4.4 RIA 試験

RIA 時の燃料挙動及び破損限界についてデータを取得するため、室温条件下における RIA 模擬試験を1回(OS-2実験)、NSRRにおいて実施した。

さらに、RIA時に被覆管に作用する荷重の多軸性が高燃焼度燃料の破損に及ぼす影響を 明らかにするため、周方向と軸方向の応力を独立に与えることができる多軸応力負荷試験 装置を用いた被覆管機械特性試験を実施した。

4.4.1 OS-2 実験

高燃焼度 BWR-UO2燃料を対象とした室温実験 OS-2 を令和2年3月24日に実施した。 燃料エンタルピ増分のピーク値 260 J/g (62 cal/g)の実験条件に対し、燃料は破損しなかった。

(1) 試験燃料棒

試験燃料は、表 4.1-1 に示す AP2-22 燃料セグメント (スウェーデン・オスカーシャム 3 BWR 照射 Zry-2(LK-3) 被覆燃料)から採取した。図 4.4.1-1 に燃料セグメントからの採 取位置及び上下端栓取付け後の燃料棒概略を示す。スタック長はペレット 11 個分で、X 線写真撮影に基づく測定によれば約 111 mm であった。セグメント燃料棒のガンマ線強度 分布はトップ側がやや高いことから、試験燃料の平均燃焼度はセグメント燃焼度よりやや 高い約 63 GWd/t と評価した。試料採取範囲における被覆管外面酸化膜厚さの平均値は約 27 µm と評価した。被覆管水素吸収量については、燃料セグメント AP2-24 に関する分析 結果に基づき約 287 ppm と評価した。燃料棒加工時に被覆管内には室温で 0.1 MPa の He を封入した。

パルス照射前の試験燃料棒に対して実施した外観観察、X線写真撮影、寸法測定の結果 をそれぞれ図 4.4.1-2 から図 4.4.1-4 に示す。X線写真撮影では、上部ハフニウムと燃料ペ レットの間に 0.5 mm 程度の隙間が確認されたが、TWODANT コードを用いた中性子輸 送計算によりエンドピークに及ぼす影響は小さいことを確認した。その他、パルス照射実 験において問題となり得る傷、欠陥、扁平化、曲がりなどは見られなかった。寸法測定で は、パルス照射実験において問題となり得る傷、欠陥などは見られなかった。

(2) 実験条件および計装

パルス照射実験の条件を以下に示す。

実験カプセル:	XII-I型 (室温・大気圧用)
パルス照射時冷却水条件:	16℃、0.1 MPa の静止水
投入反応度:	\$4.53
燃料エンタルピ増分ピーク値:	260 J/g (62 cal/g)

計装項目を以下に示す。また、図 4.4.1-4 に計装取付けの概要を示す。

カプセル内圧計(液相#1) 燃料棒内圧計(スタック下部) AE センサ 2 個(燃料破損検出用) 水塊速度計 カプセル外面歪みゲージ クラッド歪みゲージ(スタック部以外:#1,スタック部(軸方向):#2,#5,スタッ ク部(周方向):#3,#4) 冷却水温度測定用シース熱電対 2 箇所

(3) 過渡計測記録の概要

2 台の中性子検出器で測定した NSRR の炉出力履歴を図 4.4.1-6(1)及び(2)、積分出力履 歴を図 4.4.1-6(3)及び(4)に、前節で示した計測項目に関する過渡記録を図 4.4.1-6(5)から (17)に、時刻 0 から 10 秒まで、0 から 1 秒まで及び 0.248 から 0.264 秒までの 3 区間につ いてそれぞれ示す。

過去に実施した NSRR 実験より、歪みゲージを使用したセンサ(圧力計等)や熱電対の出 力には NSRR 出力の履歴によく似た波形のノイズや、パルス照射以後も継続するドリフト が発生し得ることが判明している。このノイズ及びドリフトの要因は、出力にほぼ比例し た強度で発生するガンマ線が歪みゲージ素子や熱電対素子の電気的特性に与える影響、ガ ンマ発熱による素子自身の温度上昇による特性変化などと理解されるが、精度良く補正す ることは困難であるため本報告においては得られた過渡計測結果をそのまま示す。

(a) NSRR 出力・積分出力

図4.4.1-6(1),(2)及び(3),(4)にNSRR出力履歴及び積分出力履歴をそれぞれ示す。NSRR 出力は時刻0.2552秒においてピーク値約20.3 GW に達し、半値幅は約4.4 ms であった。 なお、NSRRの計測システムは積分演算を1秒までしか行わないため、時刻1秒以降の積 分出力は一定値として記録される(破線部)。炉物理計算による評価によれば、本実験にお ける積分出力は時刻無限大で121.1 MJ に達した。NSRRの出力ピーク値及び時刻無限大 における積分出力は、#1と#2の平均値を用いて算出した。

(b) カプセル内圧

図 4.4.1-6 (5)に、それぞれカプセルの液相部で計測した圧力の履歴を示す。時刻 0.251 秒過ぎから僅かな圧力の低下が見られるが、これは NSRR 出力パルスに同期したノイズで ある。燃料破損による圧力上昇と解釈されるようなスパイク状の圧力波は観測されていない。

(c) 燃料棒内圧

図 4.4.1-6 (6)に燃料棒内圧の履歴を示す。時刻 0.25 秒以降に圧力上昇が見られるが、燃料棒内ガスの熱膨張やペレットからの FP ガス放出により実際に圧力が上昇した可能性がある一方で、NSRR パルス出力に同期したノイズの可能性もある。

(d) AE センサ出力

図 4.4.1-6 (7)及び(8)に AE センサ#1 及び#2 の出力信号を示す。このセンサはカプセル 構造材を伝わる音響波を計測するものであり、燃料破損の検出を目的として設置した。2 つのセンサを用いたが、いずれにおいても 0.253 から 0.257 秒にかけて僅かな振幅が見ら れた。これは、パルス照射時の温度上昇に伴いペレットが熱膨張し、被覆管を内側から押 し拡げた際に発生した音響を測定したためと考えられる。

