

4.2.2 AP2-24 のウラン及びプルトニウムの組成分析

RIA 試験時の燃料エンタルピー増分を評価するため、燃料に含まれる核分裂性物質の量を評価する必要がある。そこで、RIA 試験に供する実験燃料棒を採取する燃料セグメント AP-2-24 に対して、ウラン (U) 及びプルトニウム (Pu) の同位体組成比を評価した。

RIA 試験における燃料エンタルピー増分の評価は現在以下の手順で行っている。

1. RIA 試験燃料棒または元の燃料セグメントから採取した燃料試料に含まれる U 及び Pu 同位体の組成比を質量分析により評価する。
2. 同燃料の元素及び同位体組成を SWAT⁽²⁾コードによる燃焼計算で求め、燃料中のフィッサイル量を評価する。このとき、発電炉での照射履歴、試料採取位置の冷却水温度、取出し後の冷却期間などを考慮した上で、1 の質量分析から得た核分裂性の U 及び Pu (フィッサイル核種) と (U+Pu) の比 (以下フィッサイル比) が再現されるように中性子スペクトル (具体的には燃料棒ピッチ) を調整する。ここでフィッサイル核種とは、U-235、Pu-239、Pu-241 の合計を指す。以降の評価では、この調整後に得られた解析結果を用いる。
 - (ア) 質量分析試料が、RIA 試験対象燃料棒と同一炉で照射された異なる燃料棒から採取された場合
 - (イ) 質量分析試料は、RIA 試験対象燃料棒と同一の燃料棒から採取されているが、採取位置が離れているため、局所燃焼度や冷却水温度の違いが無視できない場合
 - (ウ) RIA 試験と質量分析の実施時期が大きく離れており、核種崩壊による組成の変化が無視できない場合
 などには、質量分析試料の解析から適宜条件を変更した解析を別途行い、RIA 試験燃料のフィッサイル比を評価する。
3. NSRR 炉心体系 (カプセル、カプセル冷却材、試験燃料棒等を含む) を対象とした中性子輸送計算を SRAC-TWODANT コード⁽³⁾により行い、NSRR 炉心の単位積分出力あたりの試験燃料中発熱密度を評価する。
4. RIA 試験時の NSRR 炉心積分出力を過渡計測データより評価する。
5. 3 及び 4 の結果 (NSRR 炉心の単位積分出力あたりの試験燃料中発熱密度と NSRR 炉心積分出力の乗算) に基づき、RIA 試験燃料中の発熱量を評価する。さらに、過去の NSRR 実験データに基づく相関式より燃料エンタルピー増分の最大値を評価する。燃料が破損した場合には、破損時刻までの NSRR 積分出力を用いて破損時燃料エンタルピー増分を評価する。

発熱量評価の手法の概略を図 4.2.2-1 に示す。現在の主な評価手法は、図中の評価手法その 2 にあたる。図中の評価手法その 1 については、時間的制約等のため実施が容易ではないため、近年では、ほぼ実施されていない。

上記の手順 1 に必要な情報を取得するため、燃料セグメント AP-2-24 における U, Pu 組成比を測定した。分析対象核種は U-234、U-235、U-236、U-238、Pu-238、Pu-239、Pu-240、Pu-241、

Pu-242 である。

AP-2-24 燃料セグメントに関して、図 4.2.2-2 で CA2 と示される位置から厚さ約 1.4 mm のディスク状試料を切り出した。切り出した試料を硝酸中で加熱・溶解し、溶解液を濾過することで、被覆管及び他の不溶性残渣を溶液中より除いた。次に陰イオン交換樹脂を用いた分離法により、試料溶液中から核分裂生成物を除去すると共に、U と Pu を分離し、U 同位体溶液と Pu 同位体溶液を得た。これらの同位体溶液について、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS) を用いてそれぞれ質量分析を行った。

質量分析により直接得られるのは、U と Pu について、それぞれの同位体が占める数的割合 (U-235 が全 U 中に占める割合など) である。上述のフィッサイル比を算出するためには、これに加えて溶解直後の燃料溶液中における U と Pu の量的割合の情報が必要となる。U と Pu の量的割合を評価するため、質量及び同位体組成が既知の U、Pu 試料 (スパイク) 溶液を混合した同位体溶液についても、同様の手順で質量分析を行った。スパイクの有無によって生じる質量分析結果の差を利用して、U と Pu の量的割合を評価し、これを用いてフィッサイル比を算出した。

質量分析結果を表 4.2.2-1 に示す。表中に記した標準誤差は、分離作業における試料分取で生じる可能性のある誤差、質量分析を同一試料について繰り返し実施することにより得られた標準偏差など、各段階の誤差伝搬を考慮して評価した。例えば、AP2-24 のフィッサイル比は $0.469\% \times (2.48/100) = 0.012\%$ の標準誤差を伴う。

表 4.2.2-1 U、Pu 質量分析結果

	Abundance ratio % (Standard error %)
	AP2-24
測定日	2020.3.12
Fissile/(U+Pu)	0.469 (2.48)
Pu-total / U-total	0.954 (2.66)
U-234 / U-total	0.014 (1.21)
U-235 / U-total	0.059 (3.45)
U-236 / U-total	0.508 (1.00)
U-238 / U-total	99.412 (0.94)
Pu-238 / Pu-total	4.338 (0.90)
Pu-239 / Pu-total	36.717 (0.98)
Pu-240 / Pu-total	32.670 (1.05)
Pu-241 / Pu-total	6.703 (0.86)
Pu-242 / Pu-total	19.573 (0.81)

