4.2.4　LOCA試験に関する総合評価

(1) LOCA時燃料破損が炉心冷却性に与える影響

軽水炉の設計基準事象としてのLOCAと現行基準、当該指針制定当時には想定されていなかったLOCA時挙動としての、燃料被覆管の膨れ・破裂に伴う燃料ペレットの細片化、軸方向の再配置及び燃料被覆管破裂開口からの燃料棒外への放出（FFRD）と炉心冷却性との関係、FFRD挙動評価に着眼した各LOCA模擬試験の設計や条件等について、中間報告書[16]にて整理・報告した。本節では、FFRD及びLOCA後の長期冷却期間における地震荷重が炉心冷却性に及ぼす影響について、令和5年度までに実施してきた各種試験及び解析評価に基づく検討をまとめる。

(2) FFRDが炉心冷却性に及ぼす影響

図4.2.4-1にFFRD影響評価研究における試験・解析等取り組みの関係を全体像として示す。FFRDのトリガとなる被覆管破裂が発生する温度域に燃料棒が達するには一定以上の残留熱及び崩壊熱が必要で、他方FFRDそのものが顕在化するとされる高燃焼度域では線出力は低下する傾向にあるため、FFRDが炉心冷却性に及ぼす影響を合理的に評価するには、まず①炉心全体でどの程度の割合の集合体が被覆管破裂を経験しうるかという炉心スケールの評価（同図(a)）、②被覆管破裂を生じた燃料ではFFRDによりどの程度の燃料放出が想定されうるか（同図(b)）、更に、③どの程度の燃料放出が生じれば炉心冷却性への影響が顕在化しうるか（同図(c)）の評価が、いずれも不可欠である。

各段階の評価の内、①については、本研究では国内で想定すべき代表的なプラント条件の一つとして、取り出し平均集合体燃焼度55 GWd/tの4ループPWRの平衡炉心状態をCASMO-5コードにより解析評価し[3,17]、ついで、同炉心における大破断LOCA発生時の熱流動をRELAP5コードにより解析評価した[2]。②については、CASMO-5から受け取った線出力履歴を読み込んだ通常運転時燃料挙動解析コードFEMAXI-8により集合体毎のベース照射時燃料挙動を計算し、この計算結果（燃料状態）とRELAP5から受け取ったLOCA時の熱的境界条件を事故時燃料挙動解析コードRANNSの解析条件として、被覆管破裂や燃料放出等FFRD評価の観点で重要となるLOCA時燃料挙動を解析した。③については、現行RIA指針の評価例を参考とし、原子炉圧力容器底部や集合体内スペーサグリッドへの放出燃料堆積を想定の上、堆積燃料層の冷却性が十分に確保されるかを解析により評価した[18,1]。

影響評価において、燃料挙動側の核となる燃料放出率予測モデル（同図(c)）については、国際協力[19,20,21]及び海外/先行研究の成果を集約したデータベース[22]（同図(d)）と、並行して令和5年度までに実施した各種LOCA模擬試験で得られた知見に基づき決定した。被覆管破裂時の燃料ペレット放出やその先行過程と言える細片化は、異なる燃料タイプ・試験体系が混在するデータベース上の傾向として、高燃焼度域で顕在化することが指摘されてきた。JAEAで実施したLOCA模擬加熱試験では、被覆管拘束力や水蒸気雰囲気の影響を排

除した試験条件の下、共通の照射条件且つ異なる局所燃焼度（73 及び 81 GWd/t）の高燃焼度燃料ペレット小試験片間で細片化挙動を直接比較した結果、燃焼度増に伴う被覆管破裂温度域での細片化割合の増大が確認され、また試験後の燃料ペレット細片の微細観察より、顕著な細片化の発生時に特徴的な小径のペレット細片ほど、高燃焼度組織やダークゾーン由来の割合が大きいこと[23]が示唆された（図 4.2.4-2）。

これらはいずれも燃焼に伴い、燃料ペレットの微細組織が変化し、細片化が進むことを裏付ける知見であり、これらを踏まえて燃焼度（セグメント燃焼度）を放出率予測モデルの第一の説明変数としている。他方、加熱試験供試ペレット（73 GWd/t）と同一燃料セグメントから採取・製作した試験燃料棒を供しての実燃料入り LOCA 模擬試験では、従来知見に比べ非常に小さい高温破裂開口、限定的な燃料ペレット細片化、軸方向リロケーションを生じるに留まり、また有意な燃料ペレット片の放出は確認されなかった（図 4.2.4-3）。

更に、より低い燃焼度（47 GWd/t）の燃料を用いて実施した実燃料入り LOCA 模擬試験でも同様の傾向が確認された。燃料棒内自由体積に封じられたガスのエネルギーと破裂開口挙動の相関に関する知見[24]と、過去実施された類似試験との試験条件比較を踏まえ、当該実燃料入り LOCA 模擬試験では、プレナム体積が小さく、従って被覆管の膨れに伴う自由体積増により高温破裂時点までに生じた自由体積中ガス圧力の低下が大きく、このことが開口形成及び開口に伴うペレット細片化の進行や放出の抑制につながったものと解釈した。そこで放出率予測モデルには、破裂開口時の燃料棒内内圧を第二の説明変数として導入している。なお上記②③の総合影響評価解析実施と前後するものの、燃料棒内ガス状態を支配因子とみなすこのようなモデリング指針の妥当性については、本年度実施した本事業最後の LOCA 模擬試験 MMDA4（4.2.1 節）により裏付けられた。

総合影響評価において、まず LOCA 解析の起点とした PWR 平衡炉心では、集合体燃焼度は凡そ 10-55 GWd/t の範囲に分布し、また概して、燃焼度が高い集合体では出力を低く、逆に燃焼度が低い集合体では出力が高い関係となった。この炉心で想定・解析した LOCA 時には一部集合体で被覆管最高温度が約 800℃を超え、ベイズ統計破裂予測モデル[1,2,3]により一定本数の被覆管破裂が予測された。

これに伴い、同じくベイズ統計燃料放出率予測モデル[1,2,3]（図 4.2.4-4）により、炉心全体での燃料放出量や燃料棒あたり燃料放出割合がその不確かさと共に評価された（4.2.3 節）。これらの放出割合及び放出量はそれぞれ集合体内（グリッドスペーサ位置等）及び原子炉圧力容器底部に想定される燃料片堆積層で冷却性が損なわれる水準[1,18]を下回っており、本評価において国内で代表的なプラント条件の一つとして想定した取り出し平均集合体燃焼度 55 GWd/t の 4 ループ PWR 平衡炉心について、LOCA 時の FFRD 現象により炉心冷却性に直ちに懸念が生じるものでは無いと言える。

但し、本総合影響評価を構成する多数のモデル要素は、統計的不確かさをパラメータに取り込んでいる燃料放出率予測モデルや被覆管高温破裂モデルを除けば、他の燃料挙動に関する最適評価ベースでの解析と、LOCA 解析条件に代表される保守的な設定が組み合わさ

っており、解析全体の不確かさをより正確に見積もる観点で改善の余地は大きい。また FFRD 挙動自体についても現象の複雑さに鑑みればデータベース規模は未だ小さく、燃焼度以外の支配因子に係る議論は必ずしも収斂していない。今後はデータベースに含まれていない照射条件・燃料タイプに着目したデータ拡充や支配因子の影響発現メカニズム、例えば極めてデータの乏しい MOX 燃料への適用性を確認することや、実機 4m 級燃料と模擬試験で大きな違いのある破裂開口部とプレナム部の距離がどのように作用しているかの検証等、構築した FFRD 影響評価手法の信頼性向上や適用範囲拡大に向けた取り組みが重要である。

(3) 繰り返し荷重下の燃料被覆管破断挙動

LOCA 後の冷却期間中に作用する可能性のある地震等荷重の下で燃料被覆管が折損（破損）する条件を把握するため、LOCA を模擬した高温酸化・急冷試験後の燃料被覆管試料を四点曲げ試験に供し、曲げ強度等を評価した。特に本研究では、現実の地震動下で想定され、また従来知見の乏しかった、繰り返し荷重負荷条件下での破損挙動を重点的に調べた。
東日本大震災等の地震動条件を踏まえて保守的と想定された 5.8 Nm 荷重、1000 回繰り返しまでの負荷条件では、LOCA を模擬した高温酸化・急冷試験後のジルカロイ 4 被覆管試料（以下「LOCA 模擬材」という。）の曲げ強度に系統的な変化は生じなかった（図 4.2.4-4.2.4-5(a)）。簡易的に評価可能な酸化の指標である Baker-Just ECR と曲げモーメントでの整理（図 4.2.4-4.2.4-5(a)）に代え、実試料で観察された微細組織の変化に基づいて別途評価された酸化量（M-ECR）と局所応力による整理（図 4.2.4-4.2.4-5(b)）においても、同様の傾向が確認された。

LOCA 模擬材の試験結果を踏まえ、予め水素を添加した被覆管材料に対してもデータを拡充し、これについては 1 回繰り返し 4 点曲げ試験のみをこれまでに実施した。水素を添加しない 1 回繰り返し荷重の条件と比較（図 4.2.4-6）すると、水素を添加した被覆管の方が、水素無添加の場合よりも全体的に最大曲げモーメントや最大曲げ応力が有意に低下している。今後は、水素濃度等試料状態と破損限界低下との関係が繰り返し荷重条件に特有のものかを確認する必要がある。また、疲労破壊が問題となるようなより大きな繰り返し数の下での破損挙動については依然として知見が乏しく、LOCA 後長期冷却性の維持をより確実なものとするため、データの拡充が重要である。

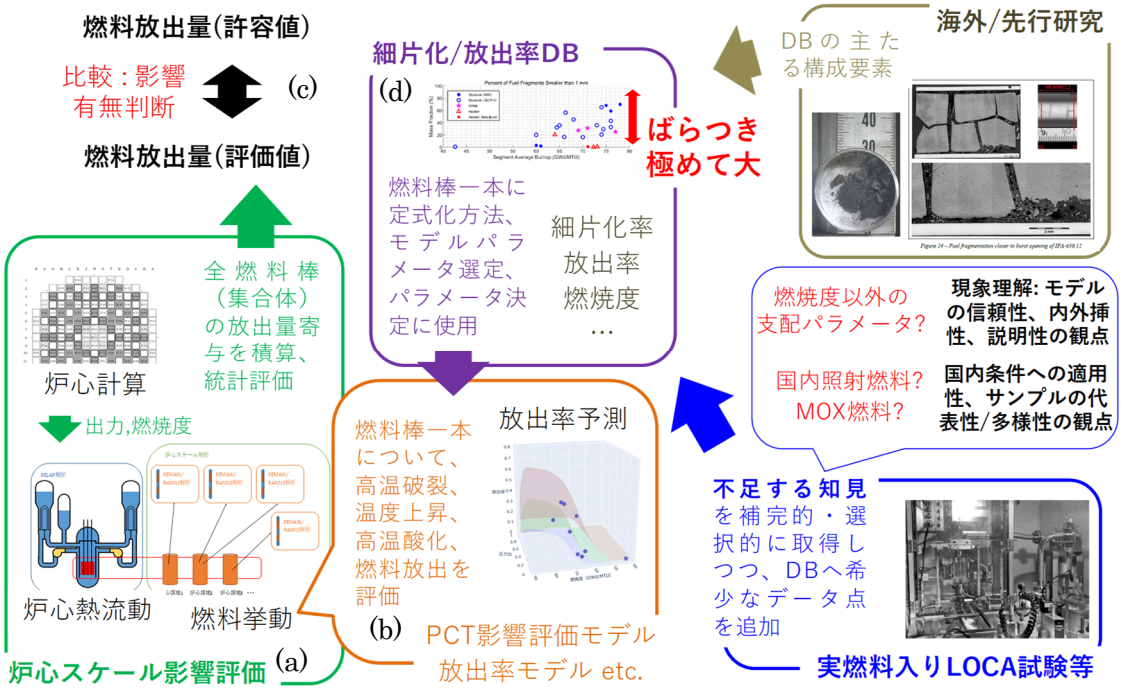


図 4.2.4-1　LOCA 模擬試験の FFRD 影響評価研究

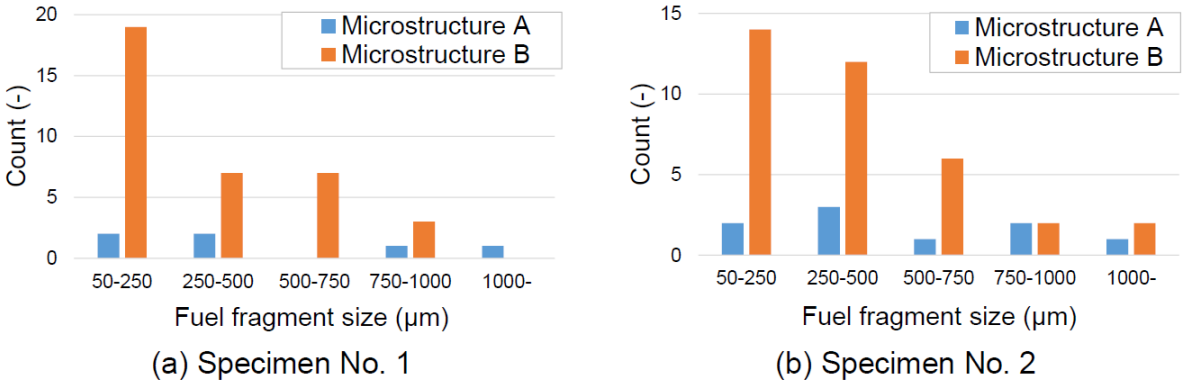


図 4.2.4-2　微細組織毎に分類された燃料片サイズ分布(微細組織 A は製造時粒径(～10μm)を維持した構造、微細組織 B はダークゾーンまたは高燃焼度微細組織の特徴であるポアが密に形成された構造を示す)。

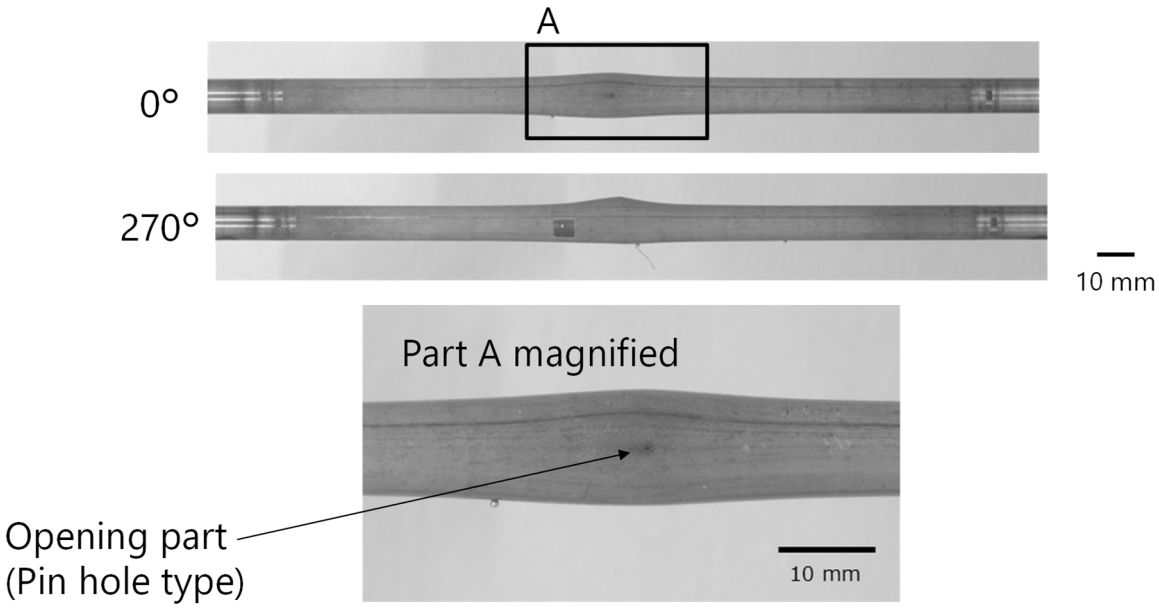


図 4.2.4-3　高燃焼度燃料棒（燃焼度 73 GWdd/t）を用いた LOCA 模擬試験結果

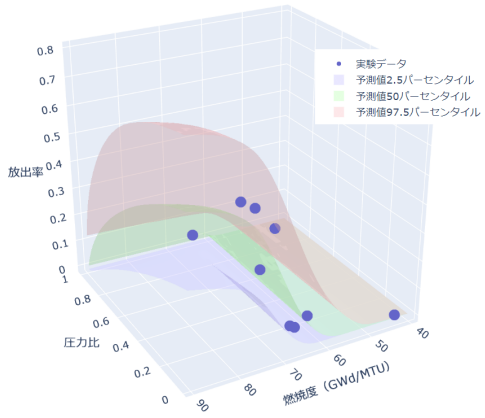


図 4.2.4-4　LOCA バースト時の燃料放出率の予測式のベイズ推定結果

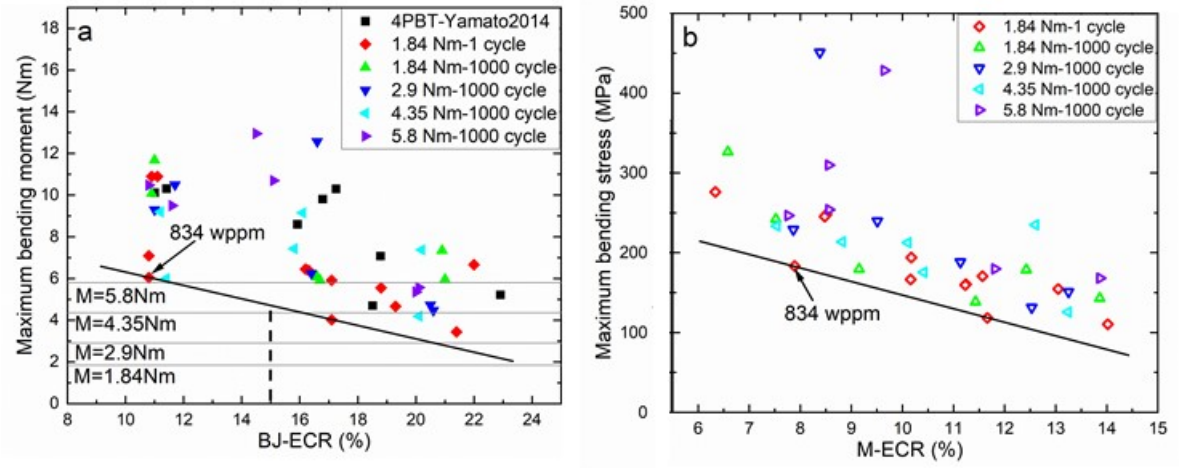


図 4.2.4-5 (a)最大曲げモーメントと BJ-ECR、(b) 最大曲げ応力と M-ECR との関係（水素添加なし）

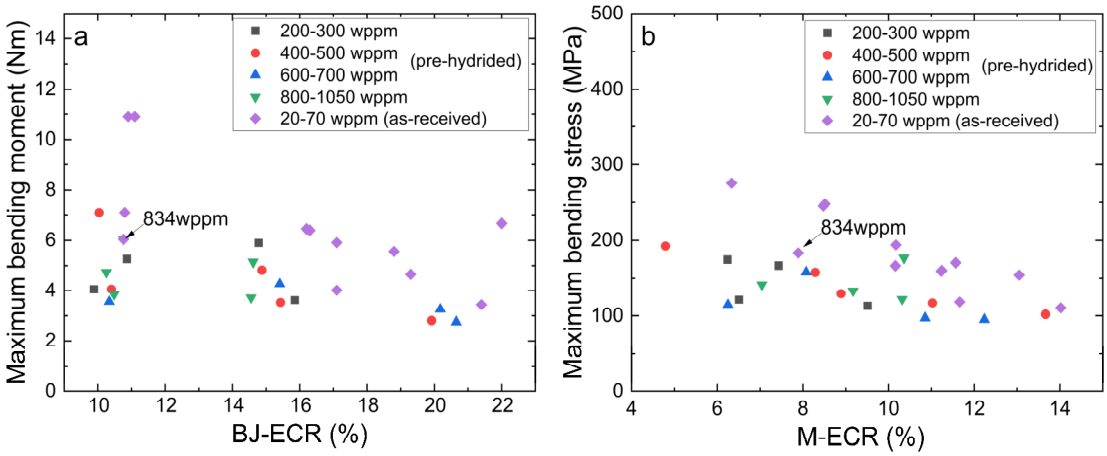


図 4.2.4-6 (a) 最大曲げモーメントと BJ-ECR との関係、(b) 最大曲げ応力と M-ECR との関係（予め水素添加した被覆管）

4.2.5 被覆管高温破裂時の燃料棒力学挙動

(1) 背景、概要

FFRD に関して、被覆管高温破裂に伴う燃料片放出の支配因子の一つと目される被覆管開口は、高温破裂時の燃料棒内ガス状態の影響を受ける、具体的にはガスの有するエネルギが大きいほど、開口幅従って開口面積も大きくなる傾向にあることが、未照射燃料被覆管を供しての LOCA 試験研究の中で指摘されており、また本年度実施に至った実燃料入り LOCA 試験 MMDA4 において照射材の挙動としても確認されたところである。このような知見を踏まえ、本年度は FFRD を構成する素過程の定性的理解に資する解析評価の一環として、実験的には詳細に把握することの難しい、被覆管高温破裂前後の被覆管、棒内ガス挙動の動的な側面に着目した有限要素解析、流体解析等を実施した。なおこれらは本年度に開始した、即ち前節に示した総合評価に対し時系列として並行乃至後発の検討であり、以下の解析で得た結果、考察に関しては総合評価の進め方、考え方へは影響を与えていない。

FEM コードとして Abaqus 2022 を、CFD コードとして STAR-CCM+ 2306.0001 を用いて、JAEA で過去に実施したコールド LOCA 試験体系（図 4.2.5-1）における模擬燃料棒をモデル化した（表 4.2.5-1 及び 2、図 4.2.5-2 及び 3）。被覆管内流体（圧縮性、不活性のガス）が構造（被覆管）に及ぼす力学的な作用を考慮できる設定を施し、３ステップの解析を実施した（図 4.2.5-4）。

(2) 解析ステップ 1

ステップ 1 の解析では、被覆管に温度分布と内圧による荷重を付与して変形させ、バルーニング挙動を模擬した。その後に連続体損傷力学モデル（CDM モデル）によりバーストさせ、バースト初期段階の開口した形状を持つ被覆管モデルを得た（図 4.2.5-5 及び 6、表 4.2.5-3）。バースト発生前後の挙動を安定に扱う為には Abaqus/Explicit（動的陽解法）による時間積分が必要があるが、バルーニングまでには数秒オーダーの計算が必要になるので、時間刻みが 10^{-8}～10^{-9} s となる動的陽解法を終始適用するのは非現実的である。そこで①Abaqus/Standard を用いた静的陰解法で解析を開始し、その結果を③Abaqus/Explicit へ引継いだ。また、被覆管内の圧力荷重は、被覆管内に閉じ込められたガス由来のものであり、被覆管が変形した際に変形量（被覆管内の体積の増加量）に応じて圧力荷重も変化させる必要がある。この荷重を Abaqus の流体空洞の機能を用いて設定したが、Abaqus2022 の流体空洞を用いた場合、モデルのもつ温度分布を引き継いだ解析をすることが、ソフトウェアのバグによりできない。そのため、Abaqus/Standard で流体空洞を用いた解析を実施し（②）、そこで得た圧力時刻歴を用いて圧力荷重による解析を行い、これを③Abaqus/Explicit に引き継いだ。被覆管部分は六面体低減積分要素 C3D8R でモデル化した。流体空洞のため、便宜上被覆管を閉じた状態にする必要がある。そのためのふたの部分は三角形表面要素 SFM3D3 を用いている。この要素は剛性を持たない要素

であり、被覆管の変形を阻害しない。温度場は、図 4.2.5-6 に示す温度情報を時間的には線形に、また空間的には cos 関数で近似・補間して解析へ適用した。被覆管初期内圧は 9 MPa とした。②から③への引継ぎは Abaqus のリスタート計算機能を用いて行われており、有限要素の変位、速度、応力、温度、ひずみ、CDM モデルの状態変数等が③の初期条件として受け渡されている。

解析結果を図 4.2.5-8 から 4.2.5-11 に示す。僅かな温度ピークの位置で被覆管の塑性変形が進展、集中し、損傷モデルのメッシュ消去判定が適用されることで開口が生じている。開口は極めて短時間の内に急激に拡大するが、この間の被覆管内自由体積及び内圧の相対的な変化は小さい。