(e) 水塊速度計信号

図 4.4.1-6 (9)に水塊速度計の出力信号を示す。燃料破損時に見られる振動は表れていない。

(f) カプセル外面歪み

図 4.4.1-6 (10)にカプセル蓋の外表面に設置した歪みゲージの信号を示す。この歪みゲージは実験時のカプセルへの負荷を確認するために設置したものである。カプセルへの過度の負荷を示す信号は見られなかった。圧力計の出力と同様に、NSRR パルス出力に同期したノイズが記録された。

(g)クラッド歪みゲージ

図 4.4.1-6 (12)及び(13)に図 4.4.1-4 に、スタック部ではない被覆管表面(軸方向:#1) 及びスタック部の被覆管表面(軸方向:#2,#5、周方向:#3,#4)に貼り付けたクラッド 歪みゲージの履歴をそれぞれ示す。非スタック部の歪みゲージは、スタック部の歪みゲー ジで測定されるパルス照射によるノイズを除去することを目的として貼り付けた。歪みゲ ージ#1,#2,#3,#4,#5 で測定されるパルス照射によるノイズは同じ信号であると仮定し、 歪みゲージ#2,#3,#4,#5 の信号から#1 の信号を差し引いた結果を図 4.4.1-6 (18)に示す。 歪みゲージ#3,#5 の信号で約 0.25 秒から僅かな低下が記録されている。PCMI による歪み が低下するとは考えられないことから、パルス照射に伴うノイズ全てを除去できていない 可能性が考えられる。またこの原因として、パルスノイズ感受性における歪ゲージ毎の個 体差、パルスノイズ感受性のカプセル内位置依存性が考えられる。以上から歪みの値は不 (h) 冷却水温度

図 4.4.1-6 (16)及び(17)に燃料スタック中心高さ(#1)及び燃料棒上端付近(#2)で測定 した冷却水温度の履歴を示す。いずれの熱電対も燃料棒からの距離は約 10 mm である。

熱電対#1 による温度履歴において短時間だけ温度が低下しているのは NSRR パルス出 力に同期したノイズと解釈される。熱電対#2 による温度履歴ではパルス照射の時刻に温度 の低下が示されているが、これは熱電対の設置方法に起因する。熱電対#2 の冷接点(温度 基準点)はカプセル蓋付近に設けられていたため、パルス照射時のガンマ発熱により冷接 点の温度が上昇し、かつ、気相中であるため短時間では温度が低下しなかったと推測され る。そのため、温度計測点において見かけ上の温度低下が記録されたと解釈される。



図 4.4.1-1 OS-2 試験燃料棒の構造概略



図 4.4.1-2 OS-2 試験燃料棒のパルス照射前外観写真



図 4.4.1-3 OS-2 試験燃料棒のパルス照射前 X 線写真



図 4.4.1-4 OS-2 試験燃料棒のパルス照射前寸法測定結果



図 4.4.1-5 OS-2 実験における計装取付けの概要



図 4.4.1-6(1) OS-2 実験における原子炉出力履歴(#1)



図 4.4.1-6 (2) OS-2 実験における原子炉出力履歴(#2)

4章







図 4.4.1-6 (5) OS-2 実験におけるカプセル内液相圧力履歴







4.4-17



図 4.4.1-6 (9) OS-2 実験における水塊速度計出力履歴







図 4.4.1-6 (12) OS-2 実験における軸方向クラッド歪みゲージ(#2)



図 4.4.1-6 (13) OS-2 実験における周方向クラッド歪みゲージ(#3)



図 4.4.1-6 (14) OS-2 実験における周方向クラッド歪みゲージ(#4)











図 4.4.1-6 (17) OS-2 実験における冷却水温履歴(#2)



図 4.4.1-6 (18) 歪みゲージ#2, #3, #4, #5 の信号から#1 の信号を引いた結果の履歴

室温実験 OS-1 は、高燃焼度 BWR-UO2燃料(ADOPT 燃料)を対象として平成 30 年 7 月 20 日に実施した。パルス照射中の過渡記録⁽¹⁾及び一部の照射後試験⁽²⁾については既に報告した。本節 では、令和元年度に実施した照射後試験の結果を示す。

(1) 燃料微粒子の粒径分布測定

破損した燃料棒からカプセル冷却水中に放出されたペレットを回収・乾燥した後に篩分し、重 量を測定した。表 4.4.2-1 に、粒径別の重量測定結果を示す。

(2) 被覆管の金相観察

図 4.4.2-1 に示すように、燃料棒被覆管から金相試料(MC2)を採取した。金相断面を試験燃料棒下端側から観察した。それぞれの結果に対する図番は以下の通りである。

図 4.4.2-2: MC2 試料断面エッチング前

図 4.4.2-3: MC2 試料断面エッチング後

図 4.4.2-4: MC2 試料断面エッチング後(周方向に広範囲)

図 4.4.2-3 より開口部付近 (Photo 2-2 及び Photo 2-2-1)の被覆管では、径方向のき裂が多数 観察される。図 4.4.2-4 より RIA 試験前と同様に径方向に配向した水素化物が多く存在している ことが分かる。Photo 3-2 及び 3-3 に示された開口部付近の金相断面に着目すると、外面側に径方 向に配向した水素化物が多く存在し、巨視的には被覆管の肉厚方向にき裂が進展していることが 分かる。径方向に配向した水素化物を経由しながらき裂が進展し、途中で母相中を進展して最終 的に貫通したと考えられる。このようなき裂進展は従来観察されてきた典型的な BWR 燃料の PCMI 破損の破損形態であり、OS-1 実験燃料棒の破損において、径方向に配向した水素化物が重 要な役割を果たしたことを示唆している。

