## 4.5 LOCA 試験

スペイン・バンデロス炉において照射された PWR・ウラン燃料から採取した低スズ ZIRLO 被覆管に対し急冷破断試験を実施するとともに、仏国・グラブリン炉において照射 され、平成 25 年度に急冷破断試験に供した M5 被覆管に関して破壊試験等を実施し、そ の結果を評価した。また、スペイン・バンデロス炉において照射された PWR・ウラン燃料 から採取した M-MDA 被覆管を対象とした酸化速度評価試験を平成 24 年度に引き続き実 施するとともに、平成 24 年度及び 25 年度に酸化速度評価試験に供した M-MDA 被覆管及 び M5 被覆管に関して酸化速度評価試験後の分析を実施した。

#### 4.5.1 急冷破断試験

(1) 急冷破断試験用試験燃料棒の作製

### (a) 試験燃料棒の採取

本事業においては、改良型燃料の導入時期等を考慮して PWR 用改良燃料被覆管を対象 とした冷却材喪失事故(LOCA)模擬試験を先行させて実施する計画としている。これま でに PWR 用改良燃料被覆管である M-MDA 被覆管及び M5 被覆管に対し急冷破断試験を 実施してきており、本年度も PWR 用改良燃料被覆管の一種である低スズ ZIRLO 被覆管 を対象として急冷破断試験を実施した。

本年度の試験に供した燃料被覆管の材料である低スズ ZIRLO は、耐食性が良好で水素 吸収率も低いと考えられている Zr に Nb を 1.0 wt%添加した Zr-Nb 二元合金をベースと して、機械的強度の向上のため Sn を 1.0 wt%及び Fe を 0.1 wt%添加した Sn-Fe-Nb 系ジ ルコニウム基合金である ZIRLO の Sn 含有量を 0.6~0.8 wt%程度まで低下させ、更なる耐 食性の向上を図ったものである。

急冷破断試験に用いた燃料は長さ約 190 mm であり、スペイン・バンデロス炉で照射さ れた PWR ウラン燃料セグメント AP2-8 から採取した(以後、LZIR4 及び LZIR5 という)。 AP2-8 セグメントにおける試験燃料棒採取位置を図 4.5-1 に示す。試験燃料棒の採取位置 における燃焼度は 80 GWd/t と評価されている。通常運転中に形成された腐食酸化膜厚さ については、試験燃料棒の採取位置に近接する位置から採取した試料に対する断面金相観 察から 17.9 μm と評価した。また、同じく通常運転中に燃料被覆管に吸収された水素量は LZIR4 及び LZIR5 に対してそれぞれ 144 及び 123 ppm であった。その結果を表 4.5-1 に 示す。

平成 25 年度に急冷破断試験に供した燃料被覆管の材料である M5 は、耐食性を高める とともに水素吸収率を低減させ、また機械的強度を向上させる目的で Zr に Nb を 1.0 wt% 程度、Fe を 0.04 wt%程度添加した Zr-Nb 系合金である。急冷破断試験に用いた試験燃料 棒は長さ約 190 mm であり、仏国・グラブリン炉で照射された PWR ウラン燃料セグメン ト AP2-10 から採取した(以後、LMFI4 という)。LMFI4 の情報を表 4.5-1 に示す。 (b) 燃料ペレットの除去

LOCA 時の燃料の安全性に関して最も重要な点は酸化による被覆管の脆化と急冷時の 破断条件の評価にあること、及び実験中に燃料ペレットから放出される放射性物質による ホットセルの汚染及び環境への放出を抑える必要があることから、上記の試験燃料棒から 燃料ペレットをできるだけ除去して本試験に供した。燃料ペレットの除去作業では、直径 5.0~6.0 mmのコンクリートドリルを用いた予備せん孔を行い、その後直径 7.0 mmのド リルを用いた最終仕上げを行った。ここで、ドリル径は被覆管内面に損傷を与えることが ないように被覆管内径より十分小さなものとしたため、被覆管内面には上の除去作業で取 り除くことのできないペレット層が薄く残留していた。

(c) 試験燃料棒への加工

実機の LOCA 時の熱的な条件(主に燃料棒の冷却挙動に影響を及ぼすと考えられる熱容 量)を実際の燃料棒に近づけるとともに燃料棒内の自由体積を調整するため、燃料ペレッ ト除去後の被覆管にはアルミナペレットを装荷した。その両端にジルカロイ製の端栓を溶 接し、試験燃料棒とした。

また、実機のLOCA時には、原子炉圧力の低下と温度上昇に伴う被覆管強度の低下により燃料棒が破裂し、被覆管は外面だけでなく内面も酸化する可能性がある。これを模擬するために、本試験では試験燃料棒に5MPaのアルゴンガスを封入し、加熱による内圧上昇と被覆管強度低下により、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 4.5-2)。

## (d) 熱電対の溶接

試験中の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被覆管表面に形成された腐食酸化膜をリューターにより局所的に除去した。

## (2) 急冷破断試験の実施

「軽水型動力炉の非常用炉心冷却系の性能評価指針」(ECCS 性能評価指針)において 規定される被覆管最高温度が 1473 K であること、従来研究<sup>(1,2)</sup>により 1273 K 以上で酸化 後の被覆管脆化がより顕著であることと 1273~1473 K の温度範囲で被覆管脆化に温度依 存性が見られないことが明らかになっていることから、急冷破断試験における等温酸化温 度は 1473 K を超えないがそれに近い温度、すなわち 1423~1473 K を目標とした。また、 ECCS 性能評価指針における酸化量の基準値が 15%ECR であることから、LZIR4 及び LZIR5 に対して 15%ECR を超える酸化量を与え安全性を確認することとした。ここで、酸化量(ECR)の計算には、ECCS 性能評価指針において評価式として示されている Baker-Just 式<sup>(3)</sup>を用いている。また、酸化量は通常運転中に形成された酸化膜を除く金属 層厚さに対し評価した。

集合体には燃料棒に加えスペーサ、支持格子や制御棒案内管があるため、これらによっ て急冷時に起こる燃料棒の収縮が拘束され、燃料棒に軸方向の荷重が負荷される可能性が ある。このような急冷時の燃料棒に負荷される拘束荷重は事故シナリオや集合体設計等に 依存するため、これを定量的に評価することは非常に困難である。PWR 燃料棒について はいくつかの評価例があり<sup>(4,5)</sup>、最大 490 N という拘束荷重が報告されている。そこで、 本試験では、冷却開始時に試験燃料棒を固定し、被覆管収縮が拘束されることに伴い引張 荷重を発生させ、集合体内で発生する拘束を模擬した。本試験での拘束荷重については、 従来の知見を保守的に考慮して約 540 N が上限となるよう設定した。なお、試験燃料棒の 昇温及び等温酸化中は試験燃料棒上端を引張試験機のクロスヘッド(昇降機構)により保 持し被覆管にかかる負荷がゼロになるよう、すなわち温度上昇と酸化に伴う被覆管の軸方 向への伸長が妨げられないように調整した。

(a) LZIR4 に対する試験

LZIR4に対する試験で得られた温度と荷重の履歴を図 4.5-3 に示す。

本試験では、まず燃料棒を水蒸気流中に置き、温度制御用熱電対として No. 2 を使用し、 3 K/s で加熱した。昇温中、熱電対 No. 2 の指示値が 987 K に達した時点(図 4.5-3 中の 矢印)で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た。

急冷時に被覆管が破断する場合、破裂開口部で破断する可能性が高いことから、破裂開 口位置の温度を代表的な試験温度としこれに基づき酸化量評価及び急冷時破断条件の評価 を行った。具体的には、破裂直後に一旦赤外線炉を停止し破裂開口の形成と位置を確認し た後、開口部位置での温度並びに破裂開口近傍で目標とした酸化量(20%ECR)を得るた めに必要な等温酸化時間を評価した。破裂開口の形成と位置を確認した後再び赤外線炉を 起動して 10 K/s で加熱し、燃料棒高さ中間位置の熱電対 No. 2 の指示値が約 1473 K に達 した後、目標酸化量が得られるまで温度を保持した。等温酸化時間は 119 s であった。こ の等温酸化中の熱電対の指示値の平均は、No. 1、2、3、4 熱電対でそれぞれ、1458、1474、 1421、1441 K であり、燃料棒の高さ中間付近で最も温度が高かった。

本試験では、等温酸化終了後に徐冷期間を設けてから急冷した。これは、酸化温度から 直接急冷する場合と当該温度区間を徐冷した場合とでは被覆管のミクロ組織が異なり、徐 冷を経た被覆管の方が脆化しやすいためである<sup>(6)</sup>。なお、徐冷中の冷却速度は等温酸化温 度から 1173 K までは約 12 K/s、1173 から 973 K までは約 4 K/s である。また、急冷開始 は熱電対 No. 2 の指示値が約 973 K に達した時点であり、急冷水の水面上昇速度は約 30 mm/s であった。 急冷開始とともに被覆管にかかる軸方向荷重は増大し、最終的に設定値に近い 529 N に 達した。急冷完了後、数分間拘束を維持した。

(b) LZIR5 に対する試験

LZIR5 に対する試験で得られた温度と荷重の履歴を図 4.5-4 に示す。

本試験では、まず燃料棒を水蒸気流中に置き、温度制御用熱電対として No. 2 を使用し、 3 K/s で加熱した。昇温中、熱電対 No. 2 の指示値が 987 K に達した時点(図 4.5-4 中の 矢印)で、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た。