現在の主な評価手法

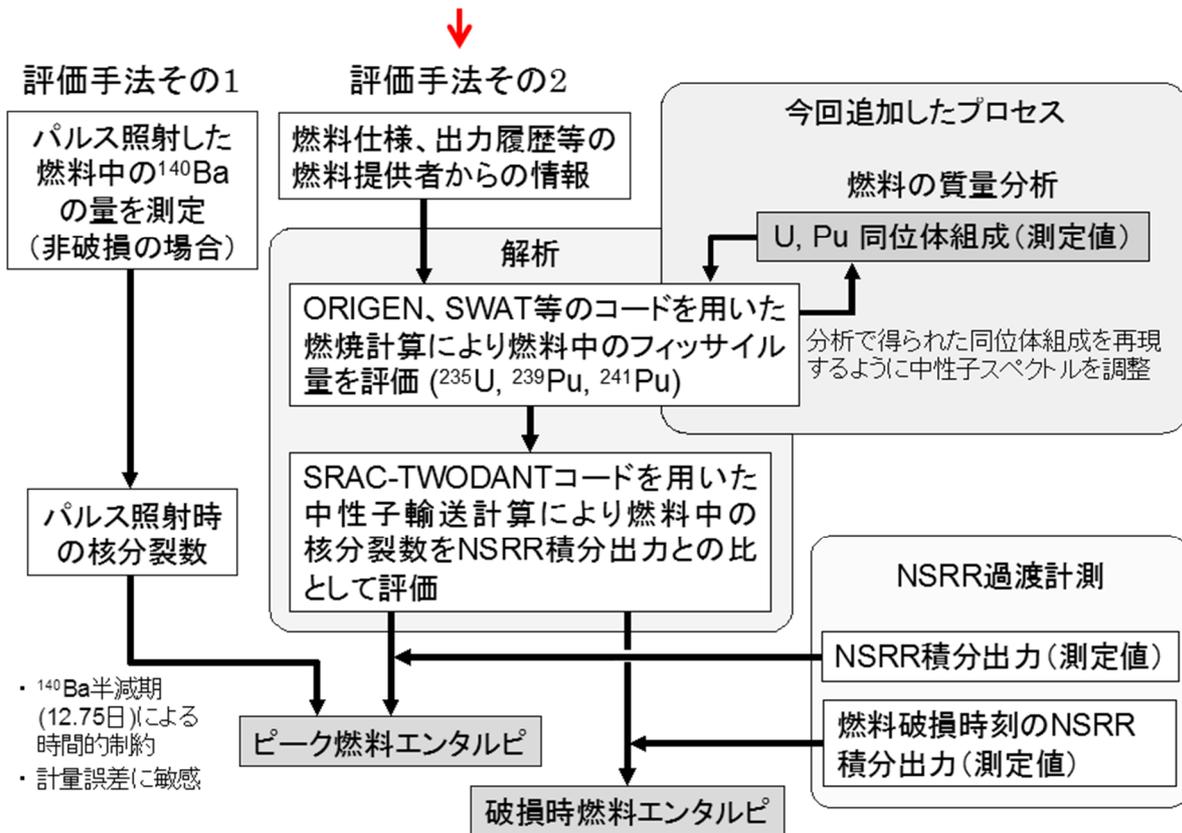


図 4.2.2-1 発熱量評価のフロー

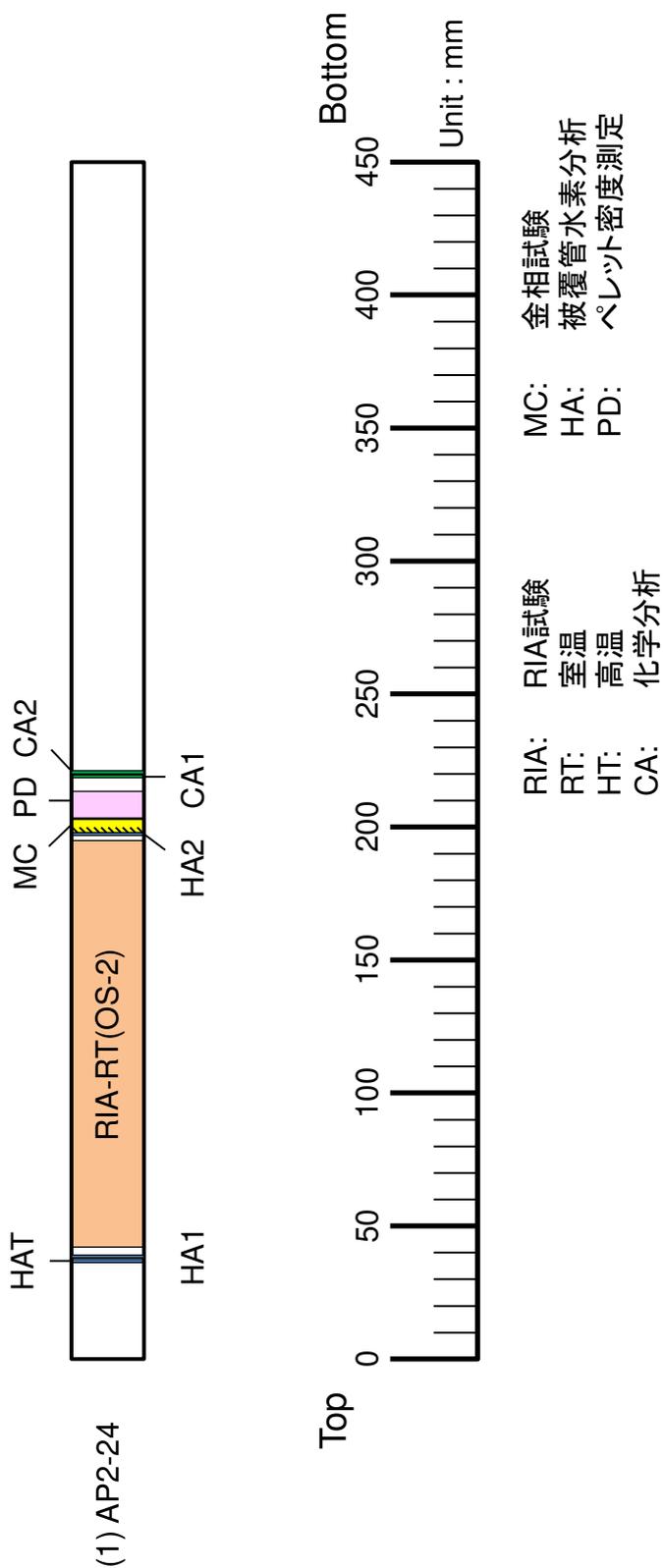


図 4.2.2-2 燃料セグメントからの試料採取計画

4.3 LOCA 試験

4.3.1 LOCA 模擬試験

本年度は、令和 2 年度に実施した MMDA3 の LOCA 模擬試験後分析及び Zircaloy-2 被覆ライプシュタット燃料の LOCA 試験 (LZRT5) を実施した。

(1) 試験燃料棒の作製

(a) 試験燃料棒 (LZRT5) について⁽¹⁾⁽²⁾

スイス・ライプシュタット炉で照射された Zircaloy-2 被覆 BWR ウラン燃料セグメント FBA004-a5-F から試料採取を行った。試験燃料棒のスタック部は長さ約 190 mm である。セグメントの上端から 10–202 mm の位置から採取した。試験燃料棒相当領域の燃焼度は 47 GWd/tU と評価されている。最終サイクルの平均線出力は 24 kW/m であった。試験燃料棒の諸元を表 4.3.1-1 に示す。

本事業では、先行研究において報告されている燃料ペレットの顕著な細片化を生じる燃焼度しきい値の約 55 GWd/tU^(3,4)より燃焼度が高い燃料と低い燃料の双方を対象に試験を実施することで、顕著な細片化の発生しきい燃焼度を評価するとともに、LOCA 模擬試験結果を先行研究と比較することで当該試験の妥当性及び当該試験装置の性能検証を行う。LZRT5 の燃焼度は先行研究において報告されている細片化発生しきい燃焼度 55 GWd/tU^(3,4)に比べ十分に低く、上記目的に合致している。

(b) 試験燃料棒 (LZRT5) への加工

実機の LOCA 時には、原子炉圧力の低下と温度上昇に伴う燃料被覆管強度の低下により燃料棒が破裂する可能性がある。これを模擬するために、本試験では、燃料ペレットを除去しない状態の試験燃料棒に室温にて 5 MPa のアルゴンガスを封入し、加熱による内圧上昇と燃料被覆管強度の低下により、試験燃料棒が試験中に破裂するようにした。

試験装置にセットするため試験燃料棒の上下端栓にステンレス鋼製のコネクションロッドを接続し、最終的な試験体形状とした (図 4.3.1-1)。試験燃料棒の上下端栓部分の自由体積は約 1.2 cc であった。

(c) 試験燃料棒 (LZRT5) への熱電対溶接

試験中の燃料被覆管表面温度の制御及び測定のために、4 本の R タイプ熱電対をスポット溶接した。溶接位置は、燃料被覆管高さ中間 (熱電対番号 No. 2)、その上下 40 mm の位置 (No. 1 及び No. 3)、及び No. 1 と No. 2 熱電対の中間高さにあり円周方向に 90° 回転した位置 (No. 4) である。なお、熱電対溶接のために、通常運転中に燃料被覆管外表面に形成された腐食酸化膜をリユーターにより局所的に除去した。

(2) LOCA 模擬試験前 (LZRT5) の分析・評価

(a) LZRT5 の外観写真

LOCA 模擬試験前の燃料棒の外観写真を図 4.3.1-2 に示す。撮影は、 90° 毎に 4 方向に対して実施した。 0° 及び 90° 方向において観察される金属光沢は熱電対溶接のために酸化膜を局所的に除去した領域である。外観上、特異的な箇所は観察されなかった。

(b) LZRT5 の X 線透過写真

LOCA 模擬試験前の燃料棒の X 線透過写真を図 4.3.1-3 に示す。撮影は、 0° と 90° の 2 方向に対して実施した。ペレットとペレットの間に境界が観察され、17 個のペレットがあることが分かる。外観上、ペレットや溶接部にクラックや欠陥は観察されなかった。

(c) LZRT5 の γ スキャン

LOCA 模擬試験前の軸方向 γ 線強度分布を図 4.3.1-4 に示す。 γ 線強度には採取位置に応じた燃焼度分布が反映されており、 γ 線強度の有意な勾配は観察されなかった。

(c) LZRT5 の外径

LOCA 模擬試験前の軸方向外径測定結果を図 4.3.1-5 に示す。測定は 30° 毎に 6 方向に対して実施した。熱電対溶接のために酸化膜を局所的に除去した領域で外径の落ち込みが観察されたが、全体として特に有意な勾配は観察されなかった。

(e) LZRT5 の酸化膜厚さ測定

LOCA 模擬試験前の渦電流により測定した軸方向酸化膜厚さ分布を図 4.3.1-6 に示す。軸方向の平均酸化膜厚さは、表 4.3.1-1 に示すように $37 \mu\text{m}$ であった。今後レファレンス試料の金相観察から得られる酸化膜厚さの値により補正する。

(f) LZRT5 の水素分析

水素分析結果を表 4.3.1-1、表 4.3.1-2 に示す。軸方向に対して顕著なばらつきは見られず、平均で 61ppm であった。

(3) LOCA 模擬試験

図 4.3.1-7 に示す LOCA 模擬試験装置の中央部に試験燃料棒を装荷し、LOCA 時に想定される燃料棒の温度履歴を与えた。実機の LOCA 時には、燃料棒の内圧上昇と燃料被覆管強度の低下によって燃料棒が膨れ破裂し、場合によっては膨れに伴い細片化した燃料ペレットの燃料棒内軸方向再配置や破裂開口部を通じた燃料棒外への燃料ペレット放出 (FFRD) が生じる可能性がある。FFRD の内、燃料ペレットの細片化の発生条件や燃料棒破裂時の燃料ペレットの燃料棒内軸方向再配置及び燃料棒外放出の各挙動を評価するた

め、試験燃料棒が破裂するまで昇温させた。

昇温速度については、典型的な LOCA 時の被覆管の昇温速度^(5,6)を模擬できること、及び過去に原子力機構において高燃焼度燃料被覆管を対象に実施した LOCA 模擬試験^(7,8)との比較ができることを考慮し、3 K/s とした。

(a) MMDA3 に対する LOCA 模擬試験⁽²⁾

MMDA3 に対する試験で得られた温度履歴を図 4.3.1-8 に示す。本試験では、まず試験燃料棒を水蒸气流中に置き、温度制御用熱電対として No. 2 を使用し、昇温速度 3 K/s で加熱した。水蒸气流速は、水蒸気欠乏を避け、試験燃料棒全体を酸化させるのに十分な流速⁽⁸⁾を与えることを目的に、13 mg/(cm² s)とした。昇温中、セル内に設置したマイクロフォンから燃料棒破裂に伴う衝撃音が明瞭に確認されなかったため、熱電対 No. 2 の指示値が約 1173 K に達するまで昇温を続けた。試験後のデータ解析において、熱電対 No.2 の指示値が 1043 K に達した時点（図 4.3.1-8 中の矢印）で熱電対指示値の変動が確認されたことから、燃料被覆管の破裂はこの温度で生じたと考えられる。

