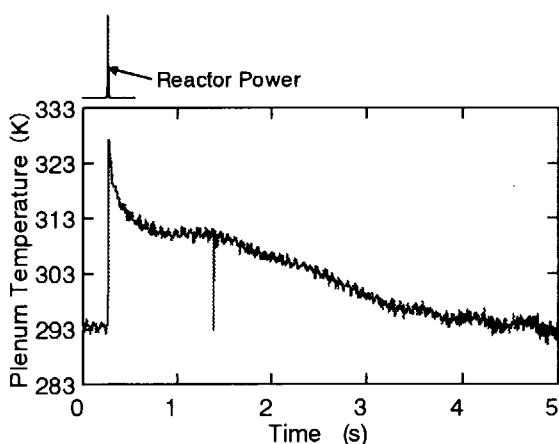


Fig.2.3-4 Transient histories of plenum temperature(TK-10)

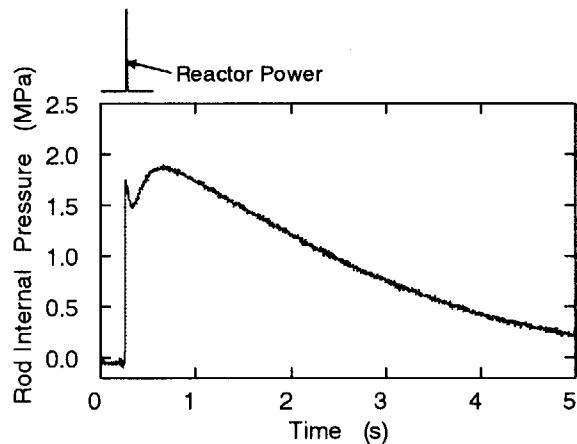


Fig.2.3-5 Transient histories of rod internal pressure(TK-10)

2.4 出力振動実験

BWR では、外乱による炉心流量の低下がボイドの発生による出力低下をもたらし、その後流量の回復、ボイドの消滅による出力上昇が生じ、この現象が繰り返されることで原子炉出力が増幅するという核熱的 BWR 不安定による出力振動が起こりうる。こうした事例は、米国 La Salle 2 号機などで過去十数例が報告されている。いずれの事例も、スクラムにより原子炉は停止し燃料の健全性に問題は生じなかった。しかしながら、スクラムに失敗した場合には、数分程度の短時間に定格出力の 10 倍程度の出力振動が生じうる⁽¹⁾。この核熱的不安定性による出力振動は、その発生頻度が反応度事故に比べて高いことから、原子炉の安全評価上重要な事象と認識されつつある。しかし、出力振動時における燃料挙動については、約 2 秒の短周期での振動を試験炉で実現することが難しいことから実験的に調べられた例はない。そこで、この課題に応えるため、NSRR の台形パルス運転において BWR の出力振動を模擬する運転の手法を確立し、燃料の照射実験を新たに開始した。

本章では、この新たな実験に用いるため新たに開発した NSRR 運転手法と実験結果をまとめた。

(中村 武彦)

2.4.1 運転手法の開発と NSRR シミュレータの改良

NSRR では、1985 年に原子炉の制御方法を改良し、トランジエント棒を圧縮空気で急速に引き抜く従来からの单一パルス運転に加え、調整棒をコンピュータにより高速に制御することにより高出力保持や緩やかな出力過渡を模擬できる台形パルス運転、両者を組み合わせることにより出力運転状態からの反応度事故を模擬できる合成パルス運転を行うことが可能となった。これらの運転パターンを Table.2.4-1 に示す。

BWR の核熱的不安定性による出力振動の周期は、燃料集合体内でのボイドの発生挙動を支配する熱水力学的性質で決まる。現行の BWR 集合体の設計では、この振動周期は約 2 秒であることが、解析⁽⁵⁾及び実験⁽⁶⁾で明らかになっている。こうした早い周期で出力を大きく振動させるためには、調整棒をかなり高速で引き抜き・挿入を繰り返す必要がある。また、この際 NSRR の出力は設置許可範囲の 10MW 以下に保つ必要がある。こうした条件を確実に満たし、安全に実験を行うためには、実験に先立って十分な精度でシミュレーションを行い、制御棒の位置、駆動速度等を含めて運転の妥当性を確認する必要がある。こうした目的に応えるため制御棒価値や燃料温度フィードバック係数の最適化等によるシミュレータの改良を行った⁽⁷⁾。改良前後のシミュレーション結果と実測結果を Fig. 2.4-1 に比較して示す。運転は、位置制御により制御棒を一定量引き抜き開始する。原子炉出力が設定値に達した時点から出力目標に従って制御棒を駆動する閉ループ制御に切り替えて行ったものである。改良により、立ち上げ部の出力及び閉ループ制御部の制御棒位置の予測精度が従来のシミュレーションに比べて大きく向上していることが分かる。この結果、実験の際にシミュレーション精度を考慮して大きな安全裕度を取る必要が無くなり、安全で合理的な運転条件の

設定が可能となった。また、こうした運転により、照射済み実験燃料に対して定格出力の2倍から4倍の最高線出力を与える条件で、2s周期の振動を4回から7回模擬する運転が可能となった。

(中村 武彦)

Table 2.4-1 NSRR operational modes and reactor power shapes

Operational mode		Typical reactor power shape	
Pulse operation	Steady state operation		Criticality check and calibration of detectors
	Natural pulse operation		Reactivity initiated accident at zero power
	Shaped pulse operation		Abnormal power transient
			Abnormal power transient
	Combined pulse operation		Reactivity initiated accident at power operation conditions
			High run-out power after power burst

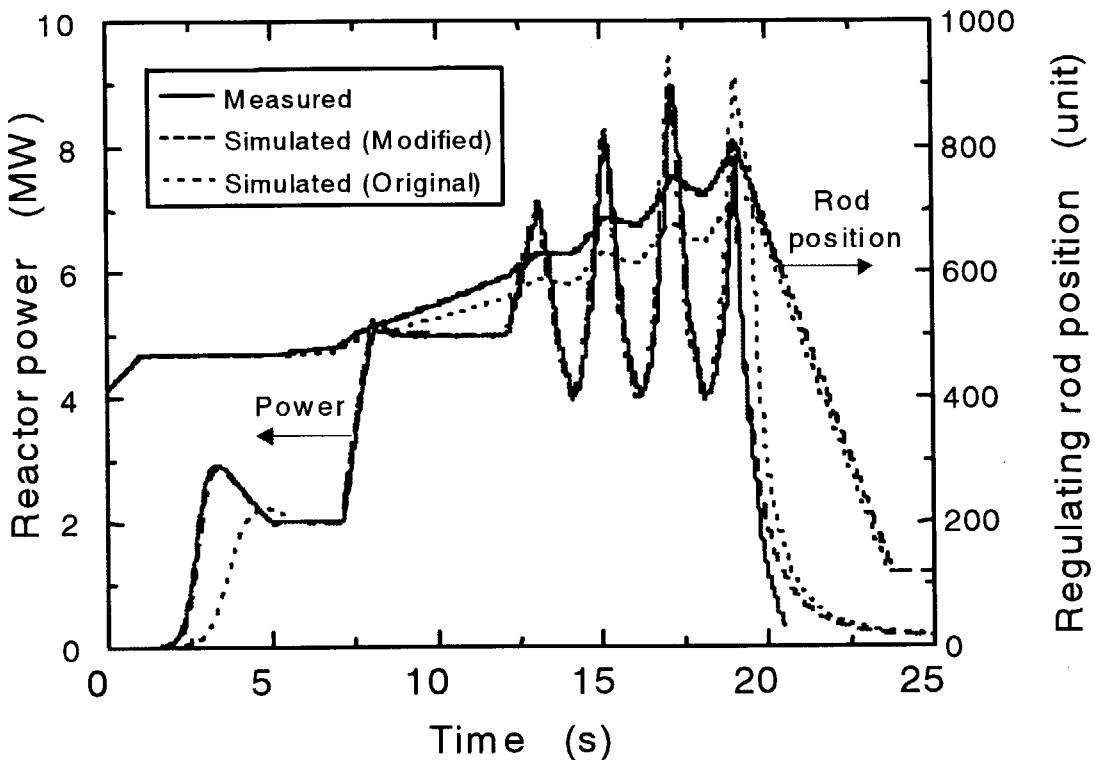


Fig.2.4-1 Histories of reactor power and regulating rod position in power oscillation run.

Power oscillation of BWRs at 2s intervals is simulated after a short period of steady state.

2.4.2 BWR 燃料実験

高燃焼度燃料の出力振動時の燃料挙動を明らかにすることを目的に、福島第二原子力発電所2号機で照射されたSTEP II燃料(燃焼度 56GWd/t)から加工した短尺燃料を用いて、出力振動実験を2001年に実施した。

燃料の仕様をTable 2.4-2に示す。また、FK-11における出力振動実験時の燃料棒の線出力と燃料エンタルピーをFig. 2.4-2に示す。燃料被覆管とペレットスタックの伸び、及び燃料棒内圧の変化をFig. 2.4-3に、また、冷却材温度、被覆管温度をFig. 2.4-4に示す。

燃料棒線出力は最初一定出力運転時を模擬して約25kW/mで5秒間保持し、その後、周期約2秒で次第に振幅を大きくして計4回の出力振動を与え、第4サイクルの最高出力は約48kW/mに達した。ピーク燃料エンタルピーは約250J/gであるが、被覆管表面温度は約340KでDNBは起こらなかった。燃料スタック及び被覆管の伸びは燃料棒出力の変化に対応した同様の変化を示しており、燃料と被覆管は一緒に伸び縮みしていることがわかる。また、伸びの最大値は0.05%以下であり、塑性変形はほとんどなく、出力サイクルの繰り返しとともにPCMIにより被覆管の伸びが増大してい

く、いわゆるラチェックティング効果も観察されなかった。また、燃料棒内圧は、出力振動時に約1.3MPaから最高約2.3MPaに達したが出力の低下とともにやや低下した。以上の結果より、DNBが起こらない範囲では、BWRの出力振動が燃料の健全性に与える影響は小さいと推定される。今後は、照射後試験を実施して、FPガス放出挙動や燃料微細組織等に対する出力振動の影響を明らかにする。

(中村 仁一)

Table 2.4-2 Specifications of fuel rod for FK-11 test

Fuel type	BWR 8x8 (Step II)
Cladding	Zirconium lined Zry-2, Re-crystallized
Cladding Outer Diameter	12.3 mm
Cladding thickness	0.86mm(Zr Liner:0.09mm)
Fuel density	95%TD
U-235 enrichment	4.5%
Diameter gap	0.2mm
Burnup	56 GWd/t

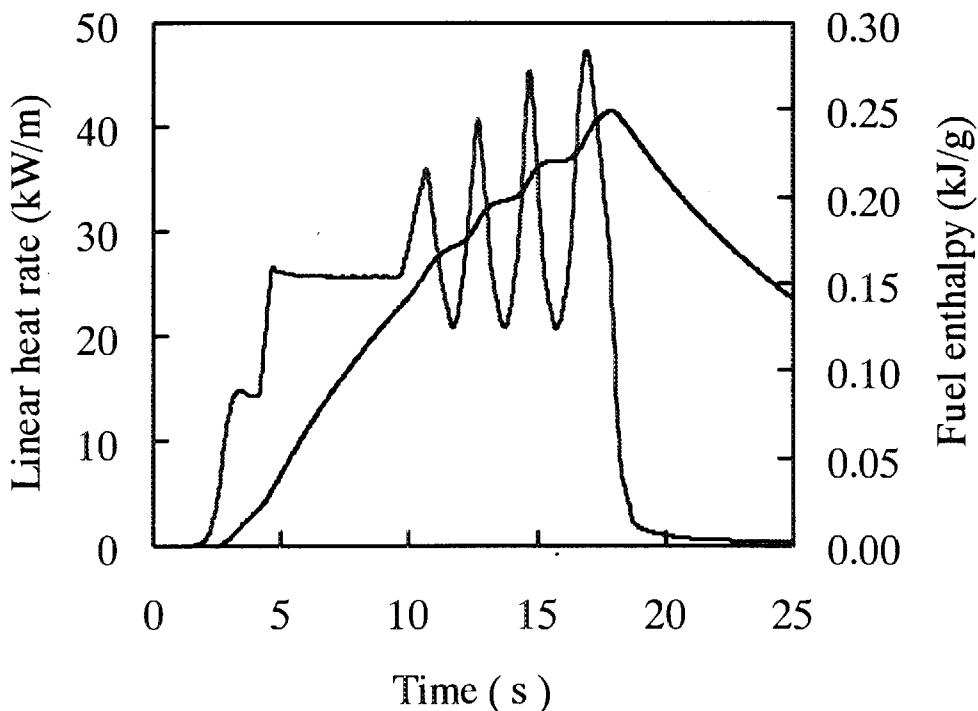


Fig. 2.4-2 Rod power and fuel enthalpy during FK-11 test.

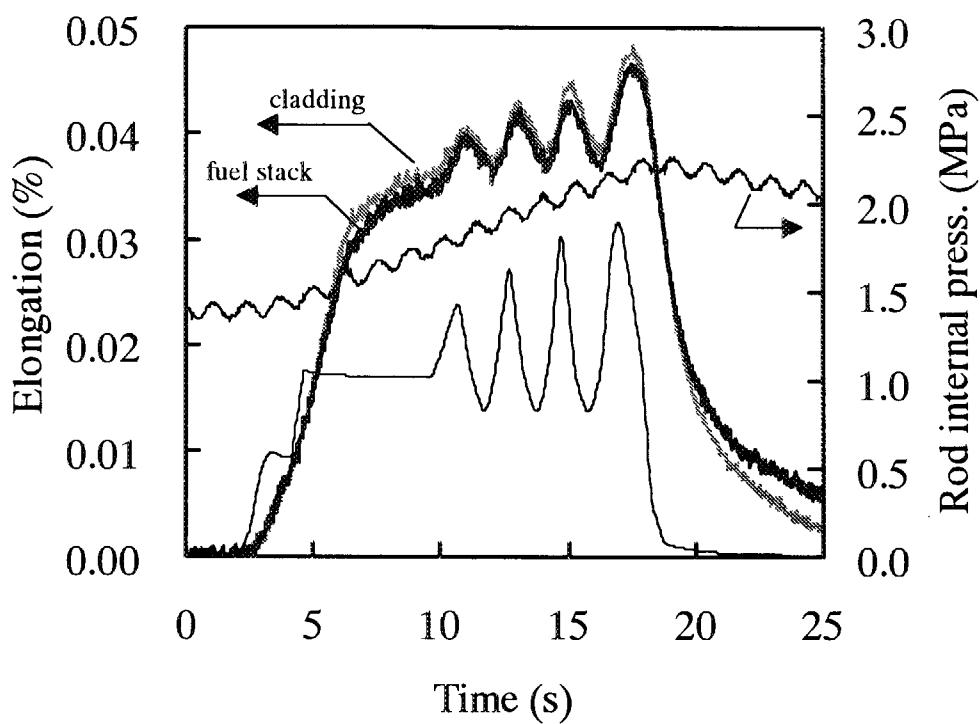


Fig. 2.4-3 Fuel stack elongation, cladding elongation and rod internal pressure during FK-11 test.

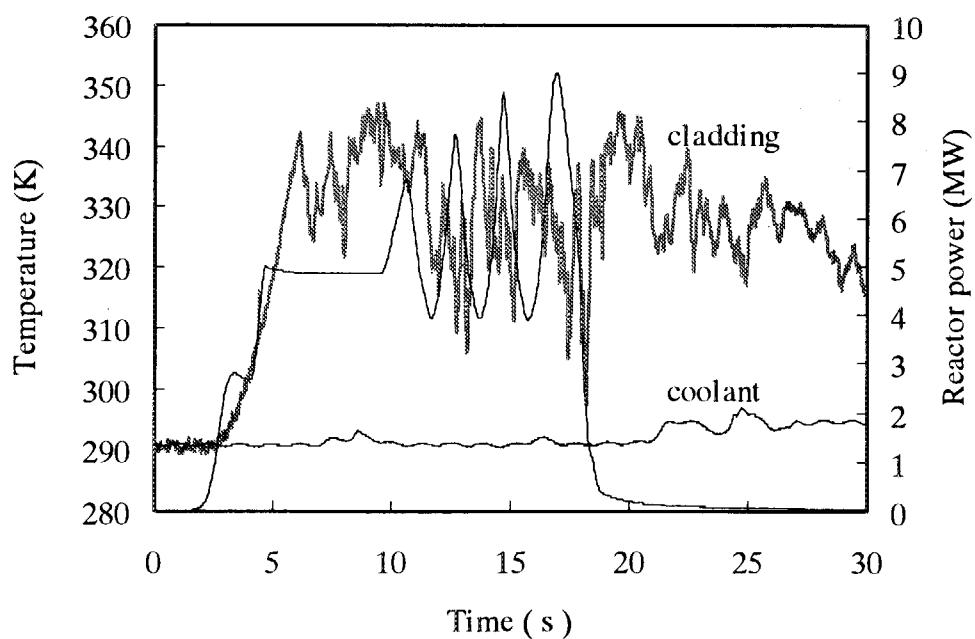


Fig. 2.4-4 Coolant temperature and cladding temperature during FK-11 test.

2.4.3 JMTR燃料実験

高出力条件での出力振動時の燃料挙動を明らかにすることを目的に、JMTRで照射された燃料(初期濃縮度約20%，燃焼度約25GWd/t)を用いた出力振動実験を2001年に実施した。燃料棒周りの構成をFig.2.4-5に示す。DNBを起こしやすくするため、ヒータを設置して、サブクールを小さくするとともに、燃料棒まわりに流路管を設けて冷却水流路断面積を制限した。

燃料の仕様をTable 2.4-3に示す。また、出力サイクル時の出力と燃料棒被覆管伸び、被覆管表面温度、冷却水温度変化をFig.2.4-6, Fig.2.4-7, Fig.2.4-8に示す。

冷却水は、実験直前までヒータを用いて加熱し、293Kから約319Kに達したが、ヒータの容量制限からこれ以上サブクール度を小さくすることはできなかった。燃料棒線出力は最初の一定出力運転時で約30kW/m、その後、周期約2秒で次第に振幅を大きくして、7回の出力振動を与え、第7サイクルの最高出力は約98kW/mに達した。なお、実際のBWRでの出力振動においては振動時の最低出力はほぼ一定であるが、NSRRの運転においては制御棒引き抜き速度の制限から出力振動幅の大きさに制限が生じるため、最高出力と振動数を大きくするため、図に示すような出力振動パターンを採用した。被覆管表面温度は約360Kに留まりDNBは起こらなかった。被覆管の伸びは出力に対応した変化を示しているが、その最大値は0.4%以下であり、塑性変形はほとんどなかった。この結果から、DNBの生じない範囲では、この実験条件程度の出力振動は、燃料の健全性に大きな影響を与えないと推定される。今後は、ヒータの容量を大きくしてサブクールを小さくし、DNBが生じる条件での出力振動実験を実施する予定である。

(中村 仁一)

Table 2.4-3 Specifications of fuel in Test JMH-6

UO ₂ pellet
Diameters: 9.29mm
Height: 10mm
Density: 95%TD
Enrichment: 19.5%(Center 10 pellets) 5%(Both side of 19.5% pellets) 0.71%(Outside of 5% pellet)
Cladding
Material: Zircaloy -4
Outer diameter: 10.72mm
Thickness: 0.62mm
Fuel rod
Gap width: 0.095mm(radial gap)
Stack length: 140mm(total length) 100mm(19.5% enriched pellet)
Filler gas: He(0.098MPa)

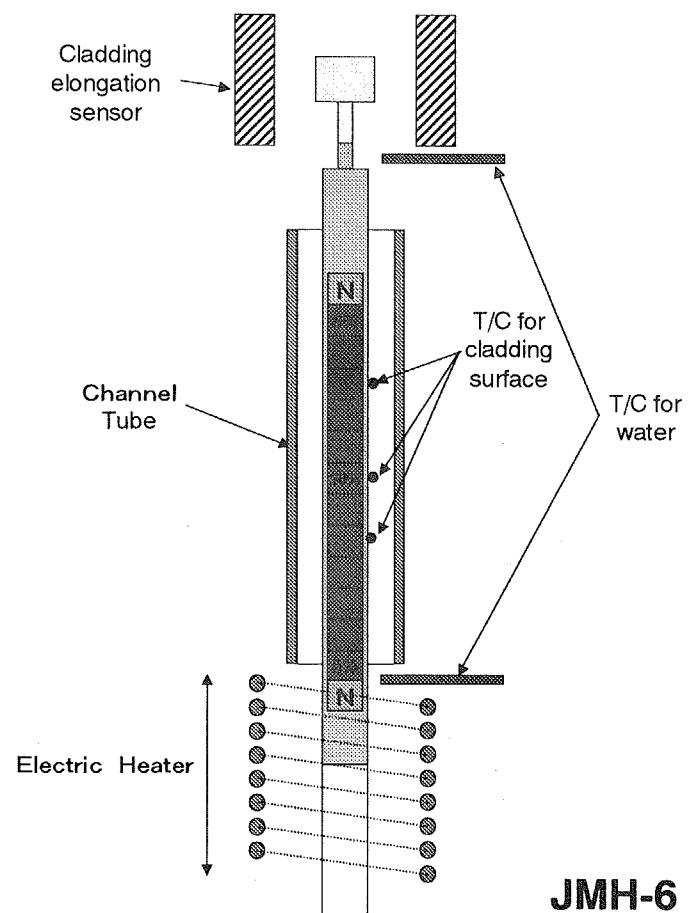


Figure 2.4-5 Configuration around the fuel rod in Test JMH-6.

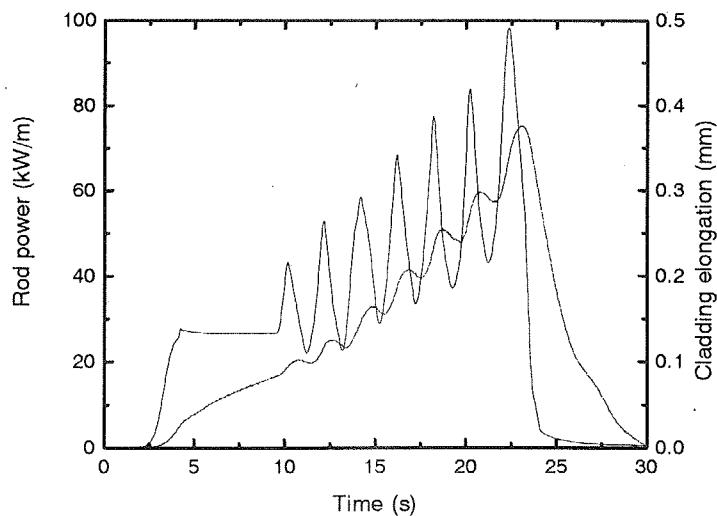


Figure 2.4-6 Power history and cladding elongation in test JMH-6.

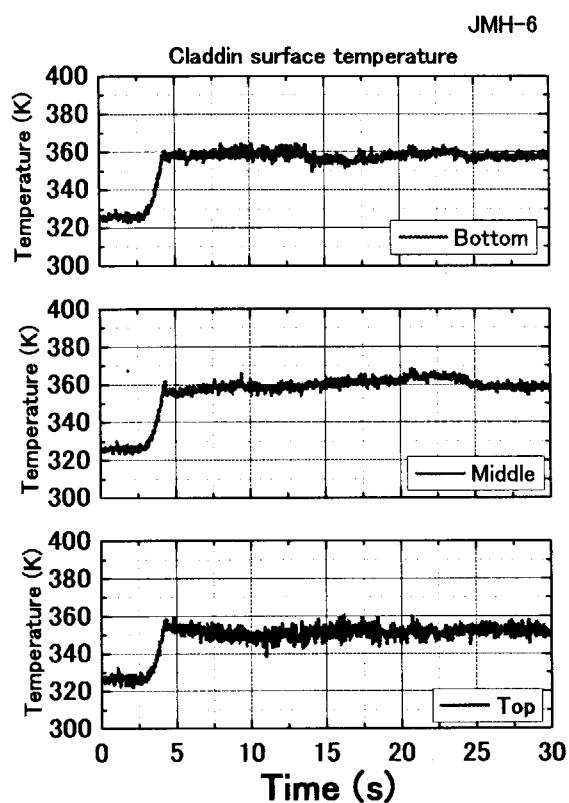


Figure 2.4-7 Cladding temperature in test JMH-6.

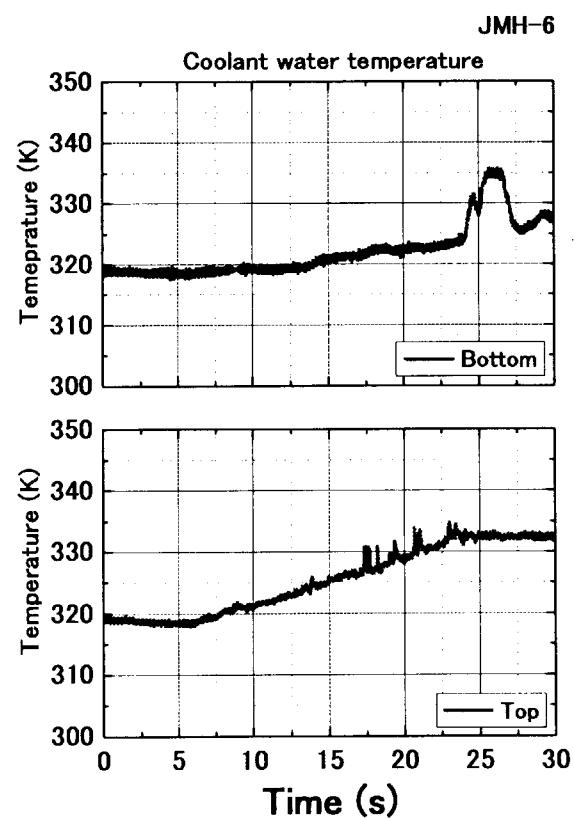


Figure 2.4-8 Coolant temperature in test JMH-6.

2.4.4 未照射燃料実験

BWR で出力振動が生じた場合の燃料挙動を明らかにする目的で、照射済燃料の出力振動実験を実施しているが、出力振動実験を行う台形パルス運転(Shaped Pulse::SP 運転)条件でのエンタルビ評価(除熱の効果の評価)を行うため、ペレット中心熱電対を計装した未照射燃料棒を用いた出力変動実験を 2001 年より開始した。

ペレット中心の温度を測定するために中空ペレットに熱電対を差し込んだ、中心熱電対付き燃料棒を5本製作し (Table 2.4-4)、これらの燃料を Fig.2.4-9 および Fig.2.4-10 に示すように、5MW で約5秒間保持後最大9MW の出力振動させる出力パターンと、同じく5MW で約5秒間保持後約9MW で約6秒間保持する出力パターンの2種類の照射運転による照射実験を行った。本実験シリーズの実験マトリックスを Table 2.4-5 に示す。ここに示すように最初の2実験については、大気圧室温において2種類の運転パターンによる照射実験を行い、次の2実験は電気ヒータにより水温を約 90°Cまで昇温しサブクールを小さくし DNB が生じやすい条件で各運転パターンによる照射を行い、1実験については、酸化膜付きの燃料棒を用いて、運転パターン2により大気圧室温で行い、各初期条件の違いによる影響を調べる予定である。

2001 年に 563-1、563-2 の2実験を実施した。本実験シリーズにおける実験計装を、Fig.2.4-11 に示す。各実験の被覆管表面温度およびペレット中心温度の過渡記録を Fig.2.4-12～Fig.2.4-13 に示す。実験 563-1においては、被覆管表面温度は最高で約 380K 程度で DNB は生じていない。ペレット中心温度は、最高で約 1000K であった。実験 563-2 においても被覆管表面温度は最高約 380K 程度で DNB は生じていない。ペレット中心温度は最高で 1300K 弱程度に留まっている。

2002 年に 563-3～563-5 の3実験について実施予定である。

(吉永 真希夫、中村 仁一)

Table 2.4-4 Specification of test fuel

Pellet	Composition	UO ₂
	Shape	Cylinder with dish (including 4 pellets with hole of ϕ 1.8mm)
	Diameter	8.32mm
	Hight	11.0mm
	Density	95%T.D.
	Enrichment	4.1%
Cladding	Material	Zr-4 (as received tube 4, Oxidized tube 1)
	Outer Diameter	9.5mm
	Inner Diameter	8.36mm
Fuel rod	Stack length	132.0mm
	Radial gap	20 μ m
	Fill gas	He (0.1MPa)
T/C of pellet center	type	Seath
	Material	W5Re/W26Re

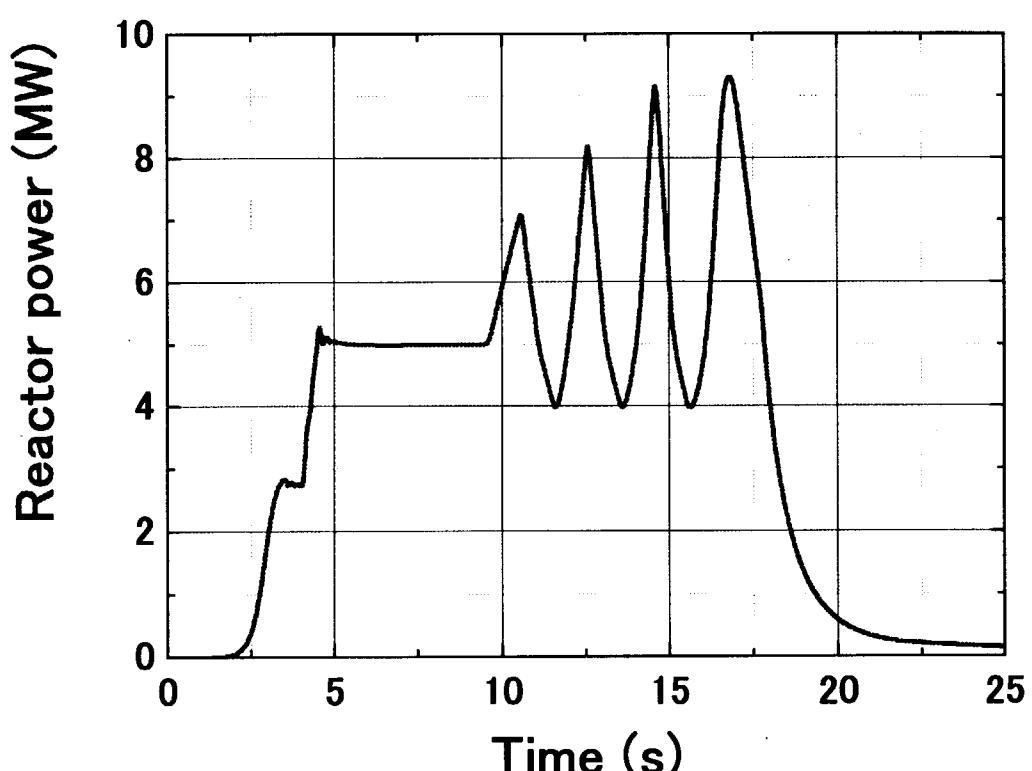


Fig. 2.4-9 Reactor power history of operation pattern 1

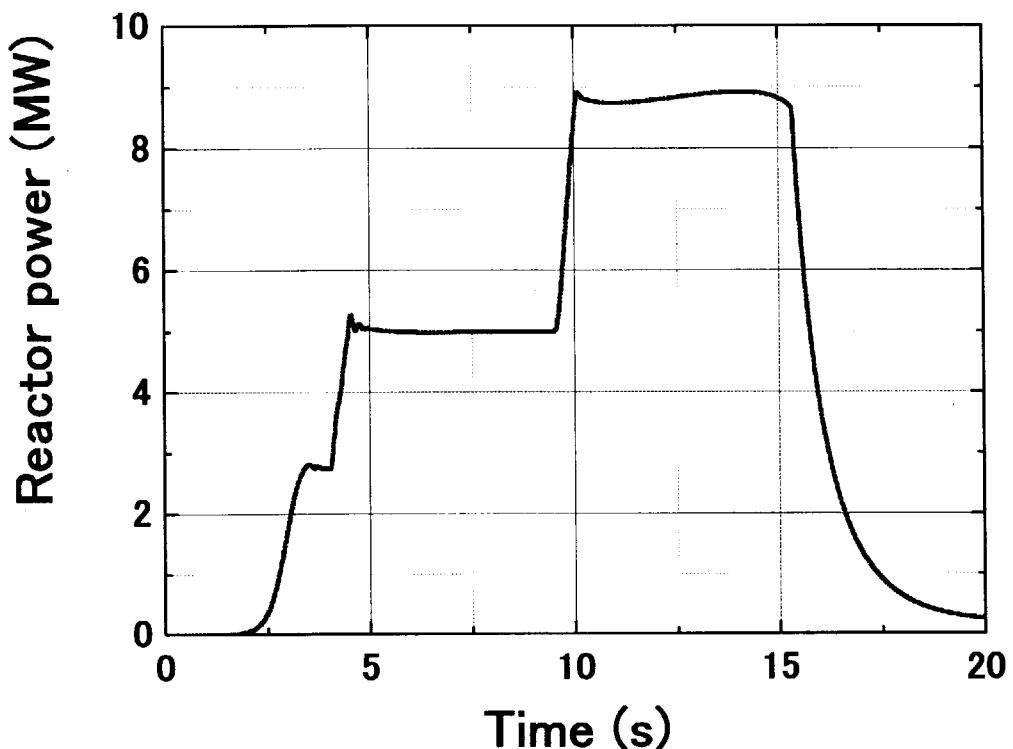


Fig. 2.4-10 Reactor power history of operation pattern 2

Table 2.4-5 Test ID

Test No.	Operation pattern	Cladding tube type	Coolant temp.
563-1	Pattern 1	as received tube	room temp.
563-2	Pattern 2	as received tube	room temp.
563-3	Pattern 1	as received tube	about 90°C
563-4	Pattern 2	as received tube	about 90°C
563-5	Pattern 2	Oxidized tube	room temp.

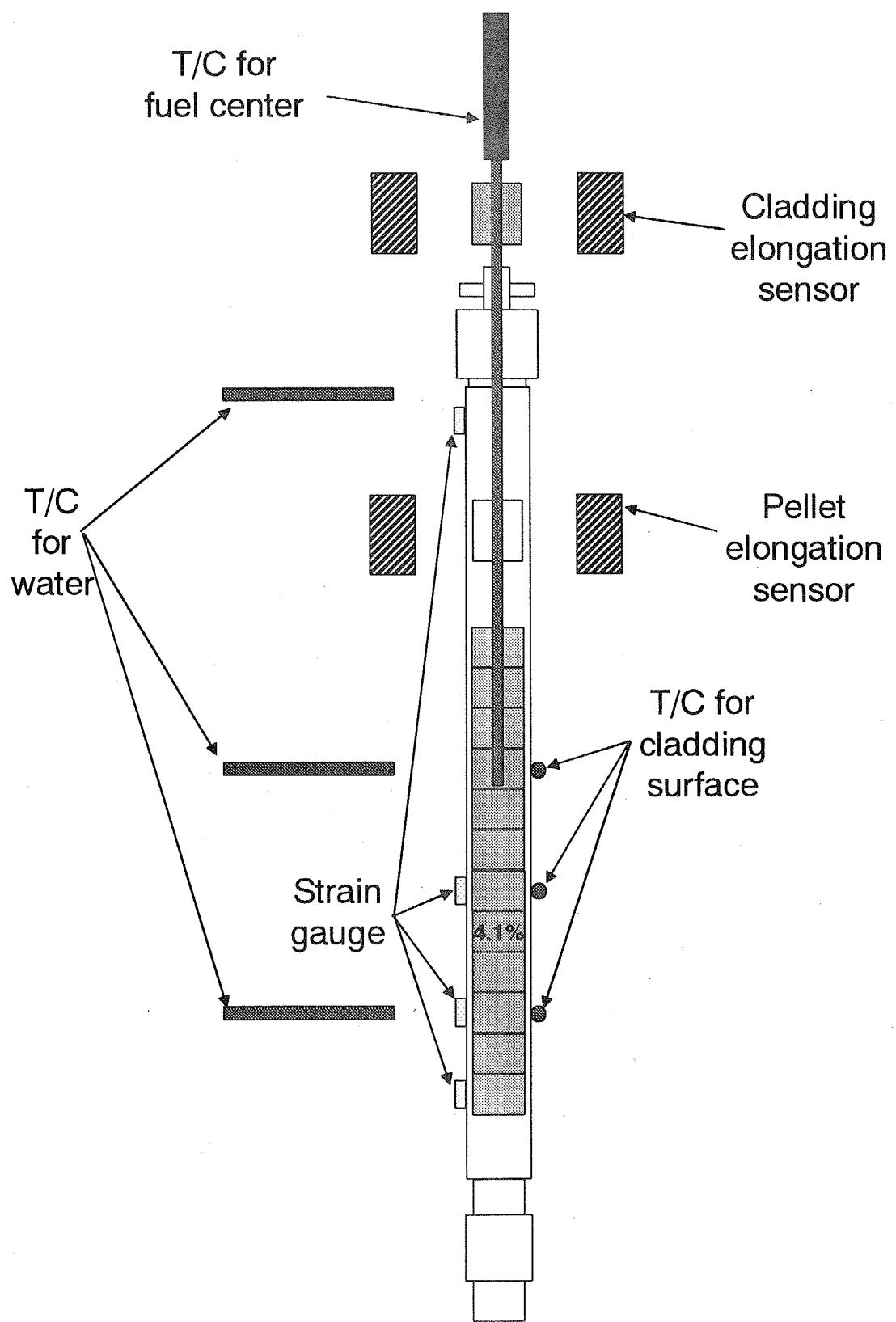


Fig.2.4-11 Schematic of measurement sensors and fuel rod in Test 563 series

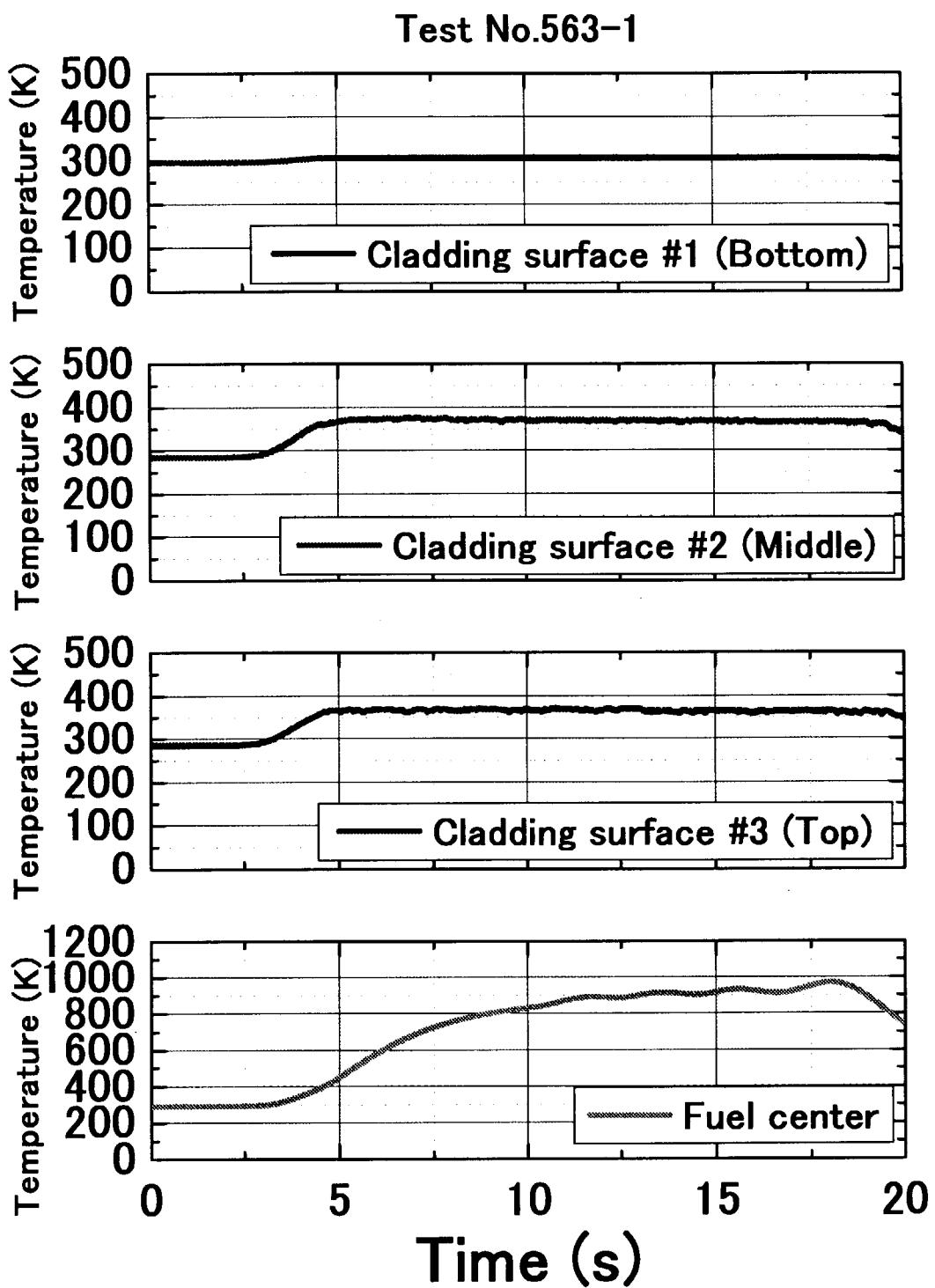


Fig. 2.4-12 Temperature histories of Cladding surface and fuel center in test 563-1

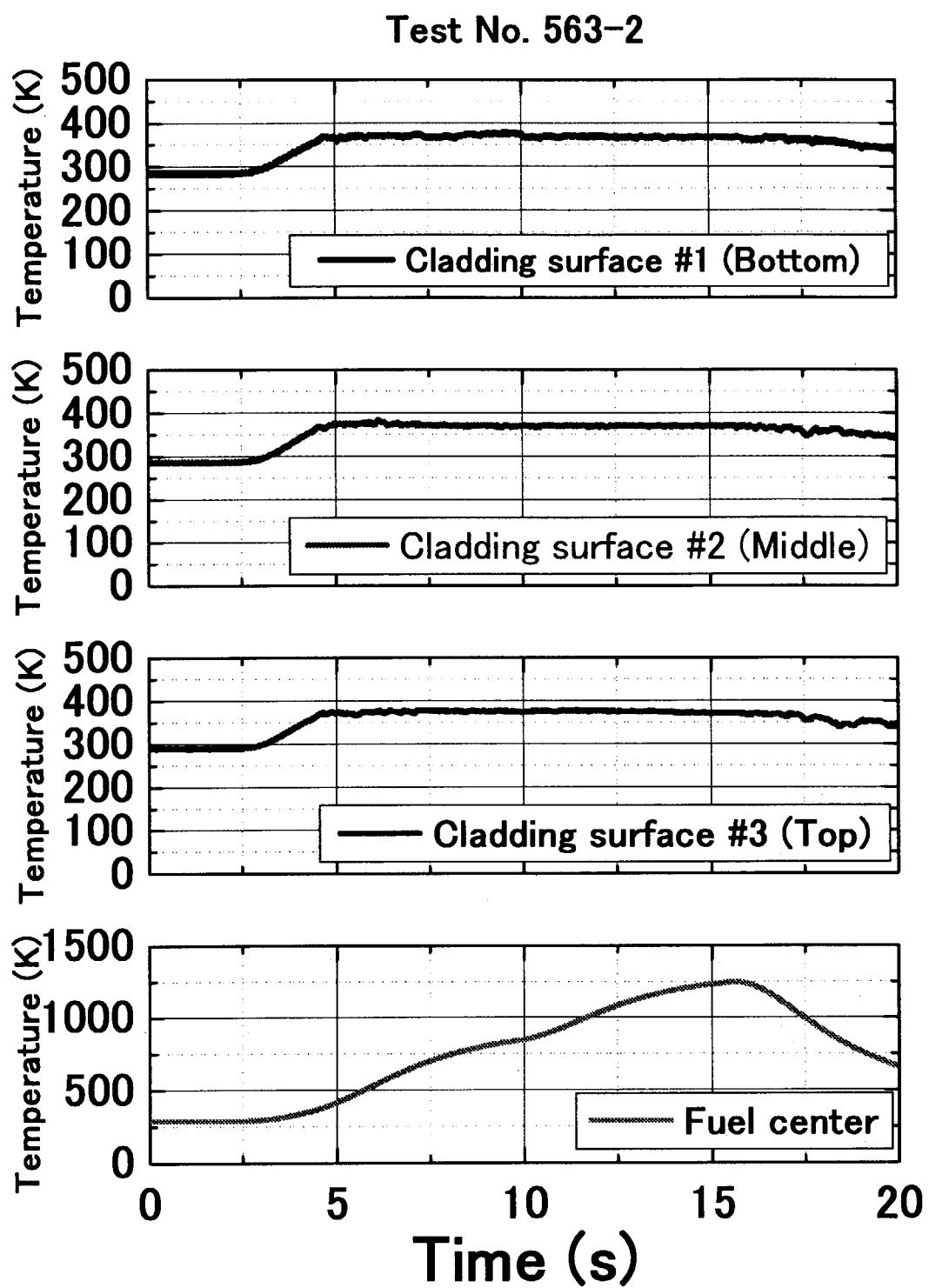


Fig. 2.4-13 Temperature histories of Cladding surface and fuel center in test 563-2

2.5 水素添加被覆管付 PWR 燃料の PCMI 実験

高燃焼度燃料における PCMI 破損に及ぼす被覆管の水素吸収量の影響を調べるための分離効果実験として 2000 年までに Table 2.5-1 に示すように 8 回の実験を行っている。2001 年に新たに水素吸収被覆管を用いた PCMI 測定実験を Table 2.5-1 に示す実験条件で 4 回行った。使用した燃料棒は、17×17PWR 燃料型燃料棒(半径ギャップ 10 μ m)で、被覆管に水素偏在管(400 ppm、800 ppm)を使用した燃料棒を実験に供した。また、本年実験における計装を Fig. 2.5-1 に示す。実験結果の代表例として実験 357-3 における被覆管表面温度および周方向歪みの過渡記録を Fig. 2.5-2～Fig. 2.5-3 に示す。

実験 357-3においては、被覆管表面温度が 330～400 K の時に周方向歪みは、最大 7.5%に達した。この実験を含めて 357-1～357-4 の 4 実験すべてにおいて、破損に至らなかった。

Fig. 2.5-4 に 2001 年までに実施した水素吸収被覆管を用いた破損実験結果をまとめたものを示す。これらの結果より、水素吸収量の PCMI 破損に及ぼす影響が大きいことがわかった。しかしながら、燃料破損した高燃焼度燃料実験よりも高いエンタルピーで破損している。これは、高燃焼度燃料の場合、水素偏在の影響だけでなく、FPガスの膨張、被覆管の照射損傷の影響も受けているためである。

これまでに行ってきた水素吸収被覆管を用いた未照射燃料実験での破損形態が高燃焼度燃料実験に見られる PCMI 破損と同じものであるか、破損部の金相試料を作成・観察を行った。Fig. 2.5-5 に 356-15 実験のパスル照射後の外観写真を、Fig. 2.5-6 に、356-15 実験の破損部の金相写真を示す。被覆管全長に渡る縦割れが生じている。これは、高燃焼度 PWR と同様の破損形態である。また、破損部の金相写真を見ると被覆管表面近傍で脆性破断し被覆管内面近傍では延性破壊の様相を示しており、これも高燃焼度燃料と同様な破断形態である。ここで、未照射燃料実験における破断面に酸化膜が形成されているが、PCMI 破損後に被覆管が高温状態になったためである。

2002 年 2 月に、400 ppm、800 ppm 各水素吸収量の燃料棒について各 1 回実験予定しており、歪み量における破損しきい値を明らかにしていく予定である。

(吉永 真希夫)

Table 2.5-1 Test ID

Cladding type	Radial gap (μm)	Peak fuel enthalpy (J/g)	Calculated cladding hoop strain (%)	Failure
Hydride rim 400ppm	10	393	0.5	NO
		443	1.00	NO
		551.76	1.50	YES
		689.7	2.00	YES
		961.4	2.64	YES
Hydride rim 800ppm	10	288	0.45	NO
		382	0.75	NO
		443.08	1.00	YES
		551.76	1.50	YES
		689.7	1.99	YES
Hydride rim 1000ppm	20	418	0.1	NO
		752.4	2.25	YES

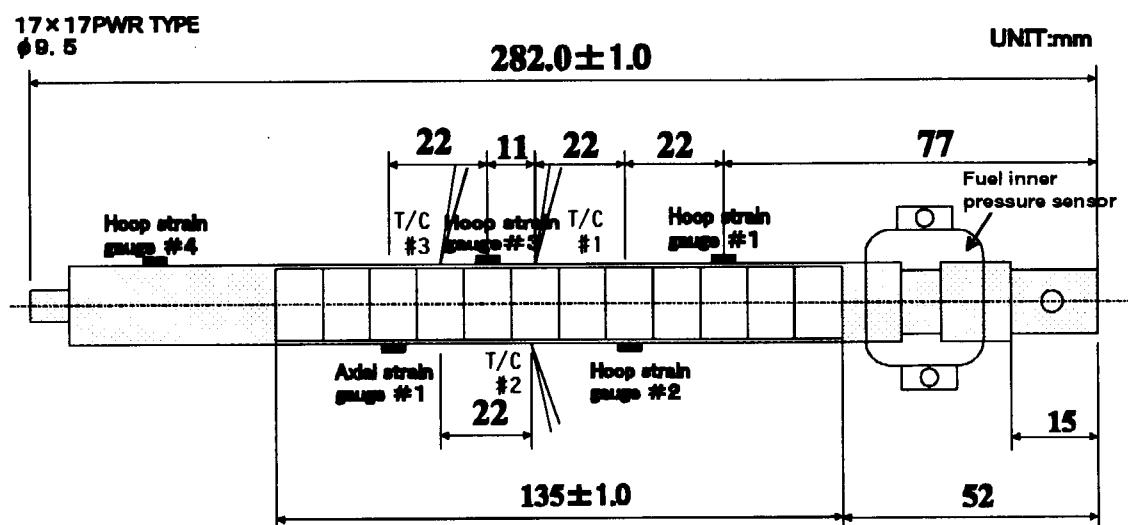


Fig.2.5-1 Schematic of measurement sensors and fuel rod

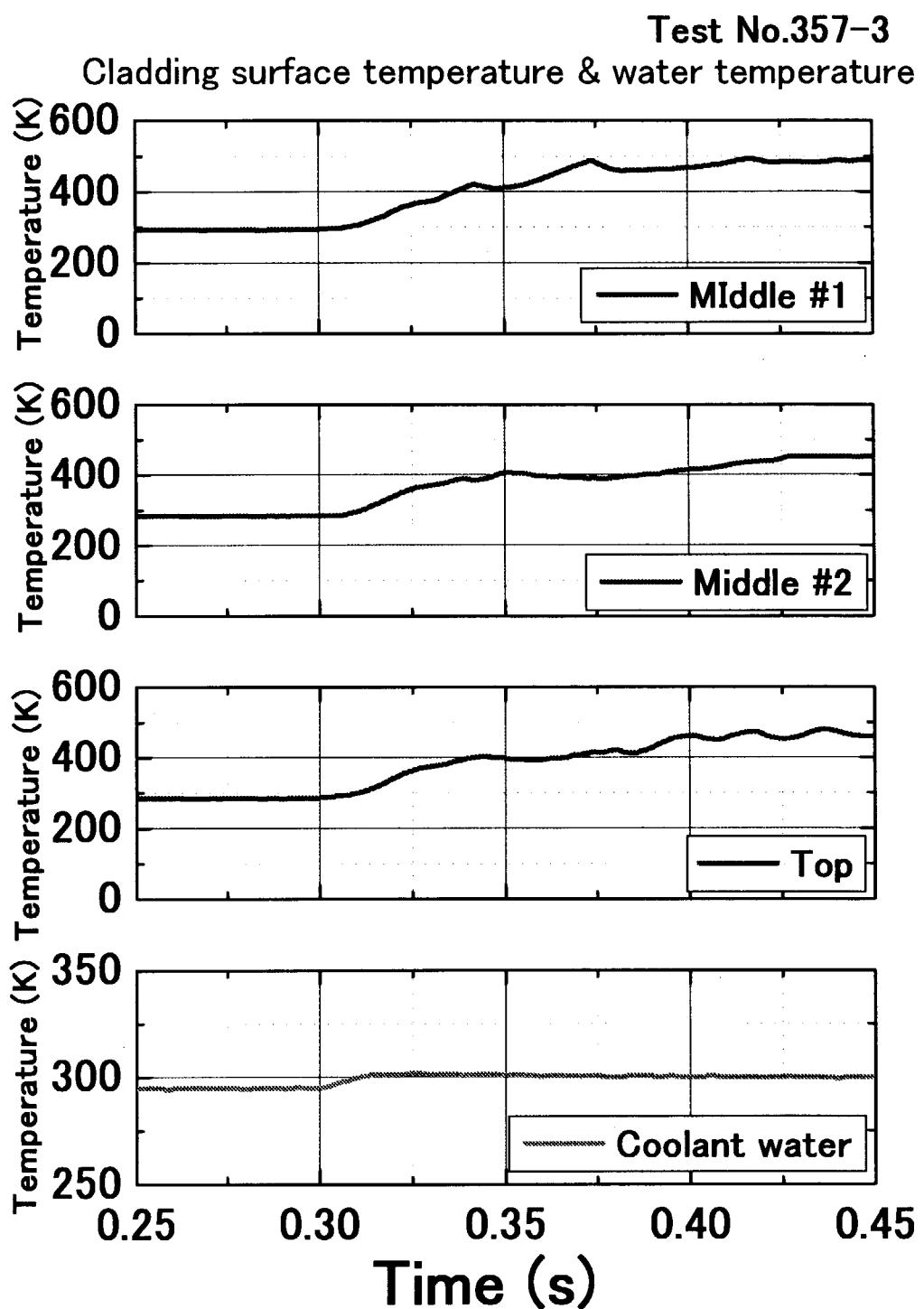


Fig.2.5-2 Temperature histories of cladding surface and coolant water in test 357-3