(3) 解析ステップ２及び３

ステップ２の流体力学解析では、ステップ１③バースト解析で得られたバースト発生時被覆管ジオメトリを境界条件とする（例：図 4.2.5-12）自由空間内のガス流動、今回の解析対象においては特にバーストの瞬間まで被覆管内に封じられていた高圧のガスが開口部を通過して被覆管外へ流れ出す際動的挙動を解析した。メッシュ生成や時間刻み制御等の解析条件を表 4.2.5-4 から 6 に示す。ステップ１③バースト解析からは、流路とする被覆管ジオメトリの他、圧力分布と温度分布を初期条件として受け継いでいる（図 4.2.5-13）。ガスの初期速度は体系全体に渡り 0 m/s とした。

ステップ２流体力学解析で得られた被覆管内ガス圧の時間推移を図 4.2.5-14 及び 15 に示す。それぞれ放出される管内ガスを空気、He にとったケースである。圧力は空間分布を有するが、本解析中開口部の極近傍を除き被覆管内圧力は殆ど平坦であった。同図では、開口部と被覆管端部の概ね中間位置で、圧力の情報を出力として抽出・プロットしている。ステップ２は純粋な流体力学解析であり、構造解析（ABAQUS）による流路のジオメトリ変化等は生じないので、現実のバースト直後には放出過程（図 4.2.5-16）で続いているであろう開口の拡がり、これによるガス流出口面積の増加は無視している関係、従って圧力の降下速度は過小評価している関係となる筈であるが、このような解析条件にあっても圧力が半減するまでの時間間隔は空気、He のケースでそれぞれ 2 ms、0.4 ms 程度と非常に短いことが分かる。現実の系では、放出過程でも開口が進行し（次節）、放出速度は更に速まるものと考えられる。

ステップ３では、ステップ２で得られた圧力の空間分布及びその時間推移を、再度構造解析（ABAQUS）の力学的境界条件として受渡し、圧力効果過程での被覆管開口の進展をシミュレートすることを試みたが、図 4.2.5-17 に示すように、解析開始直後に損傷パラメータ（塑性変形の進展と共に増加し、1.0 に至るとメッシュ消失を生じる）が開口部周辺の各所でメッシュ消失の条件を満たし、開口部周辺の被覆管が破砕・飛散する結果となり、現実的な力学挙動の解析には至らなかった。本解析において損傷力学モデルはあくまで被覆管開口部形成の一手段として採用した所、開口形成以降の拡がり・破損進展を適切に再

現する為には、例えば開口部上限両端で生じる応力集中の影響を正確に反映できるより詳細な有限要素メッシュ分割等が必要になると考えられる。また前述の通り、現実の系ではガス放出速度は更に速い、従って開口部内壁に作用する圧力はより急速に低下する筈であり、作用圧力の過大評価もこのような破砕・飛散挙動の要因と考えられる。

(4) 被覆管破裂時減圧のペレット力学作用への影響について

被覆管破裂時の急激な減圧に伴って解放される、被覆管に蓄積されていた弾性エネルギの力学的作用、即ち弾性波の発生がペレットの力学的状態に及ぼす効果を確認するため、より簡易的なモデルを用いた有限要素解析（Abaqus）を上記解析とは別に実施した。モデルの概要を図 4.2.5-17 に示す。被覆管外径 9.5 mm、内径 8.36 mm、全長 150 mm とし、上下両端の 55 mm 範囲に対して直径 8.36 mm のペレットを装荷し、ペレット外表面と被覆管内面を互いに拘束した。また中央部（長さ 40 mm）に対して、長さ 10 mm、直径 8.32 mm のペレット 4 個を装荷し、ペレットとペレットの接触条件は一定の摩擦係数を考慮した。被覆管及びペレットのヤング率には、770℃相当の文献値[25]を用いた。被覆管とペレットの変形に係る解析条件については、被覆管の塑性変形 10%程度までのひずみ硬化則、ペレットは弾性変形のみを仮定した。中央部のペレット外表面と被覆管内表面には内圧 8 MPa を模擬した応力を作用させ、系が安定後瞬時に負荷を除く操作を施した。時間積分には陽解法を採用している。解析により得られた中央部ペレット領域の左端、中央、右端の位置における軸方向応力、周方向応力、および弾性ひずみエネルギ密度を図 4.2.5-18 に示す。横軸の 1 sec 時点で減圧しており、減圧に伴う弾性ひずみ波が観察されたものの、その値は破裂前と比較して小さく、ペレットへの力学的影響も小さいと考えられた。

表 4.2.5-1　被覆管・ペレット寸法

被覆管外径	9.50mm
被覆管内径	8.36mm
被覆管軸方向長さ	190mm
ペレット直径	8.19mm
ペレット軸方向長さ	10mm

表 4.2.5-2　石英管寸法

外径	41mm
軸方向長さ	190mm

表 4.2.5-3　ステップ 1 被覆管モデルのメッシュ条件

節点数	644,788
要素数	488,612
被覆管の板厚方向分割数	3
き裂	なし

表 4.2.5-4　ステップ 2 自由空間メッシュ条件

メッシュタイプ	ポリヘドラル
レイヤーメッシュタイプ	プリズム
レイヤーメッシュ数	3 層
基準サイズ	0.008m

表 4.2.5-5　ステップ 2 流体解析モデル

連成型エネルギー
勾配
連成型流れ
アダプティブ時間ステップ
層流
陰解法非定常解析
理想気体
気体
3 次元

表 4.2.5-6　ステップ 2 時間ステップ設定

最初の時間ステップ	1.64×10^{-8}
時間ステップ変更係数境界	0.0
時間ステップ変更係数境界	1.1
時間ステッププロバイダ	対流 CFL 条件
CFL 数のターゲット平均値	1.0
CFL 数のターゲット最大値	10.0

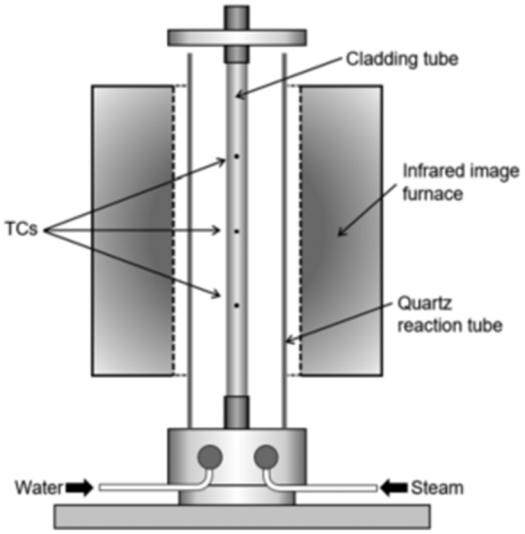


図 4.2.5-1　解析対象実験体系

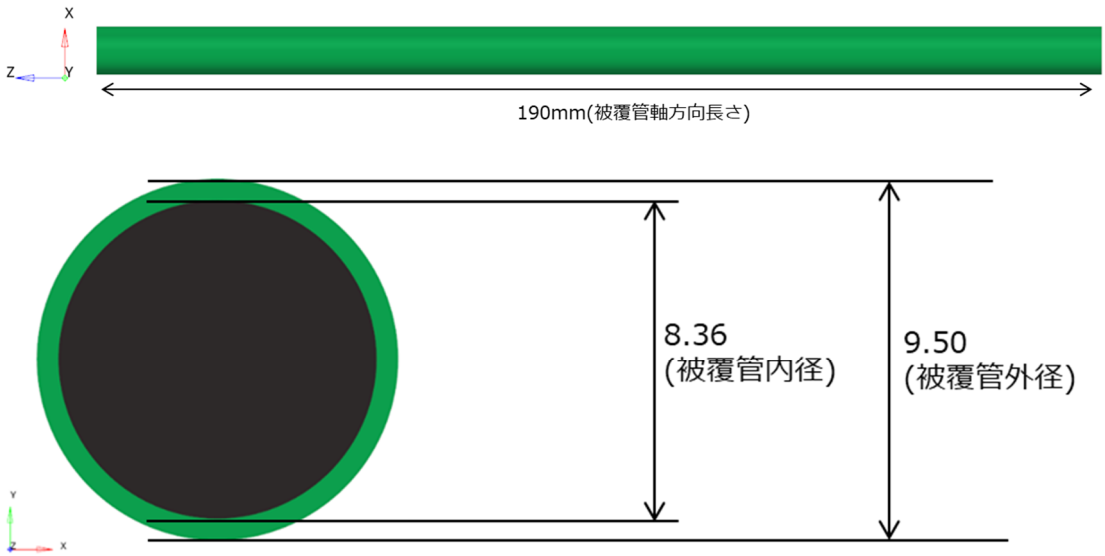


図 4.2.5-2　被覆管モデル

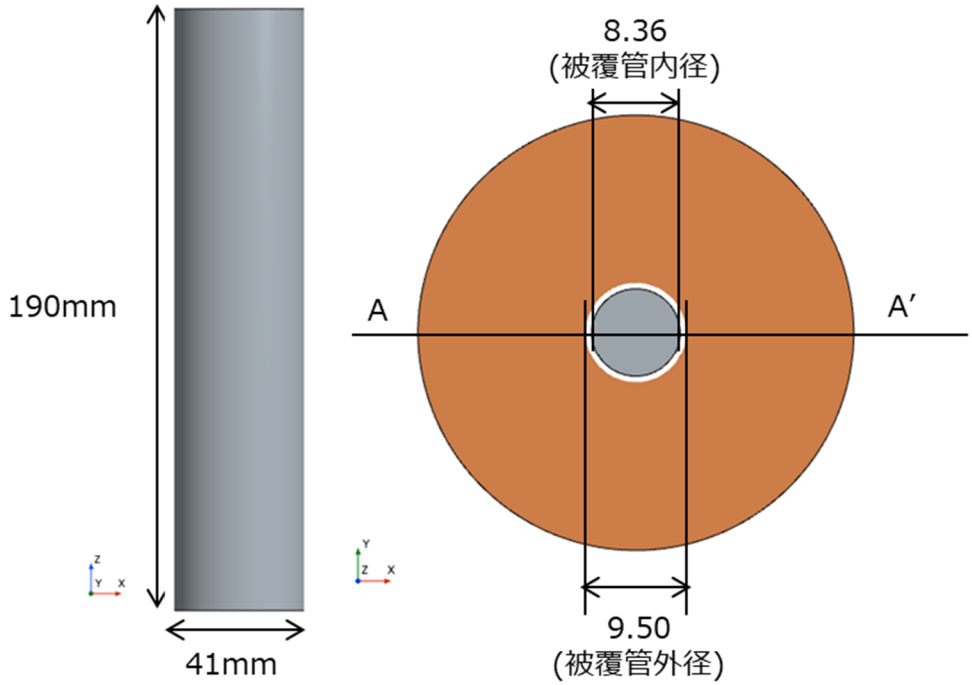


図 4.2.5-3　石英管モデル

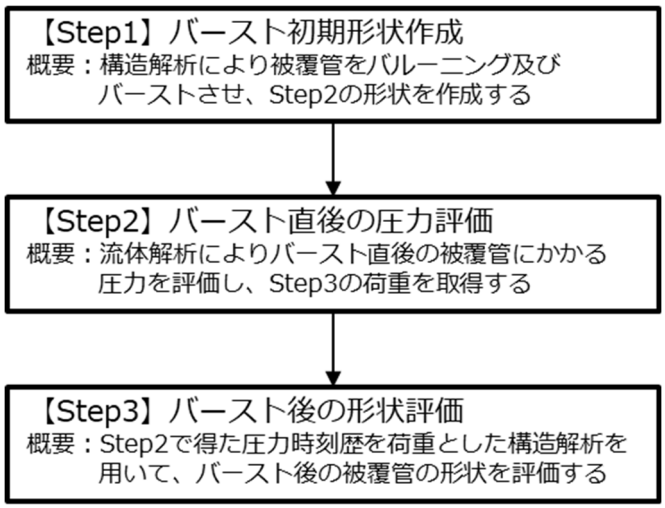


図 4.2.5-4　解析全体のフロー

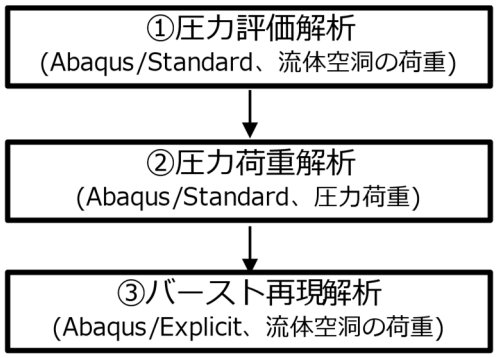


図 4.2.5-5　ステップ 1 のフロー

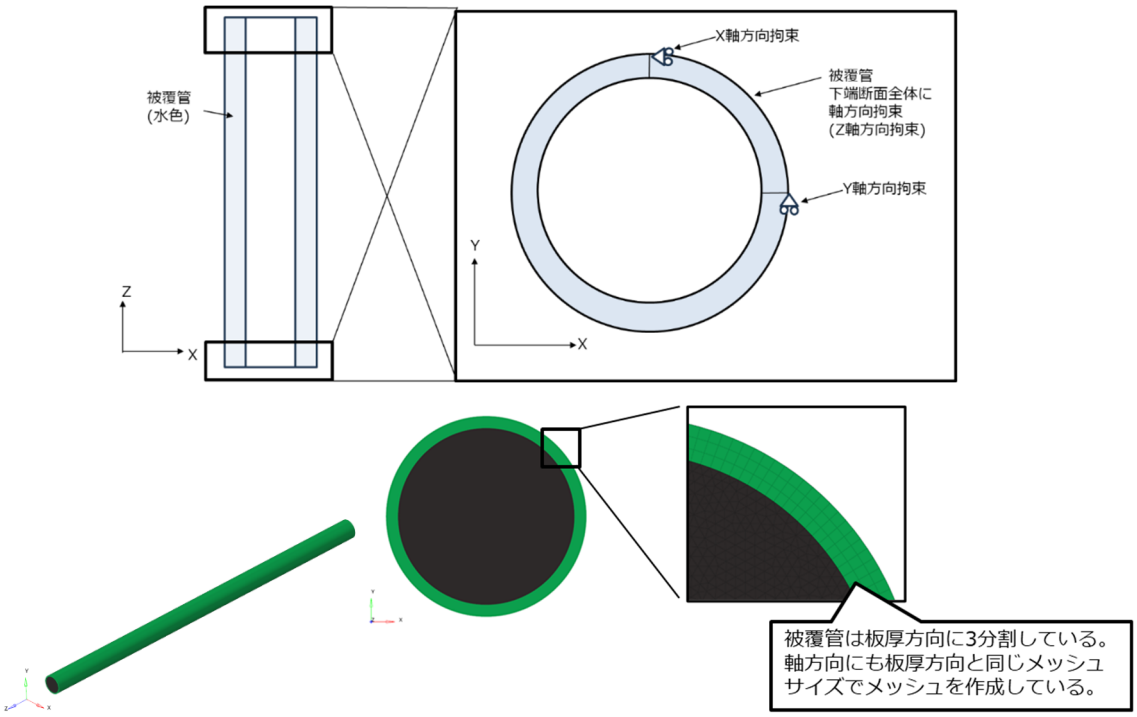


図 4.2.5-6　ステップ 1 の被覆管モデル

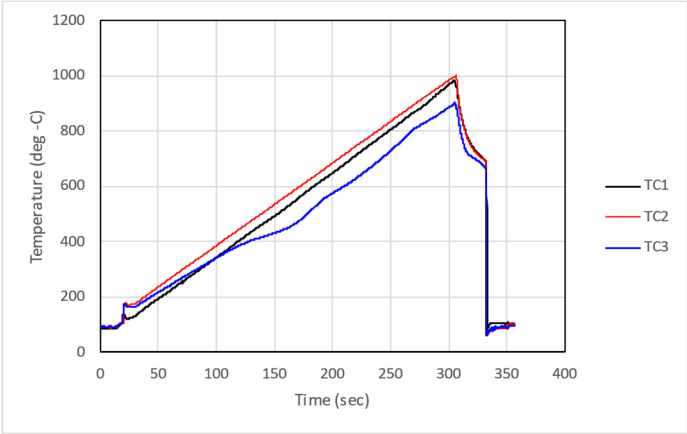


図 4.2.5-7　温度場設定の参考とした LOCA 模擬試験中温度測定値

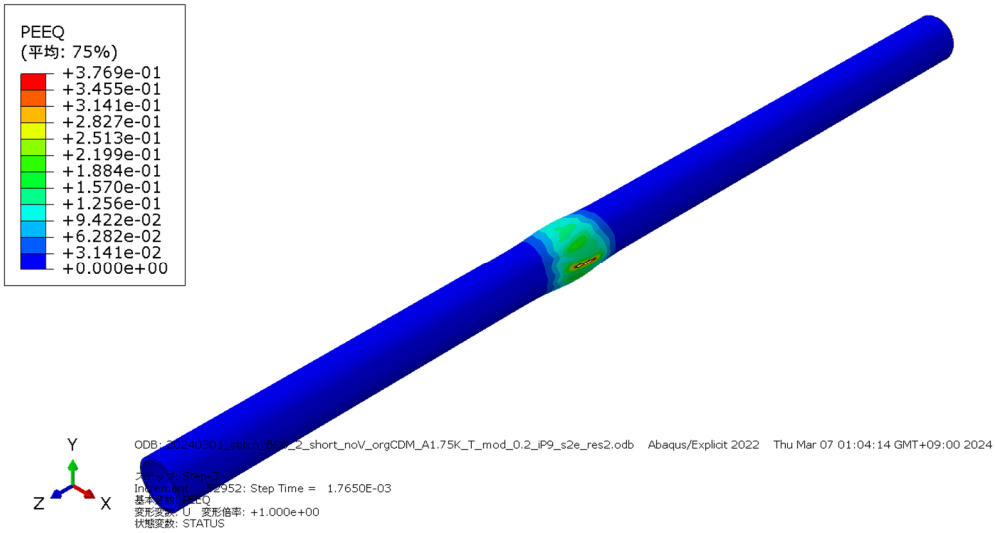


図 4.2.5-8　バースト開始時の相当塑性ひずみ分布

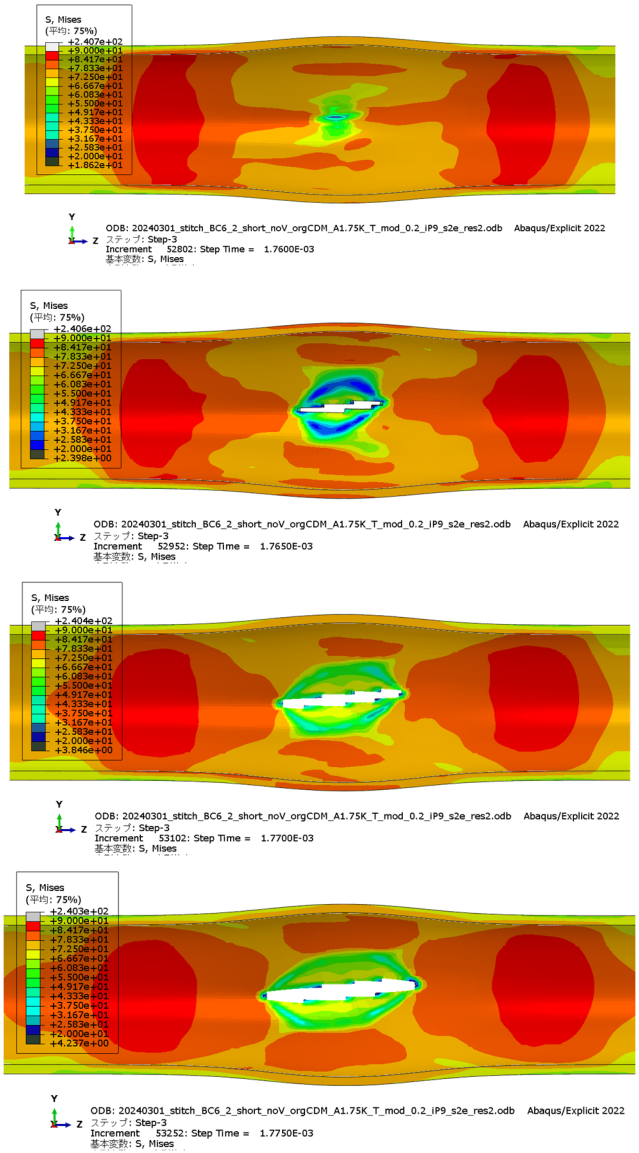


図 4.2.5-9　（上から）バースト 5e-6 s 前、直後、5e-6 s 後、1e-5 s 後の相当塑性ひずみ分布

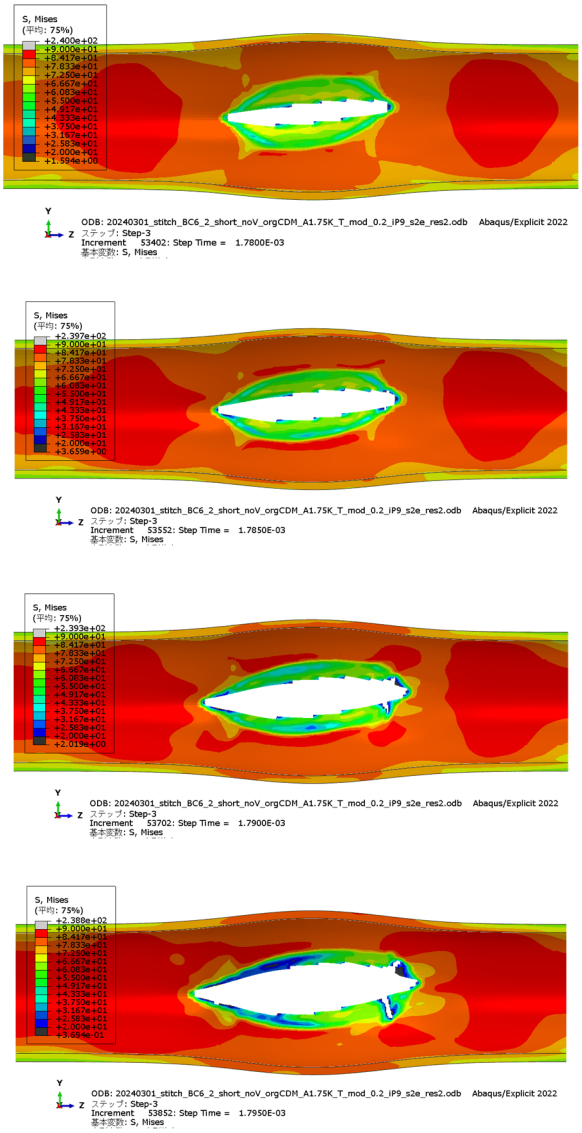
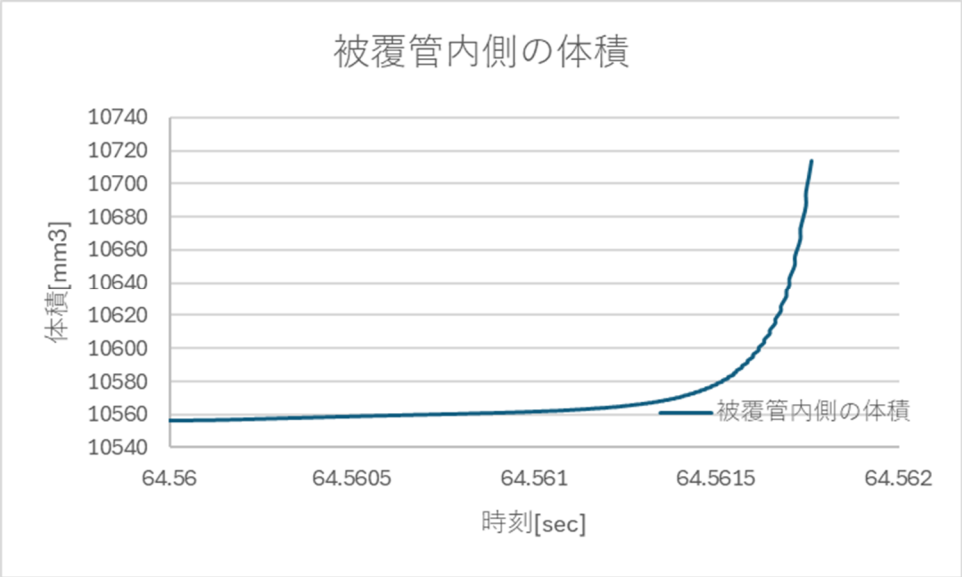