なお、燃料被覆管の破裂に伴う燃料ペレットの燃料棒外への放出は目視では確認されなかった。

(b) LZRT5 に対する LOCA 模擬試験

LZRT5 に対する試験で得られた温度履歴を図 4.3.1-9 に示す。本試験では、上記の MMDA3 と同様の条件にて実施した。昇温中、セル内に設置したマイクロフォンから燃料棒破裂に伴う衝撃音が確認され、その時点でヒータを切断した。試験後のデータ解析において、熱電対 No.2 の指示値が 1038 K に達した時点（図 4.3.1-9 中の矢印）で熱電対指示値の変動が確認されたことから、燃料被覆管の破裂はこの温度で生じたと考えられる。本試験では、上部端栓に圧力センサーを装荷し、試験時の内圧データを取得することができた。昇温開始前は約 5 MPa を表示し、昇温に伴い、内圧が約 6.5 MPa まで増加し、600°C 付近より内圧は減少傾向を示し、破裂時点において急激に減少した。

(4) LOCA 模擬試験後の分析・評価

(a) MMDA3 に対する分析・評価

令和 3 年度までに取得した MMDA3 に対する LOCA 後の外観写真、外径測定結果を図 4.3.1-10⁽¹⁾、図 4.3.1-11⁽¹⁾に示す。

外観から、熱電対 No.1～3 を溶接した方向から約 180°回転した方向に微小なピンホール状の破裂開口が生じている。外観から計測された破裂開口の長さは約 0.3 mm、幅は約 0.2 mm であった。また、破裂開口の正射影の面積は約 0.03 mm² であった。外観より試験後試料の外径を計測し、破裂開口した膨れ部を楕円形と仮定して試験後の円周長を求めた。試験後の円周長の増加量である膨れ率は約 30%であった。

外径測定は、燃料被覆管の破裂開口位置を基準点（0° 位置）とし、基準点及び基準点から反時計回りに 30° 間隔の 6 方向（0°、30°、60°、90°、120° 及び 150° の計 6 方向）について実施した。熱電対 No.2 位置から上側に 4-5 mm の破裂開口位置近傍において最も大きく膨れたことが分かる。

X 線投影写真を図 4.3.1-12 に示す。撮影は、0-180°、90-270° の 2 方向で実施した。写真より破裂開口部付近で被覆管が膨らみ、ペレットと被覆管のギャップが観察された。ペレットは、中心寄りの部位を核として概ね形状を維持しているように、また、破裂開口部から下部側において細片化したペレットが、ギャップに集積しているように見える。

ガンマスキャン測定結果を図 4.3.1-13 に示す。グロスガンマ、Cs-137 の強度が高い領域が観察された。

図 4.3.1-14 は、外観、外径測定、X 線撮影、ガンマスキャンの非破壊試験結果を纏めたものである。X 線撮影写真より、ペレットは全体として形状を維持しているように見えるが、破裂開口部より下部側のペレット-被覆管ギャップに集積している様子が観察された。ガンマスキャンの結果より、破裂開口部より上部側においてグロスガンマの強度がやや低く、破裂開口部より下部側において強度が高い傾向が観察された。破裂開口部より上部側のグロスガンマの低下している領域と破裂開口部より下部側のグロスガンマの増加している領域は、被覆管外径の膨らんでいる領域に概ね対応しているように見えた。以上を踏まえると、被覆管が膨らんでいる領域において、ペレット外周部が細片化し、それらが脱落し、破裂開口部の上部側から下部側に移行し、ペレット-被覆管ギャップに集積したものと考えられた。

図 4.3.1-15(1)～図 4.3.1-15(6)に、破裂開口部付近の水平断面に対する研磨後の金相観察、図 4.3.1-16(1)～図 4.3.1-16(7)にエッチング後の金相観察結果を示す。これより、被覆管が膨らんでいる様子が観察され、ペレット中心寄りの領域は概ね形状を維持しているものの、外周部に着目すると、最外周領域の高燃焼度組織が脱落しており、非破壊試験結果に対する上記分析を裏付ける結果であった。また、ペレット最外周部で高燃焼度組織が部分的に残存する領域（図 4.3.1-16(3)の領域 3、図 4.3.1-16(4)の領域 5）も存在し、その領域では多数のクラックが確認された。被覆管内面においてペレットと被覆管の反応層（ボンディング層）及び高燃焼度組織領域が部分的に観察された。今後、細片堆積位置に対して縦断面方向の金相観察を実施し、脱落したペレットの形状や集積の様子を確認する。

(b) LZRT5 に対する分析・評価

LZRT5 に対する LOCA 後の外観写真を図 4.3.1-17 に示す。破裂は、軸方向中心位置に取り付けた熱電対 No.2 の近傍付近で生じており、スリット状の形状を有する破裂開口であった。画像解析より開口部面積は約 5 mm²と評価された。また外観より外径を計測し、破裂開口した膨れ部を楕円形と仮定して試験後の円周長を求めた。試験後の円周長の増加量である膨れ率は約 30%であった。

外径測定結果を図 4.3.1-18 に示す。燃料被覆管の破裂開口位置を基準点（0° 位置）とし、基準点及び基準点から反時計回りに 30° 間隔の 6 方向（0°、30°、60°、90°、120° 及び 150° の計 6 方向）について実施した。熱電対 No.2 位置付近で最も大きく膨れたことが分かる。

(5) まとめ

令和 2 年度に実施した MMDA3 の LOCA 模擬試験後分析として、X 線撮影、ガンマスキャン、金相観察を実施した。X 線撮影写真より、ペレットは全体として形状を維持しているように見えるが、破裂開口部より下部側のペレット-被覆管ギャップにペレット細片が堆積している様子が観察された。ガンマスキャンの結果より、破裂開口部より上部側においてグロスカンマの強度がやや低く、破裂開口部より下部側において強度が高い傾向が観察された。金相観察より、ペレット外周部の高燃焼度組織に対応する領域が欠落しているように観察された。以上より、被覆管が膨らんでいる領域において、ペレット外周部が細片化し、それらが脱落し、破裂開口部の上部側から下部側に移行し、ペレット-被覆管ギャップに集積したものと考えられた。

Zircaloy-2 被覆ライプシュタット燃料 (LZRT5) の LOCA 模擬試験を実施し、破裂温度は 1038 K で、スリット状の開口を有する破裂であった。今後、試験後分析を進める。

表 4.3.1-1 LOCA 模擬試験に供した試験燃料棒

試験 燃料棒 番号	採取 セグメント 番号	燃料 型式	セグメント 平均燃焼度 (GWd/tU)	最終 サイクルの 平均線出力 (kW/m)	被覆管 材質	腐食 酸化膜 厚さ (μm)	初期 水素 濃度*** (wtppm)
LZRT5	FBA004-a5-F	BWR 10×10 UO ₂	47	24	Zry-2 with liner (95 μm)	37** (図 4.3.1-6)	61 (表 4.3.1-2)
MMDA3	AP2-1	PWR 17×17 UO ₂	73	10	M-MDA (SR*)	23	155

