

## 安全研究成果報告（案）

RREP-2021-XXXX

# 安全研究成果報告

S/NRA/R Research Report

## 燃料健全性に関する規制高度化研究

Research on fuel integrity for advancement of regulation

山内 紹裕 北野 剛司

YAMAUCHI Akihiro and KITANO Koji

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3年 月

Month 2021

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。

本報告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

## 燃料健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  
山内 紹裕 北野 剛司

### 要 旨

国内外の軽水炉において使用される燃料体には、主として二酸化ウランを焼き固めた円柱状の燃料ペレットをジルコニウム合金製の被覆管に装荷した燃料棒が用いられている。運転時の異常な過渡変化が発生した場合、被覆管に貫通性の亀裂損傷が生じる可能性があるが、放射性物質閉じ込め機能を維持し、事象の拡大を防止する観点から、異常な過渡変化時には燃料被覆管が破損しないことが要求されている。本要求に関する技術的判断根拠が整備されて以降、我が国における燃料体の取出最高燃焼度は大幅に増加している。燃焼度の増加に伴い、冷却水との反応により被覆管中に吸収される水素の量も増加するが、この水素吸収量の増加に起因して、試験炉での出力急昇試験において、それまで観察されていなかった破損形態である被覆管外面割れ破損が発生した。また、水素吸収により被覆管の機械的性質が低下することも報告されている。

本研究では現行の燃料健全性に関する技術的判断根拠が、燃焼度の増加した燃料に対しても妥当であることを確認するために、使用済燃料被覆管を用いた各種試験を実施した。被覆管外面割れ破損については、その発生条件を明らかにした。被覆管の機械的性質低下については、水素化物析出状態に注目して高温における巨視的な延性一脆性遷移が発生する条件を明らかにし、被覆管破損の判断基準である 1%塑性ひずみ基準の技術的妥当性を確認した。

一方、水素吸収は被覆管劣化の原因となるため、水素吸収の低減等を目的とした、改良合金被覆管の開発も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。それら新たな改良合金被覆管の国内での導入に備え、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。そこで、改良合金被覆管の照射成長を調べるために、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、試験炉照射及び照射後試験を実施した。試験結果から、合金元素含有量等が照射成長挙動に及ぼす影響を明らかにするとともに、改良合金被覆管の照射成長は、ジルカロイ-4 被覆管より小さいことを確認した。

## Research on fuel integrity for advancement of regulation

YAMAUCHI Akihiro and KITANO Koji

Division of Research for Reactor System Safety,  
Regulatory Standard and Research Department,  
Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

## Abstract

Fuel rods, which consist of fuel claddings made of zirconium alloys and cylindrical fuel pellets made of sintered uranium dioxide, are commonly used as nuclear fuel in light water reactors. When anticipated operational occurrences happen, the fuel cladding may fail with a through-wall crack due to the thermal expansion of the fuel pellets. To maintain the confinement function of the fuel claddings and to prevent the aggravation of the situation, the fuel claddings are required not to fail during anticipated operational occurrences. The maximum discharge burnup of a fuel assembly has been extended in Japan since the current technical basis for safety review was established. Along with this extension of burnup, the amount of hydrogen absorbed into a fuel cladding increases. The degradation of the mechanical properties of fuel claddings and a new failure mechanism, namely outside-in cracking, due to the increase in hydrogen absorption have been reported.

In this research, to confirm the validity of the current technical basis for safety review by considering the influence of the hydrogen absorption in high burnup fuel claddings, a series of tests using the spent fuel claddings of the current design has been conducted. As a result of the tests, the conditions causing the outside-in cracking have been elucidated. Regarding the degradation of the mechanical properties of the fuel claddings, the distribution of the hydride precipitation causing the macroscopic ductile-brittle transition of fuel claddings has been clarified. The results have contributed to the confirmation of the technical validity of the criterion of 1% plastic strain for cladding failure.

On the other hand, advanced claddings have been developed both in Japan and abroad with such objectives as reducing the hydrogen absorption because it is a cause of cladding failure. Some new advanced claddings have been already commercialized abroad. To prepare for the introduction of the new advanced claddings in Japan, it is necessary to garner more knowledge to be used as the technical basis for reviewing their conformity to the regulations. Thus, irradiation growth of the new advanced claddings has been studied through the irradiation test and post-irradiation-examination performed by the Japan Atomic Energy Agency under consignment contract. The test results have

clarified the effect of alloying elements on irradiation growth. In addition, the irradiation growth of the new advanced claddings has been confirmed to be smaller than that of the Zircaloy-4 cladding.

## 目次

1. 序論 .....	1
1.1 背景 .....	1
1.2 目的 .....	4
1.3 全体工程 .....	4
2. 本論 .....	5
2.1 外面割れ破損に関する研究.....	5
2.1.1 個別効果試験による外面割れ発生条件に関する検討 .....	6
2.1.2 応力緩和が亀裂進展に与える影響に関する解析的評価.....	36
2.1.3 PWR 燃料被覆管の亀裂進展性に関する検討.....	45
2.1.4 外面割れ破損に関する研究のまとめ及び系統的な被覆管破損発生有無の検討 .....	50
2.2 被覆管の高温における巨視的な延性—脆性遷移に関する研究.....	51
2.3 改良合金燃料被覆管の照射成長に関する試験 .....	56
3. 結論 .....	61
3.1 成果の要点 .....	61
3.2 目的の達成状況 .....	61
3.3 成果の公表等 .....	62
3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表 .....	62
3.3.2 委託先等による公表.....	64
3.4 成果の活用等 .....	65
3.5 今後の課題等 .....	65
参考文献一覧 .....	66
執筆者一覧 .....	69

## 表 目 次

表 2.1	供試材及び試験条件一覧(1)	11
表 2.2	供試材及び試験条件一覧(2)	24
表 2.3	供試材及び試験条件一覧(3)	31
表 2.4	亀裂進展量のまとめ	32
表 2.5	解析に使用した Zry-2 のポアソン比	37
表 2.6	解析に使用した Zry-2 の降伏応力、極限強さ及び伸び	37
表 2.7	解析に使用した Zry-2 の比熱	38
表 2.8	解析対象燃料棒の一覧及び出力急昇試験の条件	43
表 2.9	亀裂貫通に要する時間の解析結果一覧	44
表 2.10	供試材及び試験条件一覧(4)	47
表 2.11	供試材一覧(5)	53
表 2.12	水素濃度、指標値、引張強さ及び周方向破損歪	53
表 2.13	照射成長試験に供した改良合金被覆管	58



## 目 次

図 1.1	燃料ペレット、燃料棒及び燃料集合体の概略図	3
図 1.2	水素化物が析出している 9x9A 型使用済燃料被覆管の半径方向断面金相写真の例	3
図 1.3	本研究プロジェクトの全体工程	4
図 2.1	外面割れ破損及び応力腐食割れ破損の外観比較	6
図 2.2	異常過渡模擬試験装置の模式図	7
図 2.3	ヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略(1)	13
図 2.4	水素熱拡散後の試料の金相写真例（試料番号：A15U1KYA8）	13
図 2.5	水素濃度が異なる試料の試験後金相写真の比較	14
図 2.6	保持時間が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(1)	14
図 2.7	保持時間が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(2)	15
図 2.8	保持時間が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(3)	16
図 2.9	ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(1)	16
図 2.10	ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(2)	17
図 2.11	ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(3)	18
図 2.12	ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(4)	19
図 2.13	被覆管外面における半径方向水素化物析出有無のまとめ	20
図 2.14	輸送熱及び線出力の関係	20
図 2.15	外表面での半径方向水素化物析出に要する時間と線出力の関係	21
図 2.16	金相写真の画像解析により求めた初期水素濃度分布	21
図 2.17	ヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略(2)	25
図 2.18	破損試料の試験後外観の例	25
図 2.19	破損部断面金相写真の例	26
図 2.20	破断面の SEM 写真の例	27
図 2.21	破損部近傍における未貫通亀裂の例	28
図 2.22	非破損試料の試験後外観の例	28
図 2.23	非破損試料の試験後断面金相写真の例	29
図 2.24	ヒーター出力及び外表面周方向引張応力で整理した破損/非破損マップ	29
図 2.25	ヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略(3)	33
図 2.26	予亀裂位置の模式図	33
図 2.27	試験後破面観察の例	34
図 2.28	周方向引張応力と平均亀裂進展速度の関係	35
図 2.29	ヒーター出力と平均亀裂進展速度の関係	35
図 2.30	応力拡大係数と平均亀裂進展速度の関係	36

図 2.31	解析モデルの例 (9x9A 型) .....	39
図 2.32	被覆管内部の温度分布の例 (9x9A 型、線出力: 47.1 kW/m) .....	40
図 2.33	周方向引張応力負荷時の被覆管内部の静水圧応力分布の解析例 .....	40
図 2.34	亀裂先端近傍における水素濃度分布の解析例 .....	41
図 2.35	亀裂先端から 10 $\mu\text{m}$ 離れた位置における平均水素流束の時間推移の例 .....	42
図 2.36	出力過渡模擬試験における破損時間の試験結果と解析結果の比較 .....	42
図 2.37	出力履歴の例 (試料番号: 2F2D8-C6-5) .....	44
図 2.38	周方向引張応力の時間推移の解析例 (試料番号: 2F2D8-C6-5) .....	45
図 2.39	中子拡管試験の概要図 .....	47
図 2.40	荷重及び外径変化率の経時変化 .....	48
図 2.41	試験後外観写真 .....	49
図 2.42	試験後試料の半径方向断面の金相写真 .....	50
図 2.43	半径方向横断面の金相写真 .....	54
図 2.44	水素化物の長さ及び方位を取得する画像解析の概要 .....	54
図 2.45	内圧破裂試験で得られた周方向の応力-歪曲線 .....	55
図 2.46	指標値と周方向引張強さ (左) 及び周方向破損歪 (右) の関係 .....	55
図 2.47	21 日間 HCRT に供した試料の破面 SEM 写真 .....	56
図 2.48	試験片の形状及び寸法 .....	58
図 2.49	Zry-4 及び改良合金被覆管の長さ変化 .....	59
図 2.50	あらかじめ水素を吸収させた被覆管の長さ変化 (照射温度 320°C) .....	60
図 2.51	Zry-4 (RX)被覆管の長さ変化と腐食増量の関係 .....	60
図 2.52	各被覆管の水素吸収率 .....	61

## 略 語 表

BWR	Boiling Water Reactor	沸騰水型原子炉
DHC	Delayed Hydride Cracking	遅れ水素化物割れ
FEM	Finite Element Method	有限要素法
FP	Fission Product	核分裂生成物
HCRT	Hydrogen Charging and hydride Reorientation Treatment	水素添加及び水素化物再配向処理
LOCA	Loss of Coolant Accident	冷却材喪失事故
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
SEM	Scanning Electron Microscope	走査型電子顕微鏡
UTS	Ultimate Tensile Strength	引張強さ

## 1. 序論

### 1.1 背景

我が国の軽水炉において使用される燃料体には、主として二酸化ウランを焼き固めた円柱状の燃料ペレットをジルコニウム合金製の燃料被覆管に装荷した燃料棒が用いられている（図 1.1）。燃料ペレット（原則として以下単に「ペレット」という。）及び燃料被覆管（原則として以下単に「被覆管」という。）は、それぞれ、第一、第二の障壁として放射性物質閉じ込めの機能を担っている。

運転時の異常な過渡変化が発生した場合、ペレットの熱膨張により被覆管に周方向の引張荷重及び歪みが負荷され（以下「ペレット-被覆管相互作用」という）、これにより被覆管に貫通性の亀裂損傷（以下「被覆管破損」という。）が生じる可能性がある。放射性物質閉じ込め機能の維持及び事象拡大防止の観点から、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<sup>1</sup>（以下「設置許可基準規則」という。）では、異常な過渡変化時において「燃料被覆材が破損しない」ことが要求されている。本要求事項については、過去に旧原子力安全委員会の燃料安全基準専門部会においてその明確化について検討され、「運転時の異常な過渡変化時に『燃料被覆管に対する機械的な負荷によって貫通性損傷が系統的<sup>(注1)</sup>には生じないこと』である」とされた<sup>2</sup>。また、その具体的判断基準については、同専門部会により、種々の被覆管破損モードを考慮<sup>(注2)</sup>しても「被覆管の円周方向の平均塑性歪が 1%以下であること」（以下「1%塑性歪基準」という。）で代表できるとされた<sup>2</sup>。これは、被覆管に負荷される歪が一定より小さければ被覆管は破損には至らないとする考え方であり、言い換えれば、通常運転に伴う種々の劣化を考慮しても被覆管に一定以上の延性（破損時塑性歪の大きさに相当）が保持されていることが要求されている。

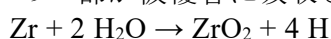
ジルコニウム合金製の被覆管は、軽水炉の通常運転中、冷却材との酸化腐食反応によって発生した水素の一部を吸収する<sup>(注3)</sup>。被覆管中の水素濃度が固溶限を超えた場合、吸収された水素はジルコニウム水素化物（主たる化学量論的組成は  $ZrH_{1.6}$ 。以下単に「水素化物」という。）として析出する。水素化物は金属母層と比べて脆いため<sup>3</sup>、被覆管の機械的性質を劣化させる<sup>4,7</sup>。被覆管中に析出する水素化物の量は、燃料体の使用期間の長期化、すなわち燃焼度の増加に伴って増加する<sup>8</sup>。なお、水素化物はエッチング処理により被覆管金属

---

(注1) 燃料被覆材の系統的な破損とは、特定の原因と過程により再現性を伴って生じる破損を指している<sup>5</sup>。

(注2) 被覆管の過熱、ペレット-被覆管相互作用による過歪負荷、内圧上昇、フレタイング摩耗等の貫通性損傷を発生させる可能性がある損傷モードを列挙の上、個別に検討した。

(注3) ジルコニウム及び水の酸化反応は下式で示される。これにより生じた水素（右辺第 2 項）の一部が被覆管に吸収される。

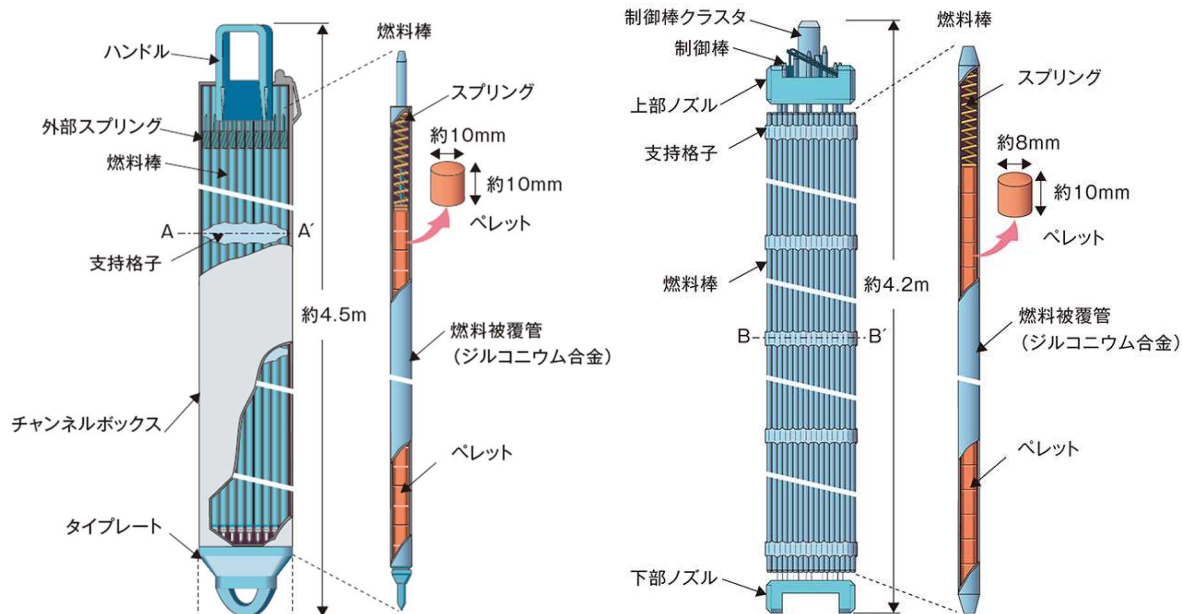


層と識別することができ、半径方向断面金相写真においては黒い筋状の痕跡として観察される（図 1.2）。

過去に局所燃焼度約 60 GWd/tU の沸騰水型原子炉（以下「BWR」という。）燃料被覆管を対象として実施された、試験研究炉において燃料棒に出力過渡を与える試験（異常過渡事象を模擬した試験。以下「出力急昇試験」という。）により、水素化物が関与した新たな破損形態、すなわち外面に発生した初期亀裂が内面に向かって進展することにより生じる燃料破損（以下「外面割れ破損」という。）が観察され、外面割れ破損が生じた試料の周方向破損歪は 1%未満であった<sup>9</sup>。1%塑性歪基準の検討当時にはまだ外面割れ破損は観察されていなかったため、現状では当該破損形態は破損モードとして考慮されていないことになる。したがって、まず外面割れ破損が運転時の異常な過渡変化時に系統的に起こり得るかどうかを判断することが重要であり、そのため、その発生条件を明らかにする必要がある。

1%塑性歪基準検討当時と比較して、我が国における燃料体の取出最高燃焼度は大幅に増加している<sup>6</sup>。前述のとおり、燃焼度の増加に伴い被覆管中の水素濃度及び水素化物の析出量は増加するが、これにより被覆管の破断時塑性歪の値が低下することが報告されており<sup>4,7</sup>、現行の最大燃焼度まで使用された被覆管の延性を評価することが重要である。また、水素濃度のみならず、水素化物の形態（方位及び長さ）もジルコニウム合金材料の延性低下に大きく影響することが知られている<sup>10-12</sup>。一方で室温と比較して、温度が高くなると被覆管の延性は高くなることが知られているが<sup>11,13</sup>、上記を踏まえると、水素濃度及び水素化物析出状態によっては、通常運転時の被覆管温度（約 300℃程度の高温）においても被覆管の延性が失われ、破損時の塑性歪が 1%を下回る可能性がある。燃焼が進み水素化物の析出量が増加した被覆管の出力過渡時の健全性においては本現象を考慮すべきであるが、これまでそのような状態になる条件について定量的かつ系統的に調べた例はない。そのため、高温における被覆管の巨視的な延性—脆性遷移が発生する水素濃度及び水素化物析出条件を明らかにし、さらに、1%塑性歪基準との比較のため、脆性破損した際の破損時塑性歪について調べる必要がある。

一方、耐食性の改善及び水素吸収量の低減等により安全性を向上させることを目的として、現行被覆管から合金元素含有量、被覆管加工条件、熱処理条件等を調整し、耐食性を改善した被覆管（以下「改良合金被覆管」という。）の開発が国内外で進められている。海外ではその一部が既に実用化され、商業炉における利用が進んでいる。国内においても改良合金被覆管の導入が見込まれている。これら改良合金被覆管については、通常運転中の照射に伴う燃料棒の伸び、すなわち照射成長に関する知見の報告が少ない。照射成長量が大きい場合は、燃料棒及び燃料集合体が過度に変形し、破損又は制御棒挿入性喪失につながる可能性があるため、導入の際の適合性審査に向け、合金元素含有量等が照射成長挙動に及ぼす影響に関して技術的知見を拡充する必要がある。



出典) 日本原子力文化財団 原子力・エネルギー図面集

図 1.1 燃料ペレット、燃料棒及び燃料集合体の概略図

(左: BWR、右: PWR)

Fig. 1.1 Schematic diagrams for nuclear fuel pellets, fuel rods and a fuel assembly

(left: BWR, right: PWR)

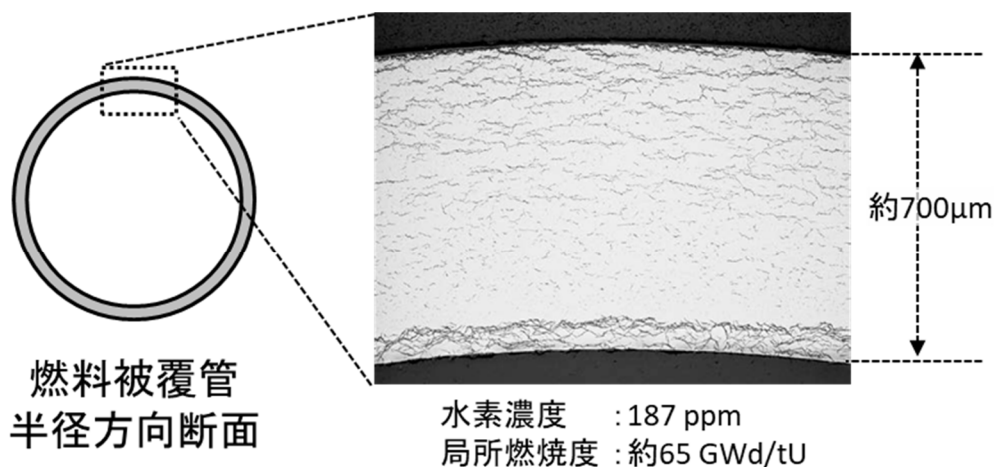


図 1.2 水素化物が析出している 9x9A 型使用済燃料被覆管の半径方向断面金相写真の例

Fig. 1.2 Example of a metallograph showing a cross section of a 9x9A type spent fuel cladding with hydrides

## 1.2 目的

外面割れ破損が運転時の異常な過渡変化時に系統的に起こり得るかどうかを検討するため、その発生条件を明らかにする。また、高温における水素化物による巨視的な被覆管の延性—脆性遷移の発生条件を明らかにする。さらに、改良合金被覆管について、合金元素含有量等が照射成長挙動に及ぼす影響に関して技術的知見を拡充する。

上記を実施することで、燃料健全性に係る判断基準の技術的妥当性の確認、また、適合性審査における判断の技術的根拠としての活用を目的とする。

## 1.3 全体工程

本研究は平成 19 年度から令和 2 年度にかけて実施したものである。なお、改良合金被覆管の照射成長試験については、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構等への委託事業として実施した。全体行程を図 1.3 に示す。

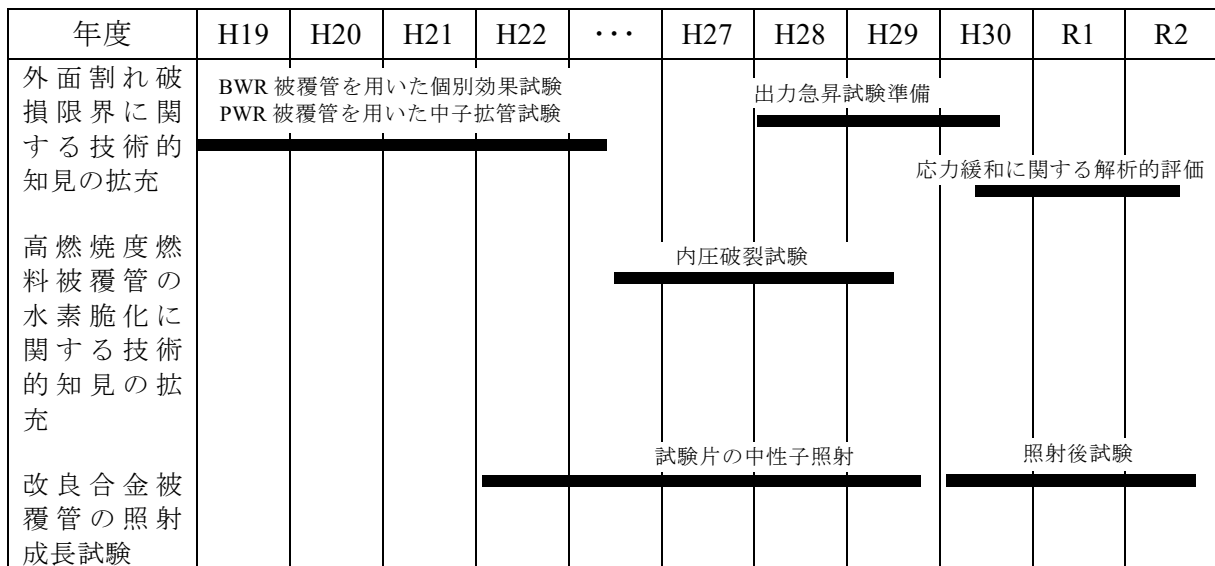


図 1.3 本研究プロジェクトの全体工程

Fig. 1.3 Overall schedule of the research project

## 2. 本論

### 2.1 外面割れ破損に関する研究

過去の燃料集合体照射試験プログラム<sup>9</sup>において、局所燃焼度 40-60 GWd/tU の使用済 BWR 燃料棒及び PWR 燃料棒を対象とした出力急昇試験が実施された。局所燃焼度が 50 GWd/tU 以下の燃料棒は、従来知られていた応力腐食割れ<sup>(注4)</sup>により内面からの亀裂進展により破損した一方で、BWR 燃料棒のうち局所燃焼度が 55-60 GWd/tU の試料 4 つが、応力腐食割れの場合とは逆に、被覆管の外表面に発生した亀裂が内面に向かって進展したことにより破損した（外面割れ破損）。外面割れ破損では、応力腐食割れ破損で観察されたピンホール状の微小な貫通孔ではなく、軸方向に長く開口した大きな亀裂が観察されたことが特徴的であった（図 2.1）。なお、PWR 燃料棒を対象とした出力急昇試験では、局所燃焼度約 60 GWd/tU の試料であっても、被覆管外表面に未貫通の亀裂が生じたものの破損には至らなかった。なお、現在我が国で使用されている燃料棒の局所燃焼度の最大値は約 70 GWd/tU である<sup>14,15</sup>。

出力過渡時の外面割れ破損はそれまで観察されておらず、当該試験により新たに見いだされた破損形態であった。当該プログラムにおける出力急昇試験後の試料分析により、外面割れ破損の発生機構はおおむね以下のとおりであると推定された。すなわち、第一に、通常運転中に被覆管が冷却水により酸化された際に生じた水素の一部を吸収する。その後、出力過渡が発生するとペレットの発熱増大により被覆管内表面及び外表面の温度差が増大し、それに伴い被覆管中の固溶水素原子が被覆管外表面に向かって熱拡散する。その結果、被覆管外表面において水素濃度が局所的に高くなり、固溶限を超えると水素化物が析出する。このとき、被覆管にはペレットの熱膨張により周方向引張応力が発生しているため、水素化物は半径方向に配向する<sup>(注5)</sup>。さらに、半径方向水素化物が周方向応力により破壊し、初期亀裂となる。その後、亀裂先端に応力が集中し、遅れ水素化物割れ（以下「DHC」という。）<sup>(注6)</sup>により亀裂が進展し肉厚貫通に至る。

外面割れ破損が運転時の異常な過渡変化時に系統的に起こり得るかどうかを判断することは、異常な過渡変化時の燃料健全性を評価する上で重要であり、そのためにはその発生条件を明確化する必要がある。そこで、上記プロセスのうち異常な過渡変化発生後の、(1) 水素原子の熱拡散による被覆管外表面での半径方向水素化物析出、(2)析出した半径方向水

---

(注4) 使用済燃料棒内部の被覆管-ペレットギャップ部には、ペレットから放出されたヨウ素等の腐食性核分裂生成物が存在しており、これが燃料被覆管に負荷された周方向引張荷重と重畳することにより被覆管内表面に亀裂が発生し、貫通破損に至る現象。

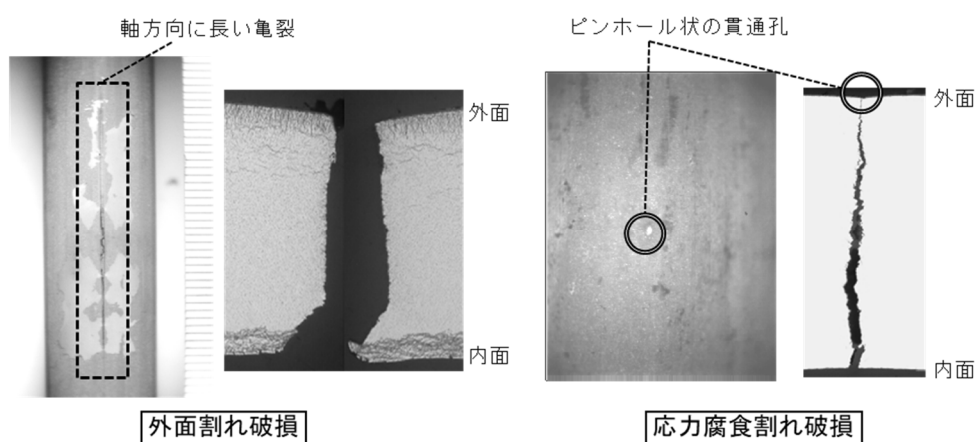
(注5) 水素化物は、応力が負荷された状態のジルコニウム合金中では応力の方向と垂直な方向に析出することが報告されており<sup>16</sup>、これを利用した。

(注6) 引張応力の負荷された亀裂の先端周辺では応力集中が発生しており、この応力勾配に基づき水素原子が流入する。局所的な水素濃度が固溶限を超えた場合には、亀裂先端に水素化物として析出するが、これが負荷された引張応力により破壊し、亀裂が進展する。このプロセスの繰り返しより亀裂が進展していく現象を遅れ水素化物割れと呼ぶ。