図 4.2.5-10　（上から）バースト 1.5e-5 s 後、2.0e-5 s 後、2.5e-5 s 後、3.0e-5 s 後の相当塑性ひずみ分布



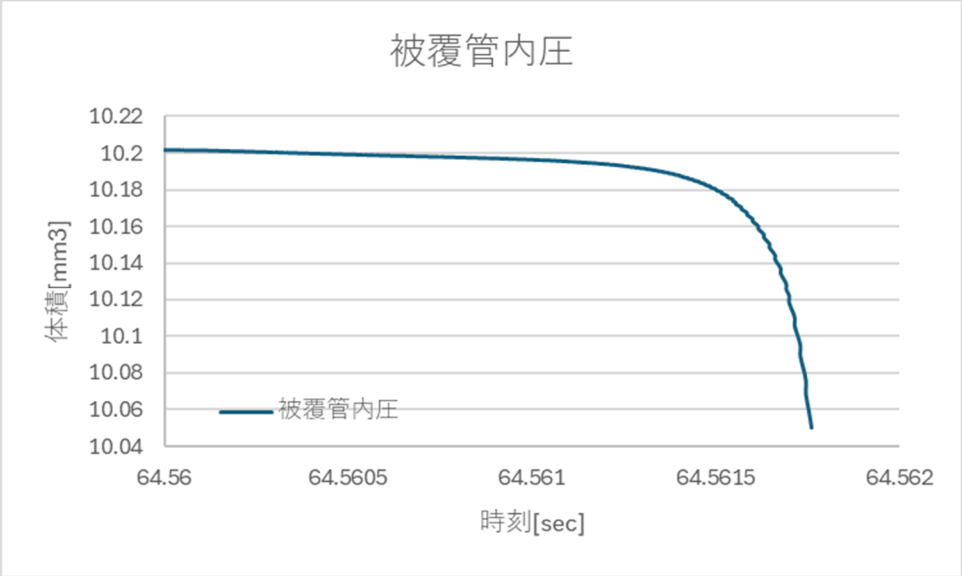


図 4.2.5-11　バースト時の被覆管内自由体積と内圧（ステップ 1 解析）

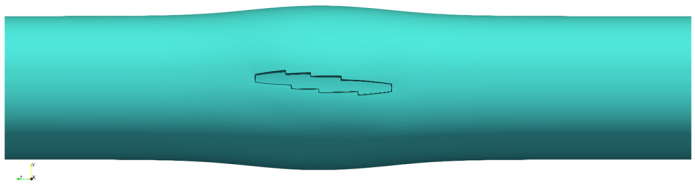


図 4.2.5-12　流路形状としてステップ１解析から受け取ったバースト時被覆管形状

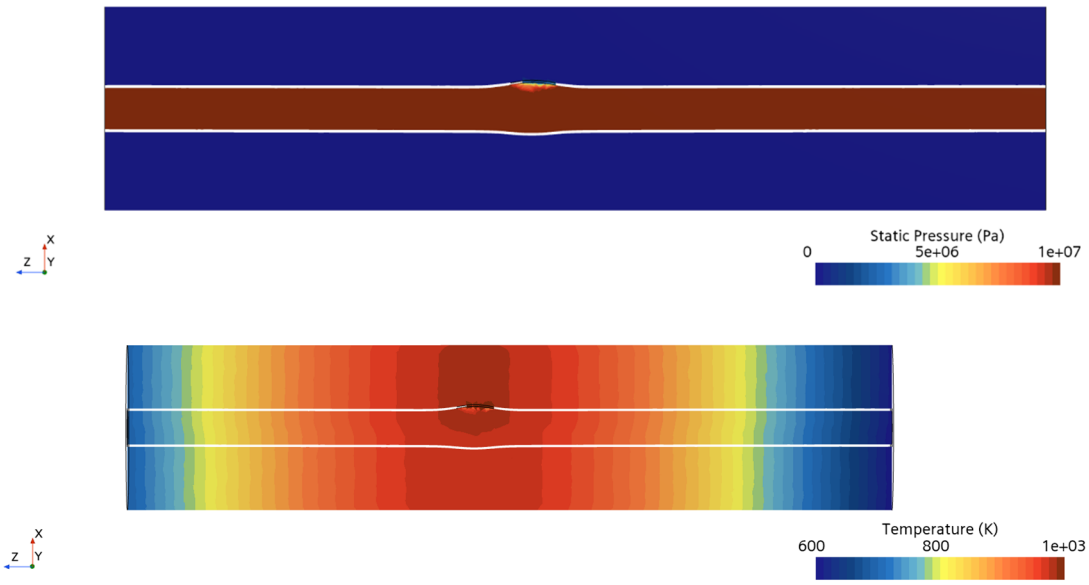
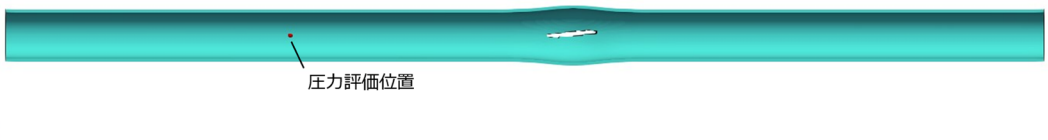


図 4.2.5-13　　ステップ２解析の初期圧力・温度分布



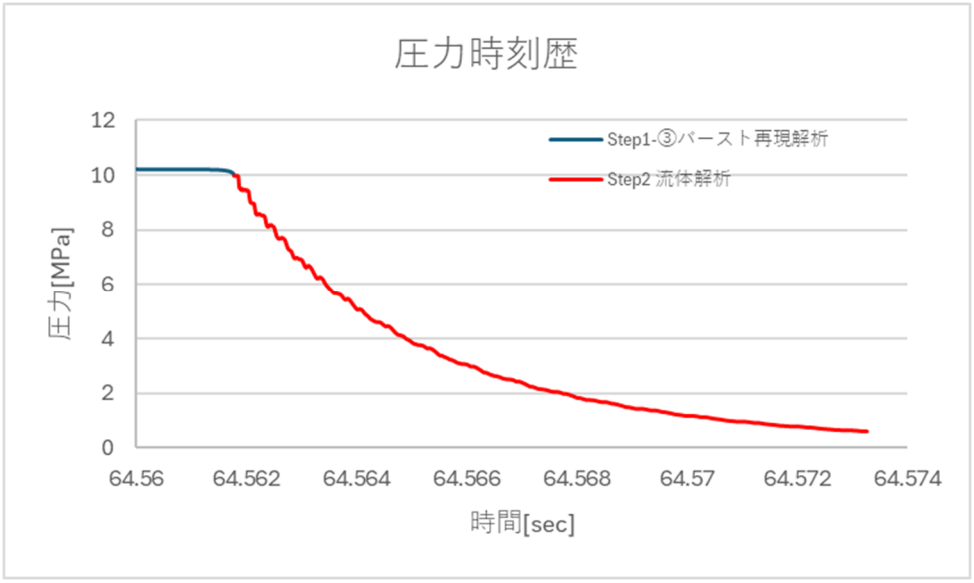


図 4.2.5-14　ステップ 2 流体力学解析で得られた被覆管内ガス圧（空気）の時間推移

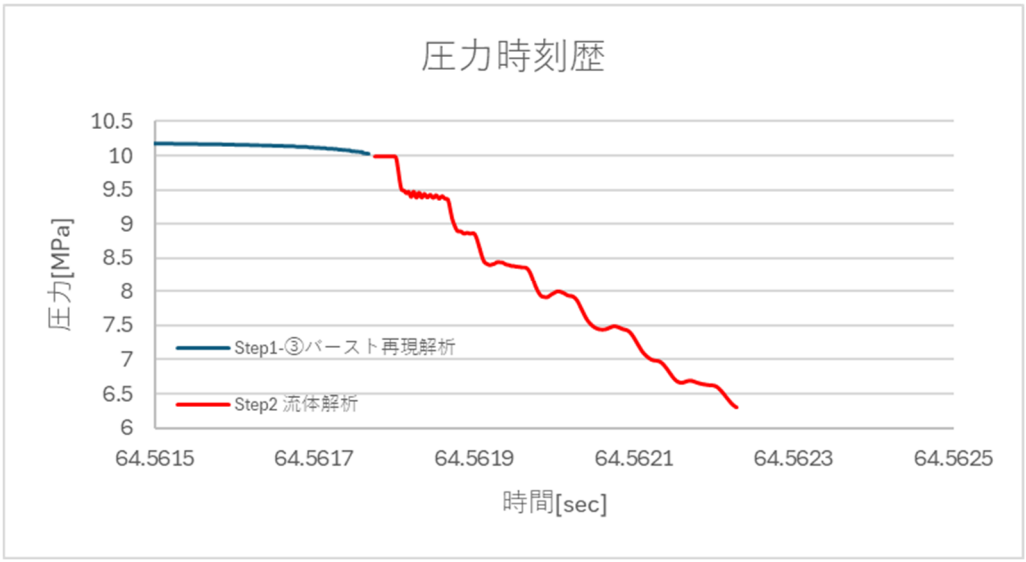
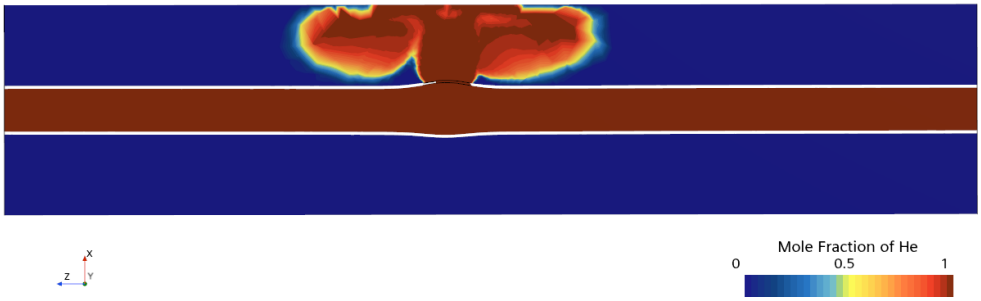
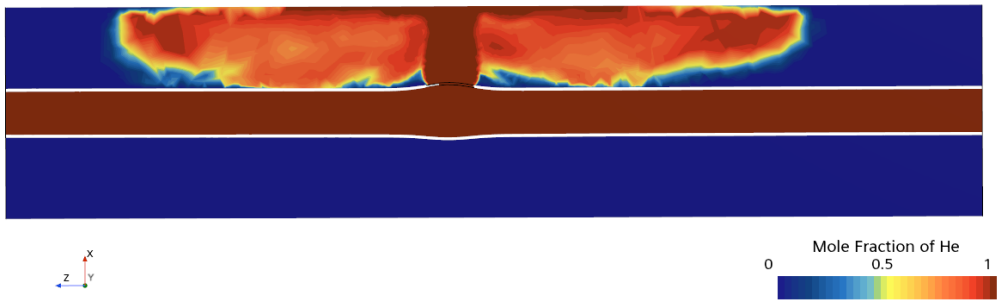


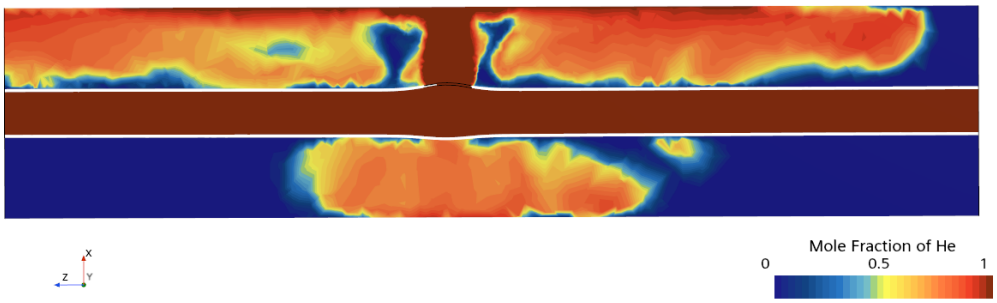
図 4.2.5-15　ステップ 2 流体力学解析で得られた被覆管内ガス圧（He）の時間推移



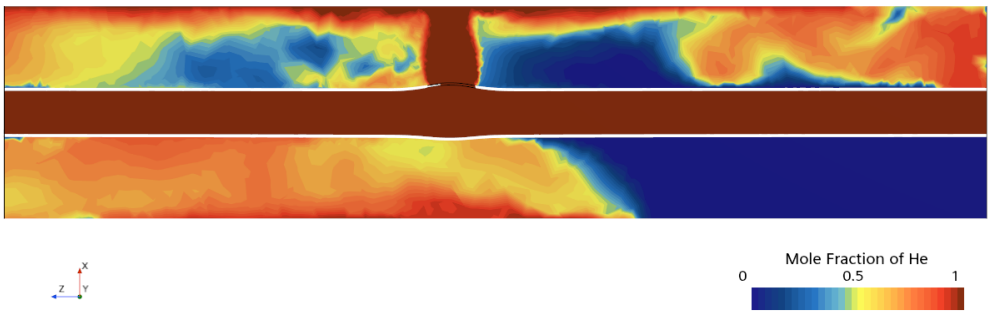
Solution Time 5.32272e-05 (s)



Solution Time 0.000151133 (s)



Solution Time 0.000251021 (s)



Solution Time 0.000453483 (s)

図 4.2.5-16　ステップ 2 流体力学解析で得られた被覆管内ガス（He）の空間分布推移

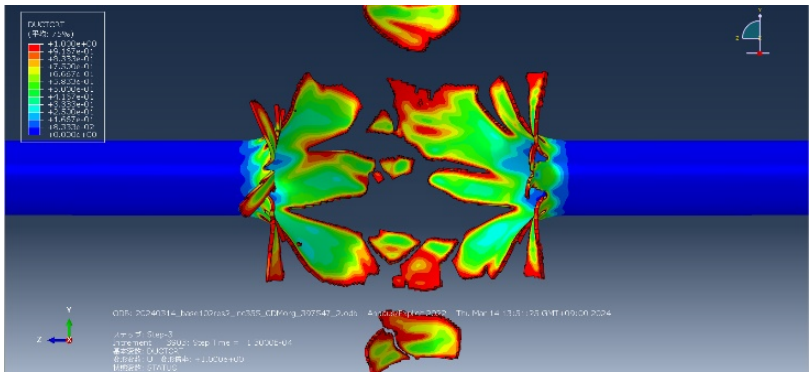


図 4.2.5-17　ステップ 3 解析開始直後の被覆管モデル外観（コンターは、1.0 でメッシュ消失を生じる、損傷力学パラメータに基づく）（空気封入ケース）

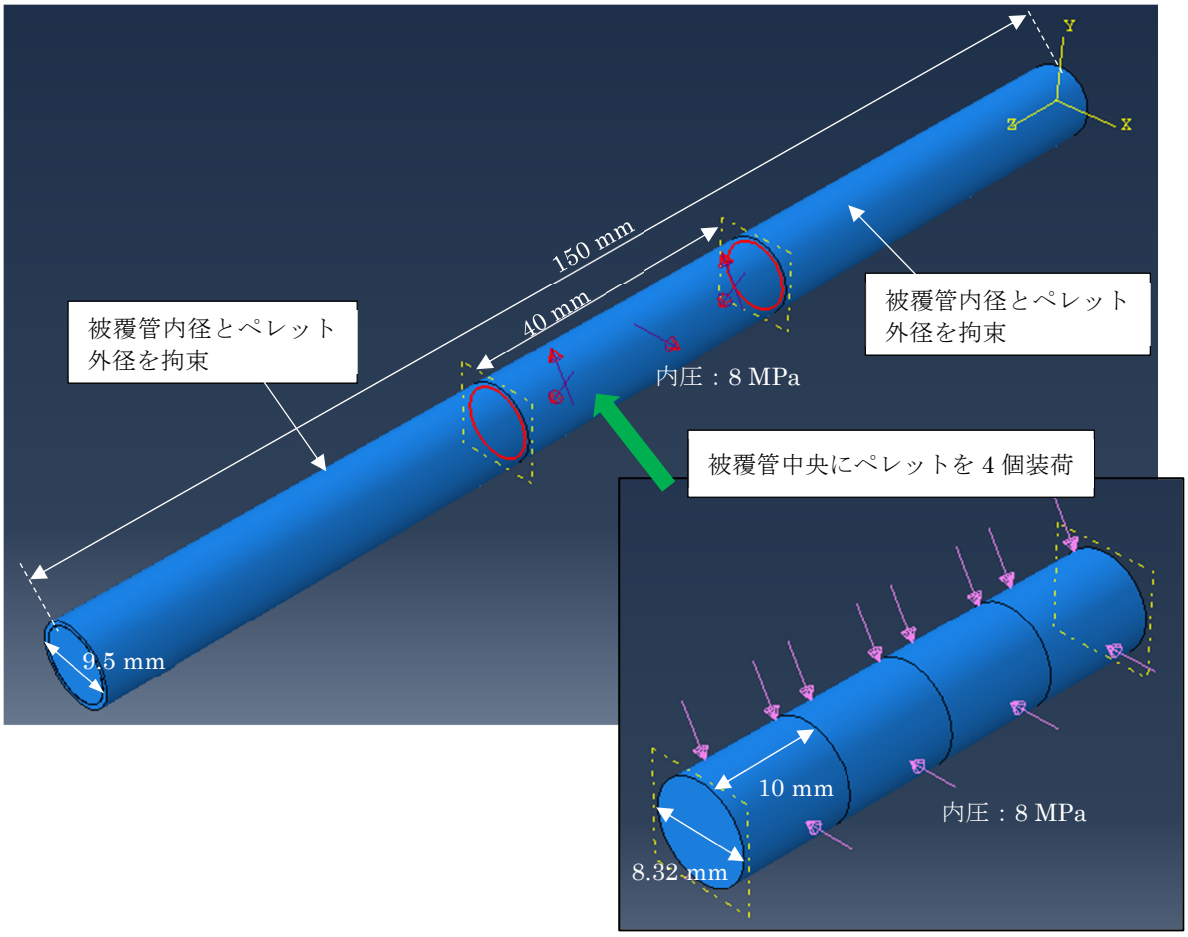
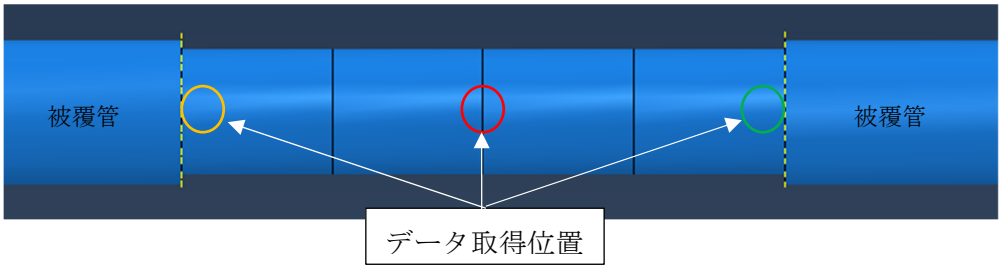


図 4.2.5-18　破裂時減圧のペレット力学作用への影響評価のための簡易モデル



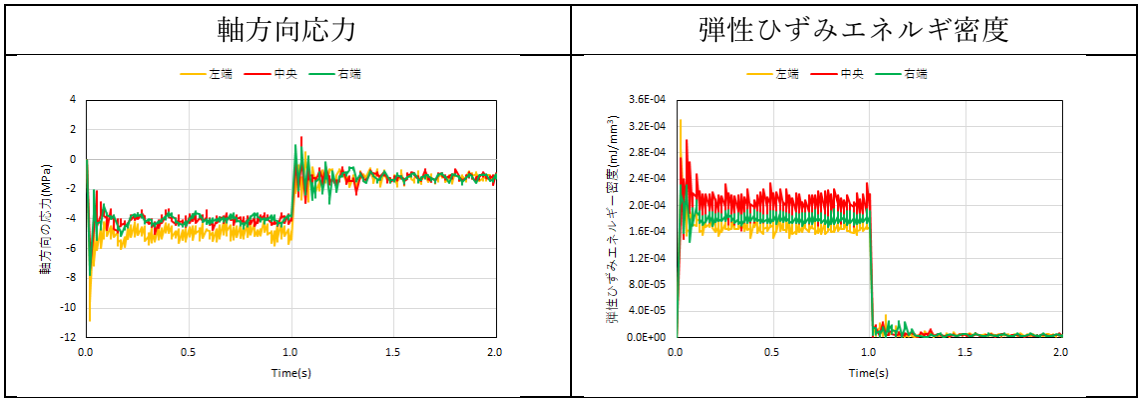


図 4.2.5-19　中央部ペレット領域の左端、中央、右端の位置における軸方向応力および弾性ひずみエネルギ密度

4.3 RIA 試験

CN-1 実験に関して、パルス照射後の試験燃料棒を対象とした照射後試験を実施した。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形態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。加えて、昨年度実施した 224-2 実験について追加的な試験後分析を実施し、発熱量を評価した。

4.3.1 CN-1 実験に関するパルス照射後試験

平成 30 年 9 月 7 日に、高燃焼度 PWR-MOX 燃料を対象とした室温大気圧実験 CN-1 実験を実施し、パルス照射中の過渡記録及び一部の照射後試験（外観、X線、燃料棒寸法測定、燃料棒γ線スキャンニング、破面 SEM 観察、破損開口部水平断面金相試験、燃料被覆管硬度測定、燃料破損開口部水平断面の燃料ペレット SEM/EPMA）の結果については既に報告した[1,2,3,4,5]。本報告では、新たに取得した照射後試験の結果を示す。

(1) 燃料ペレット密度測定

図 4.3.1-1 に示す位置から採取した試料（試料番号 No.1-7）について、①No.1-7 全て、②No.2、③No.3，④No.6、⑤No.7 の密度をそれぞれ測定した。No.1-6 は高さ 2-3 mm 程度のペレット片であり、No.7 は高さ 11.5 mm 程度で概ねペレット 1 個分である。測定法は液浸法であり、置換液には m-キシレン液を使用した（測定には、太陽計測株式会社製の重量密度測定装置、メトラー・トレド株式会社製の電子天秤　型式 WXSS205V を用いた）。試験に供した燃料ペレットの外観を図 4.3.1-2(1)(2)に示す。

密度の測定条件及び結果を表 4.3.1-1(1)(2)(3)(4)(5)に示す。CN-1 (試料番号 No.1-7)の密度は、理論密度（T.D.）に対しそれぞれ①89.98%、②88.01%、③89.40%、④88.81%及び⑤90.09%であった。③No.3 の測定については、3 回目の測定の際にペレットが一部崩れた結果値が低くなっているため、1-2 回目測定の平均値を採用した。①No.1-7 全ての測定については、②-⑤の測定の後に実施したため、No.3 試料が崩れてそれが影響した可能性は否定できないが、ここでは 1-3 回目測定の平均値を採用することとした。

なお、Pu 富化度を考慮した MOX 燃料の理論密度は 10.99g/cm^3 である。

AP2-15 から採取した試料片(燃料棒切出し箇所 13 mm, 測定可能な粒径 2.0 mm 以上の試料 13 片)の密度は、理論密度（T.D.）に対して 91.55%[13]であり、CN-1 の密度の方が 1%以上低くくなっていることがわかった。

表 4.3.1-1(1) 密度測定条件及び結果（試料 No.1-7 全て）

試料 / 項目	CN-1 （試料:No.1−No.7全て）				
	1回目	2回目	3回目	1-3回目平均	1-2回目平均
試料重量 (g)	6.29816	6.29818	6.28555		
試料体積 (cm^3)	0.636	0.637	0.637		
マトリックス体積 (cm^3)	0.573	0.573	0.572		
理論密度 (TD)	10.99				
セル内温度 (°C)	13.5	13.0	13.1		
液中試料重量 (g)	5.74681	5.74620	5.73345		
雰囲気名	空気				
雰囲気密度値 (g / cm^3)	0.00123	0.00123	0.00123		
置換液名	キシレン				
置換液密度値 (g / cm^3)	0.86779	0.86814	0.86823		
置換液温度 (°C)	13.8	13.4	13.3		
液浸時間 (min)	90				
間隔時間 (min)	2				
試料密度 (g / cm^3)	9.90006	9.89277	9.87182	9.88822	9.89642
試料密度／理論密度 (%TD)	90.08	90.02	89.83	89.98	90.05

表 4.3.1-1(2) 密度測定条件及び結果（試料 No.2）

試料 / 項目	CN-1 （試料:No.2）			
	1回目	2回目	3回目	平均
試料重量 (g)	0.10503	0.10498	0.10497	
試料体積 (cm^3)	0.011	0.011	0.011	
マトリックス体積 (cm^3)	0.010	0.010	0.010	
理論密度 (TD)	10.99			
セル内温度 (°C)	13.2	12.4	14.6	
液中試料重量 (g)	0.09564	0.09557	0.09554	
雰囲気名	空気			
雰囲気密度値 (g / cm^3)	0.00123	0.00124	0.00123	
置換液名	キシレン			
置換液密度値 (g / cm^3)	0.86814	0.86884	0.86701	
置換液温度 (°C)	13.4	12.6	14.7	
液浸時間 (min)	5			
間隔時間 (min)	2			
試料密度 (g / cm^3)	9.69785	9.68041	9.63868	9.67231
試料密度／理論密度 (%TD)	88.24	88.08	87.70	88.01