急冷時に被覆管が破断する場合、破裂開口部で破断する可能性が高いことから、破裂開 口位置の温度を代表的な試験温度としこれに基づき酸化量評価及び急冷時破断条件の評価 を行った。具体的には、破裂直後に一旦赤外線炉を停止し破裂開口の形成と位置を確認し た後、開口部位置での温度並びに破裂開口近傍で目標とした酸化量(20%ECR)を得るた めに必要な等温酸化時間を評価した。破裂開口の形成と位置を確認した後再び赤外線炉を 起動して 10 K/s で加熱し、燃料棒高さ中間位置の熱電対 No. 2 の指示値が約 1473 K に達 した後、目標酸化量が得られるまで温度を保持した。等温酸化時間は 111 s であった。こ の等温酸化中の熱電対の指示値の平均は、No. 1、2、3、4 熱電対でそれぞれ、1457、1473、 1424、1448 K であり、燃料棒の高さ中間付近で最も温度が高かった。

本試験では、等温酸化終了後に徐冷期間を設けてから急冷した。これは、酸化温度から 直接急冷する場合と当該温度区間を徐冷した場合とでは被覆管のミクロ組織が異なり、徐 冷を経た被覆管の方が脆化しやすいためである<sup>(6)</sup>。なお、徐冷中の冷却速度は、酸化温度 から 1173 K までは約 15 K/s、1173 から 973 K までは約 5 K/s である。また、急冷開始は 熱電対 No. 2 の指示値が約 973 K に達した時点であり、急冷水の水面上昇速度は約 30 mm/s であった。

急冷開始とともに被覆管にかかる軸方向荷重は増大し、最終的に設定値に近い 526 N に 達した。急冷完了後、数分間拘束を維持した。

(3) 急冷破断試験後の分析・評価

(a) LZIR4 に対する分析・評価

LZIR4の試験後の外観写真を図 4.5.5 に示す。この図から分かるように、熱電対 No. 2 の高さ、 熱電対 No. 1~3 を溶接した方向から約 180°回転した方向に破裂開口が生じてい る。破裂開口は熱電対溶接位置から離れており、膨れ及び破裂に関し熱電対溶接の影響は ないと考えられる。破裂開口の長さは約 17 mm、幅は約 2 mm であった。また、破裂開 口の正射影の面積は約 24 mm<sup>2</sup>であった。被覆管は完全に冷却した後も破断することはな かった。熱電対 No. 1、2 及び 3 の位置における温度から二次関数補間を用いて推定され る破裂開口部での平均酸化温度は 1474 K である。

外観観察結果より試験後試料の外径を算出し、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39.5%であった。膨れ に伴う被覆管の肉厚減少を考慮し、かつ被覆管の内外面両面酸化を仮定した場合、破裂開 口位置における被覆管表面の平均温度と等温酸化時間から Baker-Just 式を用いて計算さ れる酸化量は、通常運転中に形成された腐食酸化膜を除く金属肉厚に対して20.9%ECR で ある。なお、初期(試験前)金属肉厚に対する酸化量は14.6%ECR となる。なお、酸化量 を確定させるためには、試験燃料棒を半径方向に切断して膨れ率を測定する必要がある。

### (b) LZIR5 に対する分析・評価

LZIR5の試験後の外観写真を図 4.5-6 に示す。この図から分かるように、熱電対 No. 2 の上約4mmの高さ、 熱電対 No. 1~3 を溶接した方向から約 180°回転した方向に破裂開 口が生じている。破裂開口は熱電対溶接位置から離れており、膨れ及び破裂に関し熱電対 溶接の影響はないと考えられる。破裂開口の長さは約 15mm、幅は約4mmであった。 また、破裂開口の正射影の面積は約 37mm<sup>2</sup>であった。被覆管は完全に冷却した後も破断 することはなかった。熱電対 No. 1、2及び 3の位置における温度から二次関数補間を用 いて推定される破裂開口部での平均酸化温度は 1475 K である。

外観観察結果より試験後試料の外径を算出し、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49.0%であった。膨れ に伴う被覆管の肉厚減少を考慮し、かつ被覆管の内外面両面酸化を仮定した場合、破裂開 口位置における被覆管表面の平均温度と等温酸化時間から Baker-Just 式を用いて計算さ れる酸化量は、通常運転中に形成された腐食酸化膜を除く金属肉厚に対して21.8%ECR で ある。なお、初期(試験前)金属肉厚に対する酸化量は14.1%ECR となる。なお、酸化量 を確定させるためには、試験燃料棒を半径方向に切断して膨れ率を測定する必要がある。

(c) LMFI4 に対する分析・評価

平成 25 年度に急冷破断試験を実施した LMFI4(グラブリン炉照射 M5 被覆管)に対して、断面ミクロ組織観察及び水素分析を行った。図 4.5-7 に LMFI4 の試験後の外観写真 と金相試料の採取位置を示す。

LMFI4 は急冷破断試験中に破断しなかった。LMFI4 では熱電対 No. 2 とほぼ同じ高さ (被覆管中間高さ)、熱電対 No. 1~3 を溶接した方向から約 270°回転した方向に破裂開 口が生じている。破裂開口は熱電対溶接位置から離れており、膨れ及び破裂に関し熱電対 溶接の影響はないと考えられる。試験後の外観写真より計測された破裂開口の長さは約 14 mm、幅は約 2 mm であった。また、破裂開口の正射影の面積は約 25 mm<sup>2</sup> であった。推 定される破裂開口部の等温酸化温度及び酸化時間はそれぞれ 1473 K、384 s であった<sup>(7)</sup>。

破裂開口中央位置の断面マクロ写真を図 4.5-8 に示す。マクロ写真に対する画像解析か ら求められる膨れ率は 23.0%であった。膨れによる被覆管の肉厚減少を考慮すると、通常 運転中に形成された腐食酸化膜を除く金属肉厚に対し、破裂開口部での平均温度と等温酸 化時間から Baker-Just 式を用いて計算される酸化量は 29.6% ECR である。なお、初期(試験前)金属肉厚に対する酸化量は 23.5% ECR となる。

図 4.5-8 中の位置 A~D における拡大写真(腐食(エッチング)前及び腐食後)を図 4.5-9 に示す。被覆管内外面とも全周にわたって酸化膜が形成されており、酸化膜の形成につい て周方向に大きな変化はない。円周方向 5 か所で測定した被覆管外面の酸化膜厚さの平均 値は(59±5)µm、被覆管内面の酸化膜厚さの平均値は(59±4)µm であり、被覆管両面 がほぼ同等に酸化されたと考えられる。また、腐食後の写真をみると酸素安定化α相と prior-β相との界面の凹凸が大きいことが確認される。この原因については M5 被覆管に添 加されている Nb の影響が考えられるが、現時点では明らかでない。

図 4.5-10 に急冷破断試験中に吸収された水素量(試験後濃度と初期濃度との差)の軸方 向分布を示す。同図には、比較のため平成 18、19 及び 23 年度に実施した照射材の急冷破 断試験結果<sup>(8-10)</sup>を合わせて示す。LMFI4 の初期水素濃度には、本試験に供した燃料棒の両 端位置で測定した水素吸収量の平均値((63±4) ppm)を採用した。LMFI4 では、破裂開 口部中心から上側 4、25、46 mm の位置、及び下側 16 及び 35 mm の位置において試験 中に吸収された水素濃度は、それぞれ 43、1900、190、1401 及び 351 ppm であった。一 般的には、破裂開口近傍における水素吸収量は少なく、破裂開口部中心から 20~50 mm 程 度離れた位置で水素吸収量のピークが生じることが多い。LMFI4 においてもこれと同様の 傾向がみられ、破裂開口部中心から上側に 25 mm 離れた位置で水素吸収量が最も多かっ た。また、LMFI4 の水素吸収量の最大値は 1900 ppm と過去の本事業における試験結果 と比較して高い値となったが、これは LMFI4 の等温酸化時間が 384 s と長かったことが 原因と考えらえる。酸化時間が長いほど、ジルコニウム - 水反応により生成した水素の分 圧が試験燃料棒内面において高まり、結果として高い水素吸収量になった可能性が考えら れる。

(4) 従来データとの比較

図 4.5-11 は、平成 18、19 及び 23~25 年度に実施した高燃焼度燃料被覆管の急冷破断試 験で得られた結果<sup>(7-11)</sup>と本試験の結果を比較したものである。同図において、縦軸が LOCA 模擬条件での酸化量(通常運転中に形成した腐食酸化膜を除く金属層に対し、膨れによる 肉厚減少を考慮)、横軸が等温酸化温度である。黒の白抜き丸が本試験の結果、灰色の中実 丸及び白抜き丸が平成 18、19、23~25 年度に実施した試験の結果である。

この図から分かるように、本試験結果は平成 18、19、23~25 年度に実施した急冷破断 試験の結果と同等であった。また、規制基準値(15%ECR)を超える約 20%ECR という 酸化量を与えても、高燃焼度の低スズ ZIRLO 被覆管は、約 530 N の拘束力条件下におい て破断することはなかった。すなわち、低スズ ZIRLO 燃料被覆管については、現行燃料 被覆管に比べて破断限界が著しく低下することはないと考えられる。 (1) 酸化速度評価試験に用いる試験片の作製

本事業において、平成24年度に高燃焼度 M-MDA 被覆管を対象として1473 Kの酸化 温度における酸化速度評価試験を実施した<sup>(11)</sup>。本年度は、同 M-MDA 被覆管を対象に1473 Kよりも低い酸化温度条件にて酸化速度評価試験を実施した。