素化物の破壊による初期亀裂発生、(3)DHC による亀裂進展及び肉厚貫通に着目し、それぞれの発生条件を調べるため、BWR 燃料被覆管を対象とした個別効果試験を行った(2.1.1)。また、出力過渡時に被覆管のクリープ変形により生じる応力緩和が DHC による亀裂進展に与える影響を解析的に評価した (2.1.2)。

上述のとおり、過去に実施された出力急昇試験において PWR 燃料棒には被覆管外表面に未貫通の亀裂が生じたものの、外面割れ破損には至らなかった。原因としては、被覆管に用いられた材料<sup>(注7)</sup>又は試験時の温度条件<sup>(注8)</sup>の差異が考えられる。これについて調べ、外面割れ破損発生条件を究明するため、PWR 燃料被覆管を供試材とした中子拡管試験を実施した (2.1.3)。



出典) 財団法人原子力発電技術機構、「平成 13 年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書 (BWR 高燃焼度燃料総合評価編)」、平成 14 年 3 月<sup>9</sup>

図 2.1 外面割れ破損及び応力腐食割れ破損の外観比較

Fig. 2.1 Comparison of appearances between outside-in cracking and stress corrosion cracking

### 2.1.1 個別効果試験による外面割れ発生条件に関する検討

外面割れ破損発生条件を明確にするため、出力過渡状態を模擬可能な試験装置(図 2.2)を用いて BWR 燃料被覆管を対象とした個別効果試験を行い、(1)水素原子の熱拡散により被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する条件、(2)析出した半径方向水素化物が破壊し初期亀裂となる条件、(3)亀裂が進展し肉厚貫通に至る条件について調べた。

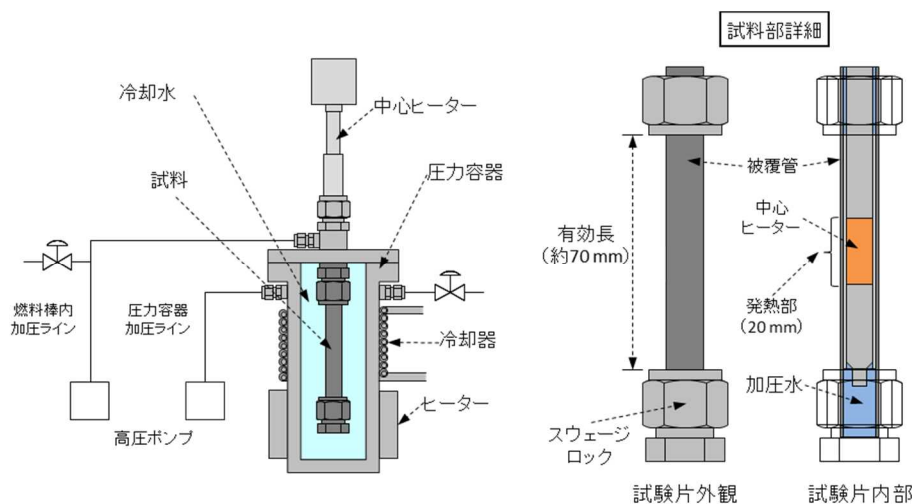
当該装置は压力容器を備えており、試験中は BWR の冷却材条件を模擬するため、压力容器内部を温度 288°C、圧力 7 MPa の冷却水で満たした。また、压力容器内に設置された約 70 mm 長の被覆管試料の内部には中心ヒーターを挿入し、ペレットの発熱を模擬した。

<sup>(注7)</sup> BWR 燃料においてはジルコニウム系合金である Zry-2 に再結晶焼鈍処理を施したものが、PWR 燃料においては主に Zry-4 に応力除去焼鈍処理を施したものが使われてきており、両者では被覆管中の合金元素組成及び熱処理に相違がある。

<sup>(注8)</sup> 冷却材温度は BWR より PWR の方が高いため、それを反映して BWR 燃料及び PWR 燃料では異なる温度条件で出力急昇試験を実施した。

なお、発熱部は試料中央約 20 mm の領域である。さらに、試料内部に接続された高圧ポンプを用いて加圧水により被覆管に周方向引張応力を負荷し、ペレットの熱膨張による荷重負荷を模擬した。試験パラメーターは、ヒーター出力<sup>(注9)</sup> (kW/m)、保持時間 (min) 及び周方向引張応力<sup>(注10)</sup> (MPa) とした。

試料には、現在我が国の BWR において使用されている設計のうち、8x8 型又は 9x9A 型の被覆管を用いた。両者ともに材料は再結晶焼鈍処理を施した Zry-2 であり、被覆管の内表面に純 Zr のライナ (厚さ約 100  $\mu\text{m}$ ) が内張りされている。外径及びライナ層を含めた肉厚は、8x8 型が約 12.3 mm 及び約 860  $\mu\text{m}$ 、9x9A 型が約 11.2 mm 及び約 710  $\mu\text{m}$  である。試料は、商用炉で 5 サイクル使用した使用済 BWR 燃料集合体中から燃料棒を引き抜き、切断した後にペレットを除去することで作製した。試料の局所燃焼度は約 50~68 GWd/tU、水素濃度は約 100~230 ppm<sup>(注11)</sup>であった。9x9A 型試料については、更に水素添加処理を行ったものも供試材とした。なお、実現象模擬の観点からは、可能な限りこのような使用済燃料棒から採取した試料 (以下「照射材試料」という。) を用いることが望ましいが、取り扱いの困難さ、試験費用等の観点から自ずと試験数は限定されてしまう。そこで、一部の試験では、未使用の被覆管を用いた模擬材 (以下「未照射材試料」という。) も合わせて使用し、パラメトリックな試験を可能とすることで効率的な研究遂行を図った。未照射材試料は、あらかじめ水素濃度約 200~500 ppm まで水素添加した。水素添加は、試料を 290°C、1 mol/L の LiOH 水溶液に 1~2 時間程度浸漬し、被覆管表面を腐食することで行った。



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

図 2.2 異常過渡模擬試験装置の模式図

Fig. 2.2 Schematic diagram of the transient simulating test apparatus

(注9) 軽水炉の分野で一般に用いられる線出力密度と対応させるため、軸長当たりの出力とした。

(注10) 試験前の試料寸法及び薄肉円筒の式を用いて算出した。

(注11) 質量分率 ( $\mu\text{g/g}$ ) を表す。

## (1) 被覆管外表面に水素化物が析出する条件についての検討

水素原子が被覆管内面側から外面側へ熱拡散し、外表面において水素化物が析出するためには、一定以上の線出力及び拡散時間が必要であると考えられる。これについて調べるため、ヒーター出力 25-45 kW/m、保持時間 30-120 min、周方向引張応力 200MPa（ノミナル値）の条件で出力過渡を模擬した試験を実施した。試験後は試料中央（発熱部）を切断し、半径方向断面を観察することで被覆管外表面における半径方向水素化物析出の有無を確認した。また、切断位置の隣接部位からリング状試料を採取して水素濃度を測定した。試験条件及び試料の一覧を表 2.1 に示す。また、得られた試験データを基に水素の熱拡散挙動予測に必要な物性を算出し、それを用いて被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する条件を解析的に評価した。

試験中のヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略を図 2.3 に示す。中心ヒーターの線出力の上昇に伴い試料外表面温度は徐々に上昇し、同時に試料内部の加圧により周方向応力も上昇する。線出力、試料外表面温度及び周方向応力が所定の値に到達した後に、所定の時間、設定したヒーター出力を維持した。なお、試料外表面の温度は、圧力容器内の冷却水によりヒーター出力によらず約 288℃に冷却、保持される。したがって、ヒーター出力を大きくした場合は試料内表面の温度のみが上昇し（約 300-350℃）、結果として試料半径方向に生じる温度勾配、すなわち水素の熱拡散の駆動力が大きくなる。あらかじめ設定した時間の経過後はヒーター出力を 0 にし、試料内及び圧力容器内を脱圧した。このとき、圧力容器内の水温は常圧の沸点である 100℃に近づくため、試料は急冷される。

試験後の断面金相写真の例を図 2.4 に示す。当該試料(A15U1KYA8、水素濃度: 285 ppm) は、ヒーター出力 45 kW/m、周方向引張応力 200 MPa、保持時間 120 min の条件で試験を実施したものである。また、同図には試料下部の非発熱部の断面金相写真も併せて示した。非発熱部では被覆管半径方向の温度勾配がほぼ生じないため、当該部位における試験後の水素化物析出状態はおおむね試験前と同等であると考えられる。発熱部及び非発熱部の比較から、当初ライナ部、すなわち被覆管内面側に集積していた水素が熱拡散により被覆管外面側に移動し、半径方向の水素化物として析出したことが分かる。また、ノミナル周方向応力として 200 MPa があれば水素化物の半径方向への析出に十分であることがわかった。

以下、①で水素濃度、②でヒーター出力及び保持時間についてその影響を整理して試験結果概略を述べ、③において被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する条件の解析的な評価について述べる。

### ①水素濃度の影響

図 2.5 に、ヒーター出力、保持時間、周方向応力及び被覆管タイプがそれぞれ同一（45 kW/m、120 min、200 MPa 及び 9x9A 型照射材試料）で、水素濃度が異なる試料の試験後金

相写真の比較を示す。同図から、両試料とも被覆管外表面に水素化物が析出していることが分かる。両試料の水素濃度は 103 ppm 及び 261 ppm であり約 2.5 倍の差があった一方で、金相写真から求めた半径方向水素化物の最大長さ（以下「半径方向水素化物最大長さ」という。）は、それぞれ約 75  $\mu\text{m}$  及び約 100  $\mu\text{m}$  と水素濃度の差異ほどは大きくなかった。

Keans らの報告<sup>18</sup>によると、ジルコニウム合金の 288°C-320°Cにおける水素固溶限は、60.5 ppm-90.2 ppm である。熱拡散する水素は固溶しているもののみ、すなわち固溶限以下の水素のみである。両試料とも水素濃度は固溶限を超えていたことから、実質的に熱拡散に寄与する水素の量は両試料で同等だったと考えられる。外面側で水素化物の析出が始まると固溶水素が消費されるが、外面側での固溶限は 60.5 ppm であり、水素濃度 103 ppm の試料でも固溶水素の供給は十分であり、そのため両試料の水素濃度の差に反して半径方向水素化物最大長さに大きな違いが生じなかったものと考えられる。

また、水素濃度 261 ppm の試料では、試験後にライナ層に水素化物が残存している様子が観察された。そのため、内面側の局所水素濃度は、外面側のそれと比較して両試料で差が大きいと考えられる。言い換えれば、外面側の水素濃度は両試料で大きな差がない可能性があり、上述の観察結果と整合する。

以上より、ヒーター出力、保持時間が十分であり、十分な固溶水素の供給があれば被覆管外表面に半径方向水素化物が析出するものと考えられる。本試験の範囲では、ヒーター出力 45 kW/m、保持時間 120 min の条件であれば、水素濃度が少なくとも 100 ppm 程度であれば外表面に半径方向水素化物が析出した。なお、現在我が国で使われている燃料体の最大燃焼度における被覆管水素濃度は最大で 400 ppm 程度と報告されている<sup>19</sup>。したがって、水素濃度の観点では、実燃料においても過渡時に被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する可能性があると考えられる。

## ②保持時間及び線出力の影響

図 2.6～図 2.8 にヒーター出力一定（45 kW/m 又は 40 kW/m）で、保持時間の異なる試料の試験後金相写真の比較を示す。ここで、図 2.6 は未照射材試料、図 2.7 及び図 2.8 は照射材試料の結果である。保持時間が短い場合には被覆管外表面に半径方向水素化物が析出しないこと、半径方向水素化物析出後は保持時間が長くなるにつれて水素化物の長さ又は数が増加することがわかった。図 2.7 に示した 8x8 型照射材試料においては外面側に周方向水素化物も多く見られ、未照射材試料及び 9x9A 型の試料と比べて外表面での半径方向水素化物の析出が明瞭ではなかった。8x8 型照射材試料の水素濃度は約 220 ppm であり、試験温度における水素固溶限を超えている。そのため、試験前から外表面側に析出していた周方向水素化物は、試験中も一定程度固溶しきらずに残存しており、拡散した固溶水素がそれに沿う形で析出したことにより、外表面近傍での周方向水素化物が比較的多くなったことが原因のひとつとして考えられる。これらの試料では、外表面での半径方向水素化物の析出が不明瞭であったものの、保持時間が長い又は後述する線出力が高い試料では、

外表面において一定の周長さにわたって密に水素化物が析出している(以下「水素化物層」という。)ものが存在した。水素化物は金属母層と比べて脆いため<sup>3</sup>、このような水素化物層は引張加重負荷により破壊され、半径方向水素化物の場合と同様に初期亀裂となり得ると考えられる。本研究では 8x8 型照射材試料において試験後外表面水素化物層の厚さが 20 μm を超えるものについては、後述する図 2.13 において外表面における半径水素化物析出有りとして取り扱った。

図 2.9～図 2.12 に保持時間が同一 (120 min) で、ヒーター出力の異なる試料の試験後金相写真の比較を示す。ここで、図 2.9 及び図 2.10 は未照射材、図 2.11 及び図 2.12 は照射材の結果である。保持時間が 120 min であってもヒーター出力が小さい場合には被覆管外表面に半径方向水素化物が析出しないことがわかった。また、8x8 型照射材では明瞭ではないものの、全体としてヒーター出力が大きくなるにつれて水素化物の長さ又は数が増加する傾向にあることがわかった。

金相写真から判断した被覆管外面における半径方向水素化物析出有無のまとめを図 2.13 に示す。なお、①で述べたとおり、本試験の温度範囲においては水素濃度が 100ppm 程度あれば試験中の固溶水素の供給が十分になると考えられること、本試験の供試材は全て水素濃度が 100 ppm を超えていることを踏まえ、図 2.13 における整理では水素濃度を区別していない。8x8 型被覆管においてはヒーター出力が 40 kW/m と比較的高い値であっても、保持時間が 30 min 以下であれば被覆管外面における水素化物析出がないことがわかった。一方で、保持時間が 120 min と比較的長い場合には 8x8 型及び 9x9A 型共にヒーター出力が 35 kW/m で被覆管外面に水素化物が析出することがわかった。以上より、線出力の上昇を抑える又は事象継続時間を短くする等の対策により、外面割れ破損につながる被覆管外表面における水素化物析出を抑制できることがわかった。

### ③被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する条件の解析的な評価

本項目では、本試験で得られた結果を補足する意味も含め、被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する条件を解析的に評価した。Sawatzky<sup>20</sup>によると、1次元体系における温度勾配下での Zry-2 中の固溶水素の拡散流  $J$  は、

$$J = -\frac{DC}{RT} \left( RT \frac{d \ln C}{dx} + \frac{Q^*}{T} \frac{dT}{dx} \right) \dots\dots\dots (2.1)$$

と表される。ここで、 $D$  は水素の拡散係数 (cm<sup>2</sup>/s)、 $C$  は固溶水素濃度 (ppm)、 $Q^*$  は輸送熱 (kJ/mol)、 $R$  は気体定数 (cal/mol・K)、 $T$  は絶対温度 (K) である。このうち未知であるのは  $D$ 、 $C$  及び  $Q^*$  である。本研究では、 $D$  は Sawatzky<sup>20</sup> により報告された値を用いた。 $C$  は①で述べたとおり、水素濃度が十分であれば当該温度における固溶限に一致していると考えられる。そのため、本研究では Zry-2 については旧原子力安全基盤機構により取得された値<sup>21</sup>を、ライナ部の純 Zr については Une ら<sup>22</sup>により報告されている値を用いた。 $Q^*$ については、以下のとおり、本試験で得られた試験結果からその値を算出した。

被覆管の内径、外径 (mm) 及び熱伝導率 (m・K) をそれぞれ  $d_i$ 、 $d_o$ 、 $\lambda$  とすると、内外面温度差  $\Delta T$  及び線出力  $Q$  の関係は次式で与えられる。

$$\Delta T = \frac{Q}{2\pi\lambda} \ln \frac{d_o}{d_i} \dots\dots\dots (2.2)$$

十分に時間が経過して平衡状態に達して  $J=0$  となる場合には、式(2.1)より、

$$\frac{d(\ln C)}{d(1/T)} = \frac{Q^*}{R} \dots\dots\dots (2.3)$$

となる。外面温度を  $T_o$ 、外面の固溶水素濃度を  $C_o$ 、内面の固溶水素濃度を  $C_i$  とすると、式(2.2)から、

$$C_i = C_o \exp\left(-\frac{Q^*}{R} \frac{\Delta T}{T_o(T_o + \Delta T)}\right) \dots\dots\dots (2.4)$$

となる。水素濃度が十分な場合には、平衡状態で内面における固溶水素濃度が内面温度における水素の固溶限 (TSSD) <sup>(注12)</sup> になるとすると、外面における固溶水素濃度は式(2.4)から計算される。これが TSSP 以上になる場合に被覆管外面で水素化物の析出が始まると考えられ、式(2.2)及び式(2.4)から水素化物の析出が始まるために必要な  $Q^*$  及び  $Q$  の関係が求められる。本試験の条件から、ヒーター出力にかかわらず外面温度が 296 °C (569 K) であるとした場合の  $Q^*$  及び  $Q$  の関係を図 2.14 に示す。なお計算には未照射材の試験データを用い、 $d_o$  及び  $d_i$  は、8x8 型試料はそれぞれ 12.27 mm 及び 10.55 mm、9x9A 型試料は 11.18 mm 及び 9.76 mm とした。また、計算を単純にするため、被覆管は全て Zry-2 で構成されているとして扱い、熱伝導率  $\lambda$  は本試験の温度範囲では変動が 2%程度と少ないため 320°C の値 (16.4W/mK) で代表した。9x9A 型及び 8x8 型の被覆管において外面近傍で半径方向水素化物が析出するために必要な線出力がそれぞれ 30~35 kW/m 及び 25~30 kW/m であるとする (図 2.13)、それらの条件を満足する  $Q^*$  の範囲は約 48-60 kJ/mol である。なお、本研究の以降の解析では、58 kJ/mol を  $Q^*$  の値として用いた。

次に、式(2.1)に示される拡散方程式にしたがって水素が再分布するとし、Takagi ら <sup>23</sup> によって示された析出、溶解モデルを基にして肉厚方向 1 次元に対して水素濃度分布の時間推移を計算し、外表面における水素濃度が TSSP を超えた時点を析出開始時間とした。算出した析出までの時間を線出力に対してプロットしたものを図 2.15 に示す。これにより、線出力が与えられた場合に析出に要する時間を把握することができる。なお、水素濃度は照射まま材のデータを用いて 8x8 型は 230 ppm、9x9A 型は 150 ppm とし、その初期分布は、金相写真の画像解析により水素化物の濃淡を分析し、その濃淡が水素濃度分布に相当するとして設定した (図 2.16)。

表 2.1 供試材及び試験条件一覧(1)

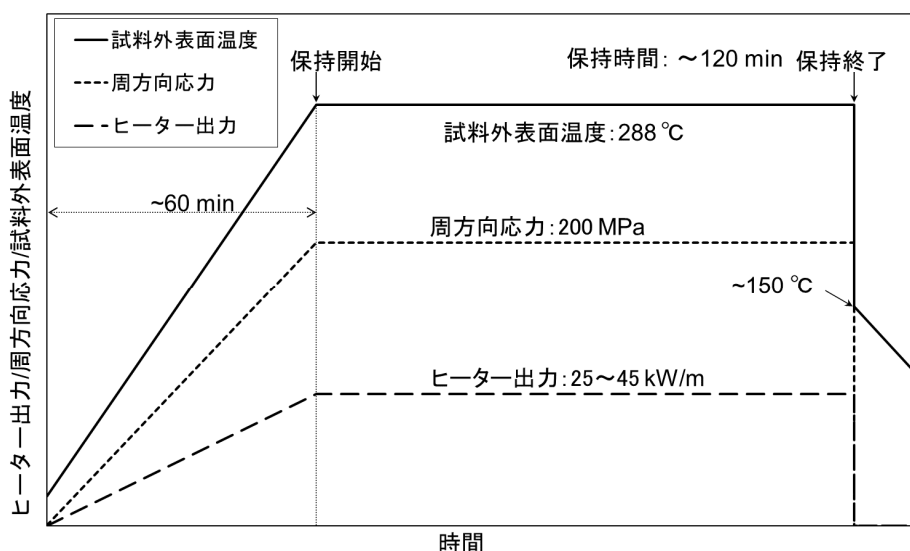
<sup>(注12)</sup> ジルコニウム及びジルコニウム合金中の水素の固溶限には降温時と昇温時とで差が生じるヒステリシスが生じる。TSSD (Terminal Solid Solubility for Dissolution)は昇温時の固溶限を、TSSP (Terminal Solid Solution for Precipitation)は降温時の固溶限を示している。

Table 2.1 List of samples and test conditions (1)

試料 タイプ	試料番号	燃焼度 (GWd/tU)	水素 濃度 (ppm)	ヒーター 出力 (kW/m)	周方向 引張応力 (MPa)	保持 時間 (min)	備考
未照射材 試料 (8x8 型)	A15U1KYA1	—	435	40	200	30	水素添加
	A15U1KYA2	—	401	40	200	60	水素添加
	A15U1KYA3	—	402	40	200	90	水素添加
	A15U1KYA4	—	425	40	200	120	水素添加
	A15U1KYA5	—	339	25	200	120	水素添加
	A15U1KYA6	—	428	30	200	120	水素添加
	A15U1KYA7	—	368	35	200	120	水素添加
	A15U1KYA8	—	285	45	200	120	水素添加
照射材 試料 (8x8 型)	A15C1KYF8	49.8	208	45	400	120	照射まま
	A15C1KYF9	58.7	216	40	200	120	照射まま
	A15C1KYG0	59.7	220	40	200	30	照射まま
	A15C1KYG1	59.8	225	40	200	60	照射まま
	A15C1KYG2	59.8	229	40	200	90	照射まま
	A15C1KYG3	60.1	231	25	200	120	照射まま
	A15C1KYG4	59.9	231	30	200	120	照射まま
	A15C1KYG5	59.3	231	35	200	120	照射まま
A15C1KYG6	58.8	231	45	200	120	照射まま	
未照射材 試料 (9x9A 型)	A15U2KYB1	—	519	30	200	120	水素添加
	A15U2KYB2	—	491	35	200	120	水素添加
	A15U2KYB3	—	536	40	200	120	水素添加
	A15U2KYB4	—	512	45	200	120	水素添加
照射材 試料 (9x9A 型)	A15C3KY21	68.1	103	45	200	120	照射まま
	A15C3KY25	67.4	253	45	200	30	水素添加
	A15C3KY28	59.6	264	45	200	60	水素添加
	A15C3KY29	65.2	261	45	200	120	水素添加
	A15C3KY31	66.2	249	45	400	120	水素添加
	A15C3KY56	66.8	269	35	200	120	水素添加
	A15C3KY57	66.4	301	30	200	120	水素添加

出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

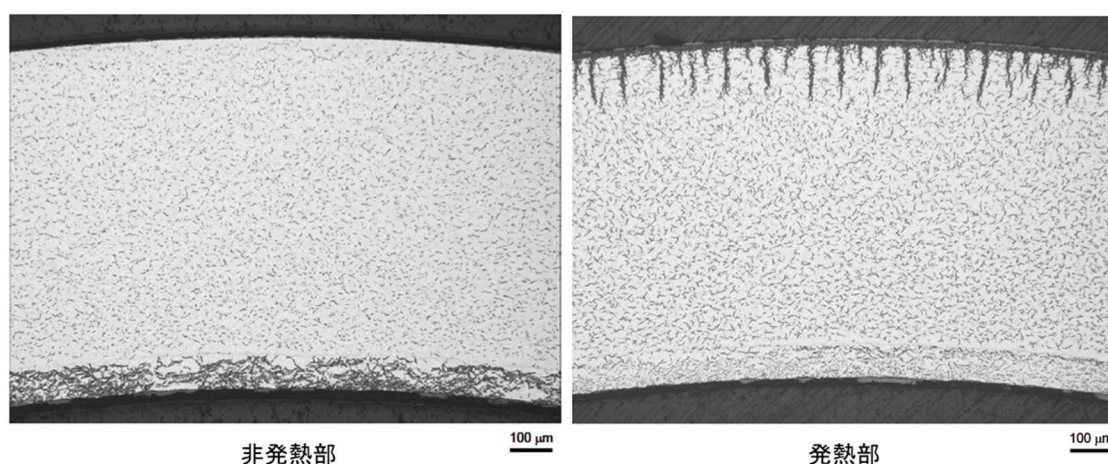
独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24)</sup>



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

図 2.3 ヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略(1)

Fig. 2.3 Schematic diagram of time vs heater power, temperature of sample outer surface and hoop stress (1)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

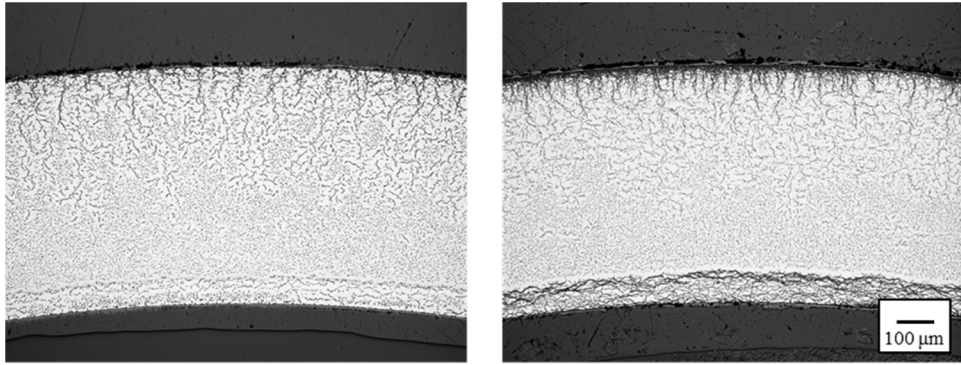
図 2.4 水素熱拡散後の試料の金相写真例 (試料番号 : A15U1KYA8)

(8x8 型未照射材試料、ヒーター出力:45 kW/m、周方向応力:200 MPa、保持時間:120 min)

Fig. 2.4 Example of metallographs of a sample after hydrogen thermal diffusion. (Sample ID: A15U1KYA8)

(unirradiated 8x8, heater power: 45 kW/m, hoop stress: 200 MPa, holding period: 120 min)





水素濃度：103 ppm

水素濃度：261 ppm

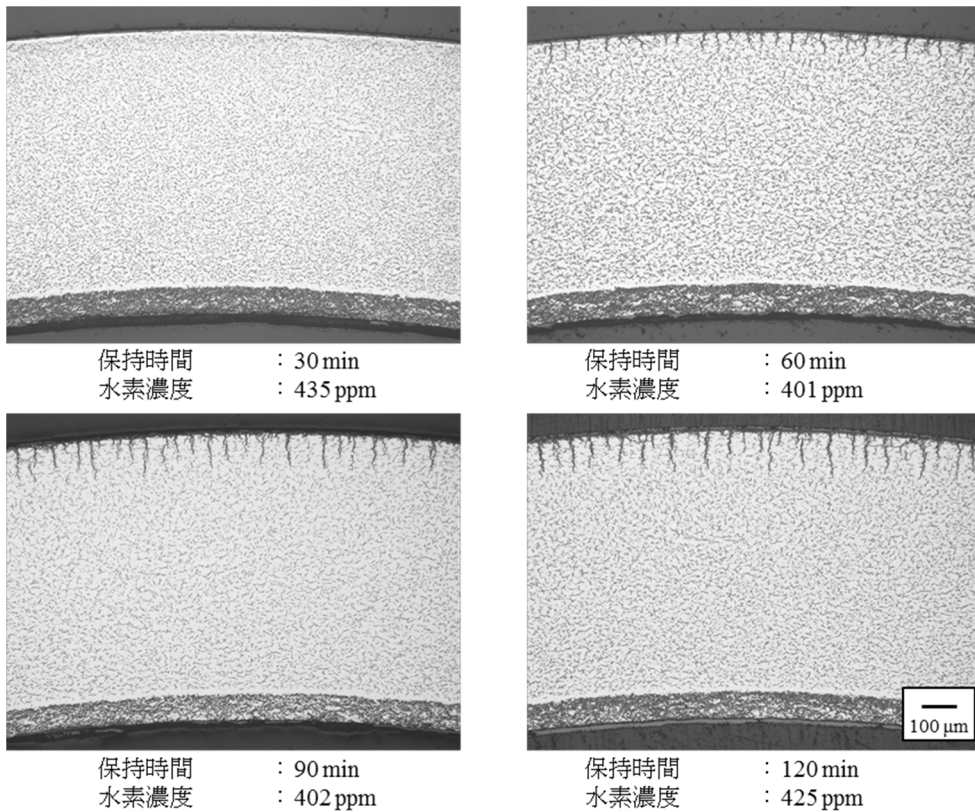
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.5 水素濃度が異なる試料の試験後金相写真の比較