*応力除去焼鈍

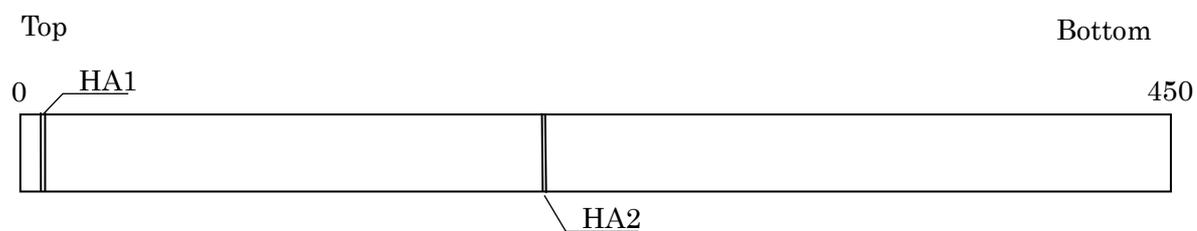
**今後レファレンス試料の金相観察から得られる酸化膜厚さの値により補正

***ベース照射後における被覆管の水素濃度

表 4.3.1-2 LZRT5 の水素分析結果

	HA1	HA2	平均
水素濃度(ppm)	65	56	61

試料名	採取位置(mm) Top 側からの距離
HA1	8.4~9.4
HA2	202.6~203.6



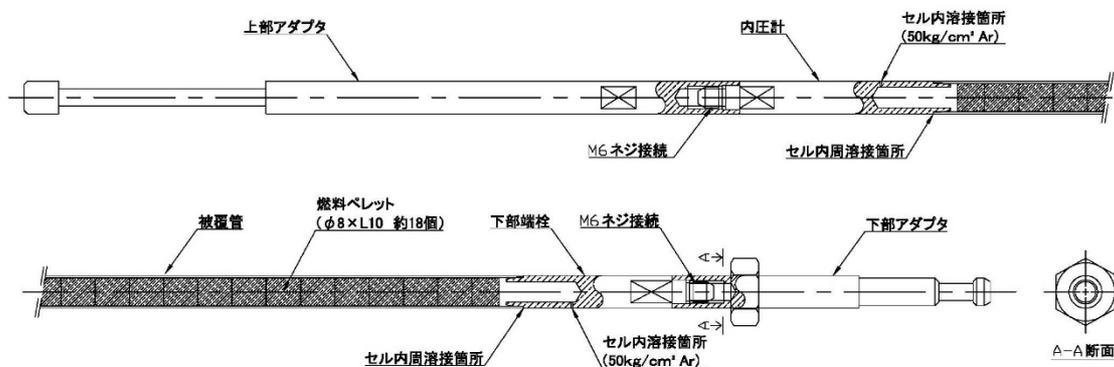


図 4.3.1-1 LOCA 模擬試験用の試験体形状

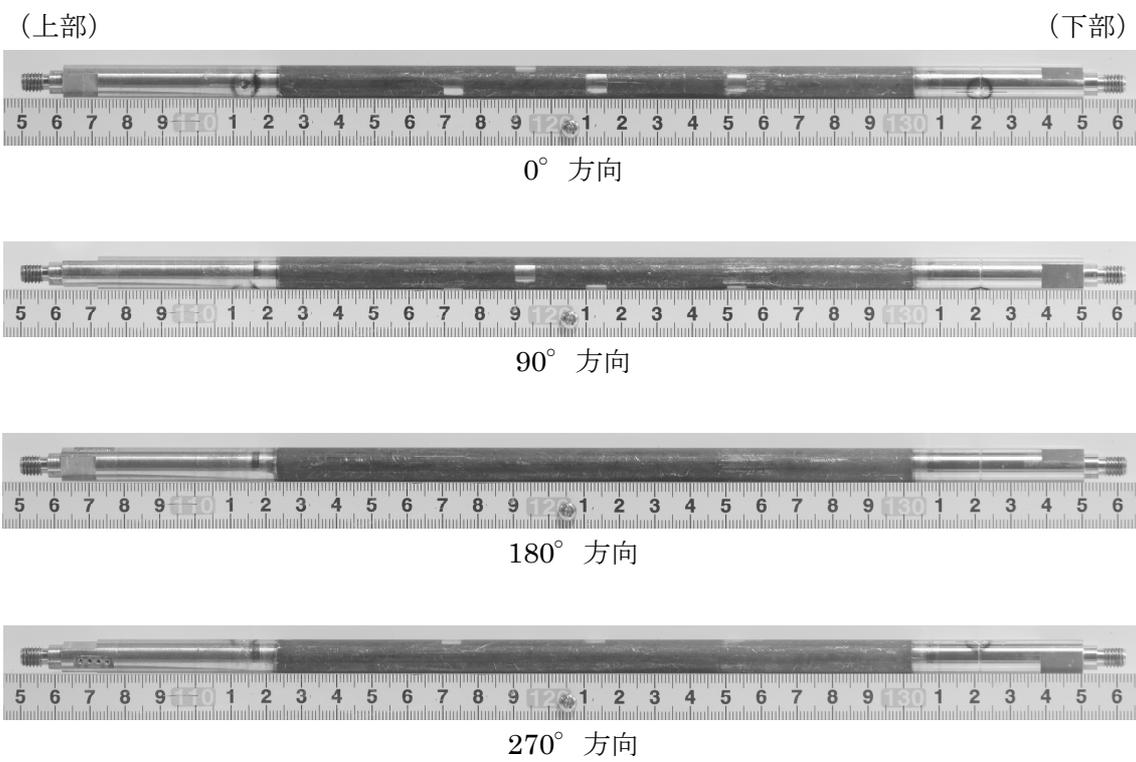


図 4.3.1-2 LZRT5 の外観写真 (LOCA 模擬試験前)

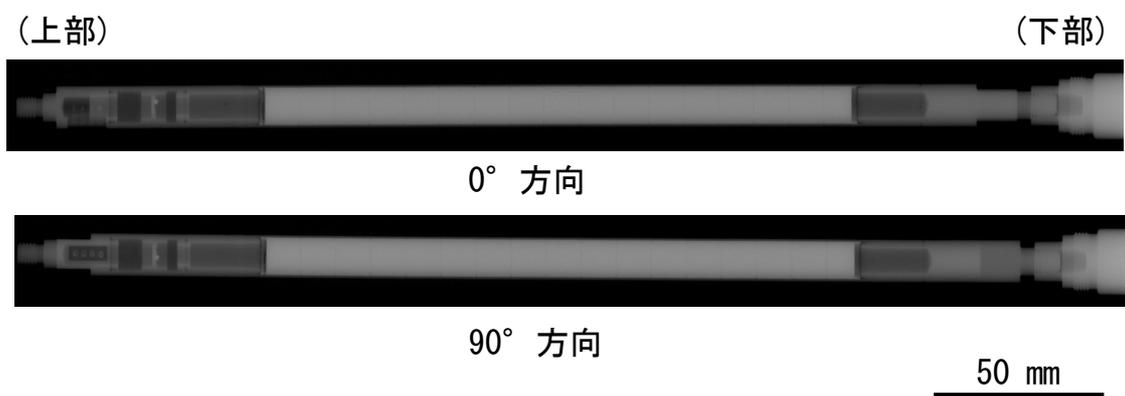


図 4.3.1-3 LZRT5 の X 線透過写真 (LOCA 模擬試験前)

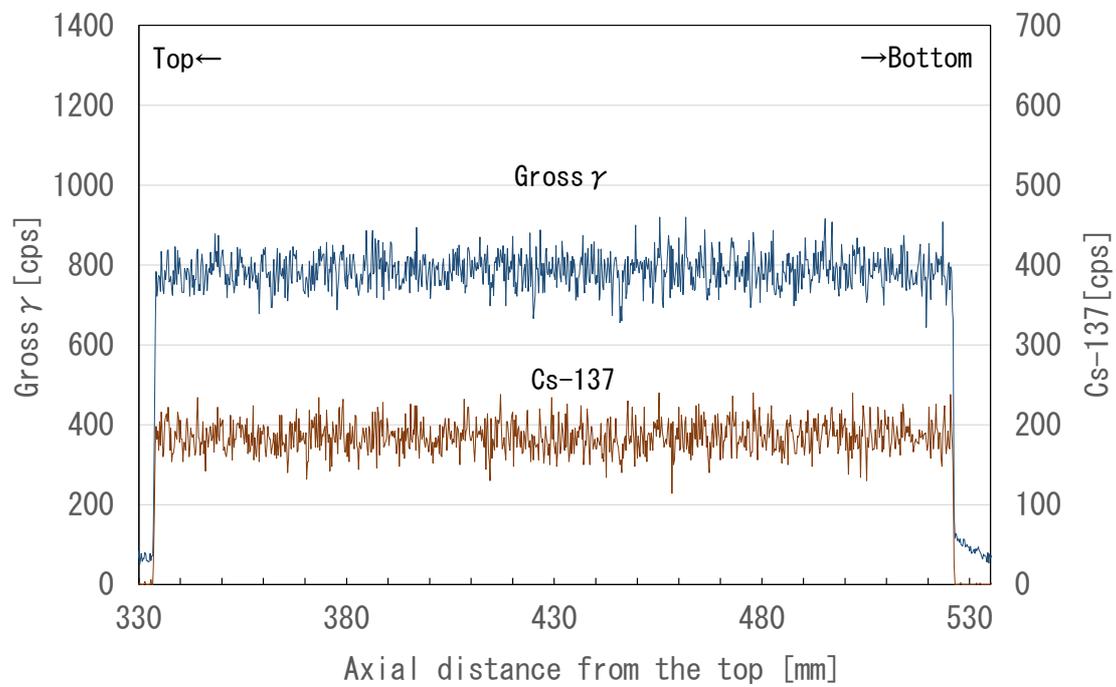


図 4.3.1-4 LZRT5 の γ スキャン (LOCA 模擬試験前)

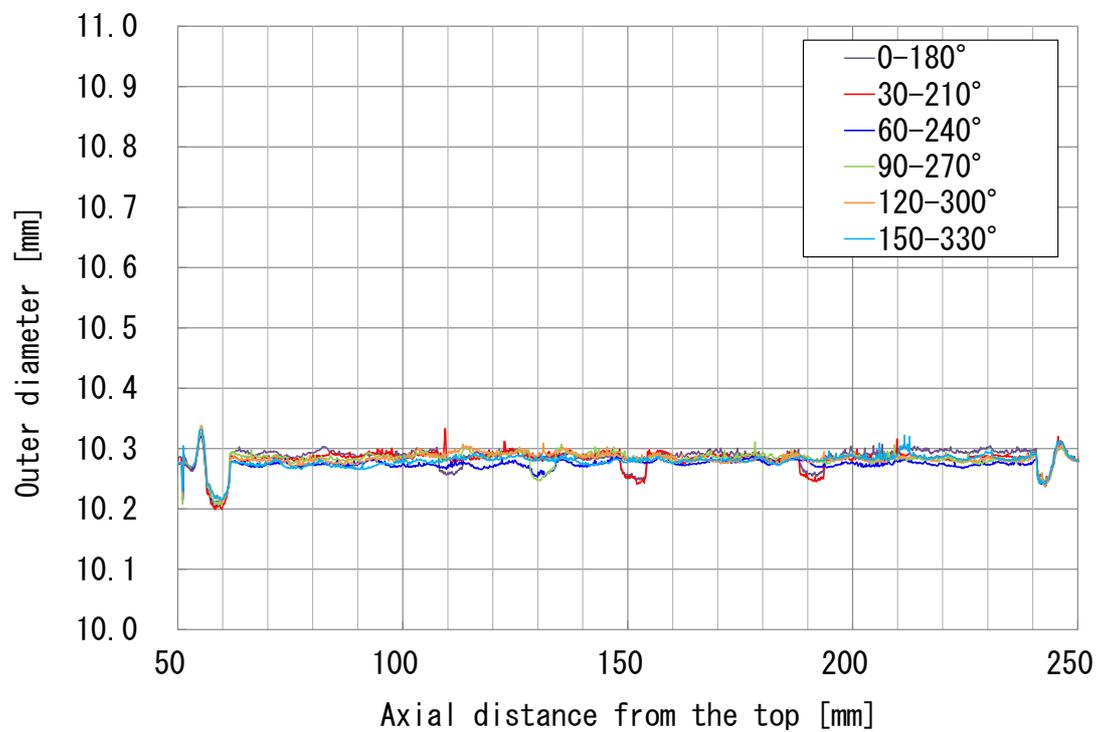


図 4.3.1-5 LZRT5 の外径測定 (LOCA 模擬試験前)