表 4.3.1-1(3) 密度測定条件及び結果（試料 No.3）

項目＼試料	CN-1 （試料：No.3）				
	1回目	2回目	3回目	1-3回目平均	1-2回目平均
試料重量 (g)	0.14495	0.14490	0.14495		
試料体積 (cm^3)	0.015	0.015	0.015		
マトリックス体積 (cm^3)	0.013	0.013	0.013		
理論密度 (TD)	10.99				
セル内温度 (°C)	13.5	13.7	13.9		
液中試料重量 (g)	0.13210	0.13218	0.13214		
雰囲気名	空気				
雰囲気密度値 (g / cm^3)	0.00123	0.00123	0.00123		
置換液名	キシレン				
置換液密度値 (g / cm^3)	0.86788	0.86779	0.86753		
置換液温度 (°C)	13.7	13.8	14.1		
液浸時間 (min)	5				
間隔時間 (min)	2				
試料密度 (g / cm^3)	9.77716	9.87264	9.80374	9.81785	9.82490
試料密度／理論密度 (%TD)	88.96	89.83	89.21	89.33	89.40

表 4.3.1-1(4) 密度測定条件及び結果（試料 No.6）

項目＼試料	CN-1 （試料：No.6）			
	1回目	2回目	3回目	平均
試料重量 (g)	0.06672	0.06662	0.06657	
試料体積 (cm^3)	0.007	0.007	0.007	
マトリックス体積 (cm^3)	0.006	0.006	0.006	
理論密度 (TD)	10.99			
セル内温度 (°C)	12.9	11.8	15.0	
液中試料重量 (g)	0.06074	0.06072	0.06069	
雰囲気名	空気			
雰囲気密度値 (g / cm^3)	0.00123	0.00124	0.00123	
置換液名	キシレン			
置換液密度値 (g / cm^3)	0.86840	0.86936	0.86675	
置換液温度 (°C)	13.1	12.0	15.0	
液浸時間 (min)	5			
間隔時間 (min)	2			
試料密度 (g / cm^3)	9.67636	9.80365	9.80020	9.76007
試料密度／理論密度 (%TD)	88.05	89.21	89.17	88.81

表 4.3.1-1(5) 密度測定条件及び結果（試料 No.7）

項目＼試料	CN-1 （試料：No.7）			
	1回目	2回目	3回目	平均
試料重量 (g)	5.98251	5.98211	5.98191	
試料体積 (cm^3)	0.604	0.604	0.604	
マトリックス体積 (cm^3)	0.544	0.544	0.544	
理論密度 (TD)	10.99			
セル内温度 (°C)	17.0	16.2	15.3	
液中試料重量 (g)	5.46076	5.46002	5.45904	
雰囲気名	空気			
雰囲気密度値 (g / cm^3)	0.00122	0.00122	0.00122	
置換液名	キシレン			
置換液密度値 (g / cm^3)	0.86475	0.86544	0.86623	
置換液温度 (°C)	17.3	16.5	15.6	
液浸時間 (min)	90			
間隔時間 (min)	2			
試料密度 (g / cm^3)	9.90269	9.90345	9.89735	9.90116
試料密度／理論密度 (%TD)	90.11	90.11	90.06	90.09

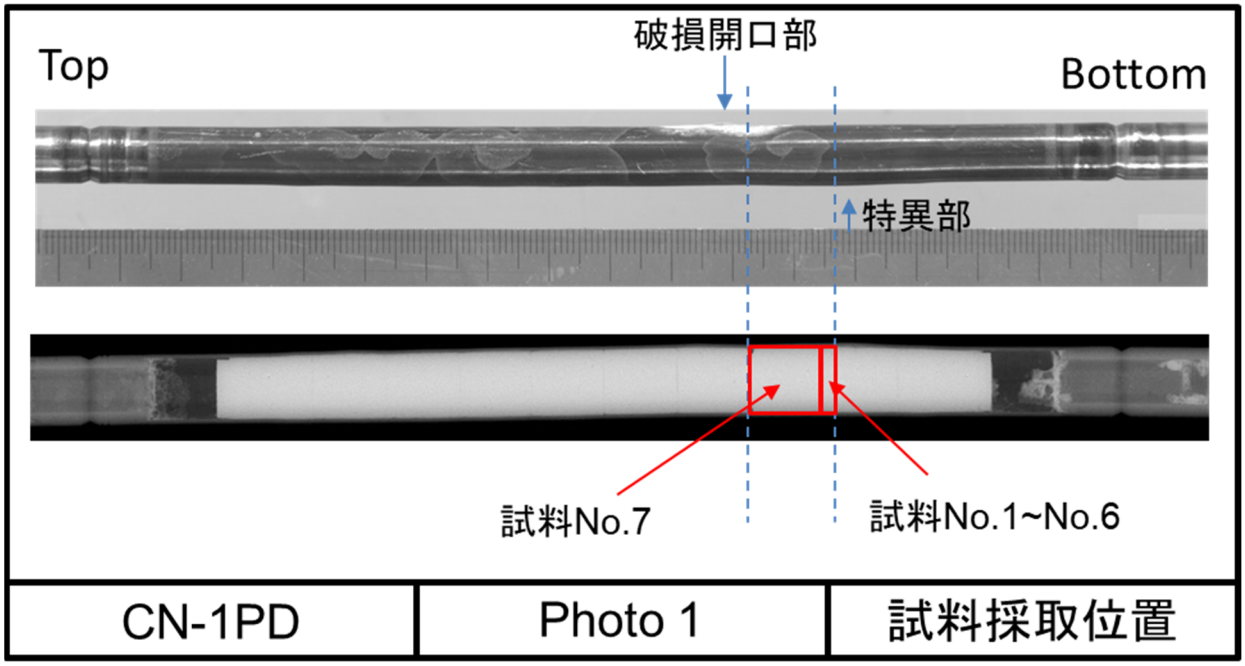


図 4.3.1-1 密度測定に供した試料の採取位置

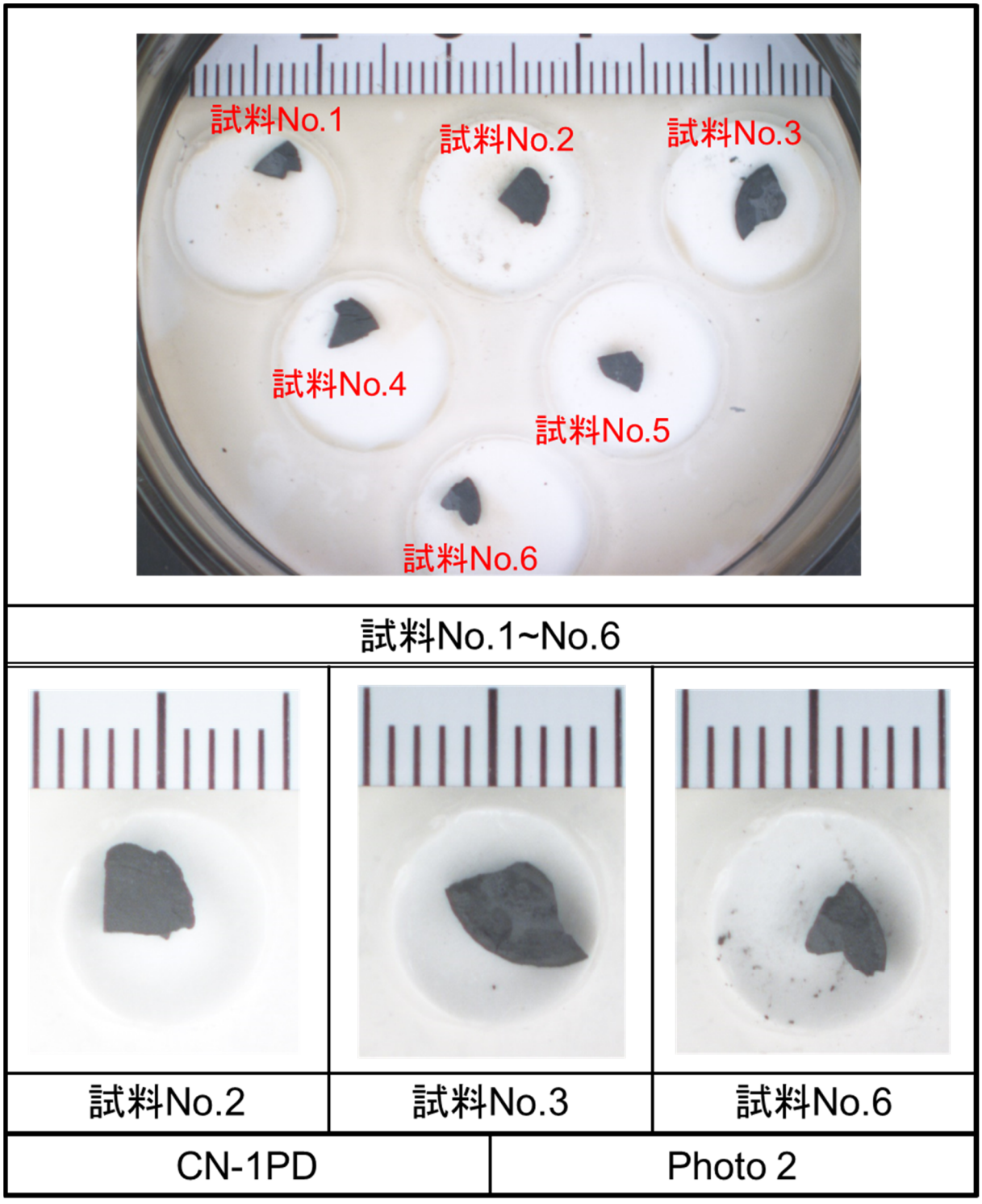


図 4.3.1-2(1) 密度測定に供した試料の採取位置（試料 No.1-6）

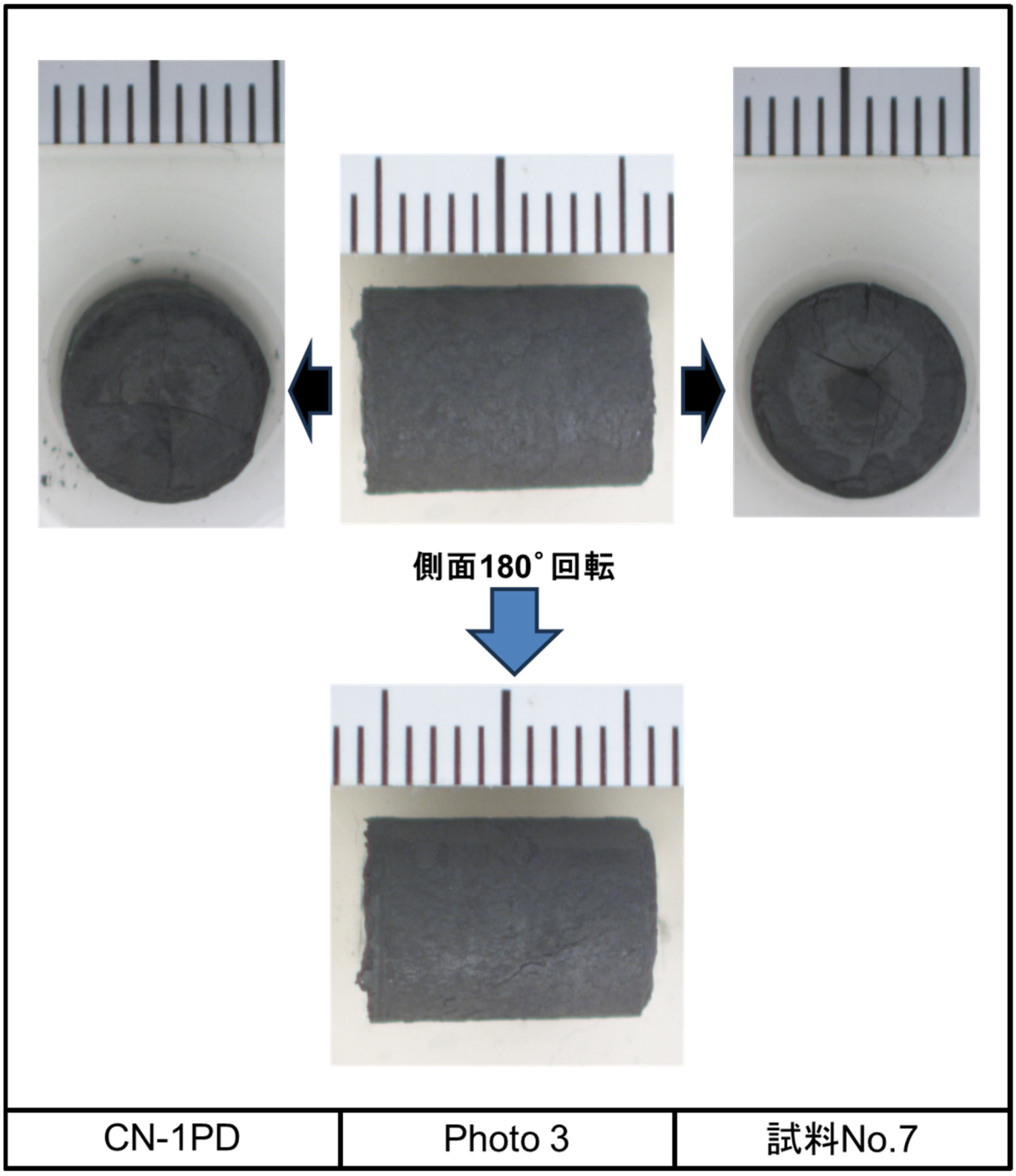


図 4.3.1-2(2) 密度測定に供した試料の採取位置（試料 No.7）

4.3.2　被覆管機械特性試験

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適切に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、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 [6]を用い、また 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二軸負荷試験を平成 23 年度から実施してきた[7-13]。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 SR 材及び RX 材を対象とした試験、平成 26 年度には SR 材を対象に高温条件（100℃、150℃及び 200℃）にて試験を実施した。平成 27 年度に水素吸収させた被覆管（SR 、RX 材及び CW 材）を対象とした試験を開始し、平成 28 、29 及び 30 年度に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、これを対象とした試験を実施した。

令和元年度からは、過去の RIA 模擬試験で観察された高燃焼度燃料被覆管の軸方向亀裂が周方向に回り込む現象[14, 15]のメカニズムを調べるため、炉外機械特性試験（二軸応力負荷試験）により高燃焼度燃料被覆管の RIA 時挙動の内その特徴的な因子（主に水素化物、二軸応力条件）が被覆管破損形態に及ぼす個別効果を確かめることとした。令和元年度及び 3 年度は Q 値 2 の CW 材及びその水素吸収材、追加熱処理材を対象として試験を実施したが、200 wppm 以上の水素濃度の試料、1 付近の高ひずみ比条件については有効データを取得できなかった。令和 4 年度は、水素吸収方法を工夫し、試料中央部に水素が集まる試料を製作し、580 wppm 以上の水素濃度、Q 値 2 の CW 材試料を用いて、0.75 から 1.25 範囲のひずみ比での試験実施に成功し、ここでは軸方向亀裂が周方向に回り込む現象が 3 例、観察された。

本年度は令和 4 年度に提示した試験マトリクスに沿って試験を継続、同マトリクスを完成し、更に過去の RIA 模擬試験結果との比較に基づき、軸方向亀裂が周方向に回り込む現象が出現する閾条件について分析を加えた。

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

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[6]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り、今年度は歪み比（軸方向ひずみ／周方向歪み）を一定に制御する条件で試験を実施した。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、同水素吸収材を製作し、歪み比 0.5、0.75、1、及び 1.25 の条件で二軸応力負荷試験を実施した。水素吸収材については、R4 年度報告書に記載したと同様、即ち予備酸化後試料中央部の酸化膜を除去した後、

水素―アルゴン混合ガス中で熱処理する方法によって水素を吸収させた。

2)　試験結果

表 4.3.2-1 に本年度及び R4 年度に実施した水素吸収材試験の試験条件及び破損時ひずみを、令和元年度に実施したリファレンス試験結果と比較して示す。また、図 4.3.2-1 に、本年度及び R4 年度に実施した水素吸収冷間加工材試験の破損形態を整理した。軸/周ひずみ比が 0.75 以上且つ破損時周ひずみが 1.7%以下の場合に、軸方向亀裂が斜め周方向に回り込むような破損形態が 3 回観察された。その他、試験中ひずみ比が 0.5 や 0.75 の場合には軸方向亀裂による破裂、ひずみ比が 1 や 1.25 の場合には軸方向亀裂による破裂以外にも（RIA 模擬試験では観察された例の無い）周方向亀裂が支配的な破断や、軸方向亀裂による破裂と周方向亀裂による破断が同時に現れる形態も観察された。

3)　考察

表 4.3.2-2 に、過去の RIA 模擬試験で燃料破損が観察されたケースの基本情報をまとめた[16-27]。図 4.3.2-2 に、過去の RIA 模擬試験で観察された破損形態の特徴別に、外観 A（軸方向亀裂による破裂）及び外観 B（軸方向亀裂が斜め周方向に回り込む破断）を例示している。PWR 燃料と BWR 燃料を統括して、概ね燃焼度 60GWd/t 以上の試料（VA-3 を除き）が、外観 B の破損形態を示した。図 4.3.2-3 に燃料度－破損時エンタルピー増分－破損形態の関係を示す。

RIA 時力学的条件を模擬した試験に関する文献調査を行い、これに基づいてひずみ比が 0 から 1.25 又は応力比が 0 から 1 範囲内のデータを整理し、上述の二軸応力負荷試験結果と比較した。図 4.3.2-4 に、破損時周方向ひずみとひずみ比又は応力比との関係として整理している。外観 B の破損形態を示した 3 試料は、ひずみ比が 0.75 以上、破損時周方向ひずみが 1.7%以下の領域にあり、他方文献値のほとんどは 0.75 以上のひずみ比が達成できていない。Li et al.ではこの領域内で破損した例も報告されたが、試料に軸方向の予亀裂が設けられていたため、亀裂方向に沿って破裂する現象のみが確認されている。今回の試験では、表 4.3.2-1 の 11 番試料もこの条件範囲に含まれたが、外観 A の破損形態となっている。11 番と 12 番試料は水素量が近く、同じひずみ比条件下であり、且つ破損時周方向ひずみも同等であったが、破損形態は異なった。そこで 11 番試料の例外ケースが現れた原因を特定するため、11 番と 12 番試料の破損部付近水素化物析出形態を観察した。図 4.3.2-5a と図 4.3.2-5b に 12 番と 11 番試料の水素化物析出形態をそれぞれ示す。12 番試料では、11 番試料に比べ被覆管外表面付近において明らかに密な水素化物の析出が見られた。図 4.3.2-5c と図 4.3.2-5d に 17 番と 18 番試料、図 4.3.2-5e と図 4.3.2-5f に 24 番と 23 番試料の水素化物析出形態を示す。この二組の試料は水素量が近く且つ同ひずみ比条件であったが、破損時周方向ひずみ及び破損形態が異なったケースである。外観 B のような形態で破損した試料では、外周付近において比較的密な水素化物析出が確認された。密な水素化物析出状態は巨視的

に見てより脆化した状態に対応すると考えられる。

以上の観察を総合すると、外観 B のような破損形態は、十分に脆化した被覆管試料が、軸/周ひずみ比 0.75 以上の条件で変形する場合に現れる可能性があると考えられる。破損時周方向ひずみを脆化の指標とした場合、①破損時の周方向ひずみが 1.7%未満、②軸対周ひずみ比が 0.75 以上、の 2 点を同時に満足する条件を、外観 B のような破損形態が現れる判定条件としてまとめることができる。

軽水炉燃料では、燃焼度の増大とともにスウェリングが進行し、長時間・高温下の被覆管ーペレット接触等の影響でボンディングの形成に至るので、燃料と被覆管の摩擦又は結合力は徐々に上昇すると考えられる。また RIA 時には、このような摩擦力の強弱によって被覆管が受ける軸方向負荷が決定すると考えられる。例えば TK-6 実験[28]では、周方向ひずみが 0.7%から 1.1%に伸びるにつれ、温度上昇によるペレット軟化も相俟ってひずみ比は 0.7 から 0.5 程度まで減少したとされる。図 4.3.2-6 に、TK-6 実験中のひずみ比、応力比の推移を示す（実験解析結果）。上記判定条件を RIA 模擬試験に適用するため、ひずみ比を燃焼度の関数、破損時周ひずみを破損時エンタルピー増分の関数と仮定して次のように換算した。

$$\varepsilon_{\theta f} = \Delta H_f \times \frac{2.8\%}{800 J/g}, \qquad \text{式 4.3.2-1}$$

$$\begin{cases} \dfrac{\varepsilon_z}{\varepsilon_\theta} = 0.011\mathrm{BU} + 0.337, (\varepsilon_\theta < 1.1\%) \\ \dfrac{\varepsilon_z}{\varepsilon_\theta} = 0.011\mathrm{BU} + 0.337 - 0.2, (\varepsilon_\theta \geq 1.1\%) \end{cases}, \qquad \text{式 4.3.2-2}$$

ここで、$\varepsilon_{\theta f}$は%単位の周方向ひずみ数値、ΔH_fは J/g 単位のエンタルピー増分数値を意味する。式 4.3.2-1 は、エンタルピー増分と比例するとの仮定と、TK-6 におけるエンタルピー増分と周方向ひずみの関係（800 J/g に対し 2.8%, 解析結果）に基づく。式 4.3.2-2 は、FK-6、-7、-9 実験（燃焼度 61 GWd/t）でひずみ比が約 1[27]であったとされること、TK-6 実験では燃焼度 38 GWd/t に対し周方向ひずみ<0.7%条件ではひずみ比が約 0.7 であった[28]とされること、を踏まえて決定した。ただし、周方向ひずみが 1.1%より大きい場合は 0.2 を引くことで補正している。

RIA 試験における破損時エンタルピー増分（表 4.3.2-2）と燃焼度データを式 4.3.2-1 及び式 4.3.2-2 に代入し、得られたひずみ比と破損時周方向ひずみの関係を整理した（図 4.3.2-7）。高温実験である VA-3（285℃）以外の試料に関しては、二軸応力負荷試験で得られた「①破損時の周方向ひずみが 1.7%未満、②軸対周ひずみ比が 0.75 以上」の閾条件により、破損形態の変化が良く予測できていることがわかる。

4)　まとめ

水素吸収を施した PWR14×14 タイプの燃料被覆管（CW 材）を対象として、二軸応力負荷試験を実施した。高燃焼度燃料を対象とした過去の RIA 模擬試験で観察された、被覆管

の軸方向亀裂が周方向に回り込むタイプの破損形態は、被覆管の脆化度合いと二軸応力負荷状態の重畳によって発生するとの予測の下、比較的高い水素量（～700 wppm）及び高い軸/周ひずみ比（0.5–1.25）条件下でのデータ取得を目指して試験を実施した。その結果、脆化度合いの大きい試料が、0.75 以上のひずみ比条件下で破損した場合に、軸方向亀裂が周方向に回り込む破損形態が表れるとの傾向が確認できた。これを踏まえれば、脆化の度合いを破損時周ひずみにとって、①破損時の周方向ひずみが 1.7%未満、②軸対周ひずみ比が 0.75 以上の 2 点を同時に満足すること、を閾条件として活用することができる。

表 4.3.2-1 PWR14×14 型冷間加工材二軸応力負荷試験の条件および結果

番号	軸/周ひずみ比	外観*	破損部水素量	破損時ひずみ		試験年度
				軸	周	
			wppm	%	%	
1	0.5	A	113	5.17	10.33	R5
2	0.5	A	313	4.41	8.80	R4
3	0.5	A	567	0.89	1.81	R4
4	0.5	A	660	2.45	4.91	R4
5	0.5	A	664	1.88	3.78	R5
6	0.5	A	714	3.15	6.13	R5
7	0.75	A	266	6.56	8.69	R4
8	0.75	A	325	1.46	1.94	R5
9	0.75	A	396	6.85	9.12	R4
10	0.75	A	438	5.96	7.95	R4
11	0.75	A	686	1.24	1.66	R5
12	0.75	B	739	1.22	1.64	R4
13	1	C	358	7.09	7.09	R4
14	1	A	422	2.97	2.96	R4
15	1	A	447	7.88	7.81	R4
16	1	C	474	6.96	6.96	R4
17	1	B	589	0.92	0.93	R4
18	1	C	627	3.50	3.50	R5
19	1.25	A	241	9.66	7.70	R4
20	1.25	C	322	6.68	5.34	R4
21	1.25	C	419	8.43	6.74	R4
22	1.25	C	575	5.54	4.44	R4
23	1.25	A	671	4.82	3.84	R5
24	1.25	B	699	0.85	0.71	R4
25	0.5	A	0	0.95	1.90	R1
26	0.5	A	0	2.50	5.02	R1
27	0.75	A	0	6.02	8.04	R1
28	0.75	A	0	4.22	5.63	R1
29	1	C	0	6.97	6.98	R1
30	1	C	0	9.05	9.03	R1
31	1	A	0	3.09	3.08	R1