(9x9A 型照射材試料、ヒーター出力:45 kW/m、周方向応力:200 MPa、保持時間:120 min)

Fig. 2.5 Comparison of post-test metallographs of the samples with different hydrogen contents

(irradiated 9x9A, heater power: 45 kW/m, hoop stress: 200 MPa, holding period: 120 min)



保持時間 : 30 min  
水素濃度 : 435 ppm

保持時間 : 60 min  
水素濃度 : 401 ppm

保持時間 : 90 min  
水素濃度 : 402 ppm

保持時間 : 120 min  
水素濃度 : 425 ppm

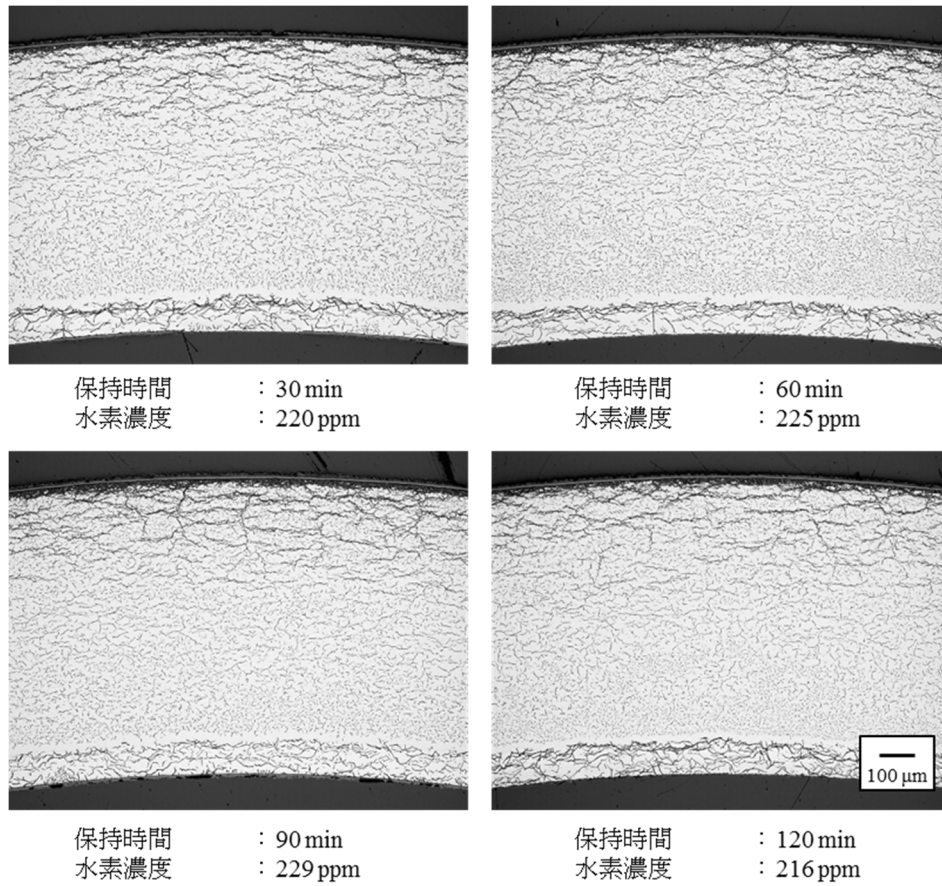
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17</sup>

図 2.6 保持時間が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(1)

(8x8 型未照射材試料、ヒーター出力:40 kW/m)

Fig. 2.6 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (1)

(unirradiated 8x8, heater power: 40 kW/m)



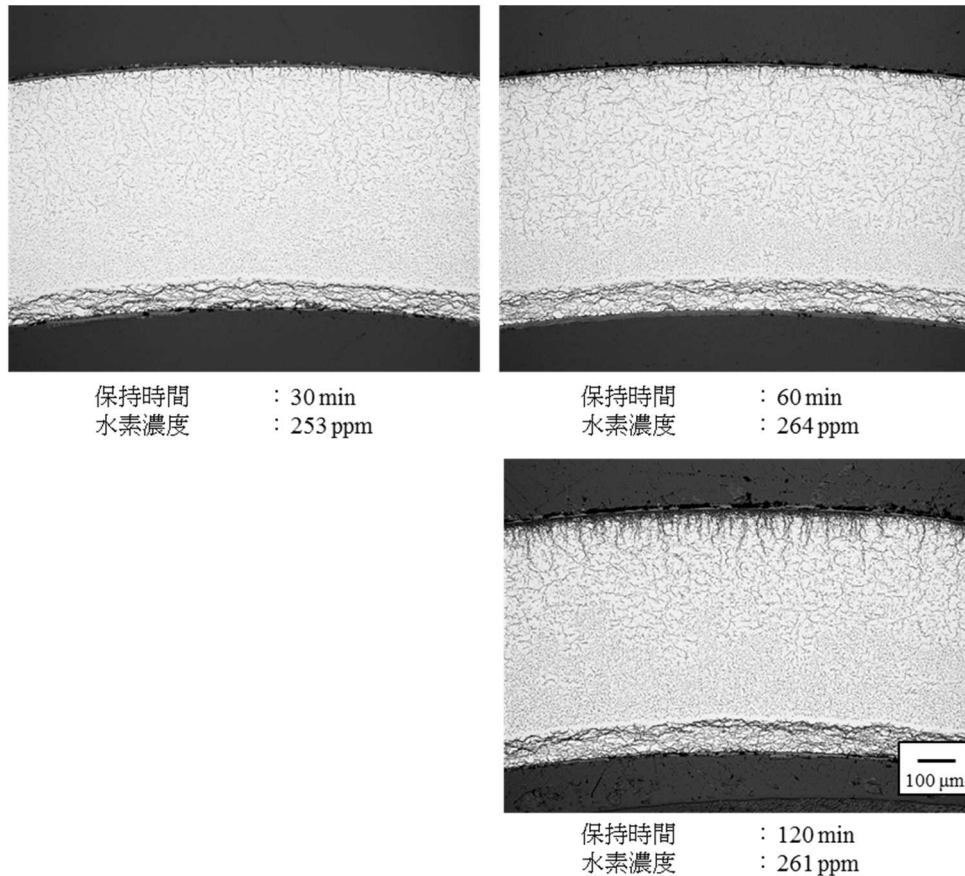
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

図 2.7 保持時間が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(2)

(8x8 型照射材試料、ヒーター出力:40 kW/m)

Fig. 2.7 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (2)

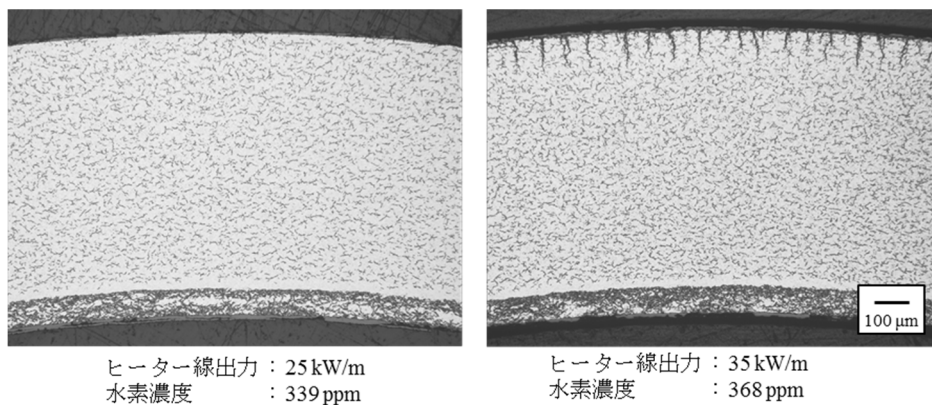
(irradiated 8x8, heater power: 40 kW/m)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.8 保持時間が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(3)  
(9x9A 型照射材試料、ヒーター出力:45 kW/m)

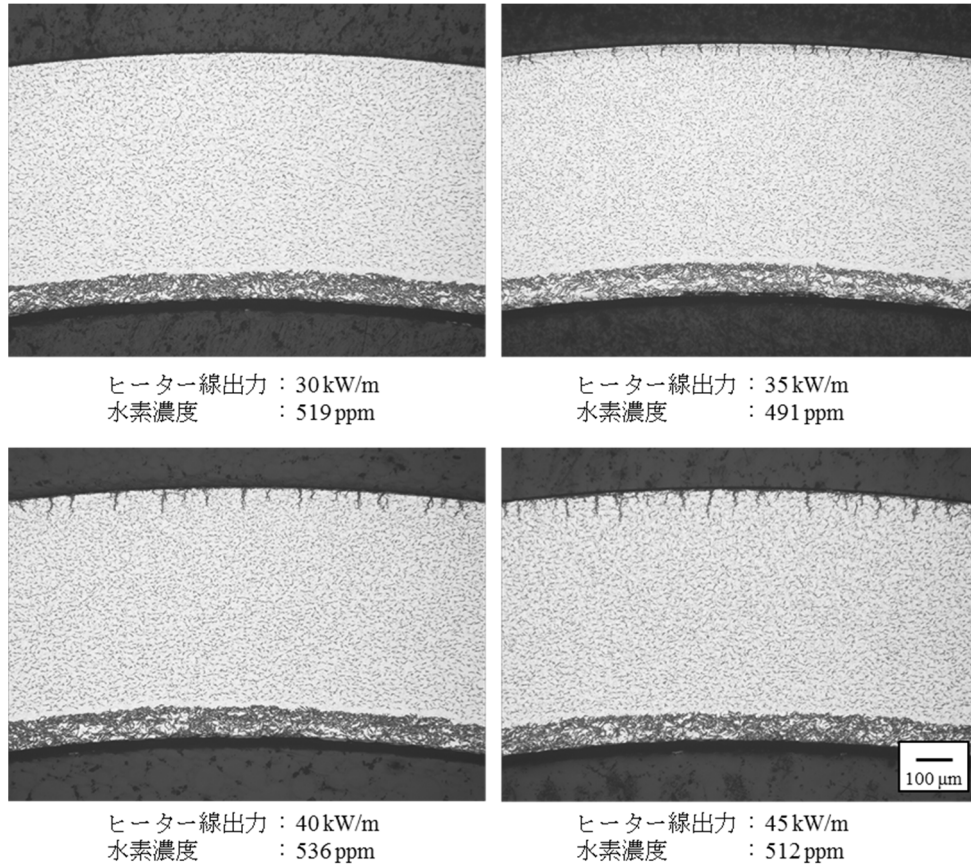
Fig. 2.8 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (3)  
(irradiated 9x9A, heater power: 45 kW/m)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17</sup>

図 2.9 ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(1)  
(8x8 型未照射材試料、保持時間: 120 min)

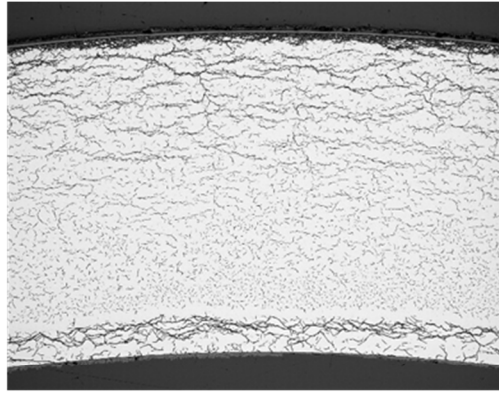
Fig. 2.9 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (1)  
(unirradiated 8x8, holding period: 120 min)



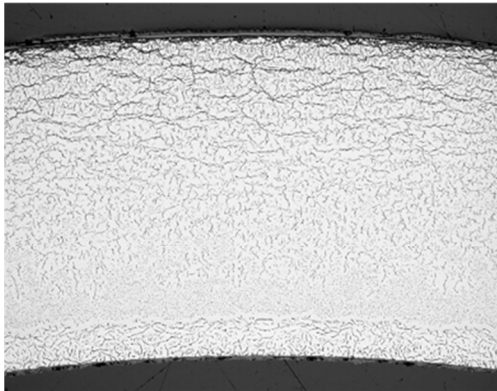
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

図 2.10 ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(2)  
 (9x9A 型未照射材試料、保持時間: 120 min)

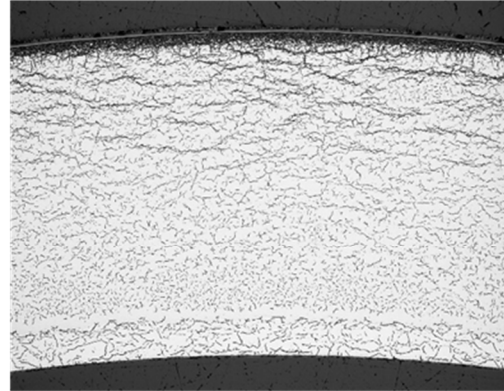
Fig. 2.10 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (2)  
 (unirradiated 9x9, holding period: 120 min)



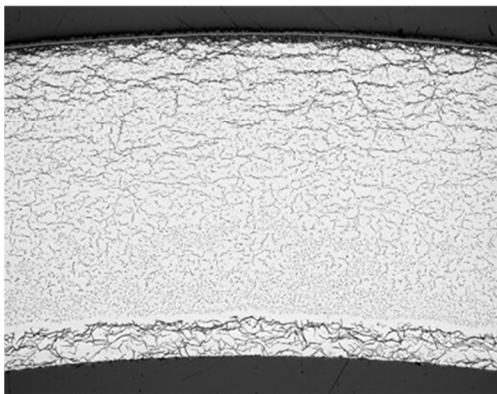
ヒーター線出力 : 25 kW/m  
水素濃度 : 231 ppm



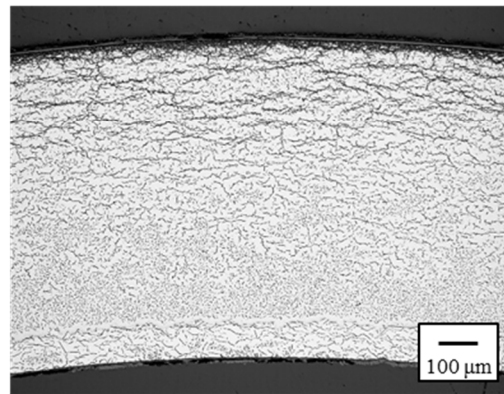
ヒーター線出力 : 30 kW/m  
水素濃度 : 231 ppm



ヒーター線出力 : 35 kW/m  
水素濃度 : 231 ppm



ヒーター線出力 : 40 kW/m  
水素濃度 : 216 ppm

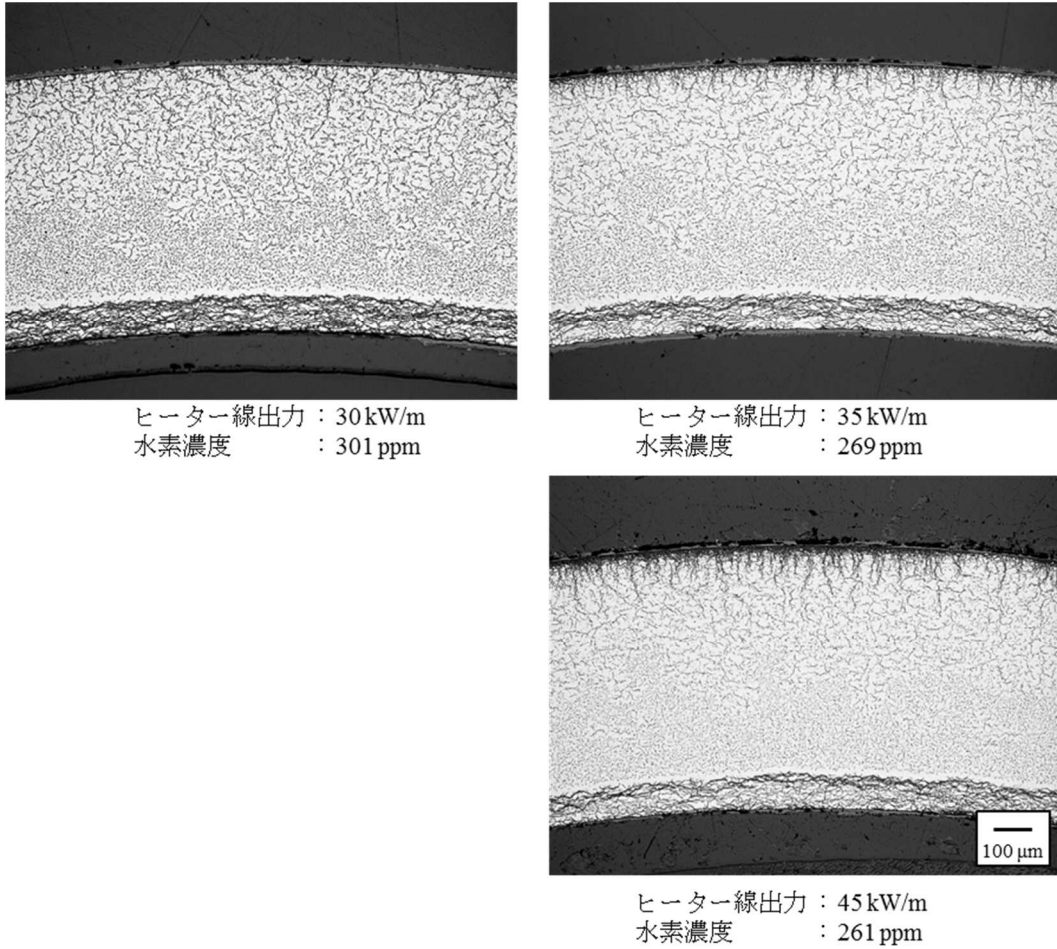


ヒーター線出力 : 45 kW/m  
水素濃度 : 231 ppm

出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

図 2.11 ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(3)  
(8x8 型照射材試料、保持時間: 120 min)

Fig. 2.11 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (3)  
(irradiated 8x8, holding period: 120 min)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.12 ヒーター出力が水素拡散・析出挙動に及ぼす影響の比較(4)  
 (9x9A 型照射材試料、保持時間: 120 min)

Fig. 2.12 Comparison of an effect of holding period on diffusion and precipitation behavior (4)  
 (irradiated 9x9A, holding period: 120 min)

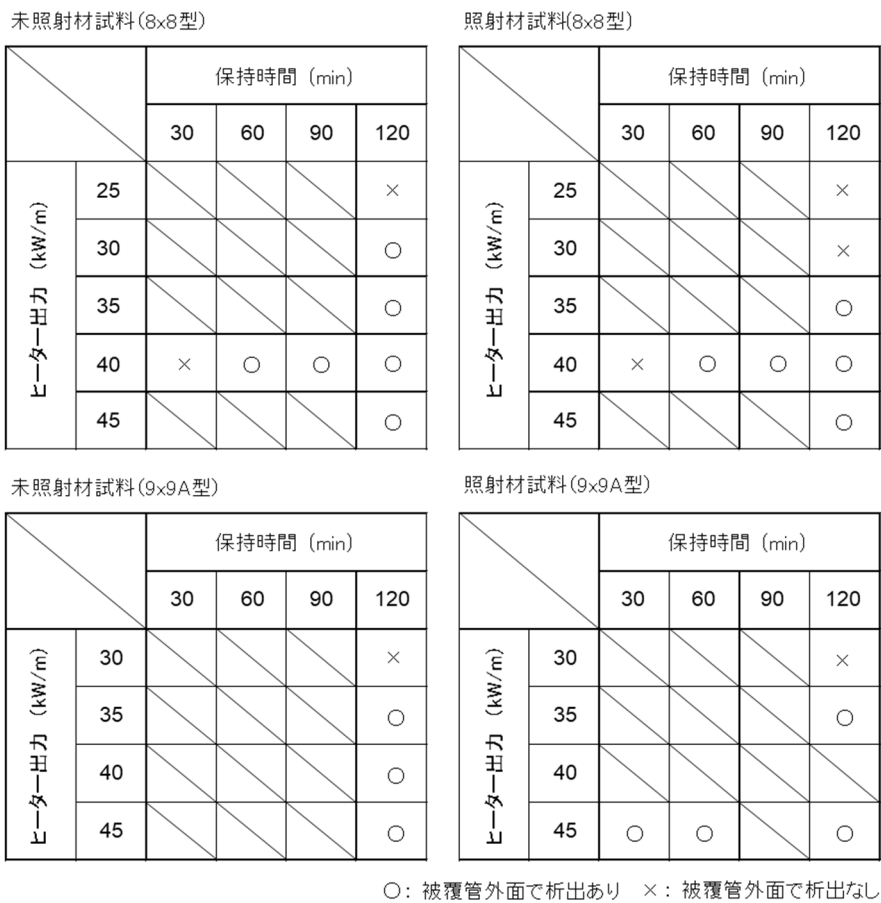


図 2.13 被覆管外面における半径方向水素化物析出有無のまとめ

Fig. 2.13 Summary showing radial hydrides precipitated at cladding outer surfaces or not

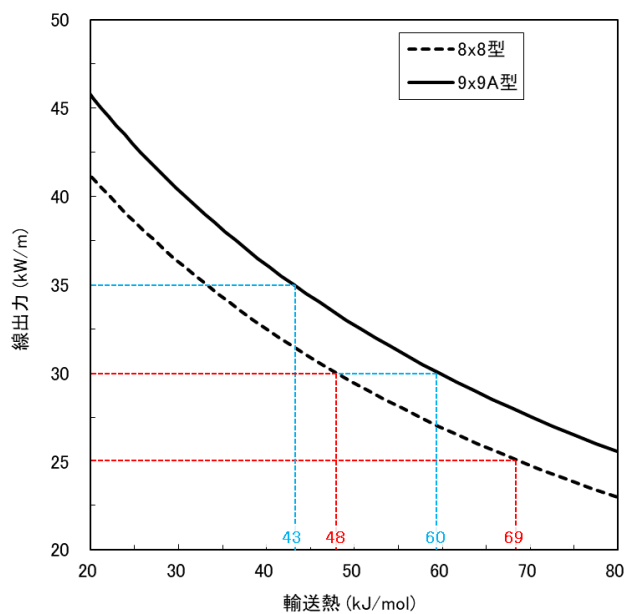
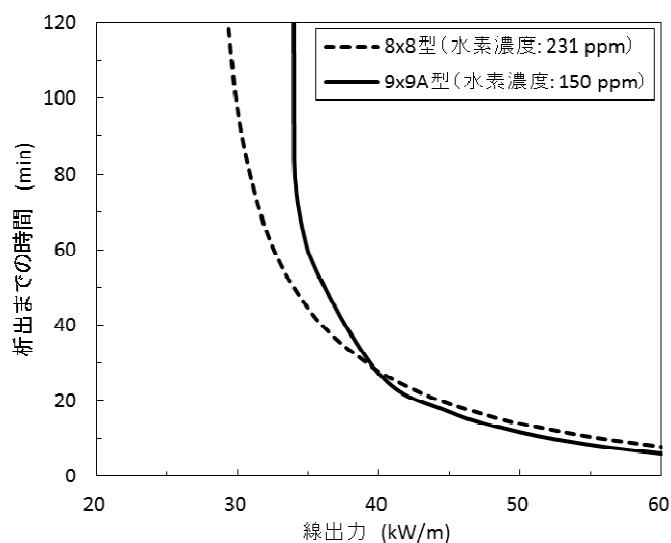


図 2.14 輸送熱及び線出力の関係

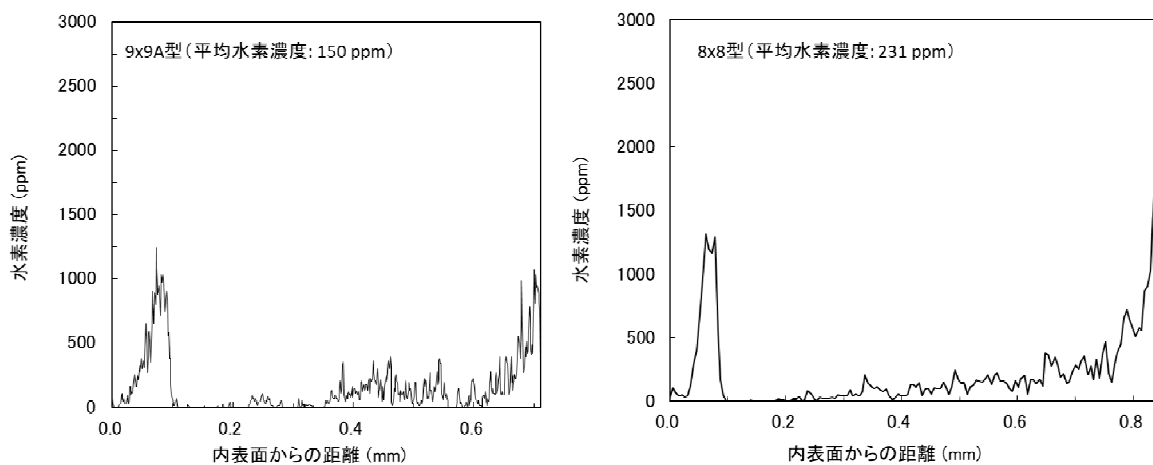
Fig. 2.14 Relationship between heat of transfer and linear heat rate



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.15 外表面での半径方向水素化物析出に要する時間と線出力の関係

Fig. 2.15 Relationship between time to radial hydride precipitation at outer surface and linear heat rate



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.16 金相写真の画像解析により求めた初期水素濃度分布

Fig. 2.16 Initial distributions of hydrogen content obtained from image analyses on metallographs

## (2) 析出した半径方向水素化物が破壊し初期亀裂となる条件についての検討

析出した半径方向水素化物が破壊し初期亀裂となるためには、被覆管外表面に一定以上の引張応力が負荷される必要があると考えられる。その条件について検討するため、(1)で得られた被覆管外表面に半径方向水素化物が析出するヒーター出力、保持時間を満たしつつ、周方向引張応力を変化させ、試料外面における亀裂発生の有無を確認した。具体的に



は、ヒーター出力 25-45 kW/m、保持時間 120 min、周方向引張応力 550-730 MPa（ノミナル値）の条件で出力過渡を模擬した試験を実施した。ただし、保持時間内に試料の破損、すなわち亀裂進展による肉厚貫通に対応する減圧が確認された場合は、その時点で試験を終了した。試験中のヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略を図 2.17 に示す。また、供試材及び試験条件の一覧を表 2.2 に示す。

ここで、上記で述べた試験条件としての応力は、一様材料で構成されていると仮定した上で薄肉円筒の式で算出した平均の値であり、試験中の熱応力の効果や Zr ライナの降伏の影響を考慮していない。そのため、汎用有限要素法解析ソフトウェアである ANSYS 12.0 を用いてそれらを考慮した場合の被覆管外表面における周方向応力を計算し<sup>25</sup>、以降の結果整理に用いた。（以下「外表面周方向引張応力」という。）

試験中に破損した試料の試験後外観、破損部断面金相写真及び破面 SEM 写真の例を図 2.18、図 2.19 及び図 2.20 に示す。当該試料（A15C3KY43、水素濃度: 281 ppm）は、ヒーター出力 35 kW/m、外表面周方向引張応力 669 MPa の条件で試験を実施したものであり、設定出力到達後 75 分で破損した。なお、本試料は試験後の外観からは外径増加が観察されず、したがって周方向歪も小さかったものと考えられる。本試験において破損した試料は共通して以下の特徴が観察された。

- ① 応力一定の条件で破損に至った。
- ② 周方向塑性歪が 0.4%以下と小さい値を示した。
- ③ 被覆管外表面に半径方向水素化物の析出又は水素化物の偏析が観察された（例：図 2.19）。
- ④ 亀裂が外表面-肉厚 2 分の 1 から 3 分の 2 程度までは半径方向に進展し、その後 45° 方向に進展していた（例：図 2.19）。
- ⑤ 破面観察（例：図 2.20）から、半径方向に進展した亀裂からは水素化物のへき開面（領域 a~c に見られる平滑な破面であり、脆性的な特徴を示す。）が観察され、DHC による亀裂進展が示唆された。また、45° 方向に進展した亀裂からはディンプル（領域 d に見られるカップ状のくぼみであり、延性的な特徴を示す。）も観察され、不安定破壊が示唆された。

これらの特徴は出力急昇試験において観察された外面割れ破損の特徴と一致している。また、一部の破損した試料においては貫通亀裂以外にも被覆管外表面に未貫通亀裂が観察された（例：図 2.21）。以上から、本試験における試料破損は外面割れ破損と同様のメカニズムで発生した、すなわち、外表面に析出した水素化物の破壊により初期亀裂が発生し、その先端に応力が集中することにより DHC が生じて亀裂が肉厚の相当部まで進展し、最終的には延性-脆性の混在した不安定破壊に至ったものと考えられ、本試験は現象を良く模擬できていたと判断できる。

一方で、比較的低い応力条件で試験を実施した試料は非破損であった。非破損試料の試験後外観及び発熱部中央の断面金相写真の例を図 2.22 及び図 2.23 に示す。非破損試料で