	[
粒径	篩分後重量	重量比
↑业1±.	(g)	(%)
4000 μm 以上	—	_
$2000~\mu\text{m}-4000~\mu\text{m}$	_	
$1000~\mu\text{m}-2000~\mu\text{m}$	—	_
$500~\mu m - 1000~\mu m$	1.4820	2.58
$250~\mu\mathrm{m}-500~\mu\mathrm{m}$	4.8036	8.36
$125~\mu\mathrm{m}-250~\mu\mathrm{m}$	12.3026	21.41
$63~\mu m - 125~\mu m$	21.0639	36.66
$32 \ \mu m - 63 \ \mu m$	15.1382	26.34
32 µm 未満	2.6722	4.65
計	57.4624	100
計(篩分前)	58.7605	_

表 4.4.2-1 OS-1 実験で燃料棒外に放出された燃料微粒子の粒径分布測定結果



図 4.4.2-1 OS-1 実験で破損した被覆管の金相試料採取位置



図 4.4.2-2(1) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2, エッチング前)



図 4.4.2-2(2) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2、エッチング前)



図 4.4.2-2(3) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2、エッチング前)







図 4.4.2-2(4) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2、エッチング前)



図 4.4.2-3(1) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2, エッチング後)



図 4.4.2-3(2) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2, エッチング後)





図 4.4.2-3(3) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2, エッチング後)







図 4.4.2-3(4) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2, エッチング後)



図 4.4.2-4(1) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2, エッチング後)



図 4.4.2-4(2) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2 被覆管エッチング後)



図 4.4.2-4(3) OS-1 パルス照射実験後の被覆管金相写真(MC2 被覆管エッチング後)

CN-1 実験は、高燃焼度 PWR-MOX 燃料を対象とした室温実験として平成 30 年 9 月 7 日に実施し、パルス照射中の過渡記録及び照射後試験(燃料棒治具付外観観察)については既に報告した⁽²⁾。本報告では、新たな照射後試験で得られた結果を示す。

(1) 外観観察(治具取外後)

パルス照射実験後の外観写真を図 4.4.3·1 及び図 4.4.3·2 に示す。概ね 0°方向に亀裂及びその 周辺に白い堆積物のようなものが観察された。また、180°方向に同様の白い堆積物のようなもの が観察された。白い堆積物は、亀裂から出た FP が析出したものあるいは DNB 中生じた酸化膜で ある可能性が考えられる。また、堆積物が、外観写真、X 線写真から CN-1 試験燃料棒中で比較 的膨れが大きい箇所で生じていること、試験中の熱電対データが最高 800℃程度を示した箇所⁽²⁾ の周辺で生じていることから、燃料棒中で比較的温度が高い箇所で堆積物が生じたと考えられる。

なお、180°方向に観察される痕は、熱電対の取付け痕(2箇所)である。

(2) X 線透過試験

パルス照射実験後のX線透過写真を図 4.4.3-3 及び図 4.4.3-4 に示す。スタック上下端以外のペレットについては、ペレット境界の位置がパルス照射の前後でほぼ同じであるが、上下端のペレットは、合わせて約 5 mm 軸方向に伸びていることがわかる。

また、亀裂部周辺において小さな空間が観察されたが、これは、ペレットが亀裂部から放出したこと、もしくは FP ガスに伴う燃料棒内圧上昇により被覆管が膨れたことによると考えられる。

外観及びX線撮影に基づいて試験前後の外径変化から大まかに評価した被覆管の塑性ひずみは 5-6%程度であった。RANNSコードによるとCN-1実験時のペレットの熱膨張による被覆管塑性 ひずみの評価値は約2.5%である⁽²⁾ことから、PIEで大まかに得られた評価値と比較すると、RIA 試験中にFPガス放出に伴う内圧上昇の寄与があったことが示唆される。

なお、スタックの上下に配置してあるアルミナペレット部分に、パルス照射前には見られなか った影が見えるが、これは燃料ペレットの一部と考えられる。



図 4.4.3-1 CN-1 試験燃料棒のペルス照射後治具取外後外観

4.4-43





4.4-44



図 4.4.3-3 CN-1 試験燃料棒のパルス照射後X線写真

4.4-45

Bottom 5cm CN-1 亀裂側面(上面に亀裂)から撮影 CN-1 亀裂正面から撮影 Тор

図 4.4.3-4 CN-1 試験燃料棒のパルス照射後 X線写真(亀裂正面及び亀裂側面から撮影)

RIA 時に膨張したペレットから被覆管が受ける応力は周方向及び軸方向の二軸性を有し ており、RIA 時の燃料破損挙動を解析及び評価するためには、この応力二軸性が被覆管の 変形・破損挙動に及ぼす影響を把握する必要がある。この影響を調べるため、平成22 年度 の本事業において二軸応力条件下での被覆管機械特性試験が可能な試験機を開発した⁽³⁾。

この試験装置を用い、Zry-4 被覆管の最終処理条件として応力除去焼鈍を施した材料(SR 材*)、再結晶焼鈍を施した材料(RX 材**)及び冷間加工まま材料(CW 材***)を準備し、 これらを対象とした試験を平成23年度から実施してきている⁽³⁻¹⁰⁾。平成23、24及び26年 度には、SR 材、RX 材及び CW 材を対象に公称応力及び真応力制御により試験を実施し た。平成24、25年度には、製造時の加工度を変えた被覆管(Q 値変更被覆管)のうちSR 材及び RX 材を対象とした試験を実施した。平成26年度には、SR 材を対象に、高温条件

(100℃、150℃及び200℃) での試験を実施した。平成27 年度には、水素吸収させた被覆 管(SR、RX 材及びCW材)を製作し、試験を実施した。平成28、29及び30 年度は、 水素吸収させた被覆管(SR 材)に析出した水素化物の方位を再配向させた被覆管を作製し、 それらを対象とした試験を実施した。

