

安全研究成果報告

事故時燃料安全性に関する規制高度化研究

Research for the regulation on fuel safety in design base accidents

北野 剛司 山内 紹裕 小澤 正明

Koji KITANO, Akihiro YAMAUCHI and Masaaki OZAWA

システム安全研究部門

Division of Research for Reactor System Safety

原子力規制庁

長官官房技術基盤グループ

Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority(S/NRA/R)

令和元年 5 月

May 2019

本報告は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループが行った安全研究プロジェクトの活動内容・成果をとりまとめたものです。

なお、本報告の内容を規制基準、評価ガイド等として審査や検査に活用する場合には、別途原子力規制委員会の判断が行われることとなります。

本レポートの内容に関するご質問は、下記にお問い合わせください。

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ システム安全研究部門
〒106-8450 東京都港区六本木 1-9-9 六本木ファーストビル
電 話：03-5114-2223
ファックス：03-5114-2233

事故時燃料安全性に関する規制高度化研究

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ

システム安全研究部門

北野 剛司 山内 紹裕 小澤 正明

要 旨

長期間の照射による燃料性能の低下を抑え高燃焼度での安全性をより向上させること等を目的として、改良型軽水炉燃料の開発が国内外で進められてきた。海外ではその一部が既に実用化されており、国内において導入される場合に備え、規制基準への適合性判断の根拠となる技術的知見を拡充しておく必要がある。また、従来型の燃料に関する知見を基に定められた現行の燃料に関連する規制基準類が、改良型燃料にも適用可能であることを確認する必要がある。本研究では、高燃焼度燃料の安全性確保をより確実に行うために、主に国立研究開発法人日本原子力研究開発機構へ試験研究を委託し、高燃焼度改良型燃料を対象として、設計基準事故である反応度事故 (RIA) 及び冷却材喪失事故 (LOCA) 条件を模擬した実験や計算コードを用いた解析を行い、事故時の燃料挙動に関するデータを広く取得した。

RIA 試験により取得したデータ及びその解析により、84Gwd/tU 程度までの高い燃焼度にあっても、改良型燃料の破損限界条件は、関連する指針に定められている破損しきい値よりも高いことを確認した。また、RIA 時の燃料破損が被覆管中の水素吸収と密接に関係することから、破損限界条件の水素吸収量及び水素化物析出形態に対する依存性を明らかにした。LOCA 時の燃料挙動に関しては、従来型被覆管と合金組成の異なる改良型被覆管が 85Gwd/tU 程度までの高い燃焼度まで使用されても、安全評価上重要な被覆管の酸化挙動や急冷時の破断に大きな変化がないことを明らかにした。また、LOCA 後の長期炉心冷却性に関連し、高温酸化、変形及び急冷を経験した被覆管の外的負荷に対する耐破損特性に関する知見も取得した。

本研究により、改良型燃料の規制基準への適合性判断の際の根拠となる技術的知見を取

得することができた。現行の RIA 及び LOCA 時の燃料状態を判断するための基準類は、高燃焼度改良型燃料に対しても適用可能であると考えられる。RIA 試験の一部において観察された高燃焼度燃料の破裂による破損及び比較的低いエンタルピーでの破損並びに LOCA 時の高燃焼度燃料ペレット挙動については、発生条件、メカニズム及び炉心健全性への影響が十分には解明されておらず、注意深く研究を続ける必要がある。

Research for the regulation on fuel safety in design basis accidents

Koji KITANO, Akihiro YAMAUCHI and Masaaki OZAWA
Division of Research for Reactor System Safety
Regulatory Standard and Research Department,
Secretariat of Nuclear Regulation Authority(S/NRA/R)

Abstract

Several kinds of advanced fuel rod for light water reactors have been developed domestically and abroad with the objectives such as enhancing the safety of fuel at high burnup by mitigation of performance degradation due to the extension of irradiation period. Some of the advanced fuel rods have been already commercialized abroad. Therefore, it is expected that they will be introduced also in Japan. For reviewing conformity of the advanced fuel rods to the new regulatory requirements, it is necessary for the Nuclear Regulation Authority to expand knowledge on the advanced fuel rods and to confirm the applicability of the current fuel-related safety criteria that was based on data on the conventional fuel. In order to secure the safety of high burnup fuel further, this safety research project was conducted mainly at Japan Atomic Energy Agency (JAEA) with experiments for high burnup advanced fuel rods under major design basis accidents, reactivity-initiated accident (RIA) and loss of coolant accident (LOCA) conditions, as well as analyses using computer codes, which provided extensive data of the fuel behavior in the accidents.

The results of the RIA experiments and experimental analyses showed that the failure limits of the examined advanced fuel rods with less than 84 GWd/tU are higher than the failure threshold defined in the current RIA-related criteria. Failure of a high burnup fuel rod in the RIA experiments is depending on hydrogen absorption in the cladding; therefore, new dependencies of the failure limit on hydrogen content and hydride morphology in the cladding were proposed. As for the fuel behavior in LOCAs, it was shown that the advanced claddings consisting of different alloy elements from the conventional claddings with less than 85 GWd/tU did not have significant change in oxidation behavior and failure at quenching, which were important in the safety evaluation. The data on fracture resistance of the oxidized, ruptured and quenched cladding to external loading were obtained to

evaluate the post-LOCA long-term core cooling.

This research has successfully acquired technical data available as the basis of conformity review of the advanced fuel rods. It is considered that the current fuel-related acceptance criteria for RIA and LOCA are applicable to the high burnup advanced fuels. Additional detailed examinations are necessary to investigate the fuel failure at a low enthalpy and the rupture type failure that were newly observed in the RIA tests, and also high burnup fuel pellet behavior under LOCA conditions, because occurrence conditions and mechanism of these phenomena and their influence on the reactor core integrity have not been fully understood.

目次

1.	序論	1
1.1	背景	1
1.2	目的	2
1.3	全体工程	3
2.	本論	4
2.1	研究の概要	4
2.2	RIA 試験	4
2.2.1	RIA 試験の概要	4
2.2.2	RIA 試験条件及び結果	7
2.2.3	PCMI 破損しきい値の妥当性検討	12
2.2.4	破損形態	14
2.2.5	PCMI 破損しきい値改訂の検討	16
2.2.6	FP ガス放出	20
2.2.7	燃料被覆管残留変形	21
2.3	LOCA 試験	23
2.3.1	LOCA 試験の概要	23
2.3.2	急冷破断条件	26
2.3.3	水素吸収（二次水素化）挙動	30
2.3.4	酸化挙動	32
2.3.5	LOCA 後の長期燃料冷却性に関する検討	40
2.3.6	LOCA 後燃料被覆管に発生する振動時応力の検討	43
2.3.7	燃料ペレット細片化挙動	47
3.	結論	65
3.1	成果の要点	65
3.2	目的の達成状況	66
3.3	成果の活用等	66
	参考文献一覧	67
	主な執筆者一覧	73

表目次

表 2.1	RIA 試験の一覧.....	9
表 2.2	高燃焼度改良型燃料被覆管に対する急冷破断試験結果のまとめ.....	28
表 2.3	酸化速度評価試験条件	33
表 2.4	高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化速度定数のまとめ.....	35
表 2.5	LOCA 時温度変化模擬加熱試験に供した試料及び採取元燃料棒の諸元.....	48
表 2.6	ペレット加熱試験試料一覧	59

図目次

図 1. 1	本研究の全体工程	3
図 2. 1	NSRR 実験燃料棒の概略構造	5
図 2. 2	RIA 試験用の実験カプセルの概要	5
図 2. 3	RIA 試験における NSRR 施設での試験燃料棒と実験カプセル取扱いの流れ	6
図 2. 4	試験データの燃焼度範囲	10
図 2. 5	NSRR 実験測定データ例 (VA-5)	11
図 2. 6	RIA 試験時の燃料棒内線出力と燃料エンタルピの関係	12
図 2. 7	本研究で得られたデータを反映した PCMI 破損マップ	13
図 2. 8	VA-5(SR) 及び VA-6(RX) 試験燃料棒の試験後外観	14
図 2. 9	CN-1 試験燃料棒の試験後外観	15
図 2. 10	OS-1 試験燃料棒の試験後外観	16
図 2. 11	OS-1 燃料と同一燃料棒から採取した燃料被覆管金相写真	16
図 2. 12	SR 材被覆管 PWR 燃料(VA-5) の破損部断面金相写真	17
図 2. 13	RX 材被覆管の破損部断面金相	17
図 2. 14	燃料被覆管水素吸収量で整理した PCMI 破損限界	19
図 2. 15	パルス照射時の FP ガス放出率	21
図 2. 16	RIA 条件下での燃料被覆管塑性変形	22
図 2. 17	LOCA 模擬急冷破断試験に用いる短尺試験燃料棒の製作方法	25
図 2. 18	LOCA 模擬急冷破断試験燃料棒	25
図 2. 19	LOCA 模擬急冷破断試験装置	26
図 2. 20	急冷破断試験中の温度履歴の例	26
図 2. 21	LOCA 模擬条件での酸化量及び酸化温度に関する破断マップ	29
図 2. 22	LOCA 模擬条件での酸化量及び初期水素濃度に関する破断マップ	30
図 2. 23	急冷破断試験中に試料に吸収された水素量の軸方向分布	31
図 2. 24	高燃焼度改良型燃料被覆管の単位面積当たりの重量増加量の酸化時間依存性	36
図 2. 25	未照射及び高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化速度定数の温度依存性	37
図 2. 26	1273K で 1800s 酸化させた高燃焼度 Zry-2 (LK3) 燃料被覆管の断面金相画像	37
図 2. 27	急冷破断試験後の LZIR5 の破裂開口位置における断面金相画像	38
図 2. 28	酸化温度 1273K、酸化時間 3600s の条件で酸化させた高燃焼度低スズ ZIRLO 及び Zry-2 (LK3) 燃料被覆管の断面金相画像	39
図 2. 29	高燃焼度改良型燃料被覆管の最大曲げモーメントと酸化量の関係	41
図 2. 30	4 点曲げ試験後の試料外観 (LMFI3)	42
図 2. 31	破裂被覆管 FEM モデルと LOCA 試験後試料の外観	43
図 2. 32	完全モデルと一体モデルの相対変位の時間変化	44

図 2. 3 3	水平方向相対変位の時間変化	45
図 2. 3 4	破裂開口部の応力分布	45
図 2. 3 5	破裂及び高温酸化した被覆管試料の最大曲げモーメント.....	46
図 2. 3 6	加熱試験に供した燃料ペレット片のレファレンス試料の断面画像.....	50
図 2. 3 7	採取した燃料ペレット片の外観写真	51
図 2. 3 8	加熱試験に供した燃料ペレット片 No. 5 の SEM 画像.....	51
図 2. 3 9	加熱試験に供した燃料ペレット片 No. 6 の SEM 画像.....	53
図 2. 4 0	加熱試験後の燃料ペレット片の外観画像	55
図 2. 4 1	燃料ペレット片 No. 5 に対する加熱試験時のるつぼ温度及び同燃料ペレット 片から放出された Xe 及び Kr の分圧の時刻歴.....	55
図 2. 4 2	燃料ペレット片 No. 6 に対する加熱試験時のるつぼ温度及び同燃料ペレット 片から放出された Xe 及び Kr の分圧の時刻歴.....	56
図 2. 4 3	微小ペレット片採取方法の概略図	59
図 2. 4 4	燃料ディスク外観写真の例	59
図 2. 4 5	試料採取元燃料棒の断面金相写真	60
図 2. 4 6	加熱試験条件の温度/圧力履歴の例	61
図 2. 4 7	加熱試験前後の試料外観の例 (試料番号 : CK6、左 : 試験前、右 : 試験後)	61
図 2. 4 8	半径方向位置ごとの加熱試験時 FP ガス放出率	62
図 2. 4 9	加熱試験後の試料破碎状況及び粉状片表面の SEM 写真.....	63
図 2. 5 0	最外周部試料 (SG8) の加熱試験時の炉内圧力及び電離箱出力電流値の関係..	64

略語表

ABWR	Advanced BWR	改良型沸騰水型原子炉
BWR	Boiling Water Reactor	沸騰水型原子炉
ECCS	Emergency Core Cooling System	非常用炉心冷却系
ECR	Equivalent Cladding Reacted	等価被覆酸化量
FEM	Finite Element Method	有限要素法
FFRD	Fuel Fragmentation, Relocation and Dispersal	燃料ペレットの細片化、軸方向の再配置及びペレット細片の放出
FGR	Fission Gas Release	核分裂性ガス放出
FP	Fission Product	核分裂生成物
LOCA	Loss of Coolant Accident	冷却材喪失事故
MOX	Mixed Oxide (Fuel)	混合酸化物 (燃料)
NSRR	Nuclear Safety Research Reactor	原子炉安全性研究炉
PCMI	Pellet/Cladding Mechanical Interaction	ペレット被覆管機械的相互作用
PWR	Pressurized Water Reactor	加圧水型原子炉
RIA	Reactivity Initiated Accident	反応度事故
Zry	Zircaloy	ジルカロイ

1. 序論

1.1 背景

既存の発電用軽水炉の安全性を向上させるとともに高燃焼度化をはじめとする高度利用を目指し性能を高めた燃料、いわゆる「改良型燃料」の研究開発が国内外で進められてきており、海外ではその一部が既に実用化されている。改良型燃料は、従来の規格を超えて合金組成を変更した新合金被覆管や結晶組織を変更したペレットを採用することで、現行型の燃料に比べて、発電用軽水炉での照射中に生じる燃料被覆管の腐食やペレットからの核分裂生成ガス（FP ガス）放出等の低減を図ったものであり、これらの点で燃料の安全性がより高められる。一方、同じジルコニウムをベースとした燃料被覆管においても合金組成や製造時の熱処理条件の違いにより事故時の燃料挙動に差が生じること^(参1)が報告されている。また、通常運転中に生じる燃料被覆管の腐食及びこれに伴う水素吸収等の種々の変化が事故時の燃料挙動に大きく影響すること^(参2-10)が知られている。

今後我が国において改良型燃料が導入される場合には、その導入の前に、発電用原子炉施設の規制基準（実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則等）への適合性審査（以下、単に「適合性審査」という。）が行われることになる。上記の知見を踏まえれば、適合性審査に先立って、改良型燃料の各種改良点が燃料挙動に及ぼす影響について技術的知見を取得しておく必要がある。また、現行の燃料に関する判断基準類の多くが従来型の燃料について得られた知見を基に定められていることから、それらが改良型燃料の適合性審査にも適用可能であることを確認する必要がある。本研究では、高燃焼度燃料の安全性確保をより確実に行うために、高燃焼度改良型燃料を用いて、設計基準事故である反応度事故（RIA）及び冷却材喪失事故（LOCA）を模擬した実験や計算コードを用いた解析を行い、事故時の燃料挙動に関するデータを広く取得した。

RIA は設計基準事象のひとつであり、燃料被覆管の状態によっては、出力急昇（燃料エンタルピの投入）に伴って起こる燃料ペレットの急激な膨張に燃料被覆管が耐えられずに、燃料は破損に至る。RIA 時の燃料破損判断基準等は、旧原子力安全委員会原子炉安全基準部会報告書「発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象における燃焼の進んだ燃料の取り扱いについて」（平成 10 年 4 月）にまとめられた。同報告書では、PWR 燃料についてはナトリウム冷却条件で実施された燃料セグメント燃焼度 64GWd/t の実験、水冷却条件では 50GWd/t の実験、BWR 燃料については水冷却条件の 45GWd/t の実験における結果等に基づき、ペレット燃焼度に応じた破損しきい値が決定された。破損しきい値は燃料エンタルピを指標とし、運転時の異常な過渡変化にあつては燃料エンタルピがこの破損しきい値を超えないこと、事故にあつてはこの破損しきい値を超えて燃料が破損し、これに起因する機械的エネルギーやペレットの微細化が発生しても、原子炉の停止能力及び冷却性並びに原子炉圧力容器の健全性を損なわないことを確認することを求めている。なお、同報告書においては、ペレット燃焼度 65GWd/t を超える領域については工学的判断に基づき暫定的な破損しきい値が設定され、この暫定破損しきい値については、今後の試験の進捗や燃料設

計の改良等に応じて見直していくこととなっている。また、MOX 燃料の破損しきい値については直接検討されていないものの、旧原子力安全委員会原子炉安全基準部会報告書「発電用軽水型原子炉施設に用いられる混合酸化燃料について」（平成 7 年 6 月）において、反応度投入事象時の MOX 燃料挙動は UO_2 燃料と同様であると結論付けられていることから、 UO_2 燃料実験に基づく破損しきい値を用いても安全評価上の問題はないとしているが、暫定破損しきい値と同様、RIA 模擬実験の進捗に応じて、適宜見直しがなされるべきものと結ばれている。

LOCA は 1 次系配管の破断等により炉心の冷却材が喪失する事故であり、設計基準事故のひとつである。LOCA 時においても、炉心の冷却可能形状を維持しつつこれを冷却することが求められるが、炉心の冷却可能形状を維持するためには、燃料の広範な崩落につながる燃料被覆管の著しい脆化を防止すればよいという考えに基づき、LOCA 時における燃料被覆管温度と酸化割合の上限（1473K(1200°C)、15%ECR）が「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針」（昭和 56 年 7 月）（ECCS 性能評価指針）において定められた。ECCS 性能評価指針は、未照射燃料被覆管を用いた試験で得られた LOCA 時の破断限界に関するデータに基づき策定されたものである。同指針制定後、燃焼の進展に伴う燃料被覆管の材料面での変化（腐食量及び水素吸収量の増加、照射欠陥の蓄積等）が燃料被覆管の破断限界に及ぼす影響等について調べるために、旧日本原子力研究所において精力的に LOCA 模擬試験が実施された。この試験では、燃焼の進んだ燃料被覆管の状態を模擬した水素添加未照射燃料被覆管及び発電用軽水炉で使用された燃料被覆管が使用されたが、その材質は当時国内発電用軽水炉で使用が認められていた従来型合金が主であった。得られた試験結果から、従来型合金の燃料被覆管の LOCA 時破断限界は燃料棒局所燃焼度約 75 Gwd/t まで著しく低下しないことが確認された。^(参 5-9) 一方、近い将来に国内発電用軽水炉への導入が想定される改良型燃料では従来型と異なる合金組成の改良型燃料被覆管が採用されていることから、改良型燃料の適合性審査に備え、改良型燃料被覆管に関する知見、具体的には合金組成の変更や燃焼に伴う材料変化が LOCA 時破断限界に及ぼす影響等の知見が必要である。

ECCS 性能評価指針制定時には、ECCS 作動後の再冠水時に燃料被覆管に働く熱応力が最も厳しい負荷だと考えられたこと、また LOCA と地震が重畳する確率は低いと考えられたことから、再冠水時の熱応力を念頭に基準が決められた。しかし、東京電力福島第一発電所事故発生後の余震の規模及び発生頻度を考慮すれば、LOCA を経験した燃料の耐破断特性を調べ、LOCA 後長期炉心冷却性の維持に関する知見を取得しておくことも必要である。

1.2 目的

高燃焼度燃料の安全性確保をより確実に行うために、改良型燃料についてその適合性審査に先立ち、各種改良点が燃料挙動に及ぼす影響に関する技術的知見を取得する。また、現行の規制基準類の多くが従来型の燃料について得られた知見を基に定められていることから、高燃焼度領域のデータを拡充するとともに、それらが改良型燃料の適合性審査にも

適用可能であることを確認するために知見を取得する。さらに、LOCA 後の長期冷却性に関し、LOCA を経験した被覆管の地震等の外的負荷に対する耐破損特性についても知見を取得する。

1.3 全体工程

本研究は平成 18 年度から平成 30 年度にかけて、主に国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）への委託事業（^{参 9-19}）として実施したものであり、得られた成果を本報告書にまとめる。全体工程を図 1.1 に示す。

RIA 試験及び LOCA 試験に供する燃料棒は、スペイン、仏国、スイス、スウェーデンの発電用原子炉にて燃料棒平均燃焼度約 49～84GWd/t まで照射された改良型燃料から採取したものであり、平成 22 年度に日本に海上輸送した。輸送された燃料棒は、JAEA の燃料試験施設において、さらに試験燃料棒へ加工し、各試験に供した。

RIA 試験については、JAEA が有する原子炉安全性研究炉（Nuclear Safety Research Reactor : NSRR）を用いて平成 24 年から平成 30 年までに 9 回のパルス照射試験を行った。LOCA 試験では、JAEA の燃料試験施設において、平成 23 年から平成 30 年までに 8 回の急冷破断試験、7 回の酸化速度評価試験、平成 29 年度から平成 30 年度までに 2 回のペレット加熱試験を行った。また、RIA 試験及び LOCA 試験の前後において、試験対象燃料及び試験片の詳細な観察等を実施した。これらの試験及び観察と並行し、JAEA が開発した燃料挙動解析コードである FEMAXI（通常運転時及び過渡時挙動評価用）及び RANNS（事故時挙動評価用）を用いて、発電用軽水炉でのベース照射中の燃料挙動及び RIA 試験時の燃料挙動を解析し、試験条件の決定や試験結果の考察に必要な燃料内部の温度、ひずみ、応力等の状態量を評価した。また、燃料の LOCA 後長期冷却性確認の観点で、有限要素法（FEM）コードを用いて、地震を想定した振動時に LOCA 後燃料被覆管に作用する応力の解析を行った。

年度 (平成)	18	19	20	21	22	23	...	27	28	29	30
燃料輸送	供試燃料調査		欧州内輸送・諸手続		欧日海上輸送		高燃焼度改良型燃料の RIA 試験、LOCA 試験				総合評価
RIA/LOCA 試験	試験準備・予備試験										総合評価
解析評価	予備解析・試験解析										

図 1.1 本研究の全体工程

Fig. 1.1 Overall schedule of the research project

2. 本論

2.1 研究の概要

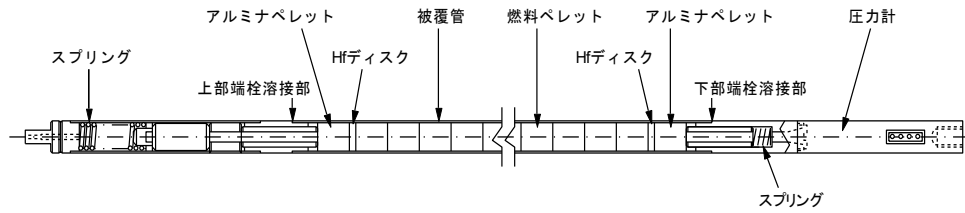
本研究では、高燃焼度改良型燃料を対象に、以下に示す RIA 試験及び LOCA 試験を実施し、事故時の燃料挙動に関するデータを取得した。

2.2 RIA 試験

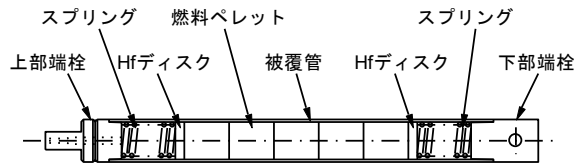
2.2.1 RIA 試験の概要

RIA は、原子炉設計時に想定する設計基準事故のひとつであり、制御棒の飛び出し (PWR) 又は落下 (BWR) により原子炉出力が局所的に急上昇し、燃料エンタルピーが急激に増大する事故である。NSRR は RIA 条件を模擬し実験燃料棒にパルス状に高い出力を与えることができる研究炉であり、NSRR を用いることにより RIA 時に起こる燃料破損や破損による影響を調べることができる。本研究で行った RIA 試験では、欧州で高燃焼度まで照射された改良型燃料 (UO₂ 燃料及び MOX 燃料) を対象として NSRR にてパルス照射試験を行い、燃料棒の破損が生じる燃料エンタルピーや FP ガス放出等、事故時の影響評価に必要なデータ及び知見を取得した。試験実施にあたっては、まず入手した燃料を JAEA の燃料試験施設で短尺の試験燃料棒に加工し、NSRR パルス照射試験前の状態を調べるための試験を実施し、その後、NSRR 施設に輸送した。試験燃料棒の構造を図 2.1 に示す。室温大気圧試験燃料棒は全長約 300mm、燃料スタック長約 110mm で、高温高圧試験燃料棒は全長約 120mm、燃料スタック長約 50mm の寸法である。両燃料棒とも燃料スタックの両端面で生じる過剰な核分裂反応を抑える目的で燃料スタックの両端に中性子吸収材であるハフニウム (Hf) ディスクを配置し、試験用として設計製造された端栓を装着した構造となっている。

NSRR 施設に輸送した試験燃料棒を実験カプセルに封入して、その後、実験カプセルを NSRR の炉心に挿入してパルス照射試験を実施した。実験カプセルの構造を図 2.2 に示す。本事業では、室温大気圧用及び高温高圧用の二種類のカプセルを用いた。両カプセルとも、試験部容器 (内部カプセル) 及び外部容器から構成される二重カプセル型の構造であるが、高温高圧用カプセルには、試験部容器の安全性確保のため制限内圧を超えた場合の圧力逃がし用として圧力抑制用タンクが設けられている。



(1) 室温大気圧試験燃料棒

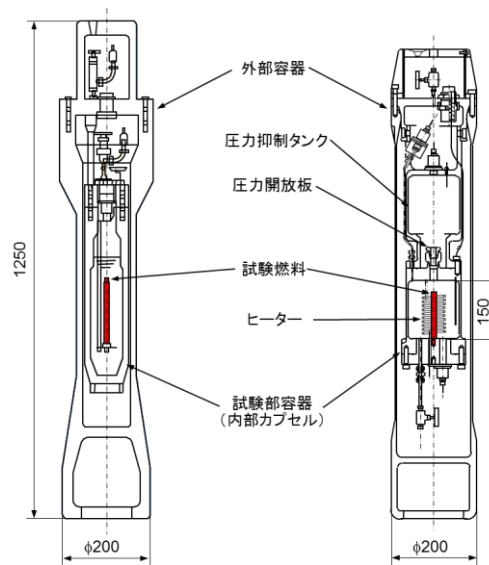


(2) 高温高圧試験燃料棒

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2.1 NSRR 実験燃料棒の概略構造

Fig. 2.1 Schematic diagrams of test fuel rods for NSRR experiment



(1) 室温大気圧カプセル

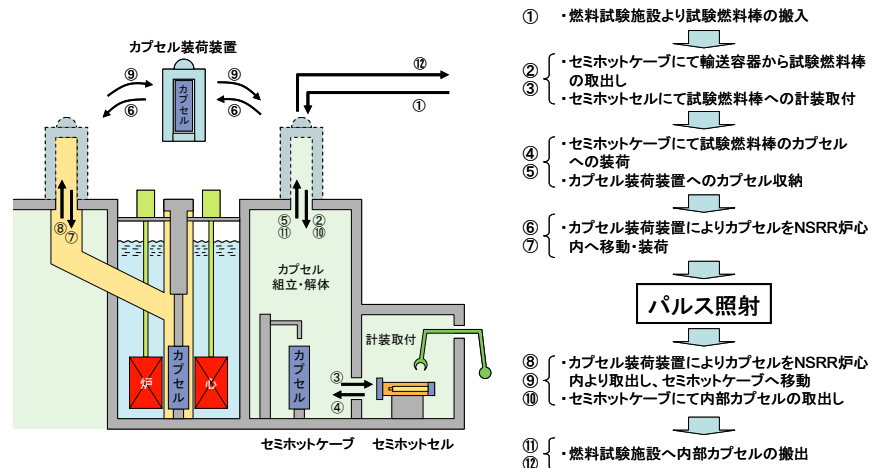
(2) 高温高圧カプセル

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2.2 RIA 試験用の実験カプセルの概要

Fig. 2.2 Schematic diagrams of experimental capsules for RIA-simulating test

試験燃料棒を封入した実験カプセルを NSRR の炉心中央部の実験孔に装荷してパルス照射した。パルス照射試験では、RIA 時の出力暴走を模擬した条件での燃料の過渡挙動を燃料被覆管外面温度、燃料被覆管変形量、燃料棒内圧等の測定により把握する。パルス照射試験後には、燃料試験施設にて照射後試験を実施し、燃料棒の変形や破損状態の観察を行う。これらの試験及び観察によって、燃料棒の破損が生じる燃料エンタルピー、パルス照射による FP ガス放出量など、事故の影響評価に必要なデータを取得した。NSRR 施設で行う作業の流れを図 2.3 に示す。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費（燃料等安全高度化対策）事業 (参 19)

図 2.3 RIA 試験における NSRR 施設での試験燃料棒と実験カプセル取扱いの流れ

Fig. 2.3 The flow of handling of test fuel rod and experimental capsule in the NSRR facility, for the RIA-simulation test