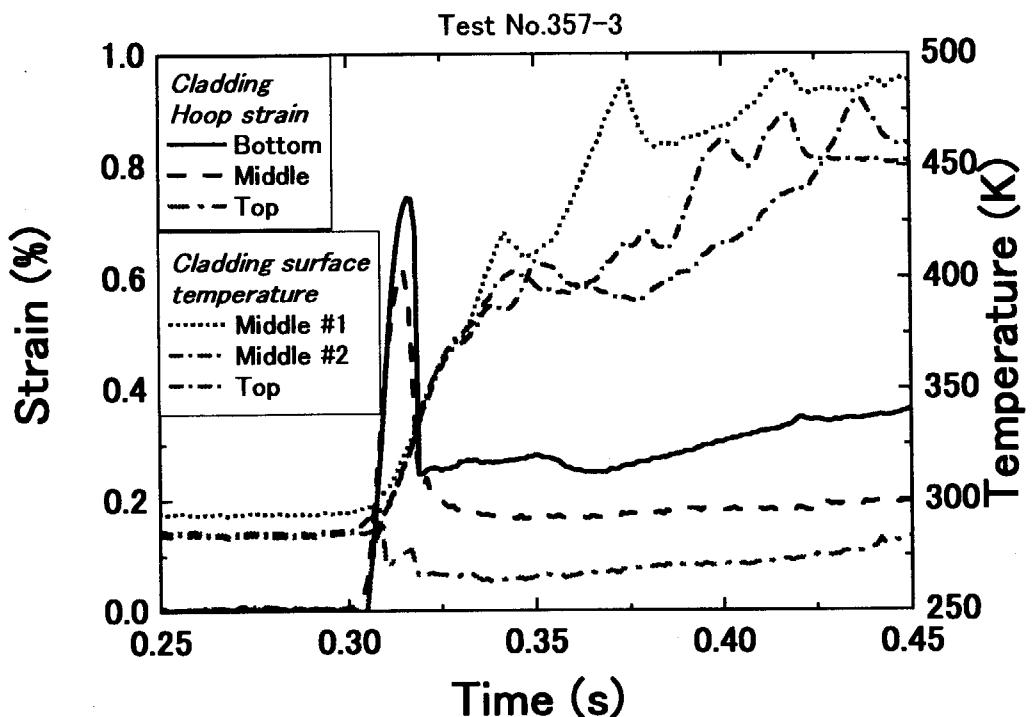


Fig.2.5-3 Histories of cladding hoop strain and reactor power in test 357-3

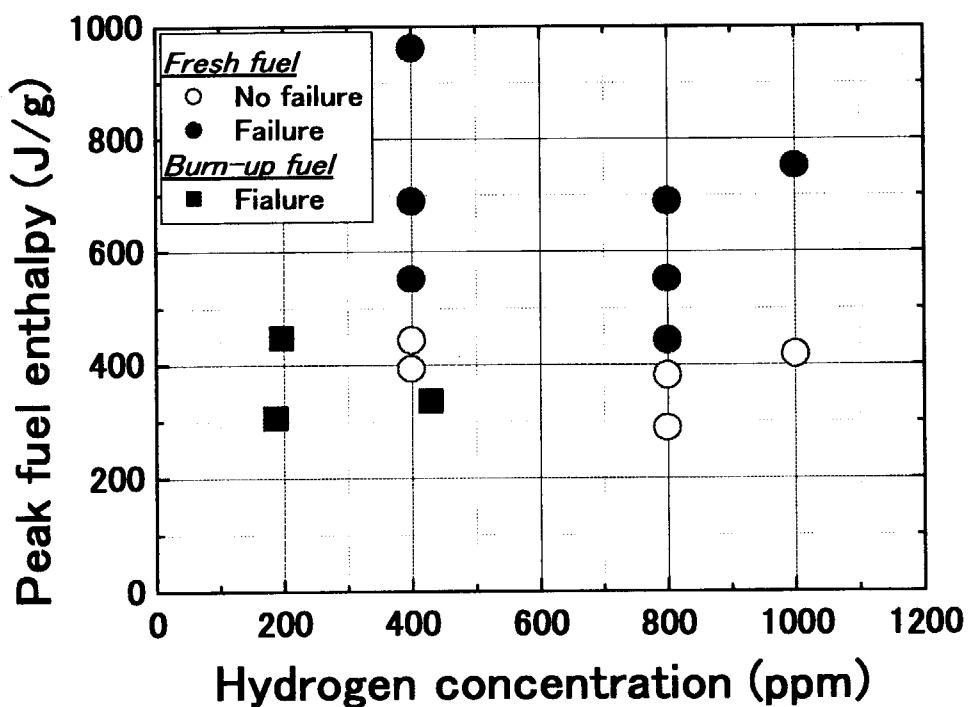


Fig.2.5-4 Relation of between cladding hoop strain and failure in Prehydrated cladding

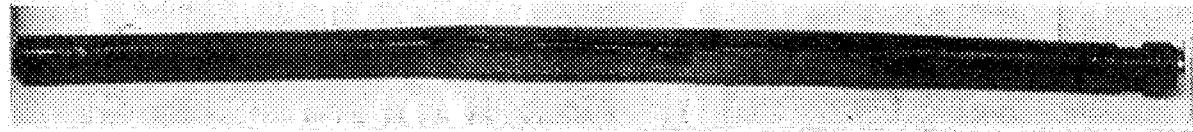


Fig.2.5-5 Appearance image of PCMI failure section in 356-15 test

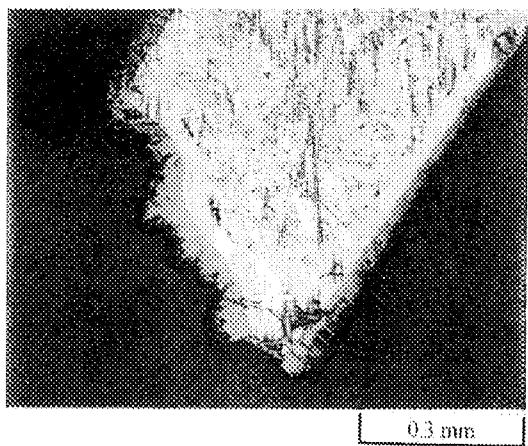
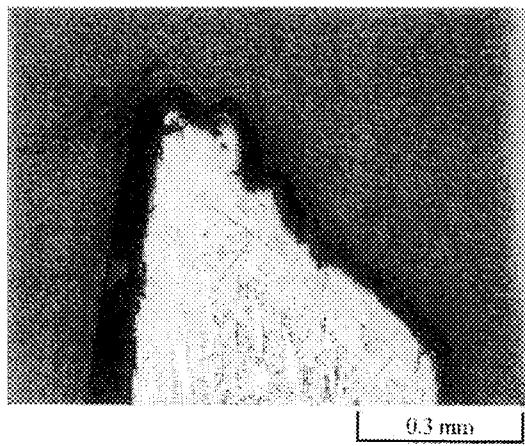


Fig.2.5-6 Microscope image of failure section in 356-15 test

2. 6 ROX 燃料実験

商用炉の使用済燃料や核兵器から取り出されたプルトニウム(Pu)は、現在世界中で 1000 トン近くにのぼり、核不拡散の観点から重大な問題となっている。原研では、こうした過剰な Pu を消費するための一手段として、ジルコニア型岩石型(ROX; Rock-like OXide)燃料の開発を進めている⁽⁸⁾。この燃料は、中性子吸収により Pu に変わるウラン(U)-238 を含まないため、Pu が速やかに消費される長所をもつ。しかし反面、U-238 の中性子共鳴吸収によるドップラーフィードバックが働くため、原子炉の反応度事故(RIA)時に燃料が達する燃料エンタルピが高くなる欠点があり、これが燃料仕様や炉心核特性を定める際の制約条件となりうる。したがって、ROX 燃料の開発上、その RIA 時の挙動の把握は重要である。そこで、燃料の組成または組織の異なる 3 種類の未照射 ROX 燃料(Pu を U に置き換えた模擬燃料)について、RIA を模擬した NSRR パルス照射実験を行ってきた。

2000 年までに、2 種類の ROX 燃料(YSZ 単相型(Z 型)および YSZ/スピネル均質型(SH 型))に対するパルス照射実験とその照射後試験、さらにもう 1 種類の YSZ/スピネル粒子分散型(SD 型)ROX 燃料に対するパルス照射試験を完了している。(ここで、YSZ はイットリア安定化ジルコニア、スピネルは $MgAl_2O_4$ である。)

2001 年には SD 型 ROX 燃料の照射後試験を実施した。単位体積あたりのピーク燃料エンタルピ(E_p)12.2 GJ/m³を与え破損した燃料棒(Test No.947-2)の外観写真を Fig. 2.6-1 に示す。燃料スタック部に対応する被覆管外面には酸化膜の形成が見られたが、Z 型燃料で観察されたような被覆管の偏肉は見られなかった。ただし、被覆管燃料スタックの下端から約 1 mm の位置に、被覆管の局所的な溶融によると推測される破損口が観察された。破損口からは、溶融した燃料ペレットが冷却水中に放出されており、その重量割合は 78% であった。放出された燃料は微粒子化していた。ふるい分けの結果得たそのサイズ分布を、破損した Z 型および SH 型燃料の結果と比較して Fig. 2.6-2 に示す。SD 型の粒子径は 1 mm 以下が約 80% を占め、他の 2 種と比べ小粒になっている。

以上の実験をもって、未照射の ROX 燃料に関して 1997 年以降行ってきたパルス照射実験および照射後試験は、SD 型燃料の走査型電子顕微鏡観察(SEM)および電子線微小分析(EPMA)を除き、ほぼすべて完了した。

これまでの試験結果を総括すると、ROX 燃料の RIA 時の挙動に関し主として以下のことがわかった⁽⁹⁾：

- (1) 燃料の破損しきいエンタルピは、3 種類とも 10 GJ/m³ 程度であり、これは UO_2 燃料のしきい値と同等である(Fig. 2.6-3)。
- (2) ROX 燃料の破損形態は、 UO_2 燃料とは異なり、燃料ペレットの溶融を伴う。Z 型および SH 型は内圧上昇に伴う被覆管の高温破裂、SD 型は被覆管の局所的な溶融によると見られる。
- (3) 燃料破損時に微粒子化した燃料ペレットが冷却水中に放出されたが、燃料と水との熱的相互作用による機械的エネルギー発生は有意には観測されなかった。

以上のことから、少なくとも未照射の ROX 燃料に関しては、現行の UO_2 燃料の破損しきい値が適用でき、ROX 燃料の開発に当たりその燃料仕様などの制限はそれほど大きくないことが明らかと

なった。

しかし、燃焼の進んだ ROX 燃料の場合には、燃料内に蓄積された FP ガスが RIA 時の燃料溶融により解放されるなどの現象が想定され、FP ガスの大量放出とともに、破損しきい値の低下が懸念される。燃焼の進んだ ROX 燃料に関する RIA 時挙動を解明していくことは今後の課題である。

(草ヶ谷 和幸)

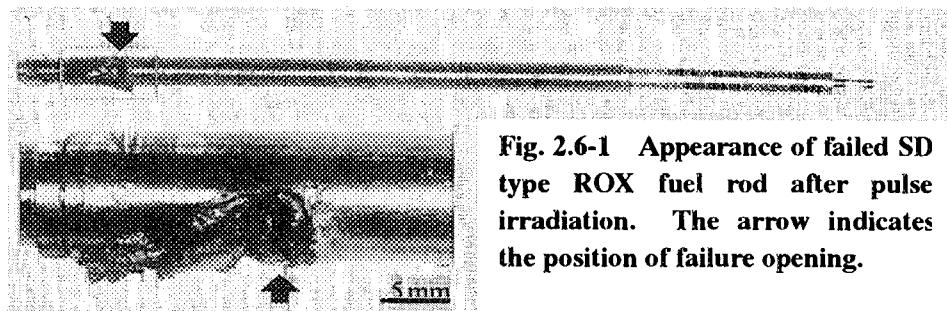


Fig. 2.6-1 Appearance of failed SD type ROX fuel rod after pulse irradiation. The arrow indicates the position of failure opening.

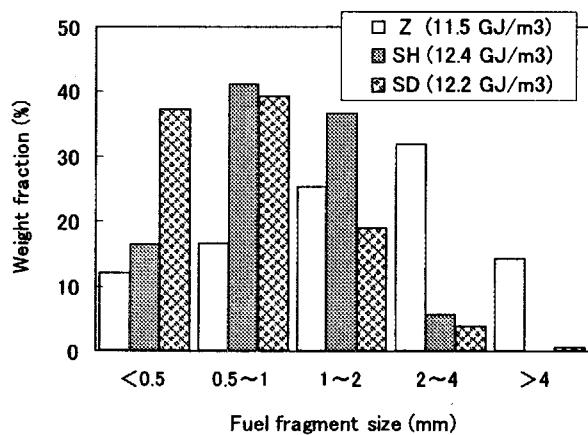


Fig. 2.6-2 Size distribution of fuel fragments released from the failed ROX fuel rods.

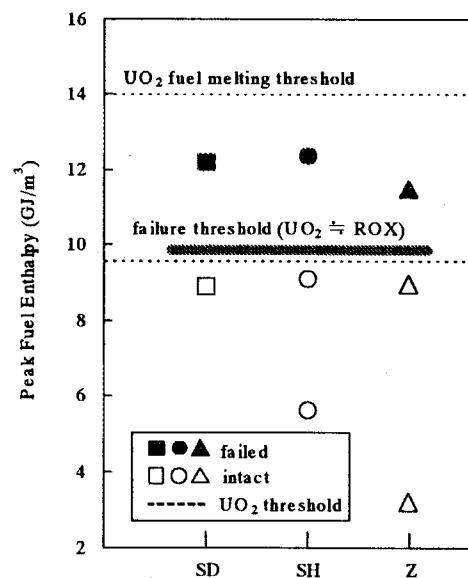


Fig. 2.6-3 Failure thresholds in peak fuel enthalpy for un-irradiated ROX and UO_2 fuel.

2.7 水素吸収 BWR 被覆管バースト試験

高燃焼度 BWR 燃料(燃焼度 61MWd/kgU)を用いた NSRR パルス照射試験において破損した燃料(FK-6,7,9)では、水素濃度が 150ppm 以上であり、被覆管半径方向に配向した水素化物も見られた。更に、水素吸収量が多い燃料では水素化物密度が高く、より高い水素化物連結性を示し、小さい歪量で破損する傾向が見られたことから、水素化物の配向性が燃料の破損挙動に何らかの影響を及ぼした可能性があることが指摘されている。^(10,11)

そこで本研究では、水素添加被覆管に対して水素化物再配向熱処理を施すことにより、FK 実験で破損した燃料で見られたような径方向に配向した水素化物析出形態を模擬した BWR 用被覆管試料を用いてバースト試験を行い、高燃焼度における水素濃度の上昇と被覆管半径方向への水素化物の配向が被覆管の健全性におよぼす影響を調べた。

被覆管中の水素化物を径方向に配向させるために、予め水素を 200~650wtppm 添加した BWR 用燃料被覆管に対して水素化物再配向熱処理を施した。これは、高温でジルカロイマトリックス中に固溶した水素の一部が、被覆管周方向引張応力を負荷した冷却過程で、板状水素化物が周方向応力に対して垂直に析出する特性を応用したものである。⁽¹²⁾

水素化物再配向熱処理は以下の手順で行った。水素添加被覆管を 623K で一定時間保持して被覆管中の水素を拡散させた後、被覆管周方向引張応力 150MPa に相当する内圧を負荷したまま 623K から冷却速度 100K/hr で冷却することにより、Fig. 2.7-1 の被覆管横断面金相写真に示すような水素化物析出形態の試料を作製した。この試料を用いて、室温または高温(373K, 553K)バースト試験を実施した。バースト試験における加圧速度は約 2MPa/s である。

Fig. 2.7-2 にバースト試験後の試料外観を示す。水素化物再配向熱処理を施した試料の室温バースト後の破損開口は、長い軸方向クラックを呈して破損しており、被覆管径方向に配向した水素化物が軸方向のクラック進展を促進したことが明らかである。一方、553K バースト後の試料では、水素化物再配向熱処理を施した試料は非水素添加試料に見られる典型的な破損開口を示しており、軸方向のクラック進展挙動に対する水素化物の影響が消失したことを示している。

Fig. 2.7-3 に室温における水素濃度と破損圧力の関係を示す。室温では破損圧力に対する水素濃度および水素化物再配向の影響は見られない。また、Fig. 2.7-4 に室温における水素濃度と破損後残留歪量の関係を示す。室温では、水素濃度の上昇とともに残留歪量が減少するが、水素化物再配向の影響は見られない。このことから、室温においては、水素濃度の増加は残留歪量の低下をもたらすが破損圧力には影響を及ぼさないこと、および径方向に配向した水素化物は破損圧力および残留歪量には影響を及ぼさないことが分かる。

Fig. 2.7-5 に試験温度と破損圧力の関係を示す。破損圧力は温度の上昇とともに単調に低下するが、水素濃度及び水素化物再配向の影響は見られない。Fig. 2.7-6 に試験温度と破損後残留歪量の関係を示す。残留歪量は温度の上昇とともに単調に増加し、室温~373K で見られた水素濃度の増加による 553K では水素濃度に関わらずほぼ同じ残留歪量で破損した。このことは、553K では水素濃度の増加による残留歪量の減少が起こらなかったこと、すなわち水素吸収の影響が 553K では消失したこと示している。

Fig. 2.7-7 に試料破断部の金相写真を示す。室温～373K では、水素化物再配向熱処理によって被覆管径方向に配向した水素化物に沿ってクラックが発生・連結することにより破損に至ったことが分かる。一方、553K では典型的な延性破断が起こったことを示しており、水素濃度および水素化物再配向の影響が全く見られない。

これらの結果から、室温～373Kにおいて水素濃度 650wtppm 以下では、水素濃度の増加とともに破損後残留歪量の低下が見られるが、破損圧力は変化しないことが分かった。また、被覆管径方向に配向した水素化物は、軸方向のクラック進展を促進したことが明らかであるが、破損圧力や破損後残留歪量には影響を及ぼさないことが分かった。更に、553K では水素濃度の増加による破損後残留歪量の低下および水素化物再配向による軸方向クラック進展の促進といった水素吸収の影響は消失することが分かった。

従って、FK 実験において 323K～373K で破損した燃料では、被覆管径方向に配向した水素化物が軸方向のクラック進展を促進した要因の一つであると考えられる。しかし、水素化物の析出形態のみが支配的要因となって小さい歪量で破損したとは考えられず、被覆管温度や照射脆化等の種々の要因が重畠して破損挙動に影響を及ぼしたと考えられる。

以上のように、2001 年度の研究において、被覆管径方向に配向して析出した水素化物は軸方向のクラック進展を促進するが、破損圧力や破損後残留歪量には影響を及ぼさないことを明らかにした。今後は、水素濃度や再配向熱処理条件を大きく変化させた試料を用いてバースト試験を実施し、水素化物の再配向の割合がバースト特性に及ぼす影響を詳細に検討するとともに、水素化物再配向熱処理を施した試料を用いてリング引張試験を実施し、機械特性の変化を定量的に評価する予定である。

(武田 透)

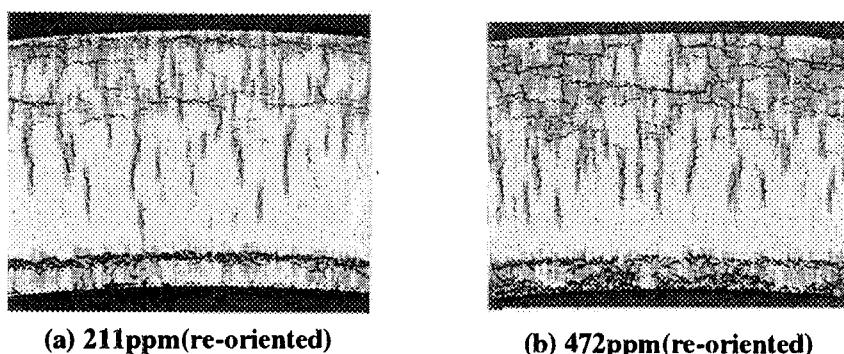


Fig. 2.7-1 Cross section of cladding after heat treatment for hydride re-orientation

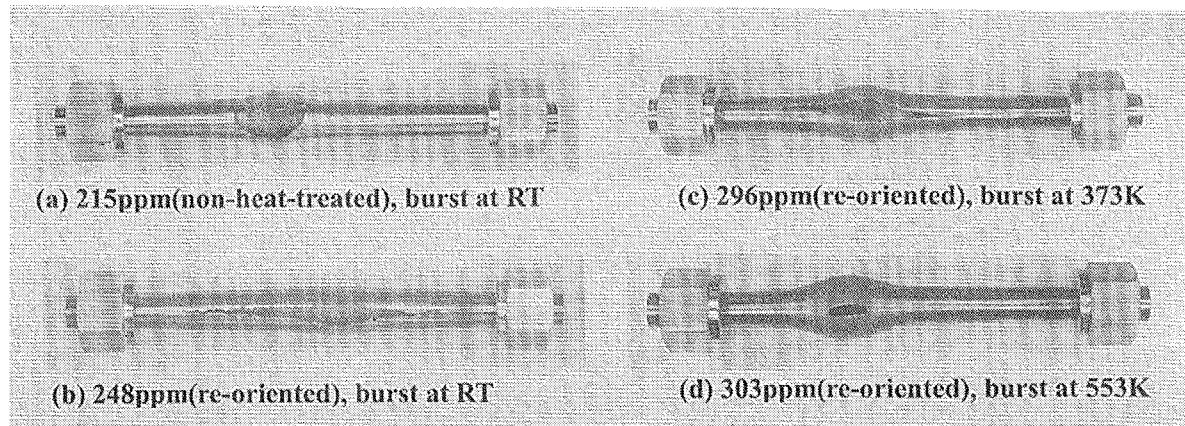


Fig. 2.7-2 Post-test appearance of cladding samples after burst test

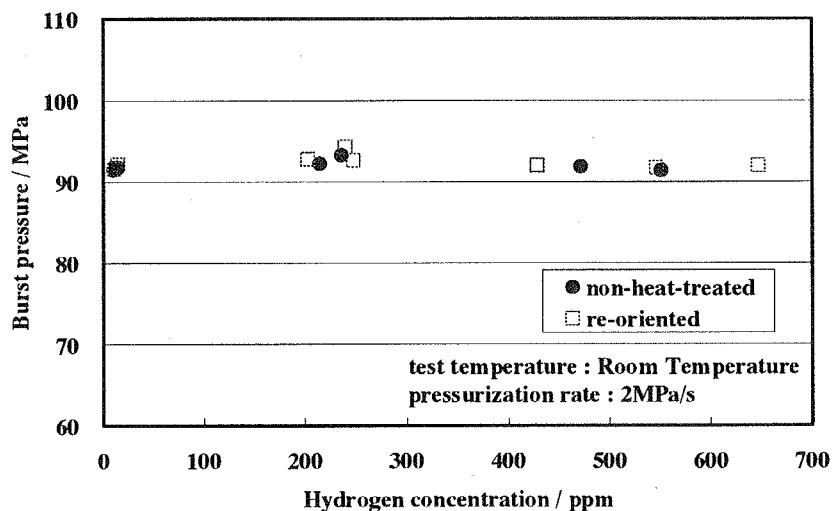


Fig. 2.7-3 Burst pressure as a function of hydrogen concentration at RT

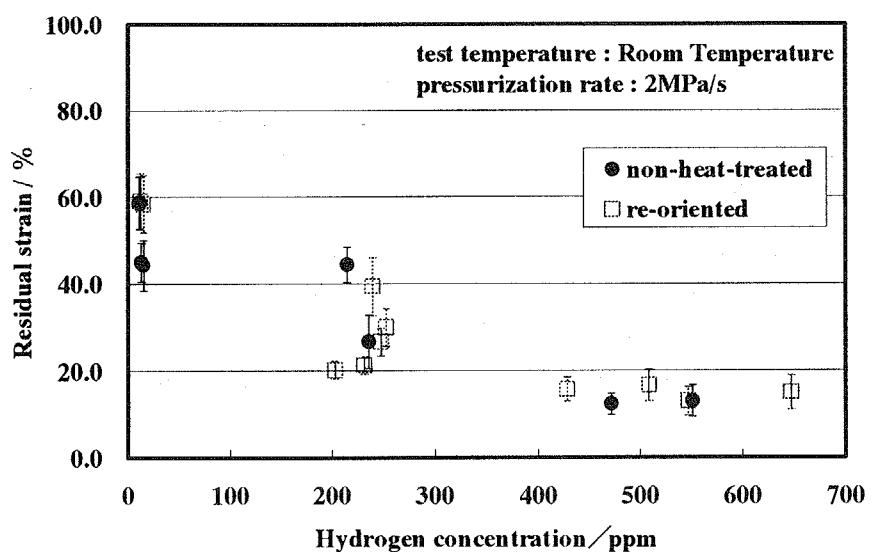


Fig. 2.7-4 Residual strain measured in failed samples as a function of hydrogen concentration at RT

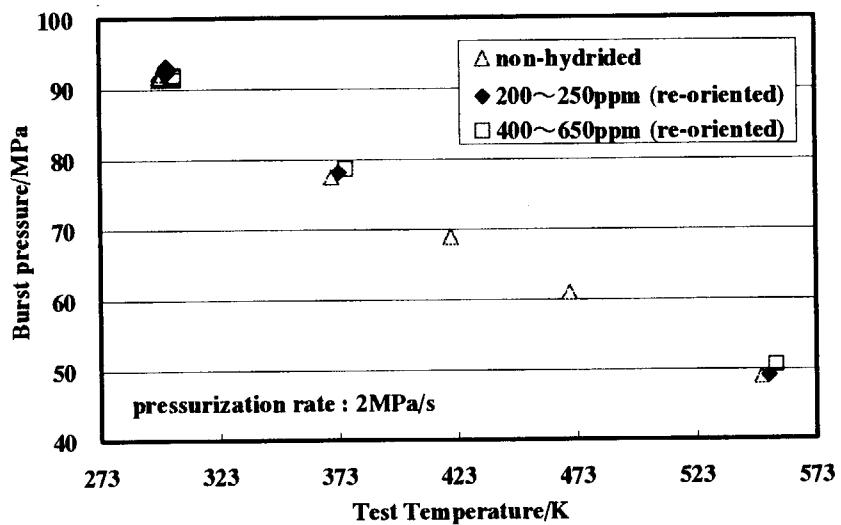


Fig. 2.7-5 Burst pressure as a function of test temperature

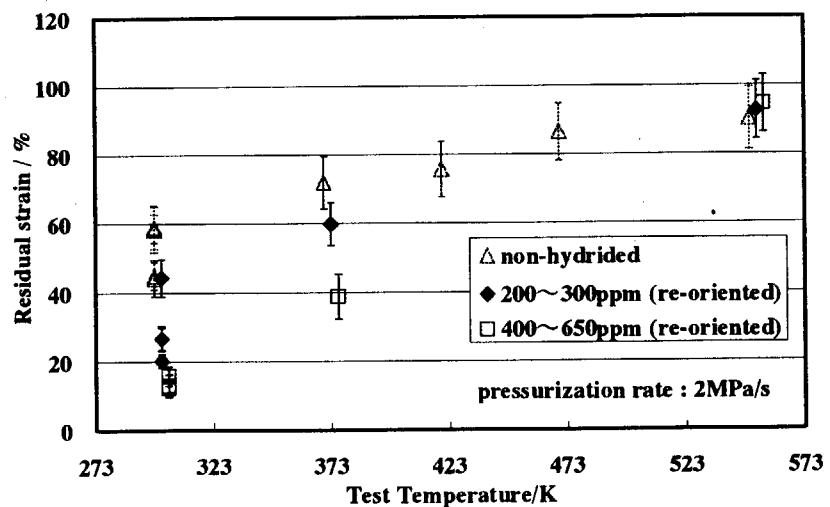


Fig. 2.7-6 Residual strain as a function of test temperature

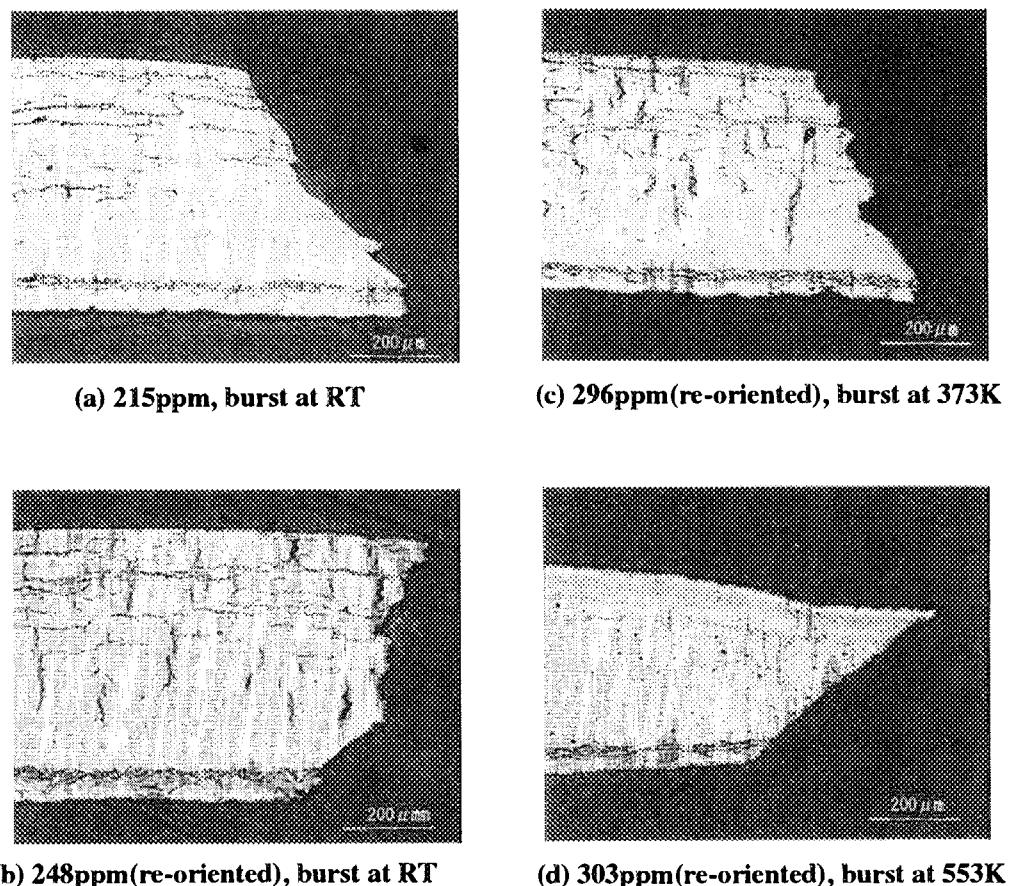


Fig. 2.7-7 Radial cross section in the vicinity of the failure position

2.8 リング引張試験

高燃焼度燃料被覆管の健全性評価と PCMI 破損挙動解明の観点から、円周方向の機械特性（強度、破断強度、破断伸び、降伏点）を正しく測定することが不可欠である。しかしながら従来のリング引張試験では、曲げモーメントが生じるため、PCMI により発生する円周方向荷重を再現できず、また、リング試験片にゲージ部がないため変形範囲が不明で伸びを定量的に評価することができない問題があった。そこで、有限要素法による弾塑性解析とリング試験片ゲージ部寸法をパラメータとした試験を通して、円周方向荷重が作用した被覆管の機械特性を定量的に評価できる改良リング引張試験方法 Fig.2.8-1 を開発した⁽¹³⁾。

RIA 条件下で、高燃焼度燃料棒が比較的低い投入エネルギーで PCMI 破損する主な原因是、燃焼の進行に伴う被覆管の延性低下であり、特に温度勾配が大きい PWR 被覆管においては、被覆管外周部に生成・集積した水素化物リムが強い影響を及ぼしていると言われる。2000 年度においては、被覆管外周部に集積する水素化物リムが被覆管の周方向機械特性に及ぼす影響を調べた⁽¹⁴⁾。その結果、室温では、一定厚さ(約 100 μm)以上の水素化物リムが被覆管の延性を低下させ

せること、573Kにおいては、被覆管延性の低下は水素化物リム中の水素化物密度が非常に高い場合のみに起こることが明らかになった。573K試験の結果は、水素化物を含有するジルカロイには、密度(水素濃度)と温度に依存し延性から脆性に遷移するしきい値が存在し、水素化物リムが脆性条件にあればクラックの起点となり被覆管の延性を低下させることを示唆している。水素化物リムの影響を広い条件において評価するためには、水素化物リムの厚さと水素化物密度を変えた試験が求められるが、そのような試料の作製は困難である。そこで、均一な水素化物分布を有するが様々な水素濃度を有するジルカロイ-4被覆管試料を用いて、水素濃度と試験温度をパラメータとした改良リング引張試験を実施した。試験により得られた破断伸びの水素濃度依存性をFig.2.8-2に示す。試験温度は、室温～573Kである。室温において、破断伸びは水素濃度600wtppm以下ではほぼ一定であるが、800wtppm以上で急激に低下する。373Kにおいては、急激な延性の低下は1000wtppm以上で起こる。一方、473K以上においては、水素濃度の増大に伴う延性の変化は緩やかである。しかし、1600wtppmで延性の低下が比較的大きく、これ以上の水素濃度では、延性低下が顕著であると考えられる。本試験の結果から、水素を吸収したジルカロイ被覆管において、水素濃度と温度に依存した明確な延性～脆性遷移が起こること、室温におけるしきい水素濃度は約800wppm、473K以上では約1600wtppmであることが分かる。したがって、水素化物リムが1600wtppm以上の水素濃度を有する場合には、高温においても水素化物リムが被覆管の延性を低下させる可能性がある。原研が行ったPWR高燃焼度燃料被覆管中の水素化物リムの水素濃度評価結果(F. Nagase and H. Uetsuka, JAERI Research to be published)では、水素化物リム中の水素濃度は2000wtppm以上と評価されている。

現在、NSRRにおいて実施しているパルス照射試験では、試験開始時の燃料棒温度は室温であり、PCMI破損時にも高々373K程度である。実際の商用炉においては、運転温度(PWR:約593K、BWR:約553K)が高いため、運転開始時のRIAを想定すると、比較的高温での機械特性を知ることは重要である。本試験の結果は、被覆管延性に関し、800wtppm以上の高い水素濃度についてはNSRR試験条件が十分保守的であること、一方、低い水素濃度では、温度による保守性が比較的小さいことを示唆している。

今後、FEM解析による実験値の評価や試料と治具間の摩擦の評価、試験片形状の見直し等を行い、より精度の高い評価を目指す。また、研究炉(JRR-3)で照射した被覆や使用済燃料棒から採取した被覆管に対する試験を実施する予定である。

(内川 貞之)

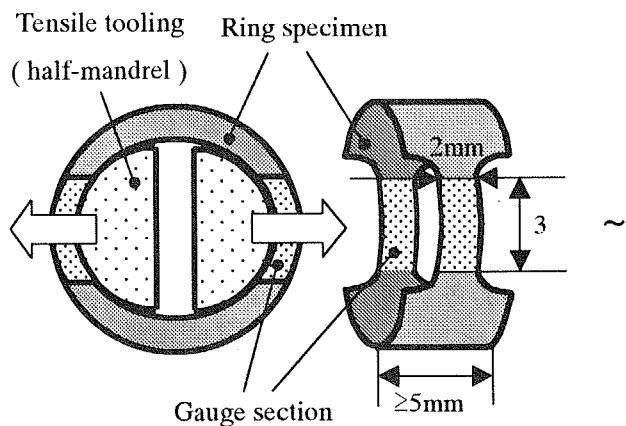


Fig. 2.8-1 Modified ring tensile test

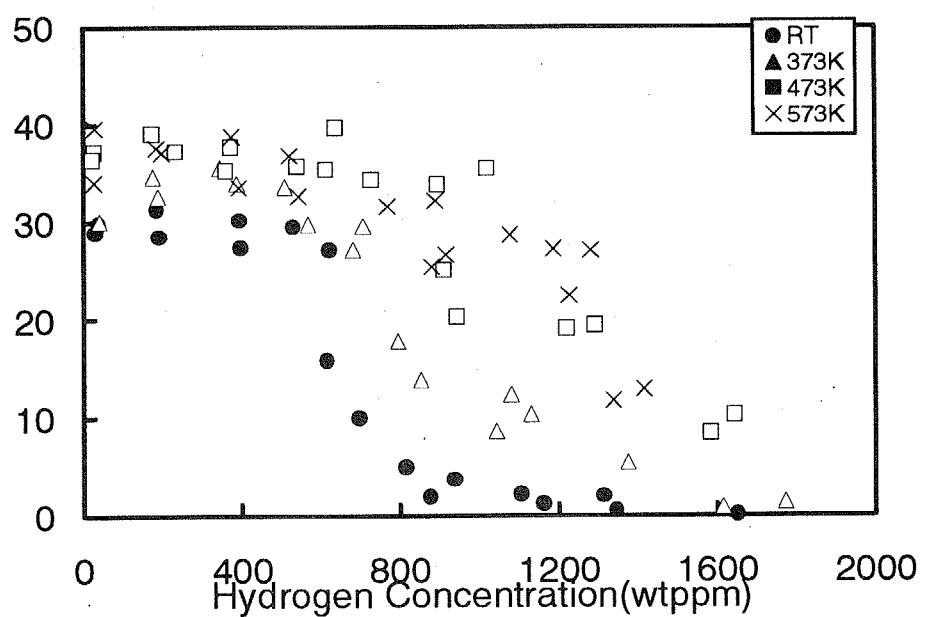


Fig.2.8-2 Total elongation as a function of hydrogen concentration

2.9 高燃焼度 PWR 燃料の炉外アニーリング試験

高燃焼度燃料の FP ガス放出挙動を研究するための分離効果実験として、炉外アニーリング試験を実施した。2001 年は、大飯1号機において燃焼度約 50 GWd/tU までベース照射された 17x17PWR 型の燃料棒から試験燃料を採取し、7 回のアニーリング試験を試験温度約 900K～2500K の範囲で実施するとともに、試験後に試験燃料の SEM 観察を実施した。なお、本試験燃料は NSRR において HBO 実験シリーズとしてパルス照射に供したものと同一の燃料棒から採取したものであり、ベース照射中の FP ガス放出率は、1%未満とごくわずかで、生成された FP ガスのほとんどは試験前には燃料ペレット中に存在している。以下に試験の概要及び試験結果を示す。

Fig. 2.9-1 に示す試験装置は近年改良がなされ、昇温とともに燃料から放出された FP ガスをオンラインで測定できる構造となった。従来のオフライン測定は昇温ごとに放出ガスをサンプリング容器に捕集し、そのガスを分析しているために、昇温過程時に経験する温度の影響を受けるのではないかと懸念されていた。この改良により、より精度の高い測定が可能となった。装置は試料を加熱する高周波加熱炉と試料から放出された FP ガスを四重極質量分析計で測定する測定系により構成されている。高周波加熱炉はホットセル内に設置され、配管によりホットセル外の測定系部につながっている。試料の加熱は高周波によりルツボを昇温し、試料を加熱する間接加熱であり、真空条件下で最高 2773K までの加熱が可能である。試料の温度は、石英ガラスを介して単色及び二色の放射温度計により測定・監視する。

試験は、Table 2.9-1 に示すように約 900K～2500K と燃料温度をパラメータとして 7 回の実験を真空雰囲気中で被覆管のない非拘束条件下で実施した。昇温速度は約 7 K/s である。代表として H8G1 試験の温度履歴と放出量の関係を Fig. 2.9-2 に示す。Kr と Xe の放出量は、燃料温度が一定の目標温度に到達するまでの昇温過程で 2 つのピークが、温度一定になってからは 1 つの放出のピークが見られる。昇温直後の放出及び 2 本目の低温での放出は、燃料ペレットの結晶粒界に付着したものあるいは粒界からの放出と考えられる。燃料温度が一定の値となってからは、放出量は徐々に一定となり、燃料温度が 2000K を超えていることから結晶粒内からのガス拡散放出が支配的となっているものと考えられる。

Fig. 2.9-3 に Kr と Xe のガス放出率を温度の逆数をパラメータとして示す。放出率の評価においては、インベントリーの FP ガス生成量は ORIGEN-2 コード⁽¹⁵⁾ 計算により求めた。放出率は最低試験温度約 900K で、より高い温度よりも高い値を示しているが、これは Fig. 2.9-2 の試験経過時間 5 分付近での低温での放出ピークにも観られるように、昇温による熱的な衝撃に起因した Athermal なガス放出と考えられる。1172K から最高試験温度の 2469K の温度範囲では、放出率は温度の上昇とともに増加している。1664K を超え、約 1900K で放出率が急激に上昇し、温度の上昇とともにほぼ線形に高くなる傾向がある。

1172K～1664K の温度範囲では、ガス放出量は、温度の上昇と強い相関関係にある。しかしながら、低い温度領域であることから一般的に結晶粒内からの放出ではなく、燃料の結晶粒界に存在する FP ガスが放出したものと考えられる。1869K 以上の温度では、それまで存在していた結晶粒界中のガスがすべて放出し、結晶粒内からの拡散が主流となったものと考えられる。これらデータ

タの結果から、昇温過程で放出する FP ガスは約 1700K～1900K の間で放出速度の変化が観測された。この間の温度を境界として、より低温側と高温側で放出メカニズムが大きく異なっていると考えられる。Fig. 2.9-4 に Kr の拡散係数を試験温度の逆数をパラメータとして示す。計算には Booth モデルの式 $F = 6(Dt/\pi a^2)^{1/2} - 3Dt/a^2$ を用いた。ここで、 F は放出率、 D は拡散係数、 a は燃料ペレットの組織及び画像解析から求めた結晶粒半径、 t はアニーリングの有効時間である。本図には、米国 ORNL(Oak Ridge National Laboratory)で燃焼度 10～47MWd/tU の燃料を用いて実施した HI 実験と VI 実験の結果⁽¹⁶⁾ も参考として示した。本試験における拡散係数は $D = 6.0 \times 10^{-6} \exp(-71,383/RT)$, cm²/s と表される。ここで、R は気体の定数、T は燃料温度である。活性化エネルギーの値 71,383cal/mol は ORNL が推薦する値 91,100cal/mol よりも低い値である。これは、FP ガスの結晶粒内からの拡散放出は燃焼度の増加とともに高くなることを示唆している。

Fig. 2.9-5 にアニーリング試験後のペレットの SEM 観察結果を示す。結晶粒界からガス放出が起こったと考えられる試験温度約 1500K 後の燃料では、ベース照射終了後のシビリング燃料と比べてミクロ組織の顕著な差は観られない。結晶粒内からの拡散放出が開始したと考えられる試験温度約 1900K 後の燃料ミクロ組織では、結晶粒界で橢円形状のバブルの痕跡が観察される。より高温の約 2300K で試験した燃料では、より大きなバブルへと成長した痕跡が観察される。これら観察結果はアニーリング試験結果と対応している。

(笹島 栄夫)

Table 2.9-1 Test conditions

Test ID	Fuel Type	Test Temperature (K)	Effective Time (min)	Heating Rate (K/s)	System Environment
H5G1		1472	165		
H5G2		1664	169		
H6G1		872, 1172, 1472	17		
H7G1	HBO	1869	178	7	Vacuum
H7G2		2050	168		
H8G1		2268	87		
H8G2		2469	21		

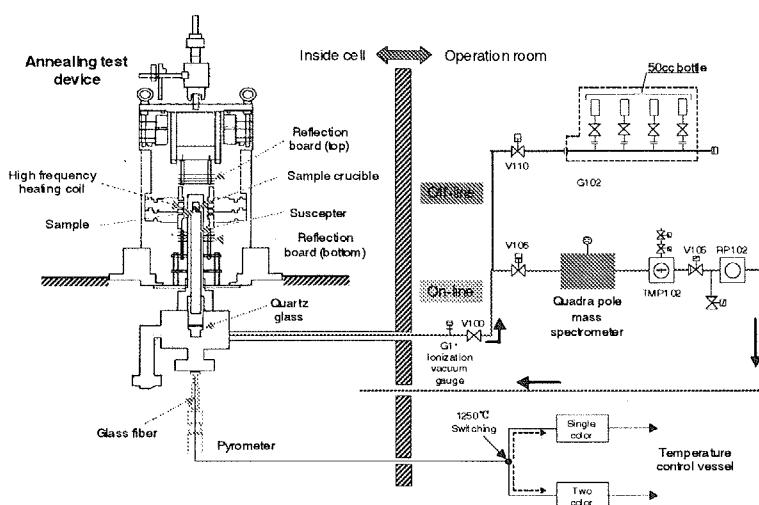


Fig. 2.9-1 System of out-of-pile annealing test device

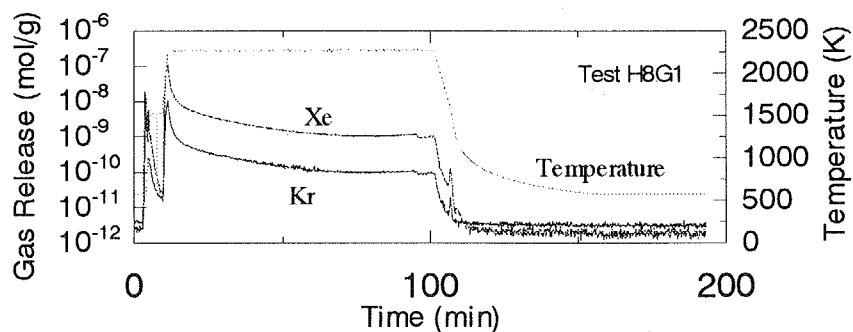


Fig. 2.9-2 Temperature history and on-line release data

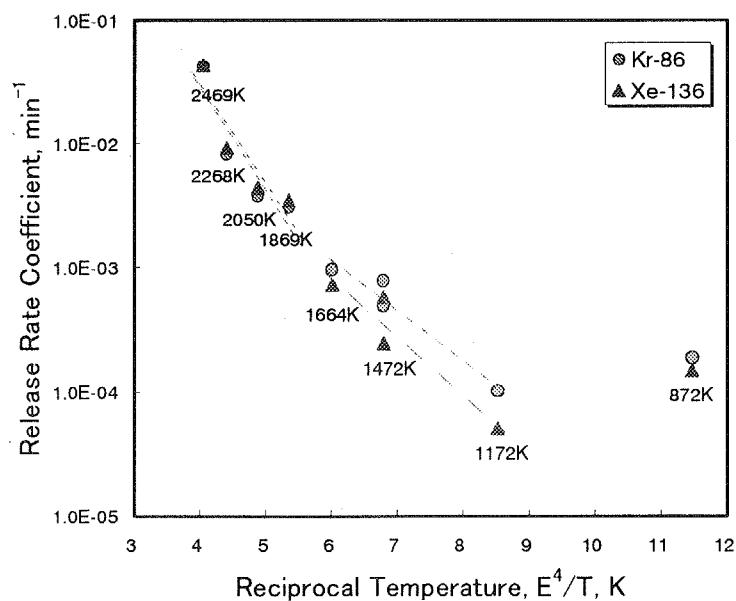


Fig. 2.9-3 Temperature dependency of fission gas release

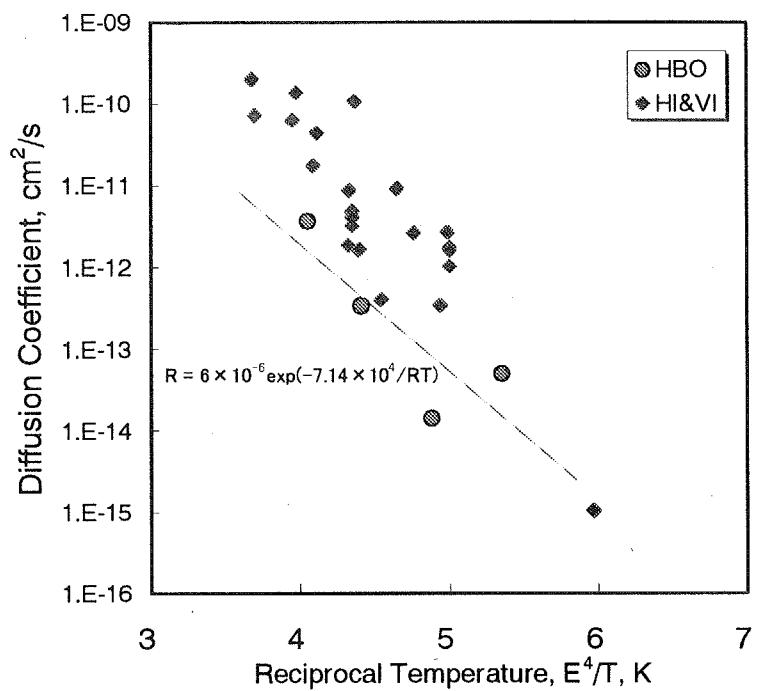


Fig. 2.9-4 Diffusion coefficients for krypton

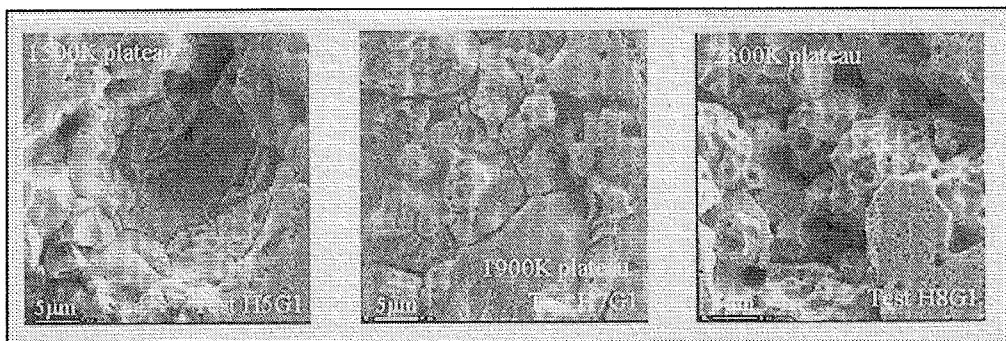


Fig. 2.9-5 SEM images of fuel specimens

2. 10 NSRR 試験の高度化計画

NSRR では、これまでペレット燃焼度 61GWd/tまでのウラン燃料、20GWd/tまでの MOX 燃料に対して室温・大気圧の初期条件からの反応度事故を模擬した実験を約 70 回実施してきた。これらの実験の成果は、原子力安全委員会の事故時評価指針⁽¹⁷⁾に反映されるなど、世界的にも貴重な事故時燃料挙動に関するデータベース与えるものとなっている。しかしながら、今後予定される集合体燃焼度 60GWd/t(ペレット最高燃焼度約 80GWd/t)を超える大幅高燃焼度化やプルサーマルの本格化に対応し、破損に関するデータの取得及び破損機構解明のための実験研究を進めて行くためには、実験技術の高度化が必要となってきている。このため、以下の 2 点を中心項目とした改造計画に着手した。