本年度は、Q 値変更被覆管の内 CW 材及びその水素吸収処理に水素混合ガスを用いて水 素化物を析出させた被覆管を対象とした試験を実施した。また、昨年度までに実施した水素 化物の析出方位を再配向させた被覆管の試験後金相観察に基づく水素化物析出形態の評価 結果を用いて径方向水素化物の破損限界低下への影響を調べた。

(* SR: stress-relieved、 ** RX: recrystallized、 ***CW: cold-worked)

4.4.4-1 CW 材を対象とした被覆管機械特性試験

(1) 試験方法

二軸応力条件下での被覆管機械特性試験は、コンピューター数値制御(CNC)サーボ型 二軸応力負荷制御試験機⁽¹⁾により実施した。この試験機の特徴は単位時間あたりの軸及び周 方向の応力や歪みの増分を制御した負荷を試験片にかけられることである。昨年度までと 同様に応力比(軸方向応力/周方向応力)を一定に制御した試験を行う一方今年度は歪み比 (軸方向ひずみ/周方向歪み)制御での試験も検討した。

応力比制御による試験は、二軸応力条件下における降伏条件を表す等塑性仕事面[Hill]を 導出するためのデータ取得に必要であることや、歪み比制御時に比べて破損限界がやや小 さくなる傾向があることから、従来基本的な試験制御条件として採用している。一方、RIA 時PCMIの被覆管応力状態に関する有限要素解析結果(4.6.7章)では、PCMI負荷によって 生じる被覆管外面周歪み1.5%程度までの条件範囲において、歪み比の大きな変化は見られ ていない。応力比を一定に制御する試験条件では、変形が弾性領域から塑性領域に遷移する とともに歪み比の側が大きく変化するため、試験中の歪み比の変動が避けられなかった。そ こで、本年度の試験では、PCMI時の力学状態をより忠実に模擬する観点から、制御プログ ラムを新たに開発し、歪み比(軸方向歪み/周方向歪み)を一定に制御した条件についても 試験を実施した。

試料は、外径10.7 mm、肉厚0.66 mmのQ値変更被覆管(Q=2) CW材であり、これを対象として応力比1:2、3:4、7:8、1:1の条件、及び歪み比0、0.25、0.5、0.75、1の条件を試験中に維持した二軸応力負荷試験を実施した。また、水素-アルゴン混合ガス中で熱処理することで水素を吸収させた試料を製作し、これについても歪み比0、0.25、0.5、0.75の条件で試験を実施した。試料のリストを表4.4.4-1に示す。

水素吸収方法の詳細は次の通りである。真空中で試料を400°C/30minで昇温させ、 400°Cで20分保持し、水素・アルゴン混合ガスを30kPaの圧力まで導入した後、炉の自然冷 却により冷却させる。この工程を1サイクルとして、1サイクル及び3サイクル処理した試料 を準備した。

試験後分析として、外観観察、水素濃度測定、管水平断面(R-θ面)観察、破面観察を実施 する。この内、今年度は外観観察を実施した。

(2) 試験結果

図 4.4.4-1 に全試料の破損部外観写真を示す。試料 1 から 4 は応力制御条件、試料 5 から 15 は歪み制御で実施した。歪み比 1 の試料(試料 13、14、15)を除くすべての試料におい て、軸方向の中心位置で破裂し、小さな開口部ができた。歪み比 1 では、3 回の試験の内 1 回(試料 13)は上記同様な破裂が起き、2 回(試料 14、15)は軸方向破断が起きた。水素吸 収量が少ない試料の歪み比 0、0.25、0.5、0.75の条件(試料 16-19)では、受入材に比べ て開口が小さく、軸方向に伸びた亀裂が観察された。水素吸収量が多い試料の歪み比 0、 0.25、0.5の条件(試料 20-22)では、水素量が少ない場合よりさらに狭い開口を示し、受 入材よりは亀裂が軸方向に伸びた傾向を示した。

図 4.4.4-2 に応力比及び歪み比を一定に制御した試験における歪み履歴、軸と周方向真応 カー真歪み関係、及び、応力比を一定に制御した試験の歪み比と歪み比を一定に制御した試 験の応力比の比較を示す。応力比を一定に制御した試験では試料の歪みは弾性域でゆっく り上昇し、塑性変形が始まる際に急激な変化を示すが(図 4.4.4-2(a))、歪み比を一定に制御 した試験では制御した通りに一定の歪みで上昇する(図 4.4.4-2(e))。周方向の真応カー真歪 み関係は試験条件にかかわらずほぼ同じ経路を通って破損する(図 4.4.4-2(b、f))。同じ歪み

(4%)の時の周応力を見ると、応力比を一定に制御した試験(図 4.4.4-2(b))が歪み比を一定 に制御した試験(図 4.4.4-2(f))より若干高い傾向である。応力比を一定に制御した試験で歪 み速度が塑性域で上昇したことや、塑性変形領域での応力/ひずみ履歴の違いが原因として 考えられる。軸方向の真応力-真歪みの関係(図 4.4.4-2(c、g))は試験条件によって大きく変 わる。応力比を一定に制御した試験(図 4.4.4-2(d)では、歪み比は変形に伴い低下し、塑性域 で安定になる。破損時歪み比は応力比が 1:2 から 1:1 まで増加するに従い、約 0.1 から約 0.5 まで上昇した。 歪み比を一定に制御した試験(図 4.4.4-2(h))では、応力比は変形と伴い上 昇し、塑性域で安定になる。破損時応力比は歪み比が 0 から 1 まで上昇すると、約 0.5 から 約 1.05 まで上昇した。 1 を超えるほど高い破損時ひずみ比は、RIA で発生する歪み比が 1 を超え得ることを考慮すると重要なデータである。破損時周歪みは応力比が 7:8 のとき、歪 み比が 0.5 のときに最小値を示した。しかし、繰り返し実験の結果によると本実験の破損時 周歪みにはばらつきがあり、再現性の確認が必要である。