2.2.2 RIA 試験条件及び結果

本研究で実施した RIA 試験の条件及び結果を表 2.1 にまとめる。また、図 2.4 には、本研究及び本研究以前に NSRR においてデータを取得した燃焼度範囲を燃料型式別に示す。図中の黒い部分が本研究により拡大された範囲である^(参 11-19)。PWR-UO₂ 燃料については 84GWd/t まで、PWR-MOX 燃料及び BWR-UO₂ 燃料については 64GWd/t まで燃焼度範囲を拡大した。燃料被覆管材料については、本研究以前に、PWR 改良型燃料被覆管である ZIRLO、MDA、NDA、M5 に関するデータを取得しているが、本研究では新たに M-MDA(応力除去焼鈍：SR)、M-MDA(再結晶焼鈍：RX)、低スズ ZIRLO に関するデータも取得した。また M5 被覆管のデータについても、より高い燃焼度までデータを拡充した。BWR 燃料被覆管については、Zry-2 の規格内で Fe の割合を高くするなどの組成の変更及び熱処理条件の最適化が図られた LK3 被覆管及び LTP 被覆管に関するデータを取得した。また、BWR-UO₂ 燃料では二種類の添加物入り燃料ペレットのデータも取得した。

RIA 試験時の冷却水温度条件については、燃料破損限界条件の温度依存性を調べるために、PWR-UO₂ 燃料を用いた試験 (VA-5~VA-9) において、室温大気圧条件に加え、高温高压の試験を実施した。BWR においては低温起動時に起こる RIA が燃料において最も厳しい(被覆管の延性が低い)と考えられることから、室温大気圧条件で試験を実施した。PWR 燃料の内、CN-1 については、MOX 燃料の FP ガス挙動を調べる目的があり、データの比較性を考慮し、多くのデータが取得されている室温大気圧条件で試験を実施した。また、GR-1 では、CN-1 と同じ M5 被覆管が使用されているが、燃料には UO₂ ペレットが使用されており、MOX 燃料と UO₂ 燃料の比較のため、同様に室温大気圧条件で試験を実施した。

図 2.5 に NSRR 実験において測定されるデータの代表例として、VA-5 より得られた NSRR 出力、NSRR 積分出力、試験燃料棒内圧、カプセル内圧履歴を示す。NSRR における RIA 試験は、パルス照射試験と呼ばれており、急激な核分裂反応が生じるが非常に短時間で収束する。図 2.5 の NSRR 出力履歴からは、約 0.01 秒で出力変動が終了していることがわかる。試験燃料棒の出力及び発熱量の経時変化は、それぞれ NSRR 出力及び NSRR 積分出力と同様であり、試験燃料棒内の残留核分裂性同位体の量と NSRR の履歴から試験燃料棒の出力及び発熱量を評価する。試験燃料棒に破損が生じた場合は、高温状態となっている燃料ペレット及びカプセル内冷却水との相互作用が生じるため、急激な圧力変化が試験燃料棒内圧及びカプセル内圧に現れ、破損が生じたタイミングを特定することができる。図 2.6 に、試験燃料棒内に生じる発熱と燃料エンタルピの関係を示す。NSRR でのパルス照射により、試験燃料棒内では急激に核分裂反応が進み、発熱量(発生エネルギー量)は増加する。時間の経過とともに、発生エネルギーの一部は冷却材に伝わり除熱されるが、パルス照射直後は冷却材に伝わる時間がないため、発生したエネルギーのほとんどは試験燃料棒内の燃料ペレットに蓄積される。この蓄積されるエネルギーを燃料エンタルピと呼んでいる。試験燃料棒の破損タイミングは上記のとおり燃料棒内圧履歴等から知ることができ、その時の燃料エンタルピを破損時エンタルピと呼んでいる。時間の経過により熱エネルギーの一部

は冷却材に伝わるため、燃料ペレットに蓄積されるエネルギー量は最大値を取り、その後
に降下する。この最大値をピークエンタルピと呼んでおり、破損が生じなかった場合には、
ピークエンタルピにより試験結果を整理している。

表 2. 1 に示すとおり、PWR- UO_2 燃料を用い、室温大気圧条件で試験を行った VA-5、VA-
6 及び高温高圧条件で試験を行った VA-8 において、燃料は破損に至った。PWR-MOX 燃料を
用い、室温大気圧条件で試験を行った CN-1 でも、試験後の外観観察で燃料破損が確認され
たが、RIA 試験中の測定データからは破損を示唆するデータは得られなかった。また、BWR-
 UO_2 燃料を用い、室温大気圧条件で試験を行った OS-1 では、その燃焼度 (64GWd/t) に対応
する PCMI 破損しきい値 (50cal/g) より低い燃料エンタルピで破損が生じた。以下に、取
得したデータの整理及び考察を示す。

表 2.1 RIA 試験の一覧

Table 2.1 Summary of RIA tests

実験番号	燃料型式	燃料	燃焼度 (GWd/t)	被覆管	被覆管酸化膜 (μm)	被覆管水素吸収 (ppm)	初期冷却水温度 (°C)	初期冷却水圧力 (MPa)	初期燃料エンタルピー (基準温度20°C) J/g (cal/g)	エンタルピー増分の最大値 ^a J/g (cal/g)	破損時のエンタルピー増分 ^a J/g (cal/g)
VA-5	PWR 17x17	UO ₂	81	M-MDA (SR)	30	312	15	0.1	0 (0)	587 (140)	301 (72)
VA-6	PWR 17x17	UO ₂	78	M-MDA (RX)	60	683	17	0.1	0 (0)	617 (147)	146 (35)
VA-7	PWR 17x17	UO ₂	81	M-MDA (SR)	33	318	281	6.7	70 (17)	483 (115)	非破損
VA-8	PWR 17x17	UO ₂	78	M-MDA (RX)	68	703	282	6.7	70 (17)	500 (120)	175 (42)
VA-9	PWR 17x17	UO ₂	80	Low-Sn ZIRLO	35	346	286	6.6	70 (17)	481 (115)	非破損
GR-1	PWR 17x17	UO ₂	84	M5	15	95	24	0.1	0 (0)	452 (108)	非破損
CN-1	PWR 17x17	MOX	64	M5	10	未評価 ^c	15	0.1	0 (0)	670 (160)	^b
LS-4	BWR 10x10	UO ₂ Cr ₂ O ₃ doped	49	Zircaloy-2 (LTP)	未評価 ^c	未評価 ^c	15	0.1	0 (0)	549 (131)	非破損
OS-1	BWR 10x10	UO ₂ ADOPT ^d	64	Zircaloy-2 (LK3)	24	245	15	0.1	0 (0)	287 (69)	160 (38)

^a J/g 表記及び cal/g 表記の値は、評価値の小數第一位をそれぞれ四捨五入したものの。

^b 照射後試験により燃料破損が確認されたが、過渡計測データに基づき破損時刻決定は困難であったケース

^c 後継の研究プロジェクトにおいて評価を実施予定

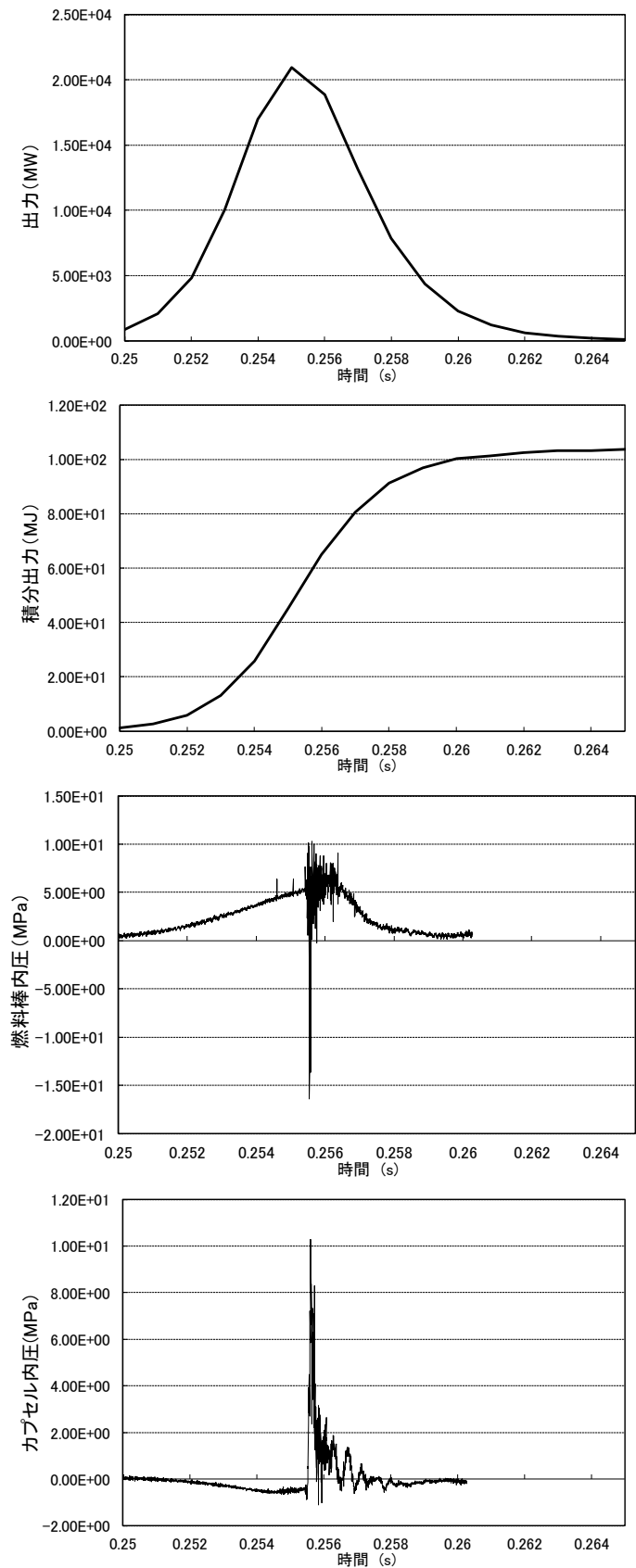
^d Cr₂O₃ and Al₂O₃ doped

試験燃料	燃料燃焼度 (GWd/t)								実験回数	左のうち 本事業による 実験回数	
	10	20	30	40	50	60	70	80			
PWR/ UO_2 (14x14, 17x17)										38	6
PWR/MOX (14x14)										4	1
BWR/ UO_2 (7x7, 8x8, 10x10)										19	2
BWR/MOX (8x8)										1	-
ATR/MOX (8x8)										6	-
JMTR予備照射 UO_2										22	-

■ : 本研究により拡充したデータ

図 2.4 試験データの燃焼度範囲

Fig. 2.4 Fuel types and burnup range of RIA tests conducted at the NSRR facility



出典) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成 24 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書 (参 15)

図 2.5 NSRR 実験測定データ例 (VA-5)

Fig. 2.5 Typical measurement data in a NSRR test (VA-5)

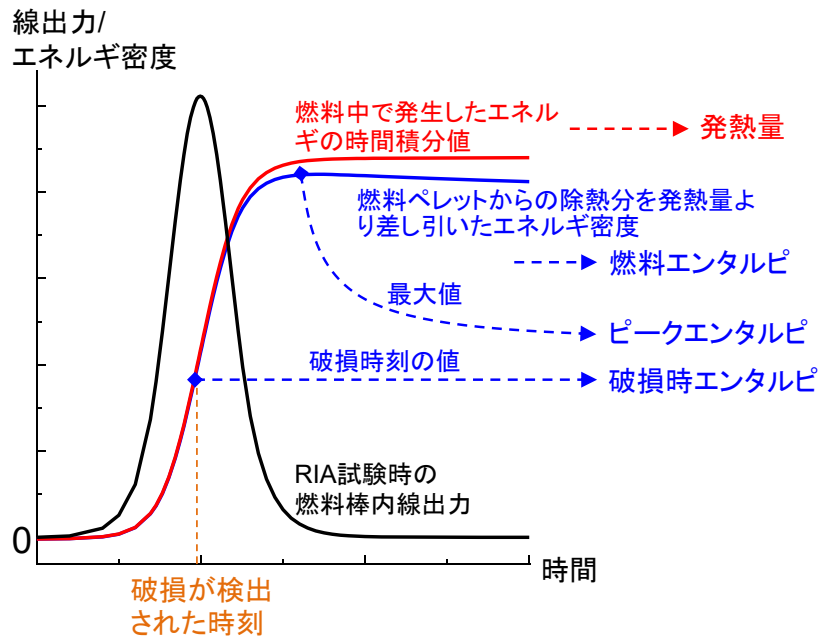


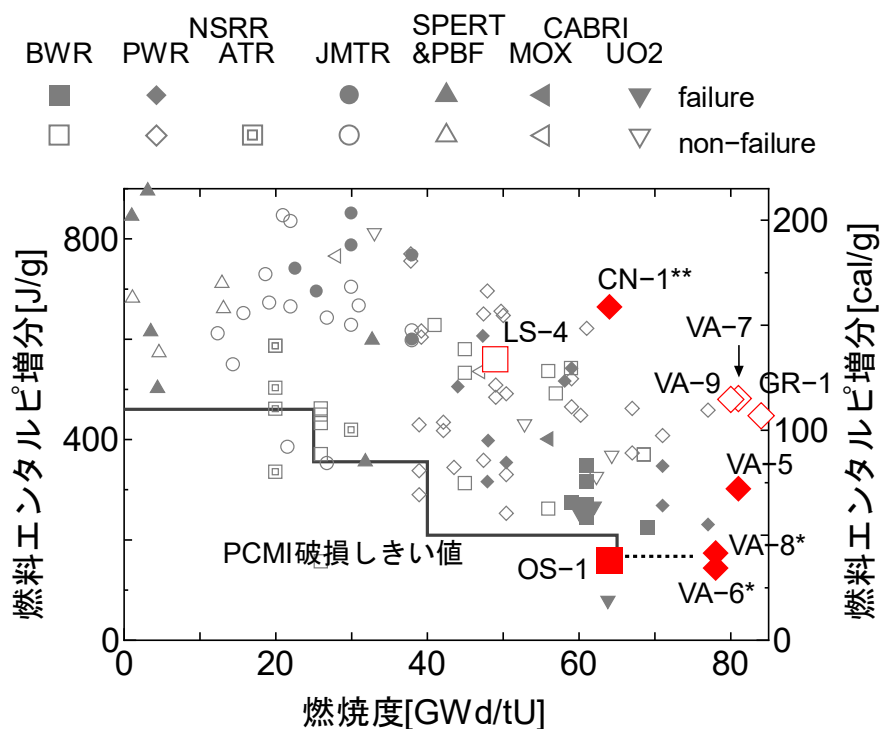
図 2.6 RIA 試験時の燃料棒内線出力と燃料エンタルピーの関係
 Fig. 2.6 The relation between rod power and fuel enthalpy at a RIA test

2.2.3 PCMI 破損しきい値の妥当性検討

図 2.7 は、これまでに NSRR やフランスの CABRI 等で実施された照射済燃料 RIA 試験の結果をまとめたものである。本研究で得られた結果を赤いマークで示す。なお、白抜きのマークは非破損、塗りつぶしのマークは破損した試験を示す。横軸はペレット燃焼度であり、縦軸は、非破損であった試験についてはピーク燃料エンタルピー、破損した試験については破損時燃料エンタルピーを示す。なお、RIA 試験に用いる試験燃料棒は短いため、セグメント平均燃焼度とペレット最高燃焼度は等しいとしている。また、RIA 試験における初期冷却水温度が高い試験（高温試験）については、初期燃料エンタルピーからの増分のピーク値を示す。図 2.7 中に折れ線で示された旧原子力安全委員会が定めた現行の PCMI 破損しきい値はペレット燃焼度の関数として燃焼度 75 GWd/t までの範囲で定義されており^(参20)、この内ペレット燃焼度 65~75 GWd/t における PCMI 破損しきい値 40 cal/g は当該領域について試験データのなかった当時の工学的判断に基づいて定められたものである。その後、旧原子力安全・保安院からの委託事業として、JAEA にて実施した研究^(参5-8)において、65~77GWd/t までのデータが取得され、これらの燃焼度領域においても、現行の PCMI 破損しきい値が妥当であることが確認された。本研究では、さらに、改良型燃料を用いて、燃焼度領域も 84GWd/t まで拡充し試験を実施した。

UO₂ 燃料ペレットと実用化が見込まれる M-MDA(SR)^(参21) 被覆管を用いた PWR 燃料 VA-5 については、燃料破損が生じたものの、破損時エンタルピーは現行の PCMI 破損しきい値より高くなった。同燃料を用いた VA-7 では、より実炉条件に近い高温で試験を実施しており、燃料破損には至らなかった。UO₂ 燃料ペレットと海外ではすでに実用化されている M5 被覆管

を用いた PWR 燃料 GR-1 でも燃料破損には至らなかった。以上のように、UO₂燃料ペレットと国内実用化が見込まれる改良型燃料被覆管を用いた試験では、現行の PCMI 破損しきい値より高い燃料エンタルピでの破損、あるいは、非破損が確認され、UO₂燃料ペレットを用いた改良型燃料に対しては、M-MDA (SR) 被覆燃料で 81GWd/t まで、M5 被覆燃料で 84GWd/t までの燃焼度範囲において現行の PCMI 破損しきい値が妥当であることを確認できた。MOX 燃料ペレットと M5 被覆管を用いた CN-1 においても、燃料破損が生じたものの、破損時エンタルピは現行の PCMI 破損しきい値より高く、MOX 燃料に対しても、64GWd/t までの燃焼度範囲において現行の PCMI 破損しきい値が妥当であることを確認できた。ただし、UO₂燃料ペレットに微量のクロミアやアルミナを添加した改良型燃料ペレットについては、LS-4 と OS-1 にて試験を実施したが、OS-1 において現行の PCMI 破損しきい値より低い燃料エンタルピで破損が生じており、引き続き試験を行い、破損原因を究明するための技術的知見を拡充する必要がある。VA-6 と VA-8 では国内実用化の見込みのない被覆管 (VA-5、VA-7 と同じ M-MDA であるが RX 材) を用いて試験を行ったため、現行の PCMI 破損しきい値の妥当性検討の対象から除外するが、VA-6 と VA-8 からは被覆管破損の条件やメカニズムを検討する上で非常に貴重なデータを得ることができた。



*商用利用の予定の無い M-MDA (RX) 被覆管燃料

**CN-1 試験では、燃料は破損したが、PCMI 破損ではなく内圧破裂であったと考えられる。

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

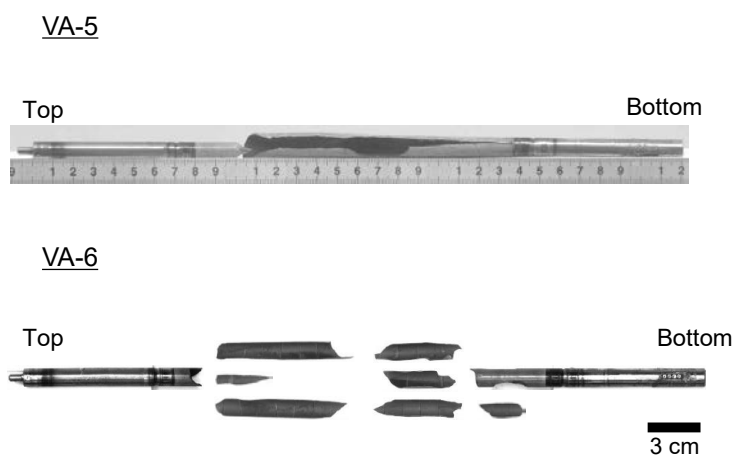
図 2.7 本研究で得られたデータを反映した PCMI 破損マップ

Fig. 2.7 PCMI failure map updated with the RIA test results obtained in this research project

2.2.4 破損形態

図 2.8 に VA-5 と VA-6 の試験後の燃料棒の外観を示す。破損形態についても、SR 材の VA-5 と RX 材の VA-6 が異なることがわかる。VA-5 では従来どおり軸方向への亀裂進展が観察されるが、VA-6 では数か所で周方向への亀裂進展あるいは亀裂発生により燃料棒が分断しており、同程度の燃焼度ではあるが被覆管の腐食量や水素吸収量に差があり（VA-5：酸化膜厚さ $30\mu\text{m}$ 、水素濃度 312ppm、VA-6： $60\mu\text{m}$ 、683ppm）、これらが破損条件と破損形態に影響を及ぼしていると考えられる。

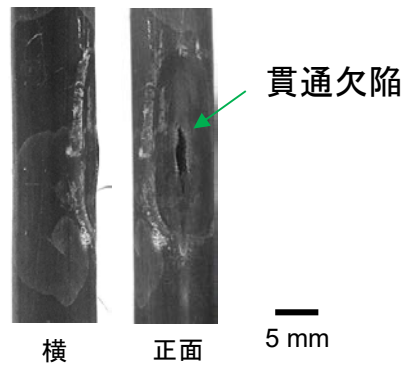
M5 被覆管を用いている GR-1 及び CN-1 燃料については、試験中の測定データから、共にエンタルピ増分が現行破損しきい値を大きく上回っても PCMI 破損に至っておらず、M5 被覆管燃料に対して、現行破損しきい値は有効であることが確認できた。ただし、CN-1 試験では PCMI 破損は生じなかったものの、図 2.9 に示すとおり、試験後の照射後試験で内圧破裂と見られる貫通欠陥の形成が確認されている。これは高燃焼度 PWR/BWR 燃料では初めて観測されるタイプの破損形態である。内圧破裂型の燃料破損防止のための基準としては、旧原子力安全委員会「発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象に関する評価指針」（昭和 59 年 1 月）において、燃料棒内外圧差の関数として破損しきい値が示されている。同指針では、燃料棒内圧が外圧より 6 kg/cm^2 を上回ると、内圧破裂型の破損が生じるとして、内外圧差に応じて、 $65\text{cal/g}\sim 137\text{cal/g}$ の破損しきい値が示されている。しかし、このしきい値は未照射燃料を予加圧した試験から設定されたもので、照射の効果は含まれていない。CN-1 では、試験中に破損が確認されなかったため、表 2.1 に示すとおり、破損時燃料エンタルピは、ピークエンタルピの 670J/g (160cal/g) で整理しているが、これは内圧破裂型の破損しきい値よりも大きく、この結果からは内圧破裂型の破損しきい値の妥当性に問題ないと言える。しかし、CN-1 は室温条件で試験を実施しており、実炉条件である高温では燃料被覆管の延性は増大するが材料強度は低下するため、高燃焼度の影響を考慮しつつ高温における高燃焼度改良燃料の内圧破裂破損については注意深く調べる必要がある。



出典) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成 26 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書 (参 17)

図 2.8 VA-5 (SR) 及び VA-6 (RX) 試験燃料棒の試験後外観

Fig. 2.8 Post-test appearances of the VA-5 (SR), -6 (RX) fuel rods



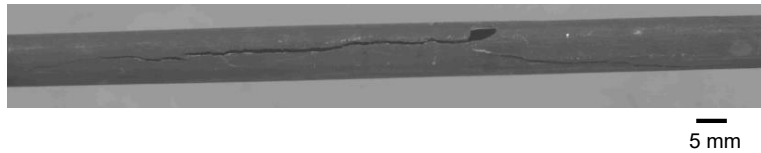
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2.9 CN-1 試験燃料棒の試験後外観

Fig. 2.9 Post-test appearance of the CN-1 fuel rod

BWR 燃料である LS-4 及び OS-1 は、従来の UO_2 燃料ペレットに微量の Cr_2O_3 等が添加された添加型ペレットが採用された燃料である。LS-4 試験では高い投入エンタルピによっても燃料は破損しなかったが、OS-1 試験では燃料は破損し、その破損時燃料エンタルピは、現行破損しきい値を下回った。OS-1 燃料の試験後の外観写真を図 2.10 に示す。外観写真から、軸方向への亀裂進展と周方向への亀裂の周り込みが確認できる。また、OS-1 燃料と同一セグメントから採取した燃料被覆管金相写真を図 2.11 に示す。燃料被覆管金相写真からは、同燃料被覆管中に占める半径方向水素化物 (燃料被覆管の半径方向に配向・成長したジルコニウム水素化物) の割合がこれまでに試験対象とした燃料被覆管に比べて大きい傾向にある領域が周方向の一部に観察された。これが破損時燃料エンタルピ低下の原因の一つとなった可能性がある。同燃料のペレットには添加型ペレットが採用されており、燃料ペレット内に蓄積された FP の影響等により事故条件下での燃料ペレットの膨れにおいても特異な挙動が生じ、燃料被覆管への負荷が通常の UO_2 燃料とは異なり破損時燃料エンタルピに影響を及ぼした可能性もある。また、OS-1 で使用されている添加型燃料ペレット (ADOPT) は照射初期に生じる焼きしまりが小さいことが報告されており (参 22-23)、燃料ペレットと被覆管の間のギャップが比較的早く閉じ、その後生じる燃料ペレットと被覆管の機械的相互作用がより顕著となって、燃料被覆管中の半径方向水素化物の割合増加が大きくなったことも考えられる。

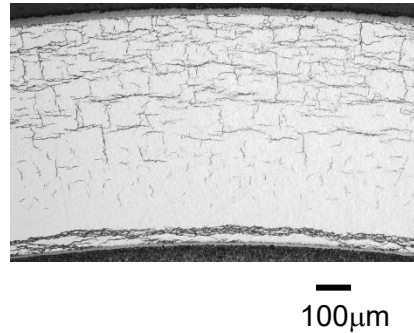
現時点では破損原因や試験結果の一般性に関するデータ・知見が十分ではないため、PCMI 破損しきい値の妥当性検討の対象に OS-1 試験の結果を含めていない。破損時燃料エンタルピ低下の原因特定を進めるためには、OS-1 燃料に対する詳しい照射後試験や同種燃料や比較燃料を使った追試験が必要である。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 61)

図 2.10 OS-1 試験燃料棒の試験後外観

Fig. 2.10 Post-test appearance of the OS-1 fuel rod



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 29 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 61)

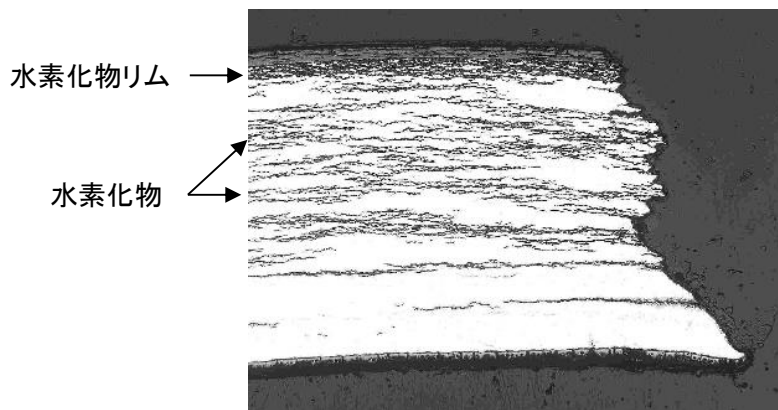
図 2.11 OS-1 燃料と同一燃料棒から採取した燃料被覆管金相写真

Fig. 2.11 Cladding metallography of the same rod as OS-1 fuel rod

2.2.5 PCMI 破損しきい値設定方法についての検討

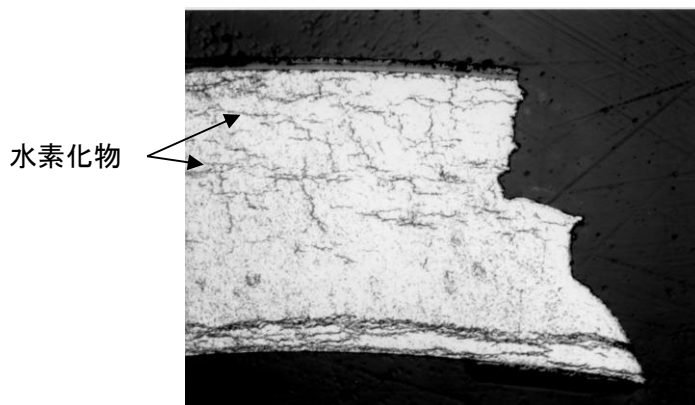
破損した燃料の詳細検査などを通じたデータ・知見 (参 5-8) の蓄積により、被覆管の水素脆化は燃料の健全性、安全性を決める重要な現象であり、NSRR 実験から得られる PCMI 破損時燃料エンタルピも、水素吸収量や水素化物析出形態と強い相関を持っていることが明らかになっている