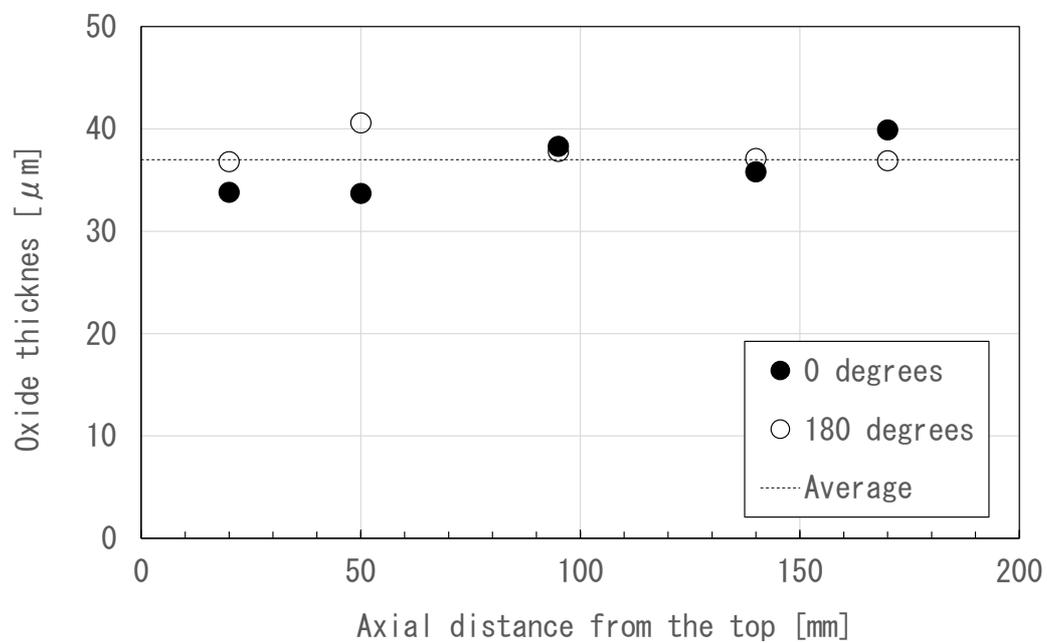


図 4.3.1-6 LZRT5 の酸化膜厚さ測定 (LOCA 模擬試験前)