図 4.4.4-3 に、受け入れ材と水素吸収材について、軸と周方向の真応力-真歪み曲線の比較を示す。周方向については受け入れ材と水素吸収材の降伏応力及び加工硬化挙動には大きな違いはなかったが、軸方向については水素吸収材の降伏点が低下し、加工硬化の傾向が大きくなっている。破損時歪みは、水素吸収熱処理を1 サイクル経過した試料が受け入れ材に比べて大きくなり、3 サイクル経過した試料は受け入れ材と同じ程度を示した。但し、CW 材は冷間加工後熱処理を受けてないため、水素吸収熱処理で加工による硬化が回復したことによる影響で、上記傾向を示した可能性がある。この影響を確認するため、水素吸収

(3)二軸応力負荷試験データを用いた被覆管異方性物性値の計算方法の検討

二軸応力負荷試験では、試験中に被覆管の軸と周方向の応力及び歪みをリアルタイムに 測定することができる。被覆管を直交異方性材料として考えた場合、二軸応力負荷試験の負 荷条件では、弾性変形の領域を二次元の Hooke の法則により表現できる(式 4.4.4-1)。

ここの ε は歪み、 σ は応力、Eはヤング率、 ν はポアソン比、下付きのzは軸方向、 θ は周 方向、上付きのeは弾性を意味する。

弾性域では全歪みと弾性歪みは同じであることから、線形回帰法で CW 材のひずみ比 0、 0.25、0.5、0.75、1 (試料 5 から 15) の弾性域の応力歪みデータを連立して計算すること で式 4.4.4-1 の各方向のヤング率とポアソン比を計算した。同様に水素吸収材(試料 16 か ら 19)のヤング率とポアソン比も計算した。その結果を表 4.4.4-2 に示す。水素吸収処理に よって弾性パラメータの異方性が強くなった。

表 4.4.4-2 に示した弾性パラメータと各試験中の応力データを式 4.4.4-1 に代入し、試験 中の弾性歪みを計算した。この弾性歪みを全歪みから差し引くことにより、塑性歪みを計算 した(式 4.4.4-2)。

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_z^p \\ \varepsilon_\theta^p \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_z^t \\ \varepsilon_\theta^t \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \varepsilon_z^e \\ \varepsilon_\theta^e \end{pmatrix}$$
 $\bar{x} 4.4.4^2$

上付きの **p**は塑性、**t**は全歪みを意味する。Hill^(11,13)の塑性仕事式(式 4.4.4-3)に式 4.4.4-2 で 計算した塑性歪みを代入し塑性仕事を計算した。

 $PW = \int \sigma_z d\varepsilon_z^p + \sigma_\theta d\varepsilon_\theta^p = \int \sigma_0 d\varepsilon_0^p$ 式 4.4.4·3 ここに PW は塑性仕事、 σ_0 は等価応力、 ε_0^p は等価塑性歪みである。各試験条件の同じ塑性 仕事のデータ点を用いて Hill^(12,13)の異方性応力式(式 4.4.4·4)に代入すると塑性の異方性パ ラメータ F、G、H が計算できる。

ここで、軸方向単軸引張試験において $\sigma_0 = \sigma_z$ と仮定すると F+G=1の関係が得られる。この関係を用いると、式 4.4.4-4 は式 4.4.4-5 に変形できる。

 $F(\sigma_{\theta}^2 - 2\sigma_{\theta}\sigma_z) + H\sigma_{\theta}^2 - \sigma_0^2 = -\sigma_z^2$ 式 4.4.4-5 式 4.4.4-5 を利用して線形回帰法で F、G、H を計算した結果を表 4.4.4-3 に示す。F、G、 H を式 4.4.4-4 に代入して σ_0 を計算し、さらに σ_0 を式 4.4.4-3 に代入し ε_0^p を計算した。PW の積算が始まった時点をゼロ塑性歪み点とし、 $\sigma_0 - \varepsilon_0^p \varepsilon^2$ ロットし式 4.4.4-6

 $\sigma_0 = K(a + \varepsilon_0^p)^n$ 式 4.4.4-6にフィッティングすると図 4.4.4-4 になる (PCMI で考慮される歪みを超える等価塑性歪み
5%までのデータでフィッティングした)。この計算で得られるパラメータは、数値解析の材
料物性値の入力データとして適用可能である。

(4)まとめ

Zry-4 被覆管(14×14 型、CW(Q=2)材)の受入材、及び、これに水素を吸収させた被 覆管を対象に、応力比及び歪み比を一定とした二軸応力負荷試験を室温条件下で実施した。 応力比を一定とした試験では応力比 7:8(破損時歪み比は約 0.5)、歪み比を一定とした試験 では歪み比 0.5 のとき、それぞれ破損時歪みは極小値を示した。試料の破損形態は、応力比 1:2 から 1:1 まで、歪み比 0.75 以下ではすべて破裂であり、歪み比 1 (すべての実験中最も 高い歪み比)の時破断の事例が現れた。ここの歪み比は測定可能な外面歪みである。被覆管 の肉厚を考慮し、内面歪みが等軸(歪み比1)になるケースは PCMI 負荷下では十分にあ り得る点を考慮すると、このとき外面歪み比は約 1.25 になるので、今回のデータに照らせ ば破断現象が現れる可能性は高燃焼度化(ボンディング形成)により高くなるものと考えら れる。水素吸収量が低い(約 100wpm)条件の被覆管試料は受入材よりも高い破損時歪み を示した原因については分析を継続する。二軸応力負荷試験のデータから、材料の弾性及び 塑性変形の異方性パラメータを算定した。これを用いて、供試材の異方性を適切に考慮した 数値解析が可能となる。今後、試験後分析及び水素による脆化の影響評価を進める予定であ る。