- (1) 運転条件に対応した冷却条件から反応度事故を模擬する高温高圧カプセルの実用化
- (2) プルサーマルに対応した約 13%までの高 Pu 富化 MOX 燃料、大幅高燃焼度燃料に対応した中性子遮蔽等実験設備の改造

PWRにおいては、これまでの NSRR 実験が対応する冷温条件からの反応度事故は想定され得ない。一般に被覆管の延性は温度の上昇に伴い増加するため、室温での実験から得られた脆性的な破損に対するしきい値は、保守性が高すぎる可能性が指摘されている。(1) はこの課題に応えるためのものであり、2000 年までに基本設計と試作カプセルの製作を行い、試験運転に成功している。2001 年は、その実用化に必要な要素技術である計装・電力プラグの開発及び取り扱い性向上のためのカプセル下部形状の最適化(2.10.1 参照)、実験カプセルの強度設計のベースとなる設計線図(2.10.2 参照)、すなわち、燃料破損時に生じる破壊力(2.10.3 参照)に関する検討を行った。他方、MOX 燃料に関する (2) に関しては、NSRR 遮蔽設備の設計(2.10.4 参照)、輸送容器の設計(2.10.5 参照)、実験カプセルの設計線図への影響の検討を行った。

(中村 武彦)

2.10.1 高温高圧カプセルの開発

燃焼の進んだ燃料の PCMI 破損に対する被覆管温度の影響を調べるために、発電用原子炉運転時の冷却水の温度及び圧力を模擬した条件でパルス照射を行うための高温高圧カプセルの開発を 1999 年より始めた。1999 年度は PWR の温度・圧力を模擬する PWR カプセルの基本設計及び試作カプセルの製作・試運転を行い、全長 1.2m の直径約 200mm の限られた寸法制限内で、水温 320°C、16MPa の PWR の運転条件が支障無く実現出来ることを確認した。2000 年度は、試験部の温度・圧力を BWR の運転条件である 280°C、7MPa とし、試験部の容量を増加した BWR カプセルの基本設計を実施した。BWR カプセルの基本設計を進め、試験部及び圧力逃がし容器の静的弾塑性設計による強度評価、昇温・昇圧に必要なヒータ容量の評価等を実施し、カプセルの成立性を確認した。

1999 年に実施した同年製作の試作カプセルによるオフセット・カプセル装填管からの垂直実験孔への装荷試験において NSRR 実験における引き抜き荷重制限値 1.5kN を超えてしまった。そこ

で、2001年は、同試作カプセル下部スカート部をFig.2.10-1に示すように削り落とし、垂直実験孔とオフセット装填管の繋ぎ目部分における装荷・引き抜き時抵抗の軽減化策を図った。この改良形状の試作カプセルを用いて、オフセット装填管からのカプセル装荷・引き抜き試験を行った。その結果、今回の中止軽減策の形状で最大約1.3kNと対策を講じる前に比べて抵抗が減少し、NSRR実験の引き抜き荷重の制限値内に収まることがわかった。

また、高温高圧カプセル用の計装プラグの開発に着手した。今年度の開発においては、シールド部分にセラミックを、信号線にリード線を用いた設計で試作品を製作した。この試作品を高温高圧カプセルにおける計装プラグの設計温度である250°Cで耐圧試験、Heリーク試験、絶縁導通試験等を実施した。その結果、信号線に使用しているリード線は、設計温度250°Cでは、被覆材が炭化してしまい、絶縁が落ちてしまうことがわかった。そこで、来年度よりリード線に代わり耐熱に優れているMIケーブル(Mineral Insulated Cable:芯線を絶縁物質(酸化マグネシウム等のパウダー)で保護し金属管に納めたもの)による計装プラグ等の開発を行う予定である。

また、原子炉設置許可及び核燃料物質使用許可の変更のための準備を開始した。

(吉永 真希夫)

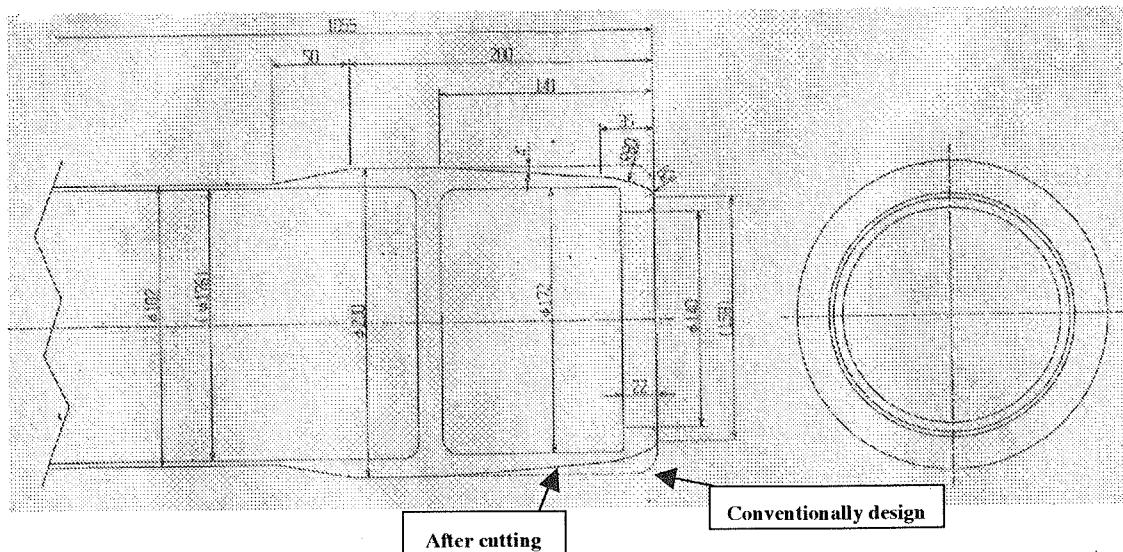


Fig. 2.10-1 Schematic of cutting section in prototype high temperature/ high pressure experiment capsule

2. 10. 2 カプセル設計線図

NSRR 実験カプセルは燃料が破損した際に発生しうる破壊力に耐え、燃料破損が生じた際にも放射性物質の密封機能が確保されるように設計・製作している。この際、燃料が破損した際に発生する破壊力としては、Fig.2.10-2 に示す衝撃圧力とカプセル水塊の移動・衝突による水撃力を考慮している。また、設計にはこれまでに行った酸化ウラン燃料及びプルトニウムーウラン混合酸化物(MOX)燃料を用いた実験で観察された破壊力を包絡する線図(Fig. 2.10-3 及び Fig.2.10-4)を用いている。

衝撃圧力は、燃料が破損した直後において生じる、持続時間が短くピーク値の高いパルス状の圧力波であり、燃料被覆管の破裂により燃料内圧が解放されカプセル水中を伝搬したもの、あるいは、微粒子化した燃料が冷却水中に放出され、水が急速に加熱され膨脹することにより生じる圧力波であると考えられている。また、水撃力は、微粒子化した燃料が冷却水中に放出された時に発生する蒸気によって水塊が持ち上げられ発生するため、後者は前者にやや遅れてカプセルに作用する。(Fig.2.10-5)

NSRR では軽水炉での利用が開始される MOX 燃料のパルス照射実験を行うため MOX 燃料のプルトニウム富化度制限を変更する。また、高温高圧条件での照射済燃料の実験を新たに開始する。これらの変更が上記カプセル設計線図に及ぼす影響を検討した。

(1) プルトニウム富化度が燃料物性と燃料破損時の破壊力に及ぼす影響

NSRR 実験で使用する MOX 燃料中の PuO_2 の重量割合(富化度)の制限値を、既に許可を受けている 5%(照射済 MOX 燃料)及び 10%(未照射 MOX 燃料)から軽水炉で利用される MOX 燃料と同等の 12.8%に変更する。この変更に伴う影響については、以下の様に考えられる。

プルトニウムーウラン混合酸化物燃料は、 UO_2 粉に混合された PuO_2 粉のプルトニウム原子がウラン原子と置き換わる置換型固溶体を形成し、 UO_2 の結晶構造と同じ萤石(CaF_2)型構造(面心立方晶)となるため、その物性は、 UO_2 のそれと基本的に類似したものとなる。また、高燃焼度になつても UO_2 燃料と MOX 燃料の物性の差は基本的に小さい。これらについては原子力安全委員会専門部会報告「発電用軽水炉施設に用いられる混合酸化物燃料について」において、プルトニウム富化度約 13%までの MOX 燃料の物性(融点、比熱、熱伝導率等)は熱伝導率等が若干低下するものの酸化ウラン燃料と大きな差が無いことが確認されている⁽¹⁸⁾。また、FP ガス放出などの照射挙動も酸化ウラン燃料と大きな差は無い。

一方、燃料破損時の破壊力の発生には、被覆管の強度、燃料の微粒子化の程度、燃料微粒子から水への熱伝達が影響するものと考えられている⁽¹⁹⁾。この内、被覆管は共通であり、照射挙動にも殆ど差はないため MOX 燃料と酸化ウラン燃料に違いを生じない。また、燃料物性や照射挙動に大きな違いはないため燃料の微粒子化の程度には差は生じないものと考えられる。他方、同程度の微粒子化が生じた場合、燃料の熱伝導率が大きいほど単位時間内に水に伝わる熱エネルギーが大きくなるため発生する破壊力は大きくなる傾向があるが、MOX 燃料は富化度が大きくなるほど熱

伝導率は低下するため、プルトニウム富化度 12.8%までの MOX 燃料の破壊力発生挙動は、従来の酸化ウラン燃料や低富化度の MOX 燃料と比較して大きな違いは無いと考えられる。また、これまでに行つた富化度 10%及び 5%までの NSRR 実験においても酸化ウラン燃料実験と類似の結果が得られている^(20,21)。このように、プルトニウムーウラン混合酸化物燃料と酸化ウラン燃料との物性値の変化や照射挙動の違いは大きくない。従つて、変更後においても従来から用いていたプルトニウムーウラン混合酸化物燃料用のカプセル設計用線図を適用できると考えられる。

(中村 仁一)

(2) 高温高圧の冷却条件が燃料破損時の破壊力に及ぼす影響

現在 NSRR カプセルの設計に用いられている設計線図は、室温大気圧条件での試験結果に基づいて定められている。このため、現在開発中の高圧水カプセルについては、想定される高温・高圧条件が破壊力に及ぼす高温高圧の影響の大きさについて検討評価した⁽²²⁾。

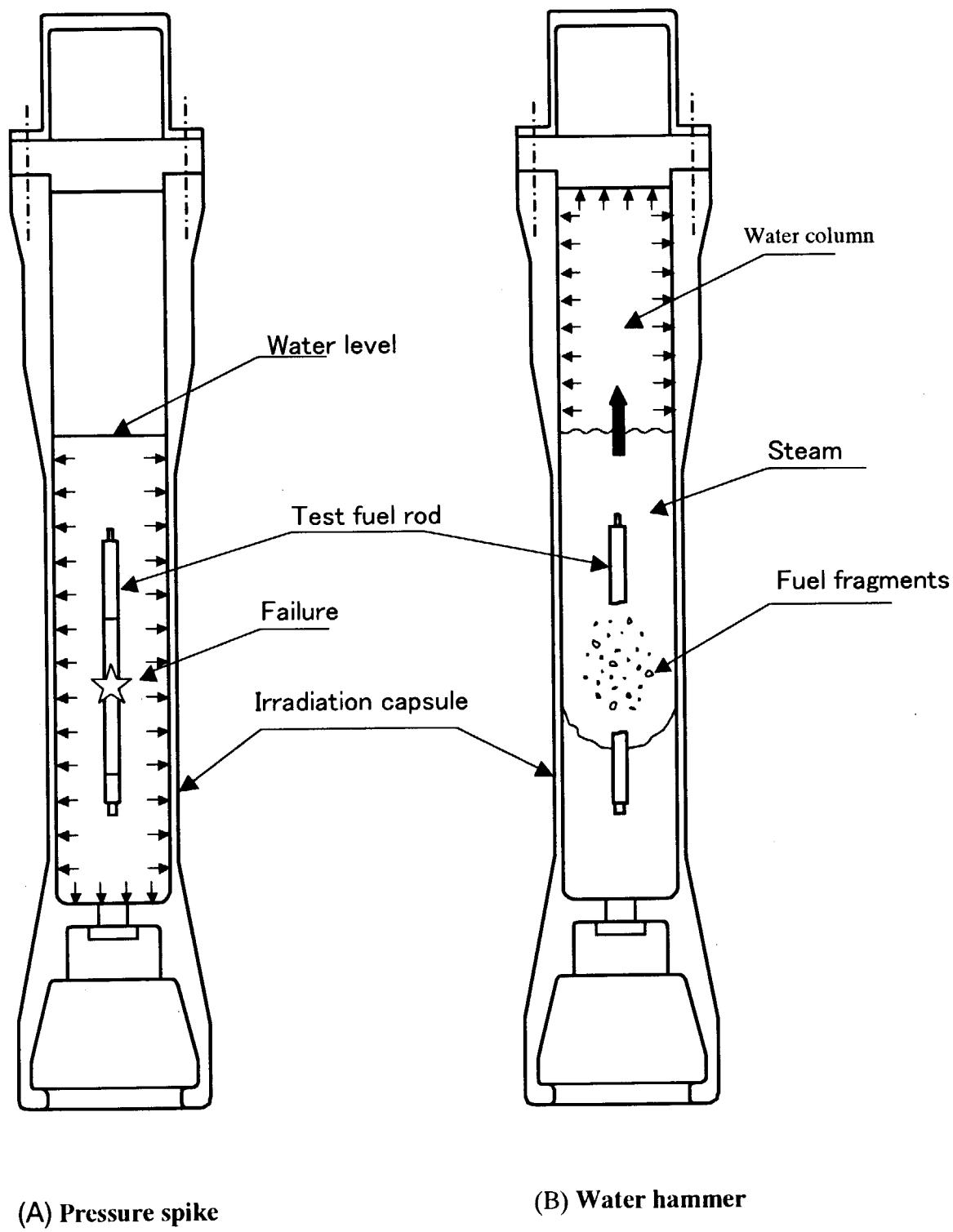
NSRR 実験で観察される破壊力の内、衝撃圧力は燃料被覆管の破裂により燃料内圧が解放されカプセル水中を伝搬したもの、あるいは、微粒子化した燃料が冷却水中に放出され、水が急速に加熱され膨脹することにより生じる圧力波であると考えられている。このため、被覆管の温度が高い高温高圧条件では、室温条件に比べて被覆管強度が低いため被覆管の破裂時圧力は低くなり、発生する衝撃圧力は低くなると推定される。

水撃力は、微粒子化した燃料が冷却水中に放出された時に発生する蒸気によって水塊が持ち上げられ、カプセル上部に衝突する際の圧力をさす。カプセルの線図は、この水塊の移動の最大速度から求められる運動エネルギーを試験燃料から放出される熱エネルギーで除した機械的エネルギー転換率の形で表されている。そこで水塊の最大速度に及ぼす高温高圧の影響を、実験体系および現象をモデル化して評価した。このモデルでは、実験カプセルを単純化した円筒形の体系において、水塊は蒸気の圧力によって駆動され上昇し、その移動速度は蒸気の体積増加速度に比例している。ここで、蒸気の発生量は、燃料発熱量等を適切に仮定した上で、水と蒸気の物性値表(蒸気表)を参照して算出した。

評価結果の概略を以下に示す。高温高圧条件では、室温・大気圧条件に比べ、水の沸点までの昇温に要する熱量(顕熱)および水の蒸発に要する熱量(潜熱)が小さいこと、および蒸気の熱伝導度が高く燃料から水への伝熱率が高まるところから、発生する蒸気の質量は 5 倍程度に増大する。しかし、高圧下では蒸気の密度が大きいため、発生した蒸気の体積は同質量の蒸気の場合、約 1/60 倍に抑えられる。これらを総合すると、高温高圧条件での水塊最大速度は、結果的に室温・大気圧条件の約 10%程度になると評価結果を得た。

以上の検討から、NSRR 実験において想定される衝撃圧力および水撃力の2種類の破壊力への高温高圧の影響は、むしろこれらを和らげる方向にあることが示された。したがつて、室温・大気圧条件での実験結果をもとに作成されている従来のカプセル線図を、高圧水カプセルの設計に用いることは保守的であると結論できる。

(中村 武彦)



(A) Pressure spike

(B) Water hammer

Fig. 2.10-2 Schematic drawings of pressure spike and water hammer generated in consequence of the fuel failure.

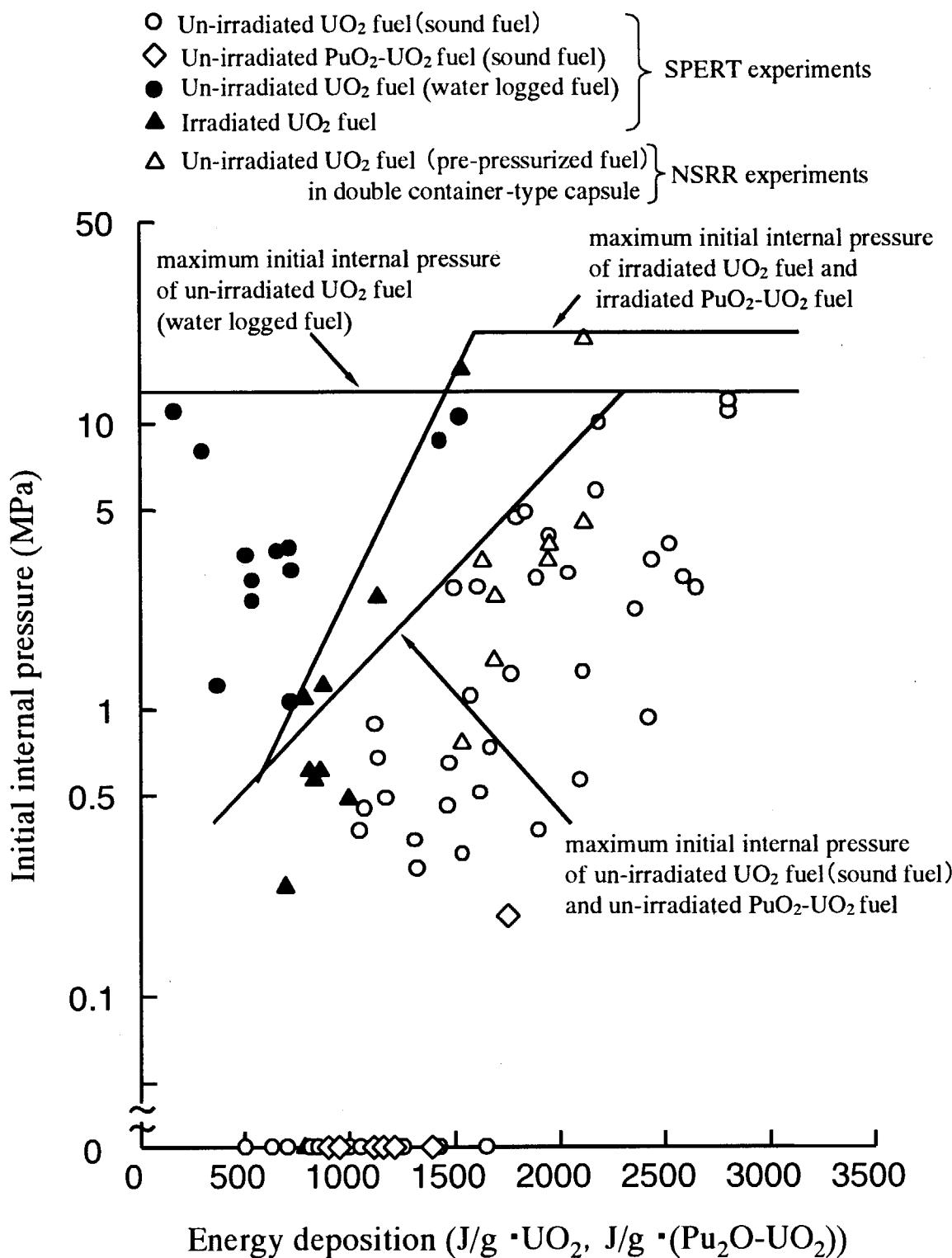


Fig.2.10-3 Relationship between initial internal pressure and energy deposition

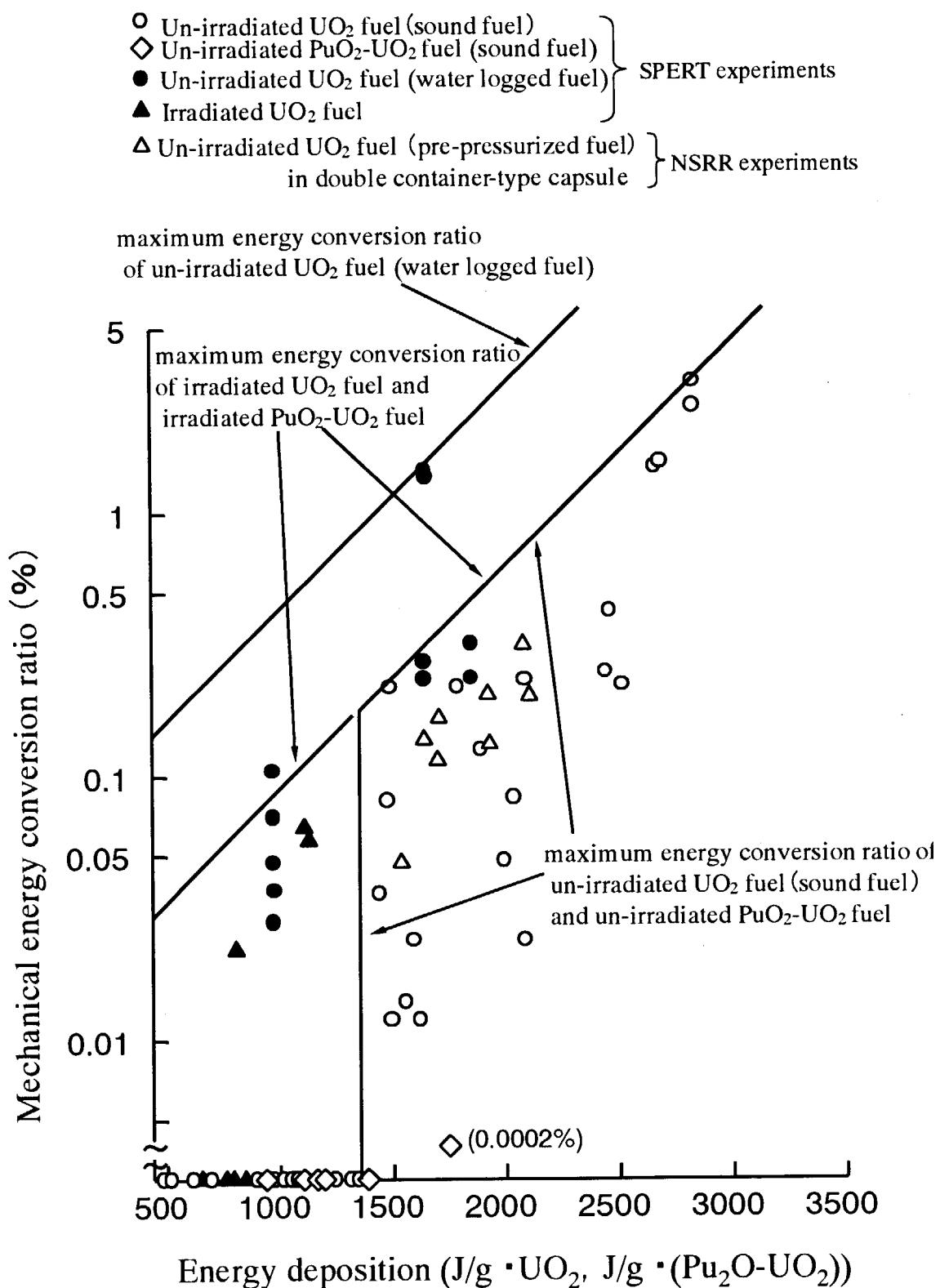


Fig.2.10-4 Relationship between mechanical conversion ratio and energy deposition

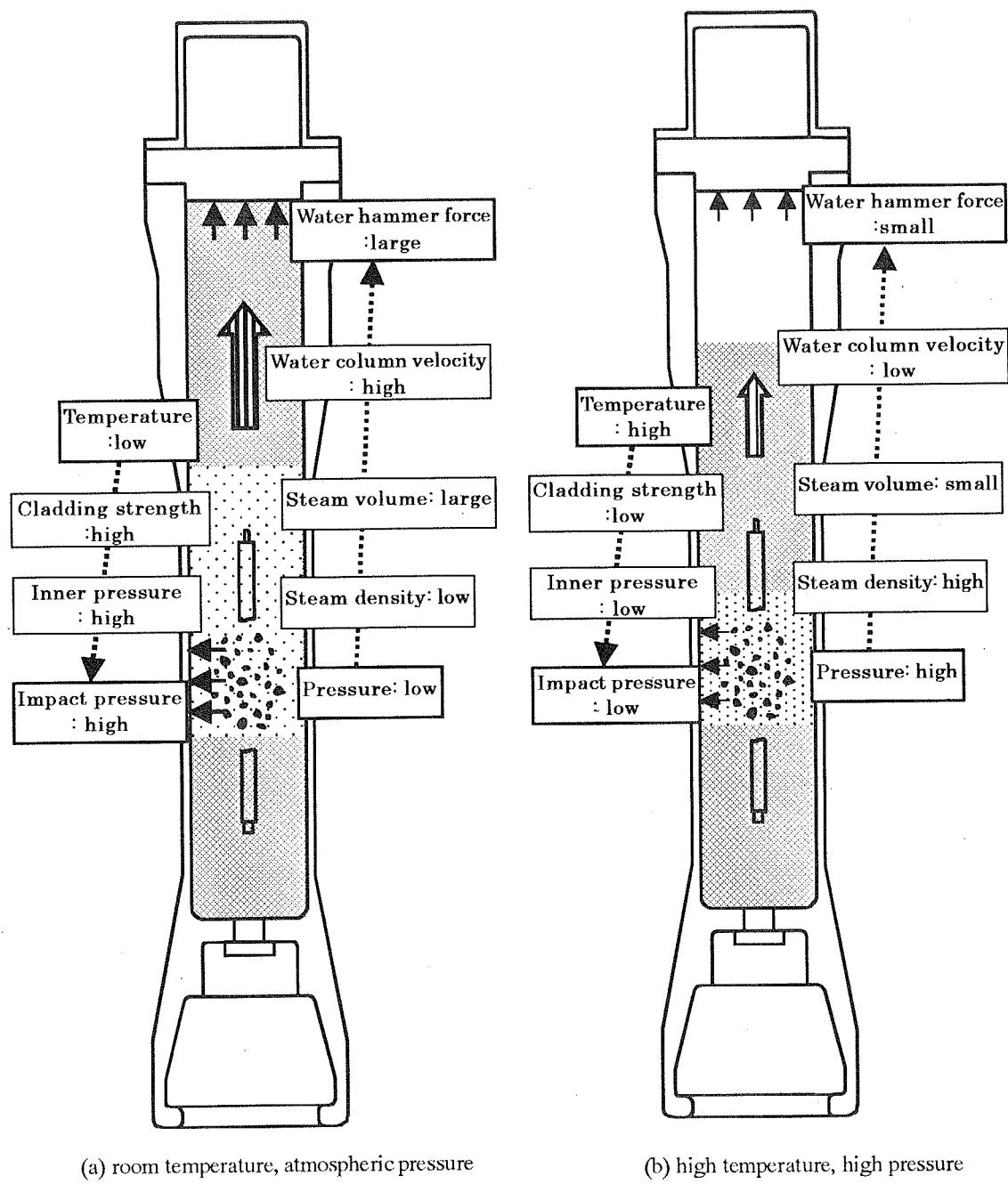


Fig.2.10-5 Quantitative prediction of destructive power at fuel failure

2.10.3 耐爆試験

カプセルを設計する場合に、弾性設計ではカプセルが厚肉になり過ぎ、試験燃料に充分な発熱量を与えないため、弾塑性設計によりカプセルを可能な限り薄肉化することが望ましい。薄肉のカプセルの開発に際しては、冷却材中に発生する衝撃的な荷重に対するカプセルの弾塑性変形挙動を把握し、設計に反映させることが必要となる。また、弾塑性設計を行う場合には、耐爆試験によりカプセルの強度を確認することが炉設置で定められている。

高温高圧カプセルは、形状が大きく異なるため圧力伝播挙動が従来の大気圧水カプセルと異なること、及びカプセルが高温になりステンレス鋼材の強度が低下することから、耐爆試験による検証が必要となる。また、大気圧水カプセルにおいても、中性子経済を損なわずに高発熱量実験や浸水燃料実験を行うためには弾塑性設計が必要となる。このため、2001年は、高温模擬コード検証のためのデータを取得しカプセルの弾塑性設計を行うための予備検討として、高温高圧カプセル及び大気圧水カプセルに対する圧力波伝播試験による圧力源校正、高温高圧カプセル及び大気圧水カプセルを用いた計5回の衝撃変形試験試験を実施した。

圧力波伝播試験では、カプセル内の流体中の圧力波伝播挙動を把握するため、塑性変形が起こらない厚肉の剛性カプセルを用いて耐爆試験を行い、高温高圧カプセルに対し圧力源におけるピーク圧力 200, 300, 400 kg/cm²、大気圧水カプセルに対しピーク圧力 130, 400 kg/cm²となるよう火薬量等の圧力源校正を行った。

衝撃変形試験では、高温高圧カプセル薄肉モデル(Fig. 2.10-6)及び大気圧水カプセル薄肉モデル(Fig.2.10-7)を用いて弾塑性変形挙動等を調べた。高温高圧カプセルの衝撃変形試験では、室温において 573K のステンレス鋼と同程度の機械的特性を示す Monel 400 材を用いて高温高圧カプセル薄肉モデルを作成し、室温で3回の衝撃変形試験を行い、カプセル内各部位の圧力履歴・歪履歴・残留歪による変形プロファイルを求めた。Fig.2.10-8 に、高温高圧カプセル薄肉モデルの衝撃変形試験時(圧力源ピーク圧力 200, 400 kg/cm²)の変形プロファイルの例を示す。また、大気圧水カプセルの衝撃変形試験では、実機同様の SUS304 で製作した大気圧水カプセル薄肉モデルを用いて、室温で2回の衝撃変形試験を行い、カプセル内各部位の圧力履歴・歪履歴・残留歪による変形プロファイルを求めた。これらの結果について、解析コード Autodyne により妥当性を確認した。

2002年は、高温高圧カプセル形状での解析精度の向上をはかるため、Monel400 材の引張試験により応力歪線図－歪速度依存性を求め、コードの検証およびカプセル構造の検討を行う。また、今回の耐爆試験の結果を踏まえて、Monel400 材の高温高圧カプセルでの耐爆試験ならびに大気圧水カプセルの外部容器を含めた実機同様の形状・材質のカプセルを用いた耐爆試験を行い、有効破壊エネルギーと変形量の相関を求める試験および1回の爆発で2%を越える塑性変形を与える試験等を実施する。

(武田 透)

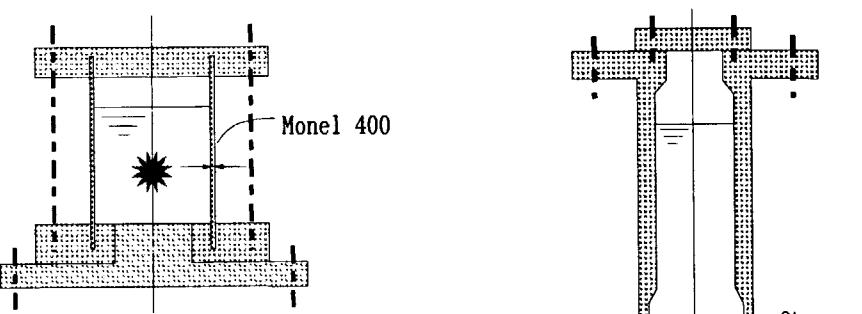


Fig.2.10-6 HTHP capsule thin wall model

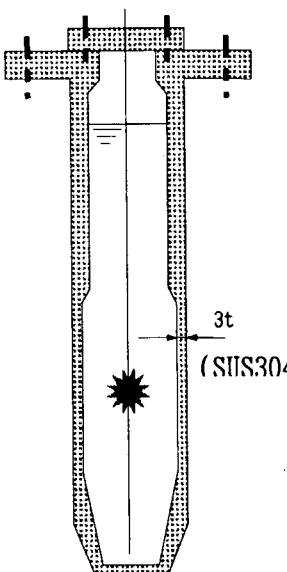


Fig.2.10-7 Test capsule thin wall model

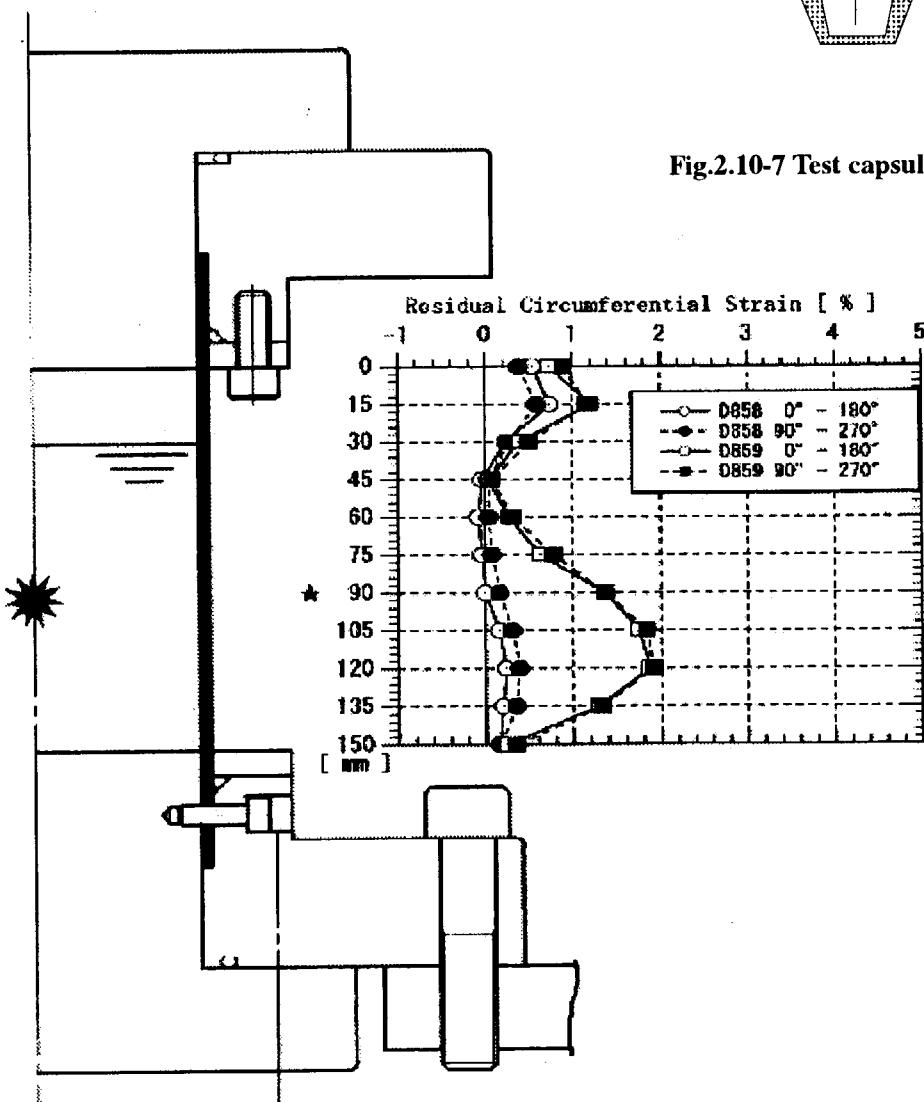


Fig.2.10-8 Deformation profile HTHP capsule thin wall model

(Test No.D858:200kg/cm², Test No.D859:400kg/cm²)

2.10.4 NSRR 施設の遮蔽設計

NSRR では高燃焼度ウラン燃料及びプルトニウム－ウラン混合酸化物燃料(MOX 燃料)を対象として反応度事故を模擬したパルス照射実験を 2004 年より実施する計画である。本計画では MOX 燃料中の PuO_2 重量割合(プルトニウム富化度)の制限値を、未照射燃料の場合は既に許可を受けている 10%から 12.8%に、照射済燃料の場合は既に許可を受けている 5%から 12.8%に、それぞれ変更する。したがって、今回の変更は従来 NSRR で取り扱っていた燃料より中性子線源強度が高い照射済 MOX 燃料を取り扱うため、NSRR 原子炉施設の一部である セミホットセル及び・ケーブ等の設備に対しポリエチレン又はアクリル材の中性子遮蔽を施す改造を実施する。2001 年は本改造に関し、基本設計及び遮蔽計算を行った。これにより、中性子に対する遮蔽厚さは約 10cm であるとの結果を得た。

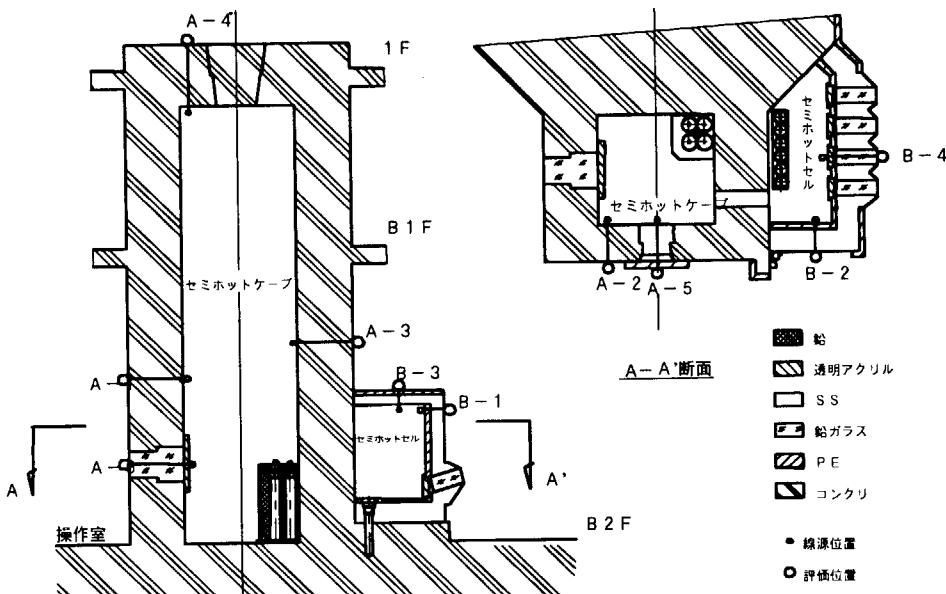


Fig. 2.10-9 Schematic drawing of Semi-hot-cave and Semi-hot-cell

NSRR 原子

炉施設の一部である セミホットセル及び・ケーブ等の設備に対しポリエチレン又はアクリル材の中性子遮蔽を施す改造を実施する。2001 年は本改造に関し、基本設計及び遮蔽計算を行った。これにより、中性子に対する遮蔽厚さは約 10cm であるとの結果を得た。

セミホットセル及び・ケーブの概略を Fig. 2.10-9 に示す。燃焼の進んだ MOX 燃料の場合、プルトニウム富化度、重量及び燃焼度が同一でもプルトニウム精製から使用までの期間及び冷却期間の長短によって燃料内の放射性物質の組成が異なるため、燃料の中性子線源強度は一義的には決まらない。したがって、燃料の重量及び燃焼度等に制限値を設けることは合理的ではない。そこで取り扱う燃料は、放射線業務従事者を外部被爆から防護するため、週 40 時間以内の立入りで $6 \mu \text{Sv/h}$ 以下(取扱い設備:区分 I)となる線量を制限値とする。遮蔽設計にあたっては、この制限値を下回る範囲で遮蔽材とその厚き並びに、燃料の重量、燃焼度及び冷却期間を決定する。この設計でプルトニウム富化度は「改良型沸騰水型原子炉における混合酸化物燃料の全炉心装荷について(平成 11 年 6 月 28 日原子力安全委員会了承)」及び「軽水炉 MOX 燃料の照射後試験施設に関する検討 [平成 12 年 3 月](財団法人 原子力安全研究協会)」を参考とし、12.8%とした。プルトニウムの重量はこれまでに NSRR 実験で用いた照射済 ATR/MOX 燃料の重量と同じ 130.77g とした。本施設改造後に取り扱う燃料は、より形状の小さいものであることから、取り扱う燃料重量 130.77g は最大と予想される。燃焼度は

NSRR 実験に用いる予定の燃料棒の最高燃焼度(100GWd/t)よりも 10%高い 110GWd/tとした。冷却期間は実機炉あるいはハルデン炉での照射終了時から海外及び国内燃料輸送をへて原研・東海燃料試験施設への搬入、その後の試験燃料棒としての組立・加工及び燃料検査を行い NSRR 施設への搬入までを考慮した最短の日数である 90 日とした。ここで、プルトニウム富化度、燃焼度及び冷却期間等がこれら値を超える場合は、試験燃料重量(プルトニウム量)を変更し、区分 I の基準値を下回る範囲内で試験を行うこととする。

試験燃料の放射線源強度計算に用いた値を以下にまとめる。計算には ORIGEN-2 コードを用いた。また、線量率計算では、中性子線及びガンマ線に対する遮蔽計算は一次元体系とし、線源部分はペレット 8 個分の体積を占めるが、ペレット 1 個分の体積に等しい球線源(半径: 0.72099 cm)とした。計算コードは、ANISN-JR コードを、核データライブラリは DLC23/CASK を用いた。なお、中性子線線量率については ICRP74 の線量変換係数を用いた。計算の結果、線源強度は、中性子線源 7.026×10^6 n/s, 放射能 3.685×10^{13} Bq となり、区分 I に該当する取扱い設備において中性子及びガンマ線の線量率が最大となる箇所はセミホット・ケーブ遮蔽扉の前面で $4.514 \mu\text{Sv/h}$ となり、基準値の $6 \mu\text{Sv/h}$ を十分に下回る値となった。

(笛島 栄夫)

放射線源強度計算に用いた値

(a) 試験燃料形状

外形	:	12.40 mm
長さ	:	104.0 mm (ペレット8個分)

(b) 試験燃料重量

:

130.77 g (密度: 0.95 T.D)

(c) 燃焼初期の燃料仕様

U-235 濃縮度 (w/o)	:	0.2
Pu 富化度 (w/o)	:	12.8
Pu-fissile 富化度 (w/o)	:	8.18
Pu 同位体組成 (w/o)		
Pu-238	:	2.1
Pu-239	:	54.5
Pu-240	:	25.0
Pu-241	:	9.4
Pu-242	:	6.4
Am-241	:	2.6

(d) 照射履歴

照射日数	:	3420.35 日
炉出力	:	3.033kW (200 W/cm)
最大燃焼度	:	110 GWd/t
冷却日数	:	90 日

2.10.5 高燃焼度 MOX 燃料用輸送容器(NR-10F)の設計

ALPS 計画(高度化軽水炉燃料試験計画)では高燃焼度 MOX 燃料の海外からの輸送を計画しており、この輸送には海外輸送の実績をもつ NR-10F 型輸送容器(Fig.2.10-10)を用いる予定である。しかし、この輸送容器は元来 UO₂ 燃料用であり、中性子線量のより高い MOX 燃料を扱うには遮蔽性能が不足している。そこで、中性子遮蔽性能の高いポリエチレン製の遮蔽材を、燃料を収納・保持する「バスケット」と呼ぶ部分に設けるよう改良を施すことにした(Fig.2.10-11)。現在、その詳細な設計を進めている(2002 年 3 月末完了予定)。

収納物である燃料棒とバスケットの設計仕様の概要を以下に示す:

(1) 収納物仕様 :

UO₂ および MOX 燃料、燃焼度 110 GWd/tHM 以下、初期 U 濃縮度 10% 以下、

初期 Pu-fissile 割合 8.2% 以下、燃料有効長 約 565 mm 以下

(2) バスケット仕様 :

材質 SUS-304(遮蔽材は超高分子量ポリエチレン)、収納燃料棒 8 本、重量 500 kg 未満
輸送物および輸送容器の設計変更に当たり国の安全審査を受ける義務があるため、新設計に対する安全解析を詳細設計と並行して実施している。安全解析は以下の 5 分類にわたり、通常の使用条件および落下・火災などを想定した過酷な条件において法規上の基準を満たすことを確認する。

(1) 構造解析 :

内圧と衝撃による一次応力、および熱応力を考慮し、容器各部の最大応力等を評価。

(2) 熱解析 :

燃料発熱、容器内部の熱伝達、外面からの放熱を扱い、容器各部の温度を評価。

(3) 密封解析 : 気体の漏れを保守的に想定し、容器からの放射能漏洩率を核種ごとに評価。

(4) 遮蔽解析 : 容器表面等における中性子および γ 線の線量当量率を評価。

(5) 臨界解析 : 容器の水没条件における中性子実効増倍率を評価。

また、遮蔽材として用いるポリエチレンは、遮蔽および構造解析に必要な材料特性データ(特に高温における値)に乏しいため、水素含有量の時間変化、弾性係数、熱膨張率などの測定試験を行っている。

上記の詳細設計、安全解析および材料特性試験は、すべて 2002 年 3 月末に完了を予定しており、その後、2002 年度には、国による安全審査とバスケットの製作を計画している。

(草ヶ谷 和幸)

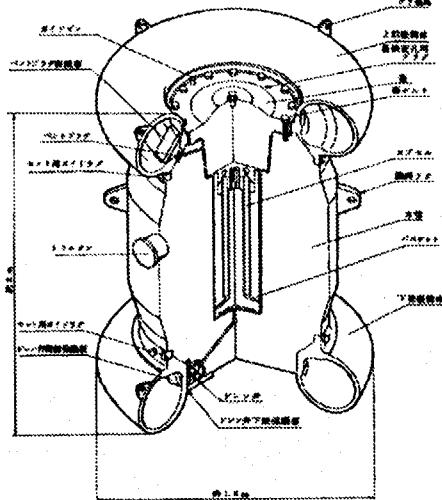
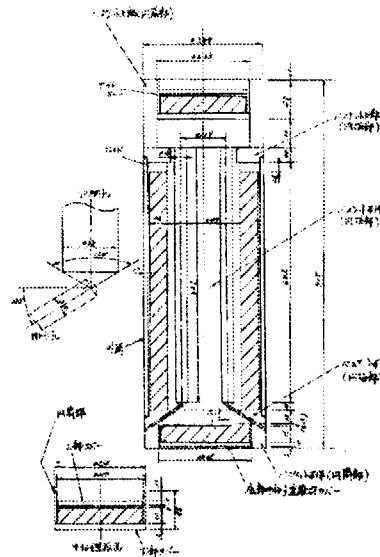


Fig.2.10-10 NR-10F type shipping container.