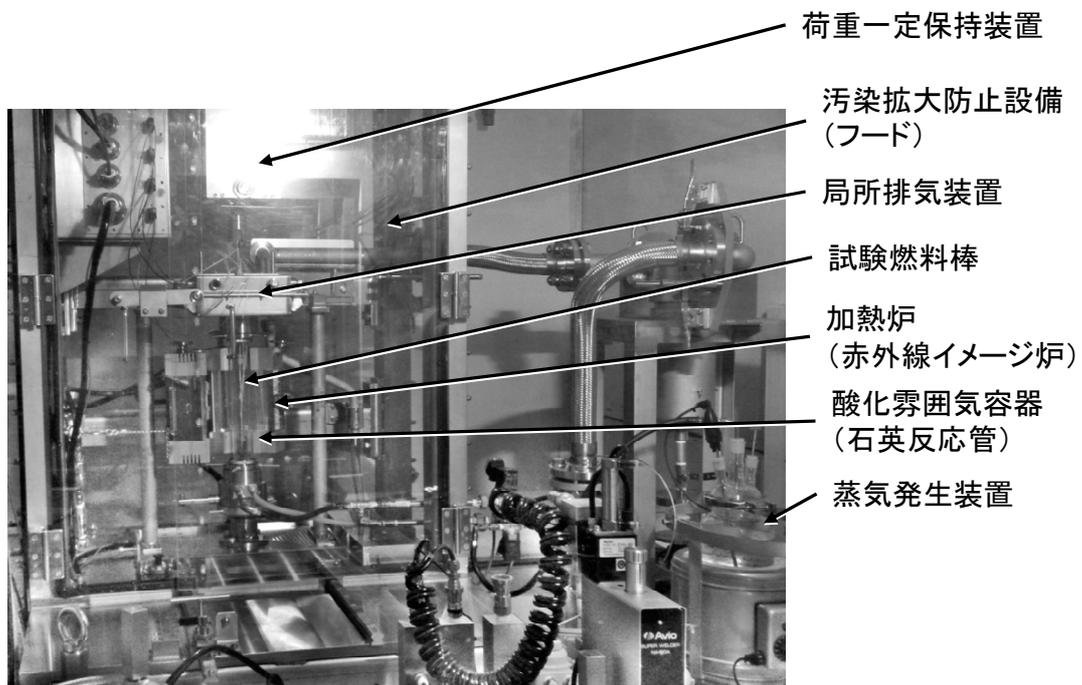


図 4.3.1-7 LOCA 模擬試験装置

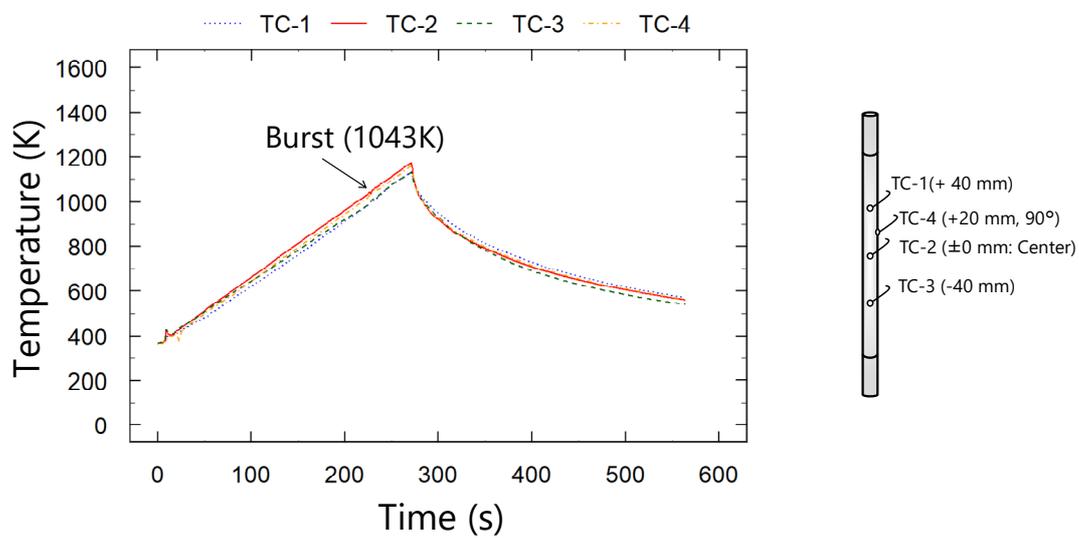


図 4.3.1-8 MMDA3 に対する LOCA 模擬試験での温度履歴⁽¹⁾

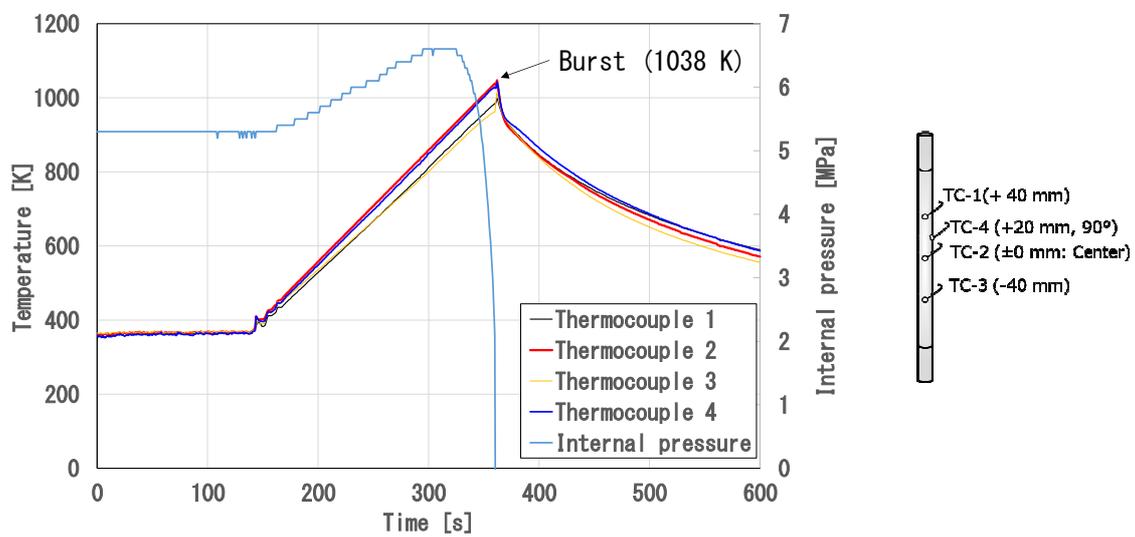


図 4.3.1-9 LZRT5 に対する LOCA 模擬試験での温度履歴

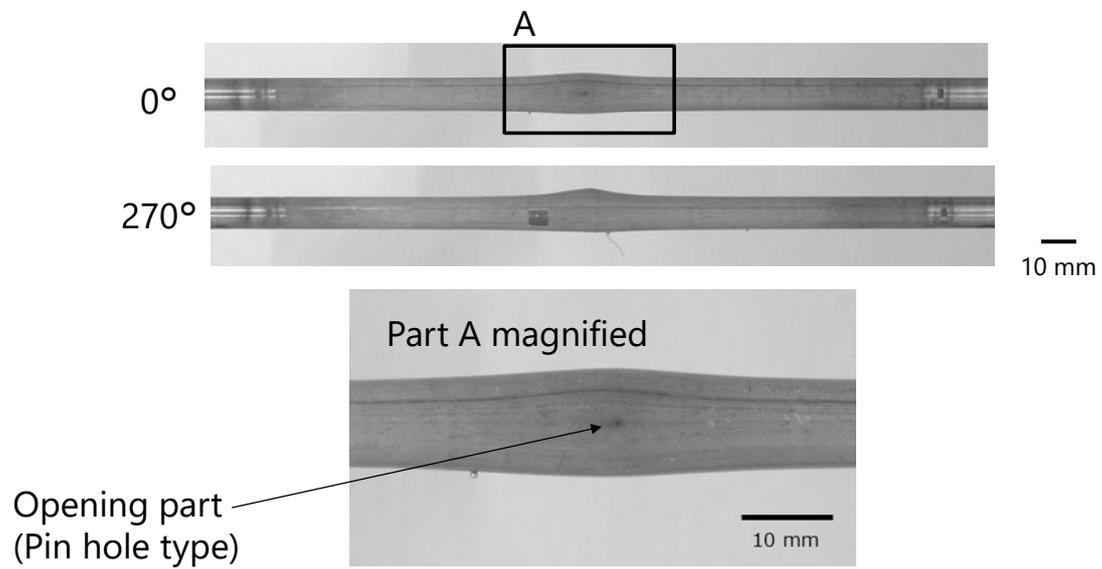


図 4.3.1-10 MMDA3 の LOCA 模擬試験後外観写真⁽¹⁾

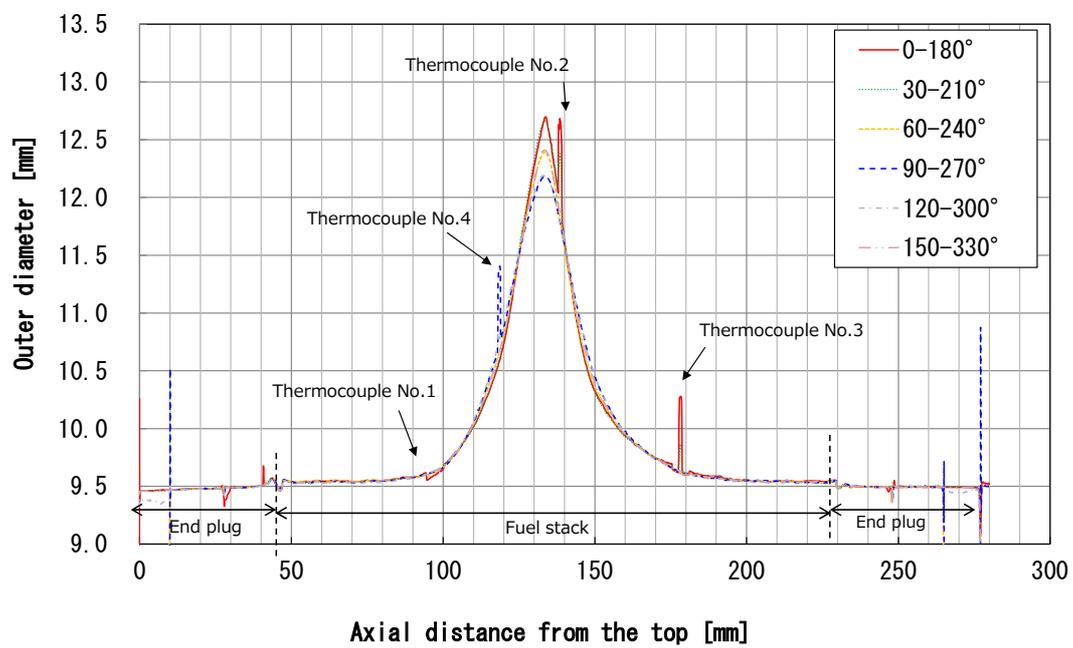


図 4.3.1-11 MMDA3 の LOCA 模擬試験後外径測定結果⁽¹⁾

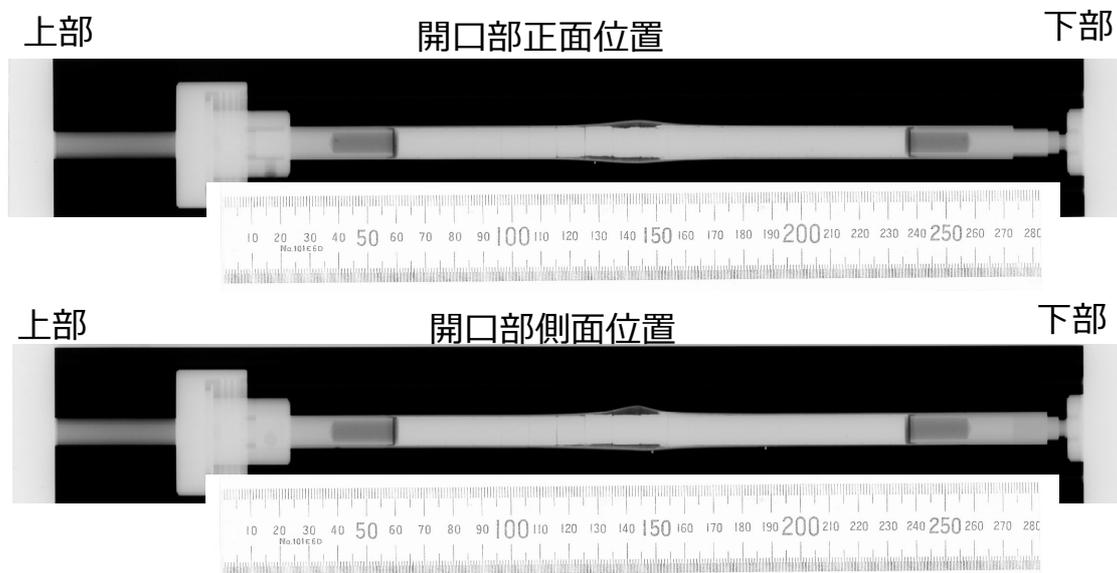


図 4.3.1-12 MMDA3 の LOCA 模擬試験後 X 線透過写真

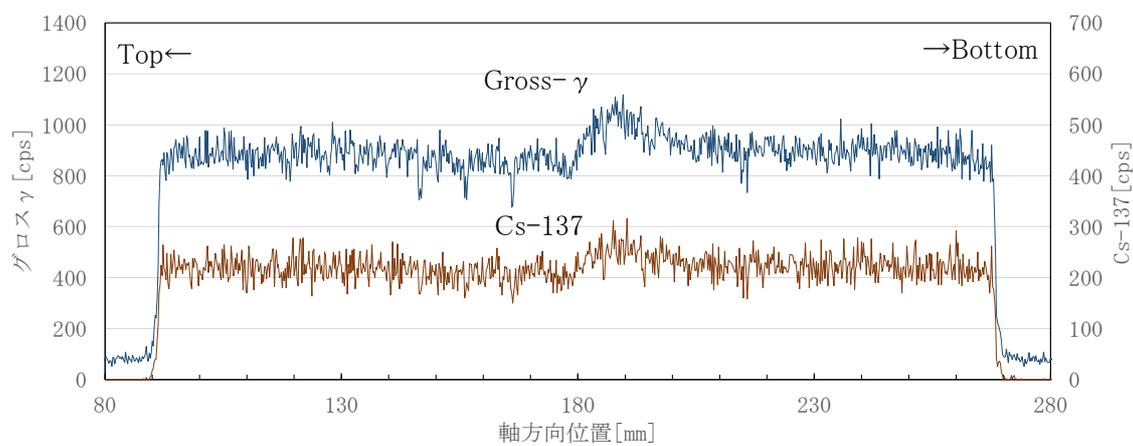