4.4.4-2 被覆管機械特性試験結果の水素化物析出形態による評価

平成 28-30 年度に、水素化物の析出方位を再配向させた被覆管を対象とした機械特性試

験により、破損限界データを取得した。また試験後試料の断面金相(水素化物エッチング条件)データを取得した。本年度は、断面金相の画像処理により、水素化物配向特性を定量化し、破損限界との関係を評価した。

(1)水素化物析出形態の解析方法

径方向に配向した水素化物(径方向水素化物)は周方向に配向した水素化物(周方向水素 化物)に比べ材料中の欠陥としての作用が大きいと考えられるため、これらの水素化物を区 別して評価する必要がある。このために、水素化物を径方向に投影した長さで評価した⁽¹⁴⁾。 この評価では、径方向水素化物の形状の特徴を抽出するために2つの指標を用いた。

・水素化物を径方向に投影した長さ(Lr_proj)が最大となる値

・任意の範囲内で観察される水素化物を径方向に投影した長さ(Lr_proj)を、全ての水素 化物について合計し、合計値をその範囲の面積(area)で割った値

前者は径方向水素化物の最大長さ、後者は平均長さに着目した指標である。また上記の指標 評価手順を、周方向への投影長さ Lh_proj についても適用し、Lr_proj の評価結果と比較し た。(Lr_proj:径方向に投影した水素化物の長さ、Lh_proj:周方向に投影した水素化物の長さ)

(2)解析結果

図 4.4.4-5 に水素濃度と破損時周ひずみの関係を示す。水素濃度が高いと概ね破損時周ひ ずみが低下する。100 wtppm 程度の試料では破損時周ひずみが 0.003 から 0.015 の範囲で 大きく広がりを持っており、水素濃度が破損限界の支配パラメータとして十分ではない可 能性がある。

図 4.4.4-6 に Lr_proj の最大値と破損時周ひずみの関係を示す。Lr_proj の最大値が増加 するに従い、120 µm までは破損時周ひずみが急激に低下し、その後一定の値を示した。こ の傾向は、径方向水素化物の欠陥としての作用により破損時ひずみの低下への寄与が 120 µm まで大きくなり、これ以上の長さになると脆性的な破損となるためその変化は小さくな ったと解釈される。Lr_proj の最大値は破損限界低下の指標として有効と考えられる。

図 4.4.4-7 に Lr_proj の合計値/area と破損時周ひずみの関係を示す。Lr_proj の合計値 /area が増加するに従い、単調に減少した。破損限界は 0.015 µm/µm²程度まで大きく低下 し、その後なだらかな低下となった。

図 4.4.4-8 に Lh_proj の最大値と破損時周ひずみの関係を示す。Lh_proj の最大値と破損 時周ひずみの間に明確な相関は見られない。図 4.4.4-9 に Lh_proj の合計値/area と破損時 周ひずみの関係を示す。Lh_proj の合計値/area と破損時周ひずみの関係についても明確な 相関は見られない。以上の結果より、径方向へ投影した水素化物の長さが破損限界の評価指 標として有効であると考えられる。

(3)まとめ

水素化物の析出方位を径方向に配向させた Zry-4 被覆管(17×17 型、SR 材)を対象にし

た二軸応力負荷試験(a=0.75)の破損限界データを用いて、水素化物の析出形態が破損限 界に及ぼす影響を画像解析により評価した。径方向へ投影した水素化物の長さを用いた指 標が大きくなるとともに周方向の破損時ひずみが減少する傾向が確認されたのに対し、周 方向へ投影した長さとの相関は得られなかった。画像解析データに基づき、低破損限界の径 方向水素化物析出状態に対する依存性について、定量的な情報が得られた。今後これらの相 関をモデル化し、OS-1 実験結果等 BWR 燃料破損限界データのより詳細な分析・評価に活 用する。

表 4.4.4-1 試料リスト

試料	制御	応力比	破損	破損時周歪み	破損時軸歪み	水素量/wppm
番号	タイプ	, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	外観		, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	
1		1:2	破裂	0.0586	-0.0061	
2	★+	3:4	破裂	0.0677	0.0056	0
3	ルロンフ	7:8	破裂	0.0235	0.0123	0
4		1:1	破裂	0.0664	0.0287	
試料	制御	不ちし	破損	かせい 日本 7、	砂块时本本不久	北書泪へポッピカ
番号	タイプ	金み比	外観	恢 損时同 定 み	皈頂时軸定み	小系配合刀入庄力
5		0	破裂	0.0410	0.0000	
6		0	破裂	0.0820	-0.0002	
7		0.25	破裂	0.0205	0.0054	
8		0.25	破裂	0.0418	0.0104	
9		0.5	破裂	0.0190	0.0095	
10		0.5	破裂	0.0251	0.0125	0
11		0.75	破裂	0.0804	0.0602	
12		0.75	破裂	0.0349	0.0261	
13	不 7、	1	破裂	0.0309	0.0308	
14	正み	1	破断	0.0697	0.0698	
15		1	破断	0.0903	0.0905	
16		0	破裂	0.1311	0.0001	98
17		0.25	破裂	0.0456	0.0114	90
18		0.5	破裂	0.0654	0.0327	85
19		0.75	破裂	0.1058	0.0793	91
20		0	破裂	0.0594	0.0001	275
21		0.25	破裂	0.0478	0.0119	299
22		0.5	破裂	0.0374	0.0187	330

表 4.4.4-2 CW 受入材と水素吸収材(1 サイクル)の弾性パラメータの比較

	E ₀ /MPa	E _z /MPa	Vzθ	Vθz
受入材	97303	80461	0.359	0.36
水素吸収材	94297	64399	0.345	0.477

表 4.4.4-3 CW 受入材と水素吸収材(1 サイクル)の塑性異方性パラメータの比較

	F	G	Н
受入材	0.76	0.24	~1.2
水素吸収材	0.78	0.22	~ 1.2

外観 写真				
番号	1	2	3	4
外観 写真				
番号	5	6	7	8
外観 写真				
番号	9	10	11	12
外観 写真				
番号	13	14	15	16
外観 写真				
番号	17	18	19	20
外観 写真				
番号	21	22		