図 2.12 に示すように、PWR 燃料被覆管では低温の被覆管外面側で水素化物が集積し、さらに、SR 材被覆管では水素化物は周方向に析出する傾向がある。燃料被覆管外面酸化膜下に水素化物が高密度で析出する層 (水素化物リム) では、延性が特に低くなるため、PCMI に起因する周方向応力が作用した際にこの水素化物リム内で半径方向亀裂が発生し、亀裂の先端で生じる応力集中により亀裂が進展し、最終的に、燃料被覆管の内側ではせん断により破壊し、貫通欠陥すなわち巨視的破損をもたらすものと考えられる。図 2.13 に RX 材の金相写真を示す。一般に、RX 材被覆管では、半径方向に析出した水素化物の割合が SR 材に比べて大きく、燃料被覆管に周方向応力が与えられたとき、半径方向の水素化物に沿って亀裂が発生する傾向がある。したがって、SR 材に比較して少量の水素化物でも半径方向亀裂が発生し、進展すると考えられる。このように、SR 材と RX 材のいずれの燃料被覆管においても、水素吸収量が破損時燃料エンタルピを左右する点は共通であるものの、水素化物の析出形態が異なるため、水素吸収量のみをパラメータとして、SR 材及び RX 材を一元的に扱うことは適切ではないと考えられる。



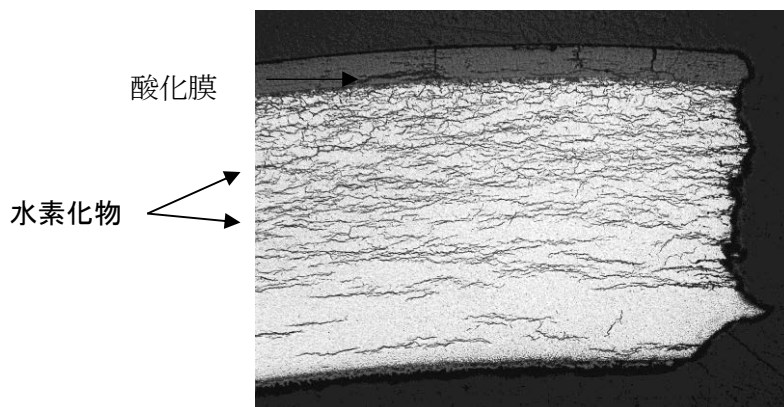
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2. 1 2 SR 材被覆管 PWR 燃料 (VA-5) の破損部断面金相写真
Fig. 2.12 Metallography of SR cladding failed in Test VA-5



(a) RX 材被覆管 BWR 燃料 (LS-1) の破損部断面金相写真

出典) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成 26 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書 (参 17)



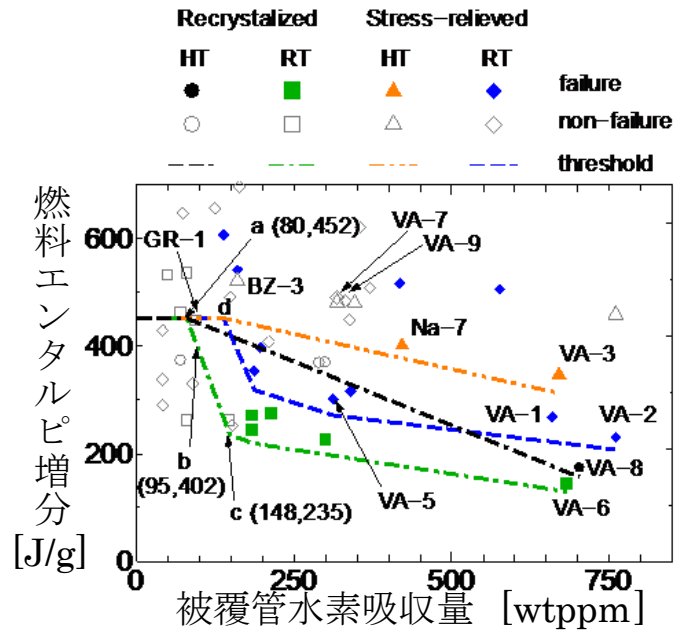
(b) RX 材被覆管 PWR 燃料 (VA-6) の破損部断面金相

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2. 1 3 RX 材被覆管の破損部断面金相
Fig. 2.13 Metallography of failed RX cladding

図 2. 1 4 は本研究及び過去の研究にて得られた PCMI 破損時燃料エンタルピと燃料被覆管水素吸収量を整理したもので、燃料が破損した条件を塗りつぶしたマークで、燃料が破損しなかった条件を白抜きのマークで示している。全体的な傾向として水素吸収量の増大とともに破損時燃料エンタルピが低下していること、RX 材被覆管燃料の破損時エンタルピは SR 材被覆管燃料のそれに比べやや低い。

VA-5 及び VA-7 では同一の SR 材被覆管燃料セグメントから、また、VA-6 及び VA-8 では同一の RX 材被覆管燃料セグメントから試験燃料棒を切り出し、それぞれ室温条件及び高温条件での RIA 試験を実施しており、高温試験 VA-7 及び VA-8 の結果を室温試験 VA-5 及び VA-6 試験の結果と比較することで、初期温度条件のみが異なる場合の破損時燃料エンタルピの変化を見積もることができる。従来の試験データベース中でもこのような直接的な比較が可能であったが、VA-5、VA-6、VA-7 及び VA-8 試験では、約 80Gwd/t という高燃焼度燃料を用いており、破損時燃料エンタルピに及ぼす温度の効果を理解する上で重要な位置付けを占める。図 2. 1 4 より、破損した VA-5 と非破損であった VA-7 の比較から、水素濃度約 300 ppm の SR 材被覆管において、破損時燃料エンタルピは初期温度の違いにより約 180 J/g 以上、上昇したことになる。一方、共に破損した VA-6 と VA-8 の比較から、水素濃度約 700 ppm の RX 材被覆管において、初期温度の違いによる破損時燃料エンタルピの上昇は約 30 J/g であった。また、過去に実施した VA-1 試験と VA-3 試験は、ともに、SR 材 ZIRLO 被覆管燃料であったが、これらの比較から得られる破損時燃料エンタルピ上昇は約 80 J/g であった。以上の比較から、SR 材、RX 材ともに、酸化膜厚さや水素濃度の大小を問わず温度上昇による破損時燃料エンタルピ上昇の効果が見られること、また、水素濃度が低く室温条件での破損時燃料エンタルピが大きい燃料ほど、初期温度上昇にともなう破損時燃料エンタルピの増加幅が大きくなることが示された。温度上昇に伴う被覆管中の水素化物の部分的な再固溶と金属母相の延性増大を考えれば、これらの傾向は技術的に妥当である。



* ()内の数字は' ' threshold' を構成する節点のグラフ上座標を示す

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2.14 燃料被覆管水素吸収量で整理した PCMI 破損限界

Fig. 2.14 PCMI failure limit as functions of cladding hydrogen content

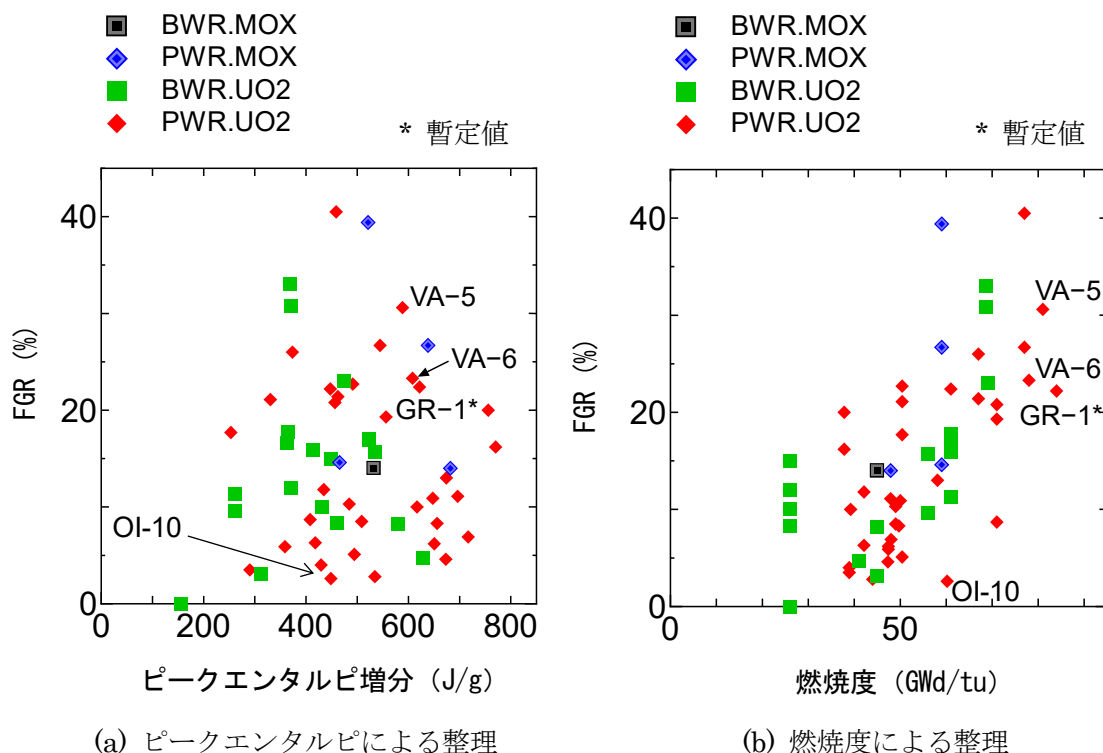
以上の議論を踏まえ、破損時の燃料エンタルピは、図 2.7 に示す燃焼度に対する相関性よりも、燃料被覆管の延性に影響を及ぼす水素吸収量、水素化物析出状態に影響を及ぼす燃料被覆管焼鈍条件及び試験温度に対する相関性の方が強いことが示唆されることから、PCMI 破損しきい値を水素吸収量の関数として設定することを試みた。検討結果を図 2.14 中に破線で示す。破損しきい値縦軸は従来どおり燃料エンタルピ増分とした。破損時燃料エンタルピは、水素吸収による燃料被覆管の延性変化に強く依存するため、水素吸収量を第一のパラメータとして横軸に取った。水素吸収量の増加に伴い破損時燃料エンタルピは低下するため、PCMI 破損しきい値は水素吸収量に対して右下がりの関数とし、試験から得られた破損時燃料エンタルピを下回るよう、PCMI 破損しきい値の線を設定した。焼鈍条件の影響については、RX 材では半径方向水素化物の存在により、同水素吸収量でも SR 材に比べて延性が低くなるため、SR 材より低い破損しきい値を設定している。温度の効果については、試験データが取得できた条件でいずれも温度上昇による破損時エンタルピの上昇が明瞭に確認されている。これは、温度上昇による燃料被覆管の延性増加からも理解でき、冷却材温度条件が運転時温度に相当する場合には、破損しきい値を高く設定している。高温条件で破損した試験例が少ないため、ある水素吸収量において非破損データ (ピークエンタルピ) が取得されている場合は、そのピークエンタルピより低い値になることも考慮して、破損しきい値を設定した。高温の RX 材については、他の 3 条件に比べて水素吸収量の増加に伴う破損しきい値の低下が大きくなっており、水素吸収量 700ppm 付近では温度

の効果は見られなくなっている。温度上昇の効果は、燃料被覆管の延性増加として現れるが、金属部分と水素化物部分を比較すると、水素化物の方が温度上昇による延性増加は小さいと考えられる。そのため、半径方向の水素化物に沿って亀裂が進展する RX 材で、水素化物が多い場合には、温度上昇による延性増加はほとんど見られなくなると考えられるが、温度変化に伴う水素化物の延性変化はよく調べられておらず、今後、調査する必要がある。

なお、PCMI 破損が生じない低水素吸収量では、燃料被覆管焼鈍条件と温度に関わらず、現行の燃焼度 25GWd/t 未満に対する破損しきい値である 460J/g (110cal/g) に集約させている。今後、低水素吸収量領域の取扱いや低い燃料エンタルピで破損した OS-1 燃料の追加試験結果等も考慮し、上記しきい値の説明性及び信頼性を高める必要がある。

2.2.6 FP ガス放出

RIA 試験時の FP ガス放出率 (FGR) を、PWR 燃料及び BWR 燃料について図 2.15 (a) 及び (b) に示す。図中で試験 ID のラベルを付したデータ点のうち、OI-10 以外の 3 点が本研究の成果である。同図縦軸に示した放出率は、通常運転中に生成された Xe 及び Kr の量に対する放出量の比を意味している。なお、通常運転中の燃料ペレットから燃料被覆管とのギャップへの FGR を評価する場合と分母は共通であり、試験中の放出量算出において生成量から通常運転中の FP ガス放出量を差し引くことはしていない。NSRR 実験で得られた FGR のデータは、一定の相関が認められたため、PWR 燃料についてはピーク燃料エンタルピにより、また BWR 燃料については通常運転中の FGR (通常時 FGR) により整理が試みられてきた^(参3)。FP ガス放出の重要因子である温度上昇幅はピークエンタルピに依存するため、燃料状態がほぼ同じであれば、FP ガス放出率とピークエンタルピの相関が明瞭に現れると考えられる。しかし、図 2.15 (a) に見られるとおり、最新のデータを含めて改めて整理すると、ピークエンタルピに対する依存性は必ずしも明瞭ではなく、FGR は、温度上昇幅を決めるピークエンタルピよりも、燃料の状態に強く依存すると考えられる。燃料の状態を示す指標として、燃焼度が考えられ、同図 (b) には、FGR と燃焼度の関係を示す。同図 (b) から確認できるように、燃焼度に対する依存性が明瞭である。その他、同図から確認できる傾向としては、高温試験で放出率が高い点、データ点数が少ないものの燃焼度の高い MOX 燃料で放出率がやや高いケースがある点、また、添加型ペレット等の結晶粒径の大きいペレットでは放出率が低い点が挙げられる。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

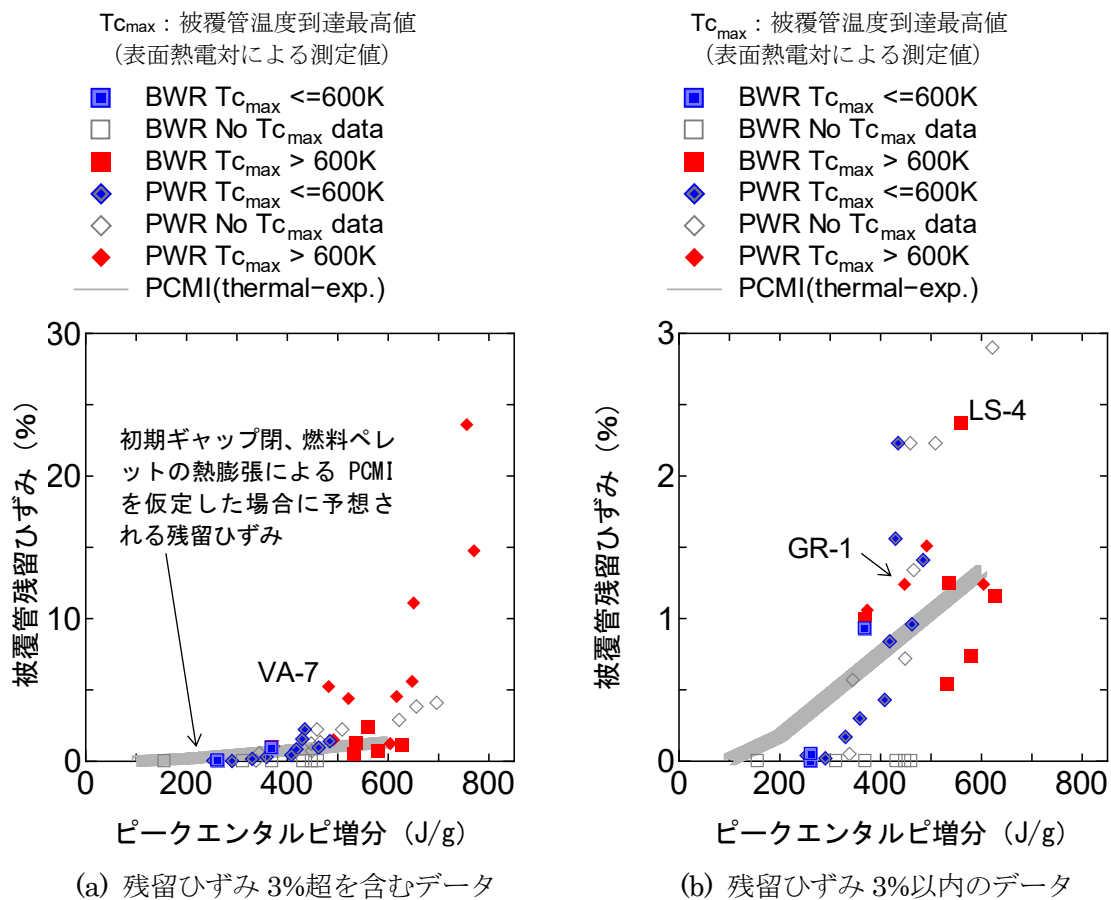
図 2.15 パルス照射時の FP ガス放出率

Fig. 2.15 Fission gas release at the pulse irradiation of the NSRR tests

2.2.7 燃料被覆管残留変形

図 2.16 (a) 及び (b) に、RIA 試験前の寸法を基準とした試験後の燃料被覆管周方向残留ひずみを示す。図中試験 ID のラベルを付したデータ点 3 点が本研究の成果である。他の供試燃料の内、VA-5、VA-6、VA-8、OS-1、CN-1 については破損ケースであり直接比較可能なデータがないため、図 2.16 中には示していない。RIA 条件下の燃料被覆管の変形にはいくつかの原因が考えられている。一つはペレットの熱膨張による PCMI であり、同図 (a) に見られる様にピーク燃料エンタルピの増大に対し直線的な残留ひずみの増大をもたらす。試験結果の半分程度がおおむねこの傾向にしたがっている。ただし BWR 燃料については、一般にペレット-被覆管ギャップが PWR 燃料よりも大きいため、ペレット熱膨張初期の変位は燃料被覆管変形に寄与しないなど、ばらつきの要素も存在する。ペレットからのガス放出による燃料棒内圧上昇も燃料被覆管変形の原因と考えられる。燃料被覆管の温度が低い場合は、内圧上昇による被覆管変形は起こらないが、膜沸騰遷移が生じて燃料被覆管から冷却材への熱伝達が悪くなり、燃料被覆管温度が上昇すると、燃料被覆管の降伏点の低下及び延性増大が生じるため、内圧上昇による燃料被覆管の大変形が起こる。この変形プロセスは、ひずみと燃料被覆管温度の関係により示唆されている。すなわち図中で、燃料被

覆管が高温に達したことが確認された試験ではペレットの熱膨張から予測される範囲を超えてひずみが多いケースが多い。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 1 6 RIA 条件下での燃料被覆管塑性変形

Fig. 2.16 Increase in cladding residual strain during the RIA tests

2.3 LOCA 試験

2.3.1 LOCA 試験の概要

ECCS 性能評価指針は、未照射の Zry 燃料被覆管を用いた試験で得られたデータに基づき策定されたものであることから、高燃焼度燃料の利用にあたっては、通常運転中に生じる燃料被覆管の腐食量やそれに伴う水素吸収を考慮しても、ECCS 性能評価指針に示された燃料被覆管の脆化防止のための被覆管温度基準及び酸化量基準が十分な安全裕度を有していることを確認する必要がある。また、同じジルコニウムをベースとした燃料被覆管においても合金組成や製造時の熱処理条件の違いにより LOCA 時の燃料挙動に差が生じることがある^(参1)。したがって、改良型燃料の導入にあたっては、改良と高燃焼度化が燃料被覆管の LOCA 時挙動に及ぼす影響を慎重に調べ、必要な知見を取得する必要がある。

LOCA 時に燃料が受ける最も厳しい負荷として想定されるのは、非常用炉心冷却系の作動による再冠水過程における熱衝撃であると考えられる。燃料被覆管は LOCA 時の昇温に伴う燃料棒内圧の上昇と材料強度の低下により膨れ破裂する可能性があり、また、破裂開口から侵入した水蒸気は燃料被覆管内面を酸化し、これにより発生した水素は燃料被覆管に吸収され被覆管脆化の一因になる。急冷時の燃料棒の軸方向収縮が拘束された場合、熱衝撃だけでなく拘束による機械荷重が燃料被覆管に作用する可能性がある。このように、LOCA 時には、燃料において酸化や水素吸収のような化学的反応や部材との機械的作用が複雑に生じることから、炉心の冷却可能形状維持のための燃料の健全性を確認するためには、LOCA 時を可能な限り模擬した条件で試験を行い、燃料棒の急冷破断条件を評価することが望ましいとされ、現行の指針は LOCA 条件を模擬した試験の結果を基に定められている。

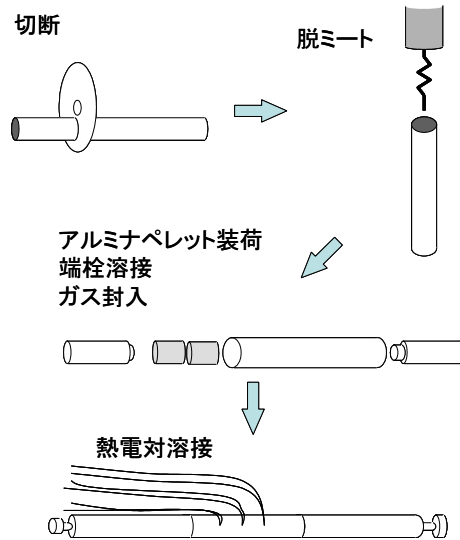
これを踏まえ、本研究においても燃料被覆管の膨れと破裂、高温での酸化、軸方向拘束を模擬した総合的な急冷破断試験を行った。図 2.17 に、急冷破断試験に用いる短尺試験燃料棒の製作方法を示す。まず、燃料棒から長さ 190 mm の短尺燃料棒を切り出し、切り出した短尺燃料棒から燃料ペレットを機械的に除去した（脱ミート）。脱ミート後には燃料被覆管の内面観察を行い、脱ミートに起因する有害な傷がないことを確認した後、燃料被覆管試料にアルミナペレットを装荷し、両端に Zry 製の端栓を溶接した。次に、同試料に室温にて 5MPa のアルゴンガスを加圧封入し、実機の LOCA 時に原子炉圧力の低下と温度上昇に伴う燃料被覆管の内圧上昇及び強度低下があいまって生じ得る燃料棒の破裂を模擬できるようにした。端栓溶接後の燃料被覆管試料にステンレス鋼製のコネクションロッドを取り付け、全長 558 mm の試験燃料棒とした（図 2.18）。試験燃料棒の燃料被覆管外表面には、温度制御と軸方向及び径方向温度分布の測定を行うため、合計 4 対の R タイプ熱電対を溶接している。急冷破断試験装置の模式図とホットセルに設置した装置の写真を図 2.19 に示す。本装置は引張試験機、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、試験燃料棒を水蒸気中で加熱し、一定の温度で所定の時間酸化した後に、冠水により急冷した（図 2.20）。なお、試験燃料棒は内圧上昇と燃料被覆管強度の低下により、昇温中、約 1050 K で破裂する。試験では、破裂時

点で一旦昇温を中止し、燃料被覆管の破裂位置を確認し、等温酸化条件（温度と時間）を決めるための参考とした。図 2. 20 の破裂直後の下降曲線はこの操作中に生じる温度降下に対応する。JAEA における行われる急冷破断試験では拘束力評価に関する従来研究^(参 25-26)を参考に、軸方向拘束力の上限值を約 540 N に設定している。

燃料被覆管の脆化は主に酸化量と相関づけられている。さらに、ジルコニウム基合金燃料被覆管を水蒸気雰囲気中 1273K (1000°C) 以下の温度で長時間 (1273K では 3600s 以上) 酸化させた場合に、水素を吸収しながら急速に酸化が進む現象、いわゆるブレイクアウェイ酸化が発生し得ることが報告されている^(参 6, 参 17)。これらのことから、高燃焼度化の影響とともに改良燃料における被覆管合金の変更が酸化速度に及ぼす影響を精度よく調べる必要がある。酸化速度評価試験では、幅 8.5 mm 程度のリング状に切り出した燃料被覆管を水蒸気中で加熱し、酸化に伴う重量増加及び酸化膜の成長を測定し、酸化速度を評価した。

炉心の冷却可能な形状は LOCA 時のみでなく、LOCA が収束した後も継続的に維持されることが求められている。LOCA 収束後、炉心から燃料が取り出されるまでは長期の時間を要すると予想され、この間に地震が発生する可能性も考えられる。そこで、LOCA 後の地震に対しても炉心の冷却可能形状が維持されることを確認するために、破裂や高温酸化等を経験した燃料被覆管の 4 点曲げ試験を行い、曲げに対する強度を調べた。さらに、解析により地震を想定した振動状態の燃料被覆管に発生する応力を解析により求めた。

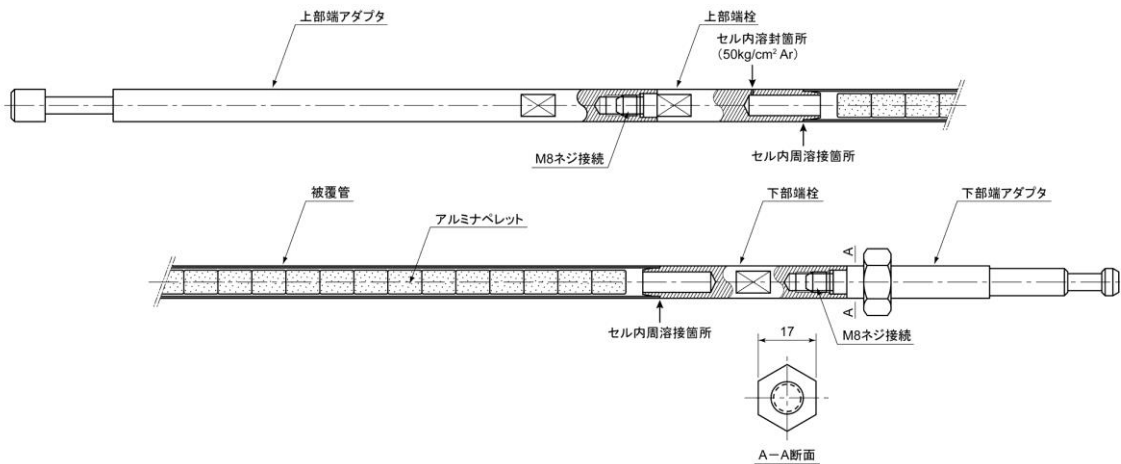
さらに、近年、LOCA 模擬試験において、非常に高い燃焼度に到達した燃料の一部で燃料被覆管の膨れ・破裂に伴うペレットの細片化、軸方向の再配置及び破裂開口部からのペレット細片の放出が生じた例が報告されている^(参 27)。これらの現象 (FFRD) は、事故時の原子炉施設の安全性に影響を及ぼす可能性があるが、その影響評価に必要となる FFRD 発生機構、しきい条件等が明らかになっておらず、現在国際的にも試験研究が進められている段階である。本研究では、FFRD のうち、ペレット細片化挙動について基礎データを取得するため、燃料ペレット単体での LOCA 時温度変化模擬加熱試験（以下「ペレット加熱試験」という。）を実施した。ペレット加熱試験では、高燃焼度燃料から採取したペレット片を 973-1473K (700-1200°C) まで加熱し、加熱後の燃料ペレット片の観察、加熱中の FP ガス放出挙動の評価等を実施した。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業^(参 19)

図 2.17 LOCA 模擬急冷破断試験に用いる短尺試験燃料棒の製作方法

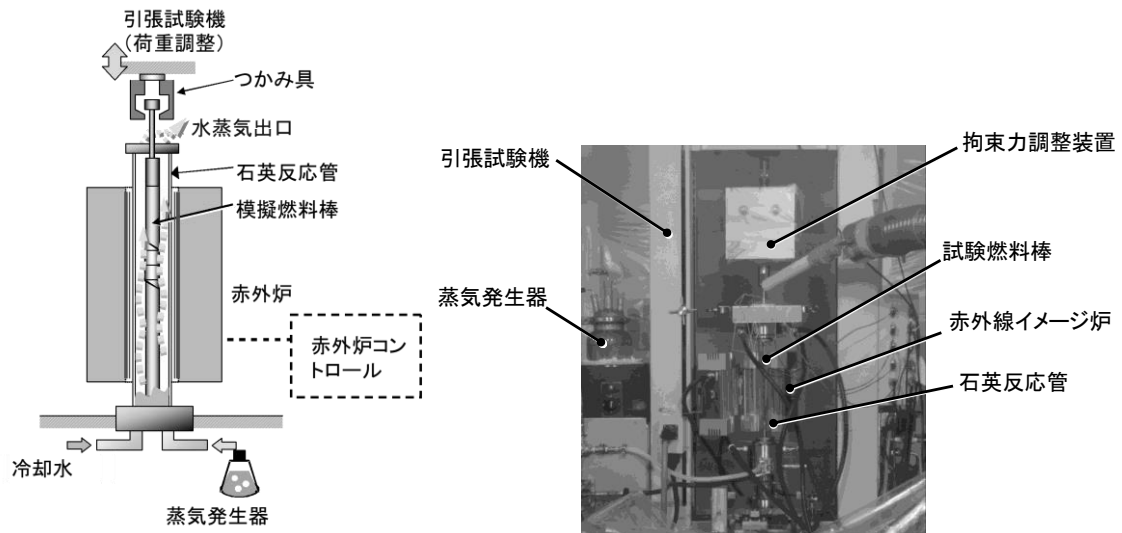
Fig. 2.17 Fabrication process of test fuel segment rod for the integral thermal shock test