図 4.3.1-13 MMDA3 の LOCA 模擬試験後ガンマスキャン結果

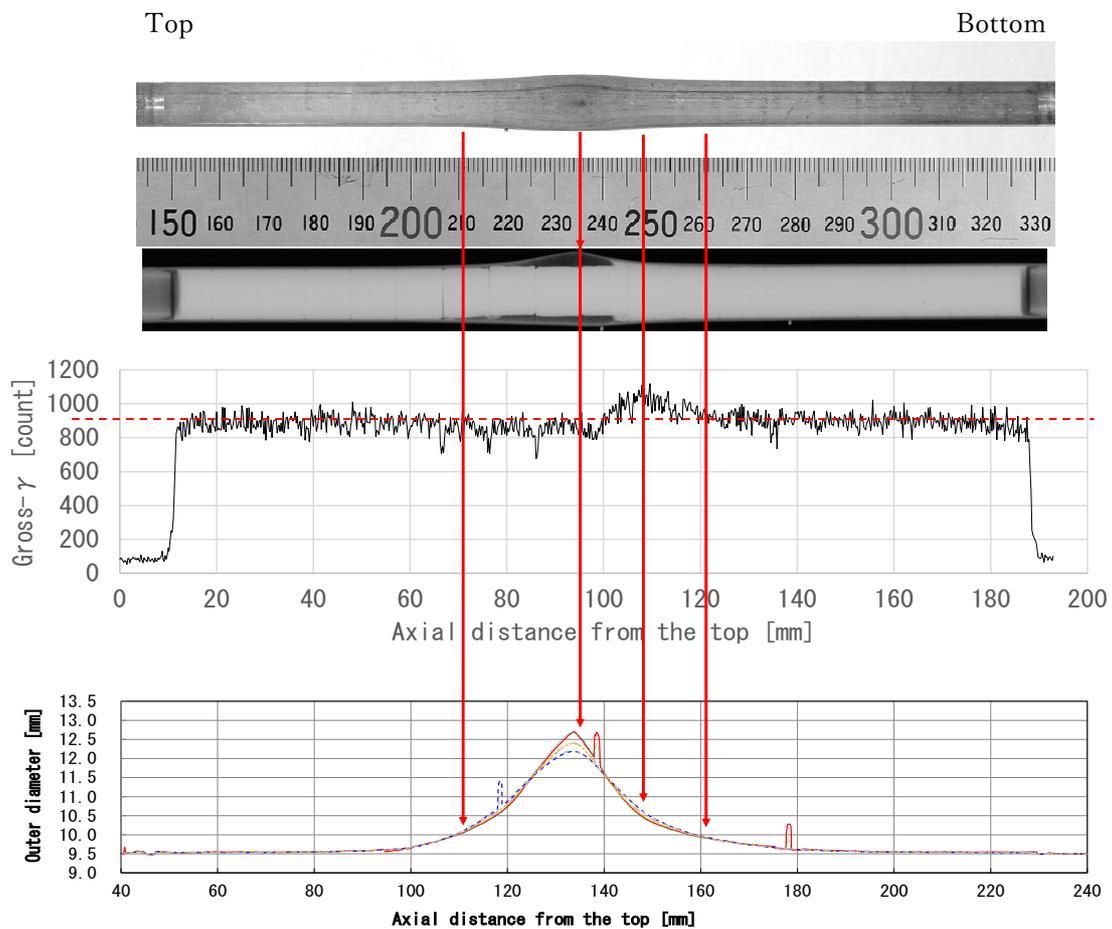


図 4.3.1-14 MMDA3 の LOCA 模擬試験の非破壊試験結果まとめ

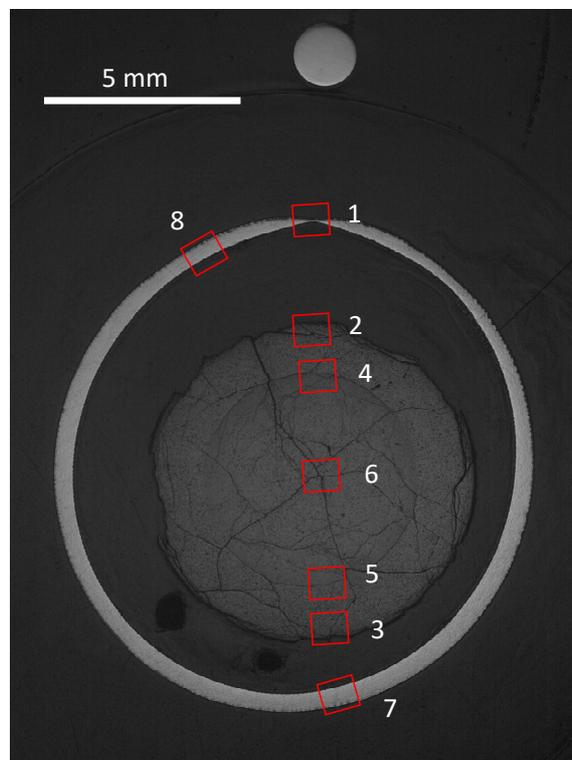


図 4.3.1-15(1) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察
(研磨後、マクロ写真)

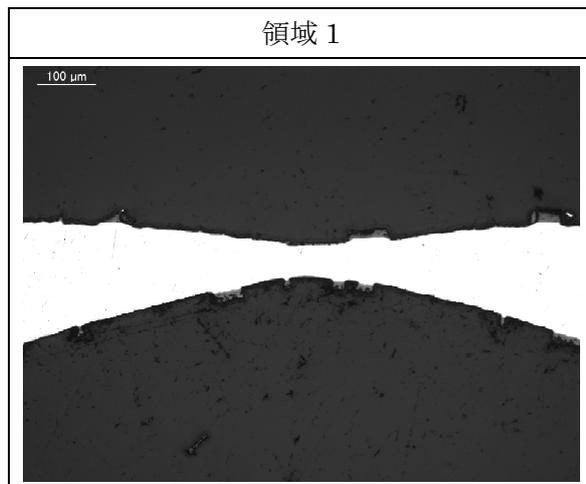


図 4.3.1-15(2) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察
(研磨後、破裂開口部 (図 4.3.1-15(1)の領域 1))

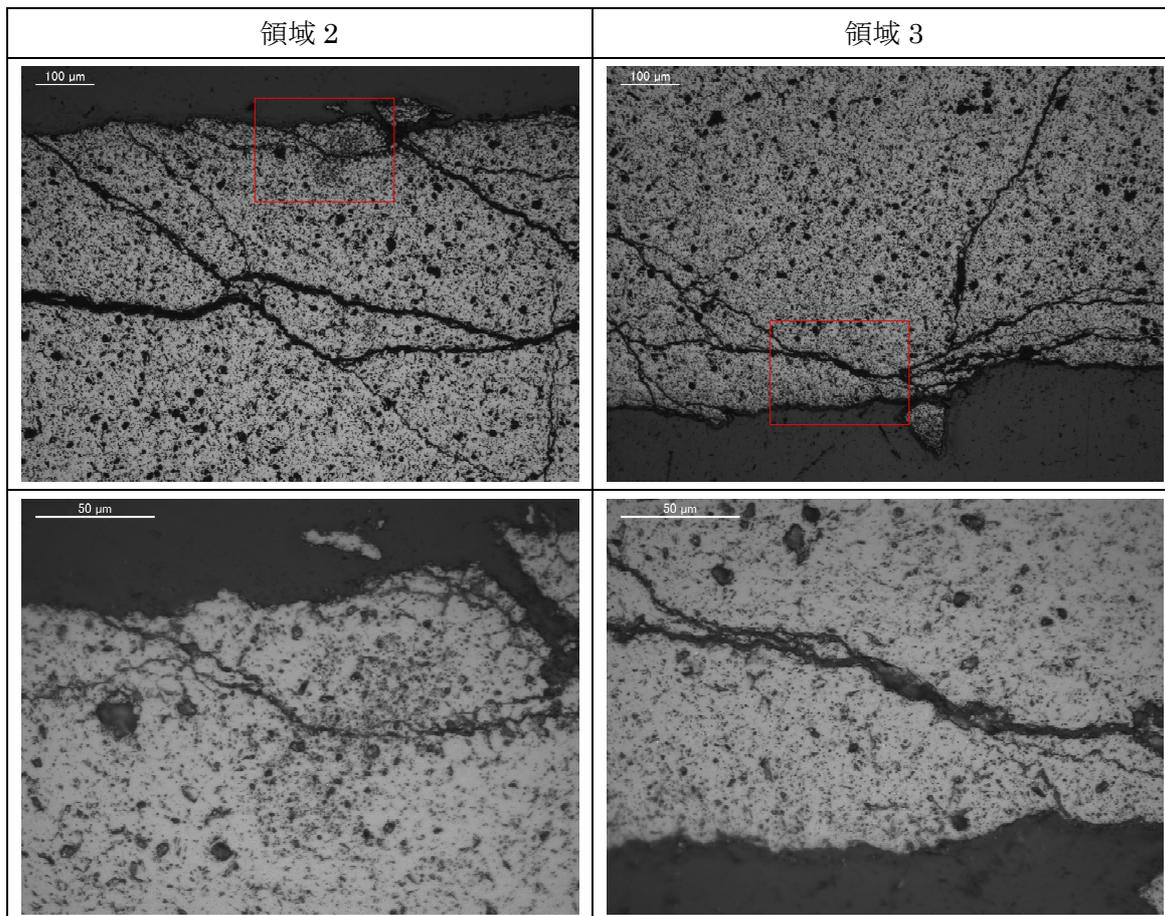


図 4.3.1-15(3) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察
(研磨後、ペレット外周部 (図 4.3.1-15(1)の領域 2、3))