図 4.4.4-1 全試料の破損部外観写真



図 4.4.4・2 CW 受入材の応力制御、歪み制御時の軸と周方向真応力-真歪み関係及び応力 制御時の歪み比と歪み制御時の応力比の比較



図 4.4.4-3 受け入れ材と水素吸収材の軸と周方向真応力-真歪み曲線の比較



図 4.4.4-4 等価応力--歪み曲線 a) CW(Q=2)受入材、b)CW(Q=2)水素吸収材(1 サイクル)



図 4.4.4-5 水素濃度と破損時周ひずみの関係



図 4.4.4-7 Lr_proj の合計値/(測定対象範囲の面積)と破損時周ひずみの関係



図 4.4.4-9 sum(Lh_proj)/(測定対象範囲の面積)と破損時周ひずみの関係

4.5 高温試験

現行 LOCA 基準の 1200℃を超える温度領域で想定される燃料状態に係る知見を調査し、 これに基づき高温条件を模擬するための試験条件を検討するとともに、高温条件での燃料 挙動評価試験で必要となる機器等を整備した。また、被覆管の高温酸化試験の一環として、 水蒸気の供給開始タイミングをパラメータとした試験を実施し、昇温時の環境が高温酸化 特性に与える影響を評価した。

4.5.1 高温条件下の燃料挙動に関する調査及び試験条件の検討

1200℃を超える、いわゆるシビアアクシデントの領域における燃料挙動に関して、これ までに分離効果試験や集合体を用いた溶融試験等がなされているが、それら研究の多くは 燃料溶融後の事象やソースターム評価に着目したものであり、1200℃から溶融開始までの 温度領域における燃料損傷挙動に関する研究は相対的に少なく、またその多くは燃料挙動 の評価技術へ取り込まれていない。1200℃を超えて被覆管の融点に至る温度領域における 燃料棒の損傷挙動評価手法を高度化することで、アクシデントマネジメントの有効性評価 に反映できる他は、事故時の炉心損傷状態の把握にも繋がると考えられる。またそれらの知 見は、炉心損傷のモニタリングにおける核分裂生成ガス測定データのより有効な活用に結 びつく可能性もある。

1200~1600℃温度範囲において燃料形状喪失の観点から重要な現象は被覆管外面酸化及 び内面のペレットー被覆管の化学反応である。これらの反応に関して、過去に個別効果分離 試験が実施され、様々な報告書等⁽¹⁻³⁾で知見がとりまとめられている。

被覆管外面酸化に関しては、1970年代に 1000~1500℃程度の高温酸化試験によりデー タが取得され、その後、TMI-2 事故以降にジルカロイの融点よりも高温領域までデータが 拡張された。これらの結果より、高温酸化反応は発熱反応であり、酸化反応は一般に放物線 測に従い、アレニウス式に従い高温であるほど反応速度定数が指数関数的に増加すること が知られている。

一方、被覆管とペレットの内面反応に関して、Hofmann⁽⁴⁾は、短尺燃料棒を用いて、 1000~1700℃の温度範囲かつ外圧負荷環境で UO₂ とジルカロイの反応について詳細に調べ ている。この中で、UO₂はその融点よりも 1000℃程度低い温度で容易に液化することが確 認されており、被覆管内側に形成される反応層は、α-Zr(O)+(U,Zr)や(U,Zr)等で、反応速度 は放物線測に従い、その活性化エネルギーは、ジルカロイ・水蒸気反応と同程度と報告して いる。

また、反応度事故を模擬した条件下ではあるが、NSRR においても未照射燃料を対象と して多くの実験が過去に実施され、高温時の破損挙動データが取得されている⁽⁵⁾。燃料ペ レット到達温度の上昇に伴い被覆材は酸化、変形、クラック、分断に至る。被覆材の内面溶 融により、被覆材の薄肉化を促進させ、局所的に最終肉厚に対する酸化膜厚の割合が 20% 以上の部分が観察されている。また、被覆管が溶融していない場合では、酸化量、肉厚減少 は少なく、脆性破壊には至らない。破損を生じさせる重要な因子は被覆材の内面溶融、脆化 であり、加えてペレットと被覆管の反応と結論付けており、これらは燃料が比較的急速に加 熱される条件において有効な知見と考えられる。

先行研究により示されている通り、1200℃超の高温条件では、燃料棒の形状を失うよう な著しい損傷が生じる要因として、被覆管と燃料ペレットの反応に伴う溶融(液化)が重要 となる。溶融進展挙動は、ジルカロイの融点に到達するまでのより低い温度領域(1200℃ ~1800℃)における酸化、結晶組織の変態に強く影響されることが知られており、この条 件領域での燃料挙動評価の信頼性向上に資する知見、データの拡充が、想定される様々な高 温条件下に対し的確に燃料損傷挙動を把握する上で必要条件となる。また、実験によっては 1200℃超でバースト的な FP ガス放出挙動が報告されていること、1800℃以下においても Zr による UO2還元反応で形成される局所的な液相 U や液相 U-Zr-O 三元系⁽⁴⁾については、 液化した領域から内部に保持されていた FP ガスが急速に放出される可能性があることを 考慮すると、燃料棒からの不連続な FP ガス放出と密接に関係する燃料損傷挙動、条件を特 定することが出来れば、炉心損傷有無の監視の観点で、核分裂生成ガス測定データのより有 効な活用に結びつく可能性もある。