本年度の酸化速度評価試験に供した燃料被覆管の材料である M-MDA は、PWR ステッ プ2燃料被覆管として使用実績のある MDA をベースに、MDA と同等の機械特性を維持 しつつ耐食性を高めるとともに、水素吸収率を低減させる目的で Zr に Nb 及び Sn をそれ ぞれ 0.5 wt%程度、Fe 及び Cr をそれぞれ 0.3~0.4 wt%程度添加した Zr-Sn-Fe-Cr-Nb 系 合金である。試験に用いる試験片の切出し位置を、図 4.5-12 に示す。M-MDA 被覆管材料 については、スペイン・バンデロス炉で照射した AP2-3 セグメント (燃焼度 81 GWd/t) から 8 個 (OMMDA6~13)の試験片を採取した。通常運転中に形成された腐食酸化膜厚さ については、試験片の採取位置に近接する位置から採取した試料に対する断面金相観察か ら 27.6 µm と評価した。また、通常運転中に被覆管に吸収された水素濃度については、試験 方の採取位置に近接する位置から採取した試料に対する水素分析の結果、292 ppm であ った。その結果を表 4.5-2 に示す。

酸化速度評価試験に供する試験片は、被覆管内表面に金属部が現れるまで燃料ペレット を除去した後、長さ約8.5mmに切断して採取した。得られた試験片をアセトンで洗浄し 充分乾燥させた後、試験前に各試験片の内外径、長さ及び重量を測定した。

#### (2) 酸化速度評価試験の実施

図 4.5-13 に試験装置の概略を示す。酸化試験では、電気炉中央部に位置する反応管を水 蒸気雰囲気下で予め設定した温度に保持しておき、試料ボートに載せた試験片を挿入して 加熱する。目標温度まで加熱し、設定した酸化時間保持した後、速やかに試験片を取り出 して冷却する。試料ボートに載せたまま試験後の重量を測定し、重量増加量を評価する。

なお、この試験中には、試料ボート直下のホルダーに取り付けた R タイプ熱電対で雰囲 気の温度を測定しており、試験片の温度を直接測定していない。このため、事前に熱電対 を溶接した模擬試験片を用いて同条件で加熱実験を行い、模擬試験片表面とホルダーの間 の温度差の測定結果に基づいて、実際の試験片の温度を評価している。また、この試験に おいては、試験片の温度が目標温度になるよう、電気炉の出力を調整している。

本年度及び平成 24 年度に酸化速度評価試験を実施した M-MDA 試料(OMMDA1~13) の試験条件を表 4.5-3 に示す。今年度実施した試験の酸化温度は、1173 及び 1323 K であ る。図 4.5-14 に、酸化温度 1323 K、酸化時間 300 及び 900 s の条件で実施した試験の温 度履歴を示す。図から分かるように、加熱時の昇温速度や等温酸化中の試料温度は酸化時 間が変化してもほぼ同じである。目標温度までの加熱時間は、1173 及び 1323 K の試験に おいてそれぞれ約 174 及び 146 s であった。等温酸化中の試料平均温度の評価値は、各目

4.5-7

標温度に対して±10 K 以内であった。

図 4.5-15 に、試験前の試験片の表面積で除して単位面積当たりに換算した試験前後の試料の重量増加量の酸化時間依存性を示す。ここで、試験片の表面積は端面の画像解析結果及びノギスを用いた寸法測定結果に基づき評価した。同図には、比較のために、平成 21 年度に取得された未照射の M-MDA 被覆管に対する酸化試験の結果<sup>(12)</sup>を合わせて示す。図から分かるように、酸化時間が短い場合は、照射材の重量増加は未照射材よりも小さく、酸化時間が長い場合、特に酸化温度が 1173 K かつ酸化時間が 4000 s のケースにおいて、照射材と未照射材の重量増加はほぼ同等であった。照射済燃料被覆管において、比較的低い温度かつ短時間側で酸化速度が低下する傾向は、過去の本事業における試験結果<sup>(8,9)</sup>や従来知見<sup>(13, 14)</sup>と一致している。この傾向は、通常運転中に形成された腐食酸化膜が有する、高温水蒸気中での酸化抑制効果によるものと考えられる。

ジルコニウム基合金被覆管では、1323 K 程度の温度において長時間水蒸気中で酸化さ せた場合、急激に酸化速度が増加するブレークアウェイ酸化が起こることがある。過去の 報告例によると、Zircaloy-4 (Zry-4) 被覆管では1時間を超える酸化時間で起こるといわ れている<sup>(15)</sup>。ブレークアウェイ酸化が起こると酸化膜の成長が著しいだけでなく、多量の 水素吸収が起こるため、この現象は被覆管の脆化の観点から重要である。図 4.5-15 から明 らかなように、OMMDA については 1173 K の酸化温度で 4000 s まで酸化させても酸化 速度の急激な増加はみられず、ブレークアウェイ酸化は起こらなかったと考えられる。

図 4.5-16 に酸化速度定数の温度依存性を示す。同図には、比較のため、平成 21 年度に 実施した未照射の M-MDA 被覆管及び Zry-4 被覆管に対する酸化試験結果<sup>(12)</sup>を合わせて示 す。図 4.5-16 に示す酸化速度定数とは、酸化の進行が(1)式に示す二乗則に従うものと仮 定したときの定数 (*K<sub>w</sub>*) である。

$$\Delta W^2 = K_w t \tag{1}$$

ここで、*AW*は単位面積当たりの重量増加、*t*は酸化時間を表す。

酸化温度が 1173 Kのケースの単位面積当たりの重量増加は、酸化時間が 900 s以下で は二乗則に従うと見なせるが、これよりも長い酸化時間のデータを含めると、単位面積当 たりの重量増加は三乗則に近くなる。このため、図 4.5-16 に示すデータのうち酸化温度が 1173 Kのケースについては、酸化時間が 900 s 以下のデータについて求めたものを示し ている。同図から、照射材及び未照射材ともに、M-MDA 被覆管は未照射 Zry-4 被覆管に 比べ同等または低い酸化速度を有することが分かる。また、高燃焼度 M-MDA 被覆管では、 未照射材に比べ比較的低い酸化温度領域で酸化速度が低下することが分かる。これらの結 果から、本事業にて酸化試験を行った温度範囲内では、高燃焼度領域においても M-MDA 被覆管の酸化速度が著しく変化することはなく、この材料の安全性評価において Baker-Just 酸化速度式<sup>(3)</sup>を利用することは妥当であると考えられる。

4.5-8

4章

## (3) 酸化速度評価試験後の分析

(a) OMMDA1~4 に対する分析

平成24年度に実施したOMMDA1~4の酸化速度評価試験の試験条件を表4.5-3に示す。 図4.5-17 (1)及び(2)には、酸化速度評価試験後の試験片の断面金相写真(腐食(エッチン グ)前及び腐食後)を示す。これらの金相写真では、試験中に生成した酸化膜(高温酸化 層)及びその下の酸素安定化α相と呼ばれる酸素濃度の高い金属層の成長が被覆管の内外 面の全周にわたって観察され、これらの高温酸化層及び酸素安定化α相の厚さは、被覆管 内外面の全周にわたりほぼ均一であった。また、酸化時間が長くなるにつれ、被覆管外面 において通常運転中に形成された腐食酸化膜(初期酸化膜)にクラックが入った箇所で酸 化が進行することでレンズ状の酸化膜が局所的に形成される様子が観察された。

被覆管外面及び内面に形成された高温酸化層のうち、腐食酸化膜のクラック位置で観察 されたレンズ状の酸化物を除いた平均酸化膜厚さを酸化時間に対してプロットした結果を 図 4.5·18 に示す。比較のため、平成 21 年度に取得された未照射の M-MDA 被覆管に対す る酸化試験結果<sup>(12)</sup>も合わせて示す。この図において、測定された高温酸化層厚さの最大値 及び最小値をエラーバーとして示したが、未照射材では、被覆管内面と外面で高温酸化層 厚さにほとんど違いが見られなかったため、両者の平均値のみをプロットしている。この 図から分かるように、OMMDA の被覆管外面の酸化膜の成長は、未照射の M-MDA 被覆 管とほぼ同等であった。一方、OMMDA の被覆管内面の酸化膜厚さの平均は未照射の酸化 膜厚さの平均よりも 13~25%厚かった。両者の差の原因としては、試験片製作時の燃料ペ レット除去処理の際に被覆管内表面が研摩されたことに伴う表面粗さの変化が考えられる。

図 4.5-19 に酸化試験中に試料の母材及び酸化膜中に吸収された水素量(試験後濃度と初 期濃度との差)の酸化時間依存性を示す。分析には高温抽出法を用いた。酸化時間が長く なるにつれて水素吸収量が増える傾向がみられるが、水素吸収量は最大で 90 ppm であり、 この試験中に顕著な水素吸収は起こらなかったものと考えられる。

## (b) OMFI2-1~4 に対する分析

平成 25 年度に酸化速度評価試験を実施し、本年度に試験後の分析を実施した仏国・グ ラブリン炉照射 M5 試料(OMFI2·1~4)の試験条件を表 4.5・4 に示す。図 4.5・20(1)及び (2)には、酸化速度評価試験後の試験片の断面金相写真(腐食(エッチング)前及び腐食後) を示す。これらの金相写真では、試験中に生成した酸化膜(高温酸化層)及びその下の酸 素安定化α相と呼ばれる酸素濃度の高い金属層の成長が被覆管の内外面の全周にわたって 観察され、これらの高温酸化層及び酸素安定化α相の厚さは、被覆管内外面の全周にわた りほぼ均一であった。また、酸化時間が長くなるにつれ、被覆管外面において通常運転中 に形成された腐食酸化膜(初期酸化膜)にクラックが入った箇所で酸化が進行することで レンズ状の酸化膜が局所的に形成される様子が観察された。 被覆管外面及び内面に形成された高温酸化層のうち、腐食酸化膜のクラック位置で観察 されたレンズ状の酸化物を除いた平均酸化膜厚さを酸化時間に対してプロットした結果を 図 4.5-21 に示す。比較のため、平成 18 年度に取得された未照射の M5 被覆管に対する酸 化試験結果<sup>(®)</sup>も合わせて示す。この図において、測定された高温酸化層厚さの最大値及び 最小値をエラーバーとして示したが、未照射材では、被覆管内面と外面で高温酸化層厚さ にほとんど違いが見られなかったため、両者の平均値のみをプロットしている。この図か ら分かるように、OMFI2 の被覆管外面の酸化膜の成長は未照射材に比べ低く抑えられて いる。一方、OMFI2 の被覆管内面の酸化膜厚さの平均は未照射材の酸化膜厚さの平均よ りも 14~32%厚かった。両者の差の原因としては、OMMDA のケースと同様に、試験片製 作に伴う被覆管内面の表面粗さが影響した可能性がある。