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業^(参 19)

図 2.18 LOCA 模擬急冷破断試験燃料棒

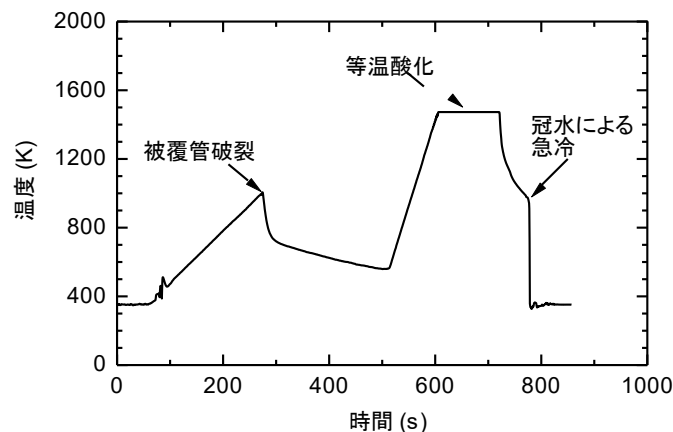
Fig. 2.18 Schematic diagrams of test fuel segment rod for the integral thermal shock test



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業^(参 19)

図 2.19 LOCA 模擬急冷破断試験装置

Fig. 2.19 Schematics of the apparatus for integral thermal shock test



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業^(参 19)

図 2.20 急冷破断試験中の温度履歴の例

Fig. 2.20 An example of temperature history during the integral thermal shock test

2.3.2 急冷破断条件

表 2.2 に、本研究で実施した急冷破断試験の結果を示す。本研究では、73~85 GWd/t まで照射された高燃焼度改良型燃料被覆管である M-MDA、M5、低スズ ZIRLO 及び Zry-2 (LK3) に対して急冷破断試験を実施し、これらの燃料被覆管の急冷破断限界を評価した。図 2.21 及び図 2.22 には、本研究から得られた結果に加えて、過去に実施した高燃焼度燃料被覆管に対する急冷破断試験の結果^(参 9-10)も併せて示す。また、図 2.22 には、未照射 Zry-4 被覆管の急冷破断限界の文献値^(参 28)を併せて示す。図 2.21 の縦軸は LOCA 模擬条件で

の ECR であり、横軸は等温酸化温度である。図 2.22 の縦軸は同じく LOCA 模擬条件での ECR であり、横軸は初期水素濃度である。ここで、初期水素濃度とは急冷破断試験前の燃料被覆管の水素濃度であり、高燃焼度燃料被覆管の場合には通常運転中に燃料被覆管に吸収された水素濃度を表す。図 2.21 及び図 2.22 に記載する ECR は、通常運転中に燃料被覆管外表面に形成された腐食酸化膜及び急冷破断試験時の膨れによる燃料被覆管の肉厚減少を考慮した金属層厚さに対し、等温酸化中の破裂開口位置における燃料被覆管表面の平均温度と等温酸化時間から、燃料被覆管内外面の両面酸化を仮定し Baker-Just 酸化速度式^(参 29)を用いて算出した。LZRT3 及び LZRT4 は破裂開口近傍以外の燃料被覆管内面に酸化膜が形成されていなかったことから、酸化量の計算において燃料被覆管の内外面の酸化を仮定した場合には、酸化量を過大評価すると考えられる。このため、LZRT3 及び LZRT4 の酸化量として、燃料被覆管の内外面の両面酸化を仮定して算出した ECR と燃料被覆管外面のみの片面酸化を仮定して算出した ECR の双方の値を表示している。図 2.21 及び図 2.22 から分かるように、高燃焼度改良型燃料被覆管は規制基準値（15%ECR）を超える酸化量を含む約 10～30%ECR の酸化量を与えても、約 520-530 N の拘束力条件下で破断することはなかった。

図 2.22 から、未照射 Zry-4 の急冷破断限界に近い酸化条件においても、高燃焼度改良型燃料被覆管は破断しないことが分かる。このことから、LOCA 時の燃料被覆管の急冷破断限界は、通常運転中に燃料被覆管に吸収される水素の濃度の増大に伴い若干低下する傾向があるものの、最高 85 Gwd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更によって著しく低下することはないと考えられる。

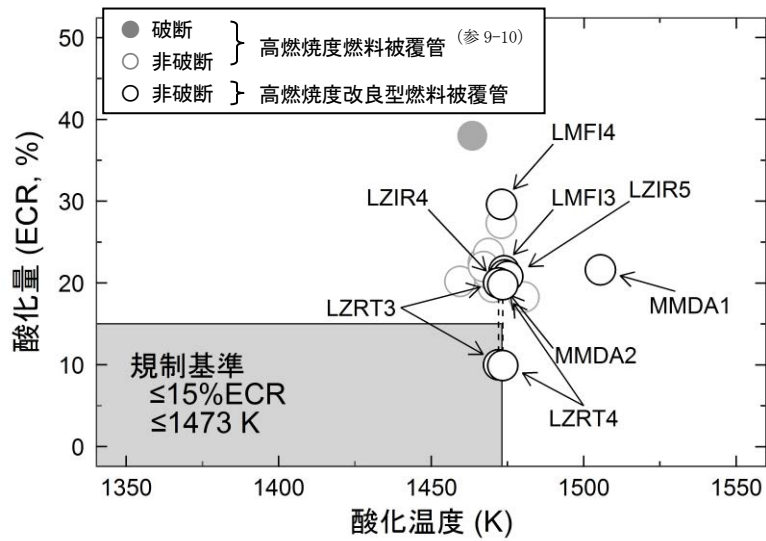
以上のことから、高燃焼度改良型燃料被覆管の LOCA 時の安全評価において ECCS 性能評価指針に記載されている燃料被覆管温度と酸化割合に関する基準を適用することができると考えられる。

表 2.2 高燃焼度改良型燃料被覆管に対する急冷破断試験結果のまとめ

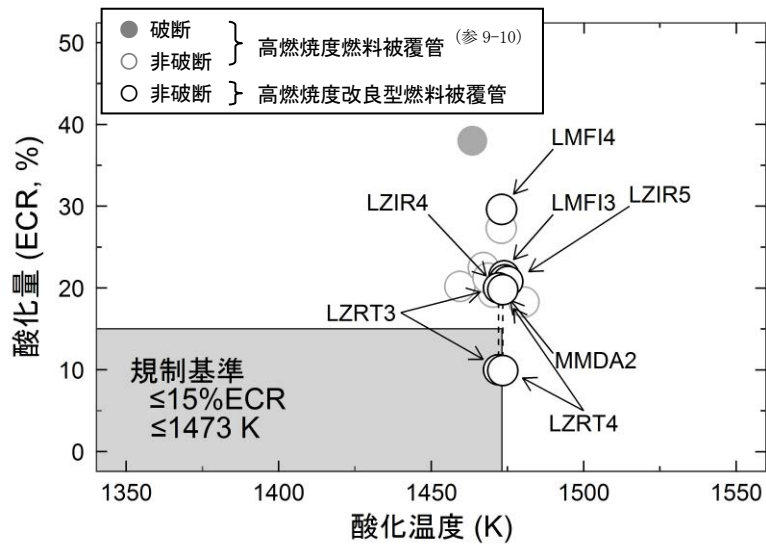
Table 2.2 Summary of integral thermal shock tests

試験実施年度	平成 23		平成 24	平成 25	平成 26		平成 27	
	MMDA2	MMDA1	LMFI3	LMFI4	LZIR5	LZIR4	LZRT4	LZRT3
被覆管材料	M-MDA (SR)		M5		低スズ ZIRLO			
セグメント平均燃焼度 (GWd/t)	81		84		80			
腐食酸化膜厚さ (μm)	27.0		10.3		17.9			
初期水素濃度 (ppm)	227	249	64	63	123	144	395	492
破砕温度 (K)	1025	1041	1047	1042	987	987	1015	987
膨れ率 (%)	34.4	26.0	27.2	23.0	42.7	39.7	12.1	13.8
等温酸化温度 (K)	1475	1505	1474	1473	1475	1474	1474	1472
酸化時間 (s)	125	112	187	384	111	119	203	202
ECR (%)*	20.8	21.6	21.5	29.6	20.8	21.0	19.8	20.0
急冷時軸方向荷重 (N)	528	80	521	519	526	529	521	525
破断(F)/非破断(NF)	NF	NF	NF	NF	NF	NF	NF	NF

* 通常運転中に被覆管外表面に形成された腐食酸化膜及び急冷破断試験時の膨れによる被覆管の肉厚減少を考慮した金属層厚さに対し、等温酸化中の破裂開口位置における被覆管表面の平均温度と等温酸化時間から、Baker-Just 酸化速度式を用いて算出した酸化量



(a) 非拘束試験結果を含むプロット

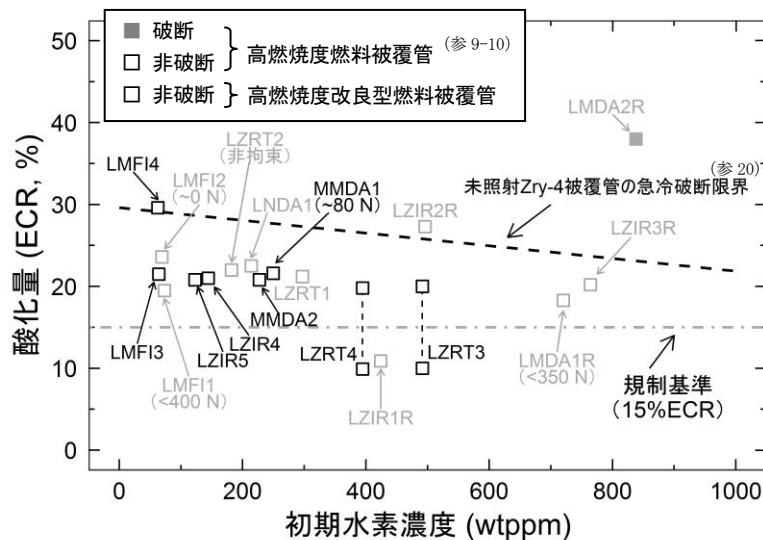


(b) 拘束試験のみのプロット

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2. 2 1 LOCA 模擬条件での酸化量及び酸化温度に関する破断マップ
(酸化量は膨れによる肉厚減少を考慮している)

Fig. 2.21 Fracture/non-fracture conditions relevant to ECR and oxidation temperature



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2.22 LOCA 模擬条件での酸化量及び初期水素濃度に関する破断マップ

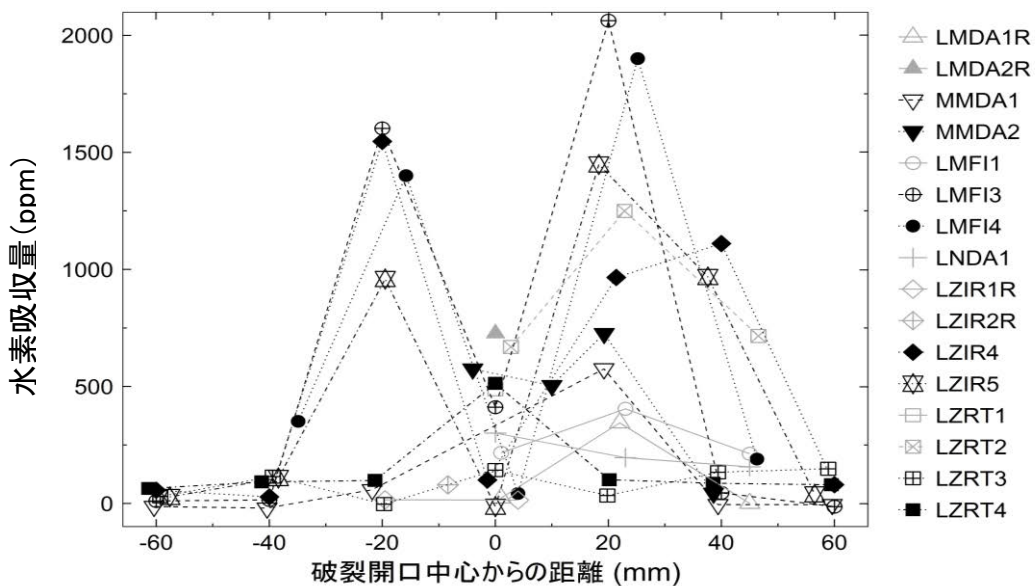
(酸化量は膨れによる肉厚減少を考慮している、図中数値は軸方向拘束力の上限值。数値の記載がないものは 520-530 N)

Fig. 2.22 Fracture/non-fracture conditions relevant to ECR and initial hydrogen concentration

2.3.3 水素吸収 (二次水素化) 挙動

LOCA 時には、その昇温過程において燃料被覆管が膨れ、破裂した場合、燃料被覆管の破裂開口部から水蒸気が流入し、燃料被覆管は外面だけでなく内面も水蒸気雰囲気において酸化する。この燃料被覆管内面の水蒸気酸化により生じた水素は燃料棒内に滞留するため、燃料棒内部における水素分圧が高まる。このため、燃料被覆管はその内面から水素を吸収 (二次水素化) しやすくなる。ただし、破裂開口部にごく近い位置では、破裂開口部からの水蒸気の流入により水素分圧が高くなならないこと及び燃料被覆管内面において酸化が進行し、比較的厚い酸化膜が形成することによる保護膜効果により水素吸収が妨げられる。その結果、水素分圧が高く内面での酸化の程度が少ない破裂開口中心から少し離れた軸方向位置 (20~50 mm) で顕著な水素吸収が起こる (参 30-32)。

図 2.23 に急冷破断試験中に高燃焼度改良型燃料被覆管に吸収された水素量 (試験後水素濃度と初期水素濃度との差) の軸方向分布を示す。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 2 3 急冷破断試験中に試料に吸収された水素量の軸方向分布
 (黒のプロットは本事業で取得した高燃焼度改良型燃料被覆管、
 グレーのプロットは高燃焼度燃料被覆管 (参 9-10))

Fig. 2.23 Axial profile of the amount of hydrogen absorbed during the test

図 2. 2 3 には過去に実施した高燃焼度燃料被覆管に対する急冷破断試験の結果 (参 9-10) を併せて示す。本研究で調べた高燃焼度改良型燃料被覆管の水素吸収量は最大で約 2000ppm であり、未照射 Zry-4 被覆管の急冷破断試験時の水素吸収量 (参 33-34) と比べて同等以下であった。高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管を除き、本研究で調べた高燃焼度改良型燃料被覆管の LOCA 時の水素吸収量の軸方向プロファイルは、未照射 Zry-4 被覆管について報告されているプロファイル (参 30-34) と同等であり、破裂開口中心から 20-50 mm 離れた位置において最大となった。高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管については、LZRT3 及び LZRT4 のそれぞれ試料において、破裂開口位置の水素吸収量が最大ないし極大となった。破裂開口位置において LOCA 時の燃料被覆管の水素吸収量が増大する傾向は、高燃焼度 MDA 被覆管 (参 9、参 28)、並びに先行研究において報告されている 39~44 GWd/t まで照射された Zry-4 被覆管 (参 35) 及び未照射 Zry-4 被覆管 (参 30) の一部についても確認されている。先行研究においては、LOCA 模擬試験時の水蒸気流量を小さくした場合に、破裂開口位置における LOCA 時の燃料被覆管水素吸収量が増大することが報告されている (参 30)。また、破裂開口が小さく、燃料棒内部への水蒸気流量が小さいと考えられた高燃焼度 MDA 被覆管は、破裂開口位置における水素吸収量が大きくなる傾向を示した (参 9、参 28)。本研究で試験した高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管は破裂開口面積が約 0.4~0.5 mm² と微小であり、燃料被覆管の内面酸化が限定的であったことから、燃料棒内部に流入する水蒸気流量が小さかったと考えられる。このような場合

には、破裂開口近傍において水素分圧が比較的高く、かつ燃料被覆管内面は酸化膜の形成が限定的であり、水素吸収を妨げない状態にあると考えられる。したがって、本研究において高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管で観察された破裂開口位置における燃料被覆管水素吸収量の増大の原因は、微小な破裂開口に起因する燃料棒内へ流入する水蒸気流量の低下にあると考えられる。

以上から、LOCA 時の燃料被覆管の水素吸収挙動に関して、最高 85 GWd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更によって水素吸収量が著しく増大することはないと考えられる。

2.3.4 酸化挙動

(a) 酸化速度

LOCA 時のジルコニウム基合金と高温の水又は水蒸気との反応においては、表面で解離した酸素が内部に拡散し、濃度勾配にしたがって外表面から酸化膜 (ZrO_2) 及び酸素安定化 α 相 ($\alpha-Zr(O)$) が形成され、内部の金属層中では酸素濃度が増大する。酸化膜と酸素安定化 α 相は非常に脆く、金属層の延性及び強度も酸素濃度の増大に伴い低下する。したがって、LOCA 時における燃料の健全性の観点では、燃料被覆管の厚みに占める残存金属層の厚さとその残存金属層における酸素濃度が重要であり、精度の高い酸化速度データを取得しておく必要がある。また、燃料被覆管の酸化速度データは燃料被覆管の酸化に伴う発熱や水素発生の評価にも用いられるため、これらの評価精度向上の観点からも精度の高い酸化速度データを取得することが重要である。

本研究では 80-85 GWd/t まで照射された高燃焼度改良型燃料被覆管である M-MDA、M5、低スズ ZIRLO、及び Zry-2 (LK3) に対して酸化速度評価試験を実施した。同試験では燃料ペレットを除去した高燃焼度改良型燃料被覆管を約 8.5 mm の長さに切断し試験片とした。この試験片を高温水蒸気中において 1173-1473 K の温度にて 120-4000s の時間範囲で等温酸化させた。酸化速度評価試験の条件を表 2.3 に示す。

表 2.3 酸化速度評価試験条件

Table 2.3 Conditions of the oxidation tests

試験片番号	材料	等温酸化条件	
		温度 (K)	時間 (s)
OMMDA- 1~4	M-MDA	1473	120~ 900
OMMDA- 6~9		1323	120~1800
OMMDA-10~13		1173	120~4000
OMFI2- 1~4	M5	1473	120~ 900
OMFI2- 6~10		1373	120~1800
OMFI2-11~15		1273	120~3600
OZIR2- 1, 3~5	低スズ ZIRLO	1473	120~ 900
OZIR2- 6~8, 14		1373	300~1800
OZIR2-10~13, 15		1273	120~3600
OZRT2- 1~4	Zry-2 (LK3)	1473	120~ 900
OZRT2- 6~10		1373	120~1800
OZRT2-11~15		1273	120~3600

図 2.24 に高燃焼度 M-MDA、M5、低スズ ZIRLO、及び Zry-2 (LK3) 被覆管の単位面積当たりの重量増加の酸化時間依存性を示す。同図には未照射の M-MDA、M5、低スズ ZIRLO、及び Zry-2 (LK3) 被覆管の単位面積当たりの重量増加の酸化時間依存性を併せて示す。図から、高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化による重量増加は、未照射材との比較において 1473K では同等であり、1373K 以下の温度で僅かに小さくなる傾向が観察された。

表 2.4 に高燃焼度 M-MDA、M5、低スズ ZIRLO、及び Zry-2 (LK3) 被覆管について求めた酸化速度定数を示す。また、図 2.25 に同酸化速度定数の温度依存性を示す。なお、酸化速度定数とは、酸化の進行が(2.1)式に示す二乗則に従うものと仮定したときの定数 (K_w) である。

$$\Delta W^2 = K_w t \dots \dots \dots (2.1)$$

ここで、 ΔW は単位面積当たりの重量増加、 t は酸化時間を表す。M-MDA、M5 及び低スズ ZIRLO 被覆管は、酸化温度が 1173 及び 1273 K の場合、酸化時間が約 900s 以下では単位面積当たりの重量増加が二乗則に従うと見なせるが、それよりも長い酸化時間のデータを含めると二乗則から外れ、酸化速度が低下する傾向を示した。図 2.26 に 1273K の温度で 1800s 酸化させた高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管の断面金相画像を示す。この図から腐食酸化膜にクラックが生じた箇所で、局所的に酸化が進行している様子が観察される。高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管の 900s を超える比較的長時間の酸化においては、酸化膜の成長と共に酸化膜中に発生する圧縮応力が増大した結果、腐食酸化膜にクラックが発生して酸化に対する保護膜効果が低減し、結果として比較的大きな重量増加を示したと推測される。このため、表 2.4 及び図 2.25 に示すデータのうち、1173 及び 1273K の酸化速度定数は、

酸化時間が約 900s 以下のデータから求めたものである。また、高燃焼度 Zry-2 (LK3) 被覆管の 1373K における酸化速度定数についても、酸化時間が約 900s 以下のデータから求めたものである。高燃焼度低スズ ZIRLO 被覆管の 1373K における酸化速度定数は、酸化時間 120s では試料の重量増加が確認されなかったため、1373K 以外のデータから求めた値である。図 2. 2 5 には、過去の研究にて取得した未照射燃料被覆管 (M5、Zry-4、M-MDA、及び低スズ ZIRLO) に対する酸化速度評価試験結果 (参 9-10、参 12-13) を併せて示す。この図から、本研究で調べた改良型燃料被覆管の酸化速度は従来材である未照射 Zry-4 被覆管と比較して同等以下であることが分かる。比較的低い温度において M-MDA 及び M5 が小さい酸化速度を示したのは、これらの合金が添加元素として Nb を含むためであり、従来知見と矛盾しない。また、照射材と未照射材の酸化速度を比較すると、本研究で調べた高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化速度は未照射材と比較して 1473K では同等であり、一方、1373K 以下の温度範囲で低いことが分かる。比較的酸化温度が低く、酸化時間が短い場合に、照射材の酸化が未照射材に比べて抑制される傾向は、酸化速度だけでなく、酸化速度評価試験後の断面金相観察からも確認できる。また、先行研究においても、その傾向は確認されている (参 17-20、参 40-41)。

これらの照射材における酸化抑制は、通常運転中に燃料被覆管外面に形成された腐食酸化膜の保護効果によるものと考えられるが、LOCA 時では、燃料被覆管の膨れ、破裂が発生するため、それが保護効果に及ぼす影響を考慮する必要がある。LOCA 時に燃料被覆管が膨れ、破裂した場合、周方向の変形により腐食酸化膜には細かなクラックが発生する。図 2. 2 6 で観察されたように、腐食酸化膜にクラックが生じた位置では保護効果が低下し、高温酸化が進行する (参 10、参 17-18、参 20)。また、図 2. 2 7 急冷破断試験後の LZIR5 の破裂開口位置における断面金相画像に示すように、急冷破断試験において膨れ、破裂した後に酸化させた燃料被覆管試料に関しては、腐食酸化膜の保護性はほとんど見られなかった (参 9-11、参 15、参 17-19)。したがって、高燃焼度燃料被覆管の安全評価に際しては、通常運転中に形成される腐食酸化膜による保護効果を考慮せずに燃料被覆管の酸化量を評価すべきと考えられる。

以上から、燃料被覆管の高温酸化速度は 85 GWd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更によって著しく増大しないと考えられる。したがって、本研究にて調べた高燃焼度改良型燃料被覆管 (燃焼度 80~85 GWd/t) について、安全評価において Baker-Just 酸化速度式 (参 29) を利用することができると考えられる。

表 2.4 高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化速度定数のまとめ

Table 2.4 Summary of oxidation tests of high burnup advanced fuel cladding tubes

試験片番号	採取セグメント 番号	セグメント 平均燃焼度 (GWd/t)	被覆管材料	腐食酸化膜 厚さ (mm)	初期水素 濃度 (ppm)	酸化速度定数 K_p ($\text{g}^2\text{m}^{-4}\text{s}^{-1}$)							
						1173 K	1273 K	1323 K	1373 K	1473 K			
OMMDA-1~4	AP2-2	81	M-MDA (SR)	27.0	253	-	-	-	-	-	33.564		
OMMDA-6~9	AP2-3			27.6	292	-	-	5.239	-	-	-		
OMMDA-10~13	AP2-10			10.3	65	0.397*	-	-	-	-	-	-	
OMFI2-1~4	AP2-11	84	M5	NA	94	-	-	-	-	-	-		
OMFI2-6~10	AP2-8			17.9	99	-	1.350*	-	-	10.198	-	-	
OMFI2-11~15	AP2-9			27.5	260	-	-	-	2.479*	-	-	-	
OZIR2-1, 3~5	AP2-20	85	低スズZIRLO	38.9	488	-	-	-	-	-	34.661		
OZIR2-6~8, 14						-	-	-	-	-	7.305*	-	-
OZIR2-10~13, 15						-	-	-	-	-	-	1.429*	-
OZRT2-1~4													
OZRT2-6~10													
OZRT2-11~15													

*二乗則に従うとみなせる900s以下の時間範囲について求めた値。

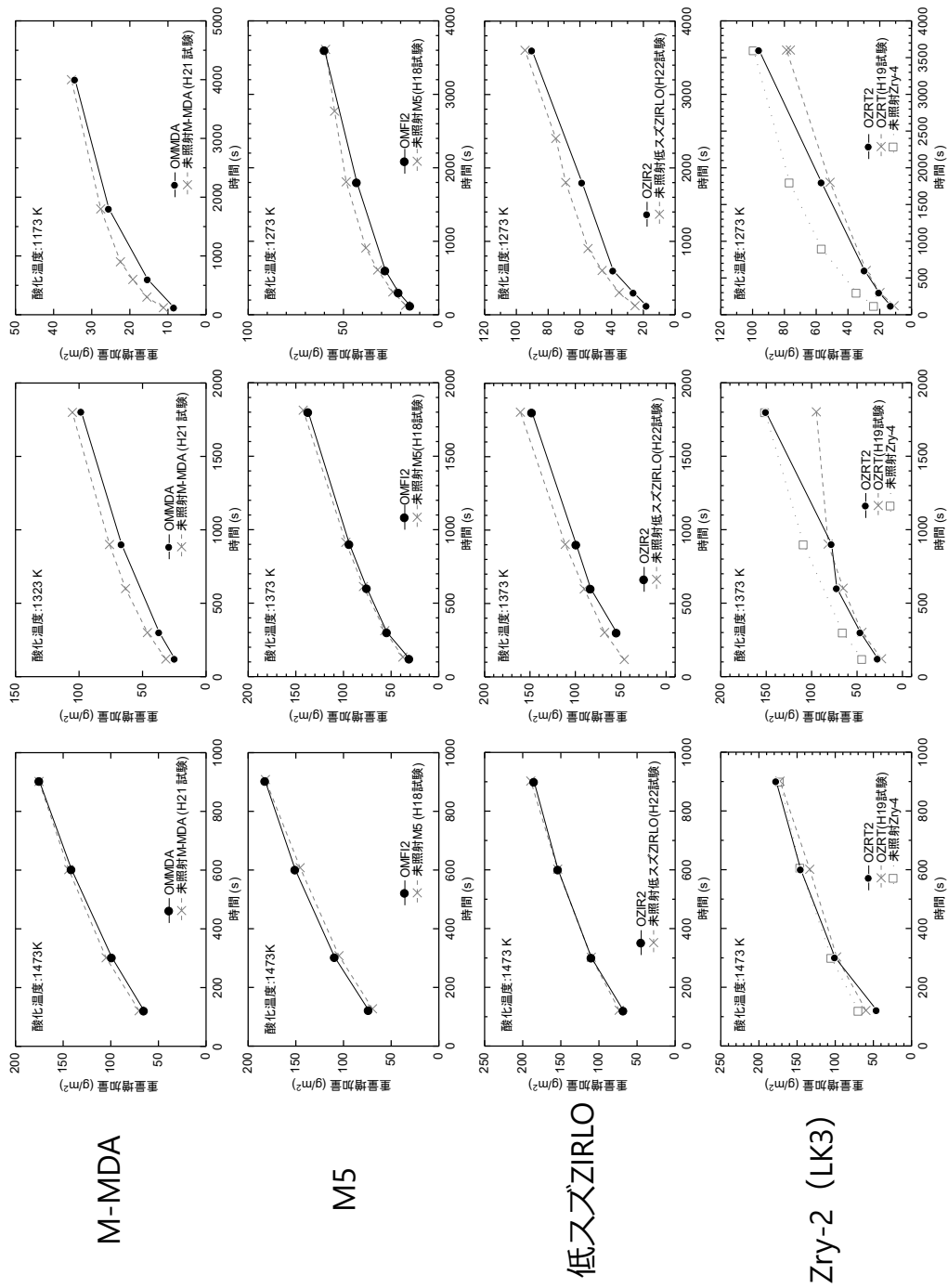
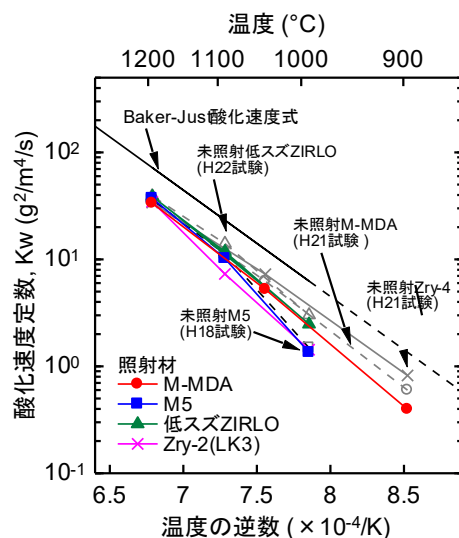