Fig.2.10-11 Rough design of new-type basket.
(hatched region : neutron shielding material)

2. 11 共同研究及び国際協力

(1) 国内における研究協力

NSRR 実験を中心とした RIA 時燃料挙動研究を進めるにあたっては、試験対象とする動力炉で使用された燃料に加えて、その製作仕様や照射履歴など様々なデータの入手が不可欠である。さらに、産業界が進める軽水炉燃料の設計改良等による高燃焼度化やプルサーマルの本格化に対応して、それら燃料の安全審査において国が必要となる事故時破損しきい値等の判断基準データを遅滞なく準備する必要がある。このためには、産業界との緊密な連携をとりつつ、燃料ペレットや被覆管の設計改良、通常照射時の燃料挙動の特徴や課題に関する最新の知見を踏まえて事故時挙動の研究を進める必要がある。このようなことから、RIA 時燃料挙動研究分野では、NSRR における BWR 燃料実験については東京電力㈱と共同研究契約を結び、東芝㈱及び原子燃料工業㈱から技術者の派遣を受け高燃焼度燃料の NSRR 実験の評価等に必要なデータの開示や、照射後試験の分担実施などを行った。PWR 燃料実験については、三菱重工業㈱及び原子燃料工業㈱と共同研究を行い、様々なデータの開示や技術者の派遣を受けている。また、MOX 燃料の事故時挙動に関するデータベースを拡充するため、ATR ふげんで照射された MOX 燃料の RIA 試験を行うため核燃料サイクル機構(JNC)との共同研究を新たに締結し、試験に供する燃料の選定等の試験準備を進めた。

(2) 国際協力

RIA 時燃料挙動分野では、米国原子力規制委員会(USNRC)及びフランス原子力安全・核物質防護研究所(IPSN)の 2 機関を中心に国際協力を進めている。USNRC は規制情報の収集や規制の考え方についてリーダーシップを維持しており、一方、IPSN は PWR 燃料を対象とした Cabri 実験の実施など、RIA 時燃料挙動研究分野において大きな研究能力を有する原研以外の唯一の機関である。この 2 機関とは、情報交換並びに研究者の相互訪問などを通じて緊密な協力を進めている。なお、USNRC との協定は平成 13 年末で期限切れとなつたため、新たな協定を結ぶべく協議を進めている。一方、IPSN が OECD プロジェクトとして提案している Cabri 水ループ計画については、あくまで資金供与を求める IPSN と、技術情報の供与をもってこれに代えるという原研の間に大きな意見の違いがあり、原研の参加に関する交渉は不調に終始している。しかし、Cabri 水ループ計画の内容、実施時期から考えて、不参加が極めて大きな不利益を原研にもたらすとは考えられない。

欧州照射燃料等を用いた大幅高燃焼度ウラン燃料及び MOX 燃料の事故時挙動試験(ALPS 計画)を実施するため、PWR ウラン及び MOX 燃料の照射計画に参加した三菱重工業㈱と新たな共同研究契約を締結した。本共同研究に基づき、スペイン・バンデロス炉で照射された高燃焼度ウラン燃料及びスイス・ベツナウ炉で照射された高燃焼度 MOX 燃料これらの照射データ等を入手する。本件に関しては、三菱重工業㈱を介して協力関係となるスペイン電力 ENDESA、スペイン燃料メーカーENUSA、スイス電力 NOK、ベルギー燃料メーカーベルゴニュークリア(BN)社とも燃料譲渡などに関する協議を進めた。BWR 燃料については、スイス・ライプシュタット炉で照射された高燃焼度ウラン燃料を入手するためにスイス電力 KKL 社及びポールシェラー研究所(PSI)と、ドイツ・グンドレミングン炉で照射された高燃焼度 MOX 燃料を入手するために(国際協力照射計画の幹事会社)と協議を行い、燃料提供に関して基本的合意を得た。ALPS 計画により試験するこれらの燃料は、スウェーデン・スタズビック社に集め、2003 年度末にまとめて日本へ輸送する。同社は被覆管の機械特性試験等に高い技術力を有しており、こうした試験を上記の ALPS 計画用燃料に適用するための協議を行った。また、こうした技術を原研での試験に適用するため、技術者を招聘するなどの研究協力を行った。

(中村 武彦)

参考文献

- (1) B.E.Boyack, et. al, NUREG/CR-6743, LA-UR-00-5079
- (2) T. Nakamura, K. Kusagaya, T. Fuketa and H. Uetsuka, "High Burnup BWR Fuel Behavior under Simulated Reactivity Initiated Accident Conditions," to be published Nucl. Technol. June (2002).
- (3) 中村 武彦、草ヶ谷 和幸、吉永 真希夫、上塙 寛、"高燃焼度(41~61GWd/tU)BWR 燃料の反応度事故時挙動," JAERI-Research 2001-054, (2001).
- (4) T. Fuketa, et. al, "Behavior of High Burnup PWR Fuels with Low-Tin Zircaloy-4 Cladding

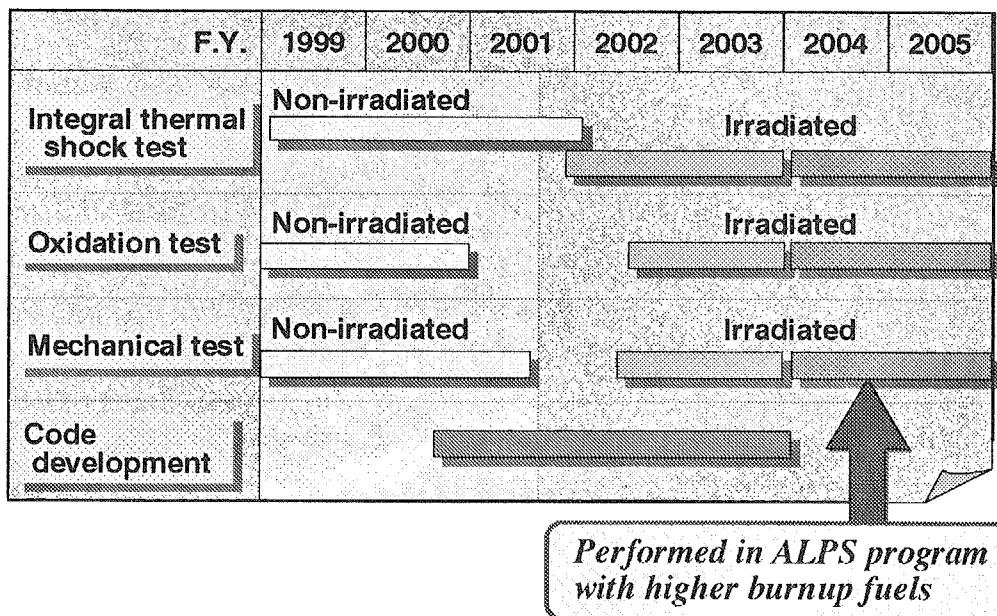
- Under Reactivity-Initiated-Accident Conditions", Nuclear Technology, Vol. 133, No1, pp.50-62, (2001).
- (5) W.Wulff, H.S.Cheng A.N.Mallen, U.S.Rohatgi, NUREG/CR-5816, BNL-NUREG-52312.
 - (6) T. Lefvert, OECD/NEA Nuclear Science Committee, BWR STABILITY BENCHMARK, Final Specifications, NEA/NSC/DOC(94)15, March 1994.
 - (7) T. Nakamura, S. Katanishi, Y. Kashima, S. Yachi, M. Yoshinaga, and Y. Terakado, "High Power Transient Characteristics and Capability of NSRR", J. Nucl. Sci. and Technol., Vol.39, No.3, pp.264～272, March 2002
 - (8) H. Akie, T. Yamashita, N. Nitani, H. Kimura, H. Takano, T. Muromura, A. Yasuda and Y. Matsuno, Workshop Proceedings of Advanced Reactors with Innovative Fuels, p.199-208, Villigen, Switzerland, 21-23 October (1998).
 - (9) K. Kusagaya, T. Nakamura, M. Yoshinaga, H. Akie, T. Yamashita and H. Uetsuka, Workshop Proceedings of Advanced Reactors with Innovative Fuels, Chester, UK, 22-24 October (2001).
 - (10) T.Nakamura et al., Nucl. technol., 129, 141(2000)
 - (11) 中村 武彦、草ヶ谷 和幸、吉永 真希夫、上塚 寛, “高燃焼度(41～61GWd/t)BWR 燃料の反応度事故時挙動”, JAERI-Research 2001-054, (2001)
 - (12) H.Stehle et al., Nucl.Engineering and Design 33(1975)155
 - (13) 北野 剛司、他、「改良リング引張試験における引張方法と試験片形状の最適化」 JAERI-Research 01-011(2001).
 - (14) 北野 剛司、他、「水素吸収被覆管の円周方向機械特性評価」 JAERI-Research 01-041(2001).
 - (15) Croff, A. G., ORNL/TM-7175, July 1980
 - (16) R. A. Lorenz and M. F. Osborne, NUREG/CR-6261, ORNL/TM-12801, July 1995.
 - (17) 科学技術庁原子力安全局原子力安全調査室, "原子力安全委員会安全審査指針集(改訂10版)," 大成出版社(2000).
 - (18) 原子力安全委員会、"原子力安全委員会安全審査指針集"大成出版社(2000).
 - (19) 鶴田隆治"反応度事故条件下における高発熱量負荷時の機械的エネルギーと燃料の微粒子化," JAERI-M 84-235(1985).
 - (20) T. Abe, T. Inabe, et. al. "Failure Behavior of Plutonium Uranium Mixed Oxide Fuel Under Reactivity Initiated Accident Condition," J. Nucl. Mater. 188, (1992).
 - (21) H. Sasajima, et. al., "Behavior of Irradiated ATR/MOX Fuel Under Reactivity Initiated Accident Conditions," J. Nucl. Sci. Technol. 37, 5 (2000).
 - (22) 草ヶ谷 和幸 他、"NSRR 実験燃料の破損時破壊力に及ぼす高温高圧の影響評価", JAERI-Tech に投稿中

3. 冷却材喪失事故時挙動研究

3.1 研究の概要

事故時の燃料安全挙動の研究は、その重要性と緊急性が認識されており、日本、米国、フランスなどにおいて研究が進められている。欧米における研究は、主に高燃焼度燃料を用いLOCA時安全性を確認するための試験に主点をおいているが、原研は、燃焼度延伸が LOCA 条件下での燃料挙動に及ぼす影響を評価することと、規制に必要な基礎データを取得することを目的に、広範囲の試験条件をカバーする体系的な研究計画を進めている。本研究計画では、予備酸化／予備水素添加／研究炉(JRR-3)照射を施した被覆管と発電炉照射済燃料から採取した被覆管を用いて、高燃焼度化が被覆管の酸化速度、膨れ及び破裂特性、急冷時の耐破損特性等に及ぼす影響を解明するための様々な基礎試験を行っている。主な試験項目及び試験スケジュールを Table 3.1-1 に示す。2001 年までに水素吸収管等の非照射材を用いた試験をほぼ終了し、2002 年からは照射材を用いた試験に本格着手する。2005 年からは欧州で入手した 70GWd/t 以上の燃焼度を有する燃料棒に対する試験を高度化軽水炉燃料試験計画(ALPS 計画)において実施する。さらに研究の一環として、LOCA 時燃料挙動解析コード FURBEL の開発を行っている。燃料棒の酸化、膨れ破裂だけでなく、急冷時の破断の可能性を予測するものである。本解析コードにつ

Table 3.1-1 Schedule of research program on high burnup fuel behavior under LOCA conditions



いては、解析コードの開発(第5章)において述べる。

高燃焼度燃料の LOCA 時安全性を確認する上で最も重要な項目は、酸化した被覆管の急冷時耐破損特性である。LOCA 条件下では、被覆管は破裂後に内外面から酸化される。内面酸化は、

局所的な高濃度の水素吸収を伴うため、急冷時の被覆管耐破損特性を評価する際には、酸化だけでなく水素吸収による被覆管脆化を考慮する必要がある。原研は、膨れ・破裂と内外面酸化を含む LOCA 条件を模擬した燃料棒の熱衝撃試験(急冷破断試験)を実施し、被覆管耐破損特性を評価している。被覆管は昇温と酸化膜の成長に伴い軸方向に伸長し、冷却時には収縮するが、集合体体系では冷却時の被覆管収縮はグリッド位置での固着や摩擦により拘束を受け、燃料棒間あるいは燃料棒と制御棒案内管の温度差(収縮の差)により、軸方向の引張荷重が被覆管に作用する可能性がある。これを考慮し、2000 年には、完全拘束条件下と非拘束条件下での試験を、400 ~600wtppm の水素を添加したジルカロイ-4 被覆管に対して実施し、完全拘束条件下では、水素を吸収により急冷時の破断限界が顕著に低下することを明らかにした⁽¹⁾⁽²⁾。しかし、実際の荷重条件は完全拘束条件下と非拘束条件の間にあると考えられる。そこで、2001 年には、関西電力㈱との共同研究として、中間的な拘束荷重条件での試験を実施し、水素濃度と拘束荷重に依存する耐破損特性を評価した。この急冷破断試験の結果に見られるように、被覆管の破断しきい値に及ぼす拘束力の影響は大きい。このため、現実的な拘束条件の範囲を評価することも重要である。LOCA 条件下において、制御棒案内管の温度は、一般に燃料棒に比べ低く、グリッドと燃料棒および制御棒案内管の間の固着を仮定すると、燃料棒と制御棒案内管の間の収縮差が急冷時の拘束力発生の原因となる。燃料棒に働く引張り荷重は、制御棒案内管によって支えられるが、制御棒案内管の数が燃料棒に比べて少なく、拘束時に働く荷重は制御棒案内管で大きい。したがって、燃料棒の破断に先立って、制御棒案内管が圧縮荷重によって破損(挫屈)する可能性があり、この場合、燃料棒に働く最大荷重は制御棒案内管の破損荷重により制限される。そこで、高温で酸化、急冷した制御棒案内管に対し、圧縮試験を行い、測定された挫屈荷重から、燃料棒に働く拘束荷重の上限を推定した(3.2 参照)。

高燃焼度燃料被覆管の急冷時耐破損特性を評価するために、LOCA 条件下での酸化や温度遷移を経験した高燃焼度燃料被覆管の機械特性データの取得が必要である。これまでに照射済 PWR 被覆管を用いて温度遷移による機械特性の変化に関する試験研究⁽³⁾を行ったが、照射材を用いた試験では試験条件や試験数に制限があるため、広い条件について系統的に調べることができない。照射済被覆管を用いた試験から、昇温後の被覆管機械特性の変化は、主にジルカロイのミクロ組織変化と水素化物の析出形態の変化に支配されていることが示されている。そこで、燃焼の進行を水素添加量により模擬し、被覆管タイプ、水素濃度、加熱温度、保持時間、変形温度をパラメータとし、温度遷移後の強度及び延性の変化を調べた(3.3 参照)。

被覆管の脆化は、主に酸化量に依存する。したがって、被覆管の脆化を正しく評価するためには、酸化速度を精度良く評価する必要がある。2000 年までに、従来データが不十分であった 1000°C 以下を含めた広い温度範囲について酸化速度を再評価した⁽³⁾。また、運転中に生じる水側腐食(初期酸化膜)や水素吸収が、被覆管の高温酸化速度に及ぼす影響を分離効果実験により調べた⁽¹⁾⁽²⁾。酸化試験を効率的に進め、高温酸化メカニズムに関する基礎知見を取得するために、酸化による重量変化を連続的に測定できる熱天秤を用いた酸化試験を実施している(3.4 参照)。

(水瀬 文久)

3. 2 急冷破断試験

3.2.1 燃料被覆管の急冷破断試験

原研は、LOCA 条件を総合的に模擬した熱衝撃試験(急冷破断試験)を実施し、急冷時の高燃焼度燃料棒の耐破損特性を評価するための基礎データを取得してきた。急冷破断試験には、長さ約 600mm の被覆管に UO_2 ペレットと同等の熱容量を持つ中空のアルミナペレットを装荷し、約 5MPa のアルゴンガスを封入した模擬燃料棒を用いる。試験装置の模式図を Fig.3.2-1 に示す。本装置は、引張り試験機、赤外線イメージ炉、蒸気発生器及び急冷のための注水装置から構成されている。試験においては、模擬燃料棒を水蒸気中で加熱し、所定時間、高温で酸化した後に、冠水により急冷する(Fig.3.2-2)。なお、模擬燃料棒は、昇温中、約 1050K で破裂するため、被覆管は破裂後内外面から酸化される。高燃焼度燃料棒の LOCA 時耐破損特性は、被覆管の脆化が鍵であると考えられる。そこで、照射した被覆管に対する試験に先立ち、主たる脆化因子である水素吸収(水素濃度 400~600wtppm)により燃焼を模擬した被覆管に対する試験を行った。被覆管を拘束しない条件下で行った試験により、被覆管の破断が酸化量に強く依存すること、破断限界となる酸化量に関しては、水素添加の影響がないことを明らかにした。ところで、前項で述べたように、急冷時に軸方向の引張荷重が被覆管に作用する可能性がある。このことを考慮し、急冷時に被覆管の軸方向の収縮を完全に拘束した試験も実施した。この条件における試験の結果、破断限界となる酸化量条件は急冷時の完全拘束により著しく低下し、水素添加被覆管では更に低下することを明らかにした⁽¹⁾⁽²⁾。

しかし、完全拘束条件はおそらく過度に保守的である。2001 年には、中間的な拘束荷重条件下での急冷破断試験を行った。完全拘束条件下で被覆管が破断する場合、破断時の引張荷重は、800~1800N である。実際の拘束荷重は、非拘束と完全拘束条件の中間であると考えられることから、拘束荷重条件として 390、540、735N の3条件を選択した。試験には、100~1200wtppm の水素を添加した PWR 用低スズ・ジルカロイ-4 被覆管を用いた。また、水側腐食による減肉を模擬し、被覆管の肉厚を 10% 減じた。試験中に測定した被覆管に働く軸方向荷重の変化の例を Fig.3.2-3 に示す。完全拘束条件下では、収縮の拘束により、荷重は最大 2000N 程度まで増大する。中間的拘束条件を達成するために、引張り試験機の荷重一定保持機能を利用し、模擬燃料棒の上端を固定した試験機のクロスヘッドを適切に移動させることにより被覆管の収縮量を調整し、燃料棒に働く荷重が予め決めた値を超えないようにした。

350~700wtppm の水素を含有する被覆管に対する試験の結果を、酸化量(ECR*)と拘束荷重に関する破断マップとして Fig.3.2-4 に示す。急冷時に破断した条件を黒丸(●)で、破断しなかった条件を白丸(○)で示す。破断しきい値は、完全拘束条件下では約 10%と低いが、拘束荷重の低下

* ECR は、酸化反応でジルカロイ中に吸収された酸素が全て化学量論組成の ZrO_2 を生成すると仮定した場合の全被覆肉厚に対する ZrO_2 酸化膜の厚さの割合であり、破裂後に起こる両面酸化及び膨れによる肉厚減少を考慮している。なお、ジルカロイ-水蒸気の反応速度は指針で定められている Baker-Just の式を用いている。

とともに上昇する。調べた中間拘束条件下では、いずれの試料(350~700wtppm)も20%ECR以上で破断している。試験した全ての試料を100~350、350~750及び750~1200wtppmの3つの水素濃度レベルに分け、それぞれについての酸化量(ECR)と拘束荷重に関する破断マップをFig.3.2-5に示す。図から、破断しきい値は、拘束荷重だけでなく水素濃度にも依存することが分かる。全ての水素レベルにおいて、拘束荷重が増大するのに伴い破断しきい値は低下する。また、水素濃度の増大に伴っても、破断しきい値が低下する。100~350wtppmでは、中間拘束荷重条件だけでなく、完全拘束条件でも、15%ECR以下で破断した試料はないが、750~1200wtppmでは、800N以上の広い荷重範囲で破断しきい値は約10%ECRである。

(谷本 政隆)

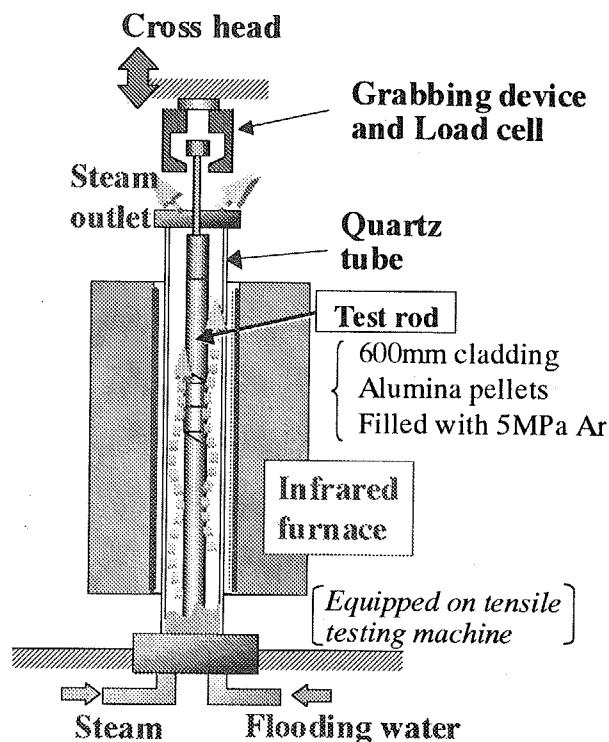


Fig.3.2-1 Schematic drawing of test apparatus for integral thermal shock tests

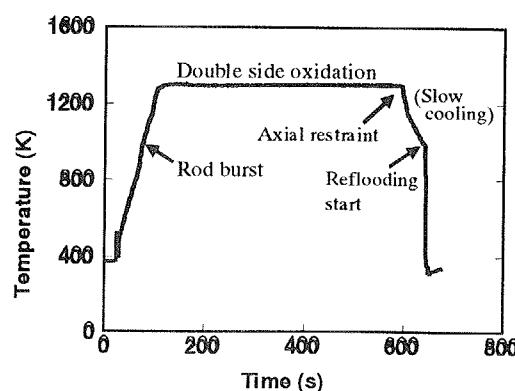


Fig.3.2-2 Example of temperature history

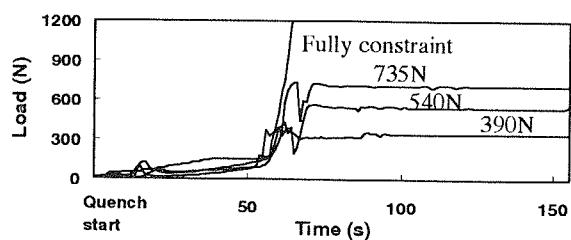


Fig.3.2-3 Tensile load control under restraint conditions

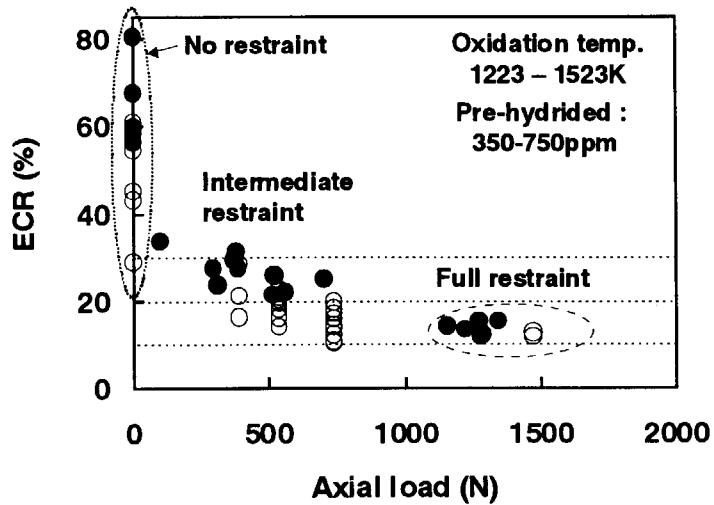


Fig.3.2.4 Failure map relative to oxidation amount and axial load based on the test results under non -, intermediately and fully restrained conditions

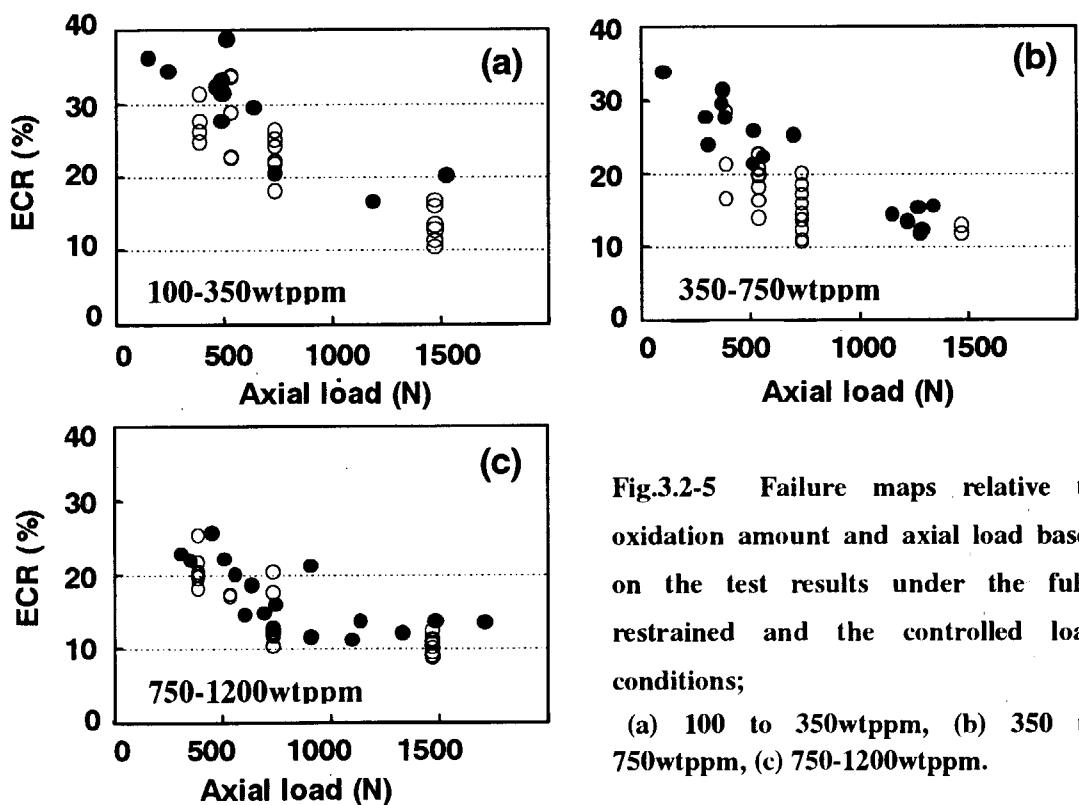


Fig.3.2-5 Failure maps relative to oxidation amount and axial load based on the test results under the fully restrained and the controlled load conditions;
(a) 100 to 350wtppm, (b) 350 to 750wtppm, (c) 750-1200wtppm.

3.2.2 制御棒案内管の急冷破断試験

急冷破断試験の結果に述べたように、被覆管の急冷時破断しきい値に及ぼす拘束荷重の影響は非常に大きい。このために、実条件における拘束荷重範囲の評価が求められており、いくつかの評価結果が報告されている⁽⁴⁻⁶⁾。LOCA 時の温度上昇と酸化膜の成長による軸方向伸長と冷却に伴う収縮は、燃料被覆管だけでなく制御棒案内管においても起こる。燃料棒に比較し、制御棒案内管では温度変化が小さく、両者の伸縮には差がある。グリッド位置での摩擦増加や固着が生じれば、この伸縮の差が、冷却時の燃料棒収縮を拘束し引張方向の荷重が生じる原因となる。他方、制御棒案内管においては、圧縮荷重が生じる。集合体内では、燃料棒／制御棒案内管の比は大きく、集合体内に均一に荷重が生じるとすると、1本あたりの荷重は制御棒案内管で大きい。このため、制御棒案内管が比較的早期に圧縮荷重により破壊(挫屈)する可能性がある。この場合、燃料棒に働く最大拘束(引張)荷重は、制御棒案内管の挫屈荷重に制限される。そこで、LOCA 時の高温酸化と急冷を経験した制御棒案内管に対する圧縮試験を行い、挫屈荷重から燃料棒に働く拘束荷重を評価した。

長さ約 550mm の制御棒案内管(外径 12.2mm、厚さ 0.41mm)を用意し、1000～1200°C で 150～1800s 間等温酸化した後、冠水により急冷した。前項と同様、Baker-Just 式を用いた評価によれば、等温酸化により初期肉厚の 13～24%が酸化したことになる。圧縮試験は室温で行いクロスヘッド速度は 10mm/min であった。圧縮試験により破損した酸化・急冷試料の外観を Fig.3.2-6 に示す。酸化量が大きい場合には、試料は脆化し破碎した。圧縮試験で得られた酸化・急冷試料の荷重変位曲線を、酸化・急冷を経験しない試料のものと比較し、Fig.3.2-7 に示す。酸化・急冷を経験しない試料について測定された最大荷重は、1500 ～2000N であり、最大荷重以降の荷重の低下は試料の曲がりによるものである。高温酸化と急冷によりひずみが生じるために、酸化・急冷試料では酸化・急冷を経験しない試料より低い荷重(約 500N)で曲がりが生じる。本試験で測定された酸化・急冷試料の挫屈強度は、1000～1400N であり、酸化・急冷を経験しない試料より明らかに低い。しかし、燃料に働く引張荷重に関し保守的な評価をするために、本評価では、酸化・急冷を経験しない試料で測定された挫屈強度 2000N を用いる。17×17 タイプの PWR 燃料集合体では燃料棒と制御棒案内管の比は、11：1 である。全ての燃料棒と制御棒案内管がグリッドに固着し、燃料棒温度は全ての燃料棒において均一で制御棒案内管の温度に比べて十分大きいとする。すると、制御棒案内管が 2000N において挫屈する時に燃料棒 1 本に働く荷重は 190N と評価できる。すなわち、本仮定において燃料棒にかかる拘束荷重は 190N を超えないことになる。本評価はいくつかの仮定の下に行ったものであり、燃料棒間の温度差、グリッドへの固着本数、制御棒案内管の脆化の度合い等によっても拘束荷重は変化する。

(永瀬 文久)

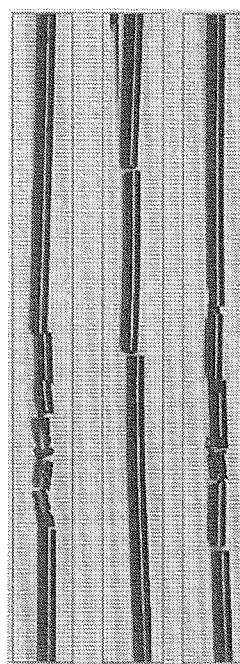


Fig.3.2-6 Post-test appearances of pre-oxidized guide tubes

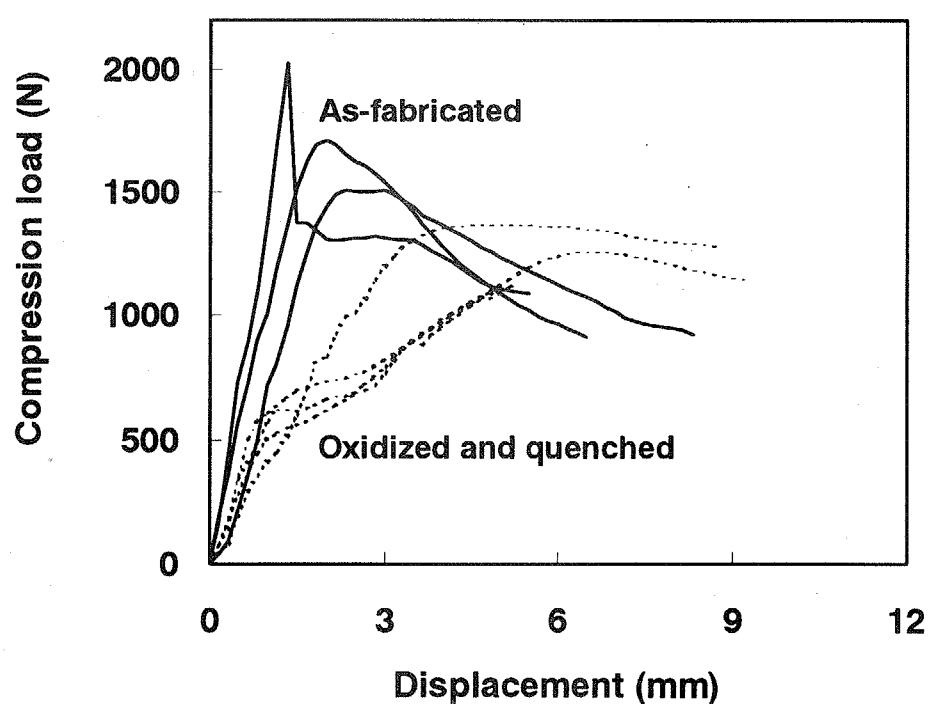


Fig.3.2-7 Load-displacement curves in compression tests for guide tube specimens

3.3 機械特性試験

急冷時耐破損特性の評価や異常過渡後の健全性評価のために、温度遷移による高燃焼度燃料被覆管の機械特性の変化に関するデータの取得が必要である。これまでに照射済 PWR 被覆管を用いた試験⁽³⁾を行ったが、照射材を用いたホットセル試験では試験条件や試験数に制限がある。照射済被覆管を用いた試験から、昇温後の被覆管機械特性の変化は、主にジルカロイのミクロ組織変化と水素化物の析出形態の変化に支配されることが示されていることから、燃焼の進行を水素添加量により模擬し、未照射の BWR 及び PWR 被覆管について、水素濃度、加熱温度、保持時間、変形温度をパラメータとし、温度遷移後の強度及び延性の変化を系統的に調べた。

本試験では、400wtppmまで添加した BWR 被覆管(ライナー付き Zry-2 被覆管)及び 800wtppmまで添加した PWR 被覆管(低スズ・Zry-4 被覆管)から、幅 2mm、長さ 4mm の平行部を有する改良リング試験片を切り出した(2.9 参照)。これらを、Ar 霧囲気において 773～1273K まで昇温し 0 及び 180s 間保持した後、電気炉外にて冷却した。0s 保持とは、目標温度に達した瞬間に冷却を開始することである。引張試験は、室温及び 573K においてクロスヘッド速度 3.3×10^{-3} mm/s で実施した。

温度遷移後の Zry-2 被覆管と Zry-4 被覆管の引張強さと破断伸びを、加熱温度の関数として、それぞれ Fig.3.3-1 と Fig.3.3-2 に示す。これらの図に示す結果は、加熱保持時間 180s、引張試験温度 573K の試験で得られたものである。Zry-2 被覆管の引張強さは、1273K までの加熱によつてもほとんど変化しない。一方、破断伸びは、773K 以上での加熱により、初期値より増大する。破断伸びの増大は 873～973K をピークとし、それ以上の加熱温度では加熱温度とともに低下する。このような加熱による破断伸びの変化は、水素濃度が高い試料ほど小さい。Fig.3.3-1 と Fig.3.3-2 の比較から、加熱後の引張強さと破断伸びの変化は、Zry-4 被覆管で相対的に大きいことが分かる。Zry-4 被覆管の引張強さは、973K での加熱により最大 50%まで低下し、破断伸びは最大約 2 倍にまで増大する。Fig.3.3-3(a)に、973K で 180s 間加熱した Zry-4 被覆管の断面ミクロ組織を示す。注意深く観察すると、ジルカロイのマトリックスが再結晶しており、高温で一旦溶解した水素化物が結晶粒界に再析出しているのが観察できる。したがって、873～1073K における強度の低下と延性の増大は主にジルカロイの再結晶の進行によるものと考えられ、Zry-2 で加熱後の変化が小さいのは Zry-4 応力除去処理材に対して Zry-2 が再結晶処理材であることで説明できる。1173K 以上で見られる若干の強度上昇と伸びの低下は、加熱温度におけるジルカロイの $\alpha + \beta$ 相への変態と、それに伴う水素化物析出形態の顕著な変化によるものであることが、ミクロ組織観察 (Fig.3.3-3(b)) から示唆される。この他、加熱温度における保持時間が短くなると、機械特性の変化は比較的高い温度で起こること、加熱温度に依存する機械特性の変化は室温における試験においても概ね同じ傾向にあることが本試験により明らかになった。

(永井 敦也)

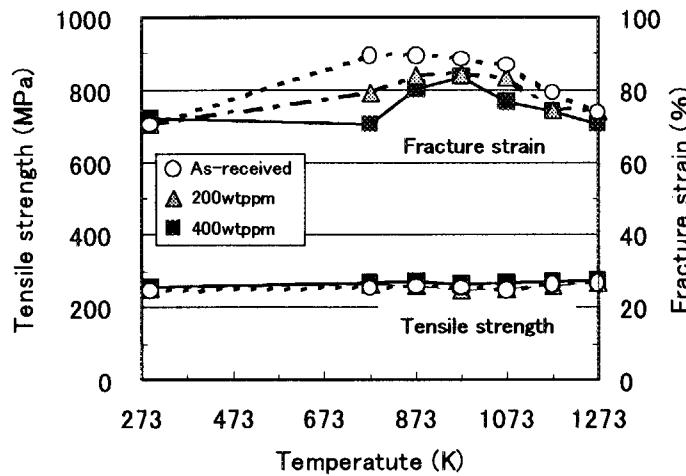


Fig.3.3-1 Mechanical changes of Zircaloy-2 cladding after temperature transient (Heated time : 180s, Tensile test temperature : 573 K)

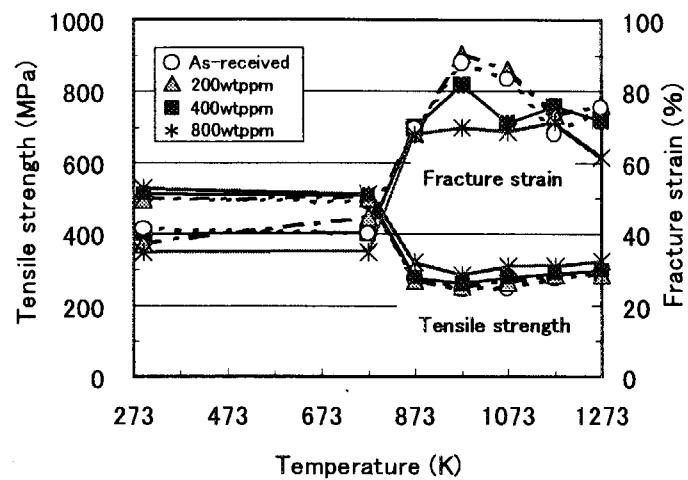


Fig.3.3-2 Mechanical changes of Zircaloy-4 cladding after temperature transient (Heated time : 180s, Tensile test temperature : 573 K)

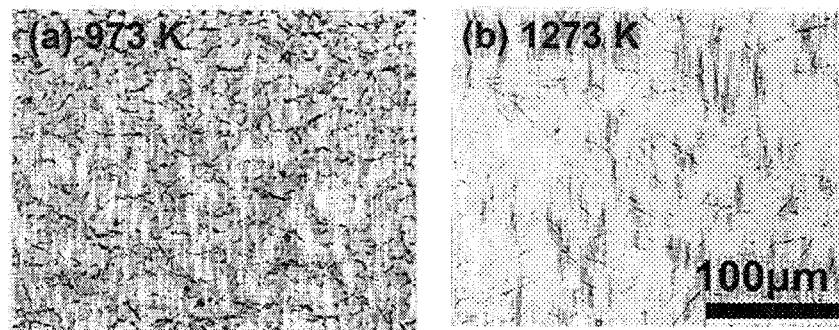


Fig.3.3-3 Microstructure of Zircaloy-4 cladding tube annealed at (a) 973 and (b) 1273 K for 180s.

3. 4 酸化実験

3.4.1 热天秤による酸化実験

热天秤は、酸化による重量変化を連續的に測定でき、試験の効率化と高温酸化メカニズムの解明に有効である。高燃焼度燃料被覆管の酸化挙動解明に活用するための特性試験を進めた。まず、昇温中の酸化の影響を排除する目的で、不活性雰囲気中で予め試料を目標温度まで加熱した後に、水蒸気を導入する酸化試験を行った。酸化試験には 17×17PWR 型被覆管(ジルカロイ-4、 ϕ 9.5mm)から軸方向長さ約 5mm のリング状試料を切り出したものを用いた。酸化温度は、870 ~1270°Cである。酸化の進行が2乗則($\Delta W = K_w \times \Delta t$ 、 ΔW : 単位面積あたりの重量増加、 K_w : 2乗則定数、 Δt : 酸化時間)に従う時間範囲(水蒸気導入後 100~1000s)について、各試験温度における2乗則定数 K_w を求め、その温度依存性をいくつかの従来研究の結果と比較した(Fig.3.4-1)。本研究で得られた2乗則定数は、Baker-Just⁽⁷⁾と Moalem⁽⁸⁾らの実験結果に非常に近く、Cathcart⁽⁹⁾、永瀬⁽³⁾、上塚⁽¹⁰⁾らの結果に比べて大きいものであった。Moalem らは熱天秤を用いており、等温酸化温度に達してから水蒸気を流す等、実験手法は本研究とほぼ同じである。一方、Cathcart や永瀬らの従来試験では、予め水蒸気を導入した試験部に試料を挿入し等温酸化を行っており、昇温中にも酸化が起こる。昇温中の酸化の影響を調べるために、等温酸化温度より 100K 低い温度(例えば、1340K 試験では、昇温過程で 1240K に達した時点)と 553K から水蒸気の導入を開始し、等温酸化時の酸化速度を評価した。求めた酸化速度定数の温度依存性を Fig.3.4-2 に示す。目標酸化温度のみで酸化させた場合に比べ、昇温中に酸化させた試料の酸化速度は低下し、電気炉を用いた従来法に比較的近づくことがわかった。(a)等温酸化温度に達してから水蒸気を導入し酸化させた試料、(b)等温酸化温度より 100K 低い温度から水蒸気を導入し酸化させた試料、(c)従来法において予め水蒸気を導入した試験部に試料を挿入し酸化させた試料で形成された酸化膜のミクロ組織を Fig.3.4-3 で比較した。昇温過程で酸化した試料(b)および(c)では、酸化膜厚さ方向に伸びた柱状晶が観察できる。一方、等温酸化温度でのみ酸化した試料では、柱状晶の成長は明確ではない。昇温中に形成された酸化膜が、等温酸化中の酸化膜成長(ミクロ構造)に影響を及ぼし、等温酸化のみで形成される場合に比べて、成長速度を抑制していると考えられる。実際の LOCA 条件下では、被覆管温度は数 K/s ~ 数 10K/s で上昇すると評価されており、昇温過程で酸化が起こる。熱天秤を用いて、LOCA 時被覆管酸化速度を評価する際にも、昇温過程の影響を十分に評価、考慮した上で行う必要がある。

(吉永真希夫)

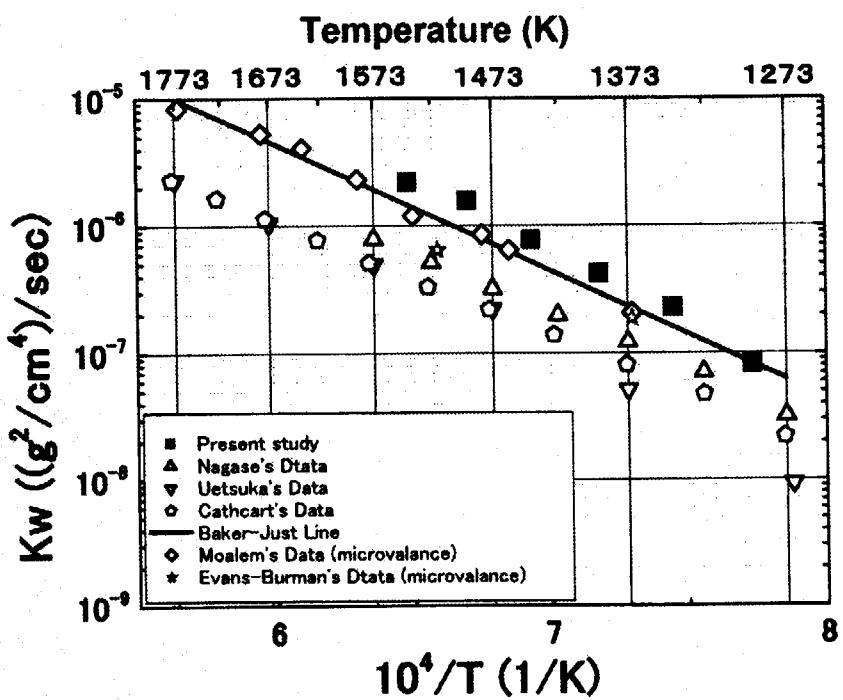


Fig. 3.4-1 Comparison of oxidation rate constant in steam

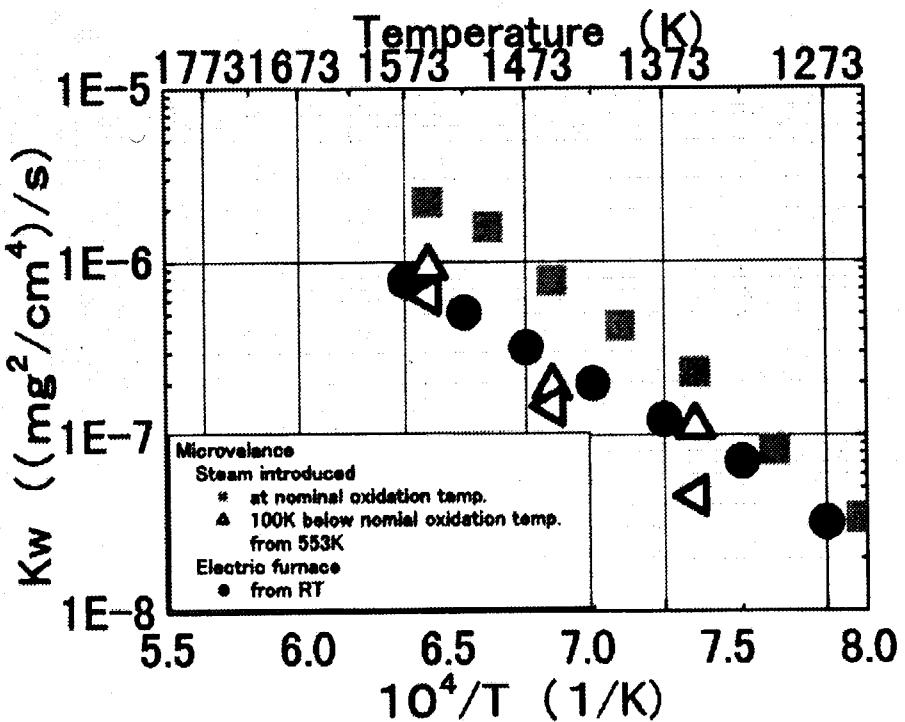


Fig. 3.4-2 Comparison of oxidation rate constant in steam

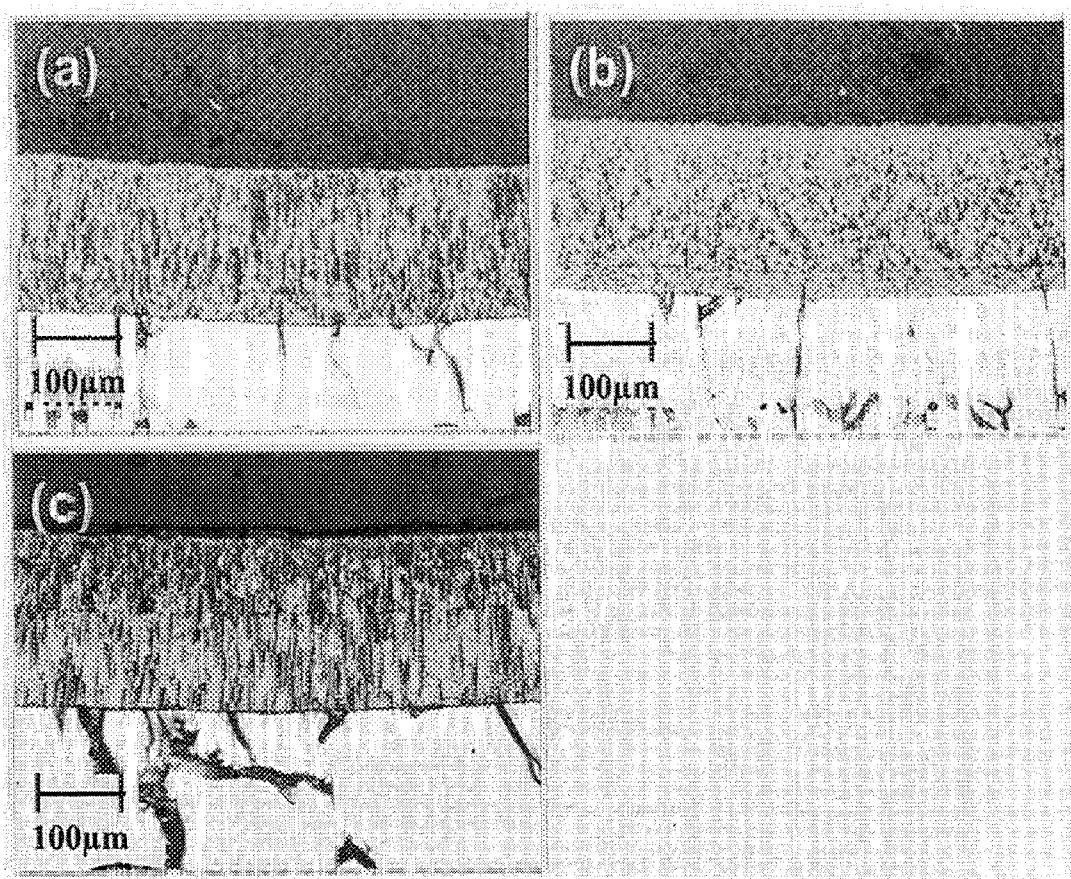


Fig. 3.4-3 Microstructure of oxide layer of Zircaloy-4 cladding; (a) Oxidized only at 1353 K, (b) Oxidized from 1453 K to 1553 K at 50K/s and at 1553 K for 180s, (c) Oxidized from RT to 1573 K at 10K/s and at 1573 K for 180s.

3.4.2 酸化実験初期の温度急昇

昇温中の酸化の影響を取除く目的で、不活性雰囲気中で試料を目標温度まで加熱した後に、水蒸気を導入した場合、フレッシュなジルカロイと水蒸気が急速な反応による発熱で、短時間ではあるが試料温度が上昇する。この短時間の温度上昇が、酸化量におよぼす影響を評価した。調べた酸化温度範囲は、1275～1583Kである。測定された温度変化の例を Fig.3.4-4 に示す。不活性ガス中で約 1370Kにおいて安定していた試料温度が、水蒸気供給と同時に上昇し、温度急昇が見られた。温度が上昇した時間は約 30s であり、温度上昇幅は最大 70K である。Fig.3.4-5 に、各試験温度で水蒸気導入時に測定された温度変化を比較した。1275～1423K の範囲では最大 90K の温度上昇がみられ、50s 後には低下している。1473K 以上の温度では、温度上昇は約 50K であるが、温度が低下するまでの時間が約 100s と長くなる傾向が見られた。

測定した試料温度履歴を、Zr-H₂O 反応のシミュレーションコード PRECIP-II⁽¹¹⁾で解析し、水蒸気導入時の温度上昇が酸化量に及ぼす影響を評価した。解析は、Fig.3.4-6 に示すように温度急

昇がある場合(×:Case-1)とない場合(△:Case-2)について計算し、比較を行った。評価の結果、温度急昇が重量増加に及ぼす影響は 1270~1530K で最も大きいが、300s 以下の短時間酸化の場合でも温度急昇により重量増分は高々 10%であった。また、酸化速度に及ぼす影響は、Fig. 3.2-7 に示すように小さくほぼ無視できることが分かった。

(大友 隆、藤田 操)

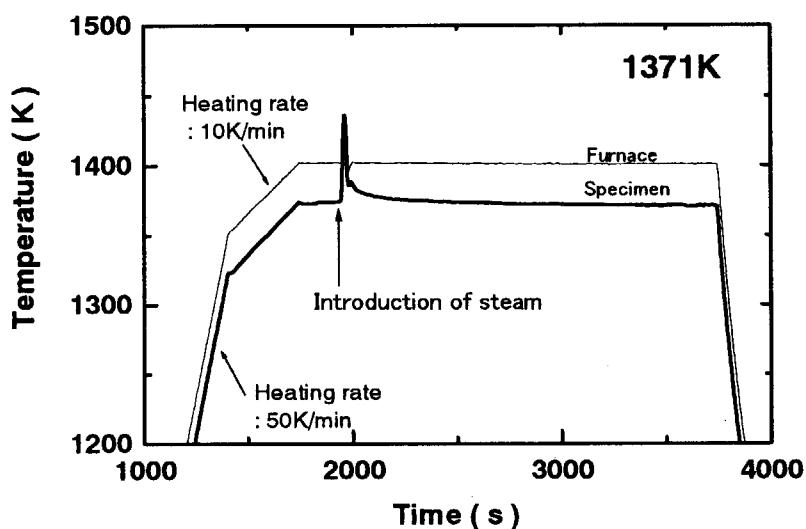


Fig.3.4-4 Temperature history measured in oxidation test with thermobalance

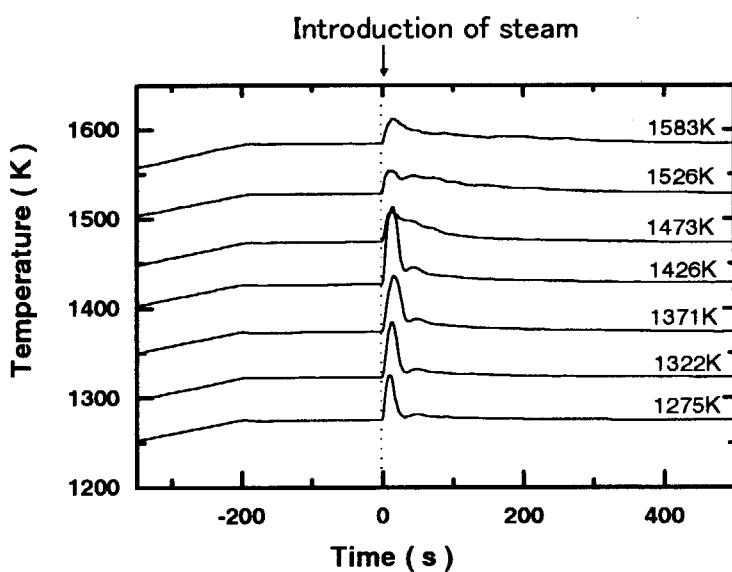


Fig.3.4-5 Temperature escalation caused by steam introduction observed at various temperatures

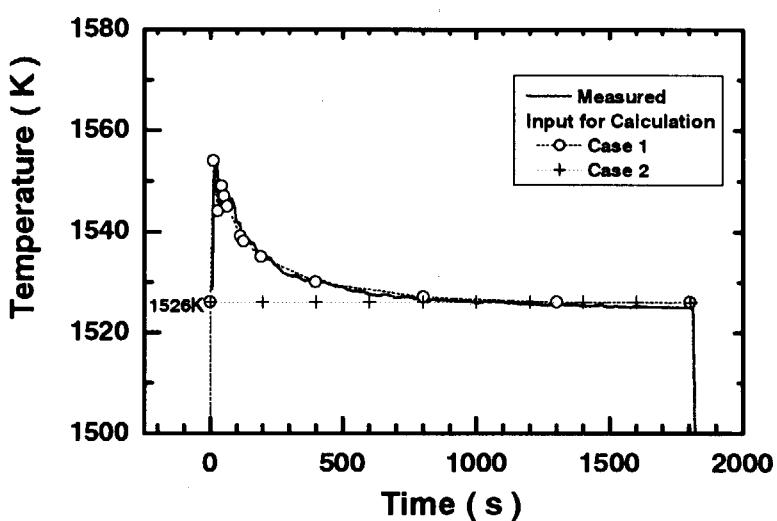


Fig.3.4-6 Measured temperature escalation at 1526 K and assumed temperature changes for PRECIP-II calculation

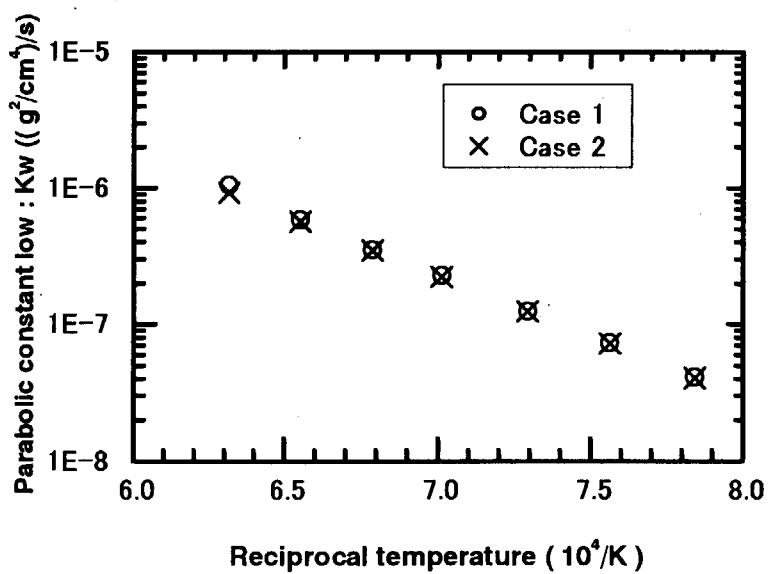


Fig.3.4-7 Estimated influence of temperature escalation on oxidation rate.