は、外表面に半径方向水素化物が明瞭に観察されたものの、未貫通の亀裂は観察されなかった。それらの試験においては外表面の水素化物の破壊に必要な周方向引張応力が負荷されなかったことが原因であると考えられる。なお、初期亀裂が発生した試料は全て破損に至った、すなわち亀裂が被覆管肉厚を貫通するまで進展していたことから、本試験における保持時間は DHC による亀裂貫通に対して十分長いと考えられる。低い応力条件においては、外表面に半径方向水素化物が析出しておりかつ十分長い時間出力を保持したものの非破損であったことから、初期亀裂の発生及びそれによる亀裂先端への応力集中が外面割れ破損に必要なプロセスと考えられる。また、以上を言い換えれば、本試験では初期亀裂が発生した試料は破損に至り、初期亀裂が発生しなかった試料は非破損であったことから、試料の破損/非破損から初期亀裂発生の有無を判断してよいと考えられる。

図 2.24 に本試験における破損/非破損マップを示す。ヒーター出力 45 kW/m 及び外表面周方向応力 655 MPa の条件（試料番号: A15C1KYH7）では破損（所定出力到達後 94 分）、ヒーター出力 40 kW/m 及び外表面周方向引張応力 652 MPa の条件（試料番号: A15C1KYJ1）では非破損であったことから、外表面周方向引張応力 650 MPa 近辺に初期亀裂発生有無に対応する応力しきい値が存在すると考えられる。なお、両者でヒーター出力は異なり、それに起因して被覆管内に負荷される熱応力にも差が生じるが、その影響は FEM による外表面周方向引張応力の評価中で考慮している。

表 2.2 供試材及び試験条件一覧(2)

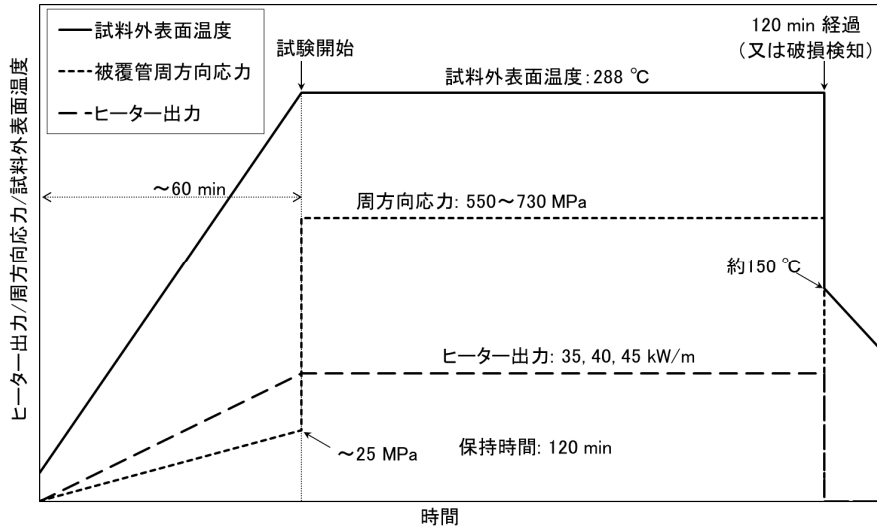
Table 2.2 List of samples and test conditions (2)

試料番号	試料 タイプ	試料 燃焼度 (GWd/t)	水素 濃度 (ppm)	ヒーター 出力 (kW/m)	公称 周方向 引張応力 (MPa)	外表面 周方向 引張応力* (MPa)	試験終了 までの 時間 (min)	破断の 有無
A15C1KYH7	8x8 型 照射材	53.9	169	45	700	655	94	破断
A15C1KYJ1		59.2	239	40	700	652	120	未破断
A15C1KYJ9		56.9	212	35	700	648	120	未破断
A15C1KYH8		58.4	196	35	750	701	34	破断
A15C1KYH0		58.6	220	45	650	609	120	未破断
A15C1KYH1		57.8	205	40	750	705	26	破断
A15C1KYH2		56.5	193	45	750	708	15	破断
A15C1KYE7		55.7	141	45	700	655	84	破断
A15C3KY41	9x9A 型 照射材	66.2	295	40	600	565	120	未破断
A15C3KY42		67.3	266	40	700	672	53	破断
A15C3KY43		68.0	281	35	700	669	75	破断
A15C3KY44		68.7	280	45	600	567	120	未破断
A15C3KY45		67.9	258	45	700	675	28	破断
A15C3KY85		65.9	100	45	700	675	39	破断
A15C3KY32		66.2	273	45	730	705	28	破断
A15C3KY38		65.8	294	40	730	703	51	破断
A15C3KY47		66.8	103	45	700	675	50	破断
A15C3KY55		67.4	101	40	730	706	91	破断
A15C3KY86	65.8	100	45	670	644	71	破断	

\* : FEM による解析値

出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

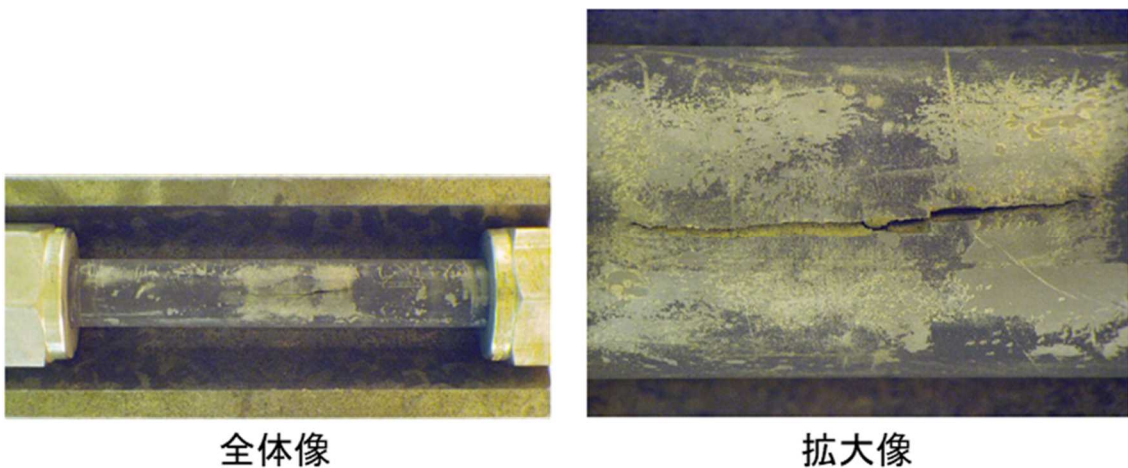
独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.17 ヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略(2)

Fig. 2.17 Schematic diagram of time vs heater power, temperature of sample outer surface and hoop stress (2)



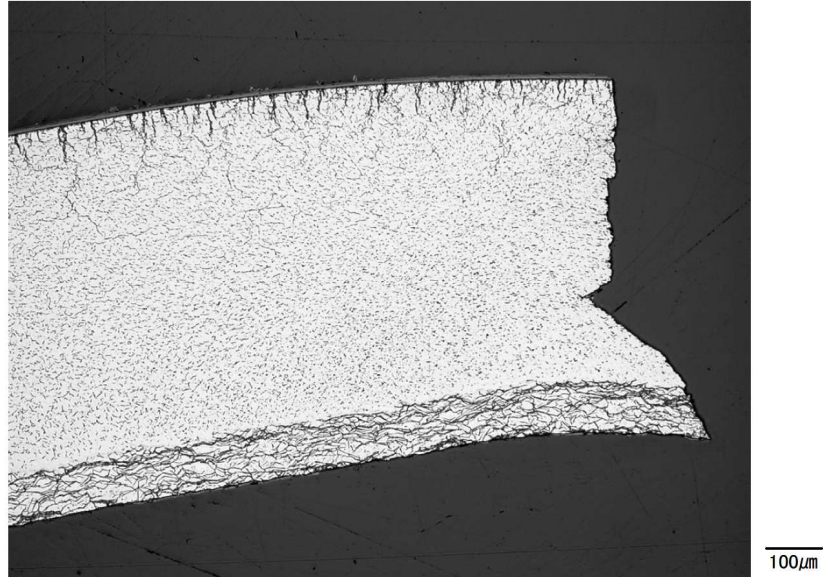
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.18 破損試料の試験後外観の例

(試料番号: A15C3KY43、水素濃度: 281 ppm、ヒーター出力 35 kW/m、周方向引張応力 700 MPa)

Fig. 2.18 Example of an appearance of a post-test failed sample

(Sample ID: A15C3KY43, hydrogen content: 281 ppm, heater power: 35 kW/m, hoop stress: 700 MPa)



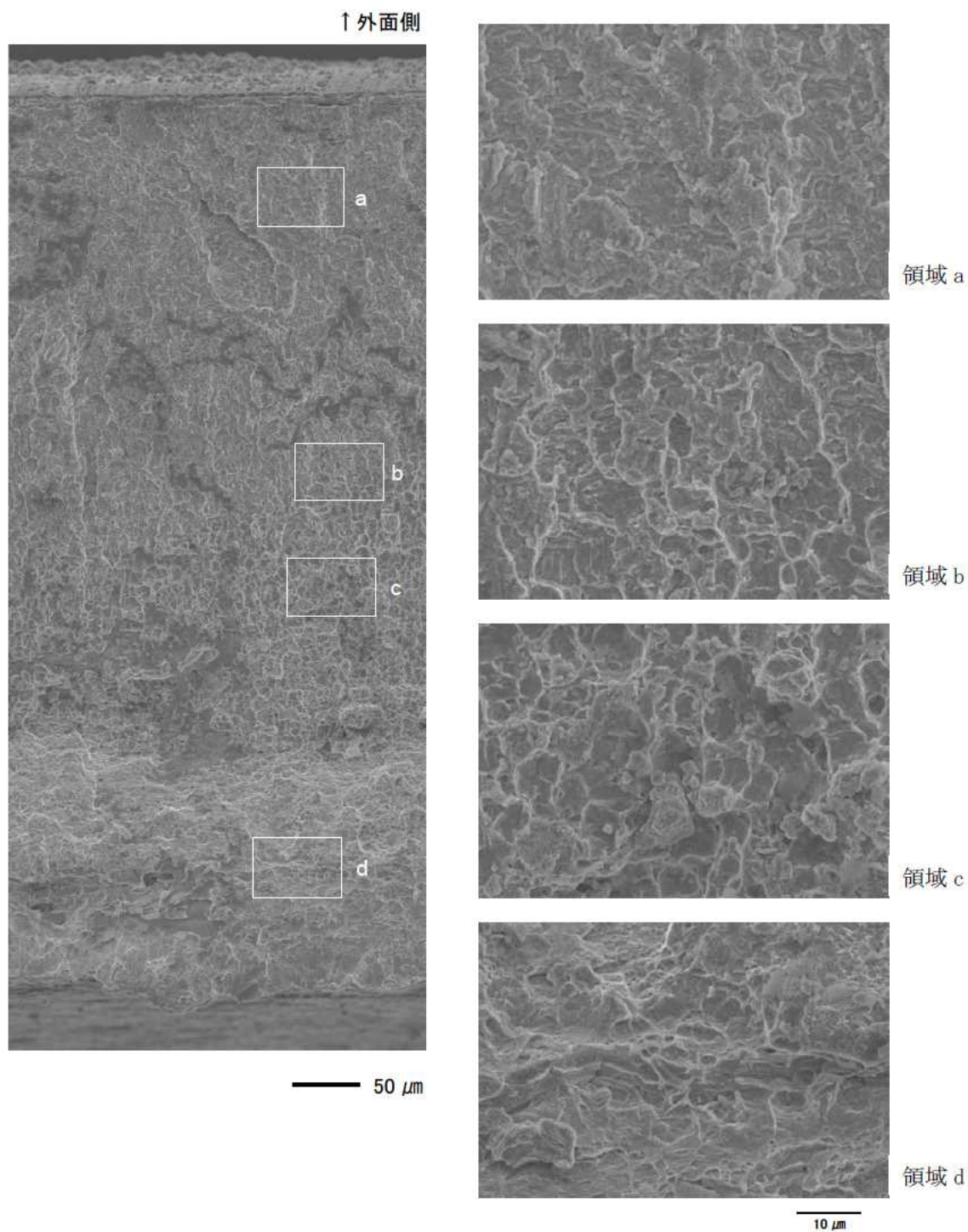
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.19 破損部断面金相写真の例

(試料番号: A15C3KY43、水素濃度: 281 ppm、ヒーター出力 45 kW/m、周方向引張応力 700 MPa)

Fig. 2.19 Example of a transversal metallograph at failure part

(Sample ID: A15C3KY43, hydrogen content: 281 ppm, heater power: 45 kW/m, hoop stress: 700 MPa)



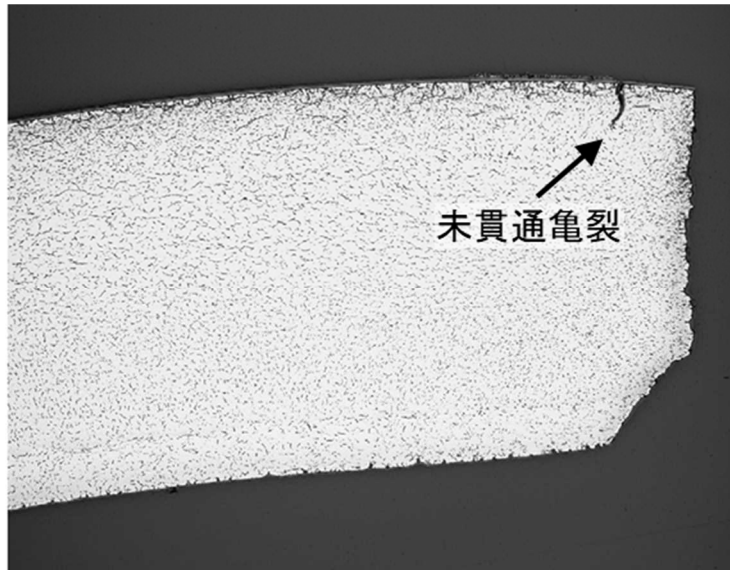
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.20 破断面の SEM 写真の例

(試料番号: A15C3KY43、水素濃度: 281 ppm、ヒーター出力 35 kW/m、周方向引張応力 700 MPa)

Fig. 2.20 Example of SEM images on a fracture surface

(Sample ID: A15C3KY43, hydrogen content: 281 ppm, heater power: 35 kW/m, hoop stress: 700 MPa)



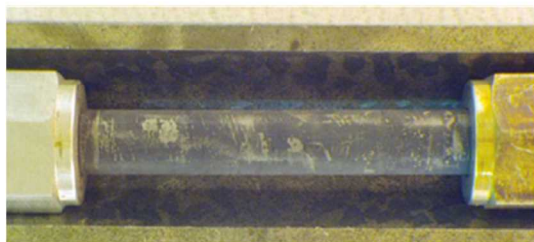
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.21 破損部近傍における未貫通亀裂の例

(試料番号: A15C3KY86、水素濃度: 281 ppm、ヒーター出力 35 kW/m、周方向引張応力 700 MPa)

Fig. 2.21 Example of a non-penetrating crack around a failure part

(Sample ID: A15C3KY86, hydrogen content: 281 ppm, heater power: 35 kW/m, hoop stress: 700 MPa)



全体像



拡大像

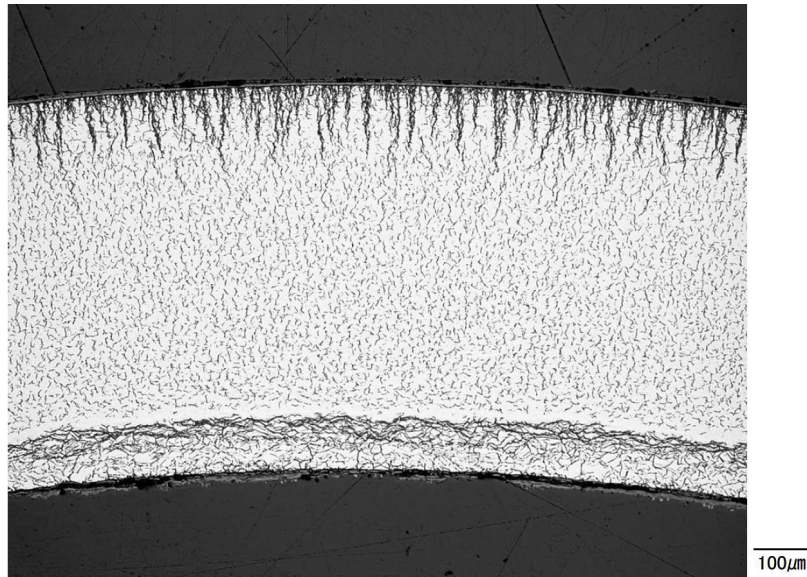
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.22 非破損試料の試験後外観の例

(試料番号: A15C3KY44、水素濃度: 280 ppm、ヒーター出力: 45 kW/m、周方向引張応力 600 MPa)

Fig. 2.22 Example of an appearance of a post-test non-failed sample

(Sample ID: A15C3KY44, hydrogen content: 280 ppm, heater power: 45 kW/m, hoop stress: 600 MPa)



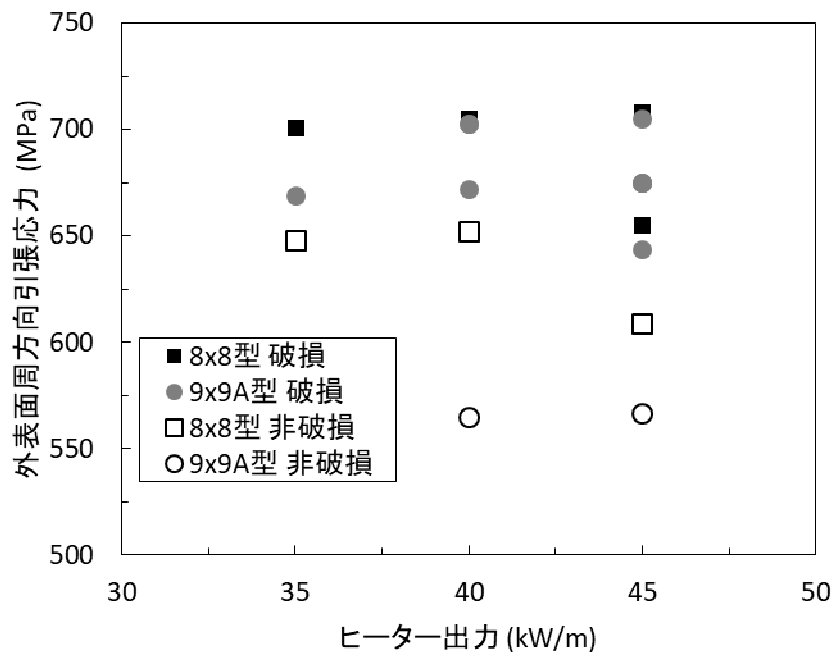
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.23 非破損試料の試験後断面金相写真の例

(試料番号: A15C3KY44、水素濃度: 280 ppm、ヒーター出力: 45 kW/m、周方向引張応力 600 MPa)

Fig. 2.23 Example of a transversal metallograph of post-test non-failed sample

(Sample ID: A15C3KY44, hydrogen content: 280 ppm, heater power: 45 kW/m, hoop stress: 600 MPa)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.24 ヒーター出力及び外表面周方向引張応力で整理した破損/非破損マップ

Fig. 2.24 Failure/non-failure map by a plot of heater power and hoop stress at outer surface



### (3)亀裂が進展し肉厚貫通に至る条件についての検討

被覆管外表面に初期亀裂が発生した後に亀裂が肉厚貫通に至るまでの時間等を評価するためには、亀裂進展のしきい応力や亀裂進展速度に関する情報が必要である。これらについて調べるため、外表面にあらかじめ初期亀裂（以下「予亀裂」という。）を導入した被覆管試料を用いてヒーター出力 20-45 kW/m、保持時間 30 min、周方向引張応力 200-400 MPa（ノミナル値）の条件で出力過渡を模擬した試験を実施した。ただし、保持時間内に試料の破損、すなわち亀裂進展による肉厚貫通に対応する減圧が確認された場合は、その時点で試験を終了した。試験中のヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略を図 2.25 に示す。また、供試材及び試験条件の一覧を表 2.3 に示す。試験後は破面を SEM 等により観察し、亀裂進展量等を調べた。

予亀裂の導入は、Sakamoto らにより報告された手法<sup>26</sup>に倣い、被覆管外表面に腐食性溶液（ヨウ素メチルアルコール溶液）を塗布した後、同位置に周期的圧縮荷重を負荷することで行った。また、予亀裂は図 2.26 に示すように、中心ヒーターの発熱部に対向する試験片部分（以下「発熱部」という。）及び非発熱部に対向する試験片部分（以下「非発熱部」という。）にそれぞれ 2 箇所ずつ導入した。非発熱部も試験中は被覆管外表面温度が発熱部と同様に約 288°C に保たれているため、両者の試験結果と比較することで温度勾配が亀裂進展に及ぼす影響を調べることができる。なお、後述するとおり、導入した予亀裂の深さは 100~300  $\mu\text{m}$  程度であった。

破面観察結果の例を図 2.27 に示す。破面外観写真（図 2.27(A)）において、外面近傍で紺色に変色している領域は外面予亀裂部であり、より内面側の茶褐色の領域は試験中に亀裂進展した部分である。予亀裂加工部の破面の特徴として、高温水による腐食が顕著である。そのうちでも比較的腐食が顕著でない部分では Zr 結晶粒に対応すると推察される 5  $\mu\text{m}$  程度の粒状の脆性破面で構成されていることが挙げられる（図 2.27(C-1)）。亀裂進展部の破面は、20  $\mu\text{m}$  程度の島状の脆性破面で構成されており（図 2.27(C-2)）、これは DHC で観察される典型的な水素脆性破面であった。これら破面の特徴を判断基準として予亀裂の深さ（以下「予亀裂深さ」という。）及び試験中に進展した亀裂の深さ（以下「進展亀裂深さ」という。）を計測した。各破面の予亀裂深さ、進展亀裂深さを表 2.4 に示す。なお、予亀裂は 1 試料につき 4 つ導入したため、表 2.4 においては、それらを試料番号に 1~4 の枝番号を付与することで識別した。ここで、枝番号-1、-2 は発熱部、枝番号-3、-4 は非発熱部を表す。

進展亀裂深さを保持時間で除することで平均亀裂進展速度を算出し、周方向引張応力及びヒーター出力で整理した結果を図 2.28 及び図 2.29 に示す。亀裂進展挙動は予亀裂深さ及び被覆管寸法にも影響されるが、定性的な傾向として、周方向引張応力が大きいほど平均亀裂進展速度が大きくなること、周方向引張応力が 200MPa の場合は顕著に平均亀裂進展速度が小さくなることがわかった。また、一部例外を除き非発熱部では亀裂が進展しなかったことから、肉厚方向の温度勾配（すなわち、固溶水素の熱拡散の駆動力）が亀裂進

展の有無に重要な役割を果たすことがわかった。DHC による亀裂進展には、亀裂先端における応力集中及び亀裂先端への水素原子供給が重要であることから、DHC による亀裂進展を模擬できていたと考えられる。なお、図 2.29 から、周方向引張応力が十分な場合は、ヒーター出力が大きければ平均亀裂進展速度も大きくなる傾向も観察されたが、その差は顕著ではなく、ヒーター出力は 20~30 kW/m 程度で温度勾配による水素供給が十分となる可能性がある。

次に、予亀裂深さ及び被覆管寸法の影響を考慮するため、発熱部の平均亀裂進展速度をき裂進展開始時のモード I の応力拡大係数  $K_I$  で整理した (図 2.30)。なお、薄肉である被覆管では詳細な  $K_I$  を求めるための幾何学的要求を満たしていないため、周方向引張応力  $\sigma_\theta$  及び予亀裂深さ  $D_I$  から次式<sup>26</sup>で簡便に概算する  $K_I$  を用いた。

$$K_I = \sigma_\theta \cdot (\pi D_I)^{0.5} \dots\dots\dots (2.5)$$

ここで、 $\sigma_\theta$  は周方向引張応力を、 $D_I$  は被覆管内径を表す。図 2.30 から、 $K_I$  が約 5 MPa・m<sup>0.5</sup> 未満の場合は亀裂は進展しない又は平均亀裂進展速度が極めて小さいこと、 $K_I$  が約 5~10 MPa・m<sup>0.5</sup> の場合はバラツキはあるものの平均亀裂進展速度が約 50 μm/min 以下であること、 $K_I$  が約 10 MPa・m<sup>0.5</sup> 以上の場合は平均亀裂進展速度がそれまでの 3 倍程度まで大きくなることとがそれぞれ分かった。被覆管の肉厚は 8x8 型が約 860 μm、9x9A 型が約 710 μm であることを踏まえると、初期亀裂発生から、肉厚貫通までには数分~十数分程度の時間的遅れを伴うことがわかった。

表 2.3 供試材及び試験条件一覧(3)

Table 2.3 List of samples and test conditions (3)

試料番号	種類	試料燃焼度 (GWd/t)	水素濃度 (ppm)	ヒーター出力 (kW/m)	周方向応力 (MPa)
A15U3KYA1	9x9 型 未照射材	-	367	45	200
A15U3KYA2		-	354	40	200
A15U3KYA3		-	403	35	200
A15U3KYA4		-	401	30	200
A15C1KYK3	8x8 型 照射材	54.1	179	40	300
A15C1KYK4		52.3	186	30	300
A15C1KYK5		51.5	194	20	300
A15C1KYK9		59.3	173	40	400
A15C1KYK2		55.2	188	40	200
A15C3KY48	9x9A 型 照射材	67.9	268	40	300
A15C3KY49		68.4	259	30	300
A15C3KY52		67.7	258	20	300

出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17</sup>

独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

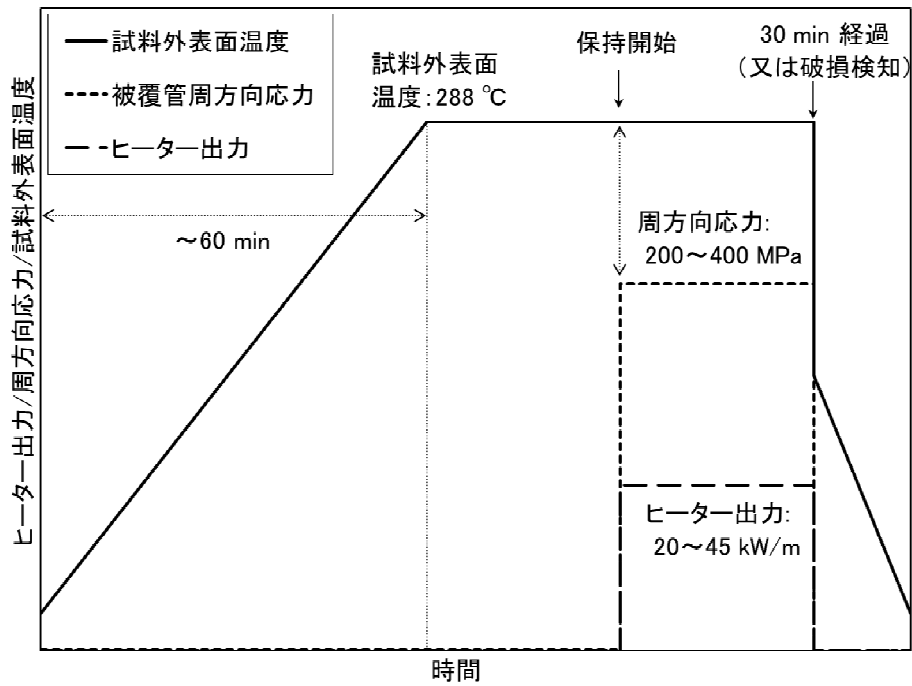
表 2.4 亀裂進展量のまとめ

Table 2.4 Summary of lengths of precipitated cracks.