図 2.24 高燃焼度改良型燃料被覆管の単位面積当たりの重量増加量の酸化時間依存性

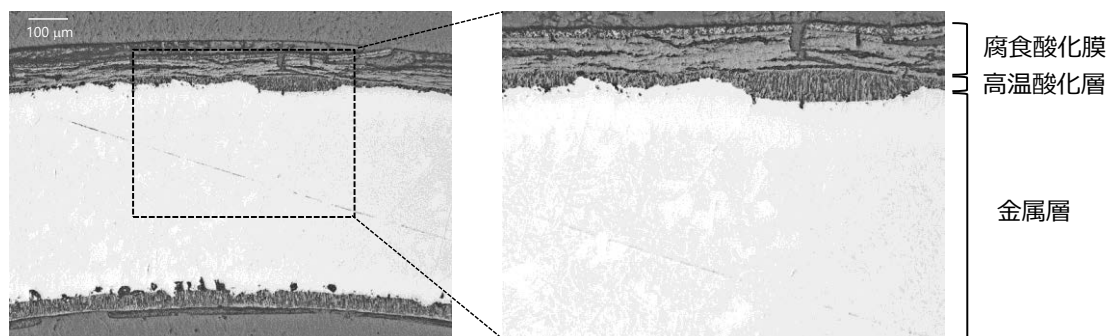
Fig. 2.24 Weight gains of high-burnup advanced fuel cladding tubes as a function of oxidation time



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 2 5 未照射及び高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化速度定数の温度依存性

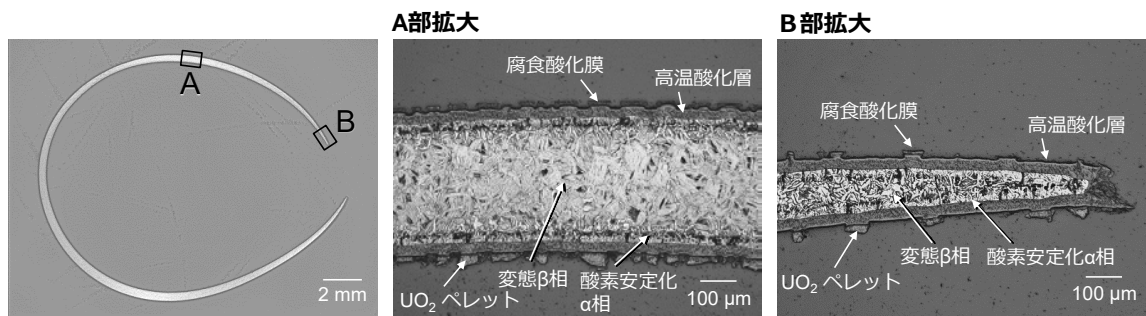
Fig. 2.25 Temperature dependence of the parabolic rate law constants for weight gain of un-irradiated and irradiated advanced fuel cladding tubes.



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 2 6 1273K で 1800s 酸化させた高燃焼度 Zry-2 (LK3) 燃料被覆管の断面金相画像

Fig. 2.26 Metallographs of the transverse cross sections of the high-burnup Zry-2 (LK3) cladding tube specimen after the oxidation tests at 1273K for 1800s.



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 27 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 18)

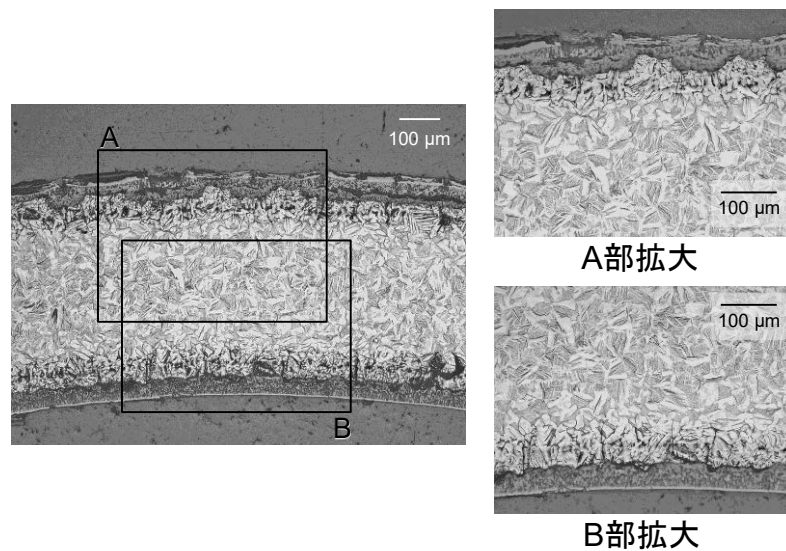
図 2. 2 7 急冷破断試験後の LZIR5 の破裂開口位置における断面金相画像

Fig. 2.27 Metallographs of the transverse cross section at the center of rupture opening of LZIR5 after the integral thermal shock test.

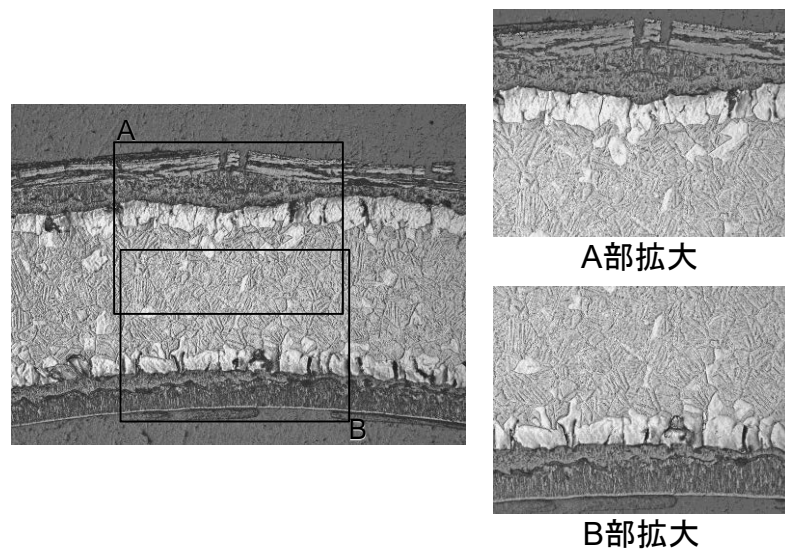
(b) ブレークアウェイ酸化

773-1073K 及び約 1273K で長時間酸化させた際に起こる「ブレークアウェイ酸化」^(参 6、参 24) は、酸化速度及び水素吸収の急激な増大を伴うことから、LOCA 時の燃料健全性評価において重要な現象である。本研究においては、1273K の温度で 3600s 酸化させた高燃焼度低スズ ZIRLO 及び Zry-2 (LK3) 燃料被覆管試料で重量増加の顕著な増大と 200ppm を超える水素吸収量の顕著な増大 (それぞれ 516 及び 933ppm) が観察された。また、図 2. 2 8 に示すように、これらの試料に対する酸化速度評価試験後の断面金相観察の結果、燃料被覆管の内外面の高温酸化層に多孔質な ZrO_2 及び周方向のクラックの形成、並びに燃料被覆管内外面の高温酸化層と金属層との境界が波を打ち、多数のクラックが形成されていること等、ブレークアウェイ酸化の発生と考えられる兆候^(参 43、参 44) が確認された。

ブレークアウェイ酸化を生じた燃料被覆管は顕著に脆化することから、ブレークアウェイ酸化が発生する酸化条件を明確にすることが重要である。1243-1273K の温度で等温酸化させた場合、未照射 Zry-4 被覆管では 3600s、未照射 M5 被覆管では 5000s、未照射 ZIRLO 被覆管では (3100 ± 300) s の酸化時間でブレークアウェイ酸化が発生したと報告されている^(参 1、参 24、参 43-44)。本研究においては、1273K の温度で等温酸化させた場合、高燃焼度 M-MDA 被覆管で 4000s、高燃焼度 M5 被覆管で 3600s、並びに高燃焼度低スズ ZIRLO 及び Zry-2 (LK3) 被覆管で 1800s の酸化時間においてブレークアウェイ酸化は発生せず、上記の先行研究において報告されている時間より短い酸化時間において、ブレークアウェイ酸化は観察されなかった。したがって、85 GWd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更によっても、ブレークアウェイ酸化が発生する時間は著しく短くなることはなく、LOCA 時に想定される高温酸化時間に比べて十分長く、LOCA 時にブレークアウェイ酸化が発生する可能性は十分小さいと考えられる。



(a) 高燃焼度低スズZIRLO
(酸化温度: 1273 K、酸化時間: 3600 s)



(b) 高燃焼度ジルカロイ-2(LK3)
(酸化温度: 1273 K、酸化時間: 3600 s)

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 2 8 酸化温度 1273K、酸化時間 3600s の条件で酸化させた高燃焼度低スズ ZIRLO 及び Zry-2 (LK3) 燃料被覆管の断面金相画像

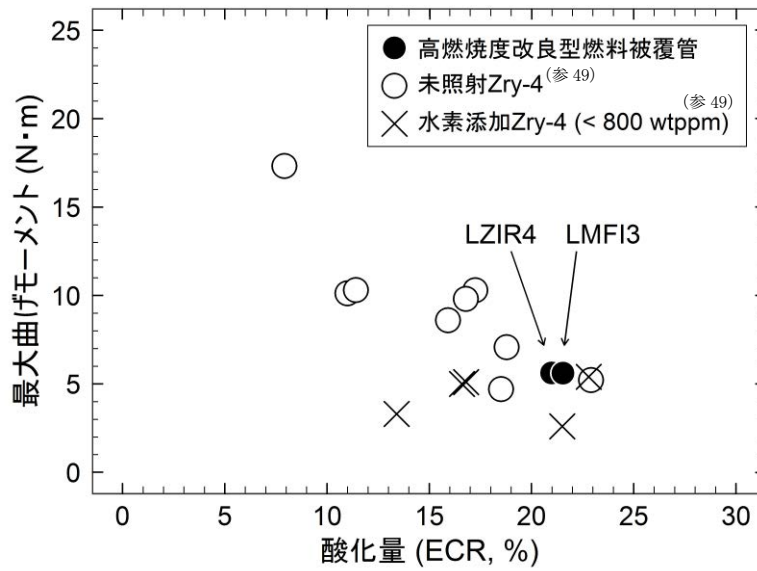
Fig. 2.28 Metallographs of the transverse cross sections of the high-burnup low-tin ZIRLO and Zry-2 (LK3) cladding tube specimens after the oxidation tests at 1273K for 3600s.

2.3.5 LOCA 後の長期燃料冷却性に関する検討

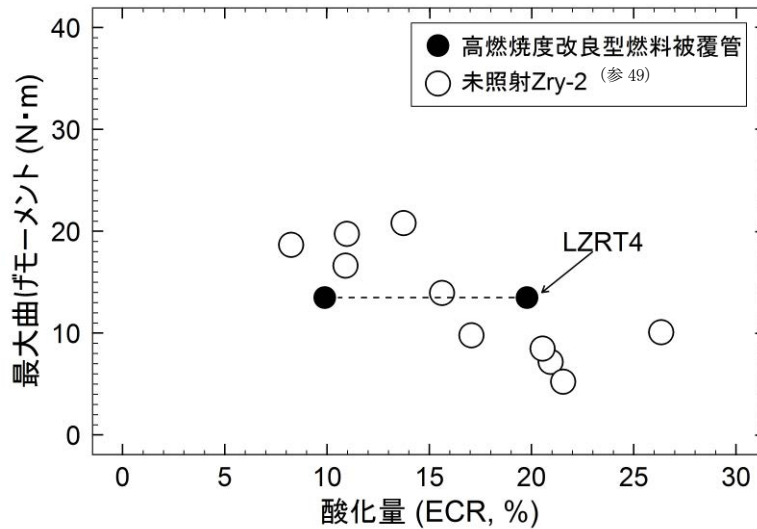
実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則第十五条第三項では、燃料体は、設計基準事故時において発電用原子炉を安全に停止し、かつ、停止後に炉心の冷却機能を維持できるものでなければならないと示されている。また、ECCS 性能評価指針では、LOCA後の燃料の形状の変化を考慮しても、崩壊熱の除去が長期間にわたって行われることが可能であることと示されており、LOCAが収束した後も、燃料は継続的に冷却されることが求められている。LOCAが収束した後、炉心から燃料が取り出されるまで、燃料はサンプル水の再循環により継続的に冷却されることとなるが、現状、炉心から燃料が取り出されるまでの期間については具体的に示されたものはなく、ある程度の長期にわたって燃料が炉心にとどまることが予想される。LOCA後の長期燃料冷却における主な懸念事項として、燃料棒破裂に伴い放出される可能性のある燃料ペレット片、配管保温材等のデブリ、及びホウ酸の析出による流路閉塞、さらに、地震動による炉心の冷却可能形状の喪失、等が考えられる。ここでは、東京電力福島第一原子力発電所事故において余震が多発した経験を踏まえ、LOCA後の地震時において炉心の冷却可能な形状を維持しうるか否かを評価することが重要と考え、LOCA後の燃料耐震性について研究を行った。

LOCA 後の燃料被覆管の延性及び強度を評価するために様々な機械試験が実施されてきたが、これらの機械試験の大部分は破裂していない燃料被覆管試料に対する試験であり、これらの試験結果から、破裂や破裂に伴う燃料被覆管内面の酸化及び水素化の影響を考慮し、地震等の外力に対する燃料被覆管の機械強度を評価することは困難である。このような軸方向に異なる形状及び材料特性の分布を有する燃料被覆管の機械強度を評価する手法として 4 点曲げ試験が利用されている。4 点曲げ試験では、燃料被覆管試料の支点間に均一な曲げモーメントを加えることで、燃料被覆管試料の軸方向で最も脆化した箇所における機械強度を求めることができる。この特長に着目して、JAEA において LOCA 時の膨れ及び破裂、内外面の両面酸化、並びに二次水素化の一連の事象を経た未照射の Zry-4 及び Zry-2 被覆管を対象とした 4 点曲げ試験を実施し、それらの機械強度に係るデータが取得されている^(参 46)。LOCA 後の燃料被覆管の機械強度について、燃焼の進展や合金組成の変更が及ぼす影響に関する知見を得るために、本研究において高燃焼度改良型燃料被覆管の 4 点曲げ試験を実施した。

本研究では、急冷破断試験に供した高燃焼度改良型燃料被覆管である M5、低スズ ZIRLO、及び Zry-2 (LK3) に対して室温大気雰囲気条件での 4 点曲げ試験を実施した。図 2.29 に最大曲げモーメントと ECR の関係を示す。また図 2.30 に、4 点曲げ試験後の試料外観の代表例を示す。



(a) PWR 燃料被覆管

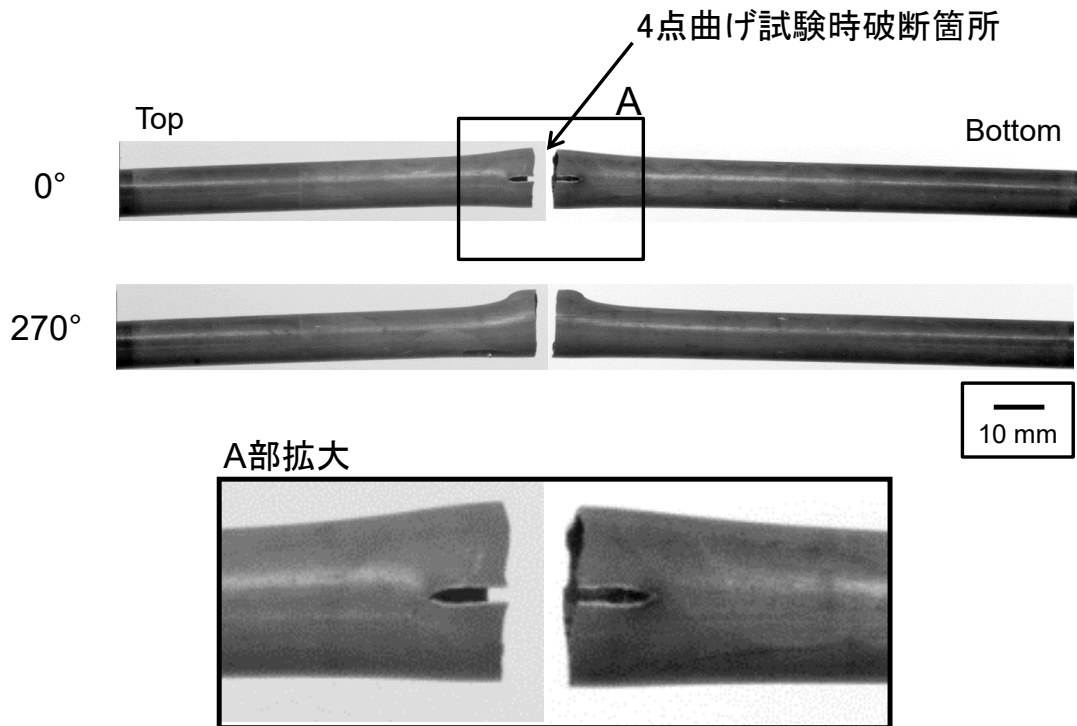


(b) BWR 燃料被覆管

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 2 9 高燃焼度改良型燃料被覆管の最大曲げモーメントと酸化量の関係
(等温酸化温度: 約 1473K)

Fig. 2.29 Relationship between the maximum bending moment and ECR for the case of the high-burnup advanced fuel cladding tubes (Isothermal oxidation temperature: approx. 1473K)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等
 防災対策等委託費 (燃料等安全高度化対策) 事業 (参 19)

図 2.30 4 点曲げ試験後の試料外観 (LMFI3)

Fig. 2.30 Appearance of LMFI3 after the four-point-bend test

図 2.29 には比較のため、約 410K の温度条件で実施した未照射の Zry-4 及び Zry-2 被覆管に対する 4 点曲げ試験の文献値 (参 46) を併せて示す。図中の最大曲げモーメント (M) は (2.2) 式により定義される。

$$M = \frac{P}{2} a \dots \dots \dots (2.2)$$

ここで、 P は荷重の最大値、 a は荷重点-支持点間距離を表す。ECR は通常運転中に燃料被覆管外表面に形成された腐食酸化膜及び急冷破断試験時の膨れによる燃料被覆管の肉厚減少を考慮した金属層厚さに対し、等温酸化中の破裂開口位置における燃料被覆管表面の平均温度と等温酸化時間から、燃料被覆管の内外面の両面酸化を仮定し、Baker-Just 酸化速度式 (参 29) を用いて算出した。照射済燃料被覆管試料 LMFI3 と未照射 Zry-4 被覆管、及び照射済燃料被覆管試料 LZRT4 と未照射 Zry-2 被覆管の内外径がそれぞれ異なることから、同図において LMFI3 及び LZRT4 の最大曲げモーメントには、それぞれ未照射 Zry-4 被覆管及び未照射 Zry-2 被覆管に対する断面係数の比で除した補正值を採用した。同図から、高燃焼度改良型燃料被覆管の最大曲げモーメントは未照射 Zry-4 被覆管 (受入材) 及び未照射の Zry-2 被覆管 (受入材) と比較してほぼ同等であることが分かる。図 2.29 に示すように酸化量の増大に伴い最大曲げモーメントが低下することが報告されている。本研究で評価した高燃焼度改良型被覆管の最大曲げモーメントはデータ点にして 3 点と限られている

ものの、2.3.2及び2.3.4に示したように、燃料被覆管の急冷破断限界（強度に相当）は吸収される水素の濃度の増大に伴い若干低下する傾向があるものの、最高 85GWd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更によって著しく低下することはないと考えられること、並びに燃料被覆管の酸化速度は 85GWd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更では著しく増大しない。したがって、LOCA 後の燃料被覆管の機械強度も、通常運転中に燃料被覆管に吸収される水素の濃度増大に伴い若干低下する傾向があるものの、最高 85GWd/t までの燃焼の進展や合金組成の変更によって著しく低下することはないと考えられる。

2.3.6 LOCA 後燃料被覆管に発生する振動時応力の検討

LOCA後の燃料被覆管では局所的な膨れや破裂が生じ、その部分の肉厚が薄くなっているため、LOCA後長期冷却期間中に地震が発生した場合、振動に伴う燃料被覆管の曲げにより、膨れ破裂部に応力が集中すると考えられる。そこで、燃料棒の振動時に、破裂した燃料被覆管に発生する応力を解析により求め、曲げ試験から得られた機械強度との比較を行った。

図 2.31 に破裂した燃料被覆管の有限要素モデルを示す。図 2.31 のモデルは、PWR17×17燃料被覆管に内圧を負荷し、温度勾配を付けて、目的部分が膨れるようにして作成した。また、破裂については、設定したひずみ（ここでは20%）に達した場合に破壊（消滅）する要素を一部に適用して、破裂と破裂後の変形を模擬した。図 2.31 に示すように、その形状は、参考文献^(参47)等で報告されているLOCA試験後燃料被覆管の破裂形状をほぼ再現している。また、燃料被覆管の機械特性については、高温酸化した健全被覆管試料の曲げ試験の結果（変位－荷重の関係）と同試験の再現解析の結果を比較し、試験結果と解析結果が一致するように、燃料被覆管のヤング率を調整した。その後、破裂及び高温酸化した燃料被覆管試料の曲げ試験結果によりヤング率を検証し、解析結果と試験結果が一致することを確認した^(参48)。以上から、作成したモデルは、高温酸化及び破裂した燃料被覆管の形状及び機械特性とも適切に模擬できていると判断し、振動解析に使用した。

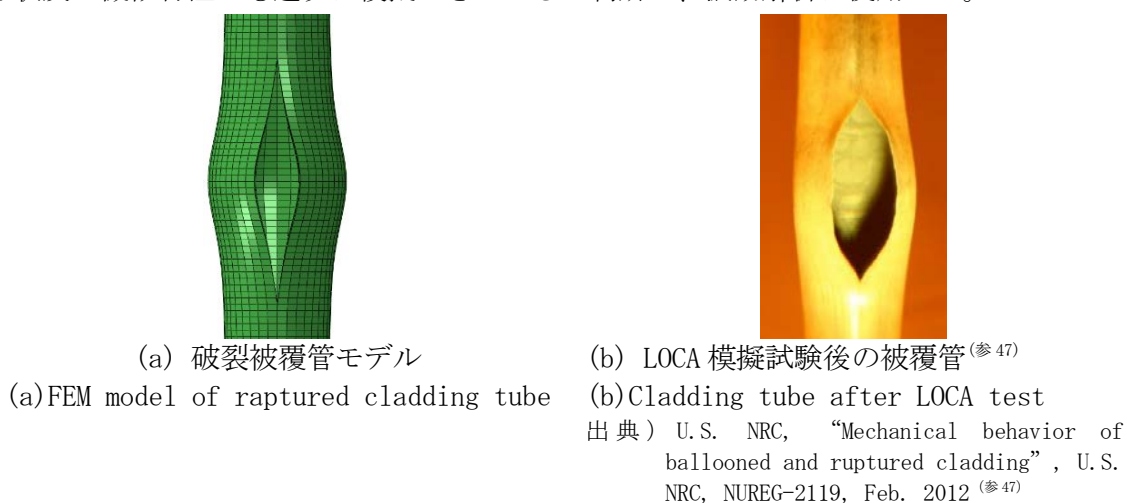


図 2.31 破裂被覆管 FEM モデルと LOCA 試験後試料の外観
Fig. 2.31 Appearances of the FEM model and a sample of ruptured cladding tube

全長約3.9mの17×17型PWR燃料棒1本をソリッド要素でモデル化し、振動解析を行った。図2.31に示す破裂部は、曲げ応力が大きくなると考えられる燃料棒中央部に位置させた。燃料棒モデルでは燃料被覆管、ペレット、プレナムスプリング及び上下部端栓を考慮し、モデル化した。なお、ペレットは円柱と仮定した。個々のペレットを独立な固体として取り扱い、ペレット間の摩擦及びペレット-被覆管間の摩擦と衝突を考慮したモデル（以下「完全モデル」という。）では、解析時間が非常に長くなり、解析を繰り返し実施することが困難であったため、個々のペレットは考慮するものの、摩擦と衝突の問題を避けるためにペレット間及びペレット-被覆管ギャップに柔らかな弾性体を挿入して全ペレットと燃料被覆管を一体としたモデル（以下「一体モデル」という。）を作成した。一体モデルと完全モデルとの自由振動解析の結果の比較を図2.32に示す。縦軸は燃料棒上下端に対する燃料棒中央部の水平方向の相対変位を示している。相対変位の時間変化は、両モデルでよく一致しており、一体モデルを使用して解析を進めることとした。

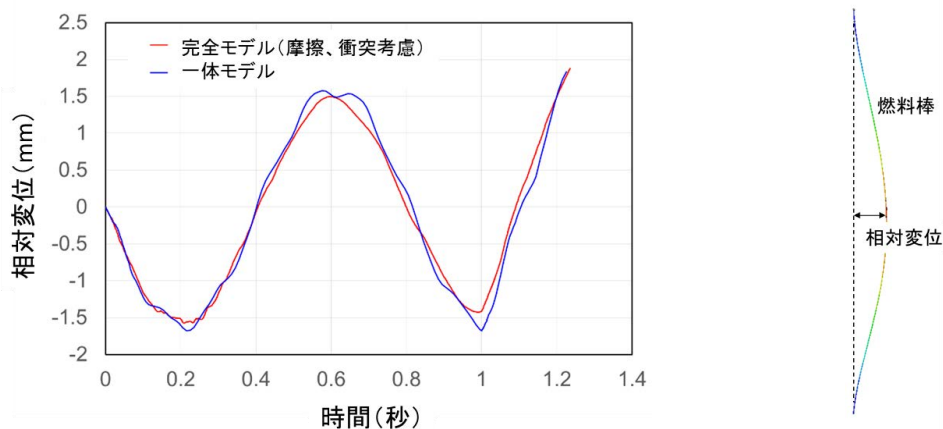


図2.32 完全モデルと一体モデルの相対変位の時間変化

Fig. 2.32 Displacement histories in the vibrated fuel calculated with the full model and combined model

一体モデルを用いて、燃料棒の上下端を保持して一次モード周期で振動させた場合の解析結果を図2.33に示す。縦軸は、図2.32と同様、燃料棒上下端に対する燃料棒中央部の水平方向の相対変位を示している。なお、本解析では、支持格子に相当する拘束は考慮していない。燃料被覆管温度は、LOCA後冷却中の状態を想定して408K(135°C)とした。一次モード周期で振動させているため、燃料棒中央部の相対変位（振幅）は時間とともに大きくなっている。また、図2.33には、燃料被覆管の膨れや破裂のない健全燃料棒のケース、膨れのみで破裂のないバルーニング被覆管燃料棒のケース、振動方向に対して破裂開口方向を変化させた破裂被覆管燃料棒の3ケースの計5ケースの解析結果が示されているが、振動挙動はほぼ同一となり、図2.33では解析結果を示す線が重なっている。このことから、燃料被覆管の局所的な膨れや破裂は、全長約3.9mの燃料棒の振動特性には影響を与えないことがわかる。