3.5 照射済み試料の試験に関する準備

試験計画においては、JRR-3 照射試料及び動力炉照射済み燃料棒から採取する被覆管試料に対する急冷破断試験を実施する計画である。JRR-3 における試料照射と燃料試験施設における機器整備の進捗を以下に報告する。

3.5.1 JRR-3 照射

LOCA 条件下では、燃料棒温度が通常照射時の温度より十分に高くなるため、照射欠陥とその影響は消失すると考えられてきた。しかし、照射材を用いて温度遷移後の機械特性を調べた試験の結果⁽¹⁾から、高温遷移後も照射の影響が残留することが示された。このため、高燃焼度燃料棒の LOCA 時挙動を評価するためには、炉外にて水素添加及び酸化を施した非照射試料に対する試験だけでは不十分であり、照射した被覆管に対する試験も必要である。照射の影響に関するデータを取得するため、原研・東海研究所内にある研究炉 JRR-3 において中性子照射を行っている。照射キャプセルは2体であり、キャプセル名は RGM-54H と RG-64H である。いずれにおいても照射温度は約 633K(360°C)、照射雰囲気は不活性である。RGM-54H には、ジルカロイ-4被覆管(外径 9.50、内径 8.36mm)、長さ 160mm を14本、長さ 50mm を7本装荷している。被覆管試料の一部には、照射前に約 400wtppm の水素添加処理を施した。本キャプセルで照射した試料は、主に酸化試験、機械特性試験、バースト試験に供する予定である。RGM-54H は 2000 年 12 月に照射を終了し(約 16 サイクル)、燃料試験施設に移送し試験の準備を進めている。予想される高速中性子量は約 $3.2 \times 10^{25} n/m^2 (E > 1 MeV)$ である。RGM-64H には、外径 9.50、内径 8.36、長さ 600mm のジルカロイ-4被覆管を7本装荷した。被覆管の一部には、照射前に約 400wtppm の水素添加処理を施すことで、水素吸収と照射による相乗効果を調べることができる。本キャプセルで照射した試料は、主に急冷破断試験に供する予定である。RGM-64H は 1999 年 7 月より 16 サイクル照射され、照射終了は 2002 年 2 月である。なお、予想される高速中性子量は約 $3.5 \times 10^{25} n/m^2 (E > 1 MeV)$ である。

3.5.2 急冷破断試験

照射試料に対する急冷破断試験のための試験装置を Fig.3.5-1 に示す。装置は、島津製作所製の卓上引張試験機 AGS-5kNG、下部フランジ、石英管、上部フランジ、赤外線イメージ炉(真空理工社製 EP-610、加熱長約 260mm)等からなる。下部フランジは試料固定、石英管保持、水蒸気及び急冷用冷却水の導入の機能を持つ。基本的には非照射試料に対する試験装置と同じ構造であるが、下部フランジ構造と試料上端の保持構造等において、セル内でのマニプレータを用いた遠隔操作を考慮した設計となっている。

試験では、燃料ペレットを除去した長さ約 190mm の被覆管試料を用いる。被覆管内にアルミナペレットを詰めた後、両端にジルカロイ製の端栓を電子ビーム溶接し、これにステンレス鋼製のコネクションロッドを取り付ける。試験体下端は後述する急冷破断試験装置にねじ込み固定し、上端は必

要に応じフックにて固定できる構造とした。(Fig.3.5-2)。

このほか、300mm程度までの長さの燃料棒から燃料ペレットを除去できる脱燃料装置、脱燃料後の被覆管内面健全性を確認するための内面観察装置、熱電対を遠隔で溶接するための装置等を整備した。

2002年においては、関西電力㈱との共同研究の一環として、高浜3号炉で照射した燃料(燃焼度約48GWd/t)から採取した被覆管試料に対して試験を実施する予定である。

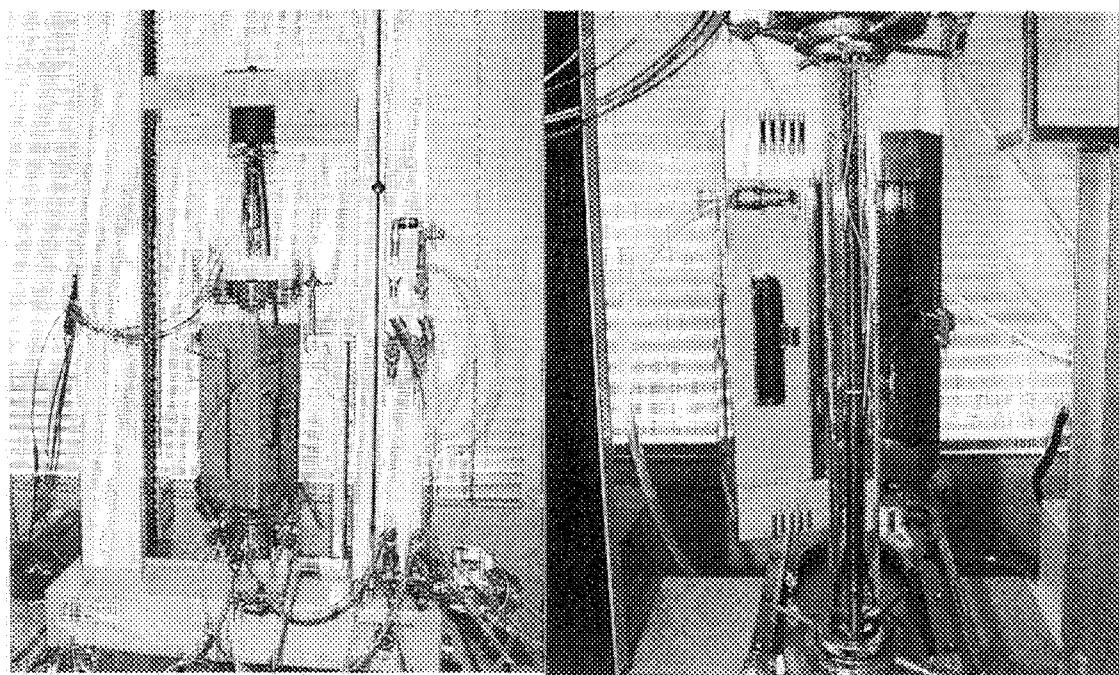


Fig.3.5-1 Test apparatus for integral thermal shock test with irradiated cladding

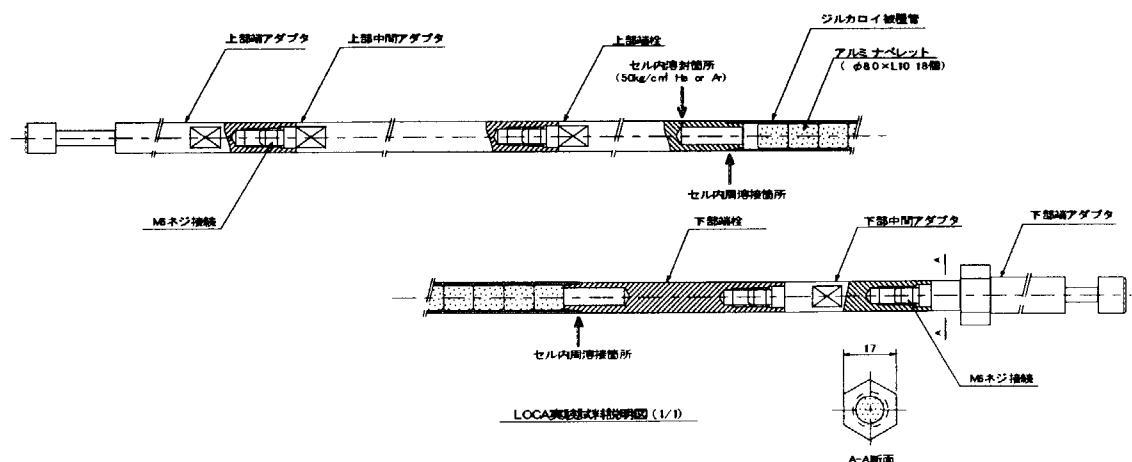


Fig.3.5-2 Design of test rod for integral thermal shock test with irradiated cladding

3.5.3 酸化試験

照射試料に対する高温酸化試験のための試験装置を燃料試験施設内に整備した。装置は、主に電気炉及び制御部、試料ホルダー、水蒸気発生装置からなる。本装置を用いた酸化速度の評価は、予め水蒸気を導入した試験部に試料を挿入し等温酸化を行った後、重量変化や酸化膜測定を行う、いわゆる従来法である。JRR-3 照射試料を用いて、中性子照射及び水素吸収が酸化速度に及ぼす影響を、照射済燃料から採取した被覆管を用いて照射の影響を総合的に評価する予定である。

(永瀬 文久)

3. 6 共同研究及び国際協力

(1) 共同研究

高燃焼度燃料の LOCA 時挙動を調べるために、商用炉照射済燃料被覆管を用いた試験不可欠である。そこで、関西電力㈱と共同研究契約を締結し、現在国内で入手し得る最も高い燃焼度を有する PWR 燃料棒の提供を受け、LOCA 時挙動試験を行う。本共同研究では、関西電力㈱高浜 3 号機で照射された高燃焼度 PWR 燃料棒(燃焼度約 48GWd/t)より被覆管を切り出し、急冷破断試験を実施して高燃焼度燃料棒の急冷時破損特性を評価するための基礎データを取得する。2002 年の試験に向け準備を進めている。また、高燃焼度燃料被覆管に対する試験に先立ち、照射と水素吸収の効果を明らかにするための高燃焼度模擬被覆管(燃焼度に相当する水素吸収を与えた未照射燃料被覆管)に対する試験を実施した(3.2 参照)。

(2) 国際協力

高燃焼度燃料の LOCA 時挙動に関し研究を進めている主な研究機関は、米国・アルゴンヌ国立研究所(ANL)とフランス原子力安全・防護研究所(IPSN)である。原研と IPSN の間では、「原子力安全防護分野における協力取決め」を 1994 年 6 月に締結している。さらに、相互に重要と認める個々の課題について情報交換や共同研究を行うため、この親協定の下に、特定協力課題に関する協定(STC)を必要に応じて締結し、研究協力を実行している。このため、高燃焼度の LOCA 時挙動についても、特定協力課題(STC8; Cooperation agreement on behavior of high burnup fuel in case of Loss-of-Coolant Accident)を締結することとし、協定締結する方向で交渉を進めている。ANL との間においても、試験計画、試験技術、試験結果の評価等について情報交換を行っている。

参考文献

- (1) 上塚 寛(編)、燃料安全研究2000、JAERI-Review 2001-013,2001
- (2) Nagase, F., Otomo, M., Tanimoto, and Uetsuka, H., "Experiments on High Burnup Fuel

Behavior under LOCA Conditions at JAERI”, ANS topical meeting on LWR fuel performance, April 10–13, 2000, Park City.

- (3) H.Uetsuka and F.Nagase, “Progress in JAERI program on high burnup fuel behavior under a LOCA transient”, Proc. The topical meeting on LOCA fuel safety criteria, Aix-en-Provence, March 22–23, 2001, NEA/CSNI/R(2001)18, pp.197.
- (4) K. Honma et al., ANS Annual Meeting, Milwaukee, Wisconsin, June 17–21, 2001.
- (5) T. Murata et al., ANS Annual Meeting, Milwaukee, Wisconsin, June 17–21, 2001.
- (6) N. Waeckel et al, OECD/NEA SEG/FSM LOCA Meeting March 22–23, 2001, Aix-en-Province, March, 2001.
- (7) L. Baker and L. C. Just, Studies of Metal-Water Reactions at High Temperature, Argonne National Laboratory Report, ANL-6548 (1962).
- (8) M.Moalem and D.R.Olander, Oxidation of Zircaloy by steam,J.Nucl.mater,182(1991)170.
- (9) J.V.Cathcart,R.E.Pawel,R.A.McKee,E.E.Druschel,G.J.Yurek,J.J.Campbell and S.H.jury, Zirconium Metal-Water Oxidation Kintics IV –Reaction Rate Studies, Oak Ridge National Laboratory Report ORNL/NUREG-17(1977).
- (10)H. Uetsuka and T. Ohtomo, J. Nucl. Sci. Technol. 26 (1989) 240.
- (11)M.Suzuki, S.Kawasaki and T.Furuta, JAERI-M 7720.

4. 通常運転時挙動研究

4. 1 研究の概要

JMTR(Japan Materials Testing Reactor)を用いた照射研究では、大飯1号炉で照射された UO_2 燃料を再加工・再計装して沸騰水キャップセル(Boiling Water Capsule, BOCA キャップセル)を用いて再照射する試験を行った。また、高燃焼度対応の 17x17 型燃料である高浜3号燃料棒から再加工した燃料棒を JMTR で追加照射して高燃焼度を得るための試験を継続した。現行の商用炉での許認可燃焼度を超える燃焼度を得るための大飯1号燃料の無計装キャップセルによる追加照射を終了し、最高燃焼度約 63GWd/t を達成した。

高燃焼度燃料の照射後試験では、大飯2号炉で照射されたガドリニア添加燃料(燃焼度約 28GWd/t)及び UO_2 燃料(燃焼度約 36GWd/t)の熱拡散率の測定を行い、室温から 1800K にわたってのデータを得た。

共同研究としては、JRR-3 を用いた三菱重工(株)との「高燃焼用PWR燃料の照射特性に関する研究」と、ハルデン炉を用いた国内諸機関との7件のハルデン共同研究を実施した。いずれの共同研究も順調に進行している。

国際協力では、第12期ハルデン原子炉計画(2000年1月から2002年12月)に引き続き加盟し、高燃焼度燃料の熱特性の劣化、MOX 燃料の照射挙動、被覆管の腐食挙動・クリープ特性等に関する知見を得るとともに、国内諸機関との共同研究として 7 件の燃料・材料照射試験を実施した。

4. 2 JMTR を用いた照射研究

燃料ペレットの熱伝導率は燃焼度の増加とともに FP の蓄積や、照射損傷の蓄積等により、低下することが知られており、一方、出力変動時の FP ガス放出については、出力低下時に顕著な燃料棒内圧の上昇が見られる例があることから、出力サイクル時の FP ガス放出挙動に関心がもたれている。燃料安全研究室では、商用炉で照射された使用済み燃料を再加工短尺化して、燃料棒内圧計等を再計装し、JMTR の BOCA キャップセルを用いて再照射し、燃料の熱伝導率の劣化と出力変動時の FP ガス放出に注目した試験を実施している。また、商用炉の許認可燃焼度を越える燃焼度での燃料の熱特性評価および出力変動時の FP ガス放出挙動を明らかにするため、現行の最高燃焼度 PWR 燃料棒を再加工し、さらに高燃焼度を得るための追加照射を JMTR において行っている。2001年には、大飯1号炉照射燃料の再照射試験を行い、また、燃焼度延伸のために高浜3号燃料の再加工燃料棒の JMTR での追加照射を継続するとともに、大飯1号照射燃料の追加照射を完了し、最高燃焼度約 63GWd/t を達成した。

4.2.1 大飯1号炉照射 UO_2 燃料の BOCA 照射試験

大飯1号炉で照射された、17x17 型 PWR 燃料棒を原研の燃料試験施設で短尺化した後、JMTR

に輸送し、燃料中心孔加工装置を用いて、燃料中心温度測定用の中心孔の加工及び計装の装着を行った。まず炭酸ガスを液体窒素冷却で凝固させて燃料ペレットを固定し、ダイヤモンドドリルにより直径 2.5mm 深さ約 50mm の燃料中心孔をあけた。この中心孔にモリブデンのスリーブを挿入して孔を保護した後、外径 1.8mm のタンクステン・レニウム系熱電対(W5Re-W26Re)を用いた燃料中心温度計と燃料棒内圧計を組み込んだ二重計装用端栓を装着し溶接した。しかし、燃料中心温度及び内圧計の信号を取り出すコネクターに異常が生じたため、計装信号を取り出せず、計装なしでの照射試験となった。この燃料棒(スタック長 237mm, 燃焼度約 50MWd/kgU)を BOCA キャップセルに組み込み、JMTR141サイクルで再照射試験を実施した。141 サイクルで実施した試験結果を Fig.4.2-1 に示す。照射は BWR 条件を模擬した核沸騰条件で実施され燃料棒からやや離れた位置で測定した冷却水温度は 430-470K である。燃料棒出力はヘリウム-3ガスクリーン内のヘリウム-3 壓力を最大値の約 4MPa から約 0.08MPa に低減することにより出力急昇を行い、最大線出力 290W/cm で定常照射を実施した。今後照射後試験により、36GWd/t の大飯2号照射燃料との比較を行う。

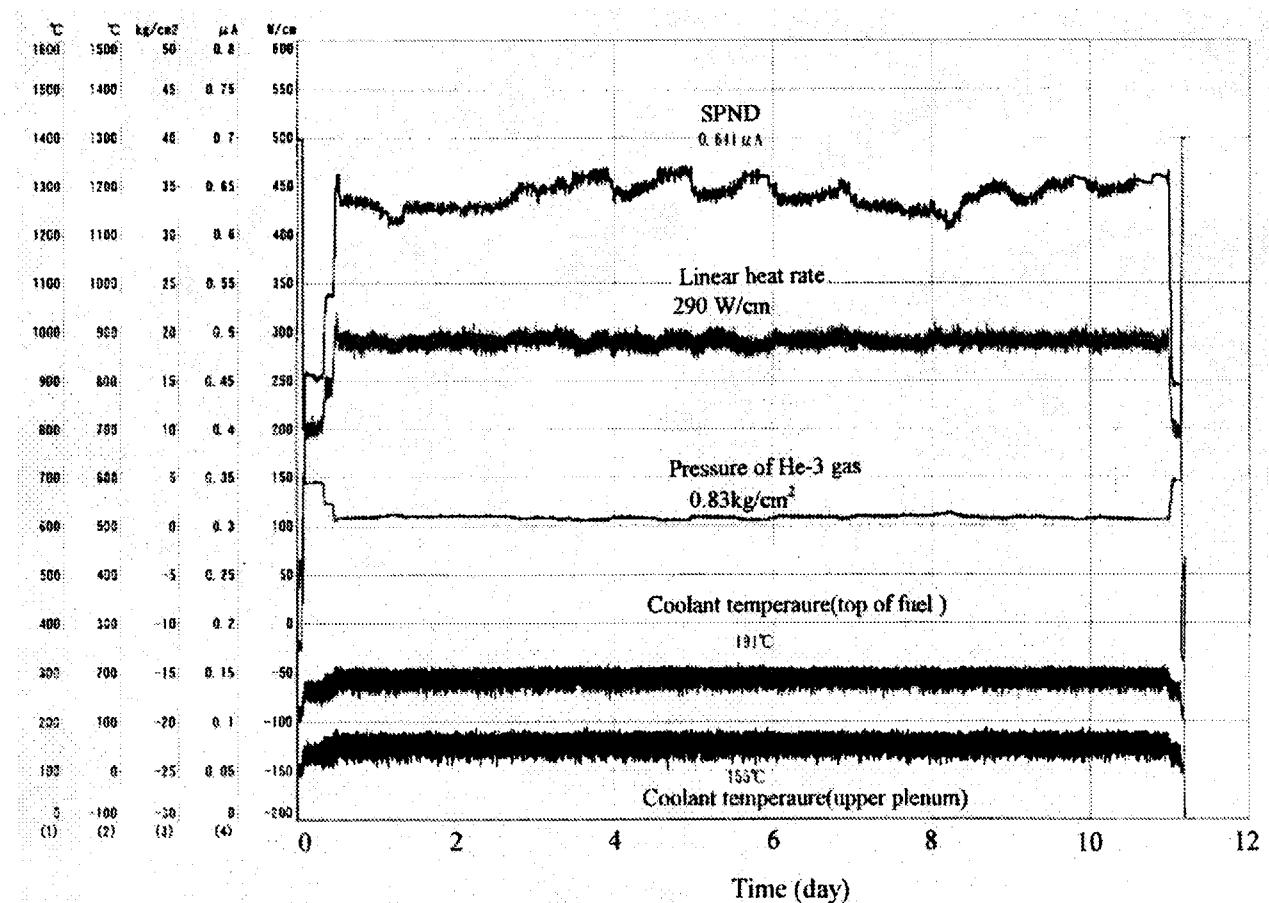


Fig.4.2-1 Linear heat rate and pressure of He-3 coil during re-irradiation test of Oi unit 1 fuel in JMTR(141st cycle).

4.2.2 燃焼度延伸のための高燃焼度燃料照射試験

高燃焼度対応の 17x17 型燃料である高浜3号燃料棒から再加工した2本の短尺燃料棒の追加照射を継続した。現行の商用炉での許認可燃焼度を超える燃焼度を得るための大飯1号再加工燃料棒2本の無計装キャップセルによる追加照射を終了し、最高燃焼度約 63GWd/t を達成した。次年では、高浜3号燃料2本の照射を継続するとともに照射後試験を実施する。

4. 3 高燃焼度燃料の熱拡散率

高燃焼度燃料の照射後試験のひとつとして、大飯2号炉で照射されたガドリニア添加燃料及び UO_2 燃料の熱拡散率の測定を行った。

燃料棒の初期反応度を調整する目的で使用されるガドリニア添加 UO_2 燃料は、熱伝導度が UO_2 燃料より小さく、同一出力における燃料中心温度が UO_2 燃料に比べて高くなる。一方、燃料の熱伝導度は、燃焼度とともに FP の固溶、照射欠陥の蓄積、FP ガス微小気泡の生成等により低下することが知られており、ガドリニア入り燃料棒の燃焼度増大による熱特性の変化は、FP ガス放出挙動や、PCMI 等の燃料挙動を評価する上で重要である。そこで、商用炉で照射されたガドリニア入り使用済燃料から採取した試料を用いて熱拡散率の測定を行った。

実験方法としては、大飯2号炉で約 24MWd/kgU まで照射されたガドリニア 6wt% 添加 PWR 燃料棒及び UO_2 燃料(17x17 型)から、約 1mm 厚さのペレットを切り出し、約 3mm 角の不定形の試料を採取した。この試料を用いて遮蔽型ペレット熱拡散率測定装置により、レーザーフラッシュ法で室温から 1800K の温度範囲にわたって熱拡散率の測定を行った。測定は測定最高温度を次第に上昇させながら繰り返し行い、温度履歴の影響を調べた。

Fig.4.3-1 にガドリニア入り燃料の測定結果の一例を示す。比較のため、未照射 UO_2 及び未照射 6wt%ガドリニア添加 UO_2 の熱拡散率を示す。未照射 6wt%ガドリニア添加 UO_2 の熱拡散率は、未照射 UO_2 より低温側で大きく低下している。今回測定した照射試料の熱拡散率は未照射 6wt%ガドリニア添加 UO_2 の熱拡散率より低温側で 30%程度小さくなっている。測定最高温度を上昇させながら測定を繰り返したところ、熱拡散率は低温側で次第に増大する傾向を示した。これは、照射欠陥の回復と、微小気泡の変化に起因するものと推定される。

Fig.4.3-2 にガドリニア入り燃料と同じ燃料集合体内で照射された UO_2 燃料(36GWd/t)の熱拡散率を示す。照射済 UO_2 の熱拡散率は未照射 UO_2 の熱拡散率に比べて大きく低下しており、測定を繰り返した場合、ガドリニア入り燃料と同様に照射欠陥の回復に伴うと考えられる熱拡散率の回復が見られた。Fig.4.3-3 にガドリニア添加燃料と UO_2 燃料の熱拡散率を比較して示す。照射済み燃料の各温度での最初の測定値を回復前の熱拡散率として示し、最終回での回復後の熱拡散率として示している。未照射のガドリニア添加燃料の熱拡散率は、すでに未照射 UO_2 に比べて大きく低下している。欠陥測定値照射済ガドリニア添加燃料の熱拡散率は未照射ガドリニア添加燃料に比べてさらに小さな値を示したが、照射によるガドリニア添加燃料の熱拡散率低下の割合は、 UO_2 燃料に比べて相対的に小さい。これはガドリニア添加燃料では、ガドリニアの不純物効果により UO_2

ペレット内の熱の媒体であるフォノンを大きく散乱させているため、照射による FP 固溶、点欠陥生成等の効果が相対的に小さくなったものと考えられる。

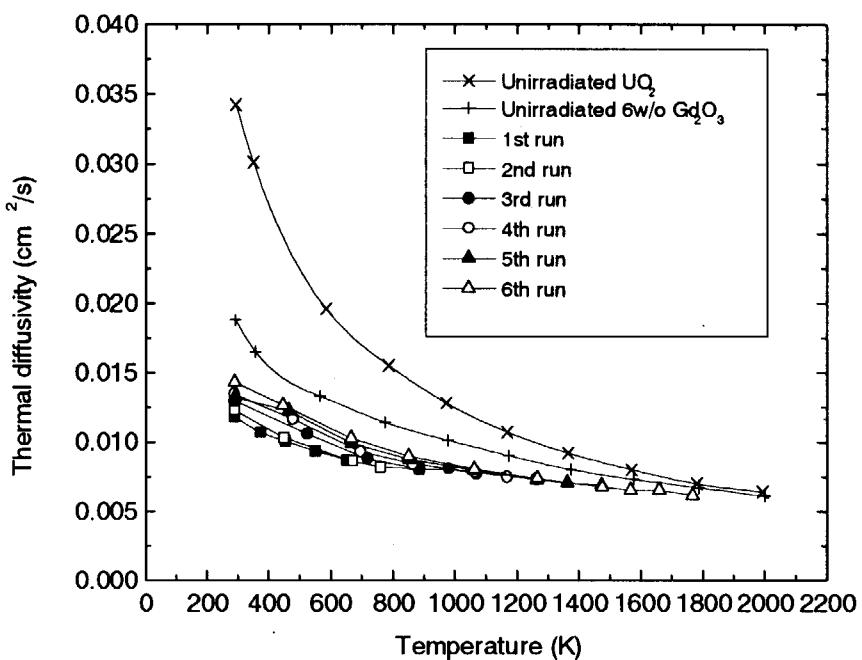


Fig.4.3-1 Thermal diffusivity of gadolinia added fuel(6wt%, 28GWd/tU).

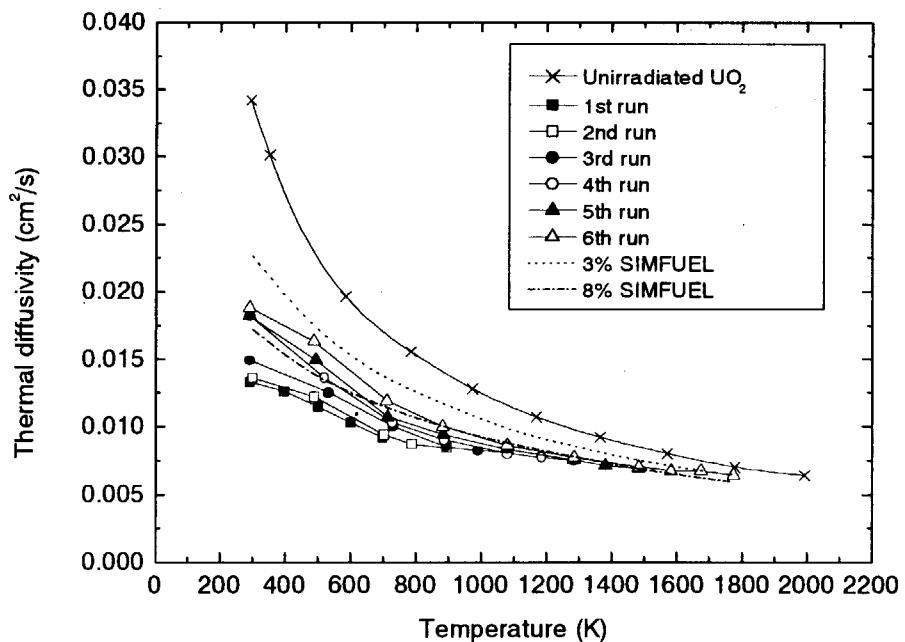


Fig.4.3-2 Thermal diffusivity of UO_2 fuel(36GWd/tU).

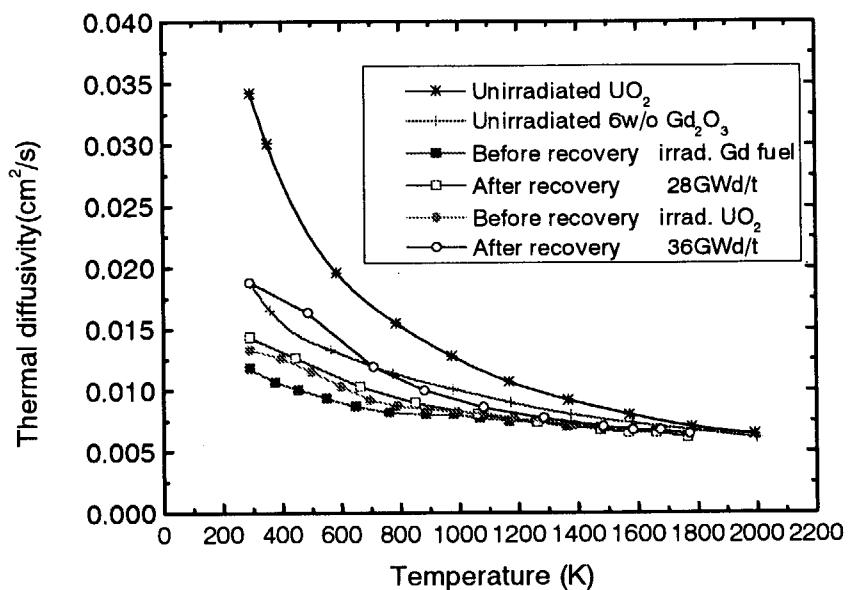


Fig.4.3-3 Comparison of thermal diffusivity of gadolinia added fuel(28GWd/tU) and UO₂ fuel(36GWd/tU).

4. 4 共同研究及び国際協力

4.4.1 共同研究

共同研究としては、JRR-3 を用いた三菱重工(株)との「高燃焼用PWR燃料の照射特性に関する研究」と、ハルデン炉を用いた国内諸機関との7件のハルデン共同研究を実施した。

(1) 研究件名：高燃焼用PWR燃料の照射特性に関する研究（三菱重工業）

この研究は、今後展開される軽水炉燃料の大幅高燃焼度化に備えて、平均燃焼度 55～70GWd/t に対応するリム部での局所燃焼度 110～140GWd/t における燃料の挙動や物性変化を評価するため、140GWd/t 程度の高燃焼度条件における UO_2 燃料の挙動や物性変化を基礎的に調べることを目的として行うものである。

研究内容としては、結晶粒径の異なる UO_2 ペレットを制御された温度条件のもとで最高 140GWd/t を目標とする高燃焼度まで照射する。その後、組織変化、FP ガス放出等に注目した照射後試験を実施する。

共同研究期間は、平成9年7月～14年3月であり、2001 年 9 月に JRR-3 の照射を終了し、最高燃焼度約 132GWd/t を達成した。

(2) 研究件名：HBWR におけるBWR 用混合酸化物燃料(MOX)の照射挙動に関する研究（日本核燃料開発）

この研究は、今後展開されるプルサーマル計画に備えて、BWR 用 MOX 燃料に関してもその照射挙動を評価するためのデータを取得する必要があるため、BWR 燃料仕様の混合酸化物燃料を HBWR で照射し、その健全性を確認するとともに、照射挙動データの蓄積を図ることを目的としている。

研究内容としては、燃料棒及び照射リグの設計製作を行い、HBWR で照射試験を実施し、FP 放出等についてのデータを取得する。また、実験結果の解析・評価を行う。

共同研究期間は、平成6年1月～14年12月であり、進捗状況としては試験リグ・燃料の製造を行い、照射試験を開始し、燃焼度は約 51GWd/t に達した。

(3) 研究件名：混合酸化物燃料(MOX)の照射特性に関する HBWR での照射試験（三菱重工業）

この研究は、今後展開されるプルサーマル計画に備えて、PWR 用 MOX 燃料に関してもその照射挙動を評価するためのデータを取得する必要があるため、PWR における MOX 燃料の高燃焼度利用をめざし、HBWR において海外加工メーカーで製造した MOX 燃料を照射し、MOX 燃料棒の照射挙動について評価することを目的としている。

研究内容としては、MOX 燃料及び比較用の UO_2 燃料に炉内計装を取り付けて HBWR で照射試験を行い、燃料中心温度等の燃料照射挙動データを取得する。

共同研究期間は、平成6年1月～14年12月であり、進捗状況としては 燃焼度約 53GWd/t を達成し、MOX 燃料と UO₂ 燃料の中心温度、燃料スタック長、燃料棒内圧等のデータを取得した。

(4) 研究件名 : HBWR における BWR 用改良燃料の照射挙動に関する研究（原子燃料工業）

この研究は、高燃焼時における軽水炉燃料の健全性を評価するためのデータベースを構築するために、BWR 改良燃料に関しても照射挙動データを取得する必要があるため、軽水炉燃料の本格的な高燃焼度化に対応して、BWR 用改良燃料の高燃焼時における安全評価等に用いるデータを取得することを目的としている。

研究内容としては、結晶粒を大粒径化したペレットを目標燃焼度約 60GWd/t まで照射し、照射中の燃料挙動を測定することにより性能を確認する。また、一部の燃料棒には耐食性を改良した被覆管を使用し、BWR 条件の腐食リグに装荷してその性能を確認する。

共研期間は、平成6年1月～14年12月であり、進捗状況としては、燃焼度約 62GWd/t を達成し、被覆管の腐食、燃料の中心温度、燃料スタック長、燃料棒内圧等のデータを取得した。

(5) 研究件名 : 高燃焼度 PWR 改良被覆燃料棒の HBWR における照射試験（原子力発電技術機構）

この研究は、高燃焼時における軽水炉燃料の健全性を評価するためのデータベースを構築するに、高燃焼 PWR 燃料用改良被覆管の耐食性と耐 PCI 特性を評価するためのデータを取得することを目的としている。

研究内容としては、改良被覆管の水側腐食挙動等に注目した照射・出力急昇試験を実施し、その後照射後試験を行う。得られた試験結果の解析・評価を行う。

共研期間は、平成6年7月～14年3月であり、進捗状況としては、燃焼度約 55GWd/t を達成し、被覆管の腐食、被覆管の伸び、燃料棒内圧等のデータを取得した。

(6) 研究件名 : HBWR における過渡沸騰遷移挙動の照射研究（東京電力）

この研究は、BWR の過渡沸騰遷移と沸騰遷移を経験した燃料棒の健全性についての知見は限られており、実際の燃料照射環境下における実験データの取得が強く望まれていることから、過渡沸騰遷移時の燃料挙動と沸騰遷移を経験した燃料の特性を明らかにし、本現象が燃料の健全性に及ぼす影響についての体系的な知見を取得することを目的としている。

研究内容としては、過渡沸騰照射試験を HBWR で実施し、オンラインで被覆温度や伸びのデータを取得する。また、照射後試験を実施し、沸騰遷移後の燃料の特性を評価する。

共研期間は、平成6年2月～13年3月 であり、照射リグを製作し、第1回から第3回の試験を実施して燃料の過渡沸騰遷移現象についてのデータを取得するとともに照射後試験を実施して共同研究を終了した。

(7) 研究件名 : HBWR における高燃焼時の軽水炉燃料挙動に関する研究（電力中央研究所）

この研究は、本格的な高燃焼度化に備えて、MOX 燃料を含む高燃焼度用燃料の照射挙動を解析できるコードを開発・整備する必要があるため、コードの検証に用いるハルデン燃料挙動データベースを整備するとともに燃料挙動解析コードの高度化を図ることを目的としている。

研究内容としては、ハルデン計画から入手したデータにより燃料挙動解析コード検証用データベースを整備するとともに、両者が開発した燃料挙動解析コードの相互比較を行う。

共研期間は、平成6年1月～14年12月である。本年度の進捗状況としては、高燃焼度リム研究計画で得られた炉外熱拡散率データをもとに、 UO_2 マトリックスの熱伝導率モデルを構築し、燃料挙動解析コードに組み込んだ。また、ハルデン炉における燃料棒の照射データにより検証を行い、熱伝導率モデルの妥当性を確認した。

(8) 研究件名 : HBWR における高価値制御棒供試体の照射試験（日立製作所）

この研究は、大間原子力発電所で採用予定の高価値制御棒の照射挙動データを取得するため、中性子吸収材被覆管を模擬したステンレス管に濃縮度をパラメータとした B_4C 粉末を充填した供試体による照射試験を実施することを目的としている。

研究内容としては、HBWRにおいて、中性子吸収材被覆管を模擬したステンレス管に濃縮度をパラメータとした B_4C 粉末を充填した供試体を照射リグ中で定常照射し、寸法安定性等の照射挙動データを取得する。

共研期間は、平成10年4月～14年3月であり、進捗状況としては、照射を順調に継続しており、 B_4C 粉末からの、He 放出オンラインデータを得た。

4.4.2 国際協力

軽水炉燃料の通常時挙動に関してもっとも広汎な照射研究を行っているのが、OECDハルデン原子炉計画(以下ではハルデン計画)である。この計画は、ノルウェーにあるハルデン炉(重水沸騰型炉:HBWR)を利用して1958年に開始されたOECD/NEAの国際協力であり、原研は日本を代表して1967年以来加盟しており、2000-2002年は第12期にあたる。

現在、ハルデン計画には、ノルウェー、日本、米国、ベルギー、デンマーク、フィンランド、英国、フランス、独、イタリア、韓国、スペイン、スウェーデン、スイスの14カ国が正式加盟、チェコ、ハンガリー、ロシア、スロヴァキア、ブラジル、アルゼンチンの6カ国が準加盟しており、計20カ国が参加するOECD/NEAでも最大級の国際協力となっている。

ハルデン計画における照射試験にはプロジェクト全体の研究として実施する合同照射試験(joint program)と加盟機関ないしは加盟国の機関が独自に実施する加盟者試験(bilateral program)があり、我が国の産業界が行う照射試験は、日本の加盟が前提となっており、現在、4.4 節に記述した7件の共同研究が国内機関と原研との間で実施されている。

ハルデン計画の燃料についての合同試験においては、MOX 燃料を含む高燃焼度燃料の健全性・安全性に関する研究が重点項目とされ、燃料の燃焼度増大にともなう熱特性の劣化、FP ガス放出挙動、被覆管腐食、被覆管クリープ等について優れた炉内計装と水化学条件を調整できる軽

水炉ループを用いて、系統的な燃料挙動研究が行われている。最近では、MOX 燃料の照射試験、腐食試験、ドライアウト実験、燃料棒内圧が外圧を超えた場合のリフトオフ試験等が実施されている。このような合同照射試験から得た燃料照射挙動データは、原研が開発している燃料挙動解析コード FEMAXI の開発を行うための重要な検証用データとして活用されている。

(中村仁一)

参考文献

- 1.W.Wiesenack,"Assessment of UO₂ conductivity degradation based on in-pile temperature data" Proceedings of International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland(1997)507
- 2.原田ら、「高燃焼度燃料ペレット融点測定装置の開発」、JAERI-Tech 2000-031(2000)
- 3.J.Nakamura et al., "Thermal diffusivity measurement of high burnup UO₂ pellet" Proceedings of International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland(1997)499

5. 燃料解析コードの開発研究

5.1 研究の概要

通常時の燃料ふるまいの解析においては、燃料解析コードFEMAXI-6の検証計算と高度化を進めた。FEMAXI-6においては、FPガスバブルスエリングモデル、高燃焼度組織モデルを導入し、燃焼計算コードPLUTON⁽¹⁾のファイル読み込み機能などを付加した。さらに商用炉燃料データの解析に進んだ。またPLUTONコードの公開へ向けてパッケージを作成した。

事故時燃料ふるまい解析においては、LOCA時燃料ふるまい解析コードFURBELの開発を進め、基本構造及びモデルを組み込んだ最初のバージョンを開発し、テストランに着手した。また、FURBEL開発の経験を踏まえ、RIA解析コードの設計検討を行った。

5.2 通常運転時燃料ふるまい解析コードの開発

通常運転時の燃料解析コードFEMAXI-6の開発・高度化と検証計算を行った。FEMAXIコードは従来より燃料解析コードとして長期間の開発が続けられてきたコードであり、初期のFEMAXIから現バージョンのFEMAXI-6まで、多くのバージョンがある。それらのバージョンに共通した基本構造及びモデルに関して述べる場合は、「FEMAXIモデル」とバージョン番号を付けない。特定のバージョンにのみ関連するモデルの場合は「FEMAXI-6」のようにバージョン番号を示す。

以下、FEMAXI-6に対して行った主な高度化・改良・及び検証計算を示す。

5.2.1 熱解析と力学解析の連成構造

昨年度より熱解析計算と力学解析計算の連成構造化を実施してきたが、その結果、過渡時には数値的不安定が生じる場合が見出された。2001年は、この数値的不安定性を取り除くため、熱伝導計算方法を改良し、全長力学解析の軸方向セグメント境界条件を改良した。これらにより、過渡時でも数値的不安定の発生は見られなくなった。

5.2.2 FPガスバブルスエリングモデル

ペレットスエリングは、コード解析において、燃料のギャップ熱伝達及び直径変形の予測において重要な影響を持つのみならず、ペレット内の応力分布やその強度にも影響し、応力状態はFPガスバブルの形成や放出にも影響する。一方、高燃焼度燃料では、スエリングにはFPガス原子のバブル形成による体積増加が大きな比重を占めるようになる。すなわち、スエリングとFPガスバブル形成を切り離した解析モデルは高燃焼度燃料の解析にあたっては不自然である。

しかし、従来の燃料ふるまい解析コードのスエリングモデルは、本質的には実験データに基づいた経験式をFPガスバブルふるまいとは独立に利用しているにすぎない。

したがって、解析コードにとってFPガスバブルとガス放出の機構論的なモデルとスエリングモ

モデルとの統合が必要である。

この問題は FEMAXI コードでは、今まで十分な検討がなされてはいない。そこで 2001 年においては、FP 放出モデルとリンクしたガスバブルスエリングモデルを開発した。以下にモデルの特徴を説明する。

(1) ガスバブルの成長とスエリング

本モデルは基本的に、White and Tucker⁽²⁾と Speight⁽³⁾のモデルに基づいた従来の FEMAXI の FP ガス放出モデル⁽⁴⁾をベースとして、ガスバブルの数密度の仮定を導入し、ガスバブルの成長に関する状態方程式を用いた平衡論的モデルを開発し、ガスバブルスエリングを定義した。

(2) FP ガス拡散モデルとリンクした粒内ガスバブル径

従来の FEMAXI コードにおける FP ガスの拡散方程式と連立させた状態方程式を用いて粒内ガスバブルサイズを算出する。

したがって、FEMAXI の FP ガス拡散モデルにおける、Speight⁽³⁾による実効拡散定数 D' を用いた拡散方程式の数値解と、粒内ガスバブルの半径、数密度の値とは相互にリンクしている。

(3) 粒界ガスバブル成長によるスエリング

FP ガス放出では、従来の FEMAXI モデルのように White and Tucker モデル⁽²⁾を採用し、粒界の単位面積当たりの FP ガス原子数が飽和値を超えると、それまで孤立していた粒界バブルが連結し自由空間へのトンネルが形成され、粒内より移動してくる追加のガス原子は直ちに自由空間に放出されると仮定した。

(4) 粒界ガスバブルの体積の平衡論的計算

本モデルでは、照射の全期間において結晶粒界面積当たりのバブル個数密度 K を一定と仮定する。最初に、粒界ガスバブルは微小な半径から成長を始めるが、一旦成長を始めたバブルのガス圧力とバブル半径は、状態方程式により決定する。

(5) FP ガスバブルスエリングの定義

FP ガスバブルの体積とその数密度の積値の結晶粒体積に対する比率をガスバブルスエリングと定義する。これには粒内バブルによるスエリング項 S_{intra} と粒界バブルによる項 S_{inter} がある。

こうして、ガスバブルスエリング全体を $S_{gas} = S_{intra} + S_{inter}$ 、

Rim 組織生成によるポロシティ増加によるスエリングを S_{rim} 、

固体 FP によるスエリングを

$$S_{solid} = 0.0025 \text{ per } 10^{20} \text{ fissions/cm}^3$$

とする。すると、全スエリングは

$$Swell = S_{gas} + S_{solid} + S_{rim}$$

となる。

5.2.3 高燃焼度組織(HBS)モデル

軽水炉燃料の高燃焼度燃料組織(HBS=High Burnup Fuel Structure)は、特有の性質を持っており、ペレット熱伝導率、FGR、スエリングなどに影響が大きい。したがって HBS を的確にモデル化してコード FEMAXI-6 に組み込むことはきわめて重要である。

(1) モデル設計の基本方針

HBS の生成は、照射、拡散、格子欠陥の運動、再結晶、析出など、複雑な相互作用の結果であり、未解明の部分も大きい。したがってモデル化する場合、現状ではすべての側面に機構論的モデルを組み立てるることは不可能である。また、FEMAXI コードはエンジニアリングツールとしての性格を要求されている。

したがって、HBS モデル構築の基本的姿勢としては、

- ①理論モデルあるいは機構論モデルが得られる現象については当然、そうしたモデルを採用する。しかし、それが困難な現象に関しては、経験的、あるいは半経験的モデルによって対処する。
- ②現象の大きな特徴を捉え、その燃料棒ふるまいに直接影響する側面のみをモデルに取り上げることを基本的コンセプトとする。
- ③機構論的モデルと経験的モデルの組み合わせにおいては、対象とする現象の中で、研究が進行中でメカニズムの詳細が不明な部分においては経験論的モデルを採用するが、将来、その機構論的モデルへの改良が容易になされたために、経験的モデルの、計算全体への影響範囲を制限することに留意する。

(2) HBS モデルの概要

- ①HBS(rim 組織)生成速度を燃焼度、温度、他のパラメータの関数として表現する。
- ②結晶粒成長モデルは保持し、それらと新モデルを有機的に結合する。
- ③Rim 組織中で大きなガス泡を形成する FP の量、および燃料マトリックスに蓄積する FP ガス量は直接の計算対象としない。
- ④Rim 組織からの FP ガスの追加放出については、経験式を適用する。
- ⑤Rim 組織中のガス泡による局所ポロシティ増加には経験モデルを適用する。さらにペレットの熱伝導率低下とスエリングに関連づける。

(3) HBS 生成のモデル

- ① 高エネルギー領域の発生と、その体積の変化

燃焼度が進むと、ペレット周辺部の高燃焼度領域のマトリックスにおいては、格子欠陥濃度及びFPガス原子濃度が高まり、歪みエネルギーが高度に蓄積される「高エネルギー領域」が生成する。この領域を母体として rim 組織が生成する。

この高エネルギー領域の体積は、燃焼度、温度、時間によって変化する。すなわち、照射損傷の蓄積=燃焼度の関数であり、温度が上がれば照射欠陥の焼鈍・回復が進むので、温度と時間の関数となる。Rim 組織の生成、成長を考える場合は、以下の仮定の下に、この母体となる(boundary となる)体積を考える。

- Rim 組織成長を燃焼度の関数と仮定し、
- 高エネルギー領域の体積変化を「実効燃焼度」という概念を用いて表現する。

② 実効燃焼度の概念

- 高エネルギー領域の体積が焼鈍によって減少すると、その燃料部分における実効燃焼度 B_{eff} が低下すると考え、rim 組織の成長速度の低下へ結びつける。
- また、結晶粒径サイズの rim 組織成長抑制効果も B_{eff} の低下として、 B_{eff} の定義式中に組み込む。
- こうして rim 組織成長に影響する冶金学的因子(照射欠陥濃度、不純物、結晶粒径、温度、etc)を B_{eff} の定義式に組み込むことにより、冶金学的因子を rim 組織成長の速度論式に直接結びつけることを避け、相対的に分離して検討できるようにする。

照射の継続は当然実効燃焼度を増加させる。

③ Rim 組織=再結晶領域の発生

あるリング要素体積 V_0 (実効燃焼度 B_{eff})内に発生する rim 組織の芽の発生速度を I (数/s)とし、この芽が実効燃焼度 B_{eff} の要素 V_0 内で球状に成長すると仮定し、rim 組織に転換した体積 V_{rim} を計算する。

④ Rim 組織内ポアの扱い

一方、rim 組織体積 V_{rim} に含まれている FP ガスのうちガスポアになる部分がある。これによるポロシティを経験的な相関式を適用して求める。

(4) Rim 組織=再結晶領域からの FP 放出

Rim 組織マトリックス中に溶けている FP ガス原子は、核分裂によって一時的に生じた格子欠陥を通して、あるいは照射損傷である転位や微細化結晶粒界のネットワークを優先的に通って、ペレットの外表面やクラックなどの自由表面に到達し、直ちに燃料棒内空間に放出される可能性がある。であれば、その輸送過程は照射によってミクロレベルで加速された熱拡散と考えることができる。