試料 番号	亀裂 番号	種類	発熱 有無	保持 時間 (min)	予亀裂 深さ ( $\mu\text{m}$ )	DHC 亀 裂深さ ( $\mu\text{m}$ )	応力拡大 係数 $K_I$ ( $\text{MPa} \cdot \text{m}^{0.5}$ )	平均亀裂 進展速度 ( $\mu\text{m}/\text{min}$ )
A15U3KYA1	-1	9x9A 型 未照射材	有	30	110	250	3.7	8.4
	-2		無		120	320	3.9	10.8
	-3		無		100	110	3.5	3.6
	-4		無		90	80	3.4	2.4
A15U3KYA2	-1		有	30	70	320	3	10.8
	-2		無		90	0	3.4	0
	-3		無		90	390	3.4	13.2
	-4		無		80	130	3.2	4.2
A15U3KYA3	-1		有	30	200	0	7.5	0
	-2		無		240	0	8.2	0
	-3		無		140	0	6.3	0
	-4		無		300	0	9.2	0
A15U3KYA4	-1		有	30	150	620	6.5	36.6
	-2		無		300	460	9.2	27
	-3		無		220	550	10.5	137.4
	-4		無		250	520	11.2	130.2
A15C1KYK3	-1	8x8 型 照射材	有	30	280	0	5.9	0
	-2		無		250	0	5.6	0
	-3		無		270	210	8.7	42
	-4		無		290	200	9.1	40.2
A15C1KYK4	-1		有	30	240	330	8.2	33
	-2		無		180	360	7.1	36
	-3		無		250	0	8.4	0
	-4		無		280	340	8.9	18
A15C1KYK5	-1		有	17	90	0	3.4	0
	-2		無		110	0	3.7	0
	-3		無		80	0	3.2	0
	-4		無		70	0	3	0
A15C1KYK9	-1		有	4	90	0	3.4	0
	-2		無		100	0	3.5	0
	-3		無		90	0	3.4	0
	-4		無		120	0	3.9	0
A15C1KYK2	-1	有	30	230	0	8.1	0	
	-2	無		280	80	8.9	2.4	
	-3	無		510	0	12	0	
	-4	無		210	190	7.7	6.6	
A15C3KY48	-1	9x9A 型 照射材	有	5	210	0	7.7	0
	-2		無		240	90	8.2	5.4
	-3		無		200	260	10	64.8
	-4		無		310	110	12.5	27.6
A15C3KY49	-1		有	10	340	0	6.5	0
	-2		無		270	130	5.8	4.2
	-3		無		330	0	9.7	0
	-4		無		290	0	9.1	0
A15C3KY52	-1		有	19	290	0	9.1	0
	-2		無		280	0	8.9	0
	-3		無		310	0	9.4	0
	-4		無		240	0	8.2	0

出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17)</sup>

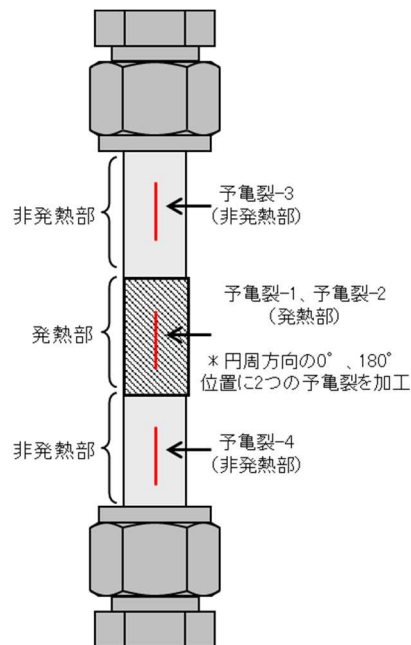
独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24)</sup>



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17</sup>

図 2.25 ヒーター出力、試料外表面温度及び周方向応力の経時変化の概略(3)

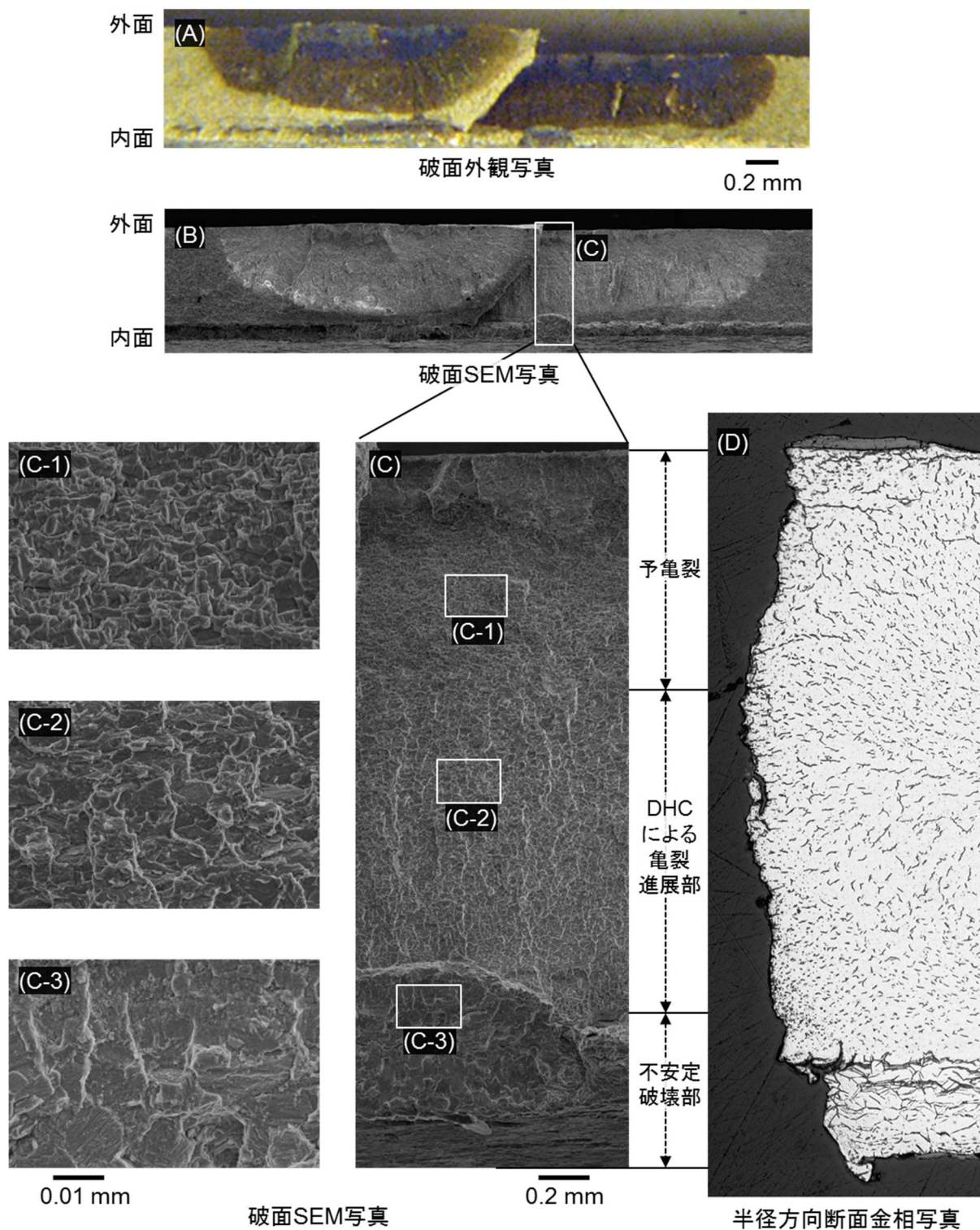
Fig. 2.25 Schematic diagram of time vs heater power, temperature of sample outer surface and hoop stress (3)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月<sup>17</sup>

図 2.26 予亀裂位置の模式図

Fig. 2.26 Schematic diagram of positions of pre-cracks



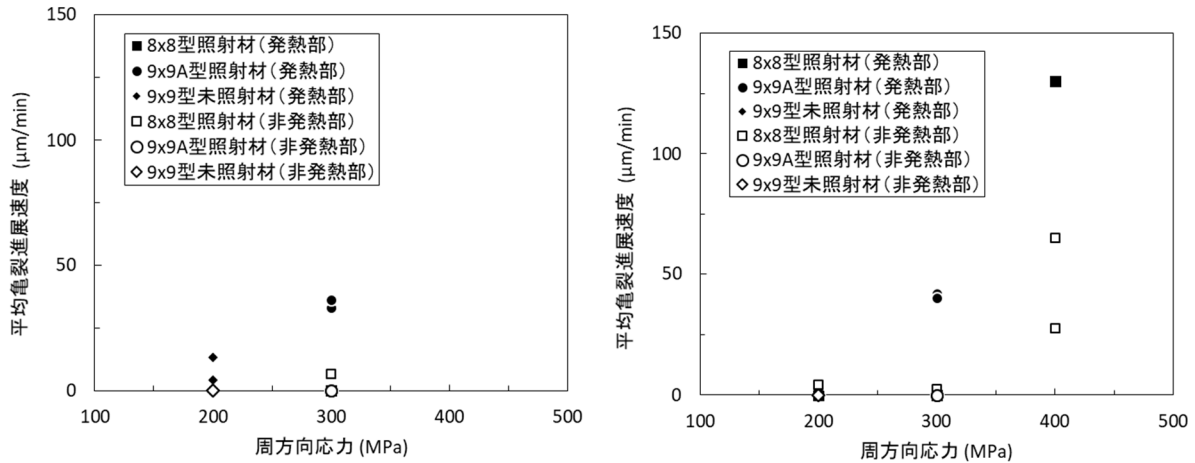
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月<sup>24</sup>

図 2.27 試験後破面観察の例

(試料番号: A15C3KY49-1、水素濃度: 259 ppm、ヒーター出力: 30 kW/m、周方向引張応力 300 MPa)

Fig. 2.27 Example of post-test fractography

(Sample ID: A15C3KY49-1, hydrogen content: 259 ppm, heater power: 30 kW/m, hoop stress: 300 MPa)



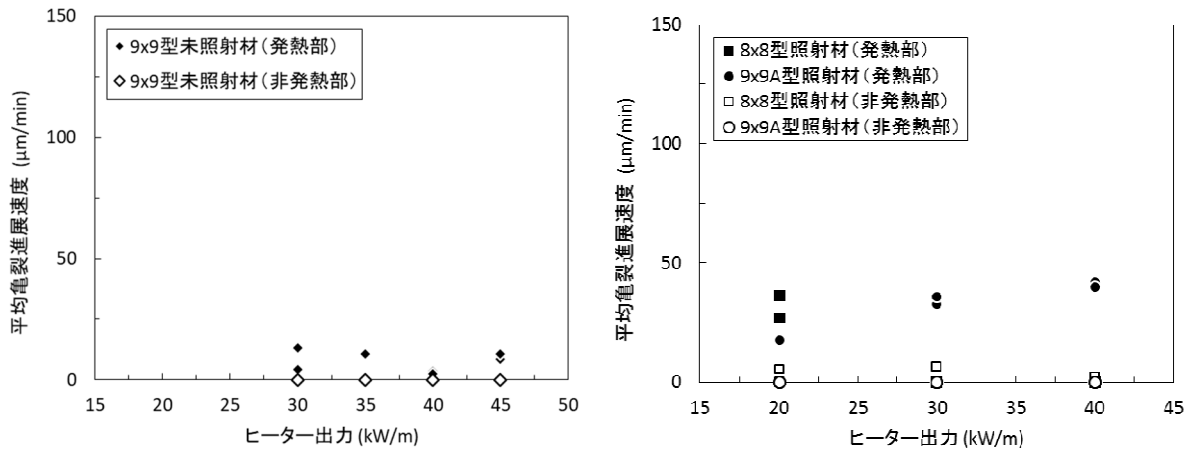
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.28 周方向引張応力と平均亀裂進展速度の関係

(左: ヒーター出力: 30 kW/m、右: ヒーター出力: 40 kW/m)

Fig. 2.28 Relationship between hoop stress and average crack propagation verocity

(left: 30 kW/m of heater power, right: 40 kW/m of heater power)



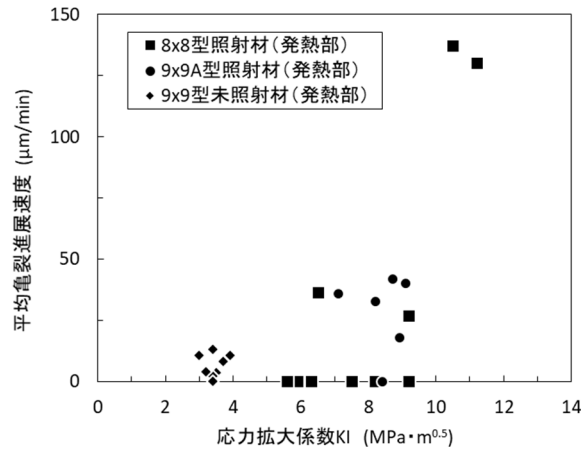
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.29 ヒーター出力と平均亀裂進展速度の関係

(左: 周方向応力 200 MPa、右: 周方向応力 300 MPa)

Fig. 2.29 Relationship between heater power and average crack propagation verocity

(left: 200 MPa of hoop stress, right: 300 MPa of hoop stress)



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月<sup>25</sup>

図 2.30 応力拡大係数と平均亀裂進展速度の関係

Fig. 2.30 Relationship between stress intensity factor and average crack propagation verocity

### 2.1.2 応力緩和が亀裂進展に与える影響に関する解析的評価

本研究では、2.1.1 における個別効果試験により得られた外面割れ破損発生に関する条件を統合試験により評価・検証することを目的とし、試験炉において出力急昇試験を実施する計画としていた。試験炉における実燃料入りの燃料棒を用いた過渡模擬試験では、核反応による発熱、ペレットの膨張による被覆管への応力負荷、被覆管及びペレットのクリープ変形による応力緩和等が生じるため、より実現象に近い条件での試験が可能である。特に、2.1.1 で実施した炉外試験では、被覆管周方向応力を一定としていたため応力緩和の効果を取り込めておらず、その意味でも出力急昇試験により外面割れ破損に至る出力レベル及び保持時間を検証することが望ましい。しかしながら、平成 28 年度に JMTR<sup>(注13)</sup>、平成 30 年度にハルデン炉<sup>(注14)</sup>の廃止が決定されたため、出力急昇試験の実施が不可能となった。そのため、本研究では FEM を用い、出力過渡中の応力緩和が DHC による亀裂進展に与える影響を解析的に評価した。

#### (1) 解析モデルの検討及び炉外模擬試験の解析

まず、2.1.1(2)で実施した出力過渡模擬試験において破損に至った試料のデータを用い、FEM による周方向引張応力負荷時亀裂進展挙動の解析手法を整備した。解析コードには、汎用コードである ABAQUS 6.11 (以下「ABAQUS」という。)を用いた。図 2.31 に本研究で用いた解析モデルの例を示す。本研究では、亀裂を含む周方向四分の一部分を解析対象とした。ここで、軸方向の応力勾配及び温度勾配は小さく、亀裂進展挙動への影響が小

(注13) Japan Materials Testing Reactor、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が運営していた材料試験炉。

(注14) ノルウェーエネルギー技術研究所が運営していた材料試験炉。

さいと考えられることから、解析モデルは二次元体系とした。また、ライナ部の被覆管内面温度分布への影響は小さいと考えられることから、被覆管は一様に Zry-2 でできているとした。初期亀裂は、先端が直径 1 μm である半円形の切り欠きとして模擬した。初期亀裂の深さは、試験後の金相写真における外表面半径方向水素化物の長さがそれに相当するとして設定した。

解析の入力として使用する被覆管外表面温度は 2.1.1 と同様 296°Cとし、被覆管内部の温度分布は(2.2)式により算出した(例：図 2.32)。初期水素濃度分布は 2.1.1(1)で用いたものを使用した。Zry-2 の機械特性及び伝熱特性は、文献値に基づき以下のとおり設定した。

① ヤング率

文献<sup>27</sup>より以下の近似式を用いた。(E: ヤング率(GPa)、T: 絶対温度(K))

$$E = 97.1 - 0.0579 \times (T - 273) \dots \dots \dots (2.6)$$

② ポアソン比

文献<sup>27</sup>より以下のとおり温度毎の値を設定した。

表 2.5 解析に使用した Zry-2 のポアソン比

Table 2.5 Poisson's ratio used in analysis

温度 (K)	ポアソン比
293	0.367
573	0.330

③ 降伏応力、極限強さ、伸び

文献<sup>28</sup>より、以下のとおり温度毎に設定した。

表 2.6 解析に使用した Zry-2 の降伏応力、極限強さ及び伸び

Table 2.6 Yield strength, ultimate strength and elongation used in analysis

温度 (K)	降伏応力 (MPa)	極限強さ (MPa)	伸び (%)
293	1001	1019	1.1
573	803	823	18.4
616	737	780	20.6

④ 応力-歪曲線

上記で設定したヤング率、降伏応力、極限強さ、伸びを用いて 2 直線近似を行い、応力-歪曲線を定義した。



⑤ 密度

文献<sup>27</sup>より常温で 6.55 (g/cm<sup>3</sup>)とした。

⑥ 熱膨張係数

文献<sup>29</sup>より 6.72×10<sup>-6</sup> (1/K) (温度範囲：300～1073 (K)) とした。

⑦ 比熱

文献<sup>29</sup>より以下のとおり温度毎の値を設定した。

表 2.7 解析に使用した Zry-2 の比熱

Table 2.7 Specific heat of Zry-2 used in analysis

温度 (K)	比熱 (J/Kg・K)
300	281
400	302
640	331
1090	375

⑧ 熱伝導率

文献<sup>29</sup>より以下の近似式を用いた。(λ: 熱伝導率(W/m・K)、T: 絶対温度(K))

$$\lambda = 7.51 + 2.09 \times 10^{-2}T - 1.45 \times 10^{-5}T^2 + 7.67 \times 10^{-9}T^3 \dots \dots \dots (2.7)$$

以上で述べた被覆管モデルを用いて、内圧が負荷された場合の応力分布及び水素拡散挙動を解析した。なお、水素濃度が当該領域温度における TSSP を超えた場合は、次の時間ステップにおいて水素濃度を TSSP で上書きする処理を行った。被覆管内部の静水圧応力分布及び亀裂先端近傍における水素濃度分布の解析例(試料番号: A15C3KY86、9x9A 型、公称周方向引張応力: 670 MPa)を、図 2.33 及び図 2.34 に示す。静水圧応力は、被覆管の内面から外面にかけて内面付近では緩やかに減少し、亀裂先端に近づくにしたがって傾きが大きくなった。また、亀裂先端から数 μm の領域に下向きのピークが生じた。固溶水素は、亀裂先端周辺のような微視的領域においては温度勾配のみならず静水圧応力勾配にしたがって拡散するため(静水圧応力の高い部位から低い部位への方向)、当該領域に水素の流入が集中する。このことは、水素濃度分布の時間変化(図 2.34)からも確認でき、亀裂先端から約 10 μm の領域が TSSP (約 180 ppm) に到達していることが分かる。図 2.35 に同試料の亀裂先端から 10 μm 離れた位置における平均水素流束の時間推移を示す。同図より、平均水素流束は 10～20 秒程度で収束し、その後はほぼ一定となることが分かる。

本解析結果を基に、以下の仮定により亀裂進展速度を算出した。

- ・ DHC 過程においては、亀裂先端近傍への水素流入及び水素化物析出、水素化物破壊による微小な亀裂進展を繰り返すが、一回の亀裂進展量は  $10\ \mu\text{m}$  である。
- ・ 水素化物厚さが  $0.6\ \mu\text{m}$  に達するまでに必要とされる水素が集まった時点で亀裂が進展する<sup>17</sup>エラー! 参照元が見つかりません。ここで、水素流入量は、「水素流入量がピークをとる位置」から「亀裂先端から  $10\ \mu\text{m}$  の位置」の水素流束の平均とする。
- ・ 水素化物の化学量論的組成は  $\text{ZrH}_{1.6}$  であり、その密度は  $5.65\text{g/cm}^3$  である。

上記で得られた亀裂進展速度により、2.1.1(2)で実施した試験における破損に至るまでの時間（以下「破損時間」という。）を評価した。ここで、外表面に水素化物が析出するまでの時間は2.1.1(1)と同様の手法により評価した。また、外表面には十分な周方向引張応力が負荷されているため、外表面での水素化物析出後直ちに初期亀裂が発生したとした。破損時間の解析結果は試験結果と比較的良く一致しており（図 2.36）、本研究における解析モデルが一定の予測性能を有することを示している。

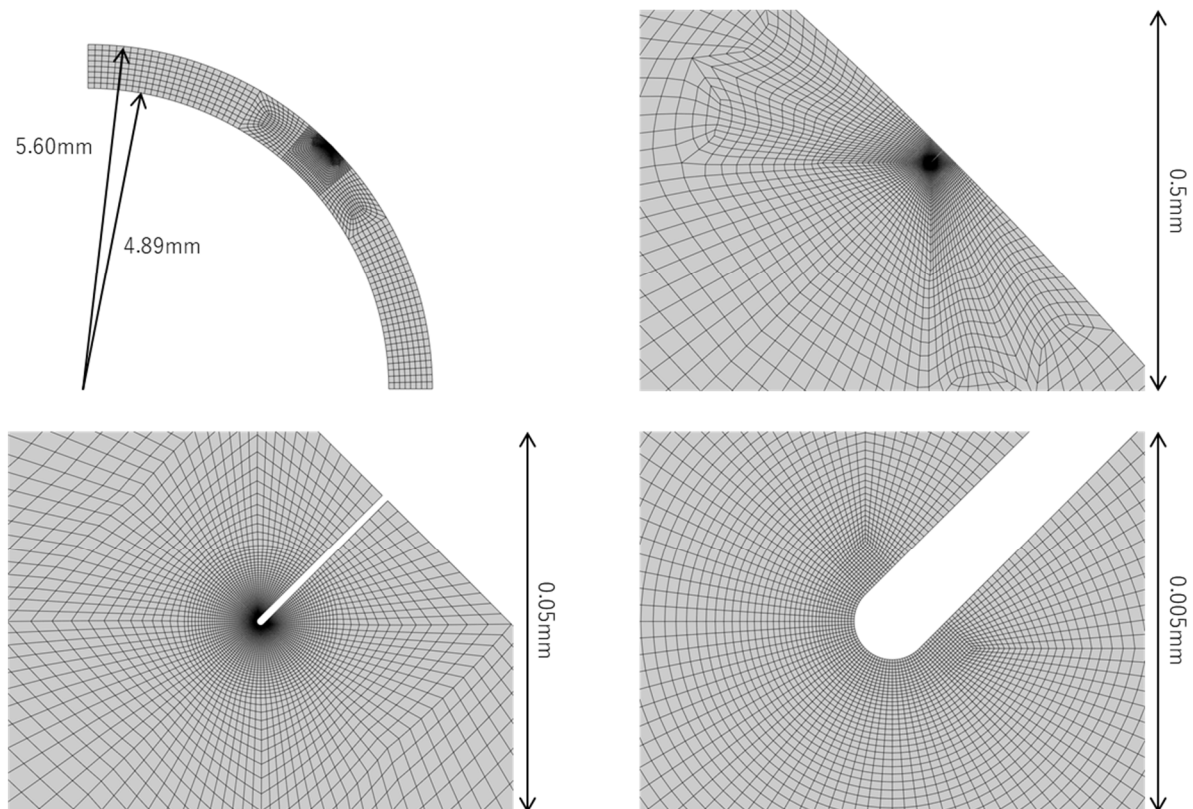


図 2.31 解析モデルの例 (9x9A 型)

Fig. 2.31 Example of analysis model (9x9A type)

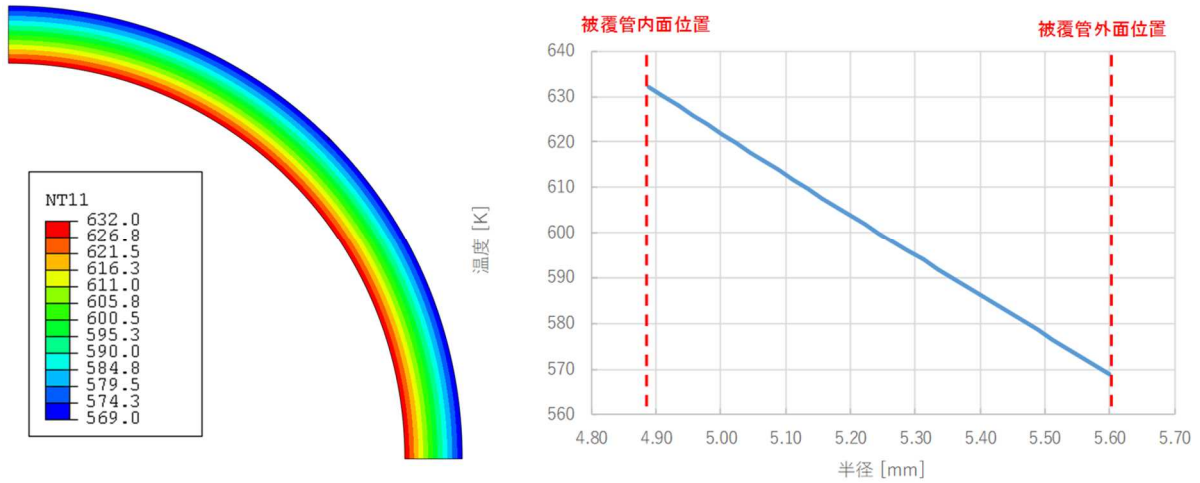


図 2.32 被覆管内部の温度分布の例 (9x9A 型、線出力: 47.1 kW/m)

Fig. 2.32 Example of temperature distribution inside cladding (9x9A type, linear power: 47.1 kW/m)

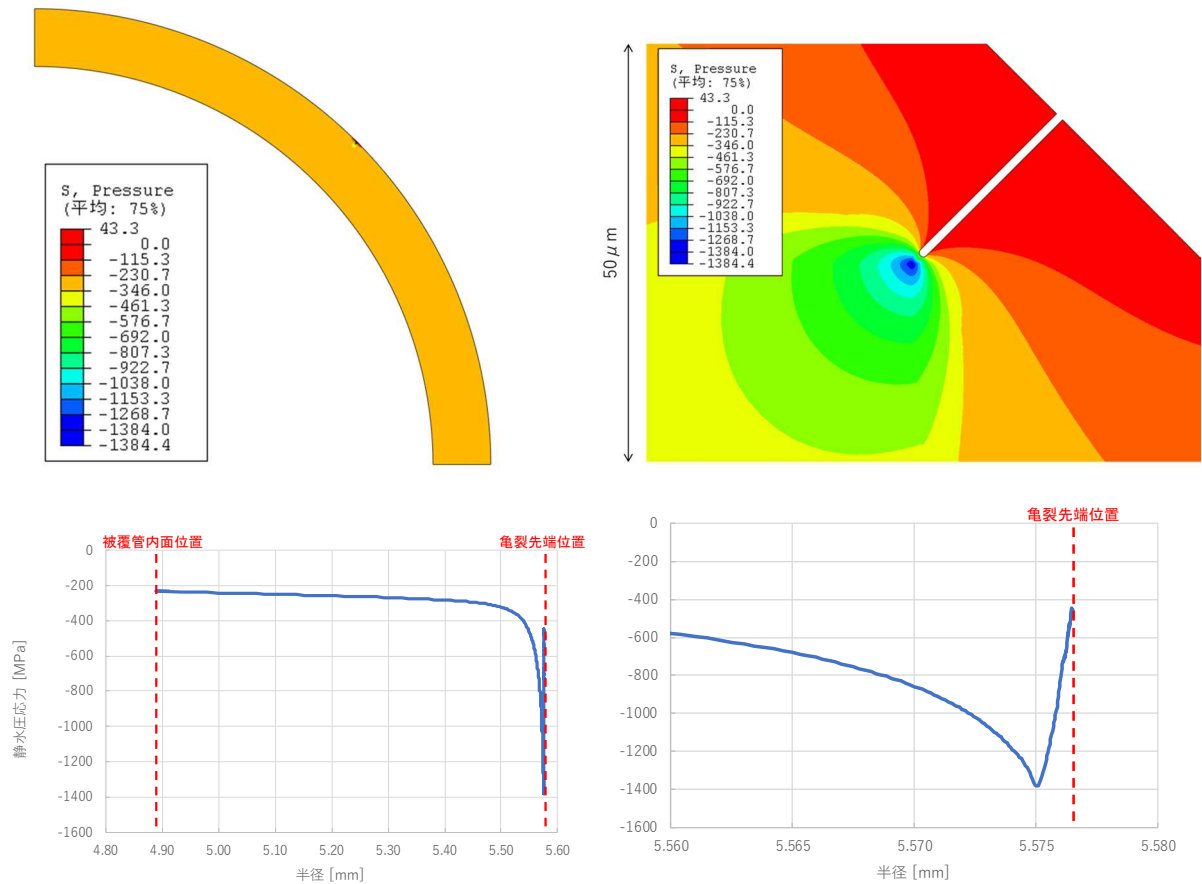


図 2.33 周方向引張応力負荷時の被覆管内部の静水圧応力分布の解析例  
(9x9A 型、公称周方向応力: 670 MPa)

Fig. 2.33 Example of analyzed distribution of hydrostatic stress inside cladding  
(9x9A type, nominal hoop stress: 670 MPa)