*外観：A：軸方向亀裂による破裂、B：軸方向亀裂が斜め周方向に進展し、破断、
C：その他（周方向亀裂による破断、軸方向及び周方向亀裂による同時破裂破断）

表 4.3.2-2　過去の RIA 模擬試験中で燃料破損が観察された試験の基本情報のまとめ

原子炉種類	試験 ID	燃焼度	破損時エンタルピー増分	水素量	試験時冷却水温度	外観*
		GWd/t	J/g	wppm	℃	
PWR	HBO-1	50	354	187	室温	A
	HBO-5	44	506	576	室温	A
	TK-2	48	398	196	室温	A
	TK-7	50	607	138	室温	A
	OI-11	58	517	418	室温	A
	BZ-1	48	318	340	室温	A
	BZ-2	59	545	160	室温	A
	VA-1	71	268	660	室温	B
	VA-2	77	231	760	室温	B
	VA-3	71	344	670	285	A
	VA-5	81	301	312	室温	B
	VA-6	78	146	683	室温	B
	VA-8	78	175	703	282	B
BWR	FK-6	61	271	152-220	室温	B
	FK-7	61	244	152-220	室温	B
	FK-9	61	349	141-159	室温	B
	FK-10	61	316	141-220	室温	B
	FK-12	61	280	141-220	室温	B
	LS-1	69	222	300	室温	B
	OS-1	64	160	245	室温	B

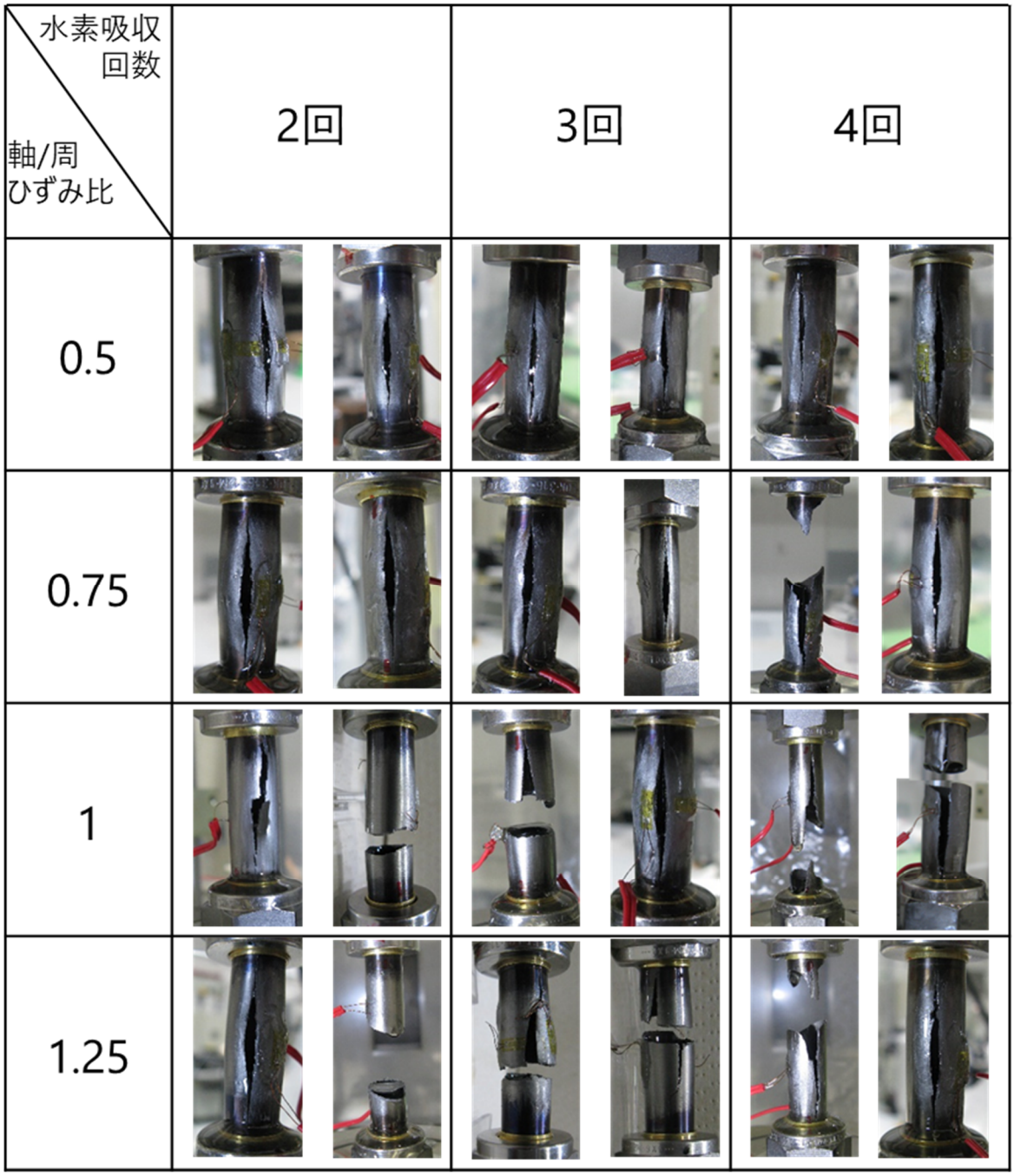


図 4.3.2-1　水素吸収冷間加工材の破損形態－水素吸収回数―軸/周ひずみ比の関係

図 4.3.2-2 (a)外観 A の例：TK-2、(b)外観 B の例：VA-1

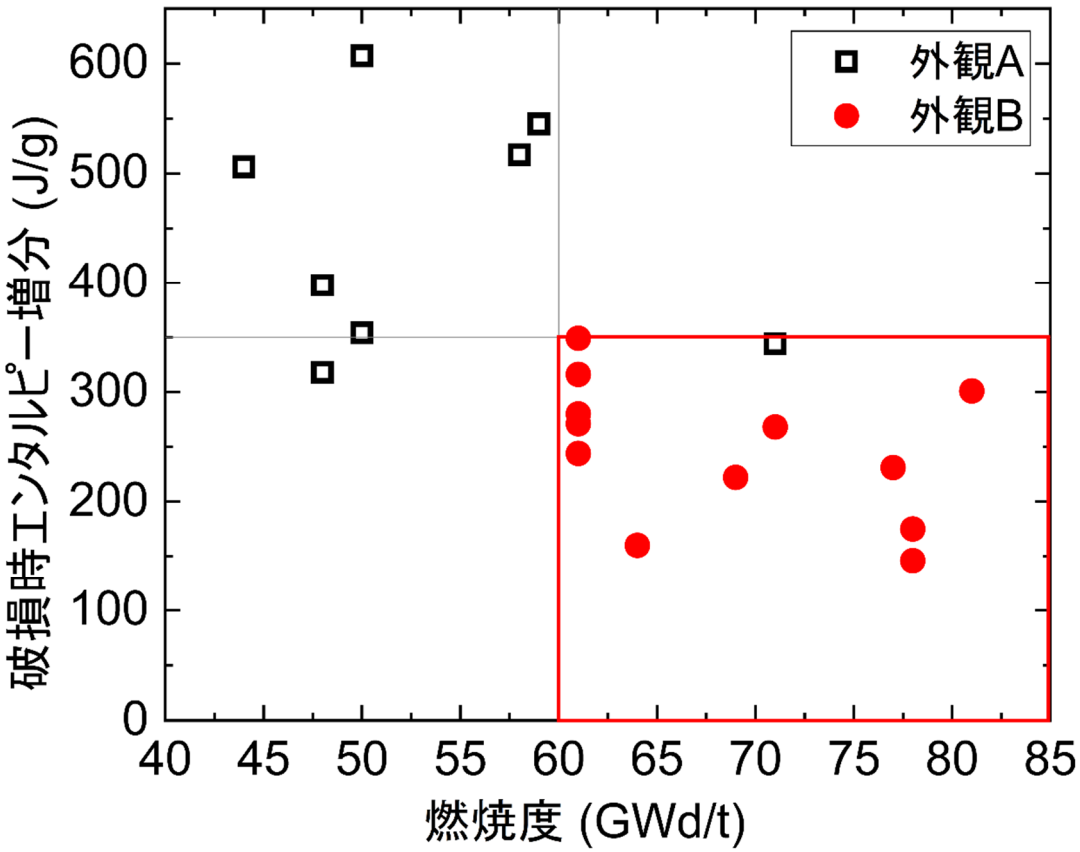


図 4.3.2-3　過去の RIA 模擬試験中燃料破損ケースの燃焼度－破損時エンタルピー増分関係

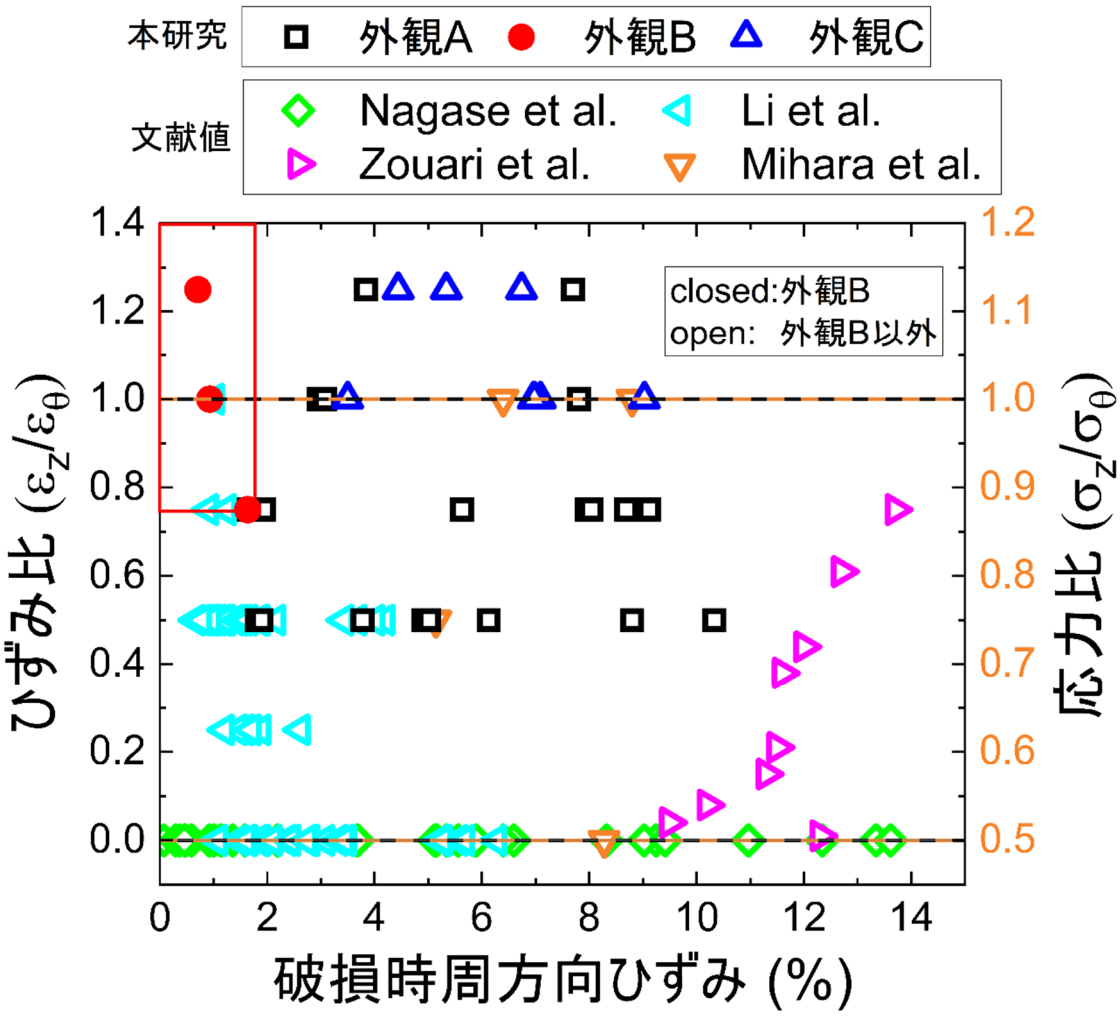


図 4.3.2-4 二軸応力負荷試験結果と文献値の比較

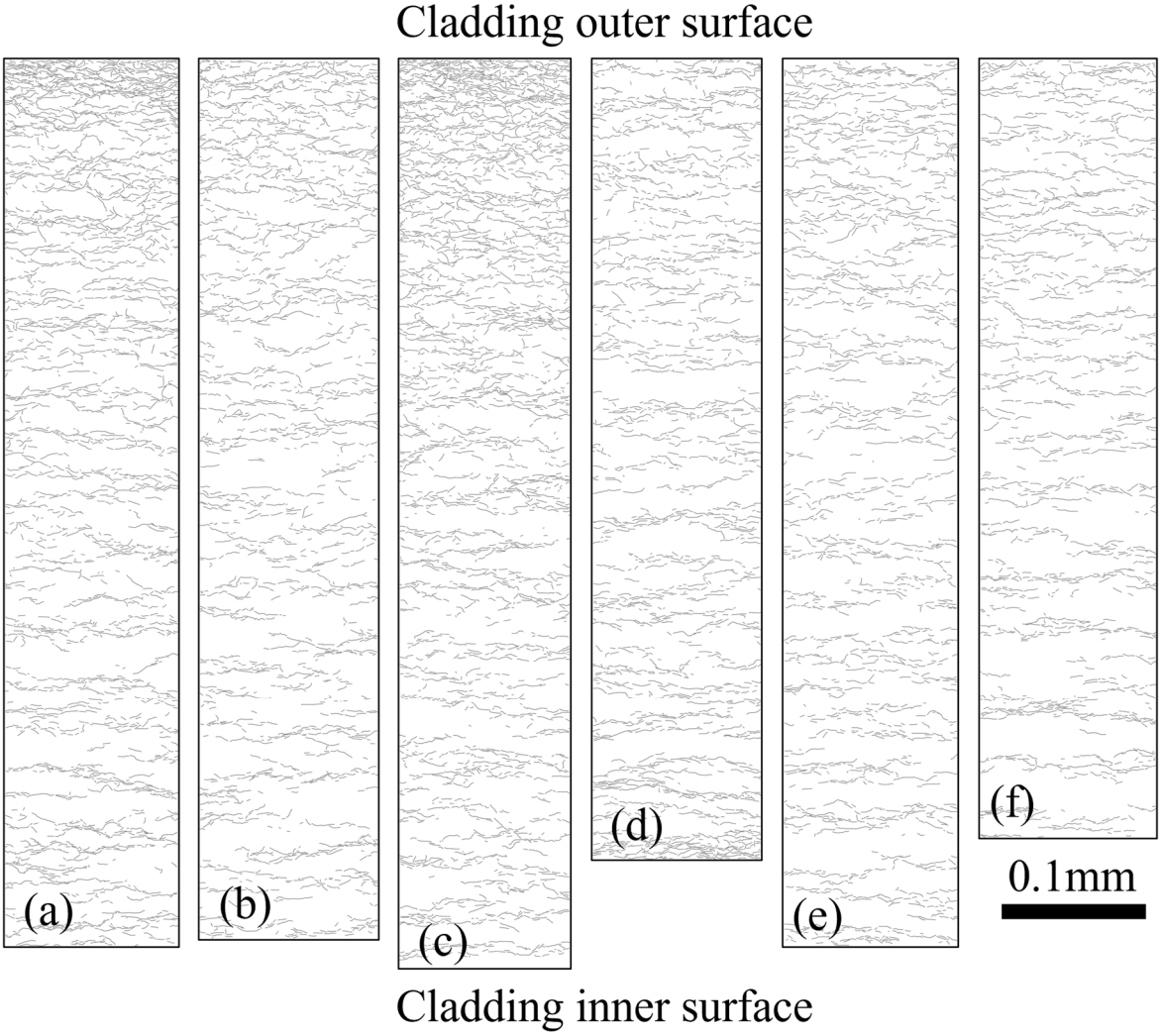


図 4.3.2-5　破損部付近水素化物析出形態の比較。(a)12 番($\varepsilon_z/\varepsilon_\theta = 0.75$)、(b)11 番($\varepsilon_z/\varepsilon_\theta = 0.75$)、(c)17 番($\varepsilon_z/\varepsilon_\theta = 1$)、(d)18 番($\varepsilon_z/\varepsilon_\theta = 1$)、(e)24 番($\varepsilon_z/\varepsilon_\theta = 1$)、(f)23 番($\varepsilon_z/\varepsilon_\theta = 1$)。

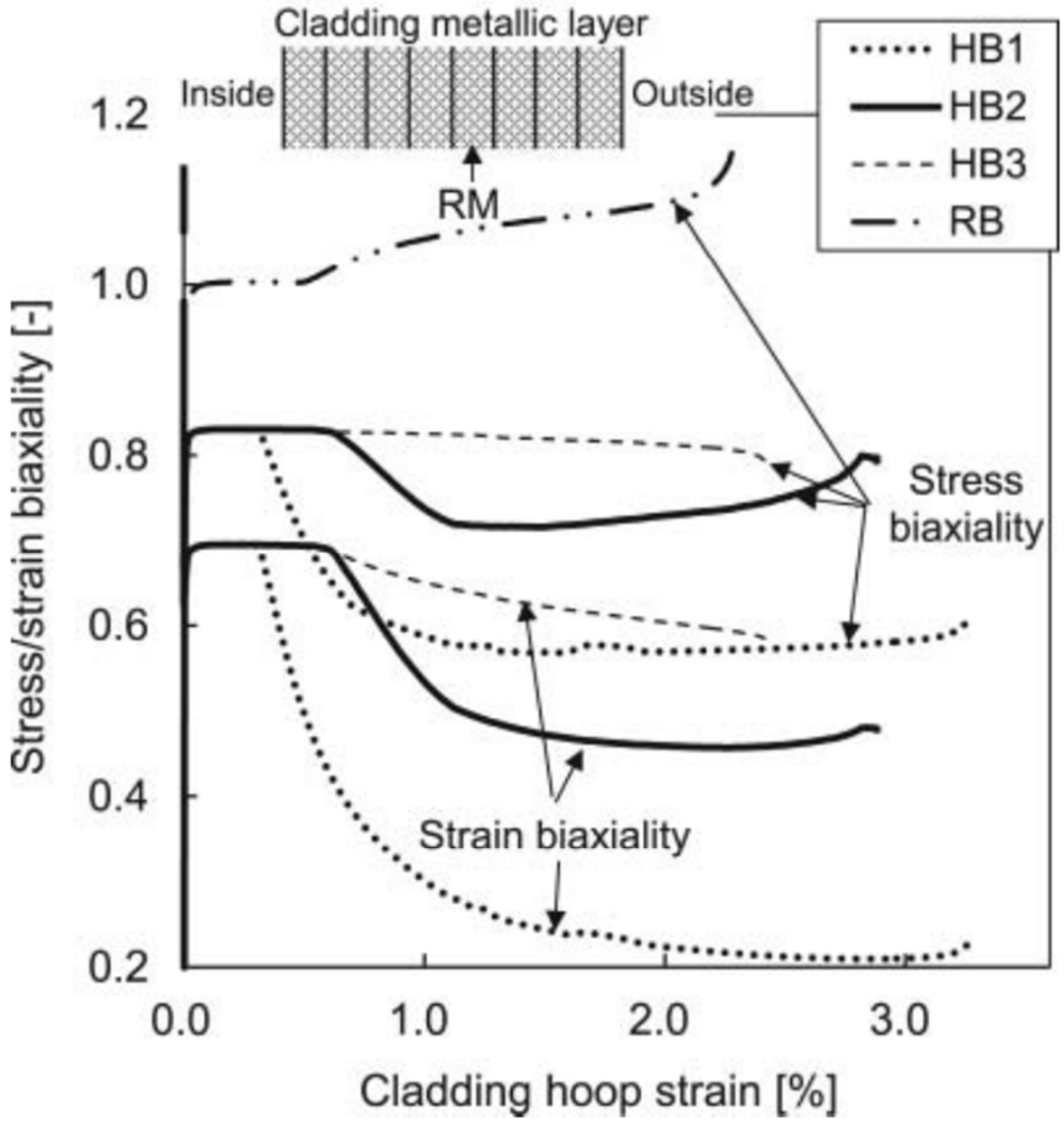


図 4.3.2-6　TK-6 の RIA 時ひずみ比、応力比の遷移（実線（HB2）が最適条件下の解析結果である）

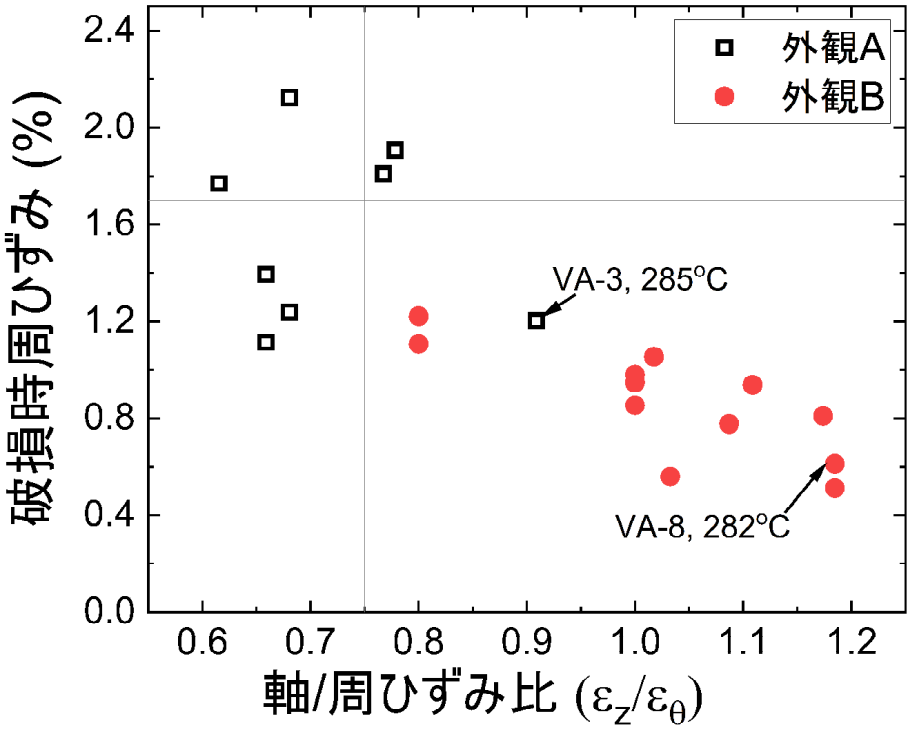


図 4.3.2-7　過去の RIA 試験で破損した試料の破損時周方向ひずみ―軸/周ひずみ比関係

4.3.3　低濃縮度/fissile 比燃料実験に関するパルス照射後試験

(1) 224-2 実験

濃縮度 1.51%及び 0.72%の UO_2 未照射燃料を対象とした室温大気圧条件下での反応度事故模擬実験 224-2 実験を令和 3 年 9 月 17 日に実施した。本実験は、低濃縮度 UO_2 燃料(濃縮度 2%未満)を対象として、NSRR パルス照射時の実験燃料の発熱量評価に資する知見の取得を目的としたものである。パルス照射中の過渡記録及び一部の照射後試験（外観、濃縮度 1.51%、0.72%の燃料ペレット及びその溶解液の発熱量評価）の結果については既に報告した[2]。本報告では、照射済燃料の発熱量評価手法の一つとして過去用いられてきた、化学分離による U-235 の核分裂生成物（Ba-140）の分析手法について、その信頼性を検証するため、追加で取得・分析した照射後試験の結果を示す。

(a) 試験燃料棒

図 4.3.3-1 に試験燃料棒の構造概略を示す。試験燃料は、発熱量を評価する過程で燃料溶解を行う計画であったため、この作業を効率的に実施できるよう、また照射後試験を実施した第 4 研究棟施設での取扱い許可量等も考慮し、一部燃料ペレットについては PWR/BWR 燃料高さより低い設計（ディスク形状）とした。さらに、濃縮度 1.51%の UO_2 ペレットに加えて、より濃縮度の低い 0.72%の UO_2 ペレットも用いた。