しかし、現状ではその輸送放出メカニズムが不明であり、追加放出量自体も少量であるので、Cunningham らの経験式⁽⁵⁾を適用する。

5.2.4 PLUTON ファイル読み込み機能

FEMAXI-6 に、燃焼計算コード PLUTON⁽⁶⁾の計算結果ファイルを読み込んで計算に用いる機能を付加した。

5.2.5 検証

FEMAXI-6 に組み込んだ 5.2.3 項:HBS モデルの BWR 燃料におけるシミュレーション結果を以下に示す。なお、その他の検証計算については 5.4.2 項に示す。

HBS モデルと PLUTON ファイル読み込みにより計算した燃料半径方向の燃焼度プロファイル変化を図 5.1 に示す。Node1～Node12 は軸方向の 12 セグメントに対応している。ペレット表面で燃焼度が大きく立ち上がる。

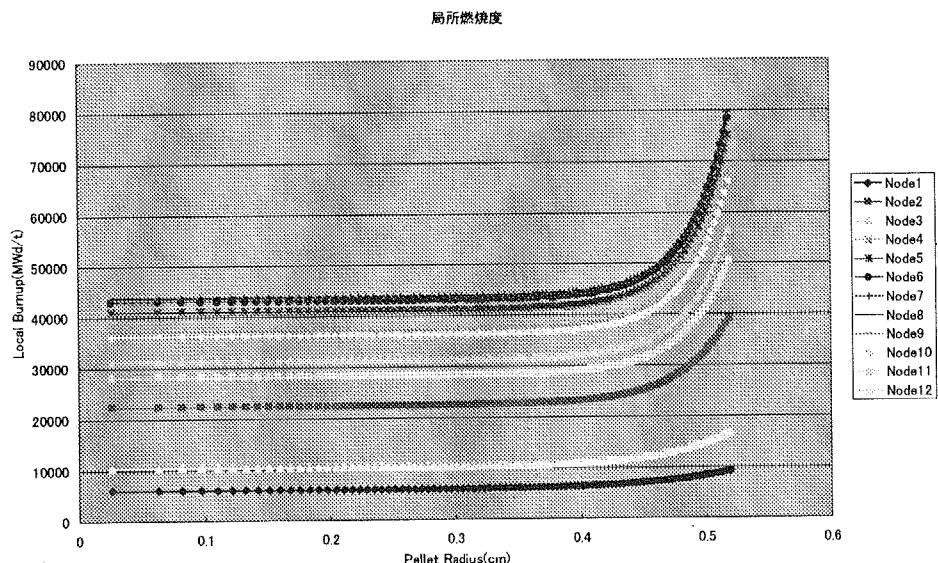


図 5.1 燃料の軸方向12ノードにおける半径方向の燃焼度プロファイル

図 5.2 は、図 5.1 の燃焼度プロファイルから算出した「実効燃焼度」プロファイルであり、ペレット中心部の温度が高い部分では、高温状態が持続する焼鉈効果により、rim 組織に変態するために必要な燃焼度が実効的には低下する様子が示される。

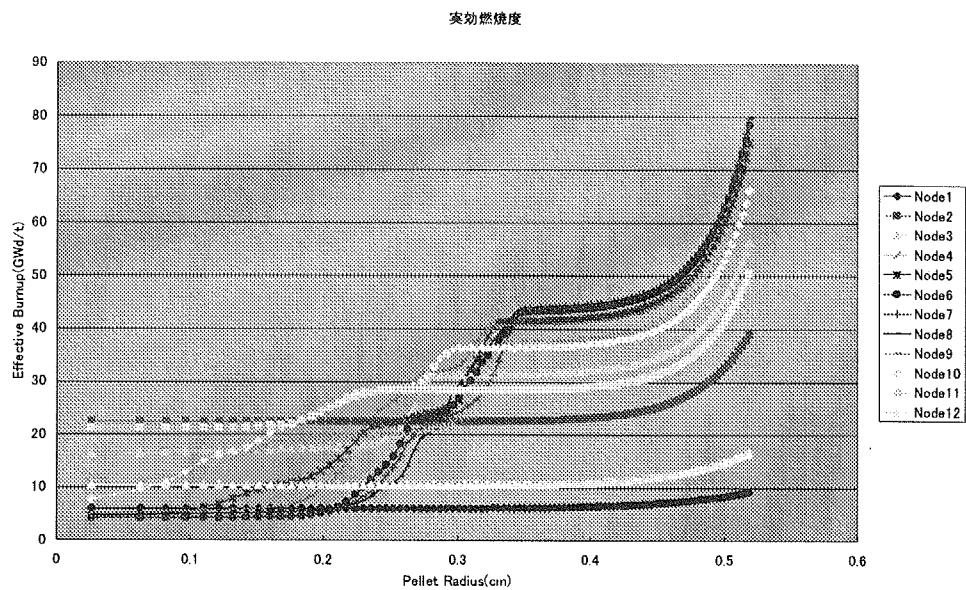


図 5.2 燃料の軸方向 12 ノードにおける半径方向の実効燃焼度プロファイル

図 5.3 は、実効燃焼度のプロファイルから算出された rim 組織変態率、すなわち rim 組織生成率を示す。

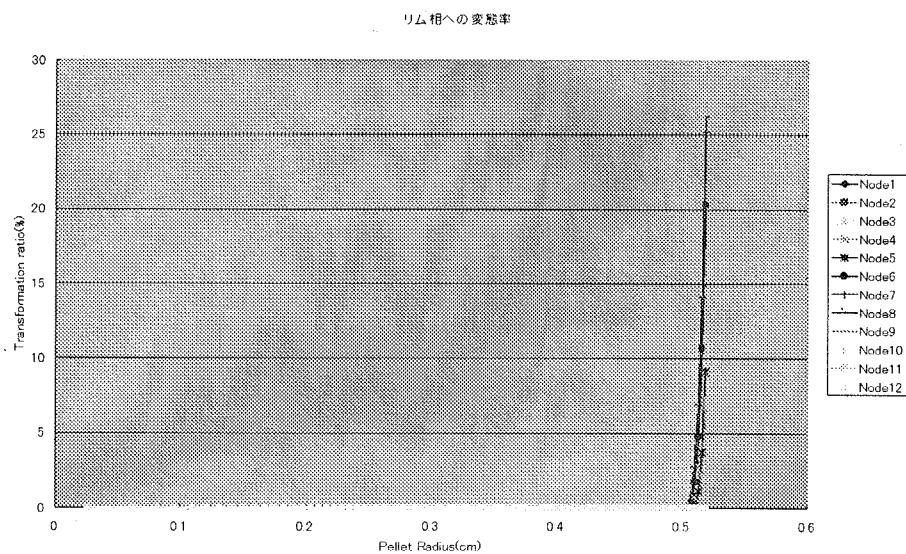


図 5.3 燃料の軸方向 12 ノードにおける半径方向の実効燃焼度に対応して算出された rim 組織への変態率プロファイル。

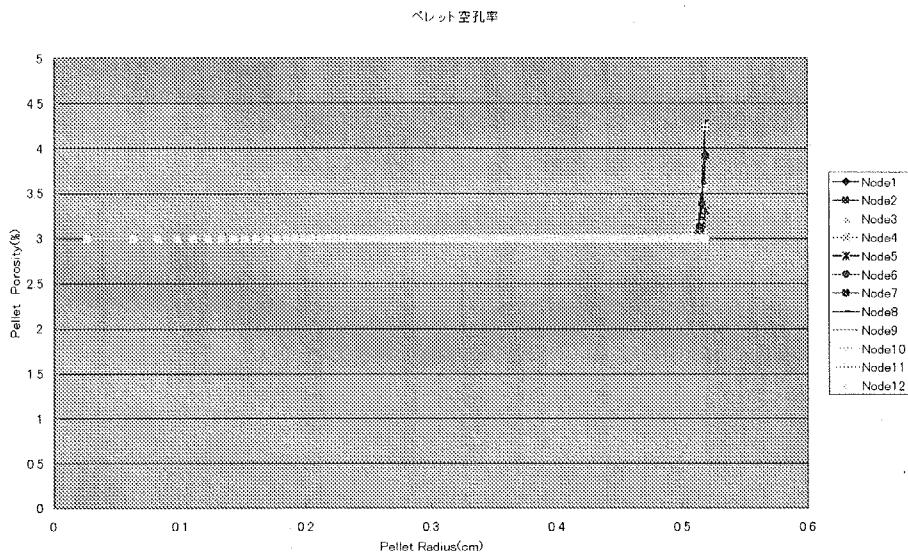


図 5.4 燃料の軸方向12ノードにおける半径方向のポロシティ分布。実効燃焼度に対応して生成した rim 組織の高いポロシティが示されている。

図 5.4 は、ペレットの半径方向のポロシティ及び、図 5.3 の rim 組織生成分布に経験式により対応させたポロシティプロファイルを示す。Rim 組織ではポロシティが有意に増加している。

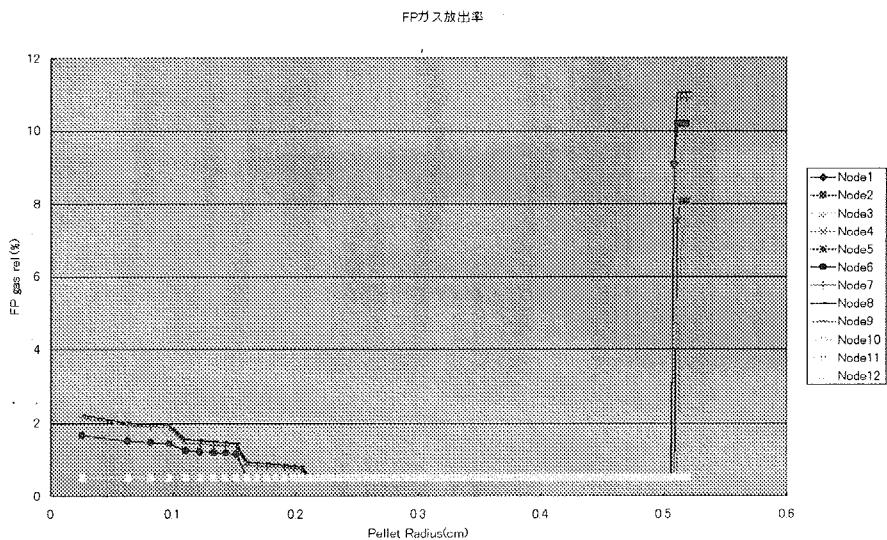


図 5.5 燃料の軸方向 12 ノードにおける半径方向の FP ガス放出率プロファイル。Rim 組織からの追加的 FP 放出が示されている。

図 5.5 は、ペレット半径方向の各位置における局所 FP ガス放出率の分布を示す。ペレット中央部では高温のため FGR が大きいが、rim 部でも経験式に対応させた追加的放出が算出され、FGR は大きくなる。

以上より、HBS モデルは rim 組織の生成現象を表現することに成功したが、実際の測定データによる検証及び、燃料の熱伝導率に及ぼす効果の検証は今後の課題である。

5. 3 事故時燃料ふるまい解析コードの開発

5.3.1 LOCA 時燃料ふるまい解析コード FURBEL の開発

2001 年は、引き続き FURBEL の基本構造およびモデルの開発を行った。FURBEL の概要を以下に示す。なお、今年度は FURBEL による実験解析に着手したが、その結果を得るまでには至っていない。

(1) 全体構造とモデル

FURBEL コードは既存の高燃焼度燃料ふるまい解析コード FEMAXI-6 のモデルを拡張して開発されたコードである。なお、FURBEL コードでは、LOCA 中の FP ガス放出、ペレットスウェーリング、やきしまりを考慮せず、またギャップが開いた後はペレットクリープおよび塑性は考慮しない。

(2) 解析の初期条件

①初期条件: LOCA が起きる直前 10 分の燃料状態を、通常運転の終わりの状態として入力で指定する。指定項目は、燃焼度分布、それまでの FGR(%)、ON パワー状態の燃料棒寸法、内圧とギャップガス組成、内面外面酸化膜厚み、金属相への水素吸収量、プレナム容積、などである。

(3) 熱解析:

① 温度計算は、FEMAXI と同様に、ペレットおよび被覆管に通常の有限差分法により、以下の 2 通りとする。

- 1) 被覆管温度履歴を入力指定、および
 - 2) 燃料棒発熱 + RELAP5-MOD1 熱水力モデル⁽⁷⁾による外部への伝熱 → 被覆管温度を計算。
- ② ペレット発熱履歴は標準的な履歴を内蔵するが、入力指定も可能とする。
- ③ クエンチ: クエンチフロントの上昇速度を入力で指定し、Reflood heat transfer correlation⁽⁸⁾を用いる。

(4) 力学解析:

① ペレット変形計算:

- 1) 半径方向 10 個の FEM 要素による、熱膨張計算を FEMAXI の全長力学解析と基本的に同じモデルで行う。ペレット内 FP ガスの熱膨張によるペレットの体積膨張は考えない。
- 2) もし LOCA 直前の状態においてギャップが閉じていた場合、LOCA の初期には PCMI が生じる可能性がある。したがって、LOCA 初期には PCMI を計算し、被覆管が膨れて一旦ギャップが開いたら、それ以後はペレットの変形計算を熱膨張のみに限定し、PCMI 計算およびクリープ計

算は行わない。

② 被覆管変形計算

計算方式はFEMAXIの全長力学解析と基本的に同じとする。ただし、軸方向最大NXセグメント(NXは入力指定、 $1 \leq NX \leq 40$)、半径方向8個の2次元FEM要素をとる。内外の1要素は酸化膜、内側6要素を金属相とする。このそれぞれのメッシュに個別に物性値(機械的性質、熱的性質)を入力で指定可能、および計算により指定可能とする。

- 1) 応力歪み解析には、弾性変形、熱膨張、 α β 変態による体積変化(熱膨張率変化)、内圧によるふくれ(バルーニング)、クリープ、伸び収縮(クエンチ時の熱衝撃)を含める。
- 2) 前項の変形計算は、金属部のみで計算する。酸化膜は、被覆管金属部の軸方向伸び(弹性変形おうびクリープ)にのみ影響するものとする。すなわち、軸方向伸びの計算は、酸化膜との相互作用を含めて計算する。
- 3) 軸方向境界条件は【軸方向変位を拘束する】or【軸方向変位に対して外部荷重や摩擦力を与える】、の2通りとする。
- 4) 内圧は、FEMAXIの方法により計算する。すなわち、あるタイムステップにおいて各軸方向セグメントにおけるガスの圧力に差がある場合、セグメント間で瞬時に平衡が成立すると仮定し、燃料棒内の圧力は一様となる。これは、ギャップ部でのガス流動のコンダクタンスは十分存在するという仮定に基づいている。
- 5) 周方向の応力が、予め入力データで指定された値(パラメータ名はRUPT)に達したセグメントは、破裂したとみなす。一旦破裂した後は、燃料棒内の圧力は外圧に等しいとする。ギャップ熱伝達の計算は従来通り。また、破裂したセグメントを中心にして上下2セグメントは、内面酸化を開始する。
- 6) 以上の被覆管変形計算には、酸素濃度、水素濃度、相変態等を反映した物性値としての機械的性質(経験式)を用いる。

(5) 被覆管の水蒸気酸化計算

- ① 初期状態:通常運転状態での酸化状態として、LOCA直前の初期外面酸化膜厚、 α 相厚み、金属相酸素濃度分布を入力指定する。(水素濃度は金属相で一様とする)
- ② LOCA開始後は、酸素の拡散方程式を解き、酸素濃度分布、相の厚み、各相の酸素量の計算を行う。ただし、被覆管が破裂するまでは外面酸化のみとする。
- ③ 通常運転時に生成した外面酸化膜がある場合は、LOCA時の新たな酸化膜は外面皮膜の内部に生成する。
- ④ 破裂したセグメントとその上下2セグメントは、破裂時点から内面酸化を開始する。

5.3.2 PRECIP-IIの整備

LOCA時ジルカロイ被覆管酸化計算コードPRECIP-II⁽⁹⁾をパソコン上で稼働可能な状態に整備した。また PRECIP-II により未照射被覆管の水蒸気酸化実験の酸化量に関する実験解析を実施した。

た。

5.3.3 RIA 時燃料ふるまい解析コードの開発; 設計概念

RIA 時の PCMI による変形を解析し、破損に至る応力等を適正に評価するためには、水素化物や酸化膜の存在等により部分的に異なる物性値を持つ被覆管を取り扱うこと、および急激な温度・物性の変化に対応することが必要である。このため、コード開発においては LOCA 解析コード FURBEL と同様に、FEMAXI-6 までの蓄積を有効利用することとする。

2001 年は、被覆管の急速な過渡変形の解析に対する計算方法を検討した結果、FURBEL と同様の方法が適用可能であるとの予測に達した。したがって、今後の開発は FURBEL の基本構造をベースとして行う予定である。

5.4 共同研究

5.4.1 研究件名: HBWR における高燃焼時の軽水炉燃料挙動に関する研究(電力中央研究所)

この研究は、MOX 燃料を含む高燃焼燃料の照射挙動を解析するコードの開発整備の一環として、検証に用いるハルデン燃料挙動データベースを整備するとともに、原研の FEMAXI-6 コードおよび電中研の EIMUS2 コードの高度化を図ることを目的とする。

研究内容としては、ハルデン計画から入手したデータにより電中研側が新しい燃料熱伝導率モデルを開発し、両者が開発した解析コード FEMAXI-6 と EIMUS2 に適用してその解析結果の相互比較を行うとともに、実験データベースを整備する。

2001 年の進捗状況としては、電中研が、照射済み燃料断片のレーザーフラッシュ法等による炉外熱拡散率測定データに基づいて新たな燃料熱伝導率モデル作成し、このモデルを EIMUS2 コードへ組み込んで Halden 計画で得られた燃料温度の実測データを用いた実験解析を開始した。このモデルには rim 組織の生成による熱伝導率変化が組み込まれている。このモデルを FEMAXI-6 に組み込み、EIMUS2 との比較検討を行うことは今後の課題である。

5.4.2 研究件名: 高燃焼度燃料棒挙動の解析研究 (原子力発電技術機構)

この研究は、商用発電炉で供用中の燃料照射履歴データ及び照射後試験データを用いて高燃焼度燃料挙動解析コード FEMAXI-6 による検証計算を行うことにより、商用炉燃料のふるまいの特徴を解析し、理解を深め、同時に FEMAXI-6 の実機適用性を確認することを目的とする。

2001 年の進捗状況としては、PWR、BWR 各 2 種、計 4 本の燃料棒照射データを用いて FEMAXI-6 による解析を行った。その結果、公表された照射データ⁽¹⁰⁾により実機長尺燃料棒の解析が照射初期から照射終了時まで実行可能であることを確認すると共に、燃料温度および被覆管の変形の評価については、ペレットのスエリングに関するモデルが重要な役割を果たすこと、照射後試験データとの詳細な比較が必要であることなどを認識した。

(1) BWR 長尺燃料棒の変形解析

FEMAXI-6 コードにより照射履歴に沿った解析の結果を、主に燃料の変形に焦点を当てて実測データと比較対照し、解析モデルの妥当性および実機照射中の燃料の熱的、力学的ふるまいの分析を行った。

本解析においては、製造時燃料棒仕様、出力履歴および冷却材条件を与え、照射終了時まで一貫した解析を行い、各サイクル後の PIE 測定データと計算値とを比較した。解析では、長尺燃料棒を軸方向 12 ノードに分割して軸方向の出力分布を与え、半径方向の出力密度分布には RODBURN コード⁽¹¹⁾の計算結果を与えた。標準ケースとして、燃料熱伝導には Halden モデル⁽¹²⁾を、ペレットスエリングには開発した新モデル(5.2.2 節参照)及び Studsvik モデル⁽¹³⁾を、ペレットと被覆管のクリープには MATPRO-11 モデル⁽¹⁴⁾をそれぞれ与えた。高速中性子束は実測データを入力したが、不明な部分は線出力に比例させた。

その結果、開発した新モデルは、被覆管直径変化の軸方向プロファイル変化、すなわち照射初期の冷却材圧力による被覆管のクリープダウンから、その後のペレットのスエリングによる押し出し過程をほぼ再現することができた。

MATPRO モデルのような一般的な物性値に基づく FEMAXI-6 の予測の傾向は実機燃料棒ふるまいに近いこと、直径変化の計算結果は、被覆管のクリープ特性などにも影響されるが、ペレットのスエリングによる作用が最も支配的であることが示される。したがって、高燃焼度ではペレットのスエリングの評価が重要となる。

(鈴木 元衛)

参考文献

- (1) Sergei E. Lemehev and Suzuki Motoe, "PLUTON - Three-Group Neutronic Code for Burnup Analysis of Isotope Generation and Depletion in Highly Irradiated LWR Fuel Rods", JAERI Data/Code 2001-025 (2001)
- (2) White R.J. and Tucker M.O., A New Fission Gas Release Model, J. Nucl. Mater., 118 p.1-38 (1983)
- (3) Speight M.V., A Calculation on the Migration of Fission Gas in Material Exhibiting Precipitation and Re-solution of Gas Atoms under Irradiation, Nucl. Sci. Eng. 37, p.180 (1969)
- (4) Suzuki Motoe, Light Water Reactor Fuel Analysis Code FEMAXI-V(Ver.1), JAERI-Data/Code 2000-030
- (5) Cunningham, M.E., Freshley M.D. and Lanning D.D., Development and Characteristics of the Rim Region in High Burnup UO₂ Fuel Pellets, J.Nucl.Mater., 188, p.19-27 (1992)
- (6) Sergei E. Lemehev and Motoe Suzuki, PLUTON—Three-Group Neutronic Code for Burnup Analysis of Isotope Generation and Depletion in Highly Irradiated

- LWR Fuel Rods, JAERI-Data/Code 2001-025 (2001)
- (7) Ransom V.H., et al., RELAP5/MOD1 Code Manual Volume1 : System Models and Numerical Methods, NUREG/CR-1826 (EGG-2070), (1980)
 - (8) Yeh H-C., Dodge C.E. and Hochreiter L.E., Reflood heat transfer correlation, Nucl. Technol.46., 473 (1979)
 - (9) Suzuki M and Kawasaki S., Development of Computer Code PRECIP-II for Calculation of Zr-Steam Reaction, J.Nucl.Sci.Tecnol., 17, No.4 (1980) pp.291-300
 - (10) 平成10年度 軽水炉改良技術確証試験に関する報告書、(財)原子力発電技術機構
 - (11) Uchida M. and Saitou H., RODBURN: A Code for Calculating Power Distribution in Fuel Rods, JAERI-M 93-108 (in Japanese) (1993)
 - (12) Wiesenack W., Vankeerberghen M. and Thankappan R., Assessment of UO₂ Conductivity Degradation Based on In-pile Temperature Data, HWR-469 (1996)
 - (13) Schrire D., Kindlund A. and Ekberg P., Solid Swelling of LWR UO₂ Fuel, HPR-349/22, Enlarged HPG Meeting, Lillehammer (1998)
 - (14) Hagrman D.L. and Reyman G.A., MATPRO-Version II, A Handbook of Materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior, NUREG/CR-0497, TREE-1280, Rev.3 (1979)

6. 照射済燃料からの放射性物質放出・移行挙動研究

6.1 研究の概要

シビアアクシデント条件下での高燃焼度 UO₂燃料及び混合酸化物(MOX)燃料からの放射性物質放出挙動データを取得しソースタームの予測精度を向上させるとともに、放出機構の解明を目的として、VEGA(Verification Experiments of Radionuclides Gas / Aerosol release)計画^{(1),(2)}を進めている。主な特長として、水蒸気雰囲気下において試験燃料を最高約 3,100Kまで昇温して 1.0MPaまでの加圧雰囲気下で放出挙動を調べること、これまでデータがあまり得られていない短半減期・低揮発性核種及びアクチニドの放出挙動を調べること等が挙げられる。特に、雰囲気圧力の影響を調べる実験は世界で初めてであり、本実験の最大の特長と言える。

実験装置⁽³⁾は、水蒸気・キャリアガス供給系、試験燃料を昇温する高周波誘導加熱炉、放射性物質を捕集する温度勾配管、エアロゾルフィルター、カスケードインパクター、希ガス捕集用活性炭トラップ及び Ge 半導体 γ 線検出器等から構成され、1999 年 2 月に燃料試験施設のホットセル内へ設置された。加熱炉の坩堝等に使用する構造材は、最高温度及び雰囲気ガスの種類によって変わることにしている。それぞれの物質の性質や取扱性等から、不活性雰囲気の場合はタンゲステン(W)を、酸化性雰囲気の場合はトリア(ThO₂)を使用する。

これまでに装置の最高性能である約 3100K、1.0MPaを含む条件下で 4 回の VEGA 実験を実施した。それらの実験条件の概要を Fig. 6.1-1 に示す。第 1 回目の VEGA-1 実験⁽⁴⁾は、装置の性能確認を兼ねて、最高温度約 2,750K、0.1MPa、不活性(He)条件で 1999 年 9 月に行つた。実験に

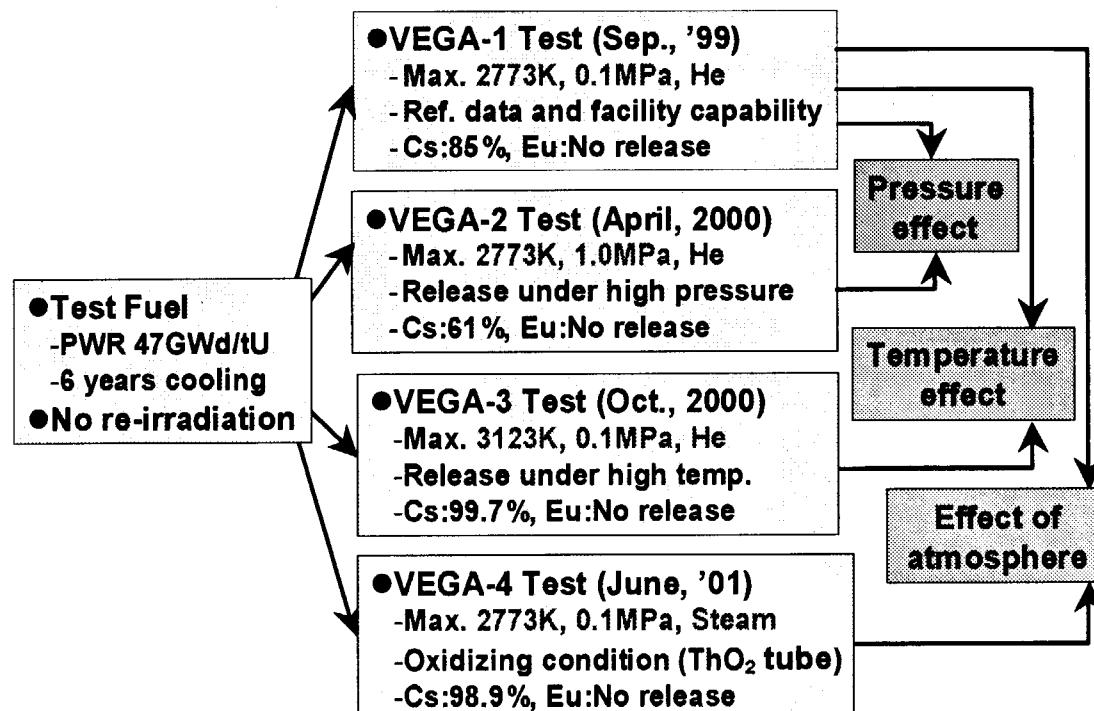


Fig. 6.1-1 Summary of VEGA tests

用いた燃料は、燃焼度 47GWd/tU の PWR 燃料ペレット 2 個、約 10g で被覆管を取り除いたものである。第 2 回目の VEGA-2 実験は、雰囲気圧力を 1.0MPa とした以外は VEGA-1 実験とほぼ同じ条件で 2000 年 4 月に行った。第 3 回目の VEGA-3 実験は、最高温度を約 3,100K とした以外は VEGA-1 実験とほぼ同じ条件で 2000 年 10 月に行った。第 4 回目の VEGA-4 実験は、トリア製加熱炉と被覆管付きの燃料を使用し、雰囲気を水蒸気とした以外は VEGA-1 実験とほぼ同じ条件で 2001 年 6 月に行った。

これらの実験結果の比較から、高圧の VEGA-2 実験では、大気圧下の VEGA-1 実験に比べて実験した全ての温度域で Cs の放出率が約 30% 減少すること、高温の VEGA-3 実験では、試験燃料の溶融開始と同時に Cs の全量放出が観測されたが、低揮発性の Eu は溶融状態を約 20 分保持した後でもほとんど放出しないこと、水蒸気雰囲気下の VEGA-4 実験では、燃料の酸化により Cs の放出割合が増加し、Ru の放出割合も揮発性の高い酸化物が形成されるために増加することが明らかになった。また、Cs 放出に関する VEGA 実験の結果を UO₂ 結晶粒内の拡散係数でまとめて ORNL 実験の結果と比較した結果、温度依存性はやや異なるが、拡散係数は両者ともにアレニウス式にほぼ従うことが明らかになった。

VEGA 実験は、年に 2 回の頻度で 2005 年度まで実施する予定である。また、¹³¹I 等の短半減期核種を生成させるために研究炉を用いて事前照射を行うとともに、雰囲気条件を空気や水素に変えることにより、高燃焼度 UO₂ 及び MOX 燃料からの低揮発性核種及びアクチニドの放出挙動を体系的に調べることにしている。さらに、圧力の影響を考慮した放射性物質放出モデルを開発し、原研のソースターム解析コード THALES-2⁽⁵⁾に組み込む予定である。

(日高 昭秀)

6.2 圧力の影響

シビアアクシデント時の照射済燃料からの放射性物質放出挙動に関して、これまで大気圧条件下で数多く実験が行われてきたが、詳細なデータ観測が可能な炉外実験において高圧条件でのデータは得られていなかった。そこで、圧力の影響を見ることを目的として、1.0MPa の圧力で VEGA-2 実験を実施し、圧力以外はほぼ同条件で行った VEGA-1 実験⁽⁴⁾と比較した。VEGA-2 実験では、燃焼度 47GWd/tU の PWR 燃料ペレット 2 個、約 10g を、1.0MPa(VEGA-1 では大気圧) ヘリウム雰囲気で、2,000K(20 分)、2,300K(20 分)、2,750K(20 分)(VEGA-1 では 2,750K 時に 10 分) のプラトーを設けて誘導加熱した。

VEGA-2 実験において、 γ 線スペクトル測定で検出された核種は ¹⁰⁶Ru、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs 及び ¹⁵⁴Eu であった。実験前後で低揮発性である Eu の実験中における γ 線測定強度はほとんど変化しなかったことから、Eu の放出はないとの仮定に基づいて評価した FP 放出割合を Table 6.2-1 にまとめた。ただし、これらの放出割合は、実験中における γ 線検出器を用いて得られたスペクトルは高周波等の影響によりエネルギー分解能が悪いため、実験前後に別途行ったオフライン γ 線検出器の結果を用いて評価した。その際、半減期(¹⁰⁶Ru: 1.024 年、¹³⁴Cs: 2.062 年、¹³⁷Cs: 30.07 年及び ¹⁵⁴Eu: 8.593 年)を考慮した⁽⁶⁾。¹³⁴Cs と ¹³⁷Cs の放出割合とそれぞれの誤差に基づいて重み平均し

Table 6.2-1 Preliminary data on fractional release estimated from intensity changes of γ peaks

Nuclide	γ -Ray Energy [keV]	VEGA-1, He (2773K, 0.1MPa)		VEGA-2, He (2773K, 1.0MPa)		VEGA-3, He (3123K, 0.1MPa)		VEGA-4, Steam (2773K, 0.1MPa)		VI-3*
		Released [%]	Error[%]	Released [%]	Error[%]	Released [%]	Error[%]	Released [%]	Error[%]	
Cs-134	605	85	0.1	62	0.3	99.5	0.08	98.9	0.40	99.9
Cs-137	662	86	0.1	61	0.2	99.5	0.03	93.4	0.13	
Ru-106	622	4.7	7.2	0	8.5	0	19.0	52	18.7	5
Ce-144	696	0	53.8	0	17.2					<0.2
Eu-154	724	0	4.4	0	5.0	0	5.0	0	7.1	<0.01
	1275	0	3.0	0	2.0	0	2.0	0	3.8	

*ORNL Test VI-3 : 2700K (20min) in steam

て算出した VEGA-2 実験の最終的な Cs の放出割合は 61% であった。VEGA-2 実験の約 2,750K における保持時間は VEGA-1 より長かったにもかかわらず、VEGA-2 の Cs の放出割合は VEGA-1 のそれ(85%)に比べて約 25% 小さいことが確認された。低揮発性の Ru の放出割合は、VEGA-1 及び VEGA-2 実験共にほぼ 0% であった。

圧力による両実験における放出挙動の違いを定量化するため、放出率速度係数を用いてデータを整理した。放出率速度係数は、燃料内残存インベントリからの 1 分当たりの放出割合で定義される。3 つの温度プラトーにおける Cs の放出率速度係数を Fig.6.2-1 に示す。ここで、プラトー温度

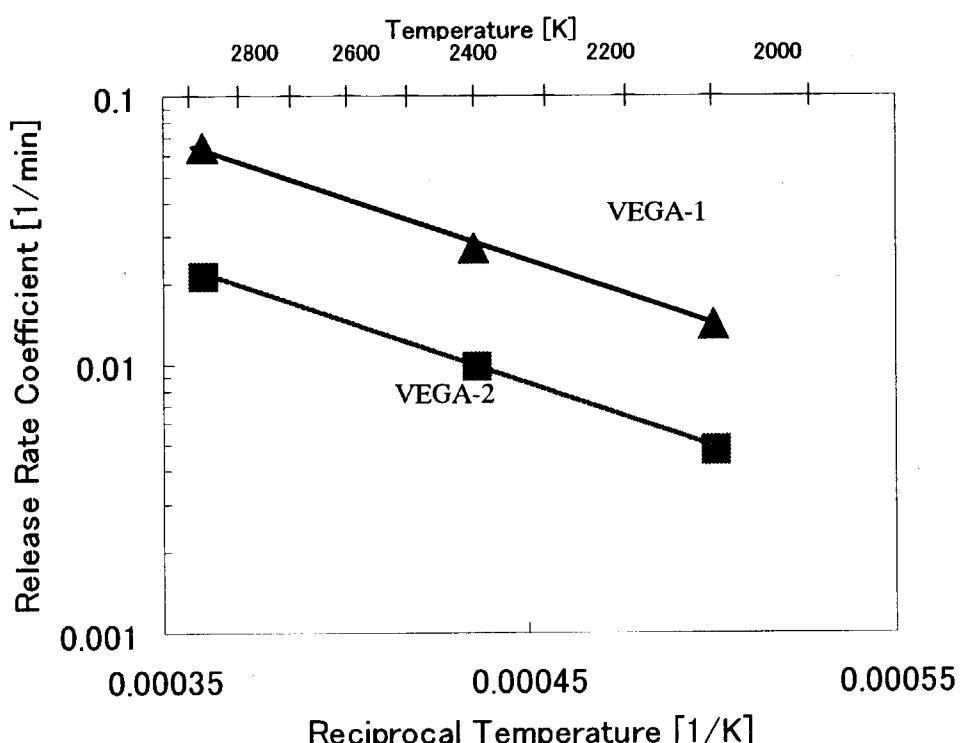


Fig. 6.2-1 Comparison of release rate coefficients of Cs between VEGA-1 and -2 tests

は各プラトーにおける温度の平均値に等しい。全温度プラトーにおいて、高圧の VEGA-2 は、低圧の VEGA-1 に比べて放出率速度係数が小さくなり、高圧条件では燃料からの放射性物質放出が抑制される傾向が見られた。その原因としては、試験条件における放出の律速過程は UO_2 結晶粒内拡散にあるが、その放出先である燃料内開気孔中の体積は非常に小さいため、高圧下で開気孔中の気体密度増加と拡散速度減少が起きた際、単位体積当たりの気体状放射性物質濃度は結晶粒内拡散とは関係なく上昇する。これにより結晶粒表面の放射性物質濃度も増加するため、結晶粒内の径方向濃度勾配が減少し、結晶粒から開気孔中への放出量が減少する結果、燃料からの放出が抑えられたと考えられる⁽⁷⁾。

(工藤 保)

6. 3 溫度の影響

燃料の融点(約 3,100K)付近での放出挙動を調べるために、不活性雰囲気・大気圧下で最高温度を約 3,100K まで上げる VEGA-3 実験を行った⁽⁸⁾。試験燃料は、被覆管を取り除いた燃焼度 47GWd/tU の PWR 燃料ペレット 2 個分である。揮発性 Cs の放出速度は 2,800K 以上でそれ以下よりも増加し、最終的な Cs の放出割合はほぼ 100% に達したが、低揮発性の Ru と Eu のそれはゼロであった(Table 6.2-1 参照)。

VEGA-3 実験の Cs 放出データから求めた放出率速度係数を VEGA-1 実験の結果及び既存モデルの放出率速度係数と併せて Fig. 6.3-1 に示す。2,800K 以下では、温度プラート一部で若干バラツキはあるものの VEGA-1 実験、VEGA-3 実験共に Cs の放出率速度係数はアレニウス式に従つた。また、既存の CORSOR-M モデル⁽⁹⁾や CORSOR-O モデル⁽¹⁰⁾は、燃料の融点を超える温度域まで検証されていないが、高温域において十分に保守的な結果を与えることが明らかになった。VEGA-3 実験では、VEGA-1 実験で設定した 2,000K・20 分の温度プラートが無いことにより、2,000K 以上の放出率速度係数は VEGA-1 実験よりも若干小さくなつた。このため放出挙動は、單に燃料温度だけではなく、ある温度がどの程度持続されたか、すなわち、その昇温履歴にも依存することが明らかになつた。

2,800K 以上における Cs 放出率速度係数は、燃料の融点以下の測定データから求めた放出率速度係数をアレニウス式に従つて外挿した場合と比較して約 1 衍増加した。その原因として、3,100K 付近は燃料溶融による放出機構の変化、約 2,800K と約 3,100K の間は、SNL の ACRS 実験等でも観測された結晶粒界に蓄積した放射性物質が溶融して起きる燃料の泡状化⁽¹¹⁾、あるいは測定上の不確実性等が関連している可能性がある。このことは、2,800K 以上の高温域における放射性物質放出挙動のモデル化に当たっては、 UO_2 結晶格子を常に健全と仮定する CORSOR 型モデルや結晶粒内の拡散モデル等の従来法からの外挿とは違つたアプローチが必要であることを示している。

(日高 昭秀)

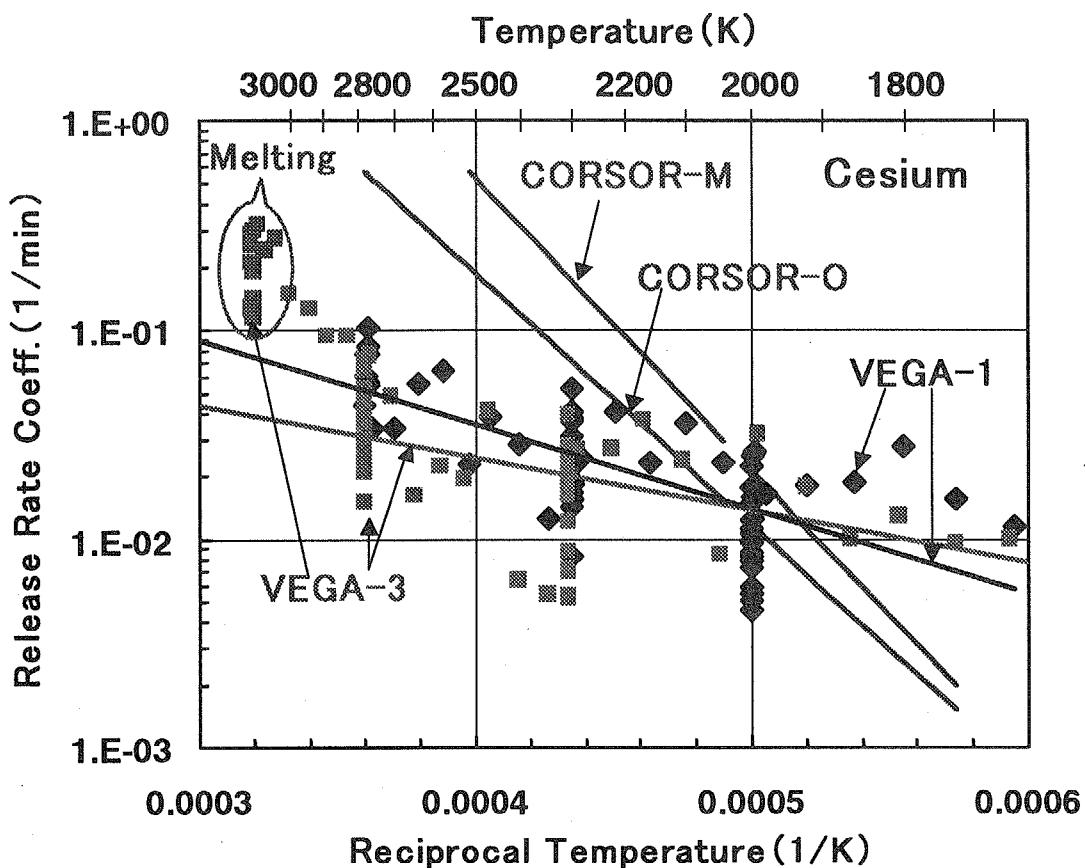


Fig. 6.3-1 Comparison of release rate coefficients between VEGA-1 and -3 tests

6. 4 霧囲気の影響

燃料からの放射性物質放出挙動に及ぼす霧囲気条件による影響を調べるために、実際のシビアアクシデント時の炉心霧囲気に近い水蒸気下で VEGA-4 実験を実施し、霧囲気以外ほとんど同じ条件で行った VEGA-1 実験⁽⁴⁾と比較した⁽¹²⁾。燃焼度 47GWd/tU の被覆管付き (VEGA-1 では被覆管無し) PWR 燃料ペレット 2 個を、大気圧下の水蒸気及びヘリウム混合霧囲気 (VEGA-1 ではヘリウム霧囲気) で、2,000K(20 分)、2,300K(20 分)、2,750K(20 分) (VEGA-1 では 2,750K 時に 10 分) のプラトーを設けて誘導加熱した。ルツボ等の加熱炉構造物として、VEGA-1～-3 ではタンクステン、VEGA-4 では高温・水蒸気霧囲気下でも化学的に安定なトリアを用いた。トリアは熱衝撃に弱いため、VEGA-4 の昇温速度を 20K/分 (VEGA-1 で 60K/分) とした。

燃料からの Cs の放出履歴を Fig. 6.4-1 に示す。Cs と Ru の最終的な放出割合は、加熱前後にオフラインで測定した燃料の γ 線スペクトルの変化から、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 及び ^{106}Ru に対して評価した (Table 6.2-1)。不活性霧囲気で実施した VEGA-1 における Cs の放出割合は約 85% であったが、

水蒸気雰囲気の VEGA-4 ではほぼ 100%に達した。Ru は VEGA-1 ではほとんど放出されなかつたが、VEGA-4 の放出割合は 52%と大きくなつた。これは Ru が水蒸気により酸化され、揮発性の高い RuO_4 等に変化したためと考えられる。ただし、本実験における Ru の γ 線スペクトル強度は小さく、測定誤差が大きい可能性がある。今後は、再照射により短半減期核種を生成させた燃料を用いて実験を行い、再評価する予定である。

Cs 放出データから評価した放出率速度係数を Fig.6.4-2 に示す。VEGA-1 に比べて VEGA-4 の放出率速度係数が大きくなることが明らかとなつた。これには、燃料が酸化することによって燃料結晶粒内の格子欠陥が増加して結晶粒内での拡散が容易になったこと、燃料が被覆管との共晶反応により液化したことが影響していると思われる。

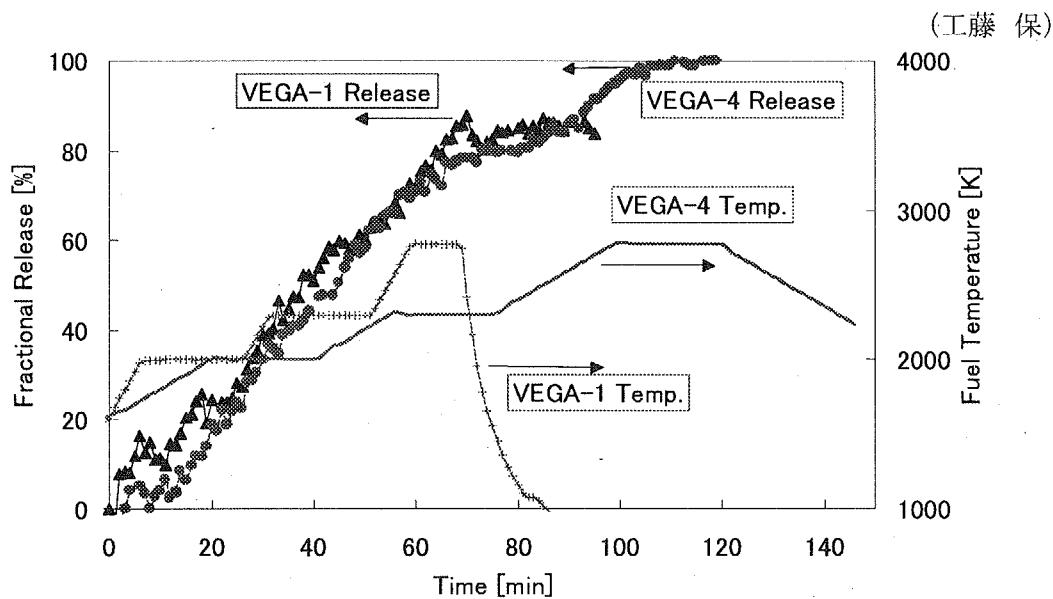


Fig. 6.4-1 Comparison of fractional release history of Cs between VEGA1 and -4 tests

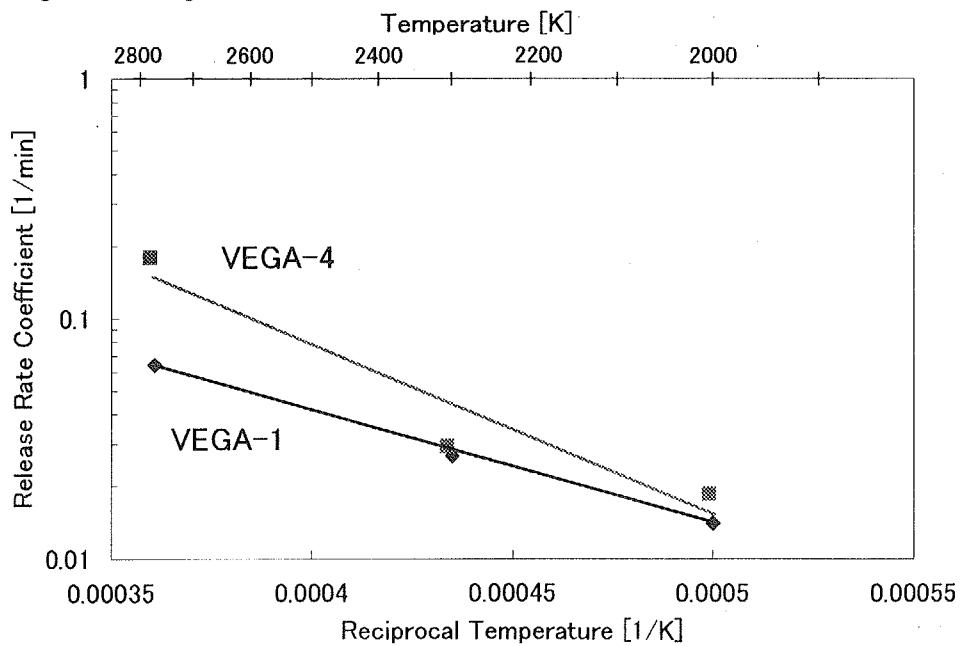


Fig. 6.4-2 Comparison of release rate coefficients of Cs between VEGA1 and -4 tests

6. 5 既存の放出モデルと実験結果との比較

既存のFP放出モデルの予測性能を調べるため、VEGA-1実験における燃料からのCs放出に関して、放出率速度係数に基づくNUREG-0772モデル⁽¹²⁾、CORSOR-Mモデル⁽⁹⁾、CORSOR-Oモデル⁽¹⁰⁾及び拡散係数に基づくORNL-Boothモデル⁽¹⁰⁾を用いた計算と実験との比較を行った⁽¹⁴⁾。その結果をFig. 6.5-1に示す。VEGA-1実験の傾向は既存モデルでほぼ再現することができたが、NUREG-0772モデルとCORSOR-Mモデルは、殆ど全ての温度領域において放出割合を過大評価した。それらのモデルが開発された1985年以前は、実験データが限られていたのが主な原因と考えられる。一方、ORNLのHI・VI実験の結果を反映したCORSOR-Oモデル及びORNL-Boothモデルの結果は、実験結果により近くなつたが、2,300K以上で共に過大評価となつた。それらのモデルの元になったORNL実験は水蒸気雰囲気・被覆管付きで行われ、被覆管と燃料の共晶反応により2,400K前後で液化したため、高温域での放出割合が不活性・被覆管無しのVEGA実験よりも大きくなつたと考えられる。

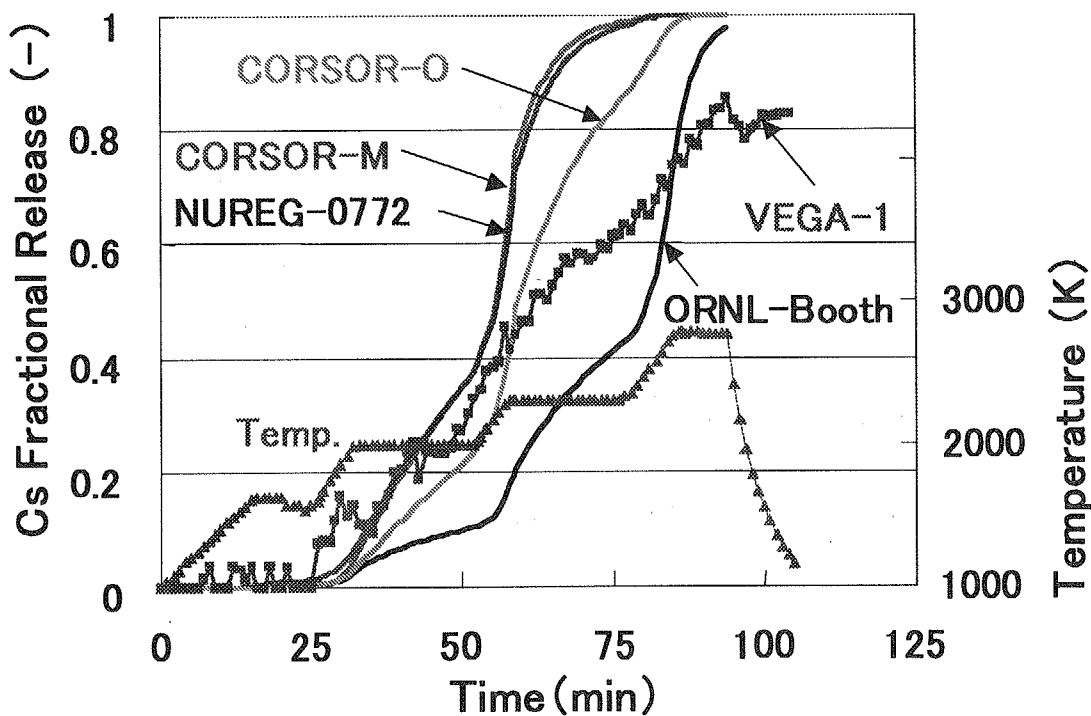


Fig. 6.5-1 Comparison of Cs release of VEGA-1 between measurement and calculation