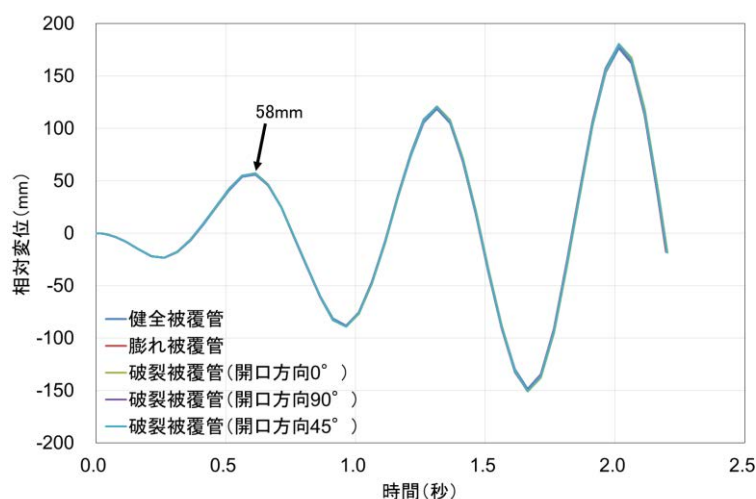


図 2. 3 3 水平方向相対変位の時間変化

Fig. 2.33 Displacement in the horizontal direction versus time

過去に行われた17×17型PWR燃料集合体を用いた振動試験^(参49)では、燃料集合体の振動変位は炉心構造物、隣接燃料集合体との接触により最大で40～50mmまでに制限されることが示されている。そこで、本解析では、若干の保守性を見込み、図 2. 3 3 に示す相対変位58mm時点での変形状態にある破裂被覆管に生じる応力分布を調べた。その結果、破裂した燃料被覆管において、振動方向と破裂開口方向が同じケース（開口方向0°）で、燃料被覆管に作用する応力が最も大きくなることがわかった。その場合の応力分布を図 2. 3 4 に示す。破裂開口の中央部で軸方向の引張応力が集中しており、その大きさは約68MPaである。図 2. 3 0 からわかるように、4点曲げ試験では破裂開口中央部で破損しており、解析結果と試験結果は一致している。

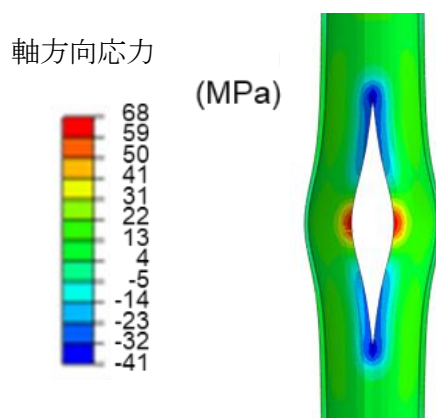
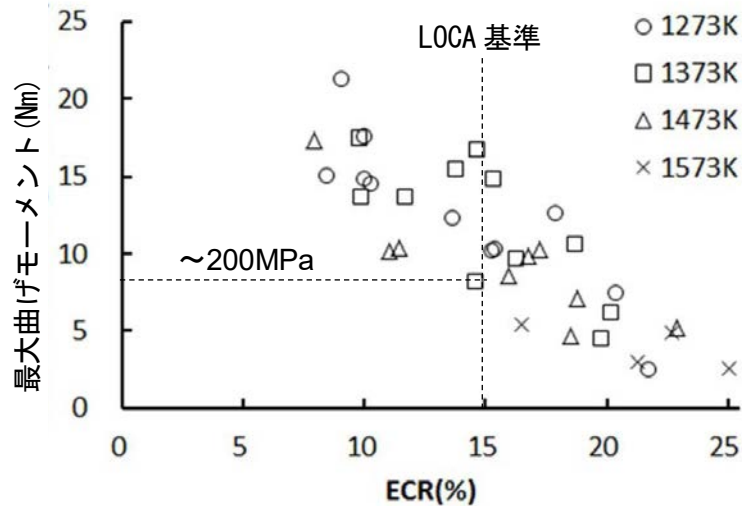


図 2. 3 4 破裂開口部の応力分布

Fig. 2.34 Stress distribution in the ruptured cladding

LOCA模擬条件にて破裂及び高温酸化させたPWR17×17燃料被覆管の曲げ試験の結果^(参46)を図 2. 3 5 に示す。なお、図 2. 3 5 に示された酸化温度1473Kの試験結果は、図 2. 2 9 (a) に示された未照射Zry-4の試験結果と同じである。酸化量が増加するにつれ、最大曲げモーメントが低下している。



出典) M. Yamato, F. Nagase, and M. Amaya, “Evaluation of fracture resistance of ruptured, oxidized, and quenched Zircaloy cladding by four-point-bend tests,” J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 51, No. 9, pp. 1125-1132 (2014). (参46)

図 2. 3 5 破裂及び高温酸化した被覆管試料の最大曲げモーメント

Fig. 2.35 Maximum bending moment from test for burst cladding sample after LOCA-simulated oxidation

曲げモーメントは、(3)式を用いて応力に変換できる。現行LOCA基準（被覆管温度制限値1473K(1200°C)、酸化量制限値15%) 内で破裂及び高温酸化した燃料被覆管の最大曲げモーメントで最も小さな値は約8Nmであり、PWR17×17燃料被覆管健全部分の寸法を仮定すると、(3)式により曲げ応力に対する強度は約200MPaと評価できる。また、現行LOCA基準を超えているものの、図2.29(a)に示す高燃焼度改良型燃料被覆管の最大曲げモーメントは約6Nmであり、曲げ応力に対する強度は約150MPaと評価できる。この値は、健全部分の寸法に基づき算出されているため、燃料被覆管肉厚が薄くなっている破裂部には、(2.3)式で変換される応力より大きい応力が作用しており、破裂部の実際の強度はさらに大きい値であると考えられる。

$$\sigma = \frac{Mr}{I} \dots \dots \dots (2.3)$$

- σ : 引張応力 (N/m²)
- M : 曲げモーメント (Nm)
- r : 被覆管半径 (m)
- I : 断面二次モーメント (m⁴)

ここで解析結果と試験結果を比較すると、保守的な相対変位58mmで破裂開口部に作用する最大の応力は約68MPaであり、一方、LOCA基準内で破裂及び高温酸化を経験した燃料被覆管の強度は少なくとも200MPaであること、また、LOCA基準以上に酸化した高燃焼度改良型燃料被覆管でも約150MPaの強度を持つことから、LOCA基準内で破裂及び高温酸化を経験した燃料被覆管は、地震動によって生じる応力により折損することはないと考えられる。た

だし、図 2.35 の曲げ試験は、静的な曲げを負荷した試験であり、実際の振動で生じる繰り返しの応力負荷に対する強度、つまり疲労強度については、破裂及び高温酸化を経験した燃料被覆管のデータはない。そのため、試験を実施してデータを取得し、疲労の観点からの LOCA 後燃料被覆管の健全性評価を行う必要があると考えられる。

2.3.7 燃料ペレット細片化挙動

照射済燃料を用いて研究炉やホットラボで行われた LOCA 模擬試験において、高い燃焼度に到達した燃料の一部で燃料被覆管の膨れ・破裂に伴うペレットの細片化、軸方向の再配置及び破裂開口部からのペレット細片の放出が生じる、いわゆる FFRD 現象が報告されている^(参27)。LOCA 時の高燃焼度燃料において生じる可能性のある FFRD は、以下の点で事故時の原子炉施設の安全性に影響を及ぼすと考えられる。

(1) ペレットの細片化 (Fragmentation)

細片化に伴って、ペレット内部に閉じ込められていた FP ガス等が放出される、あるいはペレットの比表面積が増加することによって、燃料ペレット外へ放出される核分裂生成物の量が増加する可能性がある。

(2) ペレットの燃料棒軸方向再配置 (Relocation)

細片化したペレットが燃料被覆管の膨れ部に集積することで、局所的に燃料被覆管温度 (PCT) が上昇し、これを考慮しない評価に比べて燃料被覆管の酸化や脆化が進行する可能性がある。

(3) 破裂開口部からのペレット細片の放出 (Dispersal)

燃料棒から放出されたペレット片による冷却材流路閉塞により、炉心の冷却性が悪化する可能性がある。さらに、ペレット細片化に伴う FP 放出量の増加及び放出されたペレット片の冷却系への流入による被ばくへの影響も考えられる。

FFRD 現象は現行規制基準の策定当時には観察されておらず、当該現象が LOCA 時の炉心冷却性等に及ぼす影響の評価及び関連する規制基準への反映が国際的課題となっている^(参27)。FFRD の炉心冷却性等への影響を評価するためには、その発生条件、燃料被覆管膨れ部における細片化したペレットの充填率、燃料棒外に放出されるペレット片のサイズや総量等に関する情報が必要であるため、これらについて調べることは非常に重要であり、海外においても研究が進められている。

これまでに報告されている試験結果^(参27)によると、ペレット細片化の発生しきい値はペレット燃焼度で 70 GWd/t 程度に存在するとされている。この燃焼度は、ペレット外周部における高燃焼度組織及び中間部におけるダークゾーンの形成しきい値に近く、それらの

組織中に形成されている微小なFPガス気泡^(参50)が細片化に影響を及ぼしている可能性がある。このような燃焼の進展に伴うペレット微細組織の変化とペレット細片化との関係を把握しておくことは、LOCA時のペレット細片化の機構を調べる上で重要と考えられる。そのため、高燃焼度組織及びダークゾーンの形成された高燃焼度燃料からペレット単体を採取し、LOCA時の燃料温度履歴を模擬した加熱試験及び試験後試料観察等を実施することで、ペレット細片化に関する基礎的なデータを取得した。

(a) 燃料ペレット片に対する加熱試験

スペイン・バンデロス炉において照射された高燃焼度 PWR-UO₂ セグメント燃料棒から採取した燃料ペレット片に対し、LOCA時の温度変化を模擬した加熱試験を実施し、燃料ペレット細片化に伴うFPガス放出挙動に関するデータを取得した。表2.5に加熱試験に供した試料及び採取元燃料棒の諸元をまとめる。

表 2.5 LOCA 時温度変化模擬加熱試験に供した試料及び採取元燃料棒の諸元
Table 2.5 Pellet pieces used in the pellet heating test and specifications of the mother rod

試料番号	重量(g)	採取元燃料セグメント番号	照射炉	燃料タイプ	セグメント平均燃焼度(GWd/t)
5	0.264	AP2-3	バンデロス-2	PWR 17×17 UO ₂	81
6	0.131				

加熱試験に供した燃料ペレット片採取元燃料棒の燃焼度は、セグメント平均で81 GWd/tと評価されており、先行研究において報告されているペレット細片化発生のしきい燃焼度約70 GWd/t^(参27)より高い。図2.36に光学顕微鏡を用いてレファレンス試料（加熱試験に供した燃料ペレット片と同じセグメント燃料棒から採取）に対し実施した組織観察結果を示す。燃料ペレットの半径方向中間位置（Photo 1-1）において、製造時とは異なる微小な気泡が結晶粒内に高密度に形成されたダークゾーンが確認された。また、燃料ペレットの半径方向最外周部（Photo 3-1）においても、微小な気泡が高密度に析出した領域が観察され、高燃焼度組織が形成されていることがわかった。

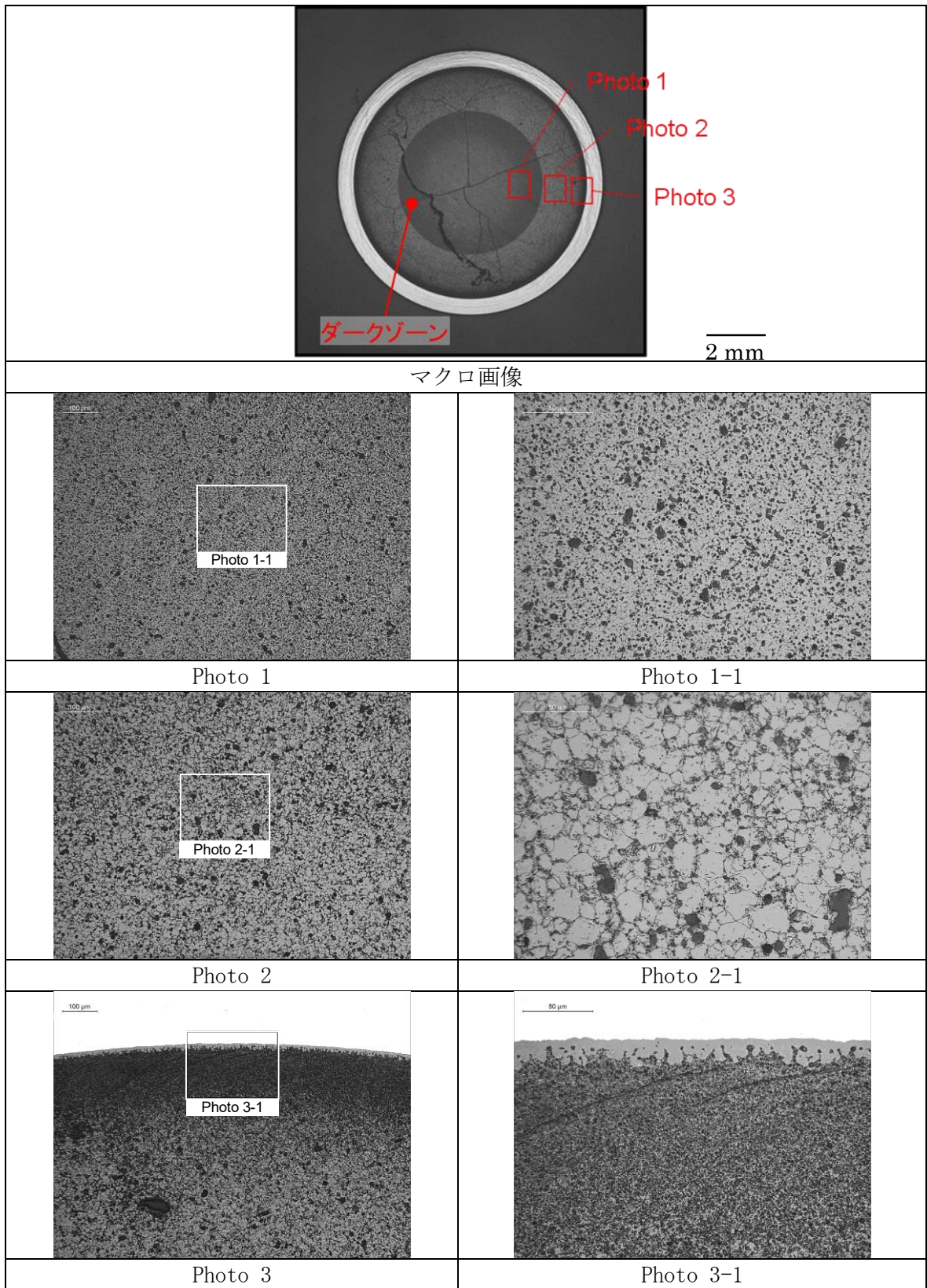
採取元のセグメント燃料棒から切り出した軸長約13.5mm（ペレット約1.5個分に相当）の切断片について、燃料被覆管の0°及び180°方向を機械的研削によりスリット状に切断し、燃料被覆管を除去し、燃料ペレット片を採取した。図2.37に採取したペレット片の外観写真を示す。採取元燃料棒の燃料ペレットには、径方向断面マクロ写真（図2.36）に見られるとおり、商用炉での照射に伴いクラックが発生しており、円柱状のペレットではなく、ペレット片として採取された。本試験で得られたペレット片の直径は約5mm程度であった。図2.38及び図2.39に加熱試験前の燃料ペレット片に対し実施した走査型

電子顕微鏡 (SEM) による組織観察の結果を示す。図 2. 3 8 の Photo 1-4 及び図 2. 3 9 の Photo 1-4 において、微小な気泡が高密度に形成された領域が観察され、それぞれのペレット片試料がダークゾーン又は高燃焼度組織を含む領域から採取されたことが確認された。加熱試験の概要は次のとおりである。

- ・ タングステン製のるつぼに入れた燃料ペレット片を真空中、LOCA 時の燃料棒の昇温速度^(参 51-52)に近い約 5K/s の速さで加熱する。
- ・ 到達温度は先行研究において報告されている燃料ペレットの細片化発生温度である 1023K(750℃)^(参 53)より低温及び高温の 973、1073、1273、及び 1473K(700、800、1000、及び 1200℃)の 4 条件とし、各燃料ペレット片について到達温度ごとに 1 回ずつ、計 4 回の加熱を実施する。
- ・ 加熱中に燃料ペレット片から放出される FP ガスを四重極質量分析計により分析し、キセノン (Xe) 及びクリプトン (Kr) の分圧を算出する。
- ・ 各到達温度に到達した時点で直ちに加熱を停止し、室温まで炉冷した後に燃料ペレット片の外観を観察する。

図 2. 4 0 に加熱試験後の燃料ペレット片の外観を示す。到達温度が 1273K(1000℃)以上の試験後に燃料ペレット片の細片化が確認された。また、到達温度が最も高い 1473K(1200℃)で最も著しい燃料ペレットの細片化が確認された。加熱時の到達温度が高くなるほど燃料ペレットの細片化が著しくなる傾向が見られたことから、加熱に伴う燃料ペレット内 FP ガス気泡の圧力上昇及びそれに伴うペレットマトリクスへの応力負荷が燃料ペレットの細片化の主な原因であると考えられる。

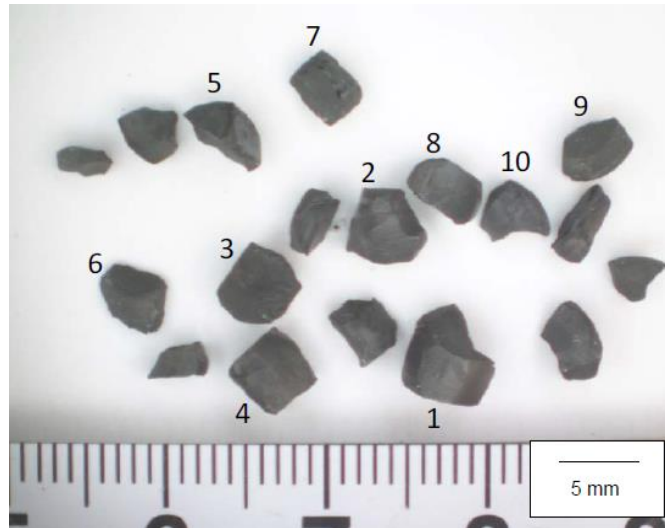
図 2. 4 1 及び図 2. 4 2 に加熱試験中のキセノン及びクリプトンの分圧の時刻歴を示す。燃料ペレット片 No. 5 では、到達温度 1073K(800℃)の試験において、燃料ペレット片 No. 6 では、到達温度 973K(700℃)の試験においてキセノン及びクリプトンの分圧がバックグラウンドを超えており、FP ガス放出が生じたことが確認された。試験後外観からもそれらの到達温度において粉状ペレットが少量発生していることが確認され、973～1073K(700～800℃)の温度域においてペレットの局所的な破壊が開始している可能性がある。また、両試料とも、到達温度 1273K(1000℃)の試験では到達温度 1073K(800℃)の試験と比べてキセノン及びクリプトンの分圧が顕著に高くなっており、1073-1273K(800-1000℃)の温度域で燃料ペレットの細片化に伴う FP ガス放出が著しくなることがわかった。先行研究においては被覆管にスリットを入れた状態の燃料棒片を加熱し、1023K(750℃)で試料端部において僅かな細片化が、1123K(850℃)でより顕著な細片化が確認されており^(参 53)、本試験で得られた結果はこれらの報告と概ね整合する。



出典) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成 24 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書 (参 15)

図 2.36 加熱試験に供した燃料ペレット片のレファレンス試料の断面画像

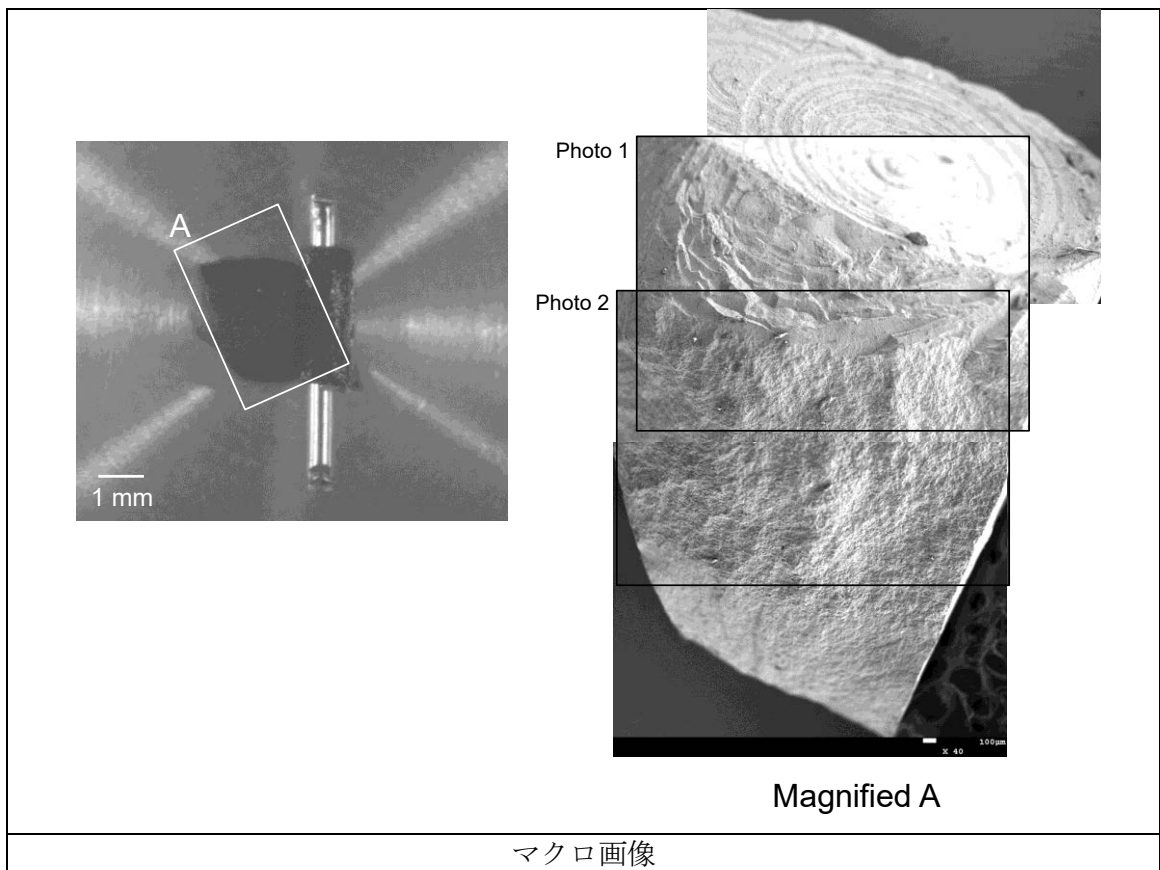
Fig. 2.36 Ceramographs of transverse cross sections of the reference fuel pellet



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費 (事故時燃料冷却性評価に関する研究) 事業に関する報告書 (参 50)

図 2. 3 7 採取した燃料ペレット片の外観写真

Fig. 2.37 Appearances of obtained pellet pieces

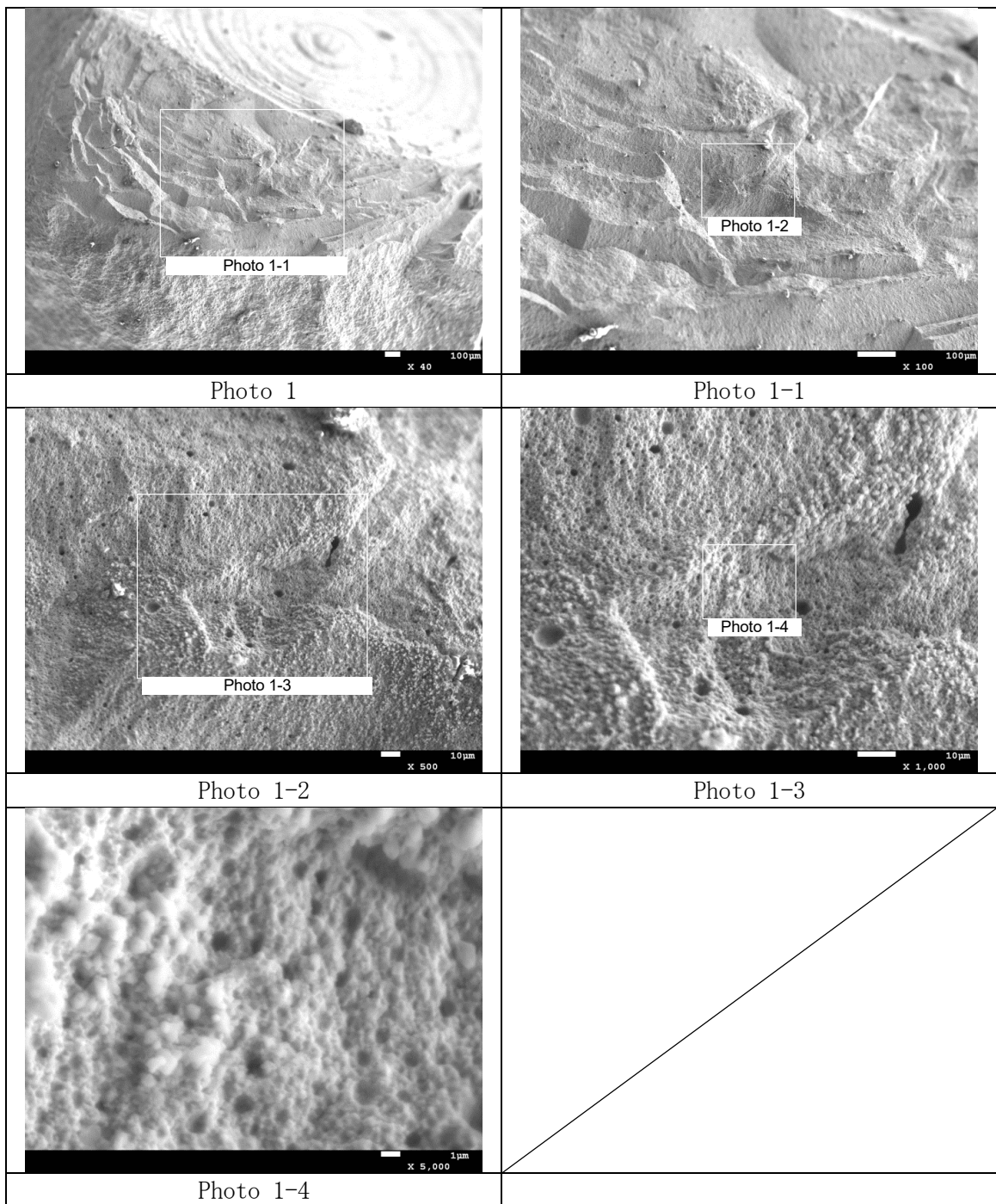


マクロ画像

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 3 8 加熱試験に供した燃料ペレット片 No. 5 の SEM 画像

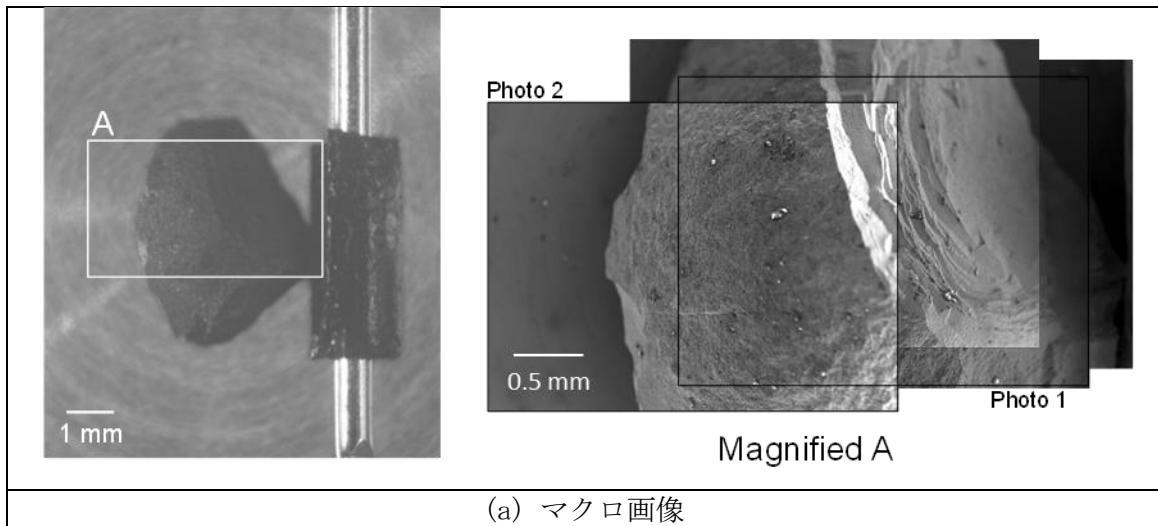
Fig. 2.38 Scanning electron micrographs of the pellet piece No. 5 after the heating test