(b) 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：	I-S 型（室温大気圧・未照射燃料用）
パルス照射時冷却水条件：	室温大気圧の静止水
投入反応度：	\$3.55

(c) パルス照射後試験（パルス照射時燃料発熱量の評価手法の検証）

パルス照射後の燃料について、Ge 検出器による γ 線計測を行い、パルス照射時に生じた核分裂生成物の一つである Ba-140[30]の放射能を評価し、それを基に燃料発熱量を評価した。測定試料は、濃縮度 1.51%燃料ペレットを溶解した液を一部分取したのち、スパイクとして Ba-133 標準液（Ba-133 : U-235 の核分裂による生成が無視しうる核種）を添加し、化学分離により Ba を分離して作製した（以下「Ba 試料」という。）。化学分離後の回収率は、Ba-133 標準液をフィルタに分取した試料（以下「Ba-133 フィルタ試料」という。）及び Ba 試料の γ 線計測値を比較して評価した。Ba 試料と標準線源のジオメトリ（試料外径）の違いによる γ 線計測値への影響を確認するために、Ba-133 フィルタ試料については、Ba 試料（φ25 mm）及び標準線源（φ16 mm）と同じ外径のフィルタを用いて作製し、ガンマ線計測を行った。燃料ペレット溶解にあたっては、4.12 mm 及び 2.27 mm 高さの燃料ペレットにそれぞれ 8M 硝酸約 50ml を加えて 1 週間以上放置した。なお、4.12 mm 高さの燃料

ペレット溶解液に対しては、繰り返し精度を確認するために 2 試料分の Ba 試料を作製した。Ba 試料及び Ba-133 フィルタ試料作製フローについて図 4.3.3-2 に示す。

標準線源及び測定試料の詳細情報、測定試料のγ線測定試料のガンマ線計測結果、これらに係る測定誤差評価結果についてそれぞれ表 4.3.3-1(1)(2)、表 4.3.3-2(1)(2)(3)、表 4.3.3-3(1)(2)(3)に示す。Ba 試料及び Ba-133 フィルタ試料のγ線計測の様子を図 4.3.3-3 に示す。試料のγ線計測にあたっては、Ge 検出器の不感時間が数%程度内に収まるように Ge 検出器から距離を離した（Ba 試料-Ge 検出器表面間距離：約 19 mm）。Ge 検出器における Ba-133、Ba-140 の検出効率については、標準線源（Ba-133、Eu-152、Cs-137、Co-60。試料厚さ 0.8 mm）を用い、302keV から 1408 keV（計 11 点、放出率が 10%以上のガンマ線に着目）のガンマ線エネルギー領域におけるエネルギーとγ線強度の関係式を fitting して求めた（(1)式）のち、Ba-133、Ba-140 のγ線エネルギーそれぞれ 356.01 keV、537.65 keV における検出効率を算出して用いた。検出効率のエラーについては fitting 関数と標準線源により得られた計 11 点のデータのバラつきを考慮し算出した。

ガンマ線計測による燃料試料の発熱量評価の結果、燃料ペレット高さ 4.12 mm（1 回目、2 回目）及び 2.27 mm から作製した各 Ba 試料でそれぞれ 134±2 cal/g（1 回目）、134±1 cal/g（2 回目）、135±2 cal/g となった。誤差評価にあたっては、重量測定誤差、γ線計測におけるカウント及び検出効率誤差、化学分離後回収率誤差を考慮した。Ba 試料（φ25 mm）と標準線源（φ16 mm）のジオメトリ（試料外径）の違いによるγ線計測値への影響について確認した結果、φ25 mm の Ba-133 フィルタ試料はφ16 mm の Ba-133 フィルタ試料に比して Ba-133 標準液重量あたりの放射能量が 4.6%±1.8%程度低く評価されることがわかった。このことからフィルタ試料の外径の違いよる影響は無視しえないと言える。一方、Ba 試料における Ba 沈殿物は概ねφ16 mm の範囲内に存在するが、その中心が検出器の中心位置からずれていること、φ16 mm の範囲外においてもまばらに Ba 沈殿が存在すること（φ25 mm 内には存在）を考慮すると、ジオメトリの違いによる正確な補正は難しい。Ba-133 フィルタ試料φ16 mm 及びφ25 mm のジオメトリの違いによる放射能量の差 4.6%±1.8%をジオメトリの違いによるエラーとみなせば、燃料試料の発熱量評価は、それぞれ 134±11cal/g、134±10cal/g、135±11 cal/g と評価される。

なお、本発熱量評価パラメータの一つである Ba-140 の核分裂収率については、熱中性子による U-235 の核分裂のみを仮定した評価値[31, 32]を考慮し、6.20%とした。Ba 試料及び Ba-133 フィルタ試料については、母材が非常に薄いろ紙であることにより自己吸収が無視しうることから、評価上、自己吸収はないものとした。

また、中性子輸送計算コード TWODANT[33]を用いて評価された値（解析評価値）126 cal/g（換算係数 1.510 cal/g/MJ）と比較すると、Ba 分離手法による評価値は高くなる傾向にあるが、解析評価に関して従来評価されていた不確かさ（10%）の範囲内である。解析値に比べ高くなる傾向について考えられる理由の一つとしては、紙上の $BaSO_4$ 沈殿が均一に分布しておらず、標準線源と試料のジオメトリの違いを上手く補正できていないためと考えら

れる。

これらを踏まえると、Ba 分離手法を用いた評価においても 5%未満の低濃縮度（fissile 比）条件範囲における解析評価値の信頼性を確認することができ、発熱量評価手法として有効であると考えられるが、一方で、試料のジオメトリ影響について高精度での補正は難しく、前年度までに報告済である、燃料溶解液を直接分析する手法による発熱量評価の方が信頼性が高いと言える。

$$ln(\varepsilon) = A + B \times ln(E_\gamma) + C \times ln(E_\gamma)^2 \qquad (1)$$

ε： Ge 検出器の検出効率

E_γ：γ線エネルギー

① Ba 試料及び Ba-133 フィルタ試料のγ線測定時の（1）式の定数

A：3.55858

B：-1.46316

C：3.13112×10^{-2}

表 4.3.3-1(1) 標準線源の詳細情報

試料名		4 核種混合標準線源
仕様	外径（mm）	φ26
	有効径（mm）	φ16
	厚さ (mm)	0.8
核種仕様		Co-60, Ba-133, Cs-137, Eu-152

表 4.3.3-1(2) 測定試料の詳細情報

試料番号		1		2	3		4	
		a	b		a	b	a	b
試料名		Ba試料 （高さ4.12 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙 【1回目】）	Ba試料 （高さ4.12 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙 【2回目】）	Ba試料 （高さ2.27 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙）	Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料
溶解した燃料ペレット仕様	高さ（mm）	4.12		2.27	－			
	外径（mm）	8.19		8.19	－			
	重量（g）	2.166		1.192	－			
試料仕様	試料母材	アドバンテック社製　定量ろ紙No.5C（セルロース繊維）						
	外径（mm）	φ25					φ16	
	厚さ（mm）	0.22						
燃料溶解液試料分取重量（g）		1.310×10^{1}	1.308×10^{1}	1.290×10^{1}	－	－	－	－
燃料溶解液全量（g）		6.501×10^{1}	6.501×10^{1}	6.254×10^{1}	－	－	－	－
燃料溶解液分取率 (燃料溶解液分取量/燃料溶解液全量)		0.201	0.201	0.206	－	－	－	－
Ba-133標準液分取重量（g）		9.930×10^{-2}	9.913×10^{-2}	9.673×10^{-2}	1.003×10^{-1}	1.069×10^{-1}	3.020×10^{-2}	3.193×10^{-2}

表 4.3.3-2(1) 測定試料（Ba 試料）のγ線計測結果【Ba-133】

試料番号		1		2
		a	b	
測定機器		ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製Ge半導体検出器（GC1020S-CJT-F-1/S-2002C）		
試料作製日		2022/1/5		
核種	測定核種	Ba-133		
	E_γ (keV)	356.01 ※1		
	放出率 (%)	62.1 ※1		
測定開始日		2022/1/18 17:10	2022/1/21 17:24	2022/1/24 17:44
測定終了日		2022/1/21 17:15	2022/1/24 17:30	2022/1/27 17:51
測定時間	Live Time (s)	259200		
	Real Time (s)	259488	259561	259613
ネット面積 (Counts)		140986	128374	144766
計数率 (cps)		0.544	0.495	0.559
検出効率 ※2		1.913×10^{-2}		
半減期 (d)		3842 ※1		
崩壊定数 (1/s)		2.087×10^{-9}		
測定試料放射能量 (Bq)		4.594×10^{-1}	4.186×10^{-1}	4.723×10^{-1}
Ba-133標準液重量あたりの放射能量 (Bq/g)		4.627×10^{2}	4.215×10^{2}	4.882×10^{2}
化学分離後回収率 （%） ※3		55.4%	50.5%	58.5%

※1　Table of Isotopesより参照
※2　356.01 keVにおける検出効率を算出
※3　Ba-133フィルタ試料φ25のBa-133標準液重量あたりの放射能量と比較し算出

表 4.3.3-2(2) 測定試料（Ba-133 フィルタ試料）のγ線計測結果【Ba-133】

試料番号		3		4		
		a	b	a		b
				86400 s測定	259200 s測定	259200 s測定
測定機器		ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製Ge半導体検出器 (GC1020S-CJT-F-1/S-2002C)				
試料仕様	外径（mm）	φ25		φ16		
試料作製日		2022/1/5				
核種	測定核種	Ba-133				
	E_γ（keV）	356.01 ※1				
	放出率（%）	62.1 ※1				
測定開始日		2022/1/6 15:26	2022/1/12 11:52	2022/1/5 15:14	2022/1/14 16:51	2022/1/7 16:13
測定終了日		2022/1/7 14:57	2022/1/13 11:53	2022/1/6 14:44	2022/1/17 16:56	2022/1/10 16:17
測定時間	Live Time（s）	86400		86400	259200	
	Real Time（s）	84679	86468	84620	259471	259472
ネット面積（Counts）		84777	92548	27220	80030	86798
計数率（cps）		0.981	1.07	0.315	0.309	0.335
検出効率 ※2		1.913×10^{-2}				
半減期 （d）		3842 ※1				
崩壊定数（1/s）		2.087×10^{-9}				
測定試料放射能量（Bq）		8.269×10^{-1}	9.036×10^{-1}	4.594×10^{-1}	2.606×10^{-1}	2.823×10^{-1}
Ba-133 標準液重量あたりの放射能量（Bq/g）		8.241×10^{2}	8.453×10^{2}	8.789×10^{2}	8.630×10^{2}	8.840×10^{2}
Ba-133 標準液重量あたりの平均放射能量（Bq/g）		8.347×10^{2}		–	–	–
		–	–	–	8.735×10^{2}	
ジオメトリ（試料外径）の違いによる放射能量比		1.046		–	–	–

※1　Table of Isotopesより参照
※2　356.01 keVにおける検出効率を算出

表 4.3.3-2(3) 測定試料（Ba 試料）のγ線計測結果【Ba-140】

試料番号		1		2
		a	b	
測定機器		ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製Ge半導体検出器（GC1020S-CJT-F-1/S-2002C）		
パルス照射日		2021/9/17 14:30	2021/9/18 14:30	2021/9/19 14:30
核種	測定核種	Ba- 140		
	E_γ (keV)	537.65※1		
	放出率 (%)	24.4※1		
測定開始日		2022/1/18 17:10	2022/1/21 17:24	2022/1/24 17:44
測定終了日		2022/1/21 17:15	2022/1/24 17:30	2022/1/27 17:51
測定時間	Live Time (s)	259200		
	Real Time (s)	259488	259561	259613
ネット面積 (Counts)		157656	121928	67891
計数率 (cps)		0.608	0.470	0.262
検出効率※2		1.225×10^{-2}	1.225×10^{-2}	1.225×10^{-2}
半減期 (d)		12.75※1		
崩壊定数 (1/s)		6.290×10^{-7}		
化学収率※3		55.4%	50.5%	58.5%
Ba試料（測定試料）放射能量(Bq)		1.775×10^{5}	1.616×10^{5}	1.060×10^{5}
分取した燃料溶解液中に含まれる燃料重量（g）		4.365×10^{-1}	4.357×10^{-1}	2.460×10^{-1}
燃料重量あたりの Ba-140の放射能量 (Bq/g-fuel) 【Ba試料放射能量/燃料重量/化学収率】		7.334×10^{5}	7.347×10^{5}	7.370×10^{5}
燃料重量あたりのBa-140生成数 (1/g-fuel)		1.166×10^{12}	1.168×10^{12}	1.172×10^{12}
核分裂収率 (%)		6.20%※4		
燃料重量あたりの核分裂数 (fission/g-fuel)		1.881×10^{13}	1.884×10^{13}	1.890×10^{13}
燃料発熱量 (cal/g-fuel)		134	134	135

※1　Table of Isotopesより参照
※2　537.65 keVにおける検出効率を算出
※3　燃料溶解液に添加したBa-133 標準液及びBa-133フィルタ試料（φ25）を基に化学分離後回収率を算出
※4　JENDL-4.0 Fission Yield Sublibrary及びJAERI-research-98-052 を参考に熱中性子による U-235 の核分裂のみを仮定した評価値

表 4.3.3-3(1) 測定試料（Ba 試料）のγ線計測に係る測定誤差評価結果

【Ba-133】

試料番号		1		2
		a	b	
試料名		Ba試料 （高さ4.12 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙 【1回目】）	Ba試料 （高さ4.12 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙 【2回目】）	Ba試料 （高さ2.27 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙）
重量測定	Ba-133 標準液分取重量（g）	0.0993	0.0991	0.0967
絶対誤差※1		$\pm 7.7\times10^{-7}$	$\pm 6.0\times10^{-7}$	$\pm 6.1\times10^{-7}$
相対誤差		0.001%	0.001%	0.001%
ガンマ線計測カウント	ネット面積（Counts）	140986	128374	144766
	ネット面積絶対誤差※2	± 412	± 397	± 405
	相対誤差	0.29%	0.31%	0.28%
検出効率	検出効率	1.913×10^{-2}		
	相対誤差※3	0.85%		
Ba試料中のBa-133標準液放射能（Bq）		4.627×10^{2}	4.215×10^{2}	4.882×10^{2}
相対誤差		0.90%	0.90%	0.89%
化学分離後回収率	化学分離後回収率※4	55.4%	50.5%	58.5%
	相対誤差	1.4%	1.0%	1.0%

※1　Ba-133 標準液の分取重量の標準誤差を算出
※2　ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Spctrum Explorer Ver. 2. 18 により、ネットカウント誤差を算出
（取扱説明書参照）
※3　標準線源により得たデータ点とそれに基づき導出したフィッティング関数とのバラつきから標準誤差を算出
※4　Ba-133フィルタ試料φ25のBa-133標準液重量あたりの放射能量と比較し算出

表 4.3.3-3(2) 測定試料（Ba-133 フィルタ試料）のγ線計測に係る測定誤差評価結果

【Ba-133】

試料番号		3		4		
		a	b	a		b
試料名		Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料 【1 回目】	Ba-133 フィルタ試料 【2 回目】	Ba-133 フィルタ試料
試料仕様	外径 (mm)	φ 25		φ 16		
重量測定	Ba-133 標準液 分取重量 (g)	0.1003	0.1069	0.0302		0.0319
絶対誤差※1		± 6.9×10^{-6}	± 0.0000	± 0.0000		± 3.3×10^{-6}
相対誤差		0.007%	± 0.00%	± 0.00%		0.010%
測定時間	Live Time（s）	86400		86400	259200	
	Real Time（s）	84679	86468	84620	259471	259472
ガンマ線計測カウント	ネット面積 (Counts)	84777	92548	27220	80030	86798
	ネット面積 絶対誤差※2	± 294	± 308	± 167	± 287	± 298
	相対誤差	0.35%	0.33%	0.61%	0.36%	0.34%
検出効率	検出効率	1.913×10^{-2}				
	相対誤差 ※3	0.85%				
Ba-133 標準液重量 あたりの放射能量 (Bq/Ba-133 標準液重量g)		8.241×10^{2}	8.453×10^{2}	8.789×10^{2}	8.630×10^{2}	8.840×10^{2}
相対誤差		0.92%	0.91%	1.0%	0.92%	0.92%
Ba-133 標準液重量 あたりの平均放射能 (Bq/Ba-133 標準液重量g)		8.347×10^{2}		—	8.735×10^{2}	
相対誤差		1.3%		—	1.3%	
ジオメトリ（試料外径）の違いによる 放射能量比		1.046		—	—	
相対誤差		1.8%		—	—	

※1 Ba-133 標準液の分取重量の標準誤差を算出
※2 ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Spctrum Explorer Ver. 2. 18 により、ネットカウント誤差を算出（取扱説明書参照）
※3 標準線源により得たデータ点とそれに基づき導出したフィッティング関数とのバラつきから標準誤差を算出

表 4.3.3-3(3) 測定試料（Ba 試料）のγ線計測に係る測定誤差評価結果【Ba-140】

試料番号		1		2
		a	b	
試料名		Ba試料 （高さ4.12 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙 【1回目】）	Ba試料 （高さ4.12 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙 【2回目】）	Ba試料 （高さ2.27 mmの燃料ペレット 溶解液Ba化学分離後ろ紙）
重量測定	試料重量（g）	2.166		1.192
	燃料溶解液分取重量（g）	13.100	13.076	12.904
	燃料溶解液全量（g）	65.015		62.542
	分取率	2.02×10^{-1}	2.01×10^{-1}	2.06×10^{-1}
	分取率の絶対誤差 ※1	$\pm 1.0\times10^{-4}$	$\pm 7.9\times10^{-5}$	$\pm 8.0\times10^{-5}$
	分取率の相対誤差	0.001%	0.001%	0.001%
ガンマ線計測カウント	ネット面積（Counts）	157656	121928	67891
	ネット面積絶対誤差 ※2	± 413	± 369	± 274
	相対誤差	0.26%	0.30%	0.40%
検出効率	検出効率	1.225×10^{-2}		
	相対誤差 ※3	0.85%		
化学分離後回収率	化学分離後回収率 ※4	55.4%	50.5%	58.5%
	相対誤差	1.4%	1.0%	1.0%
発熱量評価全体の相対誤差		1.7%	1.4%	1.4%

※1　燃料溶解液分取重量及び溶解液全量の重量測定値の標準誤差を基に算出
※2　ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Spctrum Explorer Ver. 2. 18 により、ネットカウント誤差を算出（取扱説明書参照）
※3　標準線源により得たデータ点とそれに基づき導出したフィッティング関数とのバラつきから標準誤差を算出
※4　Ba-133フィルタ試料φ25のBa-133標準液重量あたりの放射能量とBa試料に添加したBa-133標準液の重量あたりの放射能量を比較し算出

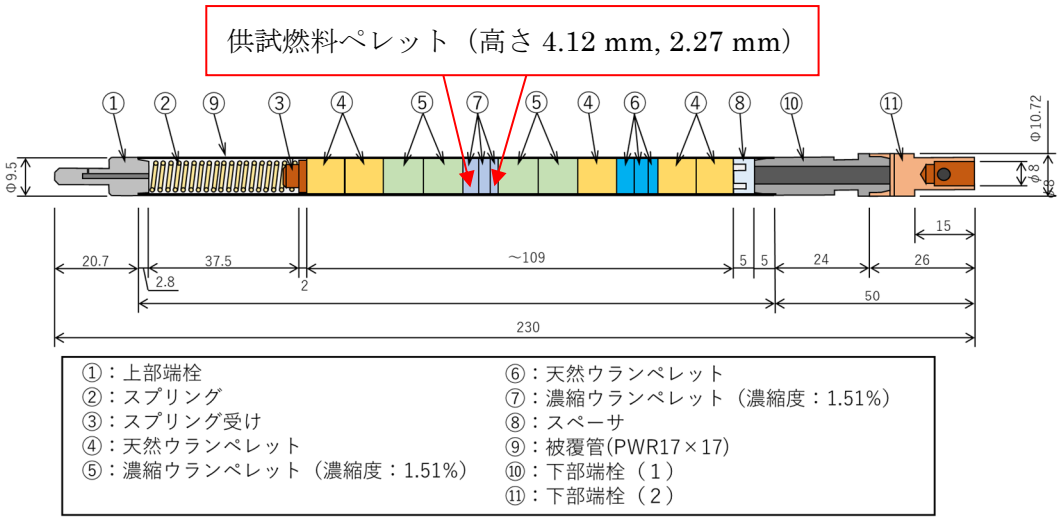


図 4.3.3-1 224-2 試験燃料棒の構造概略

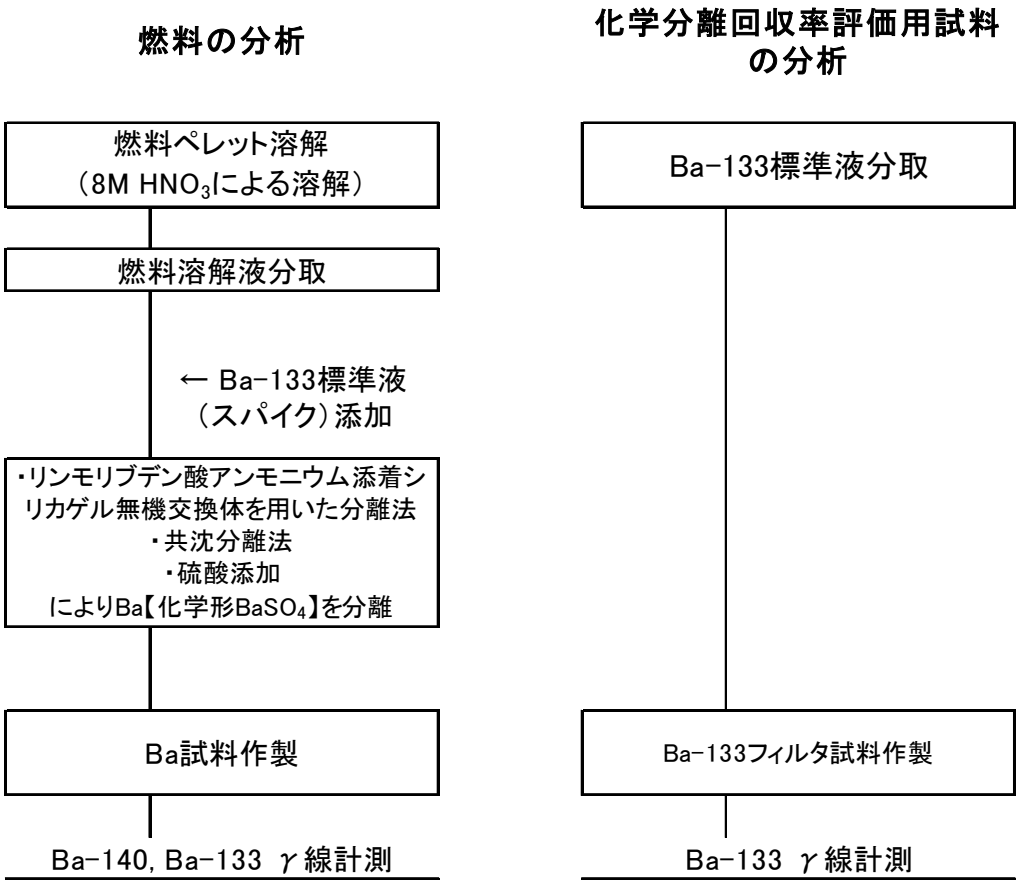


図 4.3.3-2 Ba 試料及び Ba-133 フィルタ試料作製フロー

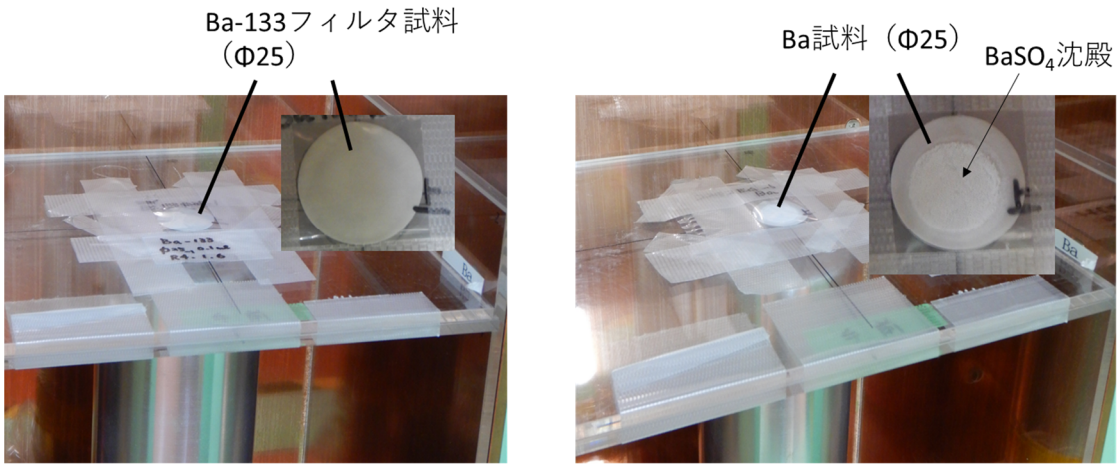


図 4.3.3-3 Ba 試料及び Ba-133 フィルタ試料のγ線計測の様子

(2) LS-4 実験

LS-4 実験は、高燃焼度 BWR-UO_2 燃料を対象とした室温実験として平成 30 年 6 月 28 日に実施し、パルス照射中の過渡記録及び照射後試験（燃料棒外観観察等）については既に報告した[1][2]。本報告では、H30 年に報告した照射後試験の一つである、「RIA 時に生成された Ba-140 の定量分析」（4.3.4 (5) 章）について、その誤差評価に必要となるデータを追加で報告するとともに、改めて再解析した結果を報告する。