図 4.5-22 に酸化試験中に試料中に吸収された水素量(試験後濃度と初期濃度との差)の 酸化時間依存性を示す。分析には高温抽出法を用いた。水素吸収量は最大で 20 ppm であ り、試験中に顕著な水素吸収は起こらなかったものと考えられる。

4.5.3 LOCA 試験のまとめ

欧州で照射された PWR 高燃焼度改良型燃料(燃焼度 80 GWd/t)から採取した低スズ ZIRLO 被覆管を対象に急冷破断試験を実施し、以下の知見を得た。

- 約 1473 K で約 20% ECR の酸化量を与えた後に冠水により急冷したが、被覆管試料は 破断しなかった。
- 高燃焼度低スズ ZIRLO 被覆管は、規制基準値(15%ECR)を超える約 20%ECR という酸化量を与えても約 530 Nの拘束力条件下において破断することはなく、平成 18、19、23~25 年度に実施した急冷破断試験の結果と同等であったことから、低スズZIRLO 燃料被覆管に関しては、燃焼が進んだ場合においても現行燃料被覆管に比べて破断限界が著しく低下することはないと考えられる。

また、PWR 高燃焼度改良型燃料(燃焼度 81 GWd/t)から採取した M-MDA 被覆管を対象に、約 1173 及び 1323 K における酸化速度評価試験を実施し、以下の知見を得た。

酸化温度1173及び1323 Kにおいて照射材は未照射材に比べ低い酸化速度を有したことから、本事業にて酸化試験を行った温度範囲内では、高燃焼度領域においてもM-MDA被覆管の酸化速度が著しく変化することはなく、この材料の安全性評価においてBaker-Just酸化速度式<sup>(3)</sup>を利用することは妥当であると考えられる。

| 試験燃料棒<br>番号 | 採取セグメント<br>番号 | 試料燃焼度<br>(GWd/t) | 被覆管<br>材料         | 腐食酸化膜<br>厚さ(µm) | 初期水素濃度<br>(ppm) |
|-------------|---------------|------------------|-------------------|-----------------|-----------------|
| LZIR4       | AP2-8         | 80               | ZIRLO<br>(low-Sn) | 17.9            | 144             |
| LZIR5       | AP2-8         | 80               | ZIRLO<br>(low-Sn) | 17.9            | 123             |
| LMFI4       | AP2-10        | 84               | M5                | 10.3            | 63              |

表 4.5-1 急冷破断試験に供した試験燃料棒

| 試験片番号     | 採取セグメント<br>番号 | 試料燃焼度<br>(GWd/t) | 被覆管<br>材料 | 腐食酸化膜<br>厚さ(µm) | 初期水素濃度<br>(ppm) |
|-----------|---------------|------------------|-----------|-----------------|-----------------|
| OMMDA6~13 | AP2-3         | 01               | M-MDA     | 27.6            | 292             |
| OMMDA1~4  | AP2-2         | 81               | (SR)      | 27.0            | 253             |
| OMFI2-1~5 | AP2-10        | 84               | M5        | 10.3            | 65              |

| 試験片番号      | 試料燃焼度<br>(GWd/t) | 被覆管<br>材料     | 等温酸<br>温度(K) | 化条件<br>時間(s) | 酸化量<br>ECR (%)* |
|------------|------------------|---------------|--------------|--------------|-----------------|
| OMMDA6~9   |                  | M-MDA<br>(SR) | 1323         | 120~1800     | 6~24            |
| OMMDA10~13 | 81               |               | 1173         | 120~4000     | 2~12            |
| OMMDA1~4   |                  |               | 1473         | 120~900      | 15~40           |

表 4.5-3 M-MDA 被覆管試料 (OMMDA1~13) に対する酸化試験条件

\*通常運転中に形成された酸化膜を除く金属肉厚に対し Baker-Just 式を用いて等温酸化温度と時間から算出。

# 表 4.5-4 M5 被覆管試料 (OMFI2-1~4) に対する酸化試験条件

| ⇒4₩24 上 亚 日 | 試料燃焼度 被 | 被覆管 | 等温酸   | 等温酸化条件  |          |
|-------------|---------|-----|-------|---------|----------|
| 武歌 斤        | (GWd/t) | 材料  | 温度(K) | 時間(s)   | ECR (%)* |
| OMFI2-1~4   | 84      | M5  | 1473  | 120~900 | 13~36    |

\*通常運転中に形成された酸化膜を除く金属肉厚に対しBaker-Just 式を用いて等温酸化温度と時間から算出。



図 4.5-1 急冷破断試験に用いる試験燃料棒の採取位置(AP2-8 セグメント)



図 4.5・2 試験装置にセットするために両端にジョイントを接続した試験燃料棒の形状



図 4.5-3 LZIR4 に対する試験での温度及び荷重履歴



図 4.5-4 LZIR5 に対する試験での温度及び荷重履歴



4.5-15





図 4.5-7 LMFI4 の試験後外観写真と金相試験の試料採取位置



図 4.5-8 LMFI4 の試験後断面マクロ写真



図 4.5-9 LMFI4 の試験後断面拡大写真



図 4.5-10 急冷破断試験中に試料に吸収された水素濃度の軸方向分布



(a) 非拘束試験結果を含むプロット



(b) 拘束試験のみのプロット

図 4.5-11 LOCA 模擬条件での酸化量(膨れによる肉厚減少を考慮)と酸化温度に関する 破断マップ



図 4.5-12 酸化速度評価試験に用いる試験片の採取位置(AP2-3 セグメント)



図 4.5-13 酸化速度評価試験装置の概略



図 4.5-14 酸化温度 1323 K で実施した酸化試験中の温度履歴



0 500 1000 1500 2000 時間 (s)

図 4.5-15 等温酸化試験後の重量増加量



図 4.5-16 酸化速度定数の温度依存性









高燃焼度 M-MDA 被覆管の酸化試験後の試料断面(酸化温度:1473 K、腐食後) 図 4.5-17 (2)



図 4.5-18 OMMDA の高温酸化層厚さと酸化時間の関係



図 4.5-19 OMMDA 試料において酸化試験中に吸収された水素量の酸化時間依存性



A3

A2









図 4.5-21 OMFI2 の高温酸化層厚さと酸化時間の関係



図 4.5-22 OMFI2 試料において酸化試験中に吸収された水素量の酸化時間依存性

#### 4.6 改良型燃料被覆管の照射成長試験

#### 4.6.1 改良型燃料被覆管の照射成長試験の概要

民間事業者は、既存の発電用軽水炉のさらなる有効活用と安全性向上等のため、軽水炉燃料被覆管の組成を従来の材料から変更することで外表面腐食量や水素吸収量の抑制を図った改良型燃料被覆管合金の開発を進めてきている。この改良合金を使用した燃料集合体が特に国内のPWRにおいて近い将来導入されることが見込まれるが、改良型燃料の被覆管等の材料として今後導入が見込まれる改良合金は、従来使用されてきた材料と組成や製造条件が異なることから、これらの改良合金のみで構成された燃料集合体またはこれらの改良合金と従来合金が混在して構成されるような燃料集合体においては、その使用中の照射成長に伴う変形挙動が従来合金のみを用いたものと異なる可能性がある。そこで、このような改良合金を使用した燃料集合体に係る事業者からの申請に備え、ノルウェー・エネルギー技術研究所(IFE)が保有する試験炉を用いた照射試験によってこれら改良合金の照射成長に関するデータを取得する。

具体的には、改良合金を含む種々の PWR 燃料被覆管合金を長期間にわたって PWR 冷却 水条件下で照射し、軸方向の伸びを直接比較することによって、高速中性子の照射による影 響だけでなく、合金成分、高燃焼度で顕著となる腐食や水素吸収等が照射成長に及ぼす影響 を把握する。

4.6.2 照射成長試験に供する材料の選定、照射条件及び試験片の配置

(1) 供試材の選定

(a) 材料

高燃焼度化に伴う軽水炉燃料被覆管の外表面腐食量や水素吸収量を抑えるため、種々の改 良型被覆管合金が開発されている。近い将来、国内の発電炉に導入される可能性の高いもの について入手し、試験に供する。

また、PWR と異なる型式の発電炉で使用実績があり上記の改良合金と成分が似ている合 金、ならびに製造条件の異なる被覆管についても入手して試験に供し、上記の改良合金の結 果と比較することにより、合金成分や被覆管の加工及び熱処理条件等が照射成長挙動に及ぼ す影響を把握する。

さらに、高燃焼度領域では燃料被覆管の水素吸収量が増加することから、この水素吸収が 照射成長に及ぼす影響を評価するため、一部の材料について水素を吸収させたものを作製し、 試験に供する。

供試材の合金組成を表 4.6.2-1 にまとめる。

(b) 試験片の数、寸法等

得られる結果の再現性、寸法依存性を確認するため、同じ材料について複数の試験片を準

備し、本照射成長試験に供する。

従来の被覆管材料を用いた燃料棒の場合に燃焼度 60GWd/t 相当の高速中性子照射量にお ける照射成長が 1%程度<sup>(1)</sup>であること、ならびに試験炉施設での長さ測定精度が 1µm 程度で あることから、照射成長量を有効数字 3 桁程度で測定するためには、100mm 程度の試験片 長さが必要と考えられる。また、長さの異なる試験片を同じ条件で照射して、試験片の寸法 が測定結果に及ぼす影響について把握する必要がある。加えて、本照射成長試験を実施する ハルデン炉において、炉心軸方向中性子束分布がほぼフラットとなる領域の幅が 150mm 程 度であることを考慮すると、50 および 100mm の 2 種類の長さを有する試験片を準備し、 試験に用いるのが妥当と考えられる。