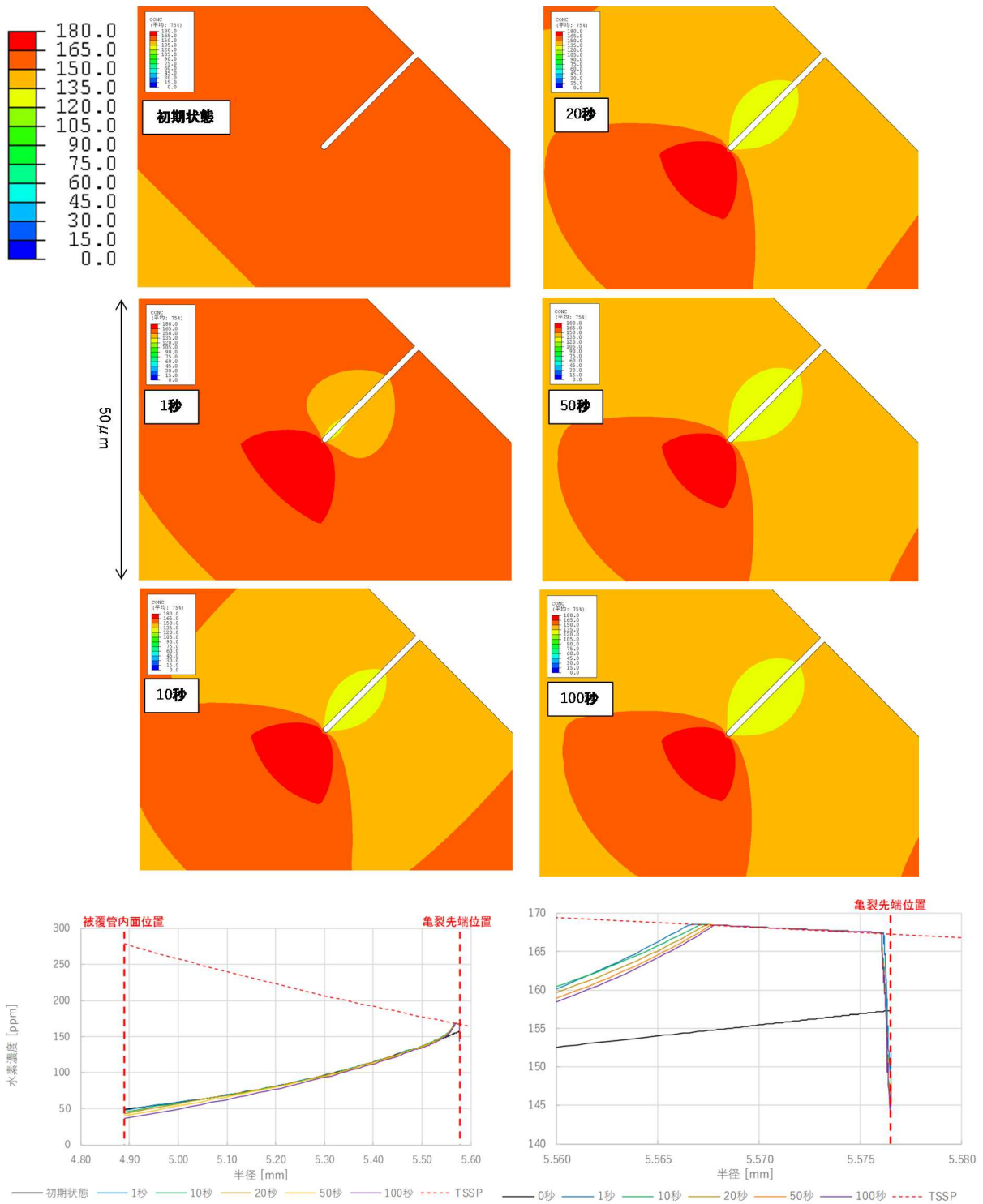


図 2.34 亀裂先端近傍における水素濃度分布の解析例

(9x9A 型、公称周方向応力: 670 MPa、上: コンター図、下: 亀裂に沿った断面における水素濃度)

Fig. 2.34 Example of analyzed distribution of hydrogen content near crack tip  
(9x9A type, nominal hoop stress: 670 MPa, upper: contour diagram, lower: hydrogen content distribution along crack)

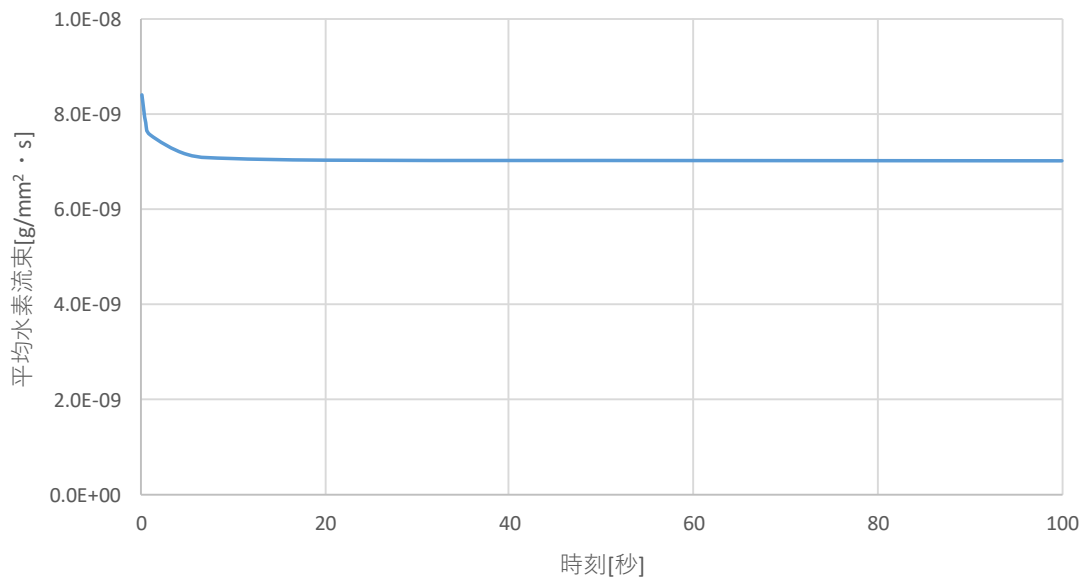


図 2.35 亀裂先端から 10  $\mu\text{m}$  離れた位置における平均水素流束の時間推移の例  
(9x9A 型、公称周方向応力: 670 MPa)

Fig. 2.35 Example of average hydrogen flux at position 10  $\mu\text{m}$  away from crack tip  
(9x9A type, nominal hoop stress: 670 MPa)

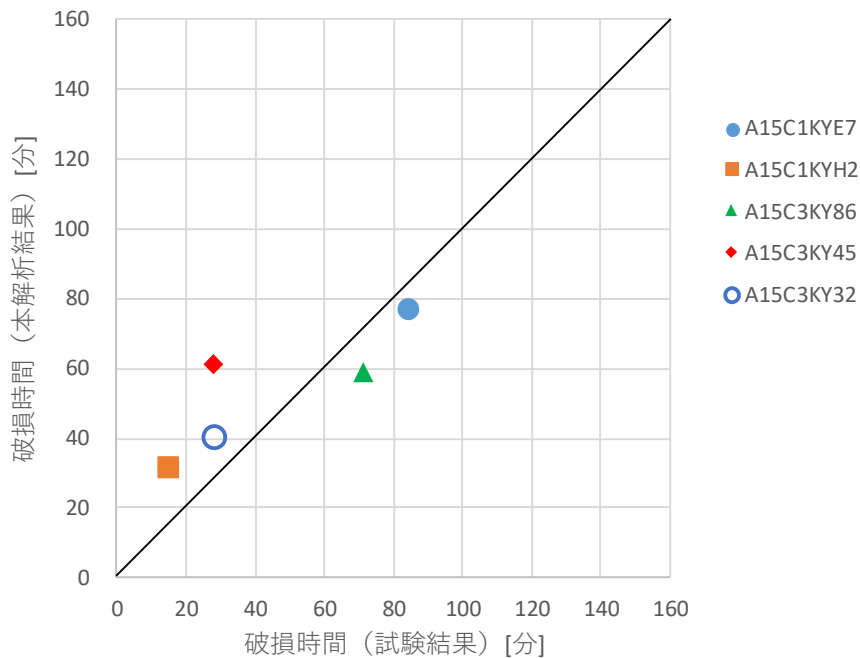


図 2.36 出力過渡模擬試験における破損時間の試験結果と解析結果の比較

Fig. 2.36 Measured-prediction comparison of time until failure during power transient simulation test

## (2) 応力緩和の効果に関する検討

次に、過去に実施された出力急昇試験をモデルケースとして、出力急昇時の応力緩和挙動を解析評価し、それを入力として 2.1.2(1)で整備した解析手法により亀裂発生から貫通に至るまでに必要な時間を計算することで、出力急昇時の被覆管応力緩和が亀裂進展に及ぼす影響を評価した。

表 2.8 に解析対象燃料棒の一覧を、図 2.37 にベース照射及び出力急昇試験時の出力履歴の例を示す。本研究では、燃料挙動解析コード FEMAXI-8<sup>30</sup> を用いて被覆管最外面における周方向引張応力の時間推移を解析した。解析結果（図 2.38）では、周方向引張応力は出力急昇とともに上昇し、最高出力到達時に約 700 MPa となり、その後は応力緩和により減少、出力保持中は約 300 MPa でほぼ一定となった。また、応力緩和に要する時間は約 2.4～3.6 min だった。

これを参考として、以降の亀裂進展解析における応力条件は、最大周方向引張応力を 700 MPa、緩和後の周方向引張応力を 300 MPa と設定した。また、パラメータスタディとして、緩和後の周方向引張応力を 500 MPa とした条件、応力緩和が発生しない条件（周方向引張応力が 700 MPa で一定）でも同様に解析を行い、結果を比較した。ここで、初期亀裂長さは 2.1.2(1)と同様の手法により推定した。また、亀裂進展開始後、周方向引張応力 700 MPa における亀裂進展速度は約 50  $\mu\text{m}/\text{min}$  と計算された。そのため、応力緩和に要するまでの時間を 3 min と仮定した場合、亀裂は初期亀裂から約 150  $\mu\text{m}$  進展すると応力緩和が生じるとみなすことができる。初期亀裂長さは約 20～70  $\mu\text{m}$  と推定されたため、本解析では、亀裂深さが 200  $\mu\text{m}$  に達した時点で応力緩和が生じ、周方向引張応力の値が緩和後の値になるものと取り扱った。また、応力拡大係数が 30 MPa  $\cdot$  m<sup>0.5</sup> に到達した時点で不安定破壊に移行し即時破断に至る<sup>31</sup>と取り扱った。

解析結果を表 2.9 に示す。亀裂貫通に要する時間は、応力緩和なしのケースでは 3 min 程度であるのに対し、応力緩和を考慮したケースではその 10 倍以上となった。以上より、出力過渡時に生じる応力緩和により亀裂貫通に要する時間が大幅に増加し得ることがわかった。したがって、2.1.1(3)で実施した炉外試験における検討は、十分に保守的な結果を与えていると考えられる。

表 2.8 解析対象燃料棒の一覧及び出力急昇試験の条件

Table 2.8 List of analyzed fuel rods and conditions of power ramp test

試料番号	燃焼度 (GWd/t)	水素濃度 (ppm)	出力上昇モード	出力上昇速度	基底出力 (kW/m)	到達出力 (kW/m)	推定初期亀裂長さ ( $\mu\text{m}$ )
2F2D4-F3-5	56.3	99	直線状	約 5 kW/m /min	28	55	20.7
2F2D8-C6-6	60.8	169	階段状	約 5 kW/m /min	25	45	72.9
2F2D8-C6-5	61.1	147	直線状	約 5 kW/m /min	20	42	14.8
2F2D8-F3-5	61.1	166	直線状	約 5 kW/m /min	20	43	66.4

表 2.9 亀裂貫通に要する時間の解析結果一覧

Table 2.9 List of results of analysis on time to crack penetration

試料番号	周方向 引張応力条件	亀裂貫通に 要する時間 (min)
2F2D4-F3-5	700 MPa → 300 MPa	34.7
	700 MPa → 500 MPa	40.2
	700 MPa 一定	3.2
2F2D8-C6-6	700 MPa → 300 MPa	38.0
	700 MPa → 500 MPa	42.7
	700 MPa 一定	4.2
2F2D8-C6-5	700 MPa → 300 MPa	37.1
	700 MPa → 500 MPa	41.8
	700 MPa 一定	2.8
2F2D8-F3-5	700 MPa → 300 MPa	38.1
	700 MPa → 500 MPa	42.8
	700 MPa 一定	4.3

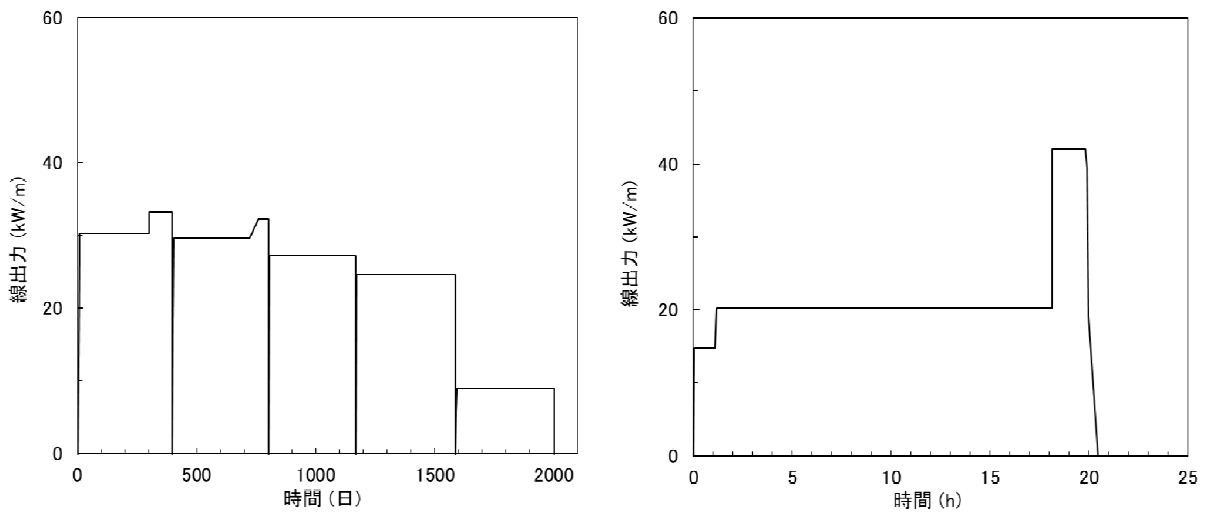


図 2.37 出力履歴の例 (試料番号: 2F2D8-C6-5)

(左 : ベース照射、右 : 出力急昇試験時)

Fig. 2.37 Example of power history (Sample ID: 2F2D8-C6-5)

(left: base irradiation, right: during power ramp test)

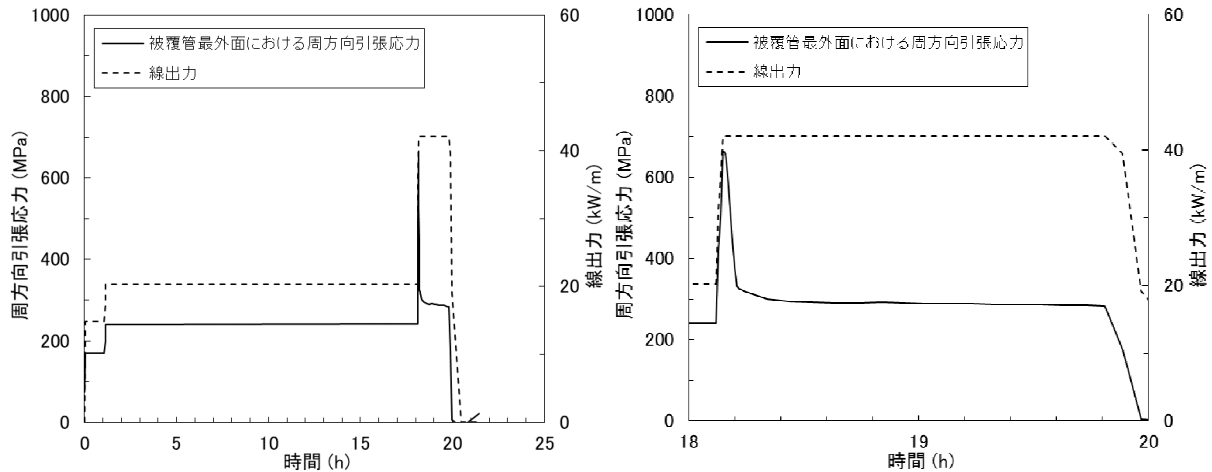


図 2.38 周方向引張応力の時間推移の解析例 (試料番号: 2F2D8-C6-5)

Fig. 2.38 Example of result from analysis on time dependence of hoop stress (Sample ID: 2F2D8-C6-5)

### 2.1.3 PWR 燃料被覆管の亀裂進展性に関する検討

過去に実施された出力急昇試験においては PWR 燃料棒には被覆管外表面に未貫通の亀裂が生じたものの、外面割れ破損には至らなかった。この原因が被覆管に用いられた材料によるものか、試験時の温度条件によるものかについて調べ、外面割れ破損発生条件究明に資するため、PWR 燃料被覆管を対象とした中子拡管試験を実施した。

試料には、17x17A 型燃料被覆管を用いた。被覆管材料は低 Sn 含有量 Zry-4 であり、外径及び肉厚は約 9.48 mm 及び約 600  $\mu\text{m}$  である。試料は、商用 PWR で 4 サイクル照射した使用済 PWR 燃料集合体から燃料棒を引き抜き、軸長約 20 mm に切断した後にペレットを除去することで作製した。採取元燃料棒の平均燃焼度は 56.7 GWd/tU であり、酸化膜厚さから推定した水素濃度は 444~542 ppm であった。

図 2.39 に中子拡管試験の概要を示す。本試験では、被覆管試料中に挿入された Al 製中子を、材料試験機を用いて押し棒により軸方向に圧縮する。これにより Al 製中子は径方向に膨張し、被覆管に機械的荷重を負荷する。すなわち、過渡時のペレット-被覆管相互作用を模擬している。

本研究では、まず 90 min かけて試験片を 300°C 又は 385°C に昇温し、温度が安定した後、クロスヘッド移動速度 0.1 mm/min (周方向歪速度約  $1 \times 10^{-4}$  1/s 程度に相当) で、被覆管外表面に初期亀裂が生じるまで変形させた。具体的には、歪量が試験片外径に対して約 3% (周方向塑性歪 2% 程度に相当) になるまで変形させた。なお、本目標変形量は、予備試験により得られた値である。試験中は荷重-クロスヘッド変位及び外径を取得した。目標変形量到達後は圧縮を止め、クロスヘッド位置を固定した状態で 240 min 保持した。保持時間終了後は過重負荷を解放するとともに試料を冷却した。また、荷重負荷状態保持の亀裂進展への影響を調べるため、目標変形量に到達させた後、直ちに荷重負荷を解放する条件で



も試験を実施した。試験後は半径方向横断面の金相観察を行った。試料及び試験条件の一覧を表 2.10 に示す。

図 2.40 に試験温度 300℃及び 385℃における荷重及び外径変化率の経時変化を示す。荷重保持の条件では、クロスヘッド位置保持開始後になだらかな荷重低下が見られ、これはクリープ変形によるものと考えられる。300℃-240 min 保持の条件では、約 60 min 経過時点で亀裂進展に対応すると考えられる大きな荷重低下が観察された。試験後の外観写真を図 2.41 に示す。貫通亀裂、すなわち被覆管破損は 300℃-240 min 保持の条件でのみ観察された。また当該条件の試料では軸方向き裂が発生しており、破損の様態は出力急昇試験において観察された外面割れ破損に類似していた。

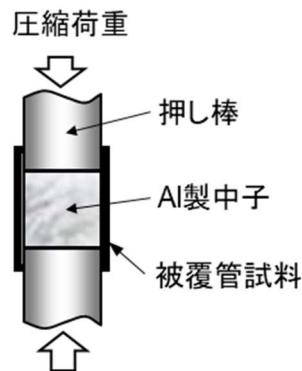
試験後の半径方向横断面の金相写真を図 2.42 に示す。試料破損がみられなかった 385℃-240 min 保持の条件では、未貫通亀裂が形成されていた。また、亀裂の深さは外表面近傍の水素化物偏析層（以下「水素化物リム」という。）の厚さと対応しており、脆性の水素化物リムが破壊したことにより初期亀裂が発生したものと考えられる。したがって、2.1 で述べたような外表面での半径方向水素化物析出がない場合でも、外表面に水素化物リムのような高密度に水素化物が析出している組織が形成されている場合は、僅かな塑性変形量でも当該領域が破壊することで初期亀裂が形成され得ることがわかった。また、385℃-保持無しの条件においても、385℃-240 min 保持の条件と同様、亀裂深さは水素化物リム厚さと同等であることから、荷重負荷保持による亀裂進展はほぼ生じなかったことが示唆される。300℃-保持無しの条件で観察された未貫通亀裂と比較すると、385℃の条件で生じた亀裂の先端は比較的幅広かった（図 2.42）。385℃においては、300℃と比べて被覆管金属層の延性が高いため亀裂先端部に局所的な塑性変形が生じ、それにより応力集中が妨げられたことで亀裂進展が生じなかったことが原因の 1 つとして考えられる。すなわち、出力急昇試験において PWR 燃料被覆管が外面割れ破損を示さなかったことは、温度条件の差異が主たる原因であると考えられる。

表 2.10 供試材及び試験条件一覧(4)

Table 2.10 List of samples and test conditions (4)

試料番号	試験温度 (°C)	荷重保持 の有無	破損 有無
JEL-2-6	300	無	無
JEL-2-7		有	有
JEL-2-8	385	無	無
JEL-2-9		有	無

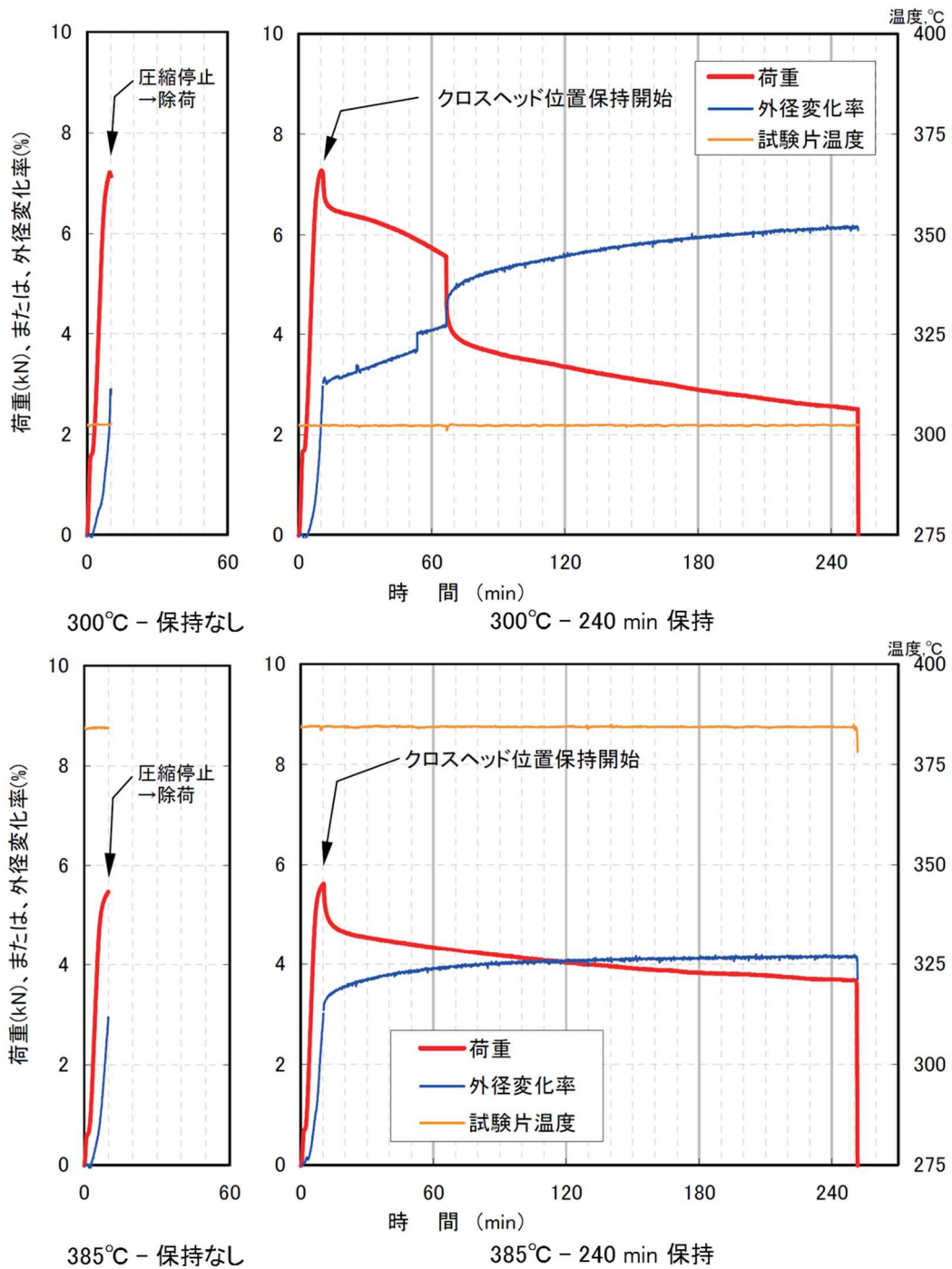
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書」 07 基炉報-0003、平成 19 年 11 月<sup>32</sup>



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書」 07 基炉報-0003、平成 19 年 11 月<sup>32</sup>

図 2.39 中子拡管試験の概要図

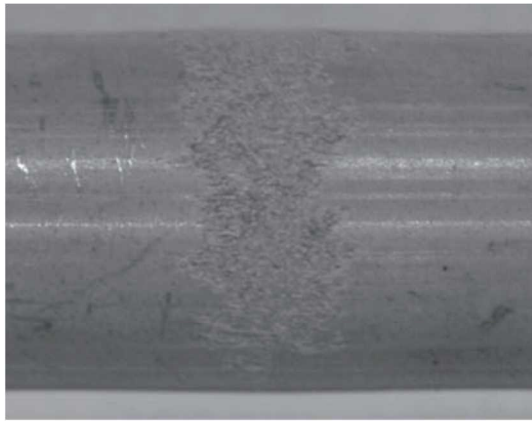
Fig. 2.39 Schematic diagram of expansion due to compression test



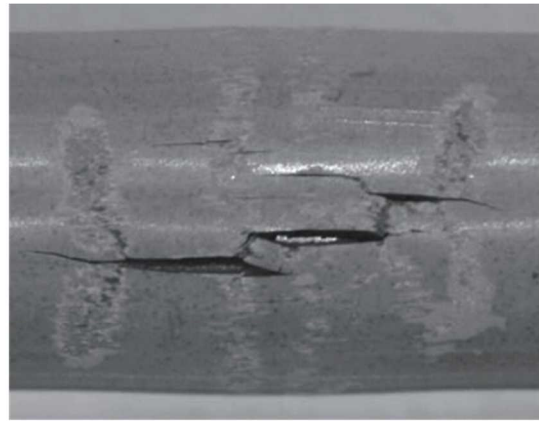
出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書」 07 基炉報-0003、平成 19 年 11 月<sup>32</sup>