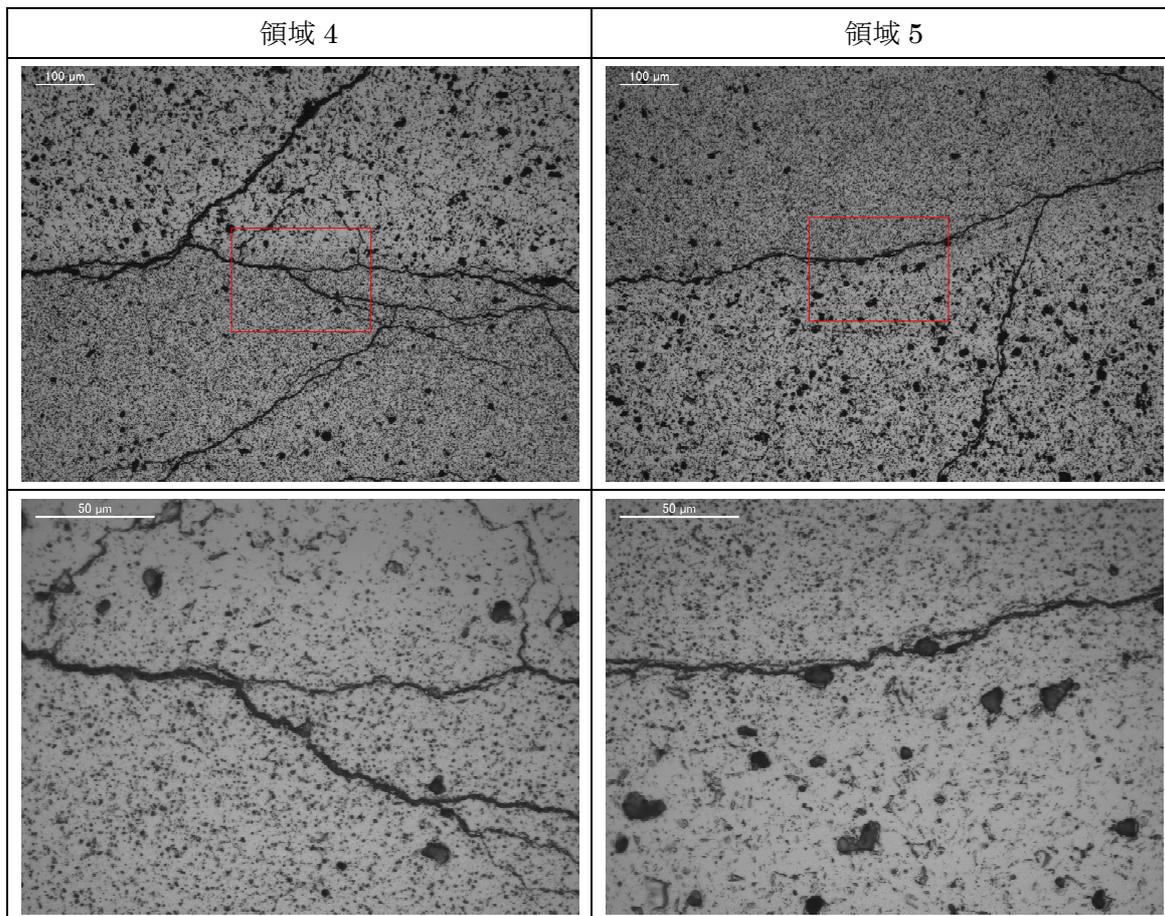


図 4.3.1-15(4) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察
(研磨後、ペレット中間部 (図 4.3.1-15(1)の領域 4、5))

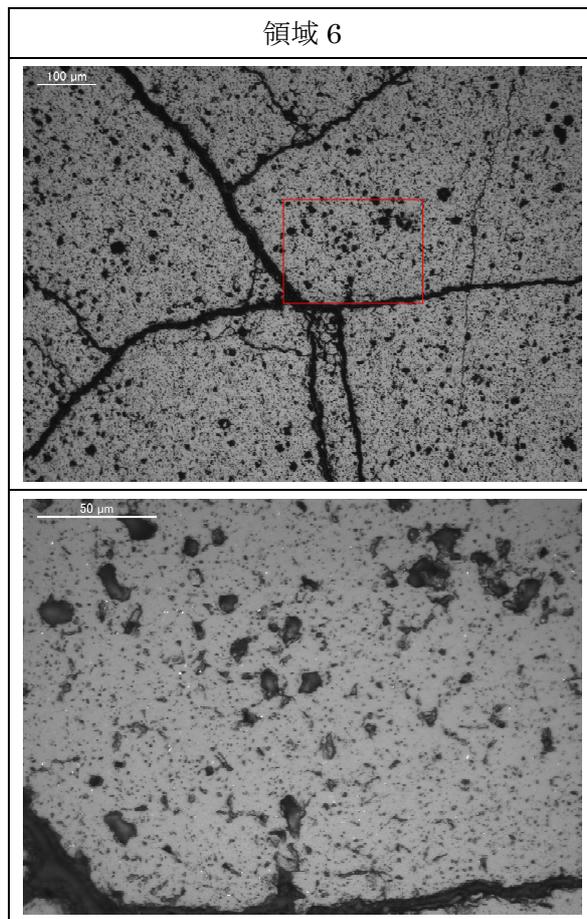


図 4.3.1-15(5) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察
(研磨後、ペレット中心部 (図 4.3.1-15(1)の領域 6))

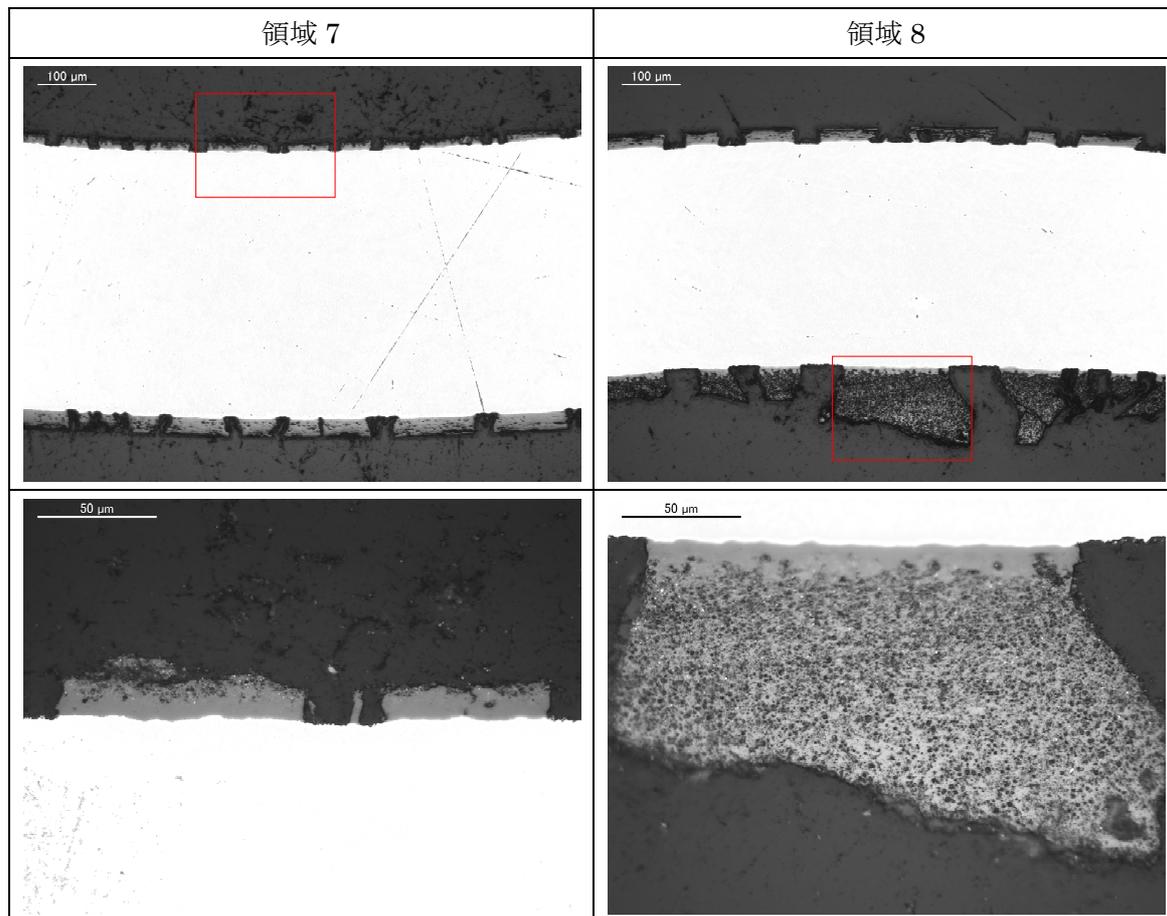


図 4.3.1-15(6) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察
(研磨後、被覆管部 (図 4.3.1-15(1)の領域 7、8))

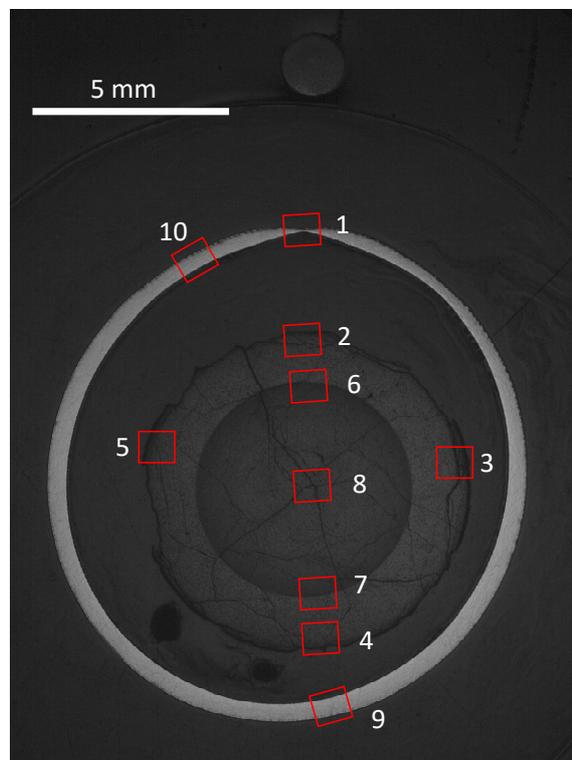


図 4.3.1-16(1) MMDA3 の LOCA 模擬試験後金相観察

(エッチング後、マクロ写真)