以上を踏まえれば、現行 LOCA 基準を超える条件での燃料棒損傷挙動評価に有効な知見、 データの取得に向けて、下記のアプローチが考えられる。

- 未照射燃料棒を用いた NSRR 実験により、被覆管温度と燃料棒状態の関係から、著しい損傷が開始する被覆管及び燃料ペレットの温度条件を明らかにする。比較的緩やかな温度上昇速度の下で高温状態を達成、維持できる NSRR の台形パルス運転を利用した高温試験を想定する。
- ・ NSRR では核熱反応により 1200℃以上のペレット加熱環境を容易に達成でき、燃料棒の設計によりペレットと被覆管に拘束力を発生させることも可能である。単一の燃料棒について、検証された核計算コードによる発熱量評価の他、燃料棒中心熱電対、被覆管表面熱電対からオンライン計測データが得られるため、高温条件下の燃料挙動を解析する上で最も重要な温度境界条件について、信頼性の高いデータを提供することが出来る。またペレット自身の発熱により現象が進行する点で、炉外試験に比べ、実炉での事故時に経験すると想定される条件に対して代表性の高い条件となる。
 - 被覆管-燃料ペレット境界部(接触部)の状態変化と燃料棒状態の関係から、著しい損 傷が開始する原因(被覆管内面における反応状態等)を明らかにする。先行研究の知見 によれば、被覆管-燃料ペレット境界部(接触部)での反応は両材料の接触状態の影響 を受けるとされ、実機で想定されるような被覆管-燃料ペレット間の強い接触状態が 照射下で期待できる NSRR 実験は、実機でのペレット被覆管反応発生の有無を評価す る上で適している。
 - 更に、照射済燃料を対象とした NSRR 実験を行うことで、FP ガス挙動が高温下の燃料 損傷挙動に及ぼす影響を評価できる他、実験後の実験カプセル中の FP ガス放出状態と

燃料棒の状態変化との関係を併せて評価することができれば、炉心損傷のモニタリン

グにおける核分裂生成ガス測定データのより有効な活用に結びつくことが期待される。 本年度は、これら高温条件を模擬した試験で試料の調整、分析に必要となる機器類(小型 切断機や研磨機等)を整備した。上記論点を踏まえ、次年度は先行研究でカバーされている 試験条件、高温条件での FP 放出挙動、炉心損傷基準としての 1200℃しきい値の妥当性等 についてより広く文献を調査、整理し、これに基づいて更に検討を進める。

4.5.2 被覆管の高温酸化試験

被覆管の高温水蒸気中酸化挙動に及ぼす試験条件の影響を評価することを目的として水 蒸気の供給開始タイミング(加熱前もしくは等温酸化開始時)および試験片の表面粗さをパ ラメータとしてジルカロイ・4 被覆管の高温酸化試験(赤外炉、1273-1573K)を実施した。

実験はジルカロイ・4 被覆管の水蒸気中高温酸化を対象とし、赤外炉を用いて 1273-1573 K の温度範囲で実施した。受け入れ材及び表面状態の効果を調べるため研磨処理を施した 被覆管を切断し、軸方向に 15 mm 長さの酸化試験試料とした。表面処理では、内面、外面、 試料端全てについて、粒度 120 の研磨紙で研磨を施した。図 4.5-1 に外表面の SEM 写真を 示す。この処理により、表面粗さは受け入れ材の約 3 倍となった。また水蒸気の供給方法に ついて、試料が室温状態の時点(加熱前)で供給を開始するケース及び等温酸化温度到達後 に供給を開始するケースの 2 条件について試験を行った。

図 4.5・2 に酸化時間と酸化に伴う試料重量増の関係を示す。1273 K 条件では、水蒸気供 給を等温酸化温度到達後に開始したケースにおいて、ブレークアウェイ酸化開始が有意に 早まっている。ブレークアウェイ前後の酸化速度については水蒸気供給条件の影響は認め られなかった。1373 K 以上の温度条件においても水蒸気供給を等温酸化温度到達後に開始 したケースにおいて重量増加の有意な上昇が確認された。水蒸気供給温度の効果は温度が 低いほど顕著であった。一方、表面状態の影響はどの条件でも殆ど観察されなかった。重量 増データを酸化速度式 Wgn = K*たのパラメータの形で整理した結果を図 4.5-3 に示す。こ れより、酸化温度 1273 K 且つ水蒸気供給を室温で開始したケースを除き、重量増は概ね放 物線則に従っている。図 4.5-3(b)は全てのデータ点について n が 2 に等しいと仮定し、アレ ニウスプロットの形で従来研究と比較した。水蒸気供給を室温で開始したグループは過去 の原子力機構で実施した結果とよく一致した。一方、等温酸化温度到達後に水蒸気供給を開 始したグループは、1373 K では Baker-Just 式に近く、温度上昇につれ Cathcart-Pawel 式 に近づく。1273 K では、速度定数 K に対する水蒸気供給条件の影響は見られなかった。 図 4.5・4 は試験温度 1273 K における水素分析結果及び平均酸化膜厚さを示す。1273 K で 水蒸気供給したケースでは室温で供給したケースと比較してブレークアウェイ前で酸化膜 厚さの差異はないものの水素濃度が高い傾向にあった。ブレークアウェイ後では両ケース において水素濃度が著しく増加した。試料断面の金相観察結果を図 4.5-5、図 4.5-6 に示す。 図 4.5-7 は断面金相観察より評価した 1273K における受入材の最大酸化膜厚さ及び最小酸 化膜厚さを示す。これらの結果より、腐食初期に着目すると、1273K で水蒸気を導入した ケースでは金属と酸化膜の界面の形状にうねりが観察され、一方、室温で水蒸気を導入した ケースでは界面の形状は平坦であり、この酸化膜界面の性状が腐食と関係していると考え られた。





図 4.5-2 重量増加と試験時間の関係









図 4.5-5 受入材の断面金相観察(1273K、1373K、1473K、1573K)



図 4.5-6 受入材及び研磨処理材の断面金相観察(1273K)



図 4.5-7 断面金相観察より評価した受入材の最大酸化膜厚さ及び最小酸化膜厚さ