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2.38 加熱試験に供した燃料ペレット片 No. 5 の SEM 画像 (続き)

Fig. 2.38 Scanning electron micrographs of the pellet piece No. 5 after the heating test (Continued)

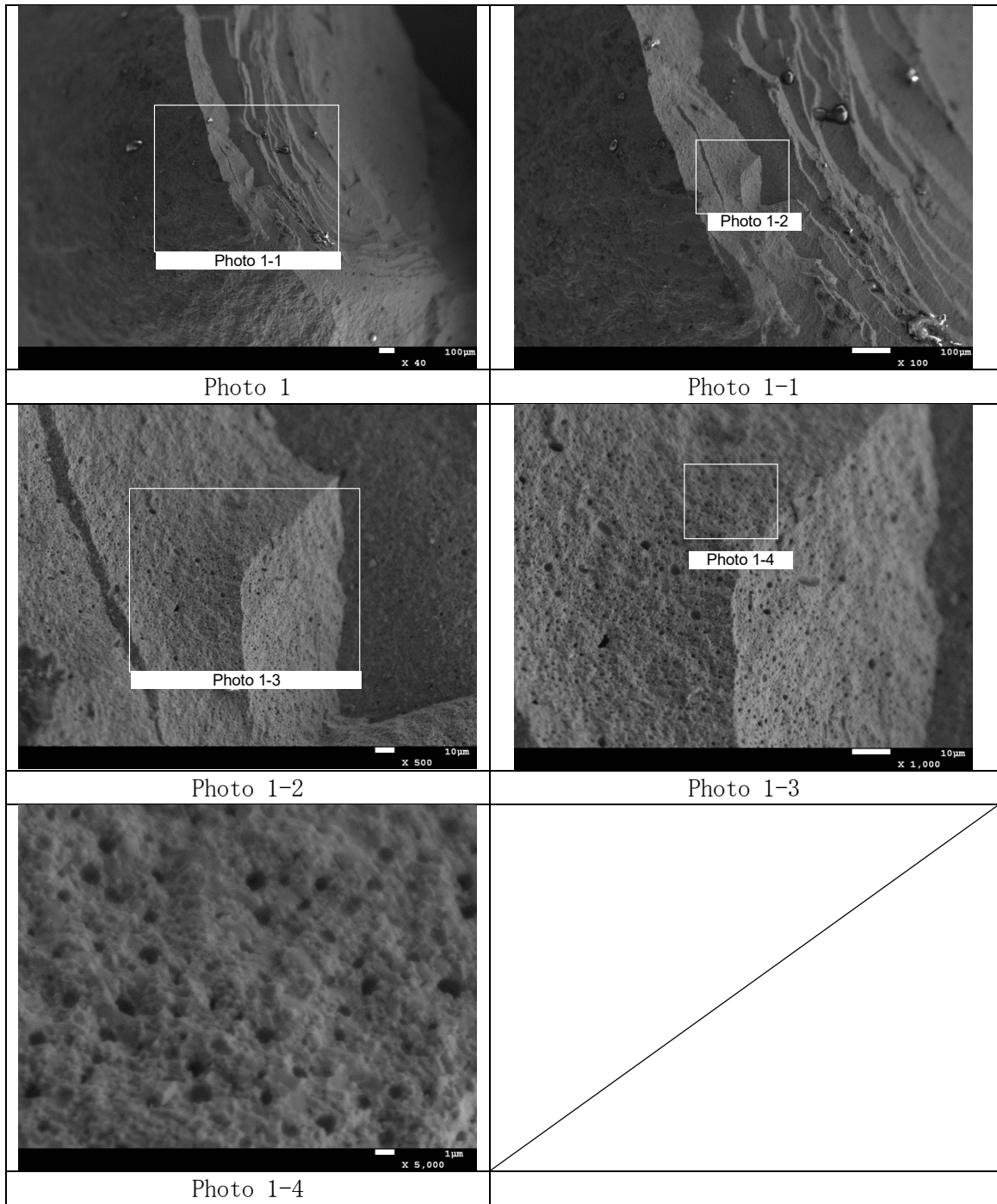


(a) マクロ画像

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 ^(参 62)

図 2. 3 9 加熱試験に供した燃料ペレット片 No. 6 の SEM 画像

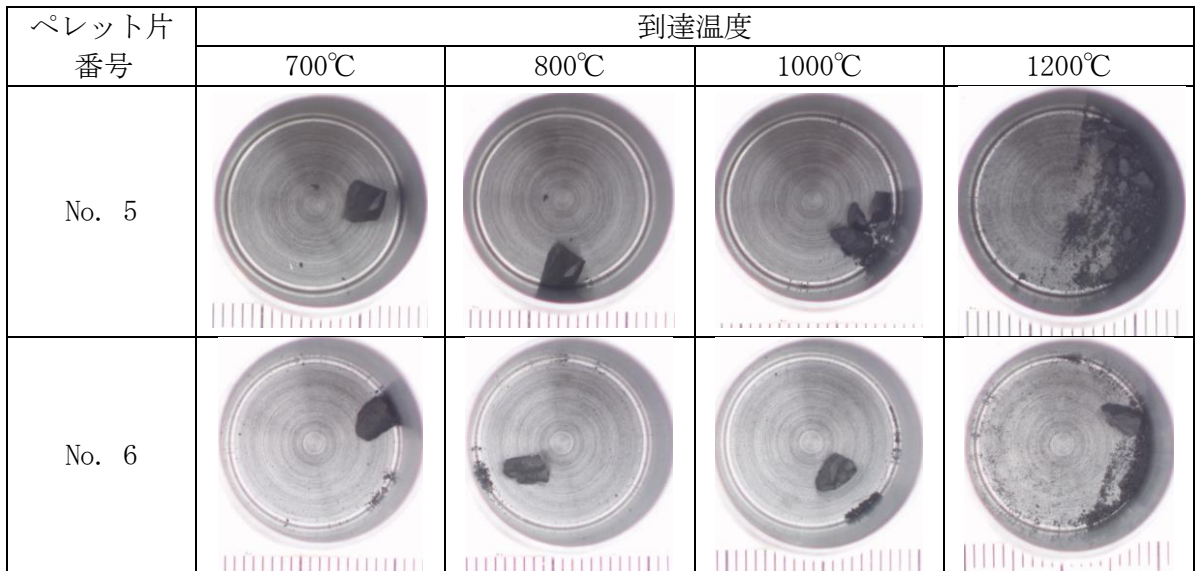
Fig. 2. 39 Scanning electron micrographs of the pellet piece No. 6 after the heating test



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等
 防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2.39 加熱試験に供した燃料ペレット片 No. 6 の SEM 画像 (続き)

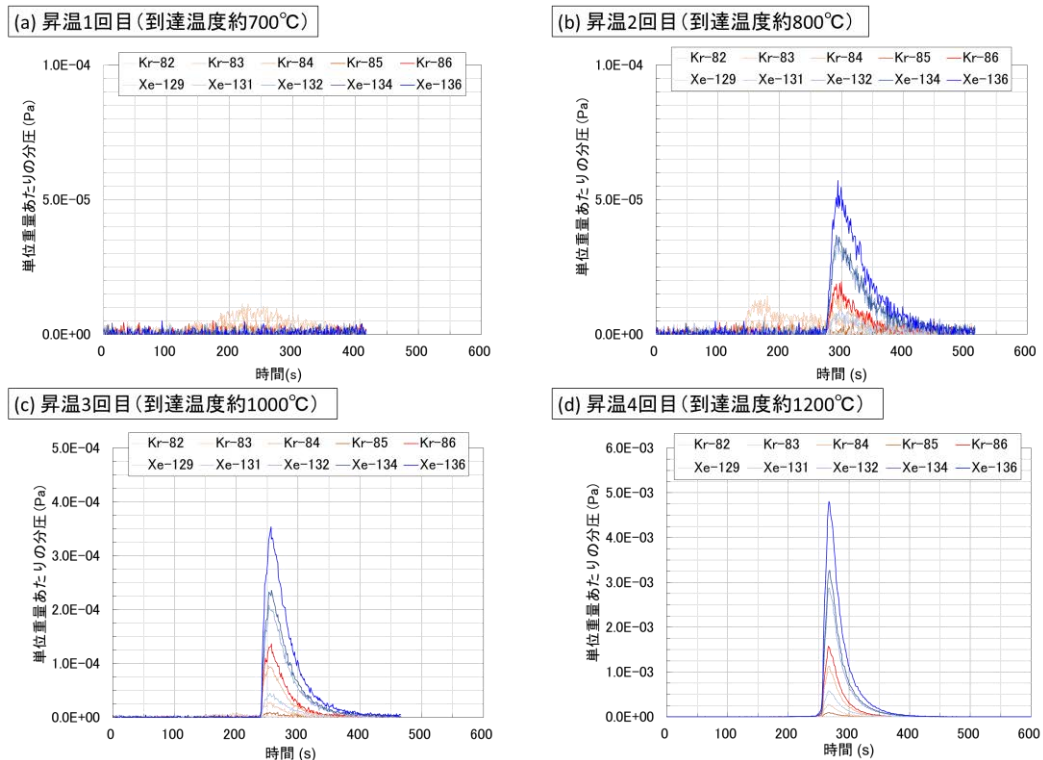
Fig. 2.39 Scanning electron micrographs of the pellet piece No. 6 after the
 heating test (Continued)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 4 0 加熱試験後の燃料ペレット片の外観画像

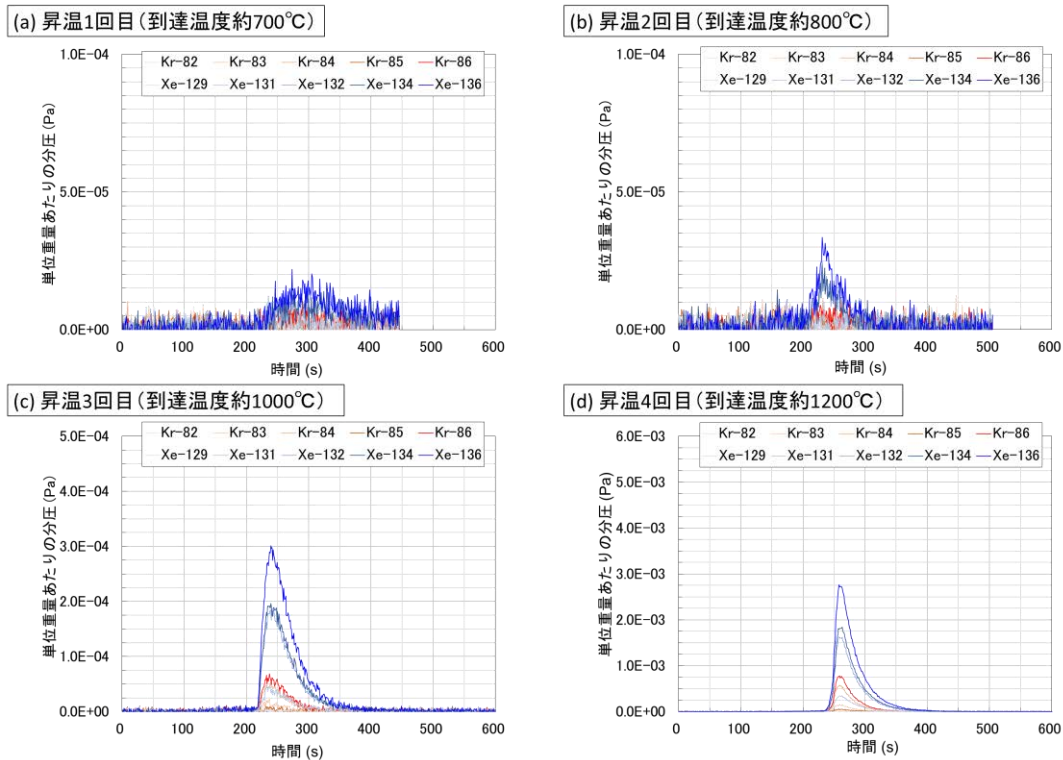
Fig. 2.40 Appearances of the pellet pieces after the heating tests



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2. 4 1 燃料ペレット片 No. 5 に対する加熱試験時のるつぼ温度及び同燃料ペレット片から放出された Xe 及び Kr の分圧の時刻歴

Fig. 2.41 Time histories of crucible temperature and FP gas partial pressure during the heating test No.5



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (参 62)

図 2.42 燃料ペレット片 No. 6 に対する加熱試験時のるつぼ温度及び同燃料ペレット片から放出された Xe 及び Kr の分圧の時刻歴

Fig. 2.42 Time histories of crucible temperature and FP gas partial pressure during the heating test No. 6.

(b) 半径方向位置ごとの加熱時ペレット細片化挙動に関する検討

燃料ペレットの細片化発生と燃焼度進展に伴う微細組織変化との関係について調べるため、国内 BWR において 5 サイクル照射した高燃焼度使用済燃料から、半径方向位置を特定して微小ペレット片試料を採取し、加熱試験を実施した。

局所燃焼度 67GWd/t の燃料棒片をスライス切断することで得た約 1mm 厚の燃料ディスクから、半径方向位置を特定し、一辺約 1mm の燃料ダイスを切り出し、試料とした (図 2.43 及び図 2.44)。試料の一覧を表 2.6 に示す。本試験では、各試料をその採取位置により、中央部、中間部、外周部、最外周部と区分した。試料採取元燃料棒の断面金相写真を図 2.45 に示す。高燃焼度組織 (図 2.45 (b)) 及びダークゾーン (図 2.45 (d)) が形成されていることが確認された。また、ダークゾーンにおける FP ガス気泡の析出頻度は、高燃焼度組織のそれに比べ小さいように見える。

採取した試料を高温高压炉により 25K/min 又は 200K/min で 1473K (1200°C) まで昇温する加熱試験を行った。加熱中は、約 200K 毎にガスサンプリングを実施し、サンプリングしたガスに対応する電離箱の電流値を測定することにより FP ガス放出挙動を調査した。ここ

で、ガスサンプリングは、昇温速度 25K/min の場合は当該温度で保持した状態で、昇温速度 200K/min 場合はオーバーシュートを防ぐため 1473K(1200°C)に到達と同時に加熱を止め一度降温した状態で実施した。実際の高燃焼度燃料棒においては、燃料被覆管のクリープダウン等によりペレット-被覆管間の間隙が閉塞しているため、ペレットは燃料被覆管により拘束力を受ける。そこで、拘束力の影響を調べるため、Ar+0.2% H_2 ガスにより高温高压炉内を加圧した条件でも試験を実施した。この試験では、炉内を約 1473K(1200°C)、約 100MPa としてから、温度を約 1473K(1200°C)に保持したまま、約 5MPa/min の降圧速度にて段階的に減圧し、約 20MPa 毎にガスをサンプリングした。ここで、ペレット片に作用する拘束力として想定した 100MPa の静水圧は、その反力として燃料被覆管に作用する応力に換算した場合、約 700MPa の円周方向引張応力に相当する。これは燃料被覆管の強度と同程度の大きさである。また、既往の研究では、出力運転中のペレット-被覆管接触圧を数 10MPa と解析的に評価する例があり、^(参 54-56) LOCA 時には燃料棒外圧低下・内圧増加が生じて燃料被覆管径が増大し、ペレット-被覆管の接触が緩和される方向であることを踏まえると、100MPa の静水圧は、実際に燃料被覆管によりペレットに負荷される拘束力より十分大きいと考えられる。

各条件における温度等の履歴の概略を図 2.46 に、加熱試験前後の試料外観の例を図 2.47 に示す。加熱試験終了後、発生したペレット破砕片を可能な限り回収し、SEM 観察を実施した。本試験では、ペレット破砕片のうち、長辺が 1mm 程度でありピンセットでの取扱いが可能なものを大破片、それ以外を粉状片に区分した。

加熱試験で得られた FP ガス放出率を図 2.48 に示す。半径方向位置間で比較すると、最外周部から採取した試料について、FP ガス放出率が明瞭に高いことがわかる。図 2.49 に加熱試験後の試料破砕状況を粉状片表面の SEM 観察結果とともに示す。最外周部の試料から発生した粉状片の数は、その他と比べ多く、加熱中の FP ガス放出率と粉状片の発生状況に相関があることを示唆している。(a)で述べたとおり、ペレット破砕の主なメカニズムは、加熱に伴う FP ガス気泡内圧の上昇によりペレットマトリクスに応力が発生し、その応力によりペレットマトリクスが破壊されることであると考えられるが、本試験により得られた知見もこれと整合している。図 2.49 に示すとおり、本試験で発生した粉状片のうち、最外周部のものは、結晶粒が微細化しており、また、微細な FP ガス気泡が高密度に析出している様子が観察されている。このことも最外周部試料の FP ガス放出率が高かったことと整合しており、高燃焼度組織が加熱時の FP ガス放出、すなわちペレット細片化に影響を及ぼすことが示唆された。

本試験で用いた中間部試料には高燃焼度組織に類似した組織であるダークゾーンが存在していたと考えられるが、当該試料の FP ガス放出率は最外周部試料より小さい値を示した。図 2.45 (b)及び(d)を比較すると、本試験に用いた試料では、ダークゾーンにおける FP ガス気泡の析出頻度が高燃焼度組織におけるそれより低いことが示唆され、それが FP ガス放出率の差異の原因のひとつであると考えられる。また、高燃焼度組織に存在する FP

ガス気泡は高圧であることが指摘されており^(参57)、これも最外周部試料において、より高いFPガス放出率を示したことの理由のひとつである可能性がある。以上の結果は、LOCA時の燃料ペレット細片化に、ペレット中に含まれるFPガス気泡の数(密度)及び気泡圧力が影響を及ぼす可能性を示唆している。

加熱試験条件を比較すると、昇温速度が高い方がFPガス放出率は大きくなる傾向が見られた(図2.48)。昇温速度が低い条件では、ペレットマトリクスがクリープ変形する時間余裕があるため、ガス気泡膨張によりペレットに負荷される応力がペレットマトリクスのクリープ変形により緩和され、これがペレットマトリクスの破壊を妨げることが理由のひとつとして考えられる。

また、拘束力を負荷した試験では、温度を1473K(1200°C)で保持した状態で、段階的に拘束力を除荷した際にFPガス放出が見られた。このことから、ペレットに負荷される外圧がペレット細片化を抑制し、その結果として、FPガス放出も抑制されていることが示唆される。拘束力が大きい場合に昇温時の燃料ペレット破壊の程度が小さくなることは、米国電力研究所が実施した試験においても報告されている^(参58)。実燃料においては、燃料被覆管の接触圧又は燃料棒内のガス圧によりペレットに拘束力が負荷されており、LOCA時に燃料被覆管が膨れ、破裂することでこれが除荷され、ペレット細片化が促進されると考えられる。本試験において比較的高いFPガス放出率を示した最外周試料(SG8)の加熱試験時炉内圧力及び電離箱出力電流値の関係を図2.50に示す。20MPaから2MPaに減圧する際に電流値の増加が最も大きかったことから、このタイミングにおいてFPガス気泡膨張によるペレットマトリクス破壊が比較的大きな規模で発生したことが示唆される。既往の研究においては、室温における高燃焼度燃料ペレット中のFPガス圧力を約20~40MPaと評価した例が報告されており^(参59-60)、これは1473K(1200°C)において約100~200MPaに相当する。本試験においては、このFPガス気泡圧力と試験雰囲気炉内圧との差に起因する応力がFPガス気泡を囲むペレットマトリクスに負荷されており、20MPaから2MPaに減圧する際に、この差が大きくなり、ペレットの破壊応力を超えたと考えられる。FPガス気泡内圧によるペレットマトリクス破壊は、気泡の形状、気泡に隣接した結晶粒の構造・強度、減圧速度等に影響され、複雑な事象である。これについて、今後解析的な手法による検討を加えることで、LOCA時ペレット細片化の発生条件等に関する知見を拡充することができると考えられる。

表 2.6 ペレット加熱試験試料一覧

Table 2.6 List of the samples for heating test

試料番号	相対半径 (r/r_0)	半径方向 位置区分	加熱試験条件
C02	-0.09 ~ 0.18	中央部	昇温速度：25K/min
C04	-0.03 ~ 0.19		温度一定・拘束力段階除荷
CK5	0.21 ~ 0.44	中間部	昇温速度：25K/min
CK6	0.32 ~ 0.53		昇温速度：200K/min
CK2	0.23 ~ 0.53		温度一定・拘束力段階除荷
G3	0.70 ~ 0.91	外周部	昇温速度：25K/min
G7	0.65 ~ 0.85		昇温速度：200K/min
G5	0.74 ~ 0.96		温度一定・拘束力段階除荷
SG9	0.78 ~ 1.00	最外周部	昇温速度：25K/min
SG10	0.64 ~ 1.00		昇温速度：200K/min
SG8	0.72 ~ 1.00		温度一定・拘束力段階除荷