(a) LS-4 実験に関するパルス照射後試験（RIA 時に生成された Ba-140 の定量分析の誤差評価）

過去用いられてきた RIA 時の燃料エンタルピ増分の実験的評価手法である Ba-140 の定量分析の結果を補完するために、誤差評価に必要となる重量測定、溶解液の分取率、γ線計測カウント、γ線検出効率の誤差について解析した。

Ba-140 の定量分析は以下の手順である。

1. RIA 試験後の試験燃料棒から採取した燃料試料を酸により溶解し、溶解液中に含まれる核分裂生成核種の Ba-140（半減期 12.75 日）量を化学分離後γ線計測により評価する。
2. 溶解液中の燃料を定量する*。
3. 1 及び 2 で得られた結果と文献[4]記載の式を用いて、発熱量を評価する。

*溶解過程における（電子天秤を用いた）重量測定から溶解液中の燃料を定量する。

LS-4 実験燃料に関して、図 4.3.3-4 で CA と示される位置から厚さ約 1.6 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、被覆管及び不溶性残渣を溶液中より除いた。次に溶解液の一部を分取し、AMP（リンモリブデン酸アンモニウム添着シリカゲル無機交換体）を用いた分離法及び共沈分離法により試料溶液中から U、Pu 及び一部核分裂生成物を除去した後、試料溶液に硫酸を添加することで $BaSO_4$ の沈殿物を生成し、それを濾過することで、Ba を化学分離した（手順は前節 224-2 実験の照射後試験同様。図 4.3.3-2 参照）。その後、Ge 検出器を用いて Ba-140 量をγ線計測により定量した。γ線計測測定試料（Ba 試料）の外観を図 4.3.3-5 に示す。

なお、Ba の化学分離後回収率を求めるため、質量及び同位体組成が既知の Ba-133 試料（スパイク）溶液を用いて化学分離前後における Ba-133 のγ線強度（γ線エネルギー：356.01 keV）の変化を測定した（Ba-133 フィルタ試料）。溶解液の分取量について、ピペットの目盛から算出した値 4.000×10^{-4} と電子天秤を用いた重量測定から算出した値 4.169×10^{-4} があるが、今回の評価においては暫定的に重量測定から算出した値を用いた。Ge 検出器における Ba-133、Ba-140 の検出効率については、標準線源（Ba-133、Eu-152、Cs-137、Co-60。試料厚さ 0.8 mm）を用い、302 keV から 1408 keV（計 11 点、放出率が 10%以上

のガンマ線に着目）のガンマ線エネルギー領域におけるエネルギーとγ線強度の関係式を fitting して求めた（(1)式）のち、Ba-133、Ba-140 のγ線エネルギー 356.01 keV、537.65 keV それぞれにおける検出効率を算出して用いた。検出効率のエラーについては fitting 関数と標準線源により得られた計 11 点のデータのバラつきを考慮し算出した。

なお、H30 年に報告した検出効率は、同じ標準線源（Ba-133、Eu-152、Cs-137、Co-60）を用い、245 keV から 1408 keV のうち、計 13 点のエネルギーのγ線を基に簡易的に log（検出効率）= 定数項 ＋ log（γ線エネルギー）の式で fitting して算出したが、本再解析においては、γ線の放出率が小さい領域（10%未満の点）の影響を除き、かつより検出効率の誤差が小さくなる（1）式（γ線計測解析ソフトにて推奨されている関数形）にて評価し直すことにした。

4.1.2 節の発熱量評価手法の手順 2 に関して、溶解液中の燃料量を定量するために必要となる、LS-4 実験燃料における U, Pu 同位体組成比（分析対象核種 : U-234、U-235、U-236、U-238、Pu-238、Pu-239、Pu-240、Pu-241、Pu-242）、U と Pu の量的割合及び U/Pu 量の測定結果については、既に報告した(※)。重量測定に基づく燃料重量から算出した発熱量は 179±3 cal/g、173±8 cal/g となった。この結果は、4.1.2 節の手順 2 の手法による発熱量の評価値 170cal/g（換算係数 : 6.7416 J/g/MJ、積分出力 105.8 MJ として算出）と比べ、Ba 分離手法による評価値は高くなる傾向にあるが、解析評価に関して従来評価されていた不確かさ（10%）の範囲内である。この評価値が高くなる傾向の理由としては、母材（ろ紙）上に堆積した Ba 沈殿が均一でない（外観からは若干試料中心部よりに堆積しているように見える）ことによると考えられる。

なお、224-2 実験で評価した、標準線源と Ba 試料のジオメトリの違いに係るエラーについては、LS-4 燃料のγ線計測と異なる個体の Ge 検出器を用いている（Ge 検出器と試料間の距離も異なる）ため、適用しなかった。

Ba-140 の定量分析手法による評価値は、現在主に用いている手法（4.1.2 節）(※)による評価値と比較すると、多くの実験ケースで低い値となっている。従来手順 1 では、不溶性残渣及び被覆管の内面に固着しているボンディング層の中に含まれる Ba-140 の定量は実施されておらず、不溶性残渣及びボンディング層に Ba-140 が存在している可能性が検討されていない。そこで、上記の手順に加え、不溶性残渣及びボンディング層についても Ba-140 の定量分析を実施した。不溶性残渣及びボンディング層の Ba-140 定量分析にあたっては、不溶性残渣及びボンディング層を同じ容器に移し替えたのち、混酸（9M 濃塩酸 : 15M 濃硝酸 ＝ 10 : 1）を用いて溶解した。その後、同様に Ba を化学分離し、γ線測定を実施した。なお、今回の測定においては、不溶性残渣、ボンディング層及び被覆管の各溶解量が未知のため、不溶性残渣及び固着している燃料あたりの放射能量は評価していない。不溶性残渣溶解液の分取にあたっては、ピペットの目盛から算出した値 0.3950 と電子天秤を用いた重量測定から算出した値 0.4194 があるが、今回の評価においては暫定的に重量測定から算出

した値を用いた。Ge 検出器の検出効率については、前述の手法と同様に算出した。今回の LS-4 燃料（添加物燃料）における不溶性残渣の量は、燃料溶解量の 1%程度と少ないが、過去の評価では、不溶性残渣の量が 10%程度となったものも存在する。化学分析用試料の切断後、分析用試料の外観を確認した際には、粉末状となった燃料の量が過去の UO_2 燃料ケースと比べて多く見られたことから、LS-4 燃料は比較的溶解し易い、不溶性残渣が生じ難い性状の燃料であった可能性がある。燃料溶解液中の Ba-140 の放射能量と不溶性残渣溶解液中の Ba-140 の放射能量はおよそ 0.3%程度の値となっており、当該燃料について被覆管に固着している燃料及び不溶性残渣中の Ba-140 の影響は小さいと考えられる。

測定試料の詳細情報を表 4.3.3-4 に、測定試料のγ線計測結果を表 4.3.3-5(1)(2)に、測定試料のγ線計測に係る測定誤差評価結果を表 4.3.3-6(1)(2)(3)に示す。

$$ln(\varepsilon) = A + B \times ln(E_\gamma) + C \times ln(E_\gamma)^2 \qquad (1)$$

ε： Ge 検出器の検出効率

E_γ：γ線エネルギー

② Ba 試料、Ba-133 フィルタ試料、不溶性残渣溶解液 Ba 試料のγ線測定時の（1）式の定数

A：3.65613

B：-1.47742

C：3.22792×10^{-2}

表 4.3.3-4 測定試料の詳細情報

試料番号		1		2		3
		a	b	a	b	
試料名		Ba 試料 （Ba 化学分離後試料） ①	Ba 試料 （Ba 化学分離後試料） ②	Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料	不溶性残渣溶解液 Ba 試料 （Ba 化学分離後試料）
溶解したディスク燃料重量、不溶性残渣重量（g）		9.346×10^{-1}	9.346×10^{-1}	－	－	9.933×10^{-3}
仕様	母材	アドバンテック社製　定量ろ紙 No.5C（セルロース繊維）				
	外径（mm）	φ25				
	厚さ（mm）	0.22				
燃料溶解液試料分取重量（g）		2.283×10	2.280×10	－	－	1.620×10^{1}
燃料溶解液全量（g）		1.139×10^{2}	1.139×10^{2}	－	－	3.864×10^{1}
燃料溶解液分取率（分取量/燃料溶解液全量）		4.169×10^{-4}	4.169×10^{-4}	－	－	4.194×10^{-1}
Ba-133 標準液分取重量（g）		1.030×10^{-1}	1.034×10^{-1}	1.036×10^{-1}	1.024×10^{-1}	1.032×10^{-1}

表 4.3.3-5(1) 測定試料（Ba 試料、Ba-133 フィルタ試料）のγ線計測結果【Ba-133】

試料番号		1		2		3
		a	b	a	b	
測定機器		ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Ge 半導体検出器 （GC1020S-CJT-F-1/S-2002C）				
標準液分取日（Ba-133 半減期計算基準日）		2018/8/2				
核種	測定核種	Ba-133				
	E_γ（keV）	356.01※1				
	放出率（%）	62.1※1				
測定開始日		2018/8/8 15:58	2018/8/16 16:57	2018/8/10 11:27	2018/8/16 10:36	2018/8/10 17:25
測定終了日		2018/8/10 9:31	2018/8/17 13:30	2018/8/10 17:07	2018/8/16 14:52	2018/8/16 8:41
測定時間	Live Time（s）	149560	73969	20401	15334	486944
	Real Time（s）	152053	76141	20407	15338	493216
ネット面積（Counts）		64141	26358	10053	7273	191926
計数率（cps）		0.429	0.356	0.493	0.474	0.394
検出効率※2		2.005×10^{-2}				
半減期（d）		3842※1				
崩壊定数（1/s）		2.087×10^{-9}				
測定試料放射能量（Bq）※3		3.506×10^{-1}	2.954×10^{-1}	3.964×10^{-1}	3.819×10^{-1}	3.213×10^{-1}
測定試料放射能量平均値（Bq）※4		－	－	3.892×10^{-1}		－
化学分離後回収率※5		90.1%	75.9%	－	－	82.6%

※1　Table of Isotopes より参照
※2　356.01 keVにおける検出効率を算出（標準線源により得られたデータ点に基づき、本文（(1)式）から検出効率を算出）
※3　半減期を考慮し標準液分取日に換算した放射能量
※4　試料番号 2a, 2b の測定試料放射能量を平均した放射能量
※5　Ba-133 フィルタ試料のBa-133 標準液重量あたりの放射能量とBa 試料に添加したBa-133 標準液の重量あたりの放射能量を比較し算出

表 4.5.3-5(2) 測定試料（Ba 試料）のγ線計測結果【Ba-140】

試料番号		1		3
		a	b	
測定機器		ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Ge 半導体検出器（GC1020S-CJT-F-1/S-2002C）		
パルス照射日		2018/6/28 14:33	2018/6/28 14:33	2018/6/28 14:33
核種	測定核種	Ba-140		
	Eγ（keV）	537.65※1		
	放出率（%）	24.4※1		
測定開始日		2018/8/8 15:58	2018/8/16 16:57	2018/8/10 17:25
測定終了日		2018/8/10 9:31	2018/8/17 13:30	2018/8/16 8:41
測定時間	Live Time（s）	149560	73969	486944
	Real Time（s）	152053	76141	493216
ネット面積（Counts）		15308	4022	17927
計数率（cps）		0.102	0.054	0.037
検出効率※2		1.283×10^{-2}		
半減期（d）		12.75※1		
崩壊定数（1/s）		6.290×10^{-7}		
測定試料放射能量（Bq）※3		3.187×10^{2}	2.560×10^{2}	1.421×10^{2}
溶解UO_2重量あたりの放射能量（Bq/溶解試料重量g）※4		9.224×10^{5}	8.972×10^{5}	3.097×10^{3}
燃料重量あたりのBa-140 生成数（個/g-fuel）※5		1.466×10^{12}	1.422×10^{12}	4.924×10^{9}
核分裂収率（%）		5.85%※6		
燃料重量あたりの核分裂数（1/g-fuel）※7		2.497×10^{13}	2.420×10^{13}	8.383×10^{10}
燃料発熱量（cal/g）		179	173	0.600

※1　Table of Isotopes より参照
※2　537.65 keVにおける検出効率を算出
（標準線源により得られたデータ点に基づき、本文（(1)式）から検出効率を算出）
※3　半減期を考慮しパルス照射日の放射能量に換算
※4　試料番号 3 は溶解した不溶性残渣重量あたりの放射能量
※5　試料番号 3 は不溶性残渣重量あたりのBa-140 生成数
※6　JAERI - Research - 98 - 052 の評価方法に基づき評価
U-235、Pu-239、Pu-241の核分裂収率は、それぞれ 6.203、5.353、5.766 を使用
U-235、Pu-239、Pu-241の原子数はAP2-18 レファレンス燃料の質量分析の結果を基に半減期補正し、LS-4 パルス照射実験日時点の原子数を算出し使用
（U-235：2.13×10^{-5}、Pu-239：1.13×10^{-5}、Pu-241：1.88×10^{-5}）
※7　試料番号 3 は不溶性残渣重量あたりの核分裂数

表 4.3.3-6(1) 測定試料（Ba-133 フィルタ試料）のγ線計測に係る測定誤差評価結果

【Ba-133】

試料番号		2	
		a	b
試料名		Ba-133 フィルタ試料	Ba-133 フィルタ試料
重量測定	Ba-133 標準液 分取重量（g）	0.1036	0.1024
絶対誤差※1		± 1.3×10^{-5}	± 7.5×10^{-6}
相対誤差		0.012%	0.007%
測定時間	Live Time（s）	20401	15334
	Real Time（s）	20407	15338
ガンマ線計測カウント	ネット面積 (Counts)	10053	7273
	ネット面積 絶対誤差※2	± 103	± 89
	相対誤差	1.0%	1.2%
検出効率	検出効率	2.005×10^{-2}	
	相対誤差※3	0.82%	
Ba- 133 標準液重量 あたりの放射能 (Bq/Ba-133 標準液重量g)		3.967×10^{1}	3.822×10^{1}
相対誤差		1.3%	1.5%
Ba- 133 標準液重量 あたりの平均放射能 (Bq/Ba- 133 標準液重量g)		3.780×10^{2}	
相対誤差		0.91%	

※1　Ba-133 標準液の分取重量の標準誤差を算出
※2　ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Spctrum Explorer Ver. 2. 18 により、ネットカウント誤差を算出
（取扱説明書参照）
※3　標準線源により得たデータ点とそれに基づき導出したフィッティング関数とのバラつきから標準誤差を算出

表 4.3.3-6(2) 測定試料（Ba 試料、不溶性残渣溶解液 Ba 試料）のγ線計測に係る測定誤差評価結果【Ba-133】

試料番号		1		3
		a	b	
試料名		Ba 試料 （Ba 化学分離後試料） ①	Ba 試料 （Ba 化学分離後試料） ②	不溶性残渣溶解液 Ba 試料 （Ba 化学分離後試料）
重量測定	Ba-133 標準液分取重量（g）	0.1030	0.1034	0.1032
絶対誤差※1		$\pm 1.9\times10^{-5}$	$\pm 2.5\times10^{-5}$	$\pm 1.1\times10^{-4}$
相対誤差		0.001%	0.001%	0.001%
ガンマ線計測カウント	ネット面積（Counts）	64141	26358	191926
	ネット面積絶対誤差※2	± 418	± 376	± 359
	相対誤差	0.65%	1.4%	0.19%
検出効率	検出効率	2.005×10^{-2}		
	相対誤差※3	0.82%		
Ba 試料中のBa-133 標準液放射能（Bq）		3.408×10^{2}	2.859×10^{2}	3.112×10^{2}
相対誤差		1.0%	1.6%	0.84%
化学分離後回収率	化学分離後回収率※4	90.2%	75.6%	82.4%
	相対誤差	1.5%	1.1%	1.2%

※1　Ba-133 標準液の分取重量の標準誤差を算出
※2　ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Spctrum Explorer Ver. 2. 18 により、ネットカウント誤差を算出（取扱説明書参照）
※3　標準線源により得たデータ点とそれに基づき導出したフィッティング関数とのバラつきから標準誤差を算出
※4　Ba-133 フィルタ試料のBa-133 標準液重量あたりの放射能量と比較し算出

表 4.3.3-6(3) 測定試料（Ba 試料及び不溶性残渣溶解液 Ba 試料）のγ線計測に係る測定誤差評価結果【Ba-140】

試料番号		1		3
		a	b	
試料名		Ba 試料 (Ba 化学分離後試料) ①	Ba 試料 (Ba 化学分離後試料) ②	不溶性残渣溶解液 Ba 試料 (Ba 化学分離後試料)
重量測定	試料重量（g）※1	0.9346		0.1344
	燃料溶解液分取重量（g）	2.283	2.280	16.205
	燃料溶解液全量（g）	113.86		38.635
	分取率	4.169×10^{-4}	4.164×10^{-4}	4.194×10^{-1}
分取率の絶対誤差※2		$\pm 1.9\times10^{-5}$	$\pm 2.5\times10^{-5}$	$\pm 1.1\times10^{-4}$
分取率の相対誤差		0.001%	0.001%	0.001%
ガンマ線計測カウント	ネット面積(Counts)	15308	4022	17927
	ネット面積絶対誤差※3	± 231	± 197	± 359
	相対誤差	1.5%	4.7%	2.0%
検出効率	検出効率	1.283×10^{-2}		
	相対誤差※4	0.82%		
化学分離後回収率	化学分離後回収率※5	90.2%	75.6%	82.4%
	相対誤差	1.5%	1.1%	1.2%
発熱量評価全体の相対誤差		1.7%	4.7%	2.1%

※1　試料番号 1a, 1b は溶解した燃料ディスク重量、試料番号 2 は溶解した不溶性残渣重量
※2　燃料溶解液分取重量及び溶解液全量の重量測定の標準誤差を基に算出
※3　ミリオンテクノロジーズ・キャンベラ社製 Spctrum Explorer Ver. 2. 18 により、ネットカウント誤差を算出
（取扱説明書参照）
※4　標準線源により得たデータ点とそれに基づき導出したフィッティング関数とのバラつきから標準誤差を算出
※5　Ba-133 フィルタ試料のBa-133 標準液重量あたりの放射能量とBa 試料に添加したBa-133 標準液の重量あたりの放射能量を比較し算出

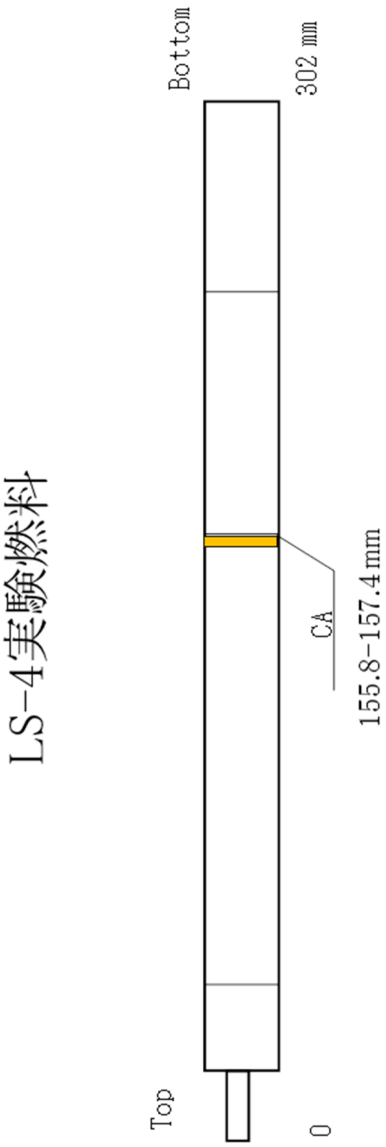


図 4.3.3-4 LS-4 実験燃料からの試料採取計画

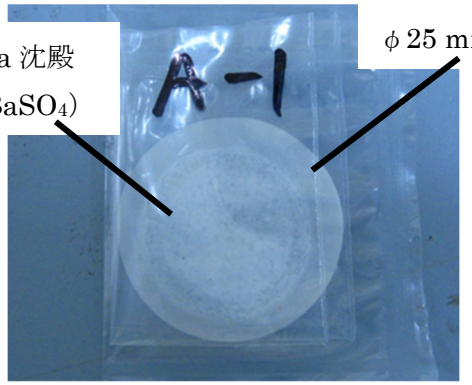


図 4.3.3-5 Ba 試料の外観

4.3.4 RIA 時の燃料挙動に関する総合評価

4.3.4.1 高燃焼度添加物入り BWR 燃料で確認された破損限界低下の原因究明

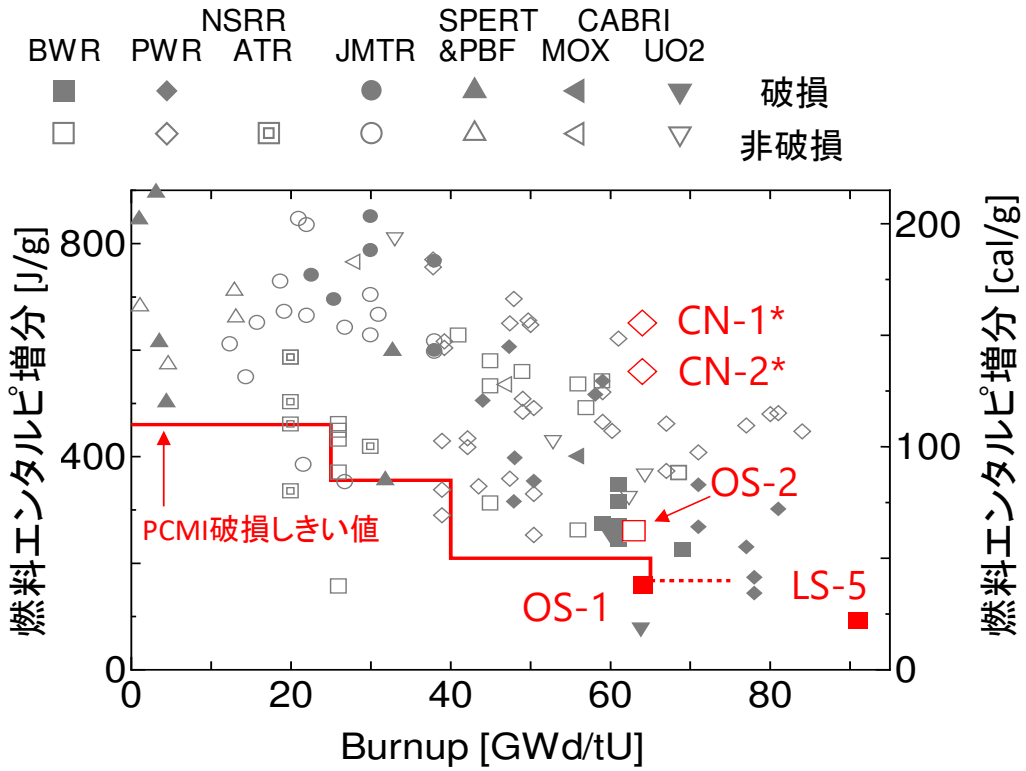
燃焼度 64 GWd/tU の添加物入り（ADOPT）BWR 燃料を供した RIA 模擬試験（OS-1）で、当該燃焼度域に対応する現行 PCMI 破損しきい値を下回る水準での破損が確認された（図 4.3.4-1）[38]ことを受け、破損限界低下メカニズムの解明に向け本研究でデータ・知見を蓄積し、これらの成果に基づいて推測される現象相関図を構築した（図 4.3.4-2）。まず OS-1 燃料の破損部被覆管金属層中では、径方向に配向した水素化物が多く観察された（A）[39]。被覆管中に強い周方向応力を生じる PCMI の様な負荷条件では、ある水素吸収量における被覆管脆化の度合いは水素化物が応力に垂直な径方向に配向を強めるほど大きくなることが知られており、破損限界低下の主要因と推定された。ベース照射後の燃料棒外径データを利用したベース照射中被覆管応力の燃料挙動解析結果はこれを裏付けている[40]即ち OS-1 燃料は過去 RIA 模擬試験に供された BWR 燃料に比べベース照射時に高い周方向応力を経験し、このことが水素化物の径方向配向・成長を促進した可能性が高い（B）。焼きしまりが小さく早期に PCMI を生じやすいという ADOPT 燃料の特性[41]その一因であろう。この他にも、水素化物を径方向に配向させた非照射被覆管を供した炉外破壊試験で、径方向配向の度合を近づける事で破損限界は OS-1 並みに低下（図 4.3.4-3）したこと（C）[4,42]、無添加（UO_2）であるが水素化物径方向配向割合が大きかった高燃焼度 BWR 燃料の RIA 模擬試験（LS-5）でも著しく低い破損限界が確認されたこと（D）[43]、有限要素損傷力学解析による被覆管中亀裂進展の数値実験で、径方向配向水素化物度合いの増大により数十%の破損限界低下が予測されたこと（E）[44]等、本研究で得た複数の結果が、水素化物径方向配向が破損限界低下に果たした役割に関する、上述の推定を支持している。