図 2.40 荷重及び外径変化率の経時変化

Fig. 2.40 Changes in load and diameter increase rate over time



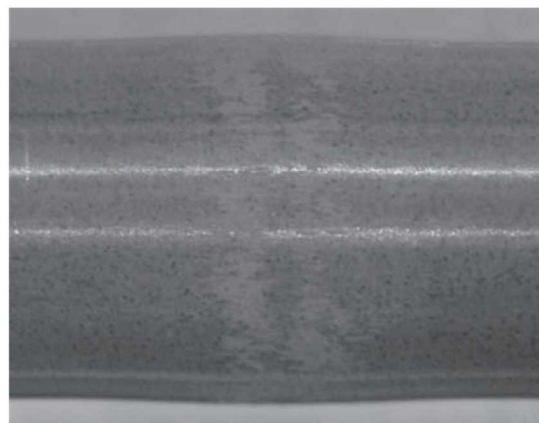
300°C - 保持なし



300°C - 240 min保持



385°C - 保持なし

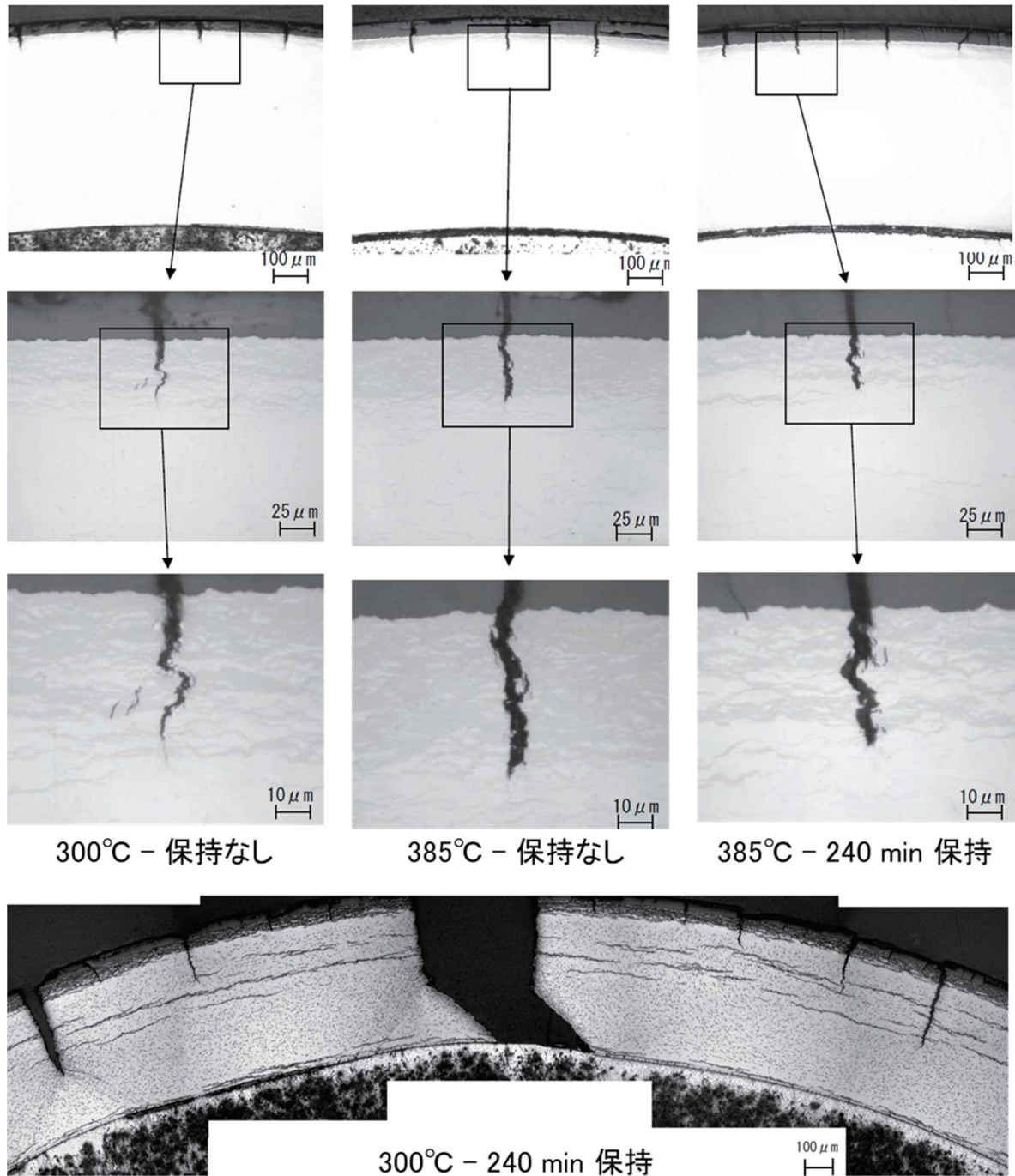


385°C - 240 min保持

出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書」 07 基炉報-0003、平成 19 年 11 月<sup>32</sup>

図 2.41 試験後外観写真

Fig. 2.41 Post-test appearances



出典) 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書」07 基  
 炉報-0003、平成 19 年 11 月<sup>32</sup>

図 2.42 試験後試料の半径方向断面の金相写真  
 Fig. 2.42 Transversal metallographs of post-test samples

#### 2.1.4 外面割れ破損に関する研究のまとめ及び系統的な被覆管破損発生有無の検討

本研究では、外面割れ破損発生の支配的プロセスを(1)水素原子の熱拡散により被覆管外表面に半径方向水素化物が析出する、(2)析出した半径方向水素化物が破壊し初期亀裂となる、(3)亀裂が進展し肉厚貫通に至る、の 3 つに分類し、BWR 使用済燃料被覆管を用いた

個別効果試験によりそれぞれの発生条件を明らかにした。また、(3)については、出力急昇時に発生する応力緩和の影響を FEM により解析的に評価した結果、試験で得られた結果が保守的であることを確認した。また、PWR 使用済燃料被覆管を用いた試験により、初期亀裂が発生した場合でも、PWR の運転中の被覆管温度では、亀裂先端の局所的な塑性変形が生じる等の要因により亀裂進展が妨げられることを明らかにした。

2.1.1 における検討から、出力過渡時に被覆管が外面割れ破損に至るためには、十分な線出力（及びそれに起因する周方向引張応力）のみならず、十分な過渡継続時間が必要であることが明らかとなった。なお、2.1.1(2)の出力過渡模擬試験は、応力一定の保守的な条件で実施したものであるが、当該試験における試料の破損時間は 15～94 分であった。

設置許可基準規則に紐づく発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針<sup>33</sup>（以下「安全評価審査指針」という。）においては、炉心又は原子炉冷却材圧力バウンダリに過度の損傷をもたらす可能性のある異常過渡事象について代表的な事象が選定されており、原子炉施設の安全評価ではこれに基づき解析が行われている。過去の例<sup>34</sup>では、収束までの時間が最も長い事象（給水加熱喪失）でも 200 秒程度で収束するとされている。なお、安全評価審査指針において「安全機能を有する系統、機器は、(中略) 運転員の操作を期待する場合には、運転員が事態を的確に判断し、高い信頼性でその操作を行えるように、十分な時間的余裕と適切な情報が与えられなければならない。運転員が的確な判断ができるような適切な情報が与えられてから、操作を開始するまでには、少なくとも 10 分間は時間的余裕を見込んだ評価を行う必要がある。」とされているが、これを踏まえると実炉での過渡事象継続時間は、本研究における破損時間（15～94 分）と比較して十分短いと考えられる。したがって、運転時の異常な過渡変化が発生した場合でも、被覆管が外面割れ破損に至るまでに過渡事象が収束するために、被覆管外面割れ破損は系統的には発生しないものと考えられる。

## 2.2 被覆管の高温における巨視的な延性—脆性遷移に関する研究

水素化物による被覆管の高温における巨視的な延性—脆性遷移が発生する条件を明らかにし、また、その際の破損時塑性歪の値を調べ基準値である 1%と比較するため、水素吸収及び水素化物再配向処理を施した高燃焼度 BWR 燃料被覆管を用いて内圧破裂試験を実施した<sup>35</sup>。

試料には、商用 BWR で 5 サイクル照射した 9x9A 型燃料棒(局所燃焼度:52.5-68.8GWd/tU)から採取した被覆管を用いた。照射ままの試料に加え、内圧封入による引張応力負荷状態で 290℃の LiOH 水溶液中に浸漬し、被覆管水素濃度を増加させるとともに半径方向に析出する水素化物の割合を変化させた試料も試験に供した（以下この処理を「HCRT」<sup>(注15)</sup>という。）。試料一覧を表 2.11 に、試料の水素濃度等を表 2.12 に、試料の半径方向横断面金

---

<sup>(注15)</sup> Hydrogen Charging and hydride Reorientation Treatment<sup>35</sup>

相写真の例を図 2.43 にそれぞれ示す。HCRT の期間が長くなるとともに水素濃度が増加し、また半径方向水素化物の長さ及び数が増加していることが分かる。なお、水素濃度測定は Zry ライナを除去した場合と除去しない場合の 2 条件で測定を実施した。本研究では、以上の試料を用いて 300°C でオープンエンド方式の内圧破裂試験を実施し、周方向の引張強さ及び破損時塑性歪を調べた。

前述したとおり、被覆管の機械的性質には水素濃度のみならず、水素化物の析出形態も影響を及ぼす。そのため、内圧破裂試験により調べた機械的性質を、水素化物の析出形態を定量的に表す指標で整理することが重要である。より多く、より長い水素化物がより半径方向に配向している場合に機械的性質への影響が大きいと考えられるため、本研究では下式で表される指標を提案・使用した。

$$FI\theta/A = \frac{\sum l_i \times \cos \theta_i}{A} \dots\dots\dots (2.8)$$

ここで、 $l_i$  及び  $\theta_i$  は個別の水素化物の長さ及び半径方向への角度を表し、半径方向横断面金相写真の画像解析により算出した (図 2.44)。また  $A$  は解析対象領域の面積である。すなわち、本指標は、各試料に含まれる水素化物の半径方向への投影長さの和を解析対象領域の面積で除することで規格化した値<sup>(注16)</sup>である。なお、表 2.12 に示すとおり、算出した指標値は、HCRT の期間が増大するにつれ大きくなり、半径方向に析出した水素化物の割合等が増大したことを定量的に示している。図 2.45 に内圧破裂試験で得られた周方向の応力-歪曲線を、図 2.46 に周方向引張強さ及び周方向破損歪を示す。降伏前に破損した指標値の大きい一部の試料を除き、周方向引張強さと指標値の間には明確な相関は見られなかったことから、水素化物は被覆管が延性を失うまでは強度に対して顕著な影響を及ぼさないと考えられる。一方、破損時周方向塑性歪は、指標値の増加、すなわち半径方向水素化物の増大に伴い減少した。照射ままの試料はいずれも 1%以上の周方向破損歪を示したが、指標値が 29 mm/mm<sup>2</sup> より高い試料においては、破損時周方向塑性歪がほぼゼロであり、水素化物の擬へき開に対応する平滑な破面が破面全体において観察された (例: 図 2.47(a1)、(a2)、(b1)、(b2))。このことから、半径方向水素化物の析出度合いが十分に高い場合には、300°C においても被覆管が脆性的に破損し得ることが明らかとなった。また、指標値が 29.4 mm/mm<sup>2</sup> であった試料 (試料 ID: KY92) は破損時周方向塑性歪が 0.9%であったが、周方向の応力-歪曲線 (図 2.45) から僅かに塑性変形が生じたことが認められたため、当該試料は巨視的な延性-脆性遷移のほぼ境界に位置していると考えられる。したがって、約 1%の周方向塑性歪は、BWR 燃料被覆管の水素化物析出に起因する巨視的な延性-脆性遷移を判断するしきい値とみなすことができ、現行の 1%塑性歪基準の技術的妥当性が確認された。

<sup>(注16)</sup> 本指標は 1/(長さ)の次元を持つが、本研究ではその単位を便宜的に mm/mm<sup>2</sup> と表記する。

表 2.11 供試材一覽(5)

Table 2.11 List of samples (5)

Sample ID	Assembly array	Local burnup (GWd/t)	Fast neutron fluence ( $\times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ )
KYL4	8 × 8	57.5	11.7
KYL5		57.9	11.5
KYM5		52.5	8.36
KYM3		55.3	9.31
KYM4		54.4	9.02
KY87	9 × 9	68.8	12.8
KY90		67.5	13.2
KY96		68.4	13.1
KY94		67.7	13.1
KY95		68.1	13.1
KY92		66.6	13.1
KY93		66.5	13.0

出典) A. Yamauchi and K. Ogata, “A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides”, J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>

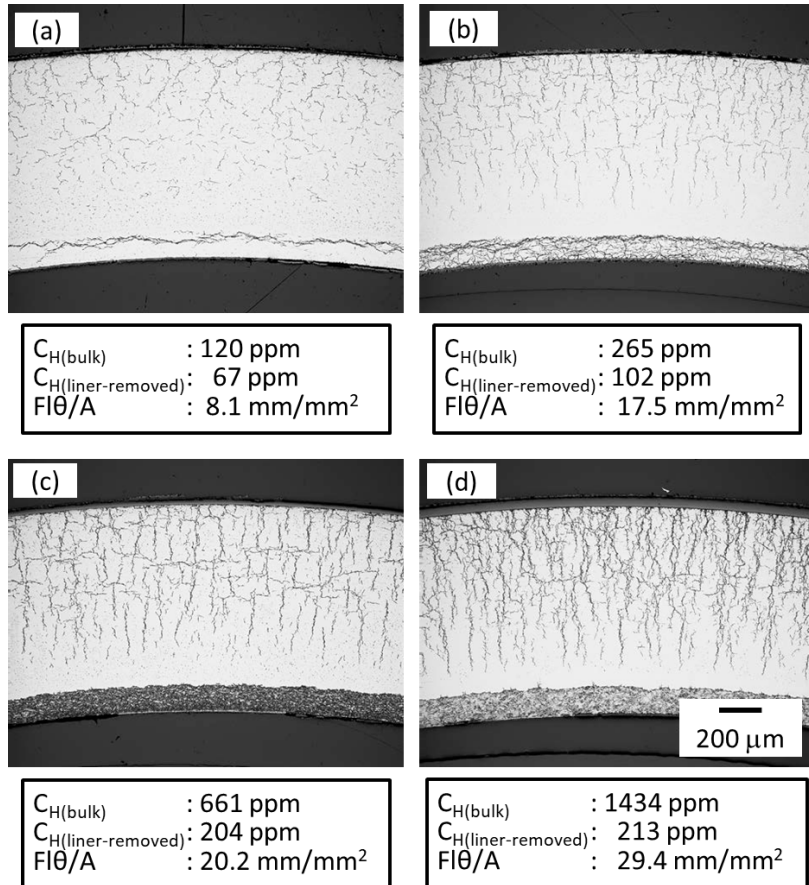
表 2.12 水素濃度、指標値、引張強さ及び周方向破損歪

Table 2.12 Hydrogen content, value of index, UTS and circumferential permanent strains to failure

Sample ID	HCRT time (day)	Hydrogen content (ppm)		FIθ/A (mm/mm <sup>2</sup> )	UTS (MPa)	Circumferential permanent strains to failure (%)	Notes
		Bulk	Liner removed				
KYL4	-	205	133	10.4	763	7.5	As irradiated
KYL5	-	187	128	7.8	770	27.4	As irradiated
KYM5	9	713	192	24.7	750	6.5	
KYM3	21	1303	320	52.1	628	0.4	
KYM4	21	1401	343	47.5	643	0.5	
KY87	-	120	67	8.1	728	7.6	As irradiated
KY90	3	265	102	17.5	725	5.0	
KY96	3	277	150	15.3	722	5.8	
KY94	9	661	204	20.2	743	4.5	
KY95	9	655	113	19.1	735	5.3	
KY92	21	1434	213	29.4	697	0.9	
KY93	21	1515	315	30.9	546	0.2	

出典) A. Yamauchi and K. Ogata, “A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides”, J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>





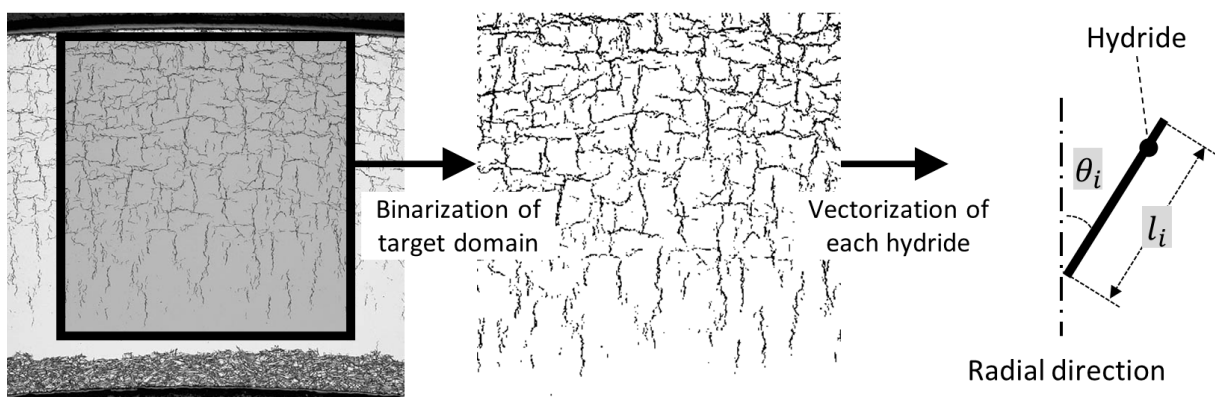
出典) A. Yamauchi and K. Ogata, "A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides", J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>

図 2.43 半径方向横断面の金相写真

(a) KY87 (照射まま)、(b)KY90 (HCRT 3 日間)、(c)KY94 (HCRT 9 日間) (b)KY92 (HCRT 21 日間)

Fig. 2.43 Transverse metallographs

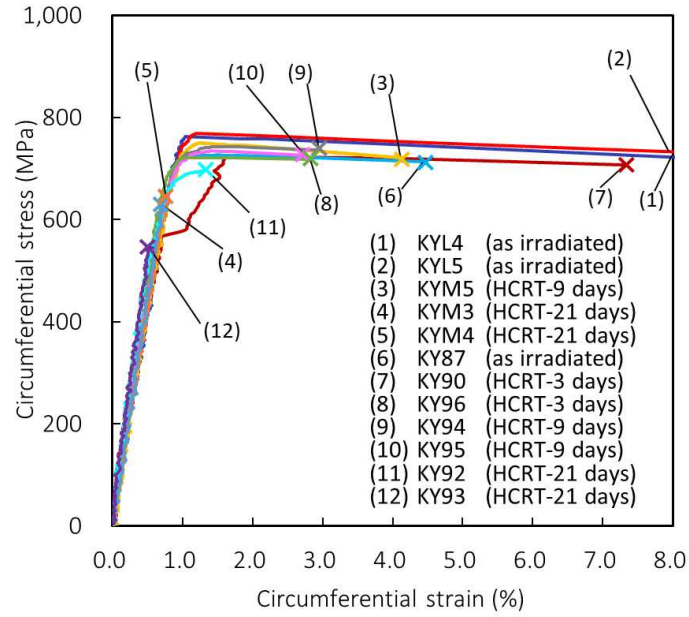
(a) KY87 (as irradiated), (b) KY90 (HCRT-3 days), (c) KY94 (HCRT-9 days), and (d) KY92 (HCRT-21 days)



出典) A. Yamauchi and K. Ogata, "A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides", J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>

図 2.44 水素化物の長さ及び方位を取得する画像解析の概要

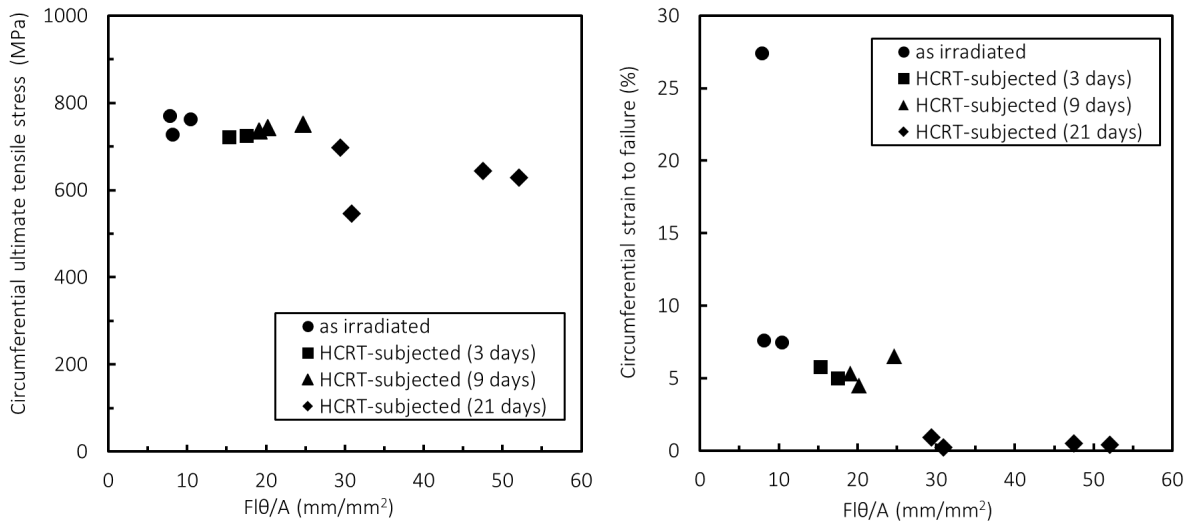
Fig. 2.44 Schematic of the image analysis for obtaining length and radial orientation of each hydride.



出典) A. Yamauchi and K. Ogata, "A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides", J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>

図 2.45 内圧破裂試験で得られた周方向の応力-歪曲線

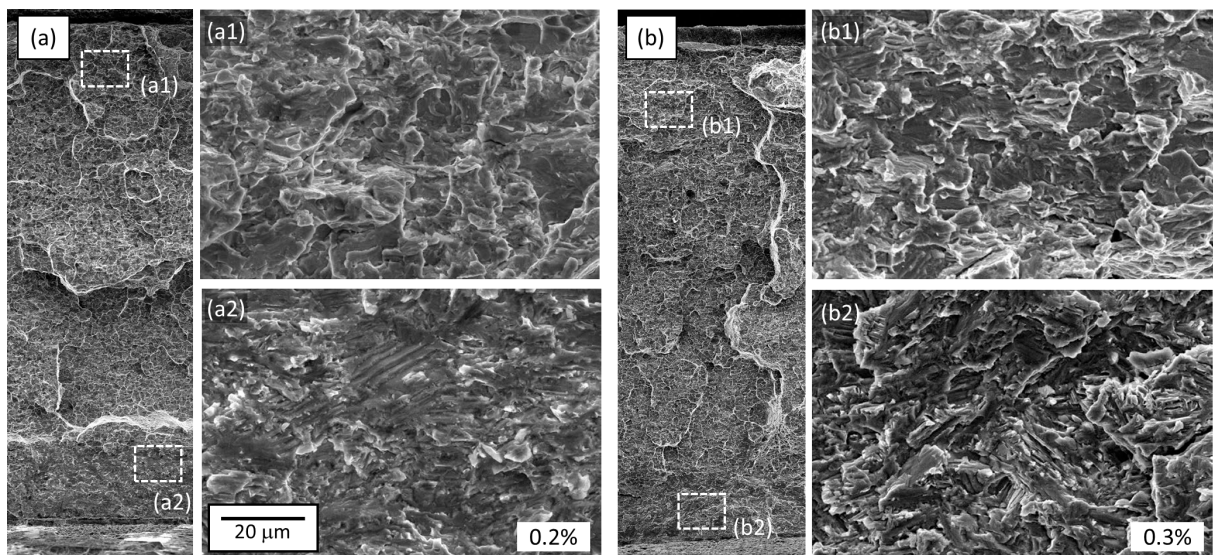
Fig. 2.45 Circumferential stress-strain curves obtained from the tube burst tests



出典) A. Yamauchi and K. Ogata, "A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides", J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>

図 2.46 指標値と周方向引張強さ (左) 及び周方向破損歪 (右) の関係

Fig. 2.46 Circumferential UTS (left) and permanent circumferential strain to failure (right) against  $FI\theta/A$



出典) A. Yamauchi and K. Ogata, “A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides”, J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)<sup>35</sup>

図 2.47 21 日間 HCRT に供した試料の破面 SEM 写真

(a) KY93 (指標値: 30.9 mm/mm<sup>2</sup>)、(b) KYM3 (指標値: 52.1 mm/mm<sup>2</sup>)

Fig. 2.47 SEM fractographs of the samples subjected to HCRT for 21 days

(a) KY93 (index value: 30.9 mm/mm<sup>2</sup>), (b) KYM3 (index value: 52.1 mm/mm<sup>2</sup>)

### 2.3 改良合金燃料被覆管の照射成長に関する試験

水素吸収量の低減等により安全性を向上することを目的として、耐食性を改善した改良合金燃料被覆管の開発が国内外で進められている。改良合金燃料被覆管については、通常運転中の照射成長に関する知見の取得が十分ではなく、照射成長量が大きい場合、燃料棒及び燃料集合体が過度に変形し、燃料棒破損や制御棒挿入性の低下につながる可能性がある。本研究では、PWR 用改良合金燃料被覆管の照射成長挙動を把握するために種々の PWR 用改良合金燃料被覆管を対象とした照射成長試験をハルデン炉にて実施した。なお、本試験は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構等への委託事業として実施した<sup>37</sup>。表 2.13 に供試材とした改良合金被覆管 (Zr-Nb system 及び Zr-Nb-Sn-Fe system) 及び比較用の Zry-4 を示す。改良合金被覆管は、耐食性向上の観点から Nb を添加していることが特徴である。比較用の Zry-4 では、製造時の最終熱処理条件として、冷間加工 (CW)、応力除去焼鈍 (SR)、及び再結晶焼鈍 (RX) の 3 種類、並びに被覆管製造時の Q 値 (圧延時の肉厚減少率と直径減少率の比) として 2 及び 4 の 2 種類を作製した。また、高燃焼度領域では被覆管の腐食に伴い水素吸収量が増加することから、水素吸収が照射成長に及ぼす影響を評価するため、一部の材料について水素を吸収 (約 200ppm もしくは約 400ppm) させたものを作製し、試験に供した。図 2.48 に示すように軸方向を長手方向としたクーポン状の試験片を切断採取し照射試験に供した。照射試験は、ハルデン炉に設置された水ループ (冷却材圧力 15.5MPa) にて、300°C 及び 320°C の加圧水型軽水炉 (PWR) 模擬水化学条件下で、

さらに、照射成長挙動と照射中の温度との関係調べるためハルデン炉の冷却材環境の約240°C条件下において、2011年7月から照射試験を開始した。しかしながら、2018年6月のハルデン炉の廃炉決定方針を受けて、2018年2月で照射試験を終了した。高速中性子照射量は、約  $8 \times 10^{25}$  (1/m<sup>2</sup>, E > 1 MeV) であった。本照射試験期間中には定期的に照射リグから試験片を取出して長さ及び重量測定を実施し、照射前の試験片長さを基準として照射成長量を、照射前後の重量変化から腐食増量を評価した。また、破壊試験として金相観察及び水素分析を実施した。

照射温度240°C、300°C及び320°Cにおける照射成長量と高速中性子照射量との関係を図2.49に示す。いずれの照射温度においても従来使用されていたZry-4(SR、応力除去材)と比較して改良合金被覆管の照射成長量は小さく、照射温度300°C、320°Cにおいて合金成分及び熱処理条件によらず0.2%以内の範囲にあった。照射欠陥の回復程度が小さいと考えられる照射温度240°CにおいてZry-4と改良合金被覆管のSR材を比較すると、Zry-4(SR)より改良合金被覆管(M-MDA(SR))の照射成長は小さい傾向にあり、Nb添加が照射欠陥の蓄積に影響していると考えられた。

図2.50は、あらかじめ水素を200ppmもしくは400ppmまで吸収させた被覆管の照射成長量について合金毎にプロットした。いずれの合金において水素処理材の照射成長量は燃焼末期で増加傾向にあった。水素処理の影響に関してZry-4(RX)の腐食増量と照射成長量の関係を図2.51に示す。図中の数字は照射前後の水素分析値の差分より評価した照射時の水素吸収量を示す。腐食増量と照射成長量の関係は、水素処理の有無で異なる感受性を示し、腐食増量は水素吸収量に対応していると仮定すると、照射時の水素吸収が照射成長に影響している可能性が考えられた。ジルカロイに形成される水素化物はジルカロイよりも密度が低いために水素吸収に伴い、ジルカロイは寸法増加することが知られているが<sup>36</sup>、今回得られた照射成長量と水素吸収量の関係はそれよりも大きい傾向が得られた。改良合金被覆管の水素吸収特性を把握するために水素吸収率(照射時に形成された腐食により発生した水素の被覆管への吸収割合)で整理したものを図2.52に示す。合金により水素吸収率のばらつきはあるものの、水素吸収率は、従来のZry-4(SR)が約15%であるのに対して、改良合金被覆管では10%以下に低減されており、従来材と比較して照射成長に対する水素吸収の影響も低減すると考えられる。

表 2.13 照射成長試験に供した改良合金被覆管

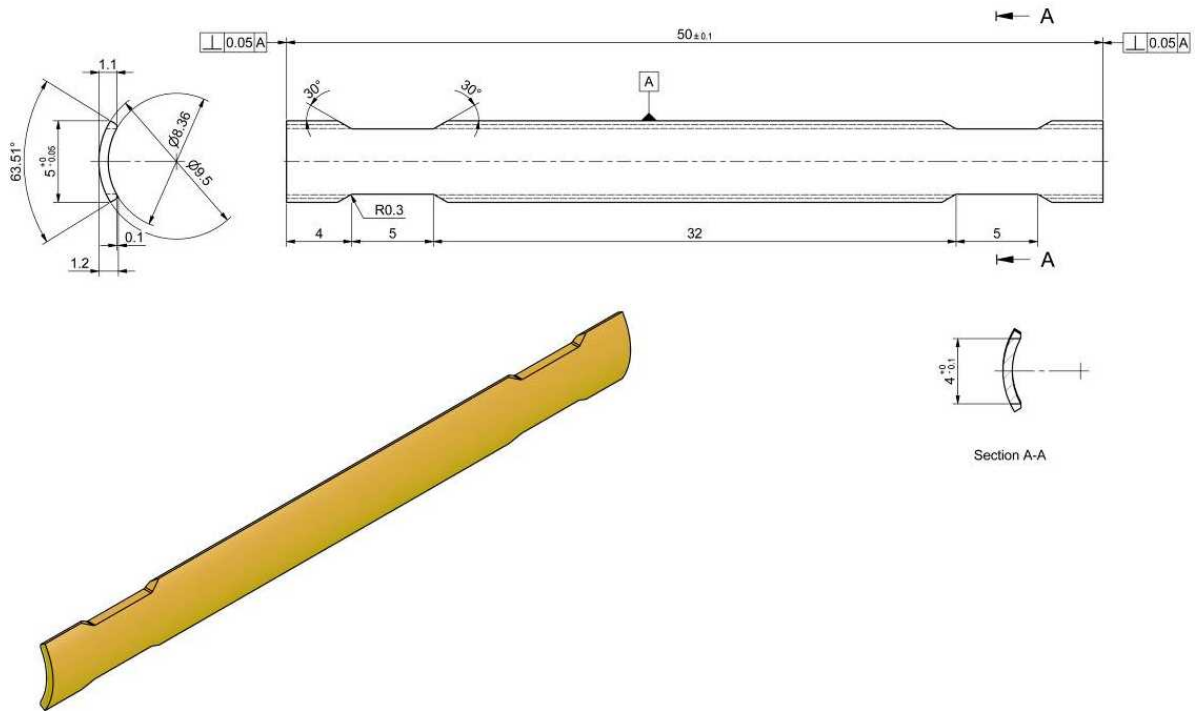
Table 2.13 List of advanced alloy cladding subjected to irradiation test