また、得られる結果の再現性を確認するため、一部の材料については同一条件で複数の試 験片を照射することにする。

#### (2) 照射条件

PWR 冷却水条件を模擬した条件で本照射成長試験を実施する。冷却材温度は、PWR の 冷却材平均温度及び出口温度に近い 300 及び 320 ℃(573 及び 593K)、冷却材圧力は 155 bar (15.5MPa)を目標とする。さらに、ハルデン炉の冷却材温度 240 ℃(513K)においても照射 し、照射成長挙動と照射中の温度との関係を調べるとともに、被覆管の酸化が照射成長挙動 に及ぼす影響についても把握する。なお、ハルデン炉の冷却材温度における被覆管材料の酸 化はほぼ無視できる。

水化学条件については、ホウ素濃度、リチウム濃度、溶存酸素濃度及び溶存水素濃度に関 して典型的な PWR 冷却水条件を模擬するようにし、照射成長試験中にはこれらの濃度が妥 当な値に保持されていることを定期的にチェックする。

(3) 試験片の配置と製作

以上の検討に基づき、平成22年度に2種類の照射試験リグ(IFA-735及びIFA-736)を設 計製作した<sup>(2)</sup>。これらの照射試験リグには試験片装荷用のホルダが設けられており、ホル ダ1箇所あたり内側と外側の2個の試験片を装荷できるようになっている。

IFA-735 は、炉心軸方向の2領域(上部及び下部)に長さ 50mm および 100mm の試験 片をそれぞれ 14 個ずつ、計 28 個を装荷することができる。IFA-736 は、炉心軸方向の3 領域(上部、中間及び下部)に長さ 50mm の試験片をそれぞれ 14 個ずつ、計 42 個を装 荷することができる。また、PWR を模擬した冷却材温度および圧力下で試験片の照射を 行うため、圧力フラスコ内にこれらの照射試験リグを装荷する。照射試験リグ IFA-735 お よび IFA-736 を装荷する圧力フラスコは、それぞれ FFA-030-S および FFA-031-S である。 IFA-735 を装荷する FFA-030-S の外側には、ハルデン炉冷却材条件で試験片の照射を行う ためのホルダが設けられており、長さ 100mm の試験片を 12 個装荷することができる。 試験片の形状と試験片装荷部の構造の例を図 4.6.2-1 に示す。また、各照射試験リグ内での 試験片の配置を表 4.6.2-2 に示す。

試験片の製作は平成23年度に実施した(3)。

4.6.3 試験片のハルデン炉照射及び冷却材ループ運転状況

(1) ハルデン炉運転中の計装データ等の取得及び管理

照射試験リグ IFA-735 及び IFA-736 の両方について、ハルデン炉運転中の計装データ等 は、各照射サイクルの期間にわたって、5 秒間隔のオンライン測定及び 15 分間隔のオフラ イン測定で取得された。

リグ内を流れる冷却材の水化学条件については、ハルデン炉運転期間中、定期的(1~3 日おき)に測定した。分析元素はホウ素及びリチウムであり、冷却材の pH も測定した。

(2) 照射履歴

平成 26 年度の照射成長試験に関する試験条件の目標値は以下の通りである。照射試験 リグ IFA-735 及び IFA-736 とも、ハルデン炉に設置されている、PWR 条件を模擬できる 冷却材ループ(Loop 6)に接続され照射された。

| 照射試験リグ  | 冷却材入口目標温度            | 冷却材ループ圧力                     | 冷却材流量                        |  |
|---------|----------------------|------------------------------|------------------------------|--|
| IFA-735 | 307±2 (℃)            |                              |                              |  |
|         | $(580\pm2~({ m K}))$ | $162 \pm 2$ (bar)            | $200 \pm 50 (l/min)$         |  |
| IFA-736 | 330±2 (℃)            | $(16.2\pm0.2 \text{ (MPa)})$ | $300 \pm 30$ ( <i>i</i> /mm) |  |
|         | $(603\pm2$ (K))      |                              |                              |  |

照射試験は平成 23 年度に開始され同年度中に第1照射サイクルを、平成 24 年度に第2 及び第3 照射サイクルを、平成 25 年度に第4及び第5 照射サイクルを終了した<sup>(4)</sup>。第6 及び第7照射サイクルは、それぞれ 2014 年7月から 11 月まで、及び 2014 年 12 月から 2015 年1月まで実施された。この間の原子炉運転日数はそれぞれ約 80 及び 45 日であっ た。この期間中、ハルデン炉は定常運転状態にあり、その熱出力は 17.5~18.5 MW であ った。照射開始から第7 照射サイクル終了までの原子炉運転状況及び Loop 6 の熱水力条 件を図 4.6.3-1 及び2 に示す。

なお、第6照射サイクル中には、スクラムによる炉停止が4回、軽微な修理作業のため 短時間の炉停止が2回、新規試験リグの装荷のための炉停止が3回あった。また、第7照 射サイクル中には、本試験以外の試験リグの装荷及び取出のための炉停止が1回、スクラ ムによる炉停止が4回あった。

両照射試験リグ内を流れる冷却材中ホウ素及びリチウム濃度並びに冷却材 pH に関し、 照射期間中の平均値を以下に示す。溶存水素濃度については図 4.6.3-3 に示す。

・ホウ素濃度:約1000 (ppm)

・リチウム濃度:約4.6 (ppm)

・pH:約7.3

(3) 計装の状態

照射試験リグIFA-735及びIFA-736に係る計装は、第7照射サイクル終了までの期間中、 全て健全に動作しており、照射初期に不安定な挙動を示している中性子検出器を除いて特 に異常な様子は認められなかった。現時点では、周囲の照射孔に装荷された他の照射試験 リグの中性子検出器出力を利用することでIFA-735及びIFA-736の中性子束の評価を行っ ている。

IFA-735 及び IFA-736 に設置された中性子検出器は熱中性子束測定用のバナジウム型であるため、本照射成長試験で重要なパラメータである高速中性子束の直接測定には適していない。高速中性子束については、バナジウム中性子検出器とこれらのリグ内に装荷されたフルエンスモニタ(コバルトーアルミニウム、ニッケル、鉄のワイヤの放射化分析を利用)から別途評価する予定である。

ハルデン炉の典型的な炉心軸方向中性子束分布に基づき、試験片装荷領域における中性 子束分布を評価した。その結果を図 4.6.3・4 に示す。現時点で、試験片領域間の中性子束 の差は、照射試験リグによらず 1%以内と評価された。

(4) 試験片装荷領域の温度並びに高速中性子束及び高速中性子フラックスの評価

(a) 試験片装荷領域の温度評価

照射試験リグIFA-735及びIFA-736の試験片装荷領域における温度の評価値(TS)を求めるため、冷却材の照射試験リグ入口(TLA)及び出口(TOA)における平均温度、照射試験リグ内を下降上昇する冷却材間の熱伝達、照射試験リグ内冷却材と原子炉減速材間の熱伝達及び炉内ガンマ発熱を考慮したモデルを構築し、収束計算を行った。その計算結果を定式化することで次式を得た。

 $TS = (2 \times TIA + TOA)/3 + 1.3 \tag{1}$ 

この式により評価された試験片装荷領域における温度は、第6及び第7照射サイクルに おいて、IFA-735の場合 298~301℃、IFA-736の場合 317~320℃であった。なお、モデ ル計算の結果によれば、TS が高くなるほど試験片装荷領域での温度分布が大きくなる傾 向が見られたが、その最高と最低の差は、TS が 320℃付近の場合でも 1℃以下と評価され ている。照射開始から第7照射サイクル終了までの評価温度(TS)の履歴を図 4.6.3-5 に示 す。

IFA-735 の装荷された圧力フラスコ(FFA-030-S)の外表面に装荷された試験片については、ハルデン炉内を流れる冷却材(重水)に接していることからその照射中の温度はハルデ

4.6-4

ン炉内の冷却材温度と同等と考えられる。これらの試験片の温度履歴を図 4.6.3-5 に合わせて示す。

(b) 高速中性子束及び高速中性子フルエンス

照射試験リグIFA-735及びIFA-736の高速中性子束及び高速中性子フルエンスについて は、各照射試験リグ内に装荷された中性子検出器の出力に基づき評価した。これらの中性 子検出器はバナジウム型であり、その検出特性から高速中性子束を直接測定することがで きない。そこで、ハルデン炉で使用されている核計算コード(HELIOS)を利用し、以下の ようなバナジウム型中性子検出器の出力と高速中性子束との関係式を求め、これを利用し て照射試験リグ内の高速中性子束を評価した。

#### $\Phi = FRND \cdot ND$

(2)

ここで、*FRND*はブースター燃料の燃焼度に依存する係数である。ハルデン炉における過 去の実績によれば、この方法による評価値には10~20%の不確かさがあると考えられる。

照射開始から第7照射サイクル終了までの照射試験リグIFA-735及びIFA-736の高速中 性子束履歴を図4.6.3-6に、また高速中性子フルエンス履歴を図4.6.3-7に示す。これらの 図から分かるように、両照射試験リグとも、第7照射サイクル終了時に達した高速中性子 フルエンスは約4.5×10<sup>21</sup> (n/cm<sup>2</sup>)と評価される。但し、これは暫定値であり、今後フルエ ンスモニタを用いてこの評価値の妥当性を確認する予定である。