VEGA-1実験で得られたCs放出データを放出率速度係数 $k^{(10)}$ で整理するとFig. 6.5-2の左図に示すようにほぼアレニウス型となつたが、全体的にバラツキが大きくなつた（回帰曲線の信頼度を表す決定係数 $R^2=0.52$ ）。一方、放出データをBoothモデル⁽¹²⁾に基づく UO_2 結晶粒内の拡散係数Dで整理した場合、Fig. 6.5-2の右図に示すように拡散係数のアレニウス式への回帰状況は向上した（決定係数=0.86）。このことから、VEGA実験のCs放出は UO_2 結晶粒内の拡散過程が律

速であったと考えられる。今後、事前照射による短半減期核種生成や水蒸気雰囲気実験を行い、それらの解析を通してモデルの検証、放出機構解明を進める。

(日高 昭秀)

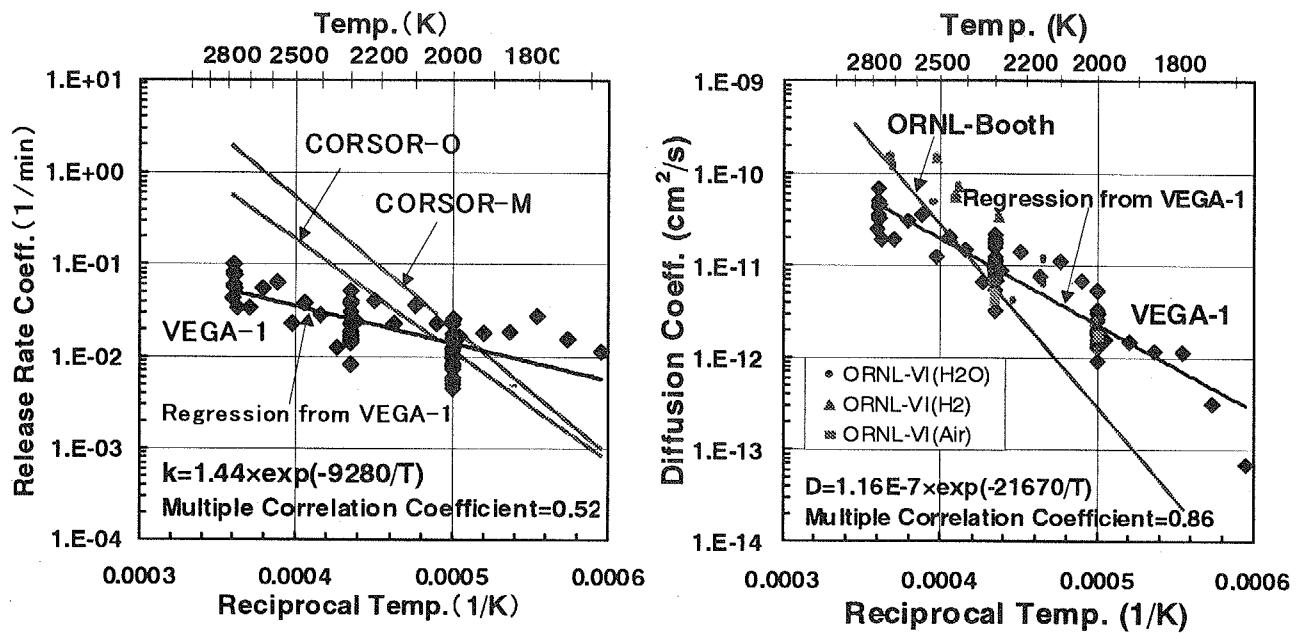


Fig. 6.5-2 Release rate and diffusion coefficients for Cs release in VEGA1

6.6 放射性物質移行挙動解析

米国 NRC は、シビアアクシデント時における燃料からの放射性物質放出、ガス状及びエアロゾル状放射性物質の熱化学平衡状態と移行挙動を解析するために、VICTORIA2.0 コード⁽¹⁵⁾を整備している。VEGA 計画では、結晶粒内拡散と結晶粒界開気孔中拡散に基づいて放射性物質放出を記述する同コードを実験解析に使用する。ここでは、水蒸気雰囲気を用いた VEGA-4 実験の Cs 放出と VEGA-1 実験における実験装置内の Cs 移行・沈着に関する解析について記述する。

VICTORIA2.0 コードは、燃料からの放射性物質放出については、燃料結晶粒内拡散を Booth モデル⁽¹⁶⁾で、結晶粒界開気孔中拡散を 2 成分気体の拡散に関する Chapman-Enskog モデル⁽¹⁷⁾で計算する。VEGA-4 実験から得られた Cs 放出割合と VICTORIA2.0 による解析値との比較を Fig. 6.6-1 に示す。解析では、燃料粒内の Cs 拡散係数として、VEGA-1 実験データから得られた回帰式(Fig. 6.5-2 参照)を用いている。解析値は燃料温度の上昇とともに Cs 放出割合の増加傾向を良く模擬しており、実験終了時における放出割合の誤差は約 2% であった。VEGA-4 実験における Cs 放出速度が解析値より早いのは、燃料の酸化により結晶粒内の放射性物質拡散が促進されたためと考えられる。

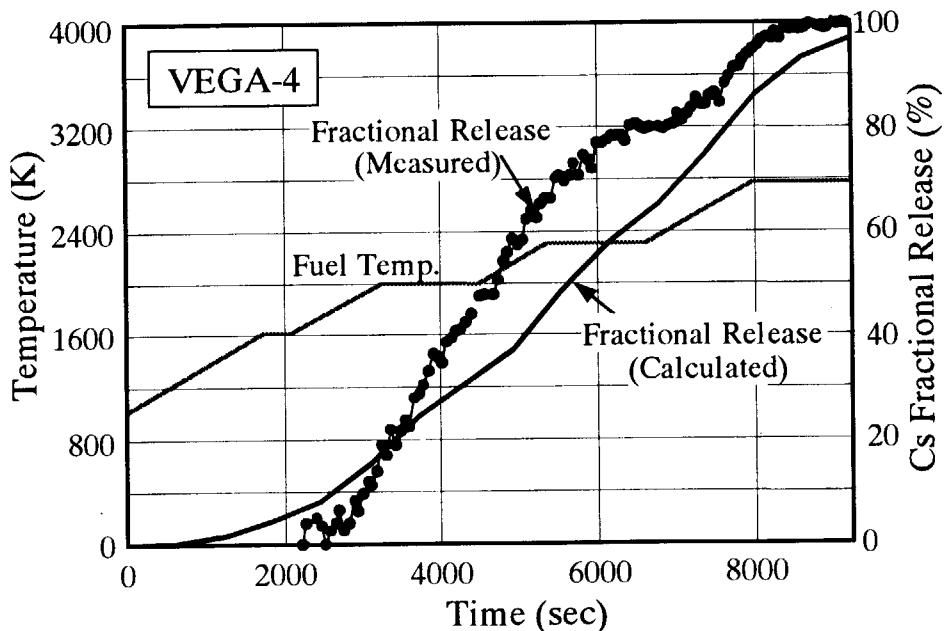


Fig. 6.6-1 Comparison of Cs fractional release in VEGA-4 between measurement and VICTORIA2.0

Fig. 6.6-2 に、VEGA-1 実験における実験装置内への Cs 沈着分布と解析結果との比較を示す。加熱炉内残留割合及び温度勾配管(TGT)への沈着割合については両者良く一致しているが、解析ではインラインヒータ、垂直及び水平配管への沈着がほとんど無く、大部分がフィルターへ沈着した。これは、解析におけるエアロゾルの質量中央径(MMD)が $0.14\mu\text{m}$ と小さく、水蒸気 + ヘリウムガスの流れとともに系内を通過したためである。実験では、実験後期にインラインヒータ下部で流路閉塞が起きたため、インラインヒータでの沈着量が増加した。また、加熱炉断熱材として使用したグ

ラファイトの粒子が系内に流入したと考えられ、これを核とした不均質核形成により比較的大きな C+Cs エアロゾルを形成し、主に重力沈降により途中の配管へ沈着したと推測される。事実、VEGA-1 実験において、カスケードインパクターで捕捉されたエアロゾルの質量中央径(MMD)は 7 μm であり、解析値の約 50 倍であった。一方、TGT への沈着割合が良く一致しているのは、エアロゾルの沈着よりも、CsI など Cs 化合物の凝縮が支配的なためと考えられる。

今後、エアロゾル粒径を考慮した解析を実施するとともに、実験データとの比較により解析モデルの検証及びモデルの改良を進め、放射性物質の放出機構解明に役立てる予定である。

(金沢 徹)

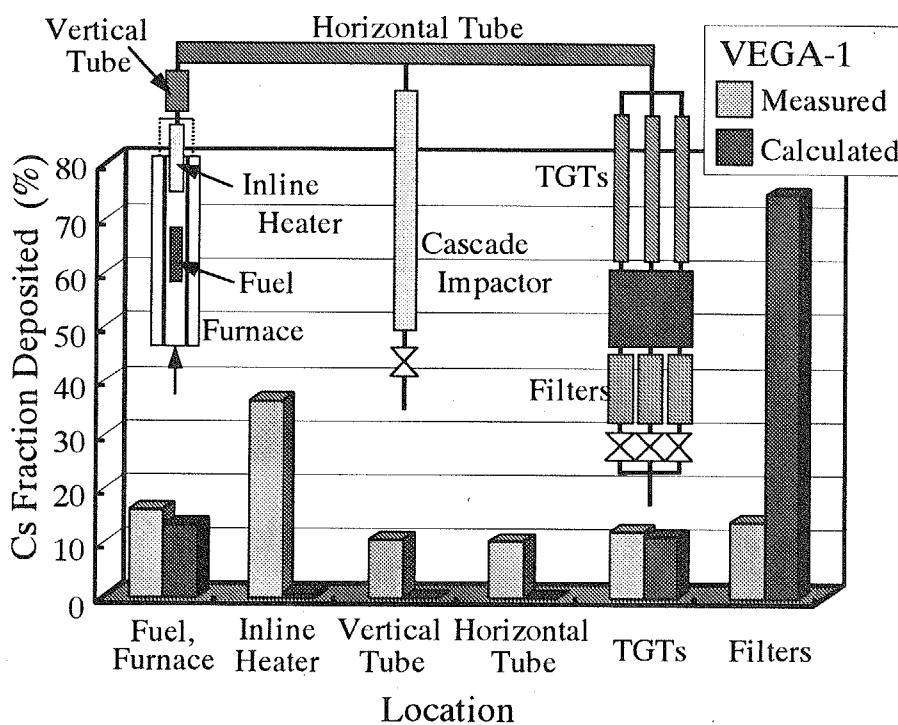


Fig. 6.6-2 Comparison of Cs fraction deposited in VEGA-1 between measurement and VICTORIA2.0

6. 7まとめ

VEGA 計画では、これまでに装置の最高性能である 3100K、1.0MPa を含む条件下で不活性雰囲気実験を 3 回、水蒸気雰囲気実験を 1 回実施した。1.0MPa の高圧下で行った VEGA-2 実験では、大気圧下の VEGA-1 実験に比べて、実験した全ての温度域で Cs の放出率が約 30% 減少することを世界で初めて観測した。3,123K まで昇温した VEGA-3 実験では、燃料溶融時に Cs のほぼ全量が放出したが、低揮発性の Eu と Ce は全く放出しなかった。水蒸気雰囲気の VEGA-4 実験では、不活性雰囲気に比べて Cs の放出が促進した。Ru の放出も、揮発性が高い酸化物形成のため、不活性雰囲気に比べて増加した。既存の FP 放出モデルは、VEGA-1 実験の Cs 放出挙動を

ほぼ再現できた。しかしながら、被覆管の無い VEGA-1 実験では、燃料と被覆管との共晶反応が生じなかったため、それを考慮した既存モデルは、2,400K 以上における放出を過大評価した。VEGA-1 実験データから求めた UO₂結晶粒内の拡散係数はほぼアレニウス式に一致した。このため、Cs 放出の律速過程は結晶粒内の拡散現象であったと考えられる。

今後は、JRR-3 等の研究炉で再照射した高燃焼度 UO₂燃料や MOX 燃料からの低揮発性・短半減期 FP 及びアクチニドの放出挙動を調べる予定である。また、国際協力では、原研とフランスの原子力安全・防護研究所 (IPSN) の間すでに締結されている「原子力安全防護分野における協力取決め」に関する親協定の下に、照射済燃料からの放射性物質放出の分野においても特定協力課題に関する協定 (STC) を準備中であり、14 年度以降、研究協力を開始する予定である。

(日高 昭秀)

参考文献

- (1) T. Nakamura, et al., "Research program (VEGA) on the fission product release from irradiated fuel," JAERI-Tech 99-036, JAERI, (1999).
- (2) 日高昭秀、他、「VEGA 実験計画の概要及び CsI を用いた装置の性能確認実験」JAERI-Research 99-066 (1999).
- (3) 林田烈、他「照射済燃料からの放射性物質放出(VEGA)実験装置の運転・保守要領書」JAERI-Tech 2001-029 (2001).
- (4) 日高昭秀、他「シビアアクシデント条件下的照射済燃料からの放射性物質放出挙動 [VEGA-1 実験の結果]」JAERI-Research 2001-055 (2001).
- (5) M. Kajimoto, et al., "Development of THALES-2, A Computer Code for Coupled Thermal-Hydraulics and FP Transport Analyses for Severe Accident at LWRs and Its Application to Analysis of FP Revaporization Phenomena," Proc. Int. Topical Mtg. on Safety of Thermal Reactors, Portland, pp.584-592 (1991).
- (6) T. Kudo, et al., "Influence of Pressure on Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperatures up to 2773K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.38, No.10, pp.910-911 (2001).
- (7) 日高昭秀、他「シビアアクシデント時 Cs 放出に関する圧力影響モデルの検討」日本原子力学会 2001 年春の年会、東京、J33 (2001).
- (8) A. Hidaka, et al., "Enhancement of Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K," To be published as Short Note in J. Nucl. Sci. Technol. (2002).
- (9) D. J. Kuhlman, et al., "CORSOR user's manual," NUREG/CR-4173 (1985).
- (10) R. A. Lorenz, et al., "A Summary of ORNL Fission Product Release Tests With Recommended Release Rates and Diffusion Coefficients," NUREG/CR-6261 (1995).
- (11) M. D. Allen, et al., "Fission product release and fuel behavior of irradiated light water reactor fuel under severe accident conditions," NUREG/CR-5345 (1991).
- (12) 工藤保、他「水蒸気雰囲気・高温下における照射済燃料からの放射性物質放出実験

(VEGA-4)」日本原子力学会 2002 年春の年会発表予定

- (13) U. S. Nuclear Regulatory Commission, "Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior during LWR Accidents," NUREG-0772 (1981).
- (14) 日高昭秀、他「シビアアクシデント条件下の放射性物質放出に関する VEGA-1 実験の解析」
日本原子力学会 2001 年秋の大会, II (2001).
- (15) N. E. Bixler, "VICTORIA2.0, A Mechanical Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear Reactor Coolant System Under Severe Accident Conditions," NUREG/CR-6131 (1998).
- (16) A. H. Booth, et al., "A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO_2 Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test," Chalk River Report CRDC-721 (1957).
- (17) R. B. Bird, et al., "Transport Phenomena," John Wiley and Sons, New York, NY (1960).

7. 研究成果一覧

RIA Group

- (1) K. Kusagaya, T. Nakamura, M. Yoshinaga, H. Akie, T. Yamashita and H. Uetsuka: "Behavior of Rock-like Oxide Fuels under Reactivity Initiated Accident Conditions", Advanced Reactors With Innovative Fuels Workshop(ARWIF-2001),Chester, UK, October 22-24, 2001.
- (2) K. Kusagaya, T. Nakamura and H. Uetsuka,: "Behavior of particle-dispersed ROX fuel under reactivity initiated-accident conditions", 7th Inert Matrix Fuel (IMF) Workshop, Petten, the Netherlands, 25-26 October 2001.
- (3) 中村 仁一、吉永 真希夫、草ヶ谷 和幸、細山田 龍二、中村 武彦、田莉子 功、上塙 寛：“BWR 出力振動を模擬した軽水炉燃料の NSRR 照射試験”，日本原子力学会 2002 年春の年会，神戸(2002,3)
- (4) 武田 透、永瀬 文久、上塙 寛：“水素化物再配向が非照射BWR燃料被覆管のバースト特性におよぼす影響”，日本原子力学会 2002 年春の年会，神戸(2002,3)
- (5) T. Nakamura, S. Katanishi, Y. Kashima, S. Yachi, M. Yoshinaga, and Y. Terakado, "High Power Transient Characteristics and Capability of NSRR", J. Nucl. Sci. and Technol., Vol.39,No.3, pp.264～272, March 2002
- (6) T. Nakamura, K. Kusagaya, T. Fuketa, and H. Uetsuka,: "High Burnup BWR Fuel Behavior under Simulated Reactivity-Initiated-Accident Conditions", Nucl. Technol., VOL.138, June 2000
- (7) 中村 武彦、草ヶ谷 和幸、吉永 真希夫、上塙 寛：“高燃焼度(41～61GWd/tU)BWR 燃料の反応度事故挙動”，JAERI-RESEARCH 2001-054
- (8) D. Setoyama, M. Kuroda, T. Takeda, F. Nagase, H. Uetsuka, M. Uno, S. Yamanaka,: "REORIENTATION OF ZIRCONIUM HYDRIDE", International Symposium on Metal and Hydrogen Systems Annecy, France, 2-6 September 2002.
- (9) 草ヶ谷 和幸、中村 武彦、吉永 真希夫、小此木 一成、上塙 寛：“岩石型燃料の反応度事故条件下における挙動”，JAERI-RESEARCH 2001-010

LOCA Group

- (1) H. Uetsuka and F. Nagase, "Progress in JAERI program on high burnup fuel behavior under a LOCA transient", Proc. The topical meeting on LOCA fuel safety criteria, Aix-en-Provence, March 22-23, 2001, NEA/CSNI/R (2001)18, pp.197.
- (2) F. NAGASE, M. TANIMOTO, and H. UETSUKA, "Study of high burnup fuel behavior under LOCA conditions at JAERI", IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Behavior under Transient and LOCA Conditions, 10-14 September 2001, Halden, Norway.
- (3) 永瀬 文久、上塙 寛：“温度遷移を経験したジルカロイ燃料被覆管の機械特性変化(1)-照射済被覆管の機械特性変化-”，日本原子力学会 2001 年秋の大会，札幌(2001. 9)

- (4) 永井 敦也、永瀬 文久、上塙 寛：“温度遷移を経験したジルカロイ燃料被覆管の機械特性変化(2)-水素を添加した未照射ジルカロイ-2 及びジルカロイ-4 被覆管の機械特性変化-”，日本原子力学会 2001 年秋の大会, 札幌(2001. 9)
- (5) 吉永 真希夫、永瀬 文久、大友 隆、上塙 寛：“熱天秤を用いたジルカロイ被覆管の酸化速度評価”，日本原子力学会 2001 年秋の大会, 札幌(2001. 9)
- (6) F. Nagase and H. Uetsuka, "Study of High Burn up Fuel Behavior under LOCA Conditions at JAERI: Hydrogen effects on the failure bearing capability of cladding tubes" 29th Nuclear Safety Research Conference, Washington, U.S.A., October 32, 2001.
- (7) 谷本 政隆、永瀬 文久、上塙 寛：“水素濃度及び軸方向拘束力に依存したジルカロイ-4 被覆管のLOCA 時耐破壊特性の評価”，日本原子力学会 2002 年春の年会, 神戸(2002. 3)

JMTR/BOCA Group

- (1) 中村「照射済み燃料の熱特性研究」原子力安全性研究セミナー及び原子炉安全性研究ワークショップ講演集 JAERI-Conf 2001-008(2001) p.125-137

FEMAXI Group

- (1) Sergei E. Lemehov and Motoe Suzuki, PLUTON—Three-Group Neutronic Code for Burnup Analysis of Isotope Generation and Depletion in Highly Irradiated LWR Fuel Rods, JAERI-Data/Code 2001-025 (2001)

VEGA Group

- (1) 林田烈、他「照射済燃料からの放射性物質放出(VEGA)実験装置の運転・保守要領書」JAERI-Tech 2001-029.
- (2) T.Kudo, et al., "Influence of Pressure on Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperatures up to 2773K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.38, No.10, pp.910-911 (2001).
- (3) 日高昭秀、他「シビアアクシデント条件下の放射性物質放出に関する VEGA-1 実験の解析」日本原子力学会 2001 年秋の大会, II(2001).
- (4) 日高昭秀、他「シビアアクシデント条件下の照射済燃料からの放射性物質放出挙動[VEGA-1 実験の結果]」JAERI-Research 2001-055 (2001).
- (5) 工藤保、他「水蒸気雰囲気・高温下における照射済燃料からの放射性物質放出実験(VEGA-4)」日本原子力学会 2002 年春の年会, J27(2002).
- (6) A. Hidaka, et al., "Enhancement of Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.39, No.3, pp.273-275 (2002).

付録1

Appendix 1

各研究分野の概要の英訳

English translation of the outline of each research activity

1. RIA

Extensive study on high burnup fuel behavior during reactivity-initiated accident (RIA) is being performed at JAERI for verification and optimization of safety margins in RIAs of power producing light water reactors (LWRs) in the course of burnup extension and uranium-plutonium mixed-oxide (MOX) fuel utilization. The study includes pulse-irradiation tests in the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) and mechanical testing of the cladding. The objectives of these experiments are to investigate the failure threshold of fuels at the wide range of fuel burnups and to clarify its mechanism and influence.

The pulse irradiation tests with PWR fuels at burnups up to 50GWd/t and BWR fuels at burnups up to 61GWd/t by year 2000 indicated possible low enthalpy failure of high burnup fuels. The results on the failure thresholds, its mechanism and influence were used to modify the Japanese safety evaluation guidelines for RIAs. However, in order to confirm the safety margins for the burnup extension to 55GWd/t (assembly average), which is being in practice in Japan, data on the rods at about 70GWd/t (pellet average) is necessary. Therefore, in addition to the tests to clarify the failure mechanism of the fuel at conventional burnups, preparation of the tests of fuels at higher burnups started in year 2001. Furthermore, a new series of tests was initiated to investigate fuel behavior under BWR power oscillation conditions without scram. This type of power transient tests was conducted for the first time in the world in test reactors.

Cooling water flow reduction would cause increase of void fraction and subsequent power reduction in BWRs. Then, the power could be increased decrease of the void fraction due to the power reduction could generate subsequent power increase. This nuclear and thermal-hydraulic coupled oscillation could grow extensively under certain reduced flow and relatively high power conditions. More than ten incidents of this type, e. g. one at LaSalle Unit #2 in the US in 1988, have been reported over the world. In these incidents, power oscillation was terminated by reactor scram and integrity of the reactor fuel was not threatened. However, in anticipated power oscillations without scram, the peak power could grow by a factor of ten of the nominal in several minutes. Possibilities of the anticipated power oscillations without scram are higher than that of rod drop accidents in BWRs. Integrity of the fuel under such power oscillation condition has not been examined. Therefore, in order to investigate high burnup fuel behavior under the BWR power oscillation conditions, a new type of power transient tests using the Shaped Pulse operation of the NSRR were initiated.

Two pulse irradiation tests of irradiated fuels under simulated RIA conditions were performed

using a BWR fuel rod at burnup of 61GWd/t and a PWR fuel rod at 50GWd/t. In these tests, transient cladding hoop strains during the simulated RIAs were successfully measured for the first time. Plenum gas temperature, in addition to pressure, during the transient was measured in the PWR fuel test to evaluate transient fission gas release. Two other tests of irradiated fuel rods were conducted under power oscillation conditions of BWRs. A BWR fuel rod at a burnup of 56GWd/t and a 20% enriched test rod irradiated in the JMTR to 25GWd/t were subjected to 4 to 7 power oscillations of peak powers up to 2 to 4 times of the nominal. Data on pellet expansion, cladding deformation due to PCMI, and fission gas releases were obtained in these tests under power oscillation conditions without transition boiling. Conditions and results of irradiated fuel tests are summarized in **Table 2.1-1**.

Separate effect tests with fresh fuels demonstrated that brittle failure of the high burnup fuels could be simulated with PCMI loading due only to thermal expansion of the pellets and embrittled cladding by hydriding. However, fuel enthalpy and hydrogen content of the cladding that caused the failure was higher than those observed in high burnup fuel tests. These results suggested that neutron irradiation played a certain role for the cladding embrittlement in high burnup fuels in addition to the hydriding. Fuel centerline temperature measurement was performed in fresh fuel tests under power oscillation conditions to obtain verification data on fuel temperature and enthalpy calculations. Conditions and results of fresh fuel tests are summarized in **Table 2.1-2**.

In order to quantify degradation of cladding strength, out-of-pile mechanical testing of the hydrided cladding was performed which simulated embrittled high burnup cladding. Burst testing of BWR cladding was initiated, in addition to ring tensile testing of PWR cladding, to investigate mechanism of the high burnup BWR fuel failure.

2. LOCA

Effects of the burnup extension on the fuel behavior under loss of coolant accident (LOCA) conditions have not sufficiently been clarified. Therefore, research on the high burnup fuel behavior under LOCA conditions is one of the most important subjects in the fuel safety research. The Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) performs the systematic research which covers a wide range of testing conditions, intending to evaluate the effect of burnup extension on fuel behavior under LOCA conditions and to acquire basic data necessary for the regulation. In this study, various fundamental experiments are

planned for evaluating oxidation rate, mechanical property changes after β -quench, ballooning and burst behavior, and failure bearing capability on the quench of cladding tubes which are pre-oxidized, pre-hydrogenated, and/or irradiated at a research reactor (JRR-3) as well as those sampled from spent fuel rods.

Concerning high temperature oxidation behavior of cladding tube in steam, separate effects of pre-oxidation and pre-hydriding were examined on high temperature oxidation rate. To perform the oxidation test efficiently and acquire basic knowledge on the high temperature oxidation mechanism, we adopted a thermobalance which enables continuous weight-gain measurement.

Under the LOCA condition, the cladding tube is oxidized from inner and external surfaces near the burst position. The inner surface oxidation causes significant hydrogen absorption and influences the failure-bearing capability on quench. Then, "integral thermal shock test" are performed, simulating the whole LOCA sequence including burst and subsequent double-sided oxidation, to evaluate the failure bearing capability of the fuel rod. The Zircaloy cladding tube is axially extended with the temperature increase and oxide layer growth in a LOCA, while it shrinks with the temperature drop. The shrinkage may be restricted by lockup or increase of friction between fuel rod and spacer grid, and tensile loading is possibly generated in the cladding tube. In the test performed in 2000, a short test rod with pre-hydrided Zircaloy-4 cladding tube was tested completely restraining the shrinkage during quenching in order to conservatively simulate the possible occurrence of tensile load. Obtained test results showed that the failure threshold is lowered by pre-hydriding under the restrained condition [1,2]. However, the fully restrained condition is probably too conservative, and realistic restraint load conditions can be between the non-restrained and the fully restrained conditions. The integral thermal shock tests under controlled restraint loads were carried out as the collaboration program between JAERI and Kansai Electric Power Co., Inc. and variations of the failure threshold value were evaluated as functions of hydrogen concentration and restrained condition during quenching.

The influence of the restraint load on the failure threshold is large as indicated by the integral thermal shock tests. Therefore, it is also required to estimate the realistic range of the restraint load. The temperature of control-rod guide tube is generally lower than that of fuel rod, and difference in the extent of shrinkage between the fuel rod and the guide tube is one cause of the restraint load during quenching, under the assumption of complete lock-up at fuel rod/grid and

guide tube/grid contact positions. Tensile load in the fuel rod is supported by the guide tube. Since the number ratio of guide tube to fuel rod is small, the load is so higher in the guide tube that the guide tube may fail earlier than the fuel rod and maximum restrained load in fuel rod is limited by resistance of guide tube to compressive load. To estimate the maximum restrained load in fuel rod, compression tests were performed for guide tubes after oxidized and quenched.

3. Research on Fuel Behavior under Normal Operation Conditions

In the irradiation research at the Japan Materials Testing Reactor (JMTR), refabricated short length UO₂rod irradiated at Oi unit 1 was re-irradiated by means of Boiling Water Capsule/Oarai Shroud Facility-1(BOCA/OSF-1) for ramp test in the JMTR. 17x17 PWR rod irradiated at Takahama unit 3 to study the high burnup the re-irradiation test to attain high burnup was continued in JMTR. The irradiation tests of refabricated rods irradiated at Oi unit 1 for burnup accumulation have been completed at the JMTR and the maximum burnup has reached about 63 GWd/t.

As a part of PIE on high burnup fuel, thermal diffusivity of gadolinia added fuel and UO₂ fuel irradiated at Oi unit 2 was measured from room temperature to 1800 K.

As cooperative researches, irradiation test to study the ultra-high burnup fuel behavior was carried out in the JRR-3, and other seven cooperative researches with many Japanese agencies and companies were conducted by means of the Halden Boiling Heavy Water Reactor (HBWR) in Norway. These cooperative researches have been carried out on schedule.

As an international collaboration, JAERI has participated in the OECD Haldn Reactor Project (2000.1.1-2002.12.31), and the irradiation data about thermal property degradation, fuel behavior of MOX fuel, waterside corrosion of cladding and creep of cladding were obtained. The irradiation tests as a collaboration with Japanese organizations were carried out at the HBWR.

4. Code Development

In the code development for fuel behavior in normal operating condition, verification calculations and improvements of fuel performance code FEMAXI-6 have been carried out. In FEMAXI-6 code, new models such as swelling by FP gas bubbles and high burnup structure have been installed, and function to read the result file of neutronics code PLUTON has been added. Verifications have been extended to analyze the data of commercial fuel rods. A code package of the PLUTON code has been prepared for the purpose of code release.

In accident conditions, development of a code FURBEL for LOCA fuel behavior has been further progressed. The first version of the FURBEL code with a basic structure and models has been completed, and experimental analysis with the code has begun.

A conceptual design of a code for RIA fuel behavior analysis has been also carried out on the basis of the experiences obtained through the FURBEL code development.

5. VEGA

The VEGA (Verification Experiments of radionuclides Gas/Aerosol release) program is being performed at JAERI to clarify mechanisms of radionuclides release from irradiated fuel under severe accident conditions and to improve source term predictability by accumulating the release data from high burnup UO₂ or MOX fuel. The release behavior of short life or low volatile nuclides and actinides of which data are not sufficient in the previous studies is mainly investigated by heating the fuel specimen up to 3,250K under conditions of steam atmosphere and elevated pressure up to 1.0MPa. One of special features is to investigate the effect of ambient pressure on the radionuclide release from fuel which has never been examined in previous studies.

The facility mainly consists of a steam/gas supply system, high-frequency induction furnace, thermal gradient tubes, aerosol/charcoal filters, noble gas trap, cascade impactor and on-line gamma measurement system. The test facility was installed into the beta/gamma concrete No.5 cell at the Reactor Fuel Examination Facility (RFEF) in February, 1999. The material for the VEGA furnace is selected depending on the maximum temperature of induction furnace and the carrier gas species. In the case of unoxidizing condition, tungsten (W) is used as crucible materials while ThO₂ is used under oxidizing condition.

Up to now, four VEGA tests were performed under various conditions including the highest temperature and pressure among previous studies. In the first VEGA-1 test performed in September 1,999, about 10g of fuel at 47GWd/tU without cladding was heated up to 2,773K under atmospheric pressure of inert helium to obtain a reference data and to confirm the facility capabilities. The second VEGA-2 test was conducted at 1.0MPa in April 2,000 under the same conditions as VEGA-1 except for the ambient pressure. In the third VEGA-3 test performed in October 2,000, the maximum temperature was raised up to 3,123K. The fourth VEGA-4 test was conducted in June 2,001 under the similar conditions as VEGA-1 except for use of the fuel with cladding and the ThO₂ furnace in steam atmosphere.

It was clarified from these tests that the fractional release of cesium (Cs) in the elevated

pressure VEGA-2 decreased by about 30% compared with that of VEGA-1 under atmospheric pressure. In the case of temperature above the UO_2 melting point, 100% of volatile Cs could be released but almost no release of low-volatile Eu. In the case under steam condition, the release of Cs is enhanced due to increase of the defects in UO_2 grain by oxidation. The release of Ru could be also enhanced by formation of ruthenium oxide with relatively high volatility. It was also found that the diffusion coefficients of Cs in the UO_2 grain obtained from the VEGA results agreed mostly with the ORNL's results although there is a slight difference in the temperature dependency between them. However, both of them follow the Arrhenius form.

Two VEGA tests per year are scheduled up to FY2005. The re-irradiation of fuel specimen will be performed in near future at JAERI's research reactor to accumulate the short-life nuclides such as I-131. The behavior of short life or low volatile nuclides and actinides released from high burnup UO_2 or MOX fuel will be systematically investigated under various kinds of carrier gas such as air and hydrogen. In parallel with these experimental activities, a radionuclide release model that can treat the pressure effect will be developed and incorporated into the JAERI's source term analysis code THALES-2.

This is a blank page.

付録 2

Appendix 2

研究成果概要

Abstracts of publications

本付録にまとめた要旨 (Abstract) は、投稿した論文に記載された要旨 (Abstract) に手を加えて書き直したものか、または、著作権者にそのまま転載することの了承を得たものである。

RIA Group

- (1) K. Kusagaya, T. Nakamura, M. Yoshinaga, H. Akie, T. Yamashita and H. Uetsuka: "Behavior of Rock-like Oxide Fuels under Reactivity Initiated Accident Conditions", Advanced Reactors With Innovative Fuels Workshop(ARWIF-2001),Chester, UK, October 22-24, 2001.
- (2) K. Kusagaya, T. Nakamura and H. Uetsuka,: "Behavior of particle-dispersed ROX fuel under reactivity initiated-accident conditions", 7th Inert Matrix Fuel (IMF) Workshop, Petten, the Netherlands, 25-26 October 2001.
- (3) 中村 仁一、吉永 真希夫、草ヶ谷 和幸、細山田 龍二、中村 武彦、田莉子 功、上塙 寛：“BWR 出力振動を模擬した軽水炉燃料の NSRR 照射試験”，日本原子力学会 2002 年春の年会，神戸(2002,3)
- (4) 武田 透、永瀬 文久、上塙 寛：“水素化物再配向が非照射BWR燃料被覆管のバースト特性におよぼす影響”，日本原子力学会 2002 年春の年会，神戸(2002,3)
- (5) T. Nakamura, S. Katanishi, Y. Kashima, S. Yachi, M. Yoshinaga, and Y. Terakado, "High Power Transient Characteristics and Capability of NSRR", J. Nucl. Sci. and Technol., Vol.39,No.3, pp.264～272, March 2002
- (6) T. Nakamura, K. Kusagaya, T. Fuketa, and H. Uetsuka,: "High Burnup BWR Fuel Behavior under Simulated Reactivity-Initiated-Accident Conditions", Nucl. Technol., VOL.138, June 2000
- (7) 中村 武彦、草ヶ谷 和幸、吉永 真希夫、上塙 寛：“高燃焼度(41～61GWd/tU)BWR 燃料の反応度事故挙動”，JAERI-RESEARCH 2001-054
- (8) D. Setoyama, M. Kuroda, T. Takeda, F. Nagase, H. Uetsuka, M. Uno, S. Yamanaka,: "REORIENTATION OF ZIRCONIUM HYDRIDE", International Symposium on Metal and Hydrogen Systems Annecy, France, 2-6 September 2002.
- (9) 草ヶ谷 和幸、中村 武彦、吉永 真希夫、小此木 一成、上塙 寛：“岩石型燃料の反応度事故条件下における挙動”，JAERI-RESEARCH 2001-010

Advanced Reactors With Innovative Fuels Workshop(ARWIF-2001), Chester, UK, October 22-24, 2001.

Behavior of Rock-like Oxide Fuels under Reactivity Initiated Accident Conditions

Kazuyuki Kusagaya, Takehiko Nakamura, Makio Yoshinaga, Hiroshi Akie,
Toshiyuki Yamashita and Hiroshi Uetsuka

要旨

3種類の未照射岩石型(ROX)燃料(YSZ 単相型、YSZ/スピネル均質型、および YSZ/スピネル粒子分散型)の反応度事故(RIA)時における挙動を調べるために、これらの燃料を用いたパルス照射試験を NSRR にて実施した。その結果、これらの ROX 燃料の破損しきい値は、単位体積あたりの燃料エンタルピで約 10 GJ/m³で、未照射 UO₂燃料と同等であることが分かった。しかし、ROX 燃料の破損形態は UO₂燃料とは大きく異なり、燃料ペレットの溶融と溶融燃料の一部の冷却水中への放出が見られた。この燃料の放出にもかかわらず、燃料と冷却水との熱的相互作用による機械的エネルギーの発生は、約 12 GJ/m³以下の本実験範囲内では、有意には観測されなかった。YSZ 単相型および YSZ/スピネル均質型燃料は被覆管温度が最高に達した時点で破裂により破損したのに対し、粒子分散型燃料は被覆管の局所的な溶融により破損したように見える。

7th Inert Matrix Fuel (IMF) Workshop, Petten, the Netherlands, 25-26 October 2001

Behavior of particle-dispersed ROX fuel under reactivity initiated-accident conditions

Kazuyuki Kusagaya, Takehiko Nakamura and Hiroshi Uetsuka

要旨

スピネルマトリックス中に YSZ 粒子を分散させた未照射の岩石型(ROX)燃料に対し、反応度事故を模擬したパルス照射試験を NSRR を用いて実施した。その結果、その燃料エンタルピの破損しきい値は約 10 GJ/m³であり、UO₂燃料および以前に試験した ROX 燃料(YSZ 単相型およびスピネル均質型)のそれとほぼ同等であることが分かった。燃料棒の破損は、温度測定および金相観察の結果などから、被覆管の局所的な溶融によって生じたと推定される。破損は燃料ペレットの溶融を伴ない、溶融燃料のほとんどは冷却水中に放出されたにもかかわらず、燃料—冷却水相互作用による機械的エネルギーの発生は有意には見られなかった。

日本原子力学会

2002年

春の年会
神戸

BWR 出力振動を模擬した軽水炉燃料の NSRR 照射試験

Irradiation Tests of LWR Fuel to Simulate Power Oscillation of BWRs in the NSRR

原研 ○中村 仁一 吉永 真希夫 草ヶ谷 和幸 細山田 龍二*
 中村 武彦 YOSHINAGA Makio KUSAGAYA Kazuyuki, HOSOYAMADA Ryuji,
 田莉子 功 上塙 寛 *キューブシステム
 NAKAMURA Jinichi, NAKAMURA Takehiko, TAKARIKO Isao, UETSUKA Hiroshi

BWR 出力振動時の燃料挙動を明らかにするための照射実験を原研の NSRR を用いて実施した。定出力運転後、周期約 2 秒で最大線出力約 48–98kW/m で 4–7 回の出力振動を与えた。燃料棒としては、未照射燃料、JMTR 照射燃料、高燃焼度 BWR 燃料を用い、出力振動時の被覆管伸び、ペレットスタック伸び等の PCMI 挙動、また、未照射燃料については燃料中心温度の測定を行った。

キーワード:出力振動実験,BWR,NSRR,燃料挙動, PCMI,

1. 緒言 BWRにおいては、外乱による炉心流量の低下がボイド発生に伴う出力低下をもたらし、その後、流量の回復とボイドの消滅による出力上昇が生じ、これが繰り返されることで原子炉出力が増幅的に振動する現象が起こり得る。この核熱的不安定による出力振動は、その発生頻度が反応度事故に比べて高いことから、原子炉の安全評価上重要な事象と認識されつつある。しかし、出力振動時における燃料の挙動については、約 2 秒の短周期での振動を試験炉で実現することが難しいことから実験的に調べられた例はない。そこで原研の NSRR 炉を用いて、出力振動実験を実施し、出力振動時の燃料挙動に着目した試験を行った。

2. 実験方法 NSRR では、台形パルス運転により、出力振動を模擬する運転方法を確立した(1)。未照射燃料(初期濃縮度 4.1%)、JMTR 照射燃料(初期濃縮度 19.5%燃焼度約 25GWd/t)、高燃焼度 BWR 燃料(初期濃縮度 4.5%燃焼度約 56GWd/t)を用い、線出力約 25–38kW/m で 5 秒間程度の定出力運転を行った後、周期約 2 秒で最大線出力約 48–98kW/m で 4–7 回の出力振動を与え、出力振動時の被覆管伸び、ペレットスタック伸び等の PCMI 挙動や燃料棒内圧変化等を測定した。未照射燃料については燃料中心温度の測定も行った。

3. 実験結果 図に燃焼度約 56GWd/t の高燃焼度 BWR 燃料を用いた実験結果を示す。燃料棒線出力は最初の一一定出力運転時で約 25kW/m、その後、周期約 2 秒で次第に振幅を大きくなり、第4サイクルの最高出力は約 48kW/m に達した。発熱量は約 250kJ/kg であるが、被覆管表面温度は約 100°C に留まり DNB は起こらなかった。燃料スタック及び被覆管の伸びは燃料棒出力の変化に対応した同様の変化を示しており、燃料と被覆管は一緒に伸び縮みしていることがわかる。また、伸びの最大値は 0.05% 以下であり、塑性変形はほとんどなく、出力サイクルの繰り返しとともに PCMI により被覆管の伸びが増大していく、いわゆるラチエッティング効果も観察されなかった。以上の結果より、DNB が起こらない範囲では、BWR の出力振動が燃料の健全性に与える影響は小さいと推定される。

(参考文献) (1)太田他、原子力学会 2001

秋の大会、L18

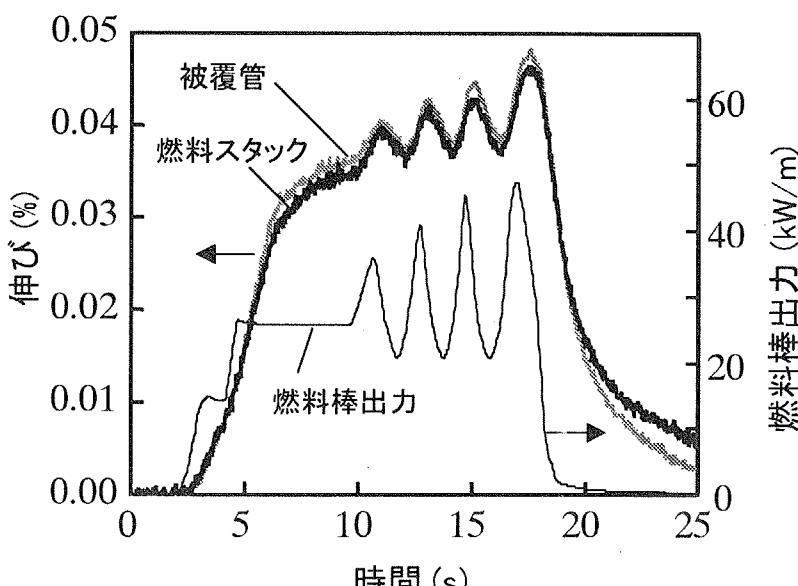


図 高燃焼度 BWR 燃料の出力振動実験結果

日本原子力学会

水素化物再配向が非照射BWR燃料被覆管のバースト特性におよぼす影響

2002年

The influence of hydride re-orientation for the burst properties of non-irradiated BWR fuel cladding.

春の年会

神戸

日本原子力研究所

○ 武田 透

TAKEDA Toru

永瀬 文久

NAGASE Humihisa

上塚 寛

UETSUKA Hiroshi

水素添加した BWR9×9型燃料被覆管に水素化物再配向熱処理を施し、水素化物を被覆管径方向に再配向させ、室温及び高温バースト試験を実施した。水素化物再配向の影響により、被覆管軸方向の長いクラックが発生するが、破損圧力および残留歪量は水素化物再配向の影響をほとんど受けない。

キーワード：ジルコニウム水素化物、水素化物再配向、バースト試験

1.はじめに これまでNSRRでは、高燃焼度燃料を対象とするパルス照射試験を実施しており、2000年にはBWR照射済燃料(61MWd/kgU)についての世界初の破損例を観察した。破損が生じた燃料では、水素濃度が150ppm以上であり、被覆管半径方向に配向した水素化物も見られた。更に、水素吸収量が多い燃料では水素化物密度が高く、より高い水素化物連結性を示し、小さい歪量で破損する傾向が見られている。そこで本研究では、高燃焼度における水素濃度の上昇と被覆管半径方向への水素化物の配向が被覆管の健全性におよぼす影響を検討するため、異なる水素濃度のBWR用燃料被覆管について水素化物を被覆管半径方向に再配向させた被覆管試料を製作し、バースト試験を実施した。

2.実験方法 BWR9×9型Zrライナー被覆管に高温水素雰囲気中で水素を吸収(200~650wtppm)させた試料を用いた。水素を添加した被覆管を周応力150MPaに相当する内圧を負荷したまま623Kから室温まで冷却(100K/hr)することにより、被覆管径方向に水素化物を配向させた試料(再配向材)を製作した。これらの試料を用いて、加圧速度約2MPa/sで内圧を負荷し、室温または高温(373K, 553K)でバースト試験を実施した。また、バースト後の試料について、金相観察、破損後残留歪み測定、破断面SEM観察等を実施した。

3.実験結果 図1に示すように、水素化物再配向熱処理により、析出した水素化物の一部が被覆管径方向に再配向したことが確認できる。

室温バースト試験で破損した試料の外観を図2に示す。室温では、再配向材の軸方向にクラックが進展し、破裂開口部の形態は再配向熱処理をしなかったものに比べ著しく異なった。一方、図3に示すように、破損後の残留歪量は水素濃度の増加と共に低下するが、水素化物再配向の影響はほとんど受けなかった。更に、破損圧力は水素濃度および水素化物再配向熱処理の影響を受けず、ほぼ一定であった。

373K試験では、再配向材において軸方向のクラック進展の促進が見られたが、553Kではその傾向は見られなかった。また、残留歪量は373Kでは水素濃度の増加と共に低下したが、553Kでは水素吸収の影響は見られなかった。更に、破損圧力は水素の影響を受けなかった。

従って、室温~373Kでは、本試験条件の範囲で水素濃度の増加は残留歪量の低下をもたらすと考えられる。これに対し、再配向した水素化物は軸方向のクラックを進展させる要因となるが、破損圧力および残留歪量等のバースト試験時の機械特性に及ぼす影響は比較的小さいと考えられる。これらの結果から、高燃焼度BWR燃料のNSRRパルス照射試験において323K~373K程度で見られた脆性的破損は、水素濃度の増加と水素化物の径方向への配向という水素効果のみが支配的要因となって生じたものではないと考えられる。

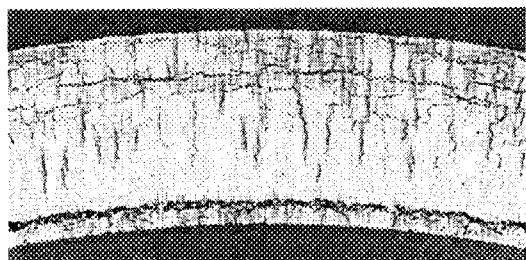


図1 再配向熱処理後の200ppm水素添加材

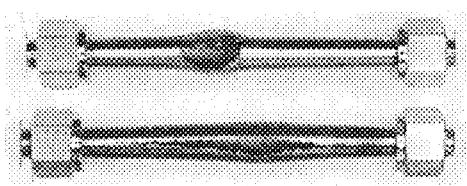


図2 200ppm水素添加材のバースト後の試料外観
(上段:再配向熱処理無し、下段:再配向熱処理有り)

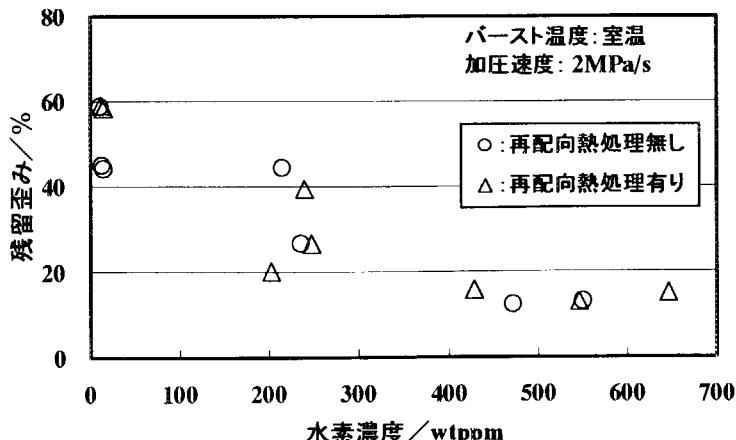


図3 被覆管残留歪みに及ぼす水素の影響

J. Nucl. Sci. and Technol., Vol.39, No.3, pp.264 ~ 272, March 2002

High Power Transient Characteristics and Capability of NSRR

**Takehiko NAKAMURA, Shoji KATANISHI, Yoichi KASHIMA,
Shigeyasu YACHI, Makio YOSHINAGA, and Yoshibumi TERAKADO**

Abstract

In order to study fuel behavior under abnormal transients and accidents, the control system of the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) of the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) was modified to achieve high power transients. With this new operational mode, called Shaped Pulse (SP), transients at the maximum power of 10 MW can be conducted for a few seconds. This new operational mode supplements the previous Natural Pulse (NP) operation at the maximum power of 23 GW for milliseconds. For high power transient operation, a simulator using a point kinetic model was developed, and characteristics of the NSRR in the new operational mode were examined through tests and calculations. With the new operational mode, new types of fuel irradiation tests simulating power oscillations of boiling water reactors (BWRs) can be conducted in the NSRR. Reactor characteristics and capability, such as control rod worth, feedback reactivity, and operational limits of the NSRR for SP operations are discussed.

Nucl. Technol., VOL.138, June 2000

High Burnup BWR Fuel Behavior under Simulated Reactivity-Initiated-Accident Conditions

**Takehiko NAKAMURA, Kazuyuki KUSAGAYA,
Toyoshi FUKETA, and Hiroshi UETSUKA**

ABSTRACT

Boiling water reactor (BWR) fuel at 56 to 61 GWd/tonne U was pulse irradiated in the Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) to investigate fuel behavior under cold startup reactivity initiated accident (RIA) conditions. Current Japanese BWR fuel, 8x8 type (Step II), from Fukushima Daini unit 2 was re-fabricated to short segments and thermal energy from 272 to 586 J/g (65 to 140 cal/g) was promptly subjected to the test rods. Cladding deformation of the BWR fuel by the pulse irradiation was smaller than that of pressurized water reactor (PWR) fuels. However, cladding failure occurred in tests with fuel at burnup of 61GWd/tU at fuel enthalpies of 260 to 360J/g (62 to 86cal/g) during early stages of transients, while the cladding remained cool. The failure was comparable to the one observed in high burnup PWR fuel tests, in which embrittled cladding with dense hydride precipitation near the outer surface was fractured due to pellet cladding mechanical interaction (PCMI). Transient fission gas release by the pulse irradiation was about 9.6 to 17% depending on the peak fuel enthalpy.