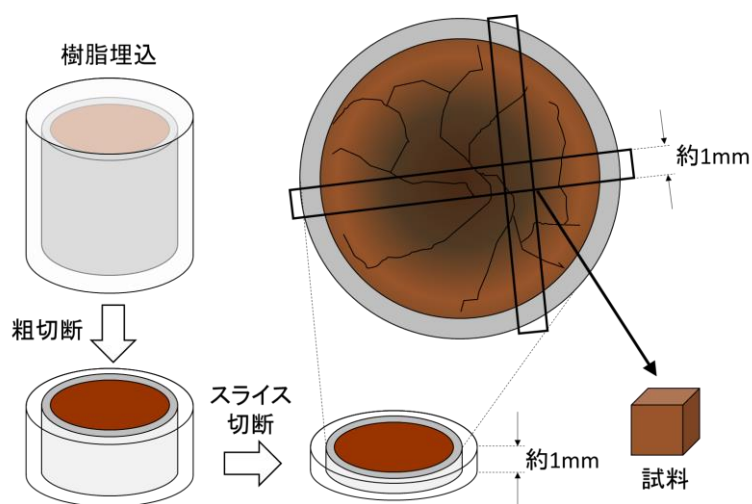


図 2.43 微小ペレット片採取方法の概略図

Fig. 2.43 Schematic illustration of a sampling of a micro pellet

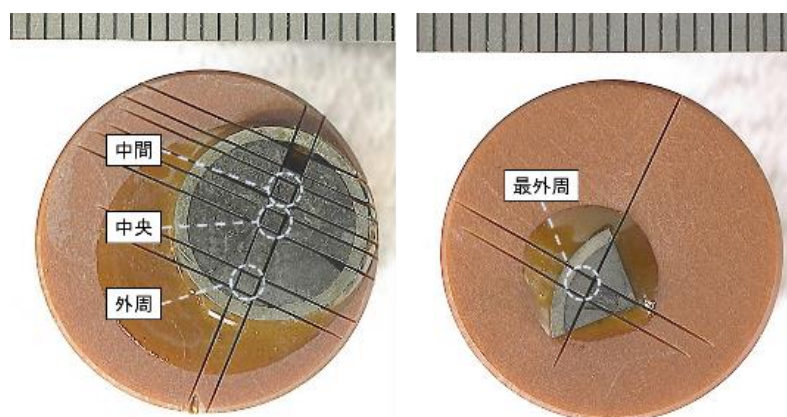


図 2.44 燃料ディスク外観写真の例

Fig. 2.44 Examples of the appearances of the fuel discs

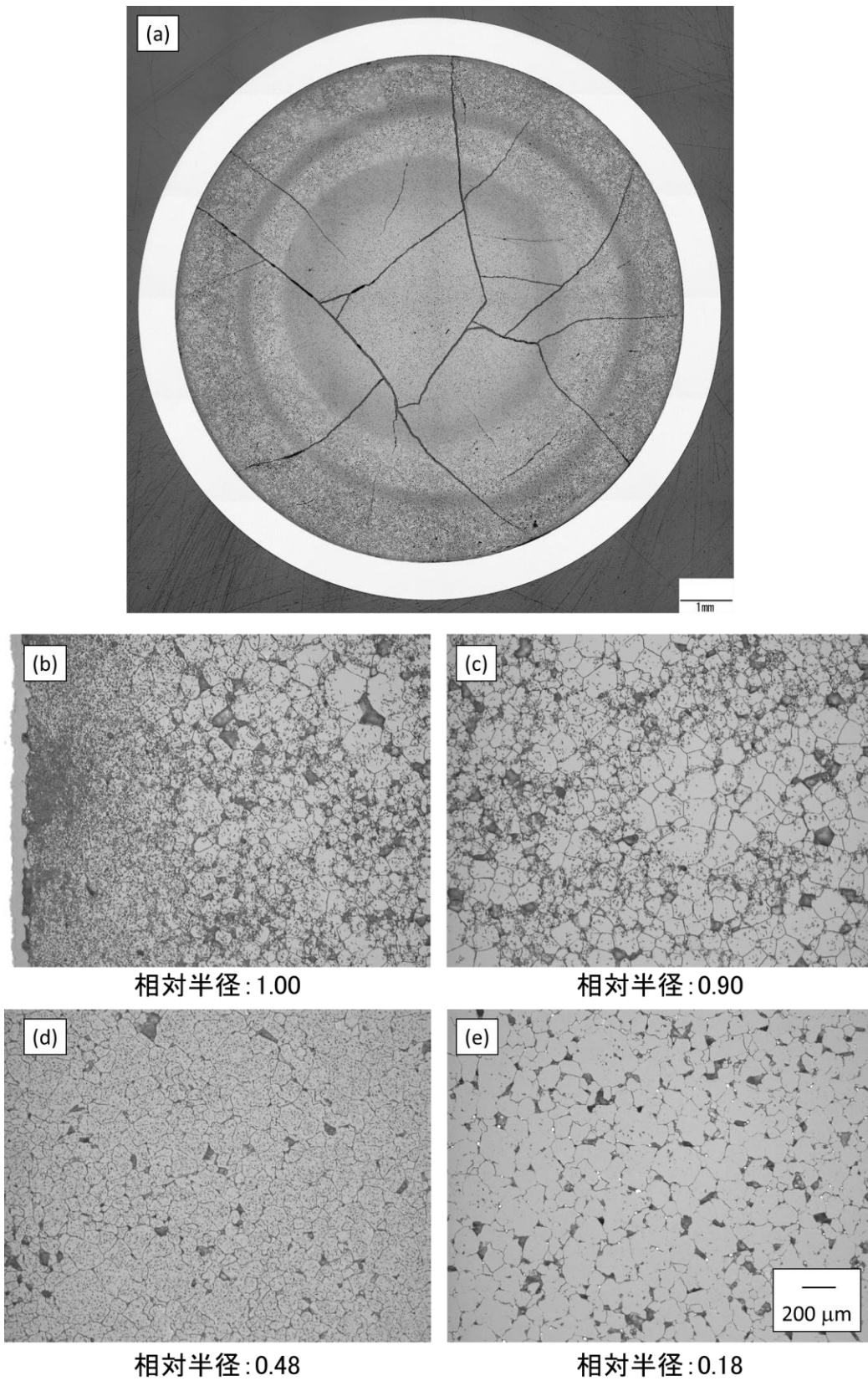


図 2.45 試料採取元燃料棒の断面金相写真

Fig. 2.45 Transverse metallograph of the mother rod

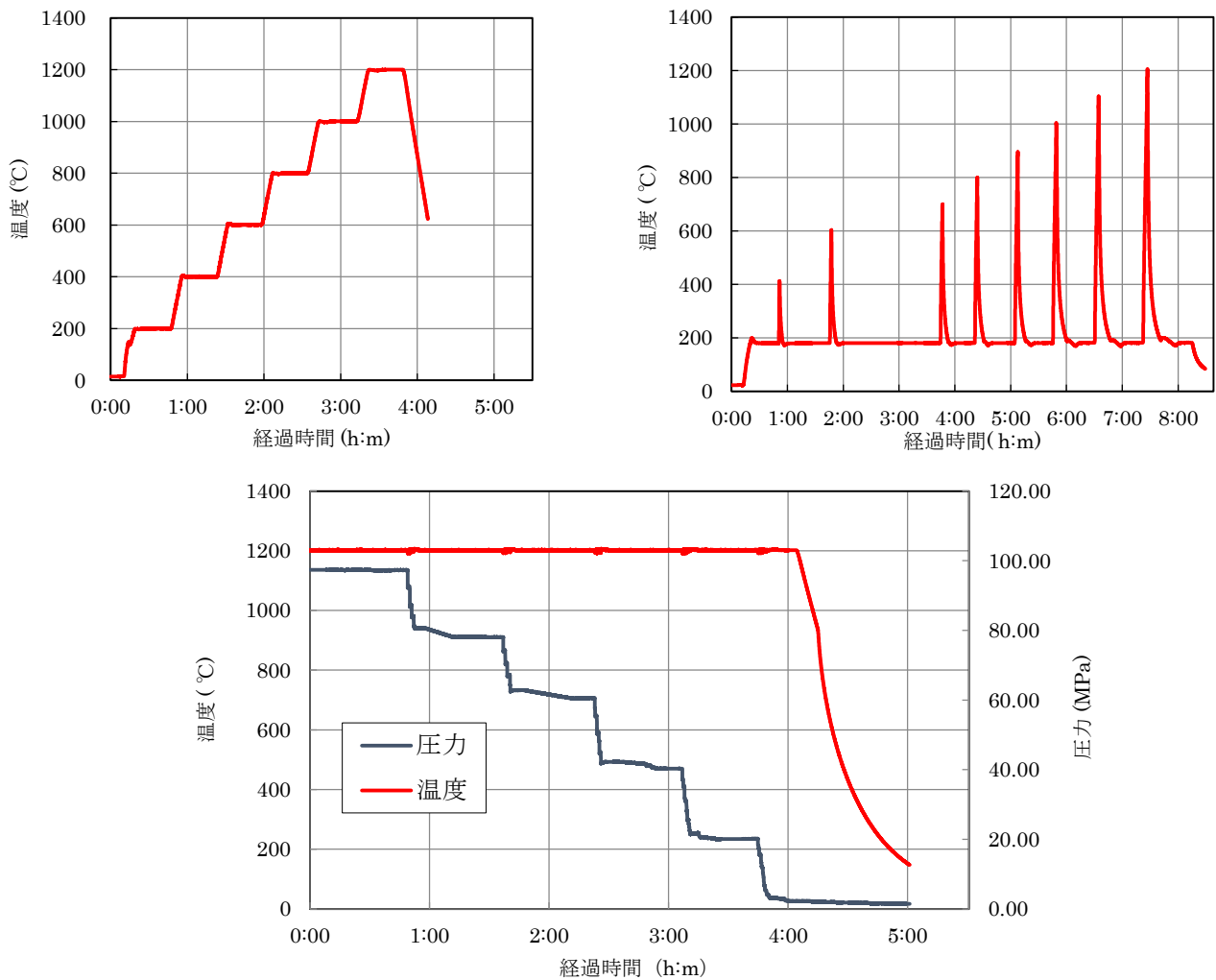


図 2. 4 6 加熱試験条件の温度/圧力履歴の例

Fig. 2.46 Examples of temperature/pressure histories during the test

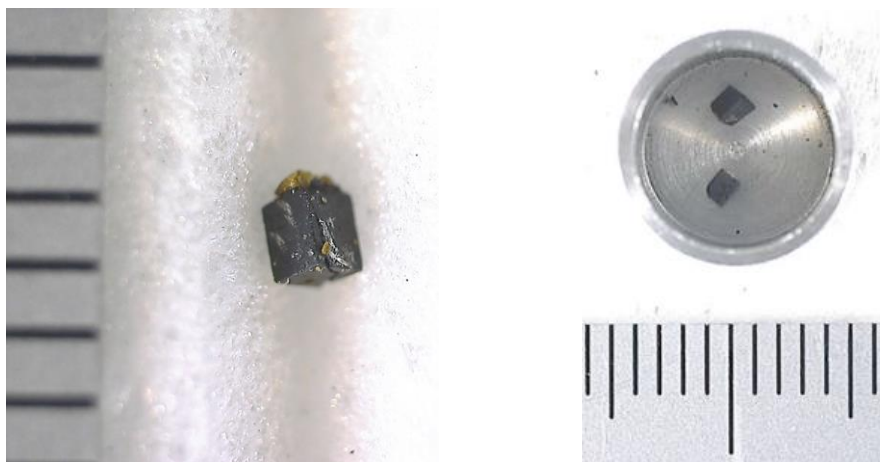


図 2. 4 7 加熱試験前後の試料外観の例 (試料番号: CK6、左: 試験前、右: 試験後)

Fig. 2.47 Example of the appearance of the sample before and after the test (sample ID: CK6, left: before the test, right: after the test)

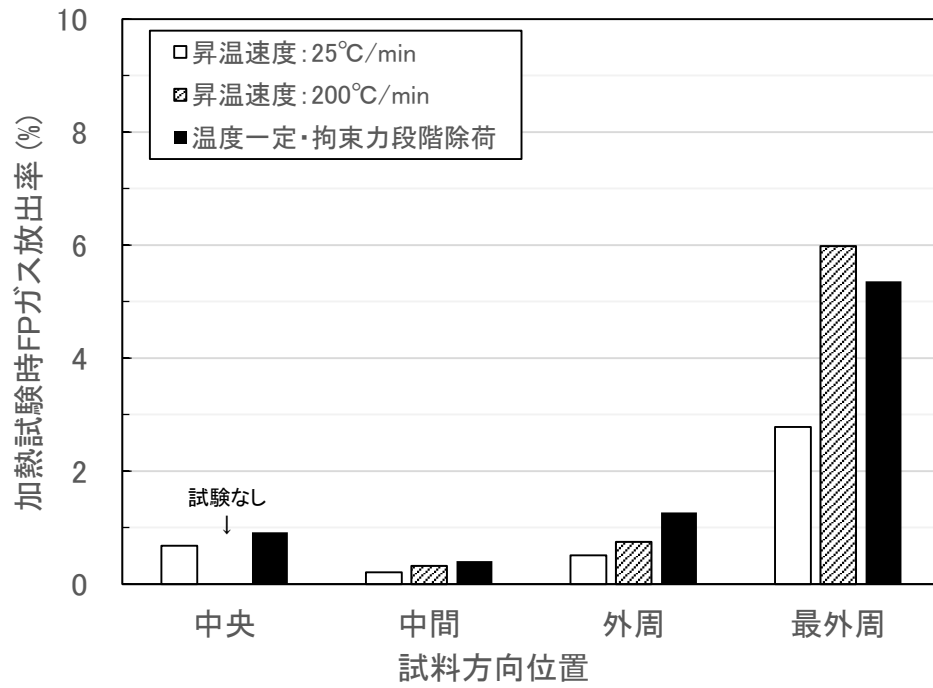


図 2. 4 8 半径方向位置ごとの加熱試験時 FP ガス放出率

Fig. 2.48 Summary of the FP gas release rates

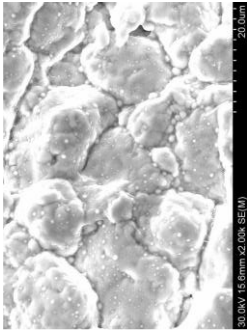
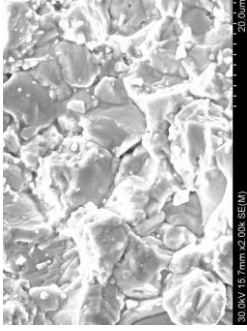

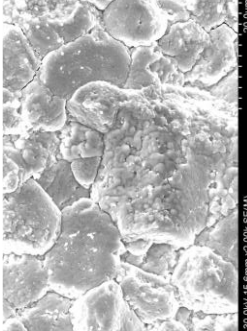
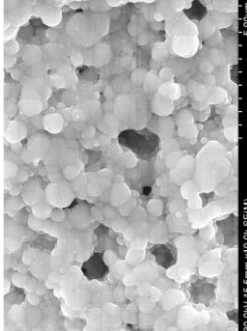
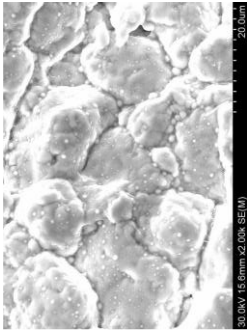
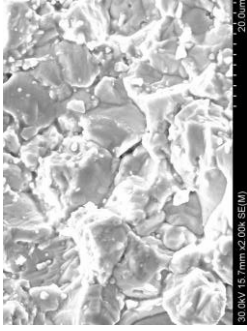

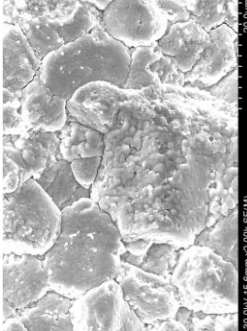
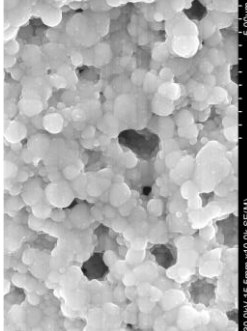
試験条件	中央	中間	径方向位置	外周	最外周	
昇温速度： 25°C/min	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	
	試験片番号 CO2 相对半径(r/r0) -0.09 ~ 0.18 破砕状況 大破片：2個、粉状片：8個	試験片番号 CK5 相对半径(r/r0) 0.21 ~ 0.44 破砕状況 大破片：1個、粉状片：4個	試験片番号 G3 相对半径(r/r0) 0.70 ~ 0.91 破砕状況 大破片：2個、粉状片：0個	試験片番号 SG9 相对半径(r/r0) 0.78 ~ 1.00 破砕状況 大破片：1個、粉状片：10個以上	試験片番号 SG10 相对半径(r/r0) 0.64 ~ 1.00 破砕状況 大破片：1個、粉状片：33個	試験片番号 SG8 相对半径(r/r0) 0.72 ~ 1.00 破砕状況 大破片：1個、粉状片：10個以上
	昇温速度： 200°C/min	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 	粉状片 SEM 写真 
温度一定・ 拘束力段階 除荷	試験片番号 CO4 相对半径(r/r0) -0.03 ~ 0.19 破砕状況 大破片：個、粉状片：個	試験片番号 CK2 相对半径(r/r0) 0.23 ~ 0.53 破砕状況 大破片：1個、粉状片：8個	試験片番号 G5 相对半径(r/r0) 0.74 ~ 0.96 破砕状況 大破片：2個、粉状片：4個	試験片番号 SG5 相对半径(r/r0) 0.72 ~ 1.00 破砕状況 大破片：1個、粉状片：10個以上	試験片番号 SG8 相对半径(r/r0) 0.72 ~ 1.00 破砕状況 大破片：1個、粉状片：10個以上	

図 2.4.9 加熱試験後の試料破砕状況及び粉状片表面の SEM 写真

Fig. 2.49 Summary of extents of fragmentations and SEM images of fine fragments

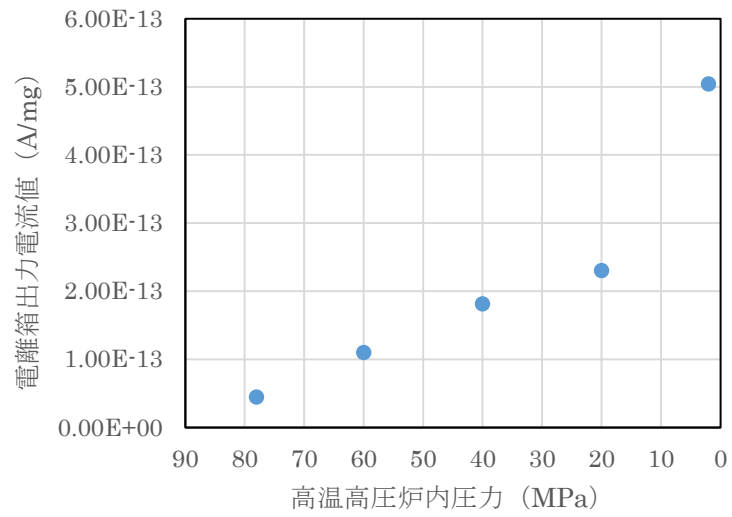


図 2.50 最外周部試料(SG8)の加熱試験時の炉内圧力及び電離箱出力電流値の関係
 Fig. 2.50 Relation between the pressure inside the furnace during heating test and the electric current measured by ionization chamber

3. 結論

3.1 成果の要点

本研究では、改良型燃料に対する適合性審査の技術的判断根拠となる事故時燃料挙動に関する技術的知見を拡充し、また高燃焼度燃料の安全性確保をより確実にを行うために、主にJAEAへ試験研究を委託し、RIA時の燃料破損挙動、核分裂ガス放出量、LOCA時の燃料被覆管急冷時破断限界、燃料被覆管酸化速度、燃料被覆管の膨れ及び破裂挙動等に関するデータを取得した。

RIA時の燃料挙動に関しては、M-MDA(SR)等改良型被覆管を用いた高燃焼度燃料においても、その破損時燃料エンタルピは現行PCMI破損しきい値に比べて高く、改良燃料に対しても現行PCMI破損しきい値が適用できると考えられる。また、破損時燃料エンタルピが燃料被覆管水素吸収と強く関連しており、同じレベルの燃料被覆管水素吸収量同士で比較した場合にはRX材被覆管燃料の破損時燃料エンタルピがSR材被覆管燃料のそれに比べやや低いこと、またいずれの材料においても温度上昇による破損時燃料エンタルピの上昇効果が見られること、さらに、水素吸収量が少ない燃料被覆管の燃料等、室温条件における破損時燃料エンタルピが高いほどその上昇程度は大きくなることがわかった。

LOCA時の燃料被覆管の急冷破断限界は85GWd/tまでの燃焼の進展や合金組成の変更により著しく低下することはなく、ECCS性能評価指針に規定されている被覆管温度基準と酸化量基準を高燃焼度改良型燃料被覆管に適用できると考えられる。燃料被覆管の高温酸化挙動については、85 GWd/tまでの燃焼の進展や合金組成の変更によっても酸化速度及びブレードアウェイ酸化発生条件に著しい変化が生じないことが確認され、高燃焼度改良型燃料被覆管の酸化速度評価にBaker-Just酸化速度式を使うことができると考えられる。

LOCA後の炉心長期冷却性維持の観点から重要となるLOCA後燃料被覆管の曲げ強度についても、JAEAにおいて実施した試験から、高燃焼度改良型燃料被覆管の最大曲げモーメントは未照射の従来型燃料被覆管と比較してほぼ同等であることがわかった。さらに原子力規制庁が実施したLOCA後長期冷却中の地震を想定した解析では、LOCAを経験した燃料被覆管に振動時に作用する応力を明らかにした。曲げ試験結果と解析結果との比較により、現行LOCA基準内であれば、LOCA後長期冷却中の地震に対しても燃料形状を維持できると考えられる。

LOCA時に高燃焼度燃料ペレットで起こるFFRD現象については、JAEA及び原子力規制庁が実施した試験から、高燃焼度領域で燃料ペレットに生じる微細組織の変化、燃料ペレットに負荷される拘束力、到達温度及び昇温速度が、燃料ペレット細片化発生に影響を及ぼすことがわかった。燃料ペレット細片化の程度と加熱時の到達温度との傾向から、加熱に伴うFPガス気泡内圧の上昇により気泡を囲むペレットマトリックスに負荷される応力が増大し、ペレットマトリックスが破壊されることがLOCA時の燃料ペレット細片化の発生メカニズムとして示唆された。

RIA試験の一部において観察された高燃焼度燃料の破裂による破損及び比較的低いエン

タルピでの破損並びにLOCA時の高燃焼度燃料ペレット挙動については、発生条件、メカニズム及び炉心健全性への影響が十分には解明されていないため、注意深く研究を続ける必要がある。

3.2 目的の達成状況

本研究では、改良型燃料について、事故時の燃料挙動に関する知見及び各種改良点が燃料挙動に及ぼす影響に関する技術的知見を取得するための試験を計画し、計画どおり、高燃焼度まで使用された改良型燃料を対象としたRIA試験及びLOCA試験を実施した。これにより高燃焼度領域の事故時燃料挙動データを拡充するとともに、現行のPCMI破損しきい値及びLOCA基準とも、高燃焼度改良型燃料に適用可能であることを示唆する知見を得た。この他、RIA時、LOCA時及びLOCA後長期冷却中の燃料挙動に関する様々なデータを取得することができた。

3.3 成果の活用等

本研究の成果をもとに、旧原子力安全委員会原子炉安全基準部会報告書等に示されている燃料状態の判断基準値が、高燃焼度改良型燃料に対しても適用可能であることを確認した。また、本研究で取得した事故時等の燃料挙動に関する様々なデータは、改良型燃料が導入される場合の適合性審査における技術的判断根拠としての活用が期待される。

参考文献一覧

- (参1) M. Billone, Y. Yan, T. Burtseva, and R. Daum, “Cladding Embrittlement During Postulated Loss-of-Coolant Accidents,” Washington (DC): The U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-6967, ANL-07/04, (2008).
- (参2) T. Fuketa, H. Sasajima and T. Sugiyama, “Behavior of High Burnup PWR Fuels with Low-Tin Zircaloy-4 Cladding Under Reactivity-Initiated-Accident Conditions”, Nuclear Technology, Vol. 133, No.1, pp.50-62, (2001).
- (参3) T. Nakamura, K. Kusagaya, T. Fuketa and H. Uetsuka, “High-burnup BWR Fuel Behavior under Simulated Reactivity-Initiated-Accident Conditions”, Nuclear Technology, Vol.138, pp.246-259, (2002).
- (参4) 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”, Nuclear Safety Research Conference, Washington, U.S.A., October 22-24, 2001 (NUREG/CP-0176, May 2002).
- (参5) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成14年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、日本原子力研究所、平成15年3月。
- (参6) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成15年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、日本原子力研究所、平成16年3月。
- (参7) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成16年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、日本原子力研究所、平成17年3月。
- (参8) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成17年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成18年3月。
- (参9) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成18年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成19年3月。
- (参10) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成19年度燃料等安全高度化対策事業（高度化軽水炉燃料安全技術調査）に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成20年3月。
- (参11) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成20年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成21年11月。
- (参12) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成21年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成22年3月。
- (参13) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成22年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成23年9月。
- (参14) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成23年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成25年3月。

- (参15) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成24年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成26年3月。
- (参16) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成25年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成26年3月。
- (参17) 独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成26年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、独立行政法人日本原子力研究開発機構、平成27年3月。
- (参18) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成27年度原子力施設等防災対策等委託費（燃料等安全高度化対策）事業に関する報告書、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成28年3月。
- (参19) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成28年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費（燃料等安全高度化対策）事業（平成28年度分）、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成30年1月。
- (参20) 原子力安全委員会、「発電用軽水型原子炉施設の反応度投入事象における燃焼の進んだ燃料の取り扱いについて」、1998。
- (参21) D. Sato, T. Kido, Y. Mazaki, “In-pile behavior of M-MDA, advanced PWR fuel cladding irradiated up to 73 GWd/t(R) in a commercial reactor”, WRFPM2011, China, Sep. 11-14, 2011.
- (参22) J. Arborelius, K. Backman, L. Hallstadius, M. Limba, J. Nilsson, B. Rebensdorff, G. Zhou, K. Klitano, R. Lofstrom and G. Roenberg, “Advanced Doped UO₂ Pellets in LWR Applications” J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 43, No. 9, pp. 967-976 (2006).
- (参23) IAEA, “Advanced Fuel Pellet Materials and Fuel Rod Design for Water Cooled Reactors”, IAEA-TECDOC-1654 (2010).
- (参24) F. Nagase, T. Otomo, and H. Uetsuka, “Oxidation kinetics of low-Sn Zircaloy-4 at the temperature range from 773 to 1,573 K,” J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 40, No. 4, pp. 213-219 (2003).
- (参25) K. Honma, S. Doi, M. Ozawa, S. Urata, and T. Sato, “Thermal-Shock Behavior of PWR High-Burnup Fuel Cladding Under Simulated LOCA Conditions,” Proc. ANS Annual Meeting, Milwaukee, Wisconsin (2001).
- (参26) T. Murata, Y. Taniguchi, S. Urata, and T. Sato, “LOCA simulation test of the cladding for high-burnup fuel,” Proc. ANS Annual Meeting, Milwaukee, Wisconsin (2001).
- (参27) OECD/NEA, “Report on Fuel Fragmentation, Relocation and Dispersal”, NEA/CSNI/R(2012)16 (2016).
- (参28) F. Nagase, T. Chuto, and T. Fuketa, “Behavior of High Burn-up Fuel Cladding under LOCA Conditions,” J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 46, No.

- 7, pp. 763-769 (2009).
- (参29) L. Baker and L. C. Just, "Studies of Metal-Water Reaction at High Temperatures; III. Experimental and Theoretical Studies of the Zirconium-Water Reaction," ANL-6548, Argonne National Laboratory (1962).
- (参30) H. Uetsuka, T. Furuta, and S. Kawasaki, "Zircaloy-4 Cladding Embrittlement due to Inner Surface Oxidation under Simulated Loss-of-Coolant Condition," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 18, No. 9, pp. 705-717 (1981).
- (参31) T. Furuta, H. Uetsuka, and S. Kawasaki, "Ductility Loss of Zircaloy Cladding by Inner-Surface Oxidation during High Temperature Transient," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 18, No. 10, pp. 802-810 (1981).
- (参32) T. Furuta and S. Kawasaki, "Reaction behavior of zircaloy-4 in steam-hydrogen mixtures at high temperature," J. Nucl. Mater., Vol. 105, No. 2, pp. 119-131 (1982).
- (参33) F. Nagase and T. Fuketa, "Effect of Pre-Hydridding on Thermal Shock Resistance of Zircaloy-4 Cladding under Simulated Loss-of-Coolant Accident Conditions," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 41, No. 7, pp. 723-730 (2004).
- (参34) F. Nagase and T. Fuketa, "Behavior of Pre-hydrided Zircaloy-4 Cladding under Simulated LOCA Conditions," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 42, No. 2, pp. 209-218 (2005).
- (参35) F. Nagase and T. Fuketa, "Fracture Behavior of Irradiated Zircaloy-4 Cladding under Simulated LOCA Conditions," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 43, No. 9, pp. 1114-1119 (2006).
- (参36) M. Billone, Y. Yan, and T. Burtseva, "Post-quench ductility of advanced alloy cladding," Proc. The Nuclear Fuels Sessions of the 2004 Nuclear Safety Research Conference, Washington, DC, October 25-27, 2004, NUREG/CP-0192.
- (参37) Bostrom WA. The high temperature oxidation of Zircaloy in water. WAPD-104, Westinghouse Atomic Power Division; Mar. 1954.
- (参38) Lemmon, Jr. AW. Studies relating to the reaction between zirconium and water at high temperatures. BMI-1154, Battelle Memorial Institute; Jan. 1957.
- (参39) Yamamoto T. et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 303, 42-45 (2013).
- (参40) M. Ozawa, T. Takahashi, T. Homma, and K. Goto, "Behavior of irradiated Zircaloy-4 fuel cladding under simulated LOCA conditions," Zirconium in

the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, pp. 279-299 (2000).

- (参41) T. Chuto, F. Nagase, and T. Fuketa, “High temperature oxidation of Nb-containing Zr alloy cladding in LOCA conditions,” Nucl. Eng. Technol., Vol. 41, No. 2, pp. 163-170 (2009).
- (参42) F. Nagase, T. Otomo, and H. Uetsuka, “Experiments on high burnup fuel behavior under LOCA conditions at JAERI,” Proc. 2000 International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance; 2000 Apr 10-13; Park City, Utah (USA).
- (参43) MC. Billone, Y. Yan, TA. Burtseva, and RO. Meyer. “Cladding Behavior during Postulated Loss-of-Coolant Accidents,” The U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-7219, ANL-16/09 (2016).
- (参44) M. Yamato, F. Nagase, and M. Amaya, “Reduction in the onset time of breakaway oxidation on Zircaloy cladding ruptured under simulated LOCA conditions,” J. Nucl. Mater., Vol. 445, pp. 78-83 (2014).
- (参45) L. Portier, T. Bredel, J. Brachet, V. Maillot, J. Mardon, and A. Lesbros, “Influence of Long Service Exposures on the Thermal-Mechanical Behavior of Zy-4 and M5 Alloys in LOCA Conditions,” J. ASTM Intl. Vol. 2, pp. 1-24 (2005).
- (参46) M. Yamato, F. Nagase, and M. Amaya, “Evaluation of fracture resistance of ruptured, oxidized, and quenched Zircaloy cladding by four-point-bend tests,” J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 51, No. 9, pp. 1125-1132 (2014).
- (参47) U.S. NRC, “Mechanical behavior of ballooned and ruptured cladding”, U.S. NRC, NUREG-2119, Feb. 2012.
- (参48) K. Kitano and M. Ozawa, “Analysis of Stress Applied to Fuel Cladding by Horizontal Vibration under POST-LOCA Condition”, Proc. TopFuel2018; 2018 Sep 30-Oct 4; Prague (Czech Republic).
- (参49) 独立行政法人原子力安全基盤機構、平成17年度原子力施設等の耐震性評価技術に関する試験及び調査機器耐力その2 (PWR制御棒挿入性)に係る報告書、独立行政法人原子力安全基盤機構、平成18年8月。
- (参50) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成28年度原子力施設等防災対策等委託費(事故時燃料冷却性評価に関する研究)事業に関する報告書、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成29年3月。
- (参51) ME. Nissley, C. Frepoli, and K. Ohkawa, “Realistic assessment of fuel rod behavior under large-break LOCA conditions,” Proc. of the Nuclear Fuels Sessions of the 2004 Nuclear Safety Research Conference (NUREG/CP-

- 0192). Proceedings; 2004 Oct 22-27; Washington (DC): Marriott Hotel at Metro Center; 2005.
- (参52) HM. Chung, “Fuel behavior under loss-of-coolant accident situations,” Nucl. Eng. Technol., Vol. 37, pp. 327-362 (2005) .
- (参53) ueh KH, Snis N, Mitchell D, and Munoz-Reja C, “Fuel Fragmentation Data Review and Separate Effects Testing” , Proceedings of WRFPM 2014, Sendai, Japan, September 14-17, 2014, paper no. 100117 (2014) .
- (参54) S. Hanawa, J. Ohgiyanagi and M. Suzuki, “Verification of FEMAXI-7 code by using irradiation test in Halden reactor for He-pressurization effect on FGR of BWR fuels under power transient” , J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 49, No. 5, pp. 516-525 (2012).
- (参55) T. Ikonen and V. Tulkki, “The importance of input interactions in the uncertainty and sensitivity analysis of nuclear fuel behavior” , Nucl. Eng. Des., 275 (2014) 229-241.
- (参56) 独立行政法人原子力安全基盤機構、平成 18 年度高燃焼度 9X9 型燃料信頼性実証成果報告書 付録 I (9X9A 型燃料照射後試験結果)、独立行政法人原子力安全基盤機構、平成 19 年 12 月。
- (参57) 公益財団法人原子力安全研究協会、軽水炉燃料のふるまい、公益財団法人原子力安全研究協会、平成 25 年 3 月。
- (参58) J. A. Turnbull, S. K. Yagnik, M. Hirai, D. M. Staicu and C. T. Walker, ” An Assessment of the Fuel Pulverization Threshold During LOCA-Type Temperature Transients” Nucl. Sci. Eng. 22 (2017) 477-485.
- (参59) M. I. Horvath, M. Guillong, I. G. Leopold, A. Izmer, N. Kivel, R. Restani, C. Hellwig and D. Guenther, “Determination of fission gas inclusion pressures in high burn-up nuclear fuel using laser ablation ICP-MS combined with SEM/EPMA optical microscopy” , Proceedings of the international youth nuclear congress 2008, Interlaken, Switzerland, September 20-26, 2008, paper no. 347.
- (参60) C. Cagna, I. Zacharie-Aubrun, P. Bienvenu, L. Barrallier, B. Michell and J. Noirot, “A complementary approach to estimate the internal pressure of fission gas bubbles by SEM-SIMS-EPMA in irradiated nuclear fuels” , Proceedings of the EMAS 2015 European workshop, Portoroz, Slovenia, May 3-7, 2015, paper no. 012002.
- (参61) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成29年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費（燃料等安全高度化対策）事業（平成29年度分）、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成31年3月。

(参62) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成30年度原子力規制庁委託成果報告書、原子力施設等防災対策等委託費（燃料設計審査分野の規制研究）事業（平成30年度分）、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、平成31年3月。

主な執筆者一覧

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ

システム安全研究部門

北野 剛司 主任技術研究調査官

山内 紹裕 技術研究調査官

小澤 正明 技術研究調査官