### 4.6.4 試験片に係る中間検査

ハルデン炉には年2回の定期停止期間があり、この期間に照射試験リグを取出して試験 片の中間検査を実施した。中間検査項目は、試験片の外観観察、試験片長さ及び重量の測 定である。照射試験リグから取り出した試験片は、超音波洗浄後100℃で1時間乾燥させ、 各検査に供した。

なお、外観観察と試験片重量測定は試験片に異常な腐食等が生じていないことを確認す るため、試験片長さ測定は照射成長量を評価するために実施している。

(1) 外観観察結果

図4.6.4-1及び-2に示す。いずれの試験片についても異常な腐食等は生じていなかった。

(2) 試験片長さ測定結果

表 4.6.4-1 及び-2 に示す。ここで、試験片長さ測定の誤差(1σ)は、測定機器の精度及び 再現性から 2.8x10<sup>-3</sup> (mm)と評価され、この値に基づくと、初期長さに対する試験片伸び 量の比の評価誤差(1 σ)は、50 及び 100mm の試験片でそれぞれ 5.7x10<sup>-5</sup> 及び 2.8x10<sup>-5</sup> であ 第5及び第6照射サイクル終了時点での相対伸び量と高速中性子フルエンスとの関係を 図4.6.4-3及び-4に示す。Zry-4(Zr-Sn-Fe-Cr系合金)の場合は、冷間加工材(CW)及び応力 除去焼鈍材(SR)の相対伸び量が再結晶焼鈍材(RX)より大きい傾向が見られるのに対し、 M-MDA及びZIRLO(Zr-Nb-Sn-Fe(-Cr)系合金)の場合は、RX材の方がSR及び部分再結 晶材(P-RX)材より大きい傾向が見られる。Zr-Sn-Fe-Cr系合金とZr-Nb-Sn-Fe(-Cr)系合金 の相対伸び量の差は、合金の照射成長挙動が製造条件だけでなく添加元素(例えばNb)の影 響を受ける可能性を示唆している。

なお、Zr-Nb-Sn-Fe(-Cr)系合金の場合は、高速中性子フルエンスの増加に伴い RX 材と SR 及び P-RX 材の差が小さくなる傾向もみられており、今後データ取得を継続し、伸び の変化の傾向を把握することが必要と考えられる。

(3) 試験片重量測定結果

表 4.6.4-3 及び-4 に示す。ここで、試験片重量測定の誤差(1o)は、測定機器の精度及び 再現性から 2.8x10<sup>-2</sup>(mg)と評価された。

第5及び第6照射サイクル終了時点での試験片単位面積当たりの増量(mg/dm<sup>2</sup>)と高速中 性子フルエンスとの関係を図 4.6.4-5 及び 6 に示す。ここで、試験片の表面積は製作仕様 値に基づいて評価した。また、試験片重量測定の誤差に基づき評価した、試験片の単位面 積当たりの増量の評価誤差(1o)は、50 及び 100mm の試験片でそれぞれ 0.54 及び 0.27(mg/dm<sup>2</sup>)である。

照射温度 300℃においては、ZIRLO(RX)を除く合金試験片の酸化増量は Zry-4 と同等か 若干小さく、ZIRLO(RX)については、3×10<sup>21</sup>(n/cm<sup>2</sup>)付近から増加の割合が加速する傾向 が見られる。また、200ppm 水素吸収処理 Zry-4(RX)試験片(Zry-4(RX)+H)については、他 の合金試験片の値の半分程度であり傾向が異なっている。この原因については、オートク レーブによる水素吸収処理の際に試験片表面に酸化膜が形成されその保護効果の可能性が 考えられるが、現時点では明らかでない。

照射温度 320℃においては、ZIRLO(RX)及び E635M の酸化増量が Zry-4 の 2~3 倍と なっている。ZIRLO(RX)及び E635M の重量増量の傾向が他の合金のそれと異なる理由に ついても、現時点では明らかでない

なお、理論密度の  $ZrO_2$  が試験片表面に形成されると仮定した場合、照射温度 320<sup>°</sup>Cの ZIRLO(RX)及び E635M を除き、第6照射サイクル終了時点での酸化膜厚さは 1~5 $\mu$ m の オーダーと評価される。照射温度 320<sup>°</sup>Cの ZIRLO(RX)及び E635M については、第6照射 サイクル終了時点での酸化膜厚さは 6~10 $\mu$ m のオーダーと評価される。

4.6.5 改良型燃料被覆管の照射成長試験のまとめ

民間事業者は、既存の発電用軽水炉のさらなる有効活用と安全性向上等のため、軽水炉
燃料被覆管の組成を従来の材料から変更することで外表面腐食量や水素吸収量の抑制を図 った改良型燃料被覆管合金の開発を進めてきている。この改良合金を対象として、ノルウ ェー・エネルギー技術研究所が保有する試験用原子炉(ハルデン炉)を用いた照射成長試験 を平成 23 年度より実施している。

平成26年度には、昨年度に引続き2つの照射試験リグ(IFA-735及び-736)を用いて試験 片の照射を実施し、試験片に照射された高速中性子フルエンスは約4.5×10<sup>21</sup> (n/cm<sup>2</sup>)に到 達した。また、原子炉の停止期間中に試験片の中間検査を実施した。中間検査項目として、 外観観察、試験片の長さ測定及び重量測定を行った。長さの変化量(伸び量)及び重量増 量は試験片の種類によって異なる傾向が見られているが、その関係を定量的に把握、議論 するためには、照射を継続しさらにデータを蓄積する必要がある。

|            |          |            | 組成(v      | vt%)          |           |      | 供考   |
|------------|----------|------------|-----------|---------------|-----------|------|------|
| 百並泊        | Nb       | Sn         | Fe        | $\mathbf{Cr}$ | 0         | Zr   | 佣石   |
| M5         | 1.0      | _          | 0.04      | _             | 0.14      |      |      |
| M-MDA      | 0.5      | 0.5        | 0.3       | 0.4           | —         |      |      |
| Q12        | 1.0      | 0.5        | 0.1       |               | 0.14      | Dal  |      |
| J-Alloy_J2 | 1.6      | _          | _         | 0.1           | 0.1       | Dal. |      |
| J-Alloy_J3 | 2.5      | —          | —         |               | 0.1       |      |      |
| Opt-ZIRLO  | 1        | 0.67       | 0.1       |               | _         |      |      |
| Zircaloy-4 | _        | 1.20-1.70  | 0.18-0.24 | 0.07-0.13     | 0.09-0.13 |      |      |
| ZIRLO      | 0.9–1.13 | 0.90 - 1.2 | 0.1       | _             | 0.09-0.15 | Dal  | 比較対照 |
| E110opt    | 1.0      | _          | 0.04      | _             | _         | Dal. | 材料   |
| E635M      | 0.8      | 0.8        | 0.35      |               | _         |      |      |

表 4.6.2-1 改良型燃料被覆管の照射成長試験に供する材料の合金組成

表 4.6.2-3 照射試験リグ内での試験片の配置

(a) IFA-735

・目標温度 540℃(213K):圧力フラスコ FFA-030-S 上。ホルダ 1 箇所当たり試験片 1 個を装荷。

| 材質 a (長さ 10cm) | M5 | $\operatorname{Zry-4(RX)}$ | Zry-4(RX)+H* | M-MDA(RX) | Opt-ZIRLO(P-RX) | ZIRLO(RX)    |
|----------------|----|----------------------------|--------------|-----------|-----------------|--------------|
| ホルダ位置          | 2  | 8                          | 6            | 10        | 11              | 12           |
| 材質 a (長さ 10cm) | M5 | Zry-4(RX)                  | m Zry-4(SR)  | M-MDA(SR) | $J-Alloy_J2$    | $J-Alloy_J3$ |
| ホルダ位置          | 1  | 2                          | 3            | 4         | 5               | 6            |

・目標温度 300°C(573K)

|       |                            |                | 材質 a                 |                |
|-------|----------------------------|----------------|----------------------|----------------|
| ホルダ位置 | 軸方向位置1(リク                  | ゲ下部、長さ 10cm)   | 軸方向位置 2 (リグ上         | Ξ部、長さ 5cm)     |
|       | ホルダ内側                      | 東小ダ外側          | ホルダ内側                | ホルダ外側          |
| 1     | 2M                         | $2 \mathrm{M}$ | M - MDA(RX)          | M5             |
| 2     | $\operatorname{Zry-4(RX)}$ | Zry - 4(RX)    | MDA(RX)+H*           | $M5+H^*$       |
| 3     | $J-Alloy_J3$               | Zry - 4(SR)    | J - Alloy_J2         | Zry - 4(RX)    |
| 4     | ZIRLO(RX)                  | M - MDA(SR)    | J - Alloy_J2(RX)+H*  | Zry - 4(RX)+H* |
| 5     | Opt-ZIRLO(P-RX)            | M - MDA(RX)    | Zry-4(SR, High-Q)    | Zry - 4(SR)    |
| 9     | ZIRLO(SR)                  | J - Alloy_J2   | Zry-4(RX, High-Q)    | M - MDA(SR)    |
| 7     | Zry-4(CW, High-Q)          | Zry-4(CW)      | Zry-4(RX, High-Q)+H* | M - MDA(SR)+H* |
|       |                            |                |                      |                |