Alloy*	
Zr-Sn-Fe system (reference)	Zircaloy-4 (CW,Q=2)
	Zircaloy-4 (CW,Q=4)
	Zircaloy-4 (SR,Q=2)
	Zircaloy-4 (SR,Q=4)
	Zircaloy-4 (RX,Q=2)
	Zircaloy-4 (RX,Q=4)
Zr-Nb system	M5
	J-Alloy, J2
	J-Alloy, J3
	E110opt
Zr-Nb-Sn-Fe system	M-MDA (SR)
	M-MDA (RX)
	Q12
	Optimized ZIRLO (P-RX)
	ZIRLO (SR)
	ZIRLO (RX)
E635M	

(\* CW: cold-worked, SR: stress-relieved, RX: recrystallized. P-RX: Partial recrystallized

Q: Q-value at tube fabrication)

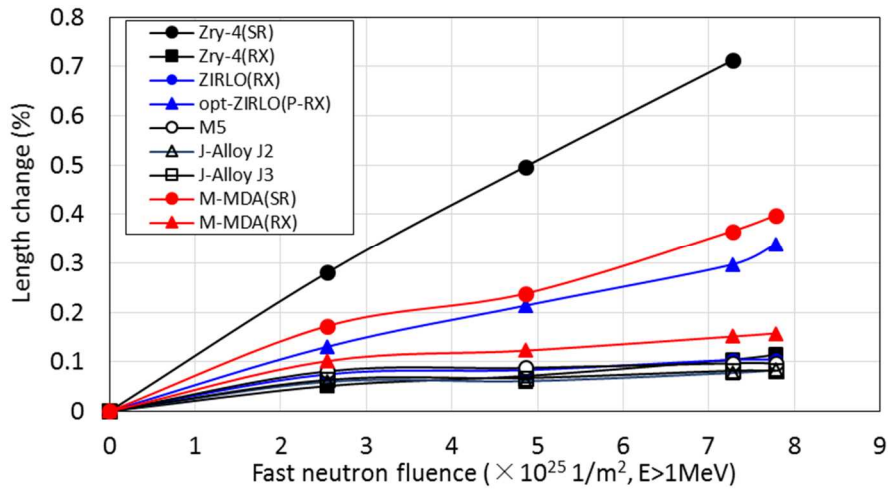
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、「平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (平成 30 年度分)」、平成 31 年 3 月<sup>37</sup>



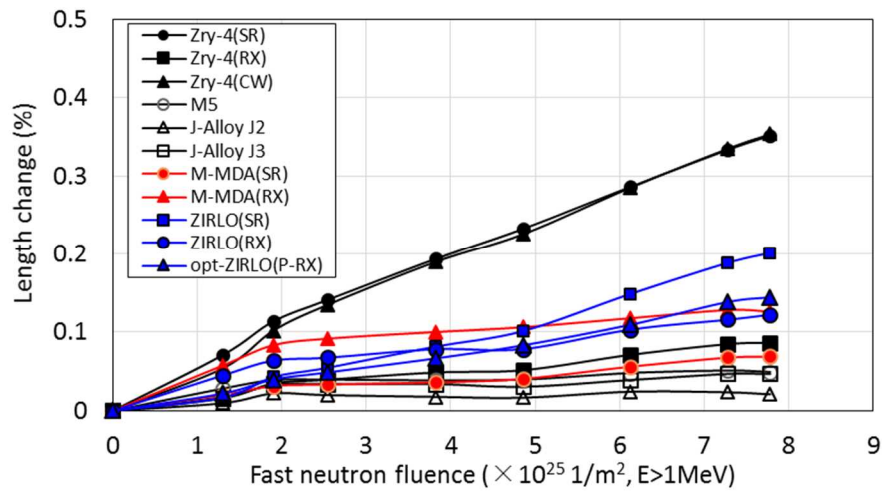
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、「平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (平成 30 年度分)」、平成 31 年 3 月<sup>37</sup>

図 2.48 試験片の形状及び寸法

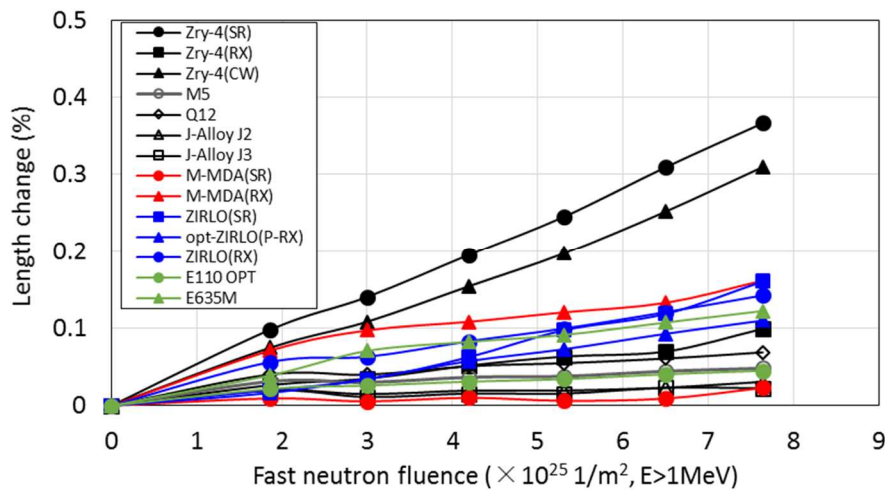
Fig. 2.48 Schematic diagram showing sample shape and size



(a) 照射温度 240°C



(b) 照射温度 300°C

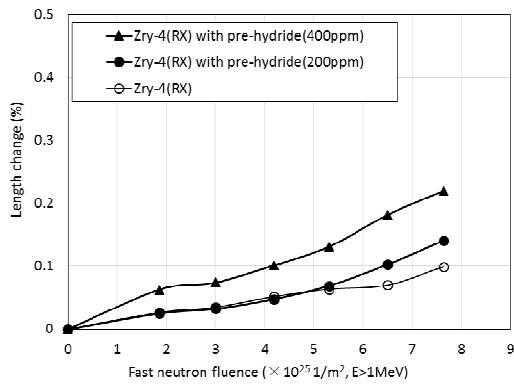


(c) 照射温度 320°C

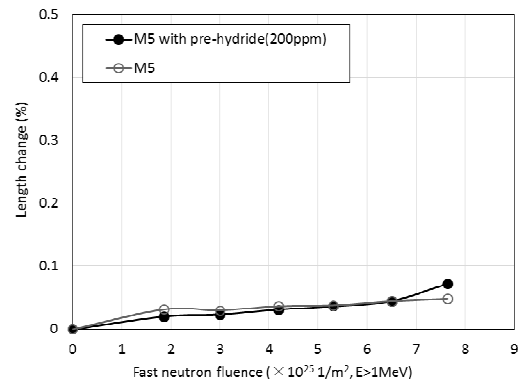
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、「平成 30 年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策等委託費 (燃料設計審査分野の規制研究) 事業 (平成 30 年度分)」、平成 31 年 3 月<sup>37</sup>

図 2.49 Zry-4 及び改良合金被覆管の長さ変化

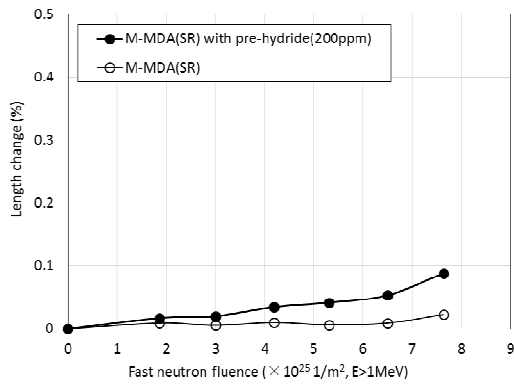
Fig. 2.49 Length changes of Zry-4 and advanced alloy claddings



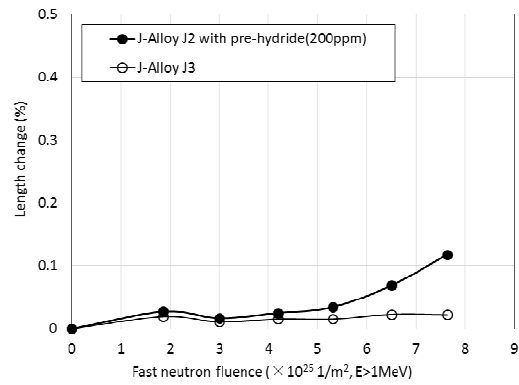
(a) Zry-4(RX)



(b) M5



(c) M-MDA(SR)

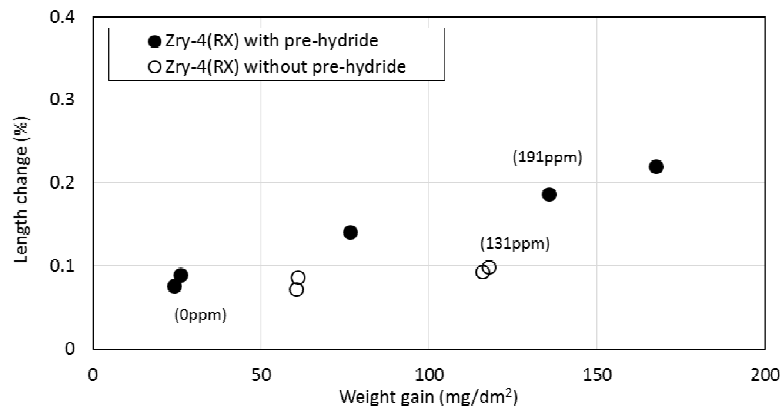


(d) J-alloy J2

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、「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)」、平成 31 年 3 月<sup>37</sup>

図 2.50 あらかじめ水素を吸収させた被覆管の長さ変化 (照射温度 320°C)

Fig. 2.50 Length changes of pre-hydrided claddings (irradiation temperature: 320°C)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、「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)」、平成 31 年 3 月<sup>37</sup>

図 2.51 Zry-4 (RX)被覆管の長さ変化と腐食増量の関係  
(括弧内の数字は水素吸収量を示す)

Fig. 2.51 Relationship between length changes and weight gains for Zry-4 (RX) claddings

(Values written in the figure show amounts of absorbed hydrogen)

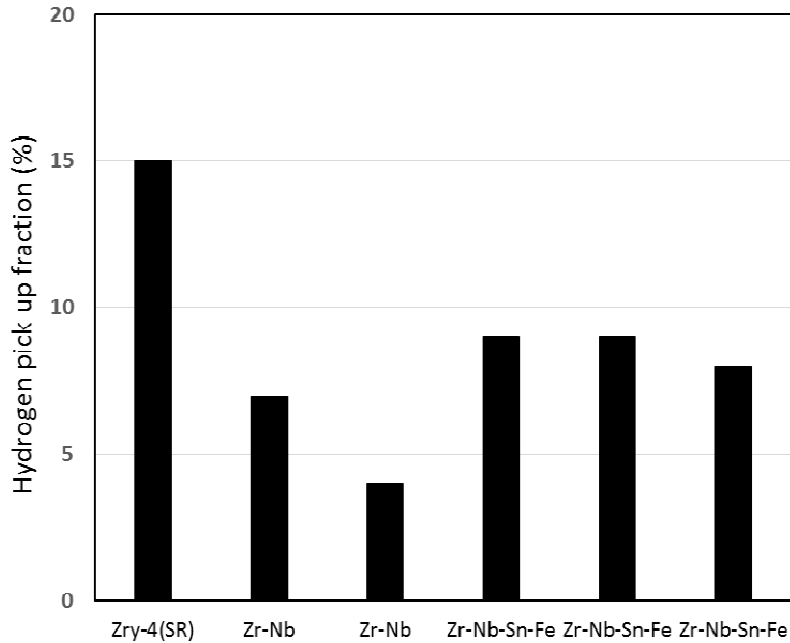


図 2.52 各被覆管の水素吸収率

Fig. 2.52 Hydrogen pick up fractions for each cladding

### 3. 結論

#### 3.1 成果の要点

外面割れ破損に関する研究においては、BWR燃料被覆管を対象とした個別効果試験を実施し、その発生条件について調べた。また、出力急昇時に発生する応力緩和の影響をFEMにより解析的に評価し、試験で得られた結果が保守的であることを確認した。また、PWR使用済燃料被覆管を用いた中子拡管試験により、PWR条件において外面割れ破損が生じない原因について考察した。以上で得られた検討結果より、外面割れ破損が運転時の異常な過渡変化時に系統的には発生しないと考え得る成果を得た。

被覆管の高温における巨視的な延性-脆性遷移に関する研究においては、水素吸収及び水素化物再配向処理を施した高燃焼度BWR燃料被覆管を用いて内圧破裂試験を実施し、約1%の周方向塑性歪を境として水素化物析出に起因する巨視的な延性-脆性遷移が生じることを明らかにした。これにより、現行の1%塑性歪基準の技術的妥当性を確認することができた。

改良合金燃料被覆管の照射成長に関する研究においては、種々のPWR用改良合金燃料被覆管を対象として試験炉での照射試験を実施し、照射成長挙動や水素吸収に関する基礎的な知見を拡充した<sup>37</sup>。

#### 3.2 目的の達成状況

本研究では、外面割れ破損の発生条件について調べ、運転時の異常な過渡変化時に系統的に発生しないと考え得る結果を得ることができた。また、高温における水素化物によ



る巨視的な被覆管の延性—脆性遷移の発生条件を明らかにした。以上により、燃料健全性に係る判断基準の技術的妥当性を確認することができた。さらに、改良合金被覆管について、合金元素含有量等が照射成長挙動に及ぼす影響に関して技術的知見を拡充した。

### 3.3 成果の公表等

#### 3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表

##### (1) 論文 (査読付)

- ① K. Une, K. Ogata, et al., The Terminal Solid Solubility of Hydrogen in Irradiated Zircaloy-2 and Microscopic Modelling of Hydrogen Behavior, *Journal of Nuclear Materials*, 389, pp. 127-136, 2009.
- ② T. Kubo, K. Ogata, et al., In-Situ Scanning Electron Microscope Observation and Finite Element Method Analysis of Delayed Hydride Cracking Propagation in Zircaloy-2 Fuel Cladding Tube, *Journal of ASTM International*, Vol. 8, No. 3, 2011.
- ③ A. Yamauchi and K. Ogata, A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 57 [3], 301-311, 2020.

##### (2) 国際会議のプロシーディング (査読付)

- ① K. Ogata, et al., Progress in the Research Programs to Elucidate Axial Cracking Fuel Failure at High Burnup, *Proc. 2007 International LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, Sept. 30 – Oct. 3 (2007) .
- ② K. Ogata, et al., Separate Effects of Factors Affecting Outside-in Cracking of High Burnup Fuel Cladding, *Proc. 2008 Water Reactor Fuel Performance Meeting*, Seoul, Seoul, Korea, Oct. 19-23, 2008.
- ③ Y. Endo, et al., Ab-initio Study of the Influence of Pressure on the Hydrogen Diffusion Behavior in Zirconium Hydrogen Solid Solution, *Materials Science and Technology 2008*, Pittsburgh, USA, Oct. 5-10, 2008.
- ④ K. Ogata, et al., Effects of Heat Flux on Hydrogen Diffusion and Hydride Induced Crack Propagation in Zr-lined Zircaloy-2 Cladding Tube, *Proc. Top Fuel 2009*, Paris, Sept. 6-10, 2009.
- ⑤ K. Ogata, et al., Hydrogen Thermal Diffusion and Crack Propagation Behaviors in Irradiated Zircaloy-2 Cladding Tubes, *Proc. 2010 LWR Fuel Performance Meeting*, Orlando, USA, Sept. 26-29, 2010.
- ⑥ K. Ogata, et al., Hydrogen-Induced Crack Initiation and Propagation in Zr-Lined Zircaloy-2 Cladding Tubes, *2011 Water Reactor Fuel Performance Meeting*, Chengdu, China, Sept. 11-14, 2011.
- ⑦ K. Ogata, et al., Effect of Increased Hydrogen Content on the Mechanical Performance of

Irradiated Cladding Tubes, Proc. Top Fuel 2012, Manchester, UK, Sept. 2-6, 2012.

- ⑧ K. Ogata, et al., Conditions to Cause Cladding Failure by Hydrogen-Induced Cracking, Proc. 2013 LWR Fuel Performance Meeting, Charlotte, USA, Sep. 15-19, 2013.

(3) その他

- ① K. Ogata, et al., Research Program on the Key Factors Controlling Outside-in Cracking Fuel Failure, Enlarged Halden Programme Group Meeting, Loen, Norway, May 18-23, 2008.
- ② A. Yamauchi, et al., An Overview of Experimental Studies On the Hydride-Induced Fuel Failure during Power Ramp, OECD/NEA Workshop –Pellet-Cladding Interaction (PCI) in Water-Cooled Reactors, Lucca, Italy, June, 2016.
- ③ A. Yamauchi, et al., Quantification of Morphology of Zr-Hydride Precipitates for Evaluation of High-Burnup Fuel Cladding Mechanical Property, NuMat2016, Montpellier, Nov. 7-10, 2016.
- ④ 緒方恵造 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (1) 温度勾配下における燃料被覆管中水素の再分布試験、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月
- ⑤ 久保利雄 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (2) 燃料被覆管半径方向亀裂進展速度の微視的評価、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月
- ⑥ 牟田浩明 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (3) 有限要素法による亀裂先端近傍の水素拡散解析、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月
- ⑦ 久保利雄 他、日本原子力学会 2009 年秋の大会 (4) 燃料被覆管半径方向亀裂進展速度の微視的評価Ⅱ、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月
- ⑧ 牟田浩明 他、日本原子力学会 2009 年秋の大会 (5) 有限要素法による亀裂近傍の水素流量評価、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月
- ⑨ 緒方恵造 他、日本原子力学会 2009 年秋の大会 (6) 熱拡散による燃料被覆管外周部への水素化物集積条件評価試験、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月
- ⑩ 馬場利和 他、日本原子力学会 2010 年秋の大会 (7) 照射済み燃料被覆管の半径方向水素熱拡散試験、日本原子力学会 2010 年秋の大会、2010 年 9 月 (査読なし)
- ⑪ 緒方恵造 他、日本原子力学会 2010 年秋の大会 (8) 外面割れ亀裂発生模擬試験、日本原子力学会 2010 年秋の大会、2010 年 9 月
- ⑫ 緒方恵造 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (9) 外面初期亀裂発生条件の評価、日本原子力学会 2011 年秋の大会、2011 年 9 月 (査読なし)
- ⑬ 緒方恵造 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (10) 燃料被覆管の外面割れによる破損条件の検討、日本原子力学会 2012 年秋の大会、2012 年 9 月 (査読なし)
- ⑭ 山内紹裕 他、使用済 BWR 燃料被覆管の機械的性質に及ぼす水素化物析出形態の影響、日本原子力学会 2016 年春の年会、2016 年 3 月 (査読なし)
- ⑮ 山内紹裕 他、内圧破裂試験による高燃焼度 BWR 燃料被覆管の機械的性質評価、日

本原子力学会 2018 年春の年会、2018 年 3 月（査読なし）

### 3.3.2 委託先等による公表

#### (1) 論文（査読付）

- ① 垣内、天谷、“燃料被覆管用改良合金の照射成長挙動”，日本原子力学会和文論文誌，Vol. 19、No.1、pp. 24-33

#### (2) 国際会議のプロシーディング（査読付）

- ① M. Amaya, T. Mihara, K. Kakiuchi, “Irradiation Growth Behavior of Improved Zr-Based Alloys for Fuel Cladding”, Top Fuel 2019, Seattle, USA, September (2019).

#### (3) その他

- ① 垣内、天谷、“ジルカロイ-4 被覆管の照射成長に及ぼす製造条件の影響”、日本原子力学会 2020 年春の年会、福島、2020 年 3 月
- ② 垣内、天谷、“ジルカロイ-4 被覆管の照射成長に及ぼす水素吸収の影響”、日本原子力学会 2020 年秋の年会、オンライン開催
- ③ 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) 日本原子力研究開発機構 安全研究センター、平成 23 年 9 月.
- ④ 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) 日本原子力研究開発機構 安全研究センター、平成 25 年 3 月.
- ⑤ 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) 日本原子力研究開発機構 安全研究センター、平成 26 年 3 月.
- ⑥ 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) 日本原子力研究開発機構 安全研究センター、平成 26 年 3 月.
- ⑦ 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) 日本原子力研究開発機構 安全研究センター、平成 27 年 3 月.
- ⑧ 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、(国研) 日本原子力研究開発機構 安全研究センター、平成 28 年 3 月.
- ⑨ 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 安全研究センター、平成 30 年 1 月.
- ⑩ 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 安全研究センター、平成 31 年 3 月.
- ⑪ 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 安全研究センター、平成 31 年 3 月.

- ⑫ 平成 31 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（燃料破損に関する規制高度化研究）事業（平成 31 年度分）、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、令和 2 年 11 月。

### 3.4 成果の活用等

本研究により、外面割れ破損が運転時の異常な過渡変化時に系統的には発生しないと考え得る成果を得た。これにより、これまで破損モードとして検討されていなかった外面割れ破損を考慮してもなお現行基準が適用可能であることを確認することができた。また、本研究の成果により、1%塑性歪基準の技術的妥当性を確認することができた。さらに、本研究で得た改良合金被覆管の照射成長に関するデータは、改良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の一つとして活用することが期待される。

### 3.5 今後の課題等

近年、全電源喪失等の過酷な状況が発生した場合においても、シビアアクシデントへの進展を遅らせるような核燃料、すなわち事故耐性燃料の開発が国際的に進められており、我が国においても経済産業省資源エネルギー庁の補助事業として研究開発が行われている。事故耐性燃料においては被覆管及びペレットに従来とは異なる材料が使用されるため、導入の際には、それら材料についても異常過渡及び事故時の安全性に関する各種挙動について調べることが重要である。

## 参考文献一覧

- 1 原子力規制委員会、「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」、平成 25 年 6 月 28 日
- 2 「『燃料被覆管は機械的に破損しないこと』の解釈の明確化について」、昭和 60 年 7 月 18 日、原子力安全委員会了承
- 3 L. A. Simpson and C. D. Cann, Fracture toughness of zirconium hydride and its influence on the crack resistance of zirconium alloys, *J. Nucl. Mater.* 1979; 87; 303-316
- 4 Uchida M, Ichikawa M. Effect of pre-hydrating on post-irradiation ping-tensile properties of Zircaloy-2 cladding tube. *J. Nucl. Sci. Technol.* 1976; 13:585-590.
- 5 燃料関連指針類検討小委員会、「燃料の安全機能の明確化及び安全設計に対する要求の具体化について（案）」、燃小委 7-2 号、平成 22 年 3 月 8 日
- 6 大澤 他、「連載講座 核燃料工学の基礎—軽水炉燃料を中心に 第 10 回 燃料の研究開発と管理」、日本原子力学会誌、Vol. 47、No. 3、pp. 208-216 (2005)
- 7 Ogata K, Baba T, Kamimura K, Matsunaga J, Nakatsuka M, Sakamoto K, Sawada A. Effect of increased hydrogen content on the mechanical performance of irradiated cladding tubes. *Proc.: Top Fuel 2012*; 2012 Sep 2-6; Manchester (United Kingdom).
- 8 Y. Hirano, et al., Irradiation Characteristics of BWR High Burnup 9X9 Lead Use Assemblies, *Proc. 2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting*, Kyoto, Oct. 2-6, 2005.
- 9 財団法人原子力発電技術機構、「平成 13 年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書（BWR 高燃焼度燃料総合評価編）」、平成 14 年 3 月
- 10 Marshall R. P. Influence of fabrication history on stress-oriented hydrides in Zircaloy tubing. *J. Nucl. Mater.* 1967; 24:34-48.
- 11 Bai J. B, Prioul C, Francois D. Hydride embrittlement in Zircaloy-4 plate: part I. influence of microstructure on the hydride embrittlement in Zircaloy-4 at 20 °C and 350 °C. *Metall. Mater. Trans. A.* 1994; 25A:1185-1197.
- 12 Aomi M, Baba T, Miyashita T, Kamimura K, Yasuda T, Shinohara Y, Takeda T. Evaluation of hydride reorientation behavior and mechanical properties for high-burnup fuel-cladding tubes in interim dry storage. *Proc.: 15th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*, ASTM STP 1505; 2007 Jun 24-28; Sunriver (United States).
- 13 Billone C. M, Burtseva A. T, Einziger E. R. Ductile-to-brittle transition temperature for high-burnup cladding alloys exposed to simulated drying-storage conditions. *J. Nucl. Mater.* 2013; 433:431-448.
- 14 株式会社グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン、「沸騰水型原子力発電所 9x9 燃料について」、平成 15 年 4 月
- 15 三菱原子燃料株式会社、「三菱 PWR 高燃焼度化ステップ 2 燃料の機械設計」、平成 21 年 6 月

- 16 C. E. Ells, Hydride precipitation in zirconium alloys (A review), J. Nucl. Mater., vol. 28, pp. 129-151, 1968
- 17 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 20 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」09 原燃報-0002、平成 21 年 12 月
- 18 J. J. Kearns, Terminal solubility and partitioning of hydrogen in the alpha phase of zirconium, Zircaloy-2 and Zircaloy-4, J. Nucl. Mater., vol. 22, pp. 292-303, 1967.
- 19 宮下 他、「BWR 高燃焼度 9x9 型燃料信頼性実証」、日本原子力学会論文誌、Vol. 7、No. 4、pp. 380-395 (2008)
- 20 A. Sawatzky, Hydrogen in Zircaloy-2: its distribution and heat of transport, J. Nucl. Mater., 2[4], 321-328 (1960).
- 21 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 16 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書その 2 被覆管特性評価試験」05 基炉報-0005、平成 17 年 12 月
- 22 K. Une and S. Ishimoto, Terminal solid solubility of hydrogen in unalloyed zirconium by differential scanning calorimetry, J. Nucl. Sci. Technol., 41[9], 949-952 (2004).
- 23 I. Takagi, et al., A Simple Model for Hydrogen Re-distribution in Zirconium-lined Fuel Claddings, J. Nucl. Sci. Technol., 39[1], 71-75 (2002).
- 24 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 21 年度 高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」10 原燃報-0002、平成 23 年 3 月
- 25 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 22 年度高燃焼度燃料破損限界試験成果報告書」11 原燃報-0002、平成 24 年 12 月
- 26 K. Sakamoto, M. Nakatsuka, T. Higuchi, "Simulation of cracking during outside-in type failure of high burn-up fuel cladding tubes", Proceedings of RFPM2008, Water Reactor Fuel Performance Meeting in Seoul, Oct. 19-23, 2008
- 27 日刊工業新聞社、「ジルコニウム合金ハンドブック」(初版)、1997 年 9 月 30 日
- 28 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度 高燃焼度 9 × 9 燃料信頼性実証成果報告書 付録 1 (9 × 9 A 型燃料照射後試験結果)」、07 基炉報-0002、平成 19 年 12 月
- 29 EG&G Idaho, Inc. "MATPRO-VERSION 11 (Revision 2) A handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior"
- 30 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「燃料挙動解析コード FEMAXI-8 の開発—軽水炉燃料挙動モデルの改良と総合性能の検証—」JAEA-Data/Code2018-016、平成 31 年 1 月
- 31 K. Ogata, et al., "Conditions to Cause Cladding Failure by Hydrogen -Induced Cracking", Proc. 2013 LWR Fuel Performance Meeting, Charlotte, NC, Sep. 15-19 (2013).
- 32 独立行政法人原子力安全基盤機構、「平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書」07 基炉報-0003、平成 19 年 11 月

- 33 「発電用軽水型原子炉施設の安全評価に関する審査指針」、平成2年8月30日、原子力安全委員会決定
- 34 東京電力株式会社、「福島第二原子力発電所 原子炉設置変更許可申請書 本文及び添付書類」
- 35 A. Yamauchi and K. Ogata, “A study on macroscopic fuel cladding ductile-to-brittle transition at 300°C induced by radial hydrides”, J. Nucl. Sci. Technol., 57 [3], 301-311 (2020)
- 36 S.J.King, et al., ”Impact of hydrogen on dimensional stability of ZIRLO fuel assemblies” ASTM STP 1423, 2002
- 37 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター、「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）」、平成31年3月

## 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

山内 紹裕 技術研究調査官

北野 剛司 上席技術研究調査官