JAERI-RESEARCH 2001-054

高燃焼度(41~61GWd/tU) BWR 燃料の反応度事故挙動

中村 武彦、草ヶ谷 和幸、吉永真希夫、上塚寛

要旨

冷温起動時の反応度事故を模擬した条件で高燃焼度 BWR 燃料をパルス照射し、燃料の温度、変形、破損、FP放出挙動を調べた。本研究で用いた燃焼度 56GWd/tUまでの国産 BWR 燃料では、被覆管の水素吸収量は約 100ppm 以下であり脆化が小さいため、ピーク燃料エンタルピ^o 607J/g (145cal/g)までの実験条件の範囲ではペレット-被覆管機械的相互作用(PCMI 破損)は生じなかった。さらに燃焼度の高い燃焼度 61GWd/tU の BWR 燃料では水素吸収量が 150ppm を越え、燃料エンタルピ^o 260~360J/g (62~86cal/g)で PCMI 破損が生じた。この高燃焼度 BWR 燃料の破損挙動は本実験により初めて見出されたものである。また、照射後試験の結果、BWR 燃料では水素化物分布が比較的ランダムに分布していたため PWR 燃料に比べて低い水素吸収量で破損が生じたものと判断された。また、実験と解析コードによる計算結果の比較により、PCMI 破損のもたらす被覆管の変形は主にペレットの熱膨張によってもたらされること、被覆管の温度が上昇した場合には FP ガスによる変形が顕著になること等が明らかになった。

International Symposium on Metal and Hydrogen Systems Annecy, France, 2-6 September 2002.

REORIENTATION OF ZIRCONIUM HYDRIDE

D. Setoyama, M.Kuroda, T.Takeda, F.Nagase, H.Uetsuka, M.Uno, S.Yamanaka

ABSTRACT

Zirconium alloys have been used in nuclear industry for several decades and have been the most reliable material for the cladding of fuel rod. In recent years, a comprehensive understanding of the transition of orientation on hydride platelet in zirconium is one of the most important issues, since hydride in radial direction reduces the ductility of cladding tube and the high burnup of fuel for light water reactor is accompanied with high hydrogenation of cladding. In order to clarify the mechanism on the hydride reorientation, the hydraulically pressurization tests for Zircaloy tubes were carried out. The results suggested that the tensile stress, the temperature and diffusion length of hydrogen are closely related to the reorientation of hydrid

LOCA Group

- (1) H. Uetsuka and F. Nagase, "Progress in JAERI program on high burnup fuel behavior under a LOCA transient", Proc. The topical meeting on LOCA fuel safety criteria, Aix-en-Provence, March 22-23, 2001, NEA/CSNI/R (2001)18, pp.197.
- (2) F. NAGASE, M. TANIMOTO, and H. UETSUKA, "Study of high burnup fuel behavior under LOCA conditions at JAERI", IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Behavior under Transient and LOCA Conditions, 10-14 September 2001, Halden, Norway.
- (3) 永瀬 文久、上塙 寛：“温度遷移を経験したジルカロイ燃料被覆管の機械特性変化(1)-照射済被覆管の機械特性変化-”，日本原子力学会 2001 年秋の大会，札幌（2001. 9）
- (4) 永井 敦也、永瀬 文久、上塙 寛：“温度遷移を経験したジルカロイ燃料被覆管の機械特性変化(2)-水素を添加した未照射ジルカロイ-2 及びジルカロイ-4 被覆管の機械特性変化-”，日本原子力学会 2001 年秋の大会，札幌（2001. 9）
- (5) 吉永 真希夫、永瀬 文久、大友 隆、上塙 寛：“熱天秤を用いたジルカロイ被覆管の酸化速度評価”，日本原子力学会 2001 年秋の大会，札幌（2001. 9）
- (6) F. Nagase and H. Uetsuka, "Study of High Burn up Fuel Behavior under LOCA Conditions at JAERI: Hydrogen effects on the failure bearing capability of cladding tubes" 29th Nuclear Safety Research Conference, Washington, U.S.A., October 32, 2001.
- (7) 谷本 政隆、永瀬 文久、上塙 寛：“水素濃度及び軸方向拘束力に依存したジルカロイ-4 被覆管の LOCA 時耐破断特性の評価”，日本原子力学会 2002 年春の年会，神戸（2002. 3）

**IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Behaviour under Transient
and LOCA Conditions, 10-14 September 2001, Halden, Norway.**

Study of high burnup fuel behavior under LOCA conditions at JAERI

Fumihisa NAGASE, Masataka TANIMOTO, and Hiroshi UETSUKA

要旨

高燃焼度燃料棒のLOCA時挙動に関する基礎的な知見を得るために、100～1200wtppmの水素を添加した被覆管を用いて、LOCA条件を模擬した熱衝撃試験を行った。1270～1480Kにおいて、120～1800s間、模擬燃料棒を等温酸化した後、下部からの冠水により急冷した。試験では、水素濃度とともに被覆管の急冷時破壊特性において重要である急冷時の軸方向拘束力をパラメータとし、非拘束、中間拘束(拘束荷重上限40, 55, 75kgf)、完全拘束と変化させた。試験の結果、被覆管の急冷時耐破壊特性に対する水素吸収と軸方向拘束の影響を定量的に評価できる知見を取得した。破壊限界は、拘束力の増大とともに低下し、比較的厳しい拘束条件下では、水素濃度の増大により明確に低下する。調べた水素濃度範囲において、急冷時の引張荷重が約60kgf以下であれば、破壊しきい値は20%ECR以上であることが示された。

**The topical meeting on LOCA fuel safety criteria,
Aix-en-Provence, March 22-23, 2001, NEA/CSNI/R(2001)18, pp.197.**

**Progress in JAERI program on high burnup fuel behavior
under a LOCA transient**

Hiroshi UETSUKA and Fumihisa NAGASE

要旨

高燃焼度燃料の冷却材喪失事故時における安全性を確認するために、原研が実施している研究計画の概要と最近得られた成果をとりまとめた。本計画は、ジルカロイ－水蒸気反応試験、被覆材の機械特性評価試験、急冷時の燃料棒耐破壊特性評価試験から構成される。試験には、高燃焼度燃料被覆管を模擬した予備酸化／水素化試料や発電炉使用済燃料から採取した試料などを用いる。これまでの研究により、ジルカロイの高温水蒸気酸化速度に及ぼす水素添加の影響は小さいこと、急冷破壊特性に及ぼす水素化の影響は、急冷時に燃料棒を拘束しない条件ではほとんどないものの、拘束条件下では破壊限界酸化条件(ECR条件)が大幅に低下することなどが明らかになった。

29th Nuclear Safety Research Conference
Washington, DC, U.S.A., October 22-24, 2001.

Study of High Burnup Fuel Behavior under LOCA Conditions at JAERI:
Hydrogen Effects on the Failure-bearing Capability of Cladding Tubes

Fumihisa NAGASE and Hiroshi UETSUKA

要旨

原研は、高燃焼度化がLOCA時燃料挙動に及ぼす影響を評価するために必要な基礎データを取得するための研究計画を進めている。研究計画の概要を紹介するとともに、最新の成果を報告する。LOCA条件を模擬して行った熱衝撃試験により、被覆管の急冷時耐破断特性に対する水素吸収と軸方向拘束の影響を定量的に評価できるデータを取得した。破断／非破断は酸化量に強く依存すること、破断の限界となる酸化量は拘束力の増大とともに低下すること、水素濃度の増大は比較的厳しい拘束条件下での破断限界を低下させることが明らかになった。LOCA時、制御棒案内管の温度は、燃料棒に比べ低く、温度変化等に伴う軸方向の伸縮量が相対的に小さい。このため、グリッドと燃料棒あるいは制御棒案内管の間の固着を仮定すると、燃料棒と制御棒案内管の間の収縮差が急冷時の拘束力発生の原因となる。また、燃料集合体における制御棒案内管の本数は燃料棒に比べて少ないために、働く荷重は制御棒案内管で比較的大きく、燃料棒の破断に先立って、制御棒案内管が挫屈する可能性がある。そこで、制御棒案内管を高温で酸化、急冷し、圧縮による挫屈荷重を測定し、いくつかの仮定の下に、測定された挫屈荷重から燃料棒に働く拘束荷重の上限値を推定した。

2001年秋の大会

L31

熱天秤を用いたジルカロイ被覆管の酸化速度評価(1)

-昇温過程での酸化が高温での酸化速度に及ぼす影響-

Evaluation of oxidation rate of Zircaloy cladding tube with thermobalance (1)

Influence of pre-oxidation during heat-up on the oxidation rate

日本原子力研究所 ○ 吉永真希夫 永瀬文久 大友隆 上塙寛

YOSHINAGAM Makio NAGASE Fumihisa OTOMO Takashi UETSUKA Hiroshi

高燃焼度燃料の LOCA 時挙動に関し、ジルカロイ被覆管の酸化挙動を熱天秤を用いて調べた。昇温過程で起こる酸化によって 1273K 以上での酸化速度定数が低下すること、従来のデータは昇温過程での酸化の影響を受けている可能性があることを明らかにした。比較的低温で表面に形成された酸化膜が、高温においても保護性を維持するためと考えられる。

キーワード:ジルカロイ 4 被覆管熱天秤連続測定高温酸化 LOCA

1. 緒言 高温におけるジルカロイ被覆管の酸化速度を精度良く評価することは原子炉事故時における燃料の安全評価上重要である。原研では、高燃焼度燃料用被覆管の酸化挙動を基礎的に調べるために、熱天秤を用いた酸化試験を行っている。熱天秤を用いた連続測定により、短時間の変化を調べることが可能であり、酸化挙動の詳細やメカニズム解明に有用である。昇温過程の酸化がその後の等温酸化速度に及ぼす影響について未照射被覆管を用いて調べた。

2. 実験方法 未照射 17x17PWR 型被覆管(外径 9.5、内径 8.36 mm)から軸方向長さ約 5 mm のリング状試験片を切り出し酸化試験に供した。試験片を熱天秤中に吊り下げ、試験部を Ar 露開気に置換した後、昇温速度 50K/s にて、1273~1573K まで昇温し、一定時間保持した。水蒸気は Ar ガスと共に試験部に供給するが、水蒸気供給は、任意のタイミングで開始可能である。本研究においては、水蒸気供給開始を、昇温過程において、目標とする酸化温度より①300、②200、③100K 低い時点、④目標温度に達した時点、の 4 通りに変化させた。連続測定された重量変化のデータから、酸化速度を評価した。

3. 結果 酸化温度を 1373K とし、水蒸気の供給タイミングを 4 通り(実験方法に示した①~④)に変化させた酸化試験で得られた単位面積当たりの重量変化と酸化時間の平方根の関係を図 1 に示す。表面反応等に影響を受ける初期過程が終了し、酸化の進行が安定する長時間側では、ほぼ直線関係にあり、2 乗則が成立つことが分かる。直線部分(酸化時間 100

~1000s)の傾きから求めた速度(2 乗則)定数の温度依存性を図 2 に示す。試験片温度が目標温度に達した後に水蒸気を導入した場合(④)に速度定数が最も大きくなったこの条件で得られた速度定数は、熱天秤を用いて同様の条件で得られた Moalem らの結果(1)と良く一致している。一方、水蒸気の導入を昇温中に開始することで、速度定数が低下することが図から分かる。さらに水蒸気導入開始温度を低下させるほど、速度定数の低下割合は大きい。酸化速度に関する代表的な従来データ(2)は、比較的低い温度で水蒸気の導入を開始した試験の結果に近いことから、同様に昇温過程での酸化の影響を受けている可能性がある。比較的低温で表面に形成された酸化膜が、高温においても保護性を維持することが、酸化速度抑制の原因と考えられる。

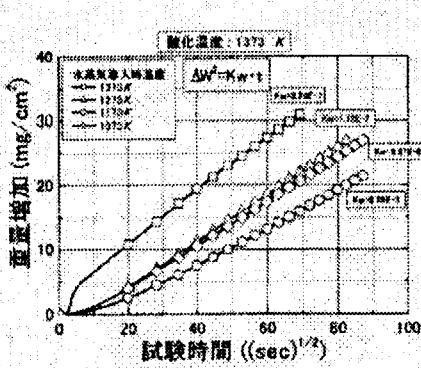


図 1 重量増加率と試験時間の平方根の関係

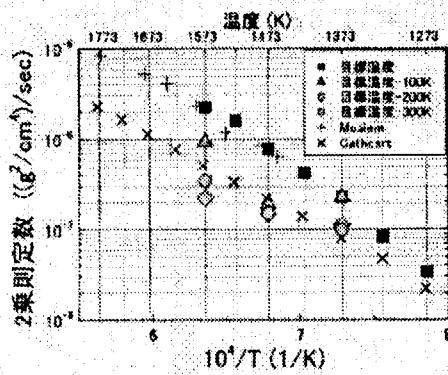


図 2 2乗則速度定数の温度依存性

参考文献(1)M.Moalem et al., J. Nucl. Mater., 182(1991)170,(2)J.Cathcart.,ORNL/NUREG/TM-41(1976).

温度遷移を経験したジルカロイ燃料被覆管の機械特性変化（2）

－水素を添加した未照射ジルカロイ-2及び-4被覆管の機械特性変化－

Mechanical Property Changes of Zircaloy cladding tube after Temperature Transient (2)

-Mechanical Property Changes of Artificially Hydrided Zircaloy-2 and Zircaloy-4 Cladding-

原研

永瀬 文久

上塙 寛

NAGASE Fumihsa

UETSUKA Hiroshi

原子力エンジニア

○永井 敦也

リング株式会社

NAGAI Nobuya

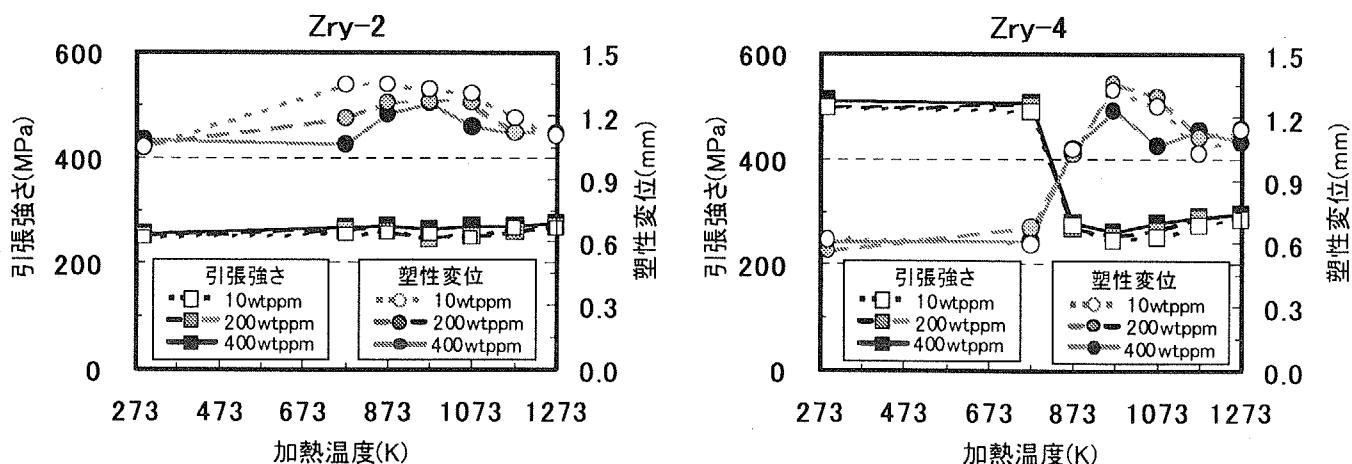
異常過渡及び事故時の燃料挙動を評価する基礎データを得る目的で、水素を添加した Zry-2 及び Zry-4 被覆管を 773~1273K で 0s あるいは 180s 間保持し、冷却後「改良リング試験法」により機械特性の変化を調べた。試験の結果、加熱温度及び保持時間、水素濃度、変形温度に依存した強度と延性の変化に関するデータを取得できた。

キーワード:高燃焼度燃料、ジルカロイ被覆管、水素吸収、異常過渡、事故、温度遷移、機械特性

1. 緒言 異常過渡を経験した高燃焼度燃料棒の健全性評価や LOCA 再冠水時の燃料棒破損特性評価のために、温度遷移後の高燃焼度燃料被覆管の機械特性データの取得が必要である。本研究では、BWR 及び PWR 被覆管について、水素濃度、加熱温度、保持時間、変形温度をパラメータとし、温度遷移後の強度及び延性の変化を調べた。報告者等が行った照射済被覆管に対する研究により、昇温後の被覆管機械特性の変化は、主に Zry のミクロ組織変化と水素化物の析出形態の変化に支配されることが示されている。したがって、本研究においては燃焼の進行を水素添加量により模擬し、水素の影響を分離して調べた。

2. 実験方法 水素濃度 10~400wtppm を有する Zry-2(外径:11.00mm、内径:9.60mm) 及び水素濃度 10~800wtppm を有する Zry-4(外径:9.50mm、内径:8.22mm) 被覆管から、「改良リング試験片」⁽¹⁾(平行部幅 2mm、長さ 4mm) を切り出した。これらを、Ar 霧囲気において 773~1273K まで昇温し 0 及び 180s 間保持した後、電気炉外にて冷却した。引張試験は、室温及び 573K においてクロスヘッド速度 3.3×10^{-3} mm/s で実施した。

3. 結果および考察 573K 引張試験で測定し、Zry-2 と Zry-4 の引張強さと塑性変位を、加熱温度の関数として、図に示す。なお、塑性変位とは、塑性変形開始から破断までに要したクロスヘッド変位量である。いずれの被覆材料においても 773~873K 以上で、引張強さと塑性変位量に加熱の影響が見られるが、変化の割合は Zry-2 で相対的に小さい。ミクロ組織との対応から、873~1073K における強度の低下と延性の増大は主に Zry の再結晶の進行によるものと考えられ、Zry-2 で加熱後の変化が小さいのは Zry-2 が再結晶処理材であることで説明できる。図に示す 400wtppm 以下の水素濃度範囲では、加熱による機械特性の変化に見られる水素吸収の影響は比較的小さい。なお、1173K 以上で見られる若干の強度上昇と伸びの低下は、Zry が加熱温度で $\alpha + \beta$ 相に変態し、それに伴い水素化物析出形態が大きく変化したためであることが、ミクロ組織観察から示唆される。この他、保持時間を 0s とすると機械特性の変化は高加熱温度側にシフトすること、加熱温度に依存する機械特性の変化は室温における引張試験においても概ね同じ傾向にあることが本試験により明らかになった。



図：773~1273K で 180s 間加熱した Zry-2 及び Zry-4 の 573K における引張強さと塑性変位
参考文献 (1)北野等、2001 年春の年会 L46

水素濃度及び軸方向拘束力に依存したジルカロイ-4

被覆管のLOCA時耐破断特性の評価

Evaluation of failure-bearing capability of Zircaloy-4 cladding tubes under LOCA conditions as functions of hydrogen concentration and axial restraint force

原研 ○谷本政隆

永瀬文久

上塚 寛

TANIMOTO MASATAKA NAGASE FUMIHISA UETSUKA HIROSHI

高燃焼度燃料棒のLOCA時安全性を確認するために必要な基礎データを取得するため、水素を添加したジルカロイ-4被覆管に対しLOCA条件を模擬した熱衝撃試験を実施した。被覆管の急冷時耐破断特性に対する水素吸収と軸方向拘束の影響を定量的に評価できる知見を取得した。

キーワード：高燃焼度燃料、ジルカロイ被覆管、LOCA、破断限界、水素吸収、軸方向拘束力

1. 緒言 原研は、高燃焼度燃料のLOCA時挙動に関連し、LOCA条件を模擬した熱衝撃試験を行い、これまでに被覆管の水素吸収と急冷時の軸方向完全拘束が、ジルカロイ被覆管の急冷時破断限界を著しく低下させることを明らかにした[1]。完全拘束条件は過度に保守的であると考えられ、低い拘束力条件では破断限界が上昇することが示されている[2,3]。拘束力は被覆管拘束のメカニズムや集合体設計などにより変化し、水素濃度などの被覆管条件も炉型や照射条件により一定ではないと考えられる。そこで、高燃焼度燃料棒の安全性を確認するために必要な系統的なデータを取得することを目的に、被覆管の急冷時耐破断特性評価上の主要因子である水素濃度と拘束力をパラメータとして、破断限界酸化量条件を評価した。

2. 実験 100~1200wtppmの水素を添加したPWR用低スズ・ジルカロイ-4被覆管(長さ600mm)にAl₂O₃ペレットと5MPaのArガスを封入した模擬燃料棒を試験に用いた。水側腐食による減肉を模擬し、被覆管の肉厚を10%減じた。この模擬燃料棒を水蒸気流中に置き、赤外線イメージ炉を用いて10K/sで昇温した。昇温中約1050Kで破裂するが、そのまま1270~1480Kにおいて120~1800s間等温酸化した。その後、下部から冠水させ急冷した。温度制御及び被覆管温度測定は被覆管表面にスポット溶接した熱電対を用いて行った。ジルカロイ被覆管は、熱膨張と酸化膜の成長により軸方向に伸長し、冷却時には収縮する。収縮時に模擬燃料体の両端を完全に拘束すると、被覆管には最大200kgf程度の引張方向の拘束力が生じる。本研究では、引張り試験機を用い、急冷時に燃料体に生じる荷重を測定しながら収縮量を調整し、拘束力を予め決めた値以下に抑えた。設定した中間的な拘束力は、完全拘束条件下で酸化した被覆管が破裂する荷重(90~180kgf)以下の40,55,75kgf±5kgfとした。

3. 結果 試験の結果、水素濃度と拘束力に依存した破断限界条件が評価できた。例として、350~750及び750~1200wtppmの水素を有する被覆管の破損マップ(酸化量(ECR)−拘束力)を、図に示す(破断●、非破断○)。ECRは、酸化反応でジルカロイ中に吸収された酸素が全て化学量論組成のZrO₂を生成すると仮定した場合の全被覆肉厚に対するZrO₂酸化膜の厚さの割合であり、破裂後に起こる両面酸化及び膨れによる肉厚減少を考慮している。破裂したケースでは、破裂時の拘束力を、非破裂のケースでは、試験中の最大拘束力をプロットした。図から、破断限界は拘束力の増大とともに低下すること、水素濃度の増大は比較的厳しい拘束条件下での破断限界を低下させることが分かる。なお、調べた水素濃度範囲において、急冷時の引張荷重が約60kgf以下であれば、破裂しきい値は20%ECR以上であることが明らかになった。

本研究は、PWR電力との共同研究として実施した。

(参考文献)

- [1] 谷本ら、日本原子力学会、1999年秋の大会、予稿集(M12)
- [2] 小澤ら、日本原子力学会、2001年春の年会、予稿集(L36)
- [3] 谷口ら、日本原子力学会、2001年春の年会、予稿集(L37)

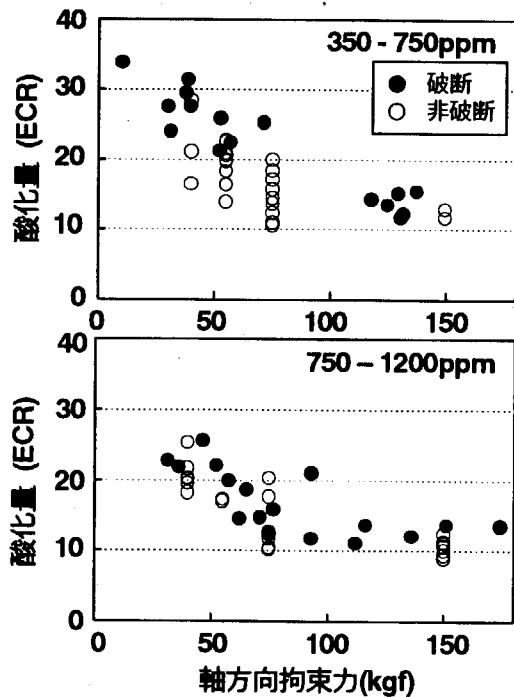


図 酸化量と拘束力に関する被覆管破断限界マップ

JMTR/BOCA Group

(1)中村「照射済み燃料の熱特性研究」原子力安全性研究セミナー及び原子炉安全性研究ワークショップ講演集 JAERI-Conf 2001-008(2001) p.125-137

JAERI-Conf 2001-008(2001) p.125-137

照射済燃料の熱特性研究

日本原子力研究所 原子炉安全工学部
燃料安全研究室 中村 仁一

軽水炉では燃料の高燃焼度利用が進められているが、燃料ペレットの熱特性劣化が燃料のふるまいに及ぼす影響を確認することが必要である。熱伝導率は、FP の蓄積、照射欠陥の蓄積等により、低下することが知られている。燃料ペレットの熱伝導率の低下は燃料中心温度を上昇させ、FP ガス放出、ペレット・被覆管力学的相互作用(PCMI)の増大等、高燃焼度燃料の挙動に大きな影響を与える。また、燃焼の進んだ燃料の融点についても燃焼の進展に伴って低下するとの報告や、あまり変化しないとの報告もあり、文献値間に大きな差が見られる。今後はさらなる高燃焼度化が指向されると予想され、このため高燃焼度での燃料の熱特性の変化を明らかにすることが重要である。

照射に伴う燃料の熱特性変化を明らかにし、高燃焼度燃料挙動解析コードの評価精度の向上に不可欠な基礎データを取得することを目的として、原研は以下の研究を行っている。研究炉での照射試験と照射後試験施設での熱特性測定試験の双方を実施し、体系的な研究を行っていることが特長である。

- ・ JMTR・BOCA キャプセルを用いた燃料再照射試験（燃料中心温度測定試験）
- ・ 燃料試験施設における熱特性試験（熱拡散率測定、融点測定）
- ・ ハルデン原子炉計画での燃料照射試験

原研が加盟しているハルデン原子炉計画の燃料照射試験では、熱膨張温度計により燃料中心温度の燃焼度変化を測定している⁽¹⁾。熱膨張温度計は、中空ペレットの中心に設置したタンクステン合金棒の熱膨張を測定し燃料棒の軸方向平均温度を評価するもので、核変換とともに組成変化により起電力が変化する従来の熱電対に比べて高燃焼度まで精度の高い測定が可能である。測定された一定出力での燃料中心温度は燃焼度とともに増加し、熱伝導率の低下を示している。ハルデンプロジェクトはこの中心温度測定値から、ギャップコンダクタンス等の評価を行った後に、熱伝導率の関数形を仮定して燃料の熱伝導率の燃焼度依存性を求め、燃料の熱伝導率の燃焼度依存性モデルを提唱している。このモデルは燃焼度の進行とともに低温側で熱伝導率が大きく低下することを示している。

原研の燃料試験施設における熱特性試験では、照射済燃料の融点測定と熱拡散率測定を行っている。

融点測定は、タンクステン容器に封入された照射燃料の融点を、サーマルアレスト法により、二色温度計で測定するもので、最近原田らが最高燃焼度約45Gwd/tまでの融点測定を行い、燃焼度の進行に伴う融点の低下が比較的小さいとの結果を得た⁽²⁾。これは、山内らが同様にサーマルアレスト法を用いて約30Gwd/tまでの燃焼度で報告した、燃焼度による融点の低下が小さい傾向を高燃焼度側で追認した結果となっている。これに対して、現在の許認可での融点の燃焼度依存性は60年代のChristensenのデータを基に、燃焼度による融点低下

が大きいとして評価しており、この結果が現在の安全評価における燃料最高温度制限値となっている。今回のデータは、この燃料最高温度制限値が保守的であることを示唆している。

一方、熱拡散率測定は、レーザーフラッシュ法による熱拡散率測定装置を用いて、これまでにハルデン照射高燃焼度燃料(63GWd/t)、PWR 照射ガドリニア添加燃料(28GWd/t)、及び UO₂燃料(36GWd/t)の測定を行った。ハルデン照射燃料の熱拡散率測定⁽³⁾では、高燃焼度燃料の熱拡散率は室温付近では、未照射燃料に比べて大幅に低下すること、熱拡散率の低下の割合は温度の上昇とともに小さくなることを明らかにした。測定最高温度を上昇させながらながら測定を繰り返すと熱拡散率は次第に上昇する傾向を示したが、これは照射欠陥の回復に起因する現象であると推定される。回復後の熱拡散率は、非放射性の固体 FP 元素を UO₂に固溶させて作成した模擬高燃焼度燃料の熱拡散率よりやや小さな値となっており、この差は密度の低下及び FP ガス微小気泡等の効果と推定される。

照射済みガドリニア添加燃料(6wt%, 28GWd/t)の熱拡散率測定を行い、得られた熱拡散率から次式の関係を用いて熱伝導率を求めた。

$$k = \alpha C_p \rho, \quad k: \text{熱伝導率}, \quad \alpha: \text{熱拡散率}, \quad C_p: \text{比熱}, \quad \rho: \text{密度}$$

なお、ガドリニア添加燃料の比熱については、Kopp 則を用いて UO₂とガドリニアの比熱から評価した。このガドリニア添加燃料と同じ燃料集合体内で照射された UO₂燃料(36GWd/t)の熱拡散率についても測定を行い、両者の比較を行った。照射済 UO₂の熱拡散率は未照射 UO₂の熱拡散率に比べて大きく低下しているのに對して、ガドリニア添加燃料の場合には、未照射のガドリニア添加燃料の熱拡散率がすでに未照射 UO₂に比べて大きく低下している。照射済ガドリニア添加燃料の熱拡散率は未照射ガドリニア添加燃料に比べてさらに小さな値を示したが、照射によるガドリニア添加燃料の熱拡散率低下の割合は、UO₂燃料に比べて相対的に小さい。これはガドリニア添加燃料では、ガドリニアの不純物効果により UO₂ペレット内の熱の媒体であるフォノンを大きく散乱させているため、照射による FP 固溶、点欠陥生成等の効果が相対的に小さくなつたものと考えられる。

照射下での燃料中心温度を照射後試験での熱物性値と比較することを目的として、JMTR における燃料再照射試験を実施した。ガドリニア添加燃料の熱拡散率測定用試料を採取した長尺燃料棒から短尺燃料棒を再加工し、ペレット中心孔加工装置を用いて直径 2.5mm 深さ約 37mm の中心孔をあけ中心温度計を計装した。この燃料棒を JMTR の沸騰水キャップセル (BOCA キャップセル) に装荷し BWR 条件での照射試験を実施したところ、測定した温度は線出力約 27.5kW/mにおいて約 1160°C であった。この中心温度データと炉外試験で得られた熱拡散率データに基づいて計算した値との比較を行った。評価には、熱電対部での軸方向の温度分布を計算するため二次元 FEM 温度分布計算コードを用い、熱拡散率測定値から評価した熱伝導率を用いて燃料中心温度の評価を実施した。照射後試験の熱拡散率測定に基づき評価したガドリニア添加燃料の中心温度は測定値よりやや低い値となった。この結果は、炉内で照射されるペレットの温度にはクラック等、熱拡散率測定試料にはない要因が影響を与えている可能性を示唆している。

FEMAXI Group

- (1) Sergei E. Lemehov and Motoe Suzuki, PLUTON—Three-Group Neutronic Code for Burnup Analysis of Isotope Generation and Depletion in Highly Irradiated LWR Fuel Rods, JAERI-Data/Code 2001-025 (2001)

JAERI-Data/Code 2001-025

**PLUTON – Three-Group Neutronic Code for Burnup Analysis
of Isotope Generation and Depletion in Highly Irradiated LWR
Fuel Rods**

Sergei E. LEMEHOV* and Motoe SUZUKI

PLUTON is a three-group neutronic code analyzing as functions of time and burnup, the change of radial profiles, together with average values, of power density, burnup, concentration of trans-uranium elements, plutonium buildup, depletion of fissile elements, and fission product generation in water reactor fuel rod with standard UO_2 , $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$, inhomogeneous MOX, and $\text{UO}_2\text{-ThO}_2$. The PLUTON code, which has been designed to be run on Windows PC, has adopted a theoretical shape function of neutron attenuation in pellet, which enables users to perform a very fast and accurate calculation easily.

The present code includes the irradiation conditions of the Halden Reactor which gives verification data for the code. The total list of trans-uranium elements included in the calculations consists of $^{92}\text{U}^{233-239}$, $^{93}\text{Np}^{237-239}$, $^{94}\text{Pu}^{238-243}$, $^{95}\text{Am}^{241-244}$ (including isomers), and $^{96}\text{Cm}^{242-245}$. Poisoning fission products are represented by $^{54}\text{Xe}^{131, 133, 135}$, $^{48}\text{Cd}^{113}$, $^{62}\text{Sm}^{149, 151, 152}$, $^{64}\text{Gd}^{154-160}$, $^{63}\text{Eu}^{153, 155}$, $^{36}\text{Kr}^{83, 85}$, $^{42}\text{Mo}^{95}$, $^{43}\text{Tc}^{99}$, $^{45}\text{Rh}^{103}$, $^{47}\text{Ag}^{109}$, $^{53}\text{I}^{127, 129, 131}$, $^{55}\text{Cs}^{133}$, $^{57}\text{La}^{139}$, $^{59}\text{Pr}^{141}$, $^{60}\text{Nd}^{143-150}$, $^{61}\text{Pm}^{147}$. Fission gases and volatiles included in the code are $^{36}\text{Kr}^{83-86}$, $^{54}\text{Xe}^{129-136}$, $^{52}\text{Te}^{125-130}$, $^{53}\text{I}^{127-131}$, $^{55}\text{Cs}^{133-137}$, and $^{56}\text{Ba}^{135-140}$. Verification has been performed up to 83 GWd/tU, and a satisfactory agreement has been obtained

VEGA Group

- (1) 林田烈、他「照射済燃料からの放射性物質放出(VEGA)実験装置の運転・保守要領書」JAERI-Tech 2001-029.
- (2) T.Kudo, et al., "Influence of Pressure on Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperatures up to 2773K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.38, No.10, pp.910-911 (2001).
- (3) 日高昭秀、他「シビアアクシデント条件下の放射性物質放出に関する VEGA-1 実験の解析」日本原子力学会 2001 年秋の大会、II(2001).
- (4) 日高昭秀、他「シビアアクシデント条件下の照射済燃料からの放射性物質放出挙動[VEGA-1 実験の結果]」JAERI-Research 2001-055 (2001).
- (5) 工藤保、他「水蒸気雰囲気・高温下における照射済燃料からの放射性物質放出実験(VEGA-4)」日本原子力学会 2002 年春の年会, J27(2002).
- (6) A. Hidaka, et al., "Enhancement of Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K," J. Nucl. Sci. Technol. Vol.39, No.3, pp.273-275 (2002).

JAERI-Tech 2001-029

照射済燃料からの放射性物質放出（VEGA）実験装置の運転・保守要領書

林田 烈*・日高 昭秀・中村 武彦・工藤 保・大友 隆・上塙 寛

要旨

照射済燃料からの放射性物質放出（VEGA）実験計画は、原子炉のシビアアクシデント時に環境中に放出される放射性物質の量と化学形（ソースターム）に関する予測精度をさらに向上させることを主目的として1999年9月から本実験を開始した。VEGA実験では、日本の発電用軽水炉で照射された燃料を短尺化し、その試料を最大1.0MPaの高圧下において燃料の融点を越える高温（～3273K）まで誘導加熱し、これまでの類似実験で十分なデータが得られていない低揮発性核種、アクチニド及び短半減期核種の放出・移行挙動を調べることにしている。

本実験装置は1999年2月に完成し、2000年12月までに3回のホット実験を行った。それらの実験はいずれも概ね成功裡に終了したが、いくつかの問題点も明らかになった。特に、装置の試運転を兼ねた第1回目のVEGA-1実験では、配管の溶融による流路閉塞やヒータの故障等もあったことから、将来の実験へ向けて不良箇所の改造や設計変更等を行い、装置の改善を図った。また、装置は小さいながらも複雑な構造をしており、適切な運転を行うためには装置を熟知する必要がある。このため、装置の改良点を確認し、装置の運転、保守に対する考え方を新たにする必要がある。

本報告書はVEGA実験について、装置の概要、実験の流れ、運転及び保守の要領をまとめたものである。

J. Nucl. Sci. Technol. Vol.38, No.10, pp.910-911 (2001).

Influence of Pressure on Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperatures up to 2773K

T. KUDO, A. HIDAKA, T. NAKAMURA and H. UETSUKA

ABSTRACT

The radionuclides release from fuel is a primary issue for evaluation of the source term in a severe accident of a light water reactor. After the TMI-2 accident, numbers of experiments have been conducted in this domain of research in the world¹⁻³⁾. However, information is still insufficient for the precise source term evaluation, in particular such conditions of very high temperature and pressure.

In order to obtain the data at such conditions, a systematic research program, VEGA (Verification Experiments of radionuclides Gas/Aerosol release)⁴⁻⁵⁾ was initiated at Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI). VEGA program aims in particular to clarify the effects of pressure and temperature on the radionuclides release. This article describes the effects of system pressure on the cesium release obtained in the first two experiments, VEGA-1 and VEGA-2, which were conducted at the same maximum temperature of 2773K and different system pressures.

The release rate coefficients of Cs from fuel pellets became large with temperature increase regardless of the pressure. The system pressure influenced the Cs release; the elevated pressure could decrease the release rate coefficient at temperature of severe accident condition. The present data clearly indicates that the development of pressure dependent release models, for which a little attempt had been made in previous studies, is necessary for precise source term evaluation.

日本原子力学会

2001年秋の大会

札幌

シビアアクシデント条件下の放射性物質放出に関するVEGA-1実験の解析
ANALYSES OF VEGA-1 EXPERIMENT ON RADIONUCLIDE RELEASE UNDER SEVERE
ACCIDENT CONDITIONS

原研 ○日高昭秀、 工藤保、 中村武彦、 上塙寛
HIDAKA AKIHIDE KUDO TAMOTSU NAKAMURA TAKEHIKO UETSUKA HIROSHI

シビアアクシデント時の放射性物質放出・移行を調べるVEGA-1実験の結果を解析し、主要核種であるCsの放出は UO_2 結晶粒内の拡散過程が律速であること、移行挙動は既存モデルでほぼ再現できることを示した。
キーワード: VEGA-1実験、シビアアクシデント、放射性物質放出、放出率速度係数、拡散係数

[はじめに]シビアアクシデント時のソースタークに関する予測精度をさらに向上するため、原研では VEGA 実験装置¹⁾を用いて、高温・高圧条件下で照射済燃料から放出される放射性物質の挙動を調べている。その第1回目の VEGA-1 実験では、0.1MPa、He 霧囲気下において、47GWd/tU の照射済燃料(約 10g)を 2773K まで昇温した。本稿では、これまでに得られた実験データ^{2),3)}に基づいて実施した解析結果について報告する。

[解析結果] Cs 放出に関して、放出率速度係数に基づく NUREG-0772 と CORSOR-M⁴⁾及び拡散係数に基づく ORNL-Booth⁵⁾を用いた計算と実験との比較を行った。その結果、NUREG-0772 と CORSOR-M は殆ど全ての温度領域において放出割合を過大評価した。開発当時の実験データが限られていたのが主な原因と考えられる。ORNL-Booth の結果は、2300K 以下において実験より小さく、それ以上で過大評価になった。同モデルの元になった ORNL 実験は水蒸気霧囲気・被覆管付きで行われ、被覆管と燃料の共晶反応により 2400K 前後で液化したため、高温域での放出割合が不活性・被覆管無しの VEGA 実験よりも大きくなつたと考えられる。Cs 放出データを放出率速度係数 K で整理すると図1に示すようにほぼアレニウス型となつたが、全体的にバラツキが大きくなつた(回帰曲線の信頼度を表す決定係数 $R^2=0.52$)。一方、図2に示すように放出データを UO_2 結晶粒内の拡散係数 D で整理した場合、拡散係数のアレニウス型への回帰状況が向上した(決定係数 = 0.86)。このことから、VEGA 実験の Cs 放出は UO_2 結晶粒内の拡散過程が律速であったと考えられる。放出した Cs の移行に関しては、加熱炉／温度勾配管(TGT)間に位置する水平配管への主要な沈着機構は熱流動条件から重力沈降と考え、測定されたエアロゾル質量中央径を用いて沈着計算を行った所、計算と測定値はほぼ一致した。また、TGT 内への主な FP 付着機構は過飽和蒸気の凝縮であるが、実験では 750~200°C に降温する TGT 内の 530°C 付近に Cs 付着ピークが観測された。放出割合とガス流量から求めた TGT 内 Cs 蒸気圧は、CsI の飽和蒸気圧曲線と約 500°C で交差することから、付着物の化学形は CsI と考えられる。

[おわりに] VEGA-1 実験の結果は既存モデルでほぼ再現することができた。今後、事前照射による短半減期核種生成や水蒸気霧囲気実験を行い、それらの解析を通してモデルの検証、放出機構解明を進める。

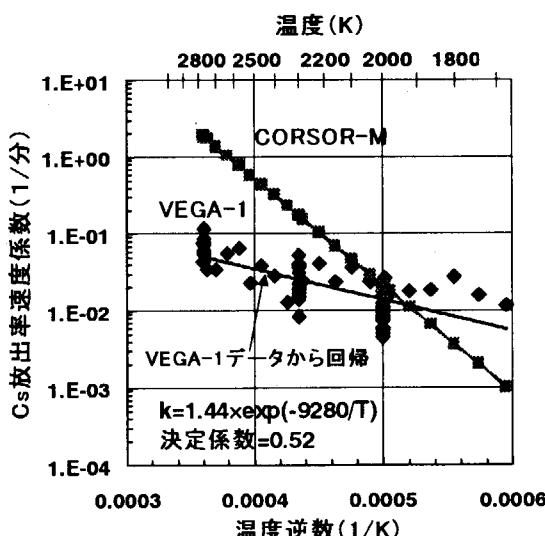


図1 Cs放出を放出率速度係数で整理

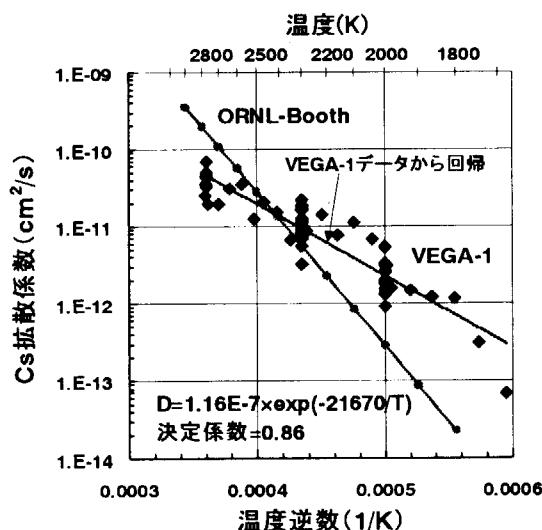


図2 Cs放出を拡散係数で整理

1) 日高他、原子力学会 2000 春の年会、N35、2) 中村他、原子力学会 2000 春の年会、N36、3) 工藤他、原子力学会 2001 春の年会、J32、4) Kuhlman, et al., NUREG/CR-4713 (1985). 5) Lorenz, et al., NUREG/CR-6261(1995).

JAERI·Research 2001·055

シビアアクシデント条件下的照射済燃料からの放射性物質放出挙動[VEGA-1 実験の結果]

日高 昭秀・中村 武彦・工藤 保・上塙 寛

要旨

原研では、原子炉シビアアクシデント条件下における放射性物質の放出機構解明とソースターム予測精度向上を目的として、燃料の融点を越える 3,250K の高温条件及び最大 1.0MPa の加圧雰囲気下における照射済燃料からの放射性物質放出挙動を調べる VEGA 実験計画を進めている。その第 1 回目の実験である VEGA-1 は、今後、同計画で実施する水蒸気雰囲気実験の参考用、すなわち、化学反応が無い条件で基本的な放出挙動及び放出機構を調べることを目的として 1999 年 9 月を行った。試験燃料は、燃焼度 47GWd/tU(6 年冷却)の PWR 燃料ペレット 2 個(被覆管無し、約 10g)であり、大気圧、He 雰囲気条件で 2,773K まで昇温した。高揮発性の Cs 放出は 1,650K 以上で増加し始め、最終的な放出割合は約 85% に達した。被覆管付きで行われた ORNL 実験の結果と比べて、被覆管無しの VEGA-1 実験の Cs 放出割合は、被覆管と燃料の共晶反応が起きる高温域で小さくなつた。低揮発性の Ru の最終的な放出割合は 4.7%、Ce と Eu の放出割合はゼロであった。Kr の放出挙動は Cs とほぼ同等であつたと考えられる。実験後に行った試験燃料に対するミクロ組織観察では、昇温前に比べて気泡連結による膨れが起きており、FP ガス放出に伴つて生じたと考えられる 1~10 μ m 程度の気泡が多数観測された。

Cs 放出に関して既存モデルを用いて評価した結果、NUREG-0772、CORSOR-M モデルは全温度域で実験結果より過大評価となり、ORNL の HI・VI 実験結果を反映した CORSOR-O、ORNL-Booth モデルは共晶反応が起きる高温域で実験結果より過大評価となつた。Cs 放出に関する実験データを Booth モデルに基づく UO₂ 結晶粒内の拡散係数で整理すると、アレニウス型にほぼ従うことから、VEGA-1 実験の Cs 放出は粒内拡散が律速であったと考えられる。

水蒸気雰囲気・高温下における照射済燃料からの放射性物質放出実験(VEGA-4)

日本原子力学会

2002年春の年会

神戸

Radionuclides Release from Irradiated Fuel under High Temperature and Steam Conditions (Results of VEGA-4 Test)

原研 ○工藤 保 日高 昭秀 中村 武彦 金沢 徹
 KUDO Tamotsu HIDAKA Akihide NAKAMURA Takehiko KANAZAWA Toru
 大友 隆 上塙 寛
 OHTOMO Takashi UETSUKA Hiroshi

[要約] 水蒸気雰囲気、2773Kまでの高温条件において照射済燃料からの放射性物質放出挙動を調べるVEGA-4を実施し、不活性雰囲気で実施したVEGA-1に比べCs及びRuの放出が促進されることを実験的に示した。

キーワード: シビアアクシデント、VEGA、高温、放射性物質放出、水蒸気、拡散係数、ソースターム

[はじめに] 原研では、高温・高圧下における照射済燃料からの放射性物質放出データの取得、放出機構の解明によるソースターム予測精度の向上を目指したVEGA(Verification Experiments of radionuclide Gas/Aerosol release)計画^{1,2)}を実施している。本報では、2001年6月に水蒸気雰囲気下で2773Kまで昇温したVEGA-4の結果を、雰囲気と昇温速度以外はVEGA-4とほぼ同じ条件で実施したVEGA-1と比較して報告する。VEGA-4は、高温・水蒸気雰囲気下でも化学的に安定なトリア製の加熱炉構造物の開発に成功したことにより実施可能となった。

[実験方法] 実験条件を表1に示す。ルツボ等の加熱炉構造物として、VEGA-1では不活性雰囲気及び高温で使用可能なタンクスチレン、VEGA-4ではトリアを用いた。トリアは熱衝撃に弱いため、昇温速度を遅くした。実験中の燃料試料近傍のγ線強度をオンラインで測定し、燃料からのCsの放出を評価した。

[結果] 燃料からのCsの放出履歴を図1に示す。CsとRuの最終的な放出割合は、加熱前後にオフラインで測定した燃料のγ線スペクトルの

表1 実験条件

	VEGA-1	VEGA-4
燃料(再照射無し)	PWR, 47GWd/t	PWR, 47GWd/t
温度	2000K(20分), 2300K(20分), 2773K(10分: VEGA1, 20分: VEGA4)	
昇温速度	60K/分	20K/分
雰囲気	He	水蒸気+He

変化から、Cs-134、137及びRu-106に対する測定値によって評価した。不活性雰囲気で実施したVEGA-1におけるCsの放出割合は約85%であったが、水蒸気雰囲気のVEGA-4ではほぼ100%に達した。RuはVEGA-1ではほとんど放出されなかつたが、VEGA-4の放出割合は52%と大きくなつた。これはRuが水蒸気により酸化され、揮発性の高いRuO₄等に変化したためと考えられる。ただし、本実験におけるRuのγ線スペクトル強度は小さく、測定誤差が大きい可能性がある。今後は、再照射により短半減期放射性核種を生成させた燃料を用いて実験を行い、この点を再評価する予定である。Boothモデル³⁾に基づくUO₂結晶粒内の拡散係数を算出した(図2)。拡散係数はほぼアレニウス型の温度依存性を示すことから、Cs放出はUO₂結晶粒内拡散が律速であったと考えられる。また、VEGA-1に比べてVEGA-4の拡散係数が大きくなることが明らかとなつた。これには、燃料が酸化することによって燃料結晶内の構造欠陥(空格子点)が増加して結晶粒内での拡散が容易になつたこと、燃料が被覆管との共晶反応により液化したことが影響していると思われる。

[おわりに] 水蒸気雰囲気下では、不活性雰囲気下に比べ、燃料からのCs及びRuの放出が促進されることが実験的に示された。今後、燃料の金相観察等により、原因をより詳しく調べる予定である。

[参考文献] 1) 日高他, JAERI-Research 99-066(1999). 2) Kudo, et al., J.Nucl.Sci.Technol., 38, 10, p910(2001). 3) Booth, et al., CRDC-721 (1957).

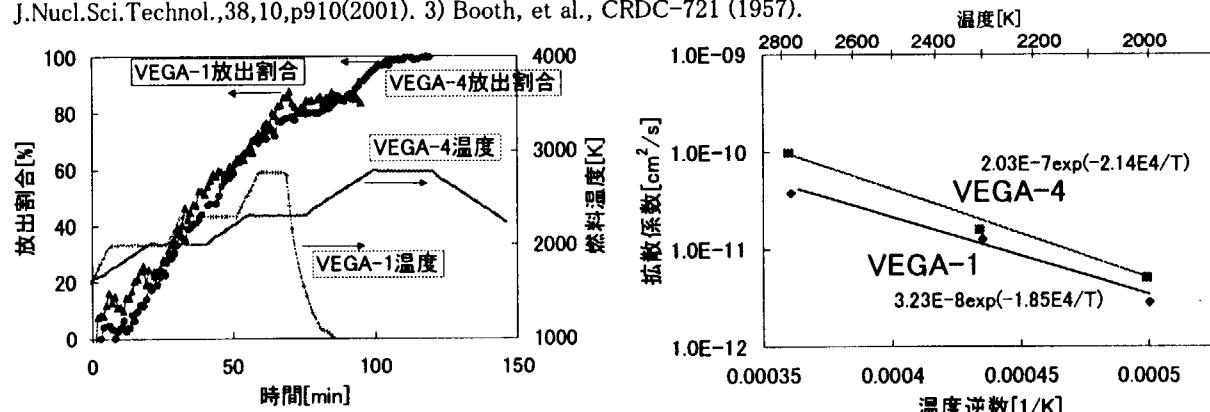


図1 セシウムの放出履歴及び燃料温度履歴

図2 UO₂結晶粒内拡散係数の比較

J. Nucl. Sci. Technol., Vol.39, No.3, pp.273-275(2002).

Enhancement of Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K

Akihide HIDAKA, Tamotsu KUDO, Takehiko NAKAMURA and Hiroshi UETSUKA

Abstract

The behavior of radionuclides release from irradiated PWR fuel in inert He gas at temperature above UO_2 melting point was investigated in VEGA program at JAERI. The experiment showed that the release of volatile Cs was enhanced at temperature above 2,800K and almost 100% of its inventory was released from fuel during the experiment while the fractional release of some low-volatile radionuclides such as Ru and Eu were equal to zero. The release rate coefficients of Cs at temperature above 2,800K became larger by several factors of magnitude than the extrapolated values based on the Arrhenius equation fitted from the release data below UO_2 melting point. This indicates that the release behavior at temperature above 2,800K should be modeled by a different approach from the extrapolation of existing models such as CORSOR or diffusion in UO_2 grain in which the integrity of UO_2 lattices is always assumed.

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
物質量	モル	mol
光强度	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 ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
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	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
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	
光強度	ルーメン	lm	cd·sr
放熱能	ペクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

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

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

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

(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、ヘクタ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す場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC開発理事会指令では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 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
9.80665		1	2.20462
4.44822		0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

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

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)	
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	= 4.184 J(熱化学)	
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	= 4.1855 J(15 °C)	
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	= 4.1868 J(国際蒸気表)	
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS(仏馬力)	
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s	
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W	
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹		1	0.01
	3.7 × 10 ¹⁰	1			

照 射 線 量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)



古紙配合率100%
白色度70%の再生紙を使用しています