<sup>a</sup> CW:冷間加工材、SR:応力除去燒鈍材、RX:再結晶燒鈍材、P-RX:部分的再結晶燒鈍材、H\*:約 200ppm 水素吸収処理材、High-Q:高 Q 値<sup>%</sup>材(Q=4)。 ※ Q値は、次式で定義される(ba:管への加工前の肉厚、t: 管への加工後の肉厚、db:管への加工前の直径、d: 管への加工後の直径)。

$$Q = \{(t_0-t)/t_0\}/\{(d_0-d)/d_0\}$$

(b) IFA-736

| $320^\circ C (593 K)$ |
|-----------------------|
| 目標温度                  |
| •                     |

| ホルダ | 軸方向位置 1(リグ下           | 部、長さ 5cm)                  | 軸方向位置 5(リグ中共    | +部、長さ 5cm)     | 軸方向位置 3(リグ_     | 上部、長さ 5cm)      |
|-----|-----------------------|----------------------------|-----------------|----------------|-----------------|-----------------|
| 位置  | ホルダ内側                 | ホルダ外側                      | ホルダ内側           | ホルダ外側          | ホルダ内側           | ホルダ外側           |
| 1   | J-Alloy_J3            | M5                         | Opt-ZIRLO(P-RX) | $2 \mathrm{M}$ | M - MDA(RX)     | $2 \mathrm{M}$  |
| 2   | ZIRLO(RX)             | M5                         | ZIRLO(SR)       | $2 \mathrm{M}$ | M-MDA(RX)+H*    | *H+2M           |
| 3   | E110-Opt              | $\operatorname{Zry-4(RX)}$ | $J-Alloy_J3$    | Zry-4(RX)      | J - Alloy_J2    | Zry - 4(RX)     |
| 4   | Zry-4(CW)             | m Zry-4(SR)                | ZIRLO(RX)       | m Zry-4(SR)    | J - Alloy_J2+H* | Zry-4(RX)+H*    |
| 2   | Zry-4(CW, High-Q)     | $J$ -Alloy_ $J2$           | E110-Opt        | M-MDA(SR)      | Q12             | Zry - 4(RX)+H** |
| 9   | Zry-4(RX, High-Q)     | Opt-ZIRLO(P-RX)            | Q12             | M-MDA(RX)      | Q12+H*          | M - MDA(SR)     |
| 7   | Zry-4(RX, High-Q)+H** | ZIRLO(SR)                  | E635M           | J - Alloy_J2   | Q12+H**         | M-MDA(SR)+H*    |

<sup>a</sup> CW:冷間加工材、SR:応力除去燒鈍材、RX:再結晶燒鈍材、P-RX:部分的再結晶燒鈍材、H\*:約 200ppm 水素吸収処理材、H\*\*:約 400ppm 水素吸収 处理材、High-Q:高Q值\*材(Q=4)

※ Q 値は、次式で定義される(ba:管への加工前の肉厚、t:管への加工後の肉厚、db:管への加工前の直径、d:管への加工後の直径)。

$$Q = \{(t_0 - t)/t_0\}/\{(d_0 - d)/d_0\}$$



## (a) 試験片の形状(長さ 50mm の場合)



(b) 試験片装荷部の構造(IFA-735の場合)

図 4.6.2-1 試験片の形状と試験片装荷部の構造(拡大図)



図 4.6.3-1 照射開始から第7照射サイクル終了までのハルデン炉熱出力及び減速材温度履歴



図 4.6.3-2 照射開始から第7照射サイクル終了までの照射試験リグ内の熱水力条件の履歴



図 4.6.3-3 照射試験リグ内を流れる冷却材中溶存水素濃度の履歴



図 4.6.3・4 試験片近傍の炉心軸方向中性子束分布 (ハルデン炉における典型例)



図 4.6.3-5 照射開始から第7照射サイクル終了までの試験片の温度履歴

4.6-16



## (a) IFA-735



## (b) IFA-736





(a) IFA-735



(b) IFA-736

図 4.6.3-7 照射開始から第7照射サイクル終了までの試験片領域での 高速中性子フルエンス履歴

| 試験片<br>番号 | 第5照射サイクル後 | 第6照射サイクル後 |
|-----------|-----------|-----------|
| 5-1       |           |           |
| 5-2       |           |           |
| 5-3       |           |           |
| 5-4       | 34        |           |
| 5-5       |           |           |
| 5-6       |           |           |
| 5-7       |           |           |
| 5-8       |           |           |
| 5-9       |           |           |
| 5-10      |           |           |
| 5-11      |           |           |
| 5-12      |           |           |
| 5-13      |           |           |
| 5-14      |           |           |
| 5-15      |           |           |
| 5-16      | 0.10      |           |
| 5-17      |           |           |
| 5-18      |           |           |
| 5-19      |           |           |
| 5-20      |           |           |
| 5-22      |           |           |
| 5-23      |           |           |
| 5-24      |           |           |
| 5-25      |           |           |
| 5-26      |           |           |
| 5-27      |           |           |
| 5-28      |           |           |

図 4.6.4-1(a) 試験片外観写真(IFA-735 に装荷されたもの。被覆管外表面側)

| 試験片<br>番号 | 第5照射サイクル後 | 第6照射サイクル後 |
|-----------|-----------|-----------|
| 6-1       |           |           |
| 6-2       |           |           |
| 6-3       |           |           |
| 6-4       |           |           |
| 6-5       |           |           |
| 6-6       |           |           |
| 6-7       |           |           |
| 6-8       |           |           |
| 6-9       |           |           |
| 6-10      |           |           |
| 6-11      |           |           |
| 6-12      |           |           |
| 6-13      |           |           |
| 6-14      |           |           |
| 6-15      |           |           |
| 6-16      |           |           |
| 6-17      |           |           |
| 6-18      |           |           |
| 6-19      |           |           |
| 6-20      |           |           |
| 6-21      |           |           |

図 4.6.4-2(a) 試験片外観写真(IFA-736 に装荷されたもの。被覆管外表面側)

| 試験片<br>番号 | 第5照射サイクル後 | 第6照射サイクル後 |
|-----------|-----------|-----------|
| 6-22      |           |           |
| 6-23      |           |           |
| 6-24      |           |           |
| 6-25      |           |           |
| 6-26      |           | 18+28-    |
| 6-27      |           |           |
| 6-28      |           |           |
| 6-29      |           |           |
| 6-30      |           |           |
| 6-31      |           |           |
| 6-32      |           |           |
| 6-33      |           |           |
| 6-34      |           |           |
| 6-35      |           |           |
| 6-36      |           |           |
| 6-37      |           |           |
| 6-38      |           |           |
| 6-39      |           |           |
| 6-40      |           |           |
| 6-41      |           |           |
| 6-42      |           |           |

図 4.6.4-2(b) 試験片外観写真(IFA-736 に装荷されたもの。被覆管外表面側)

| 試験片<br>番号 | 材質                   | 試験片<br>作製後<br>(mm) | 第5照射サイクル後<br>(mm) | 第6照射サイクル後<br>(mm) |
|-----------|----------------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| 5-1       | M5                   | 99.965             | 100.009           |                   |
| 5-2       | Zry-4(RX)            | 99.982             | 100.039           |                   |
| 5-3       | J-Alloy_J3           | 99.993             | 100.028           |                   |
| 5-4       | ZIRLO(RX)            | 99.960             | 100.041           |                   |
| 5-5       | Opt-ZIRLO(P-RX)      | 100.014            | 100.082           |                   |
| 5-6       | ZIRLO(SR)            | 99.994             | 100.077           |                   |
| 5-7       | Zry-4(CW, High-Q)    | 99.937             | 100.139           |                   |
| 5-8       | M5                   | 99.959             | 100.000           |                   |
| 5-9       | Zry-4(RX)            | 99.981             | 100.032           |                   |
| 5-10      | Zry-4(SR)            | 99.989             | 100.192           |                   |
| 5-11      | M-MDA(SR)            | 99.969             | 100.011           |                   |
| 5-12      | M-MDA(RX)            | 99.990             | 100.095           |                   |
| 5-13      | J-Alloy_J2           | 100.001            | 100.024           |                   |
| 5-14      | Zry-4(CW)            | 99.946             | 100.137           |                   |
| 5-15      | M-MDA(RX)            | 49.955             | 50.005            |                   |
| 5-16      | M-MDA(RX)+H*         | 49.974             | 50.026            |                   |
| 5-17      | J-Alloy_J2           | 49.967             | 49.975            |                   |
| 5-18      | J-Alloy_J2+H*        | 49.999             | 50.006            |                   |
| 5-19      | Zry-4(SR, High-Q)    | 49.924             | 50.018            |                   |
| 5-20      | Zry-4(RX, High-Q)    | 49.985             | 50.002            |                   |
| 5-21      | Zry-4(RX, High-Q)+H* | 49.967             | 49.985            |                   |
| 5-22      | M5                   | 49.950             | 49.968            |                   |
| 5-23      | M5+H*                | 49.968             | 49.975            |                   |
| 5-24      | Zry-4(RX)            | 49.974             | 49.996            |                   |
| 5-25      | Zry-4(RX)+H*         | 49.992             | 50.010            |                   |
| 5-26      | Zry-4(SR)            | 49.975             | 50.069            |                   |
| 5-27      | M-MDA(SR)            | 49.934             | 49.951            |                   |
| 5-28      | M-MDA(SR)+H*         | 49.971             | 49.992            |                   |