他方、OS-1 燃料と同じ集合体で照射された無添加燃料は RIA 模擬試験（OS-2）で破損せず、ADOPT 特有の破損限界低下因子の存在も示唆された[39]。ADOPT 燃料では、クロミア及びアルミナ添加によりペレット結晶粒を大粒径化しており、照射下の FP ガス挙動は無添加燃料と異なる。この差異が、水素化物の径方向配向とは別のメカニズムで破損限界に影響した可能性を検証するため、事故条件下の FP ガス移行挙動に着目した比較対照 RIA 模擬試験（ADOPT 燃料：OS-3、無添加燃料：OS-4）により FP ガスの燃料内部の放出・移行速度を評価したところ、ADOPT 燃料では温度急昇直後の FP ガス放出率が無添加燃料の約 2 倍に達し、これによる燃料棒内圧が被覆管にそのまま作用すると、通常の PCMI 負荷に比べ必ずしも無視できない大きさの追加的な変形が生じうる（図 4.3.4-4）と評価された（F）。

以上を踏まえれば、本研究の発端となった RIA 模擬試験 OS-1 の結果は、従前破損限界データが取得されていたこれに近い条件の BWR 燃料に比べ 66 J/g 程度の破損限界（エンタルピ増分）低下が生じたが、その最も重要な因子は被覆管金属層中水素化物の径方向割合が大きかったことであり、但し無添加燃料よりも高い水準の過渡 FP ガス放出に伴う追加的な被覆管変形駆動力の発生によって 25 J/g 程度（図 4.3.4-4）の寄与があり得たと理解される。ADOPT 燃料のベース照射挙動特性自体が水素化物配向挙動にも影響した可能性は大きく、ベース照射条件・事故模擬条件の双方において、ADOPT 燃料の特性に由来する破損限界低

下因子が存在したと言える。BWR 燃料の PCMI 破損限界に関して、燃料挙動解析上従来設計燃料よりもベース照射中の PCMI 負荷や事故条件下での FP ガス放出率が有意に大きいと見込まれる、あるいはこれら挙動についてデータ・知見が乏しいタイプの燃料について、必要に応じ破損限界低下のリスクを考慮することは妥当であろう。例えば簡易的には、通常運転時の（酸化膜増の寄与を除く）被覆管外径増が正の燃料棒に対し、水素濃度の関数として整理された PCMI 破損限界モデル[45]を、OS-1 で得られた破損限界データによりスケーリングして適用するなどの方法が考えられる。

なお ADOPT 燃料は大粒径ペレットの一種であり、事故時の FP ガス放出抑制が期待される特性の一つであったが、OS-3 実験の結果によれば RIA 時の FP ガス放出率は寧ろ大きく、且つ放出のタイミングとしても瞬時放出に近かった、即ち期待される水準の FP ガス閉じ込め性能を発揮しない条件があり得る点は、添加物燃料が事故耐性燃料概念の一つとしても数えられる現状に鑑みても極めて重要な知見である。FP ガスの大半は燃料ペレット結晶粒内に閉じ込められるとされる大粒径ペレットにあって、どのような放出経路を経て FP ガス放出が生じたかの解明は、RIA や PCMI 破損限界の枠を超えて、FFRD を含む高燃焼度燃料の事故時挙動全般に関する理解の深化に資する所が大きいと考えられる。



*CN-1及びCN-2では、燃料は破損したが、PCMI破損ではなく、内圧破裂型破損であったと考えられる。

図 4.3.4-1　PCMI 破損マップ

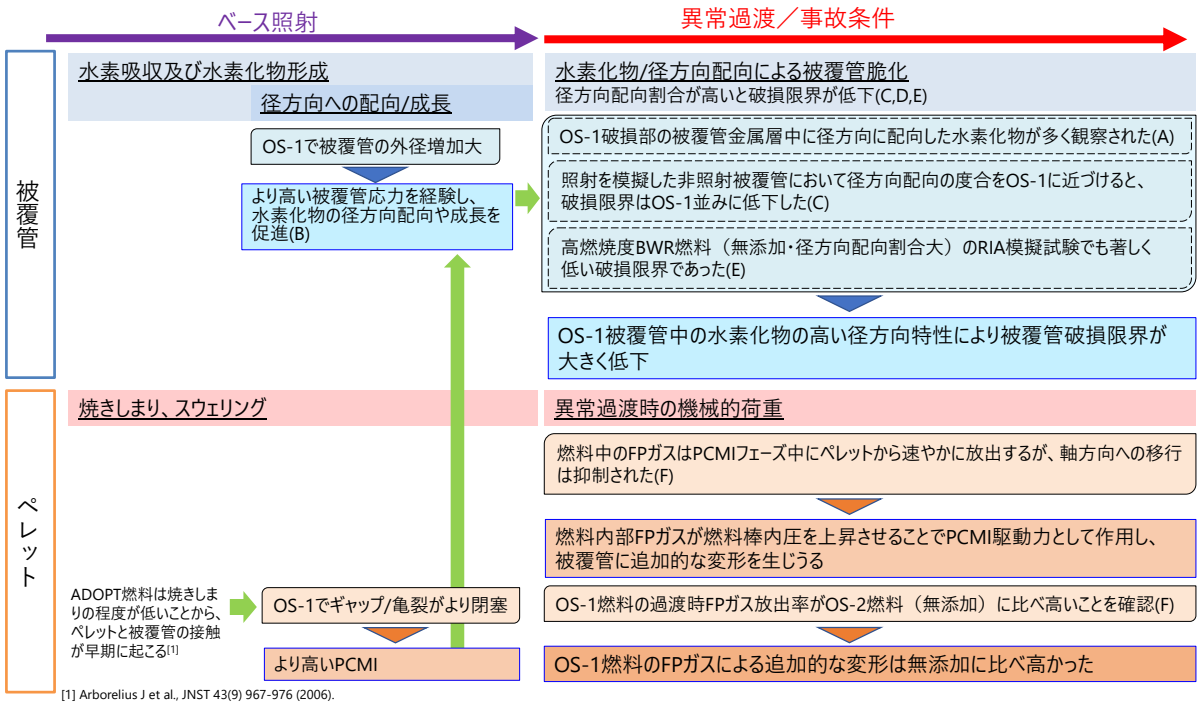
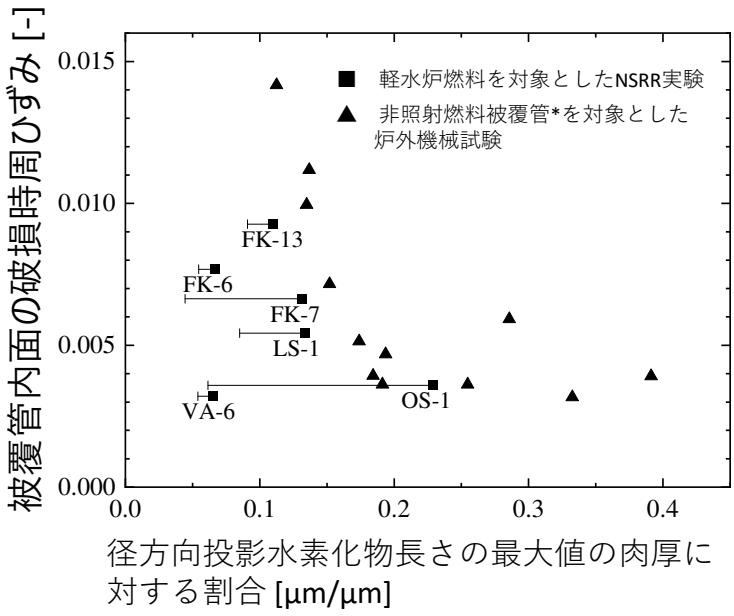


図 4.3.4-2　RIA 模擬試験 OS-1 で生じた破損限界低下のメカニズム整理



(*応力除去処理被覆管に水素を吸収させた後に水素化物の径方向配向処理を施したもの)

画像解析は三原ら[39]の方法で実施した。破損部近傍及びレファレンス燃料等を対象に画像解析を実施し、最大値と最小値を示した。

図 4.3.4-3　径方向へ投影した水素化物長さの最大値の肉厚に対する割合と被覆管内面の破損時周ひずみの関係

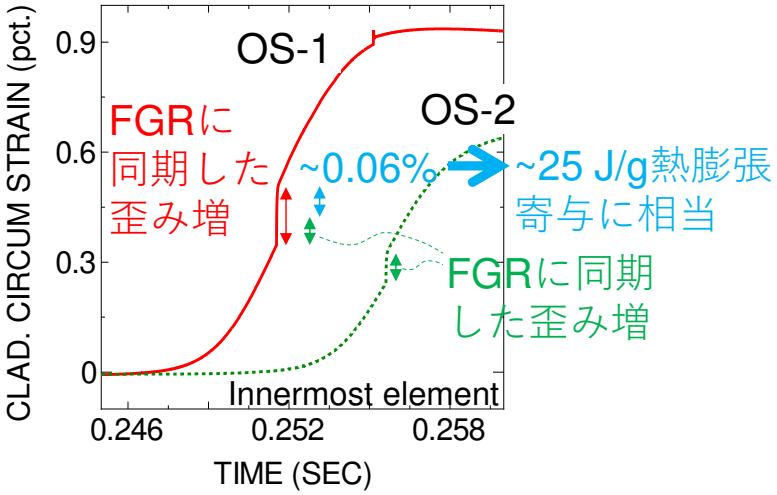


図 4.3.4-4　RIA 模擬試験 OS-1、OS-2 下の被覆管周歪み履歴（RANNS 解析結果）

4.3.4.2　高燃焼度 MOX 燃料で観察された破損形態変化の原因分析及び発生条件の調査

M5 被覆高燃焼度 MOX 燃料（燃焼度 64GWd/t）を供した RIA 模擬試験（CN-1）で、従来支配的な破損モードとして知られていた PCMI 破損と異なる、高温破裂に類似した貫通欠陥形成が確認された[46]（図 4.3.4-5)）。高燃焼度 PWR/BWR 燃料では従前観察例の無い破損形態であり、今後の安全評価においては PCMI 破損と区別し適切に考慮されるべき要素であることから、破損メカニズムや支配パラメータの解明に向け、本研究でデータ・知見を蓄積した。

CN-1 実験燃料の破損開口位置で被覆管変形量は PCMI 負荷から推定される水準を有意に超え、開口部付近では燃料ペレットが広範囲で粒界分離するなど、過渡的な FGR に伴う燃料棒内圧上昇の変形挙動への寄与が示唆された。同開口位置での被覆管硬度は、同じく高温過渡を経験した Zry-4 被覆燃料[47]や試験前の M5 被覆管に比べ低く、CN-1 実験中の被覆管強度低下を裏付けている。また CN-1 実験と同じセグメント燃料について、実炉条件により近い高温高圧条件（約 5 MPa 燃料棒内予加圧、冷却材圧力 6.8 MPa）下で実施した RIA 模擬試験（CN-2）では、同実験のより高い被覆管延性、またより小さな PCMI 負荷の下でも燃料はやはり破損し[48]、破損後の被覆管外観は明瞭に高温破裂の特徴を示した。

以上の知見を踏まえれば、CN-1 実験では、RIA の初期に起こる PCMI の後、沸騰遷移によって被覆管温度が上昇し、強度が低下した被覆管が過渡 FGR に伴い上昇した内圧に駆動され大変形、破裂に至ったものと理解される。現行の規制基準として用いられている破損しきい値（燃料棒の許容設計限界）[49,50]に照らすと、従来脆性破損が支配的とされていた領域で高温破裂が生じたことと（図 4.3.4-6）なり、別途高温破裂の発生予測を可能とする指標があれば、同破損しきい値を補完する上で有用である。そこで、燃料挙動解析コード RANNS[34]を用いて CN-1 及び過去の NSRR 実験[51]下の燃料挙動を詳細に解析した結果、塑性不安定条件への近接度を表すパラメータ（局所的な変形や延性破損の発生を判断する際に用いられる）を用いて、破裂発生ケース（CN-1）を非破損ケースと弁別出来ることを見出した（図 4.3.4-7)。

近い将来導入が見込まれる改良合金被覆管や事故耐性燃料被覆管では、従来材に比べ被覆管の通常運転時水側腐食に伴う水素吸収は大幅に低減され、RIA 時の主な破損モードは PCMI 破損から CN-1 燃料で見られたような高温破裂に変遷していくと考えられ、本研究で有効性が確認された高温破裂発生予測指標は、MOX 燃料を含む新型燃料の導入・燃料利用の高度化に備えその評価の信頼性向上が望まれる。現状のモデル・解析（図 4.3.4-7）では、高燃焼度 MOX 燃料からの過渡 FGR や放出後の燃料棒内ガス移行等重要な因子を推定に依っており、これらの推定を裏付けるデータ・知見の拡充が重要である。

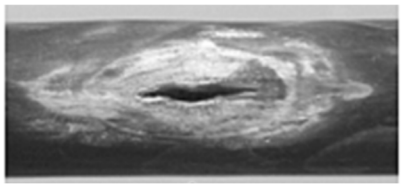


図 4.3.4-5　CN-1 実験後破損開口部外観

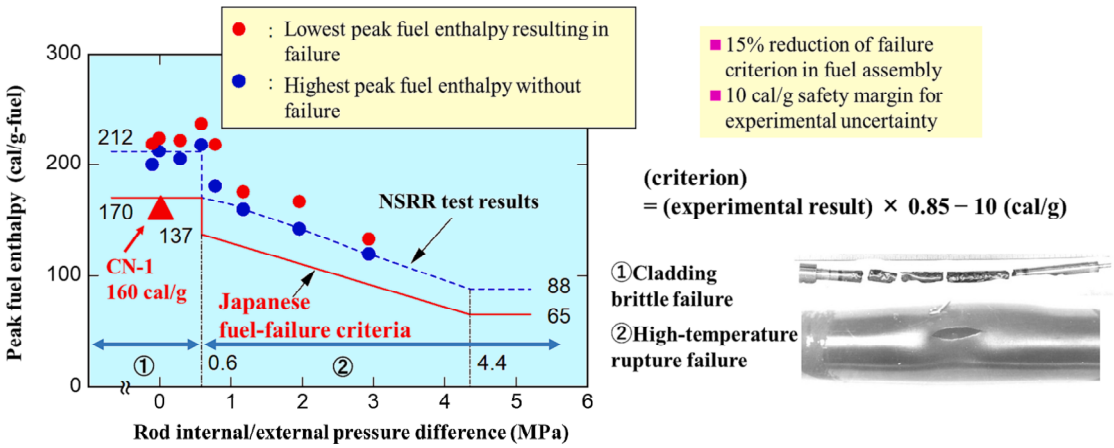


図 4.3.4-6　　CN-1 実験データと現行の規制基準として用いられている燃料破損しきい値（燃料許容設計限界）との比較

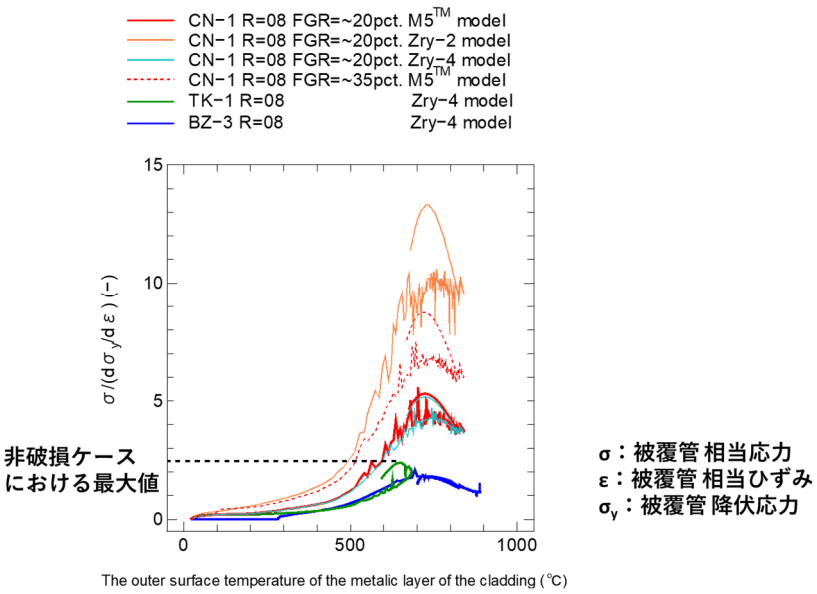


図 4.3.4-7　被覆管外周域の塑性不安定条件への近接度を表すパラメータによる CN-1（破裂ケース）、TK-1/BZ-3（非破損ケース）解析結果の整理

4.3.4.3　RIA 模擬試験データベースの信頼性向上を目的としたデータ拡充

現行規制基準の内､PCMI 破損しきい値の根拠となる RIA 模擬試験データベースにおいて、高燃焼度燃料を対象とした NSRR 実験はその核を成している。主たるデータ項目である燃料エンタルピは、NSRR 実験毎に評価される中性子照射中の試験燃料棒内発熱量に基づいており、この発熱量は中性子輸送計算解析コードを用いて算定されている。従来、同評価手法の実験データによる検証は、主に濃縮度 5%以上の UO_2 燃料を用いた RIA 模擬試験の条件範囲に限られ[34,35,52]、多くの高燃焼度燃料ケースに相当する濃縮度/核分裂性物質割合 2%未満の領域については検証データが無かった。

本研究では､データベース及びこれに依って立つ PCMI 破損しきい値の信頼性向上のため、濃縮度 2%未満のデータを拡充した。低濃縮度未照射燃料（濃縮度 1.51%及び 0.72%UO_2）を対象に NSRR で RIA 模擬試験（224-2 実験）を実施し、中性子照射中の試験燃料棒内発熱量を評価したところ、新たに取得されたデータ点は従来評価されていた不確かさの範囲内に収まっており、低濃縮度条件にける評価手法の信頼性を確認することができた（図 4.3.4-8、図 4.3.4-9)。

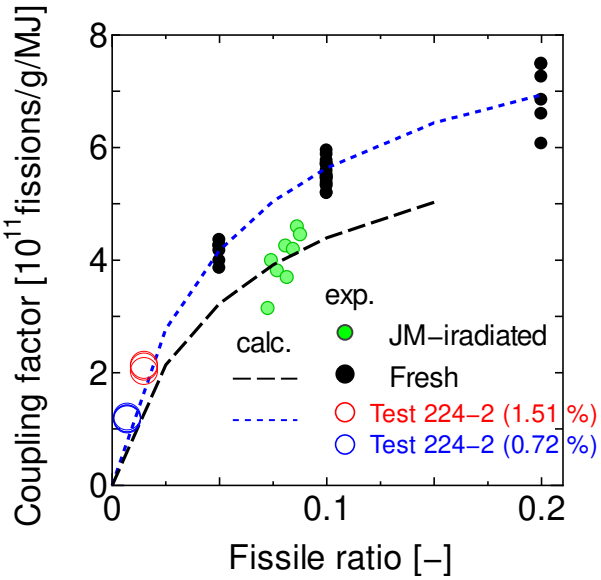


図 4.3.4-8　照射後試験による実験値及び解析コードによる評価値の比較（1）

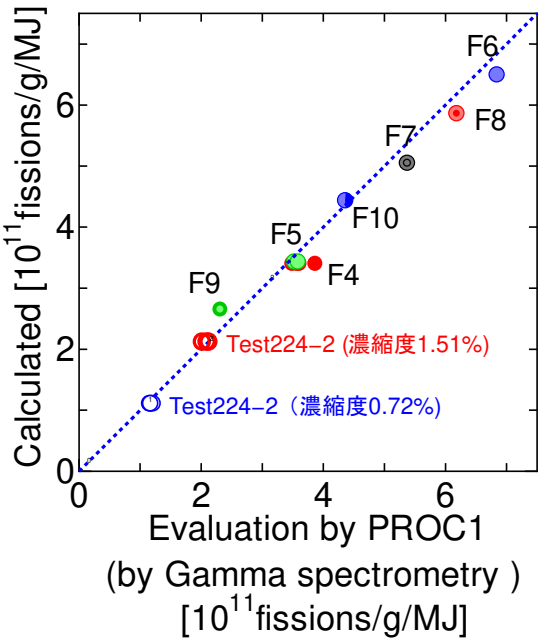


図 4.3.4-9　照射後試験による実験値及び解析コードによる評価値の比較（2）

4.3.4.4 燃料放出割合の増大を伴う PCMI 破損形態の変化

高燃焼度燃料の RIA 模擬試験では従来、PCMI 破損の特徴である軸方向亀裂に加え、亀裂が周方向に回り込む破損形態が観察されていた（図 4.3.4-10a、Pattern (2)）。これらのケースでは総じて燃料ペレットの棒外放出率が大きく、適切な炉心冷却性評価の観点から、その発生条件やメカニズムについて研究を進めた。水素吸収させた被覆管試料を供した二軸応力負荷試験により高燃焼度燃料の PCMI 破損を模擬した一連の分離効果試験の結果、①破損時の周方向ひずみが 2%未満、②軸対周ひずみ比が 0.75 以上の 2 点を同時に満足する条件で、周方向への回り込みを伴う破損形態することが明らかとなった（図 4.3.4-10b、Pattern (2)）。この判定条件を過去の RIA 模擬試験に適用した所、破損形態の変化を捉えることに概ね成功しており（図 4.3.4-10c、Pattern (2)）、安全評価上、PCMI 破損時に高い燃料ペレット放出割合を想定すべき条件を判断するためのモデルとして活用可能である。

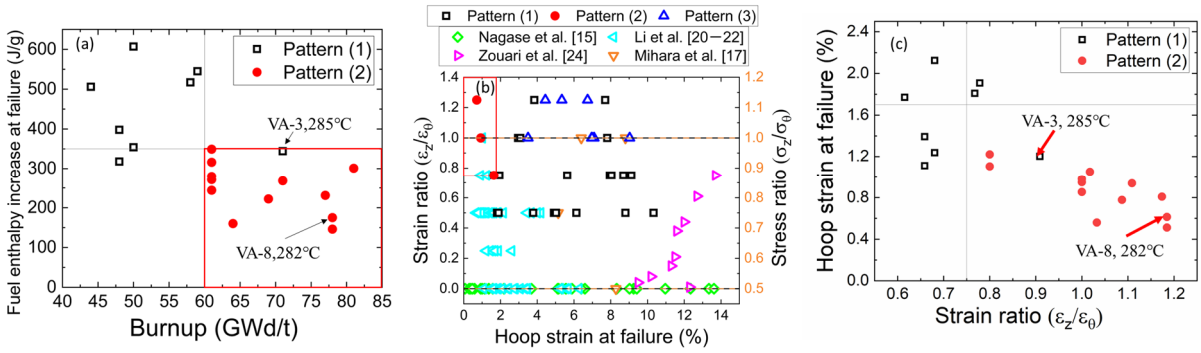


図 4.3.4-10　(a)過去の RIA 模擬 NSRR 試験における破損形態・燃焼度・破損時エンタルピ増分の関係、(b)二軸応力負荷試験における亀裂回り込み発生閾値と先行研究の比較、(c)RIA 模擬試験結果と亀裂回り込み発生閾値の比較