表 4.6.4-1(a) 試験片長さ測定結果(IFA-735 に装荷されたもの)

| 試験片<br>番号 | 材質                    | 試験片<br>作製後<br>(mm) | 第5照射サイクル後<br>(mm) | 第6照射サイクル後<br>(mm) |
|-----------|-----------------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| 6-1       | J-Alloy_J3            | 49.947             |                   | 49.956            |
| 6-2       | ZIRLO(RX)             | 49.942             |                   | 49.991            |
| 6-3       | E110-Opt              | 49.941             |                   | 49.959            |
| 6-4       | Zry-4(CW)             | 49.949             |                   | 50.029            |
| 6-5       | Zry-4(CW, High-Q)     | 49.952             |                   | 50.036            |
| 6-6       | Zry-4(RX, High-Q)     | 49.975             |                   | 49.996            |
| 6-7       | Zry-4(RX, High-Q)+H** | 49.978             |                   | 50.015            |
| 6-8       | M5                    | 49.961             |                   | 49.981            |
| 6-9       | M5                    | 49.952             |                   | 49.975            |
| 6-10      | Zry-4(RX)             | 49.975             |                   | 50.005            |
| 6-11      | Zry-4(SR)             | 49.965             |                   | 50.070            |
| 6-12      | J-Alloy_J2            | 49.940             |                   | 49.952            |
| 6-13      | Opt-ZIRLO(P-RX)       | 49.932             |                   | 49.964            |
| 6-14      | ZIRLO(SR)             | 49.935             |                   | 49.969            |
| 6-15      | Opt-ZIRLO(P-RX)       | 49.930             |                   | 49.961            |
| 6-16      | ZIRLO(SR)             | 49.964             |                   | 49.999            |
| 6-17      | J-Alloy_J3            | 49.977             |                   | 49.988            |
| 6-18      | ZIRLO(RX)             | 49.972             |                   | 50.020            |
| 6-19      | E110-Opt              | 49.954             |                   | 49.972            |
| 6-20      | Q12                   | 49.963             |                   | 49.992            |
| 6-21      | E635M                 | 49.975             |                   | 50.021            |

表 4.6.4-2(a) 試験片長さ測定結果(IFA-736 に装荷されたもの)

| 試験片<br>番号 | 材質            | 試験片<br>作製後<br>(mm) | 第5照射サイクル後<br>(mm) | 第6照射サイクル後<br>(mm) |
|-----------|---------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| 6-22      | M5            | 49.962             |                   | 49.982            |
| 6-23      | M5            | 49.949             |                   | 49.969            |
| 6-24      | Zry-4(RX)     | 49.979             |                   | 50.009            |
| 6-25      | Zry-4(SR)     | 49.915             |                   | 50.011            |
| 6-26      | M-MDA(SR)     | 49.965             |                   | 49.976            |
| 6-27      | M-MDA(RX)     | 49.942             |                   | 50.000            |
| 6-28      | J-Alloy_J2    | 49.977             |                   | 49.988            |
| 6-29      | M-MDA(RX)     | 49.923             |                   | 49.981            |
| 6-30      | M-MDA(RX)+H*  | 49.964             |                   | 50.024            |
| 6-31      | J-Alloy_J2    | 49.980             |                   | 49.994            |
| 6-32      | J-Alloy_J2+H* | 49.961             |                   | 49.976            |
| 6-33      | Q12           | 49.945             |                   | 49.973            |
| 6-34      | Q12+H*        | 49.954             |                   | 49.985            |
| 6-35      | Q12+H**       | 49.925             |                   | 49.949            |
| 6-36      | M5            | 49.962             |                   | 49.984            |
| 6-37      | M5+H*         | 49.963             |                   | 49.981            |
| 6-38      | Zry-4(RX)     | 49.969             |                   | 49.996            |
| 6-39      | Zry-4(RX)+H*  | 49.990             |                   | 50.015            |
| 6-40      | Zry-4(RX)+H** | 49.977             |                   | 50.031            |
| 6-41      | M-MDA(SR)     | 49.955             |                   | 49.960            |
| 6-42      | M-MDA(SR)+H*  | 49.973             |                   | 49.993            |

表 4.6.4-2(b) 試験片長さ測定結果(IFA-736 に装荷されたもの)

| 試験片<br>番号 | 材質                   | 試験片<br>作製後<br>(mg) | 第5照射サイクル後<br>(mg) | 第6照射サイクル後<br>(mg) |
|-----------|----------------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| 5-1       | M5                   | 1535.80            | 1538.13           |                   |
| 5-2       | Zry-4(RX)            | 1909.59            | 1912.63           |                   |
| 5-3       | J-Alloy_J3           | 1681.23            | 1683.31           |                   |
| 5-4       | ZIRLO(RX)            | 1690.42            | 1696.14           |                   |
| 5-5       | Opt-ZIRLO(P-RX)      | 1641.87            | 1644.57           |                   |
| 5-6       | ZIRLO(SR)            | 1645.78            | 1648.70           |                   |
| 5-7       | Zry-4(CW, High-Q)    | 1959.28            | 1962.41           |                   |
| 5-8       | M5                   | 1533.67            | 1536.25           |                   |
| 5-9       | Zry-4(RX)            | 1962.64            | 1965.70           |                   |
| 5-10      | Zry-4(SR)            | 1904.58            | 1907.84           |                   |
| 5-11      | M-MDA(SR)            | 1707.46            | 1710.22           |                   |
| 5-12      | M-MDA(RX)            | 1702.92            | 1706.09           |                   |
| 5-13      | J-Alloy_J2           | 1687.89            | 1690.20           |                   |
| 5-14      | Zry-4(CW)            | 1927.98            | 1931.21           |                   |
| 5-15      | M-MDA(RX)            | 856.99             | 858.72            |                   |
| 5-16      | M-MDA(RX)+H*         | 858.13             | 859.57            |                   |
| 5-17      | J-Alloy_J2           | 854.63             | 855.85            |                   |
| 5-18      | J-Alloy_J2+H*        | 857.72             | 858.82            |                   |
| 5-19      | Zry-4(SR, High-Q)    | 944.88             | 946.38            |                   |
| 5-20      | Zry-4(RX, High-Q)    | 927.93             | 929.43            |                   |
| 5-21      | Zry-4(RX, High-Q)+H* | 938.28             | 939.01            |                   |
| 5-22      | M5                   | 755.79             | 757.06            |                   |
| 5-23      | M5+H*                | 678.71             | 679.91            |                   |
| 5-24      | Zry-4(RX)            | 938.74             | 940.25            |                   |
| 5-25      | Zry-4(RX)+H*         | 954.34             | 955.04            |                   |
| 5-26      | Zry-4(SR)            | 923.54             | 925.15            |                   |
| 5-27      | M-MDA(SR)            | 850.08             | 851.37            |                   |
| 5-28      | M-MDA(SR)+H*         | 856.46             | 857.94            |                   |

表 4.6.4-3(a) 試験片重量測定結果(IFA-735 に装荷されたもの)

| 試験片<br>番号 | 材質                    | 試験片<br>作製後<br>(mg) | 第5照射サイクル後<br>(mg) | 第6照射サイクル後<br>(mg) |
|-----------|-----------------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| 6-1       | J-Alloy_J3            | 844.46             |                   | 846.87            |
| 6-2       | ZIRLO(RX)             | 820.53             |                   | 828.04            |
| 6-3       | E110-Opt              | 846.24             |                   | 849.03            |
| 6-4       | Zry-4(CW)             | 960.56             |                   | 963.85            |
| 6-5       | Zry-4(CW, High-Q)     | 964.44             |                   | 967.46            |
| 6-6       | Zry-4(RX, High-Q)     | 929.86             |                   | 933.08            |
| 6-7       | Zry-4(RX, High-Q)+H** | 911.15             |                   | 913.94            |
| 6-8       | M5                    | 756.27             |                   | 759.14            |
| 6-9       | M5                    | 753.91             |                   | 756.71            |
| 6-10      | Zry-4(RX)             | 969.50             |                   | 972.86            |
| 6-11      | Zry-4(SR)             | 948.20             |                   | 951.73            |
| 6-12      | J-Alloy_J2            | 835.45             |                   | 838.19            |
| 6-13      | Opt-ZIRLO(P-RX)       | 825.92             |                   | 828.92            |
| 6-14      | ZIRLO(SR)             | 832.37             |                   | 835.96            |
| 6-15      | Opt-ZIRLO(P-RX)       | 816.98             |                   | 820.05            |
| 6-16      | ZIRLO(SR)             | 827.45             |                   | 830.83            |
| 6-17      | J-Alloy_J3            | 836.24             |                   | 838.51            |
| 6-18      | ZIRLO(RX)             | 836.16             |                   | 843.52            |
| 6-19      | E110-Opt              | 859.35             |                   | 862.02            |
| 6-20      | Q12                   | 765.05             |                   | 768.31            |
| 6-21      | E635M                 | 827.24             |                   | 832.43            |

表 4.6.4-4(a) 試験片重量測定結果(IFA-736 に装荷されたもの)

| 試験片<br>番号 | 材質            | 試験片<br>作製後<br>(mg) | 第5照射サイクル後<br>(mg) | 第6照射サイクル後<br>(mg) |
|-----------|---------------|--------------------|-------------------|-------------------|
| 6-22      | M5            | 751.35             |                   | 754.31            |
| 6-23      | M5            | 753.03             |                   | 755.91            |
| 6-24      | Zry-4(RX)     | 972.47             |                   | 975.88            |
| 6-25      | Zry-4(SR)     | 924.60             |                   | 927.95            |
| 6-26      | M-MDA(SR)     | 859.62             |                   | 862.74            |
| 6-27      | M-MDA(RX)     | 855.71             |                   | 859.92            |
| 6-28      | J-Alloy_J2    | 844.92             |                   | 847.76            |
| 6-29      | M-MDA(RX)     | 855.01             |                   | 859.32            |
| 6-30      | M-MDA(RX)+H*  | 853.27             |                   | 856.63            |
| 6-31      | J-Alloy_J2    | 841.53             |                   | 844.37            |
| 6-32      | J-Alloy_J2+H* | 852.31             |                   | 854.86            |
| 6-33      | Q12           | 760.88             |                   | 764.18            |
| 6-34      | Q12+H*        | 737.48             |                   | 740.66            |
| 6-35      | Q12+H**       | 741.38             |                   | 744.03            |
| 6-36      | M5            | 752.26             |                   | 755.26            |
| 6-37      | M5+H*         | 720.52             |                   | 723.22            |
| 6-38      | Zry-4(RX)     | 951.45             |                   | 954.99            |
| 6-39      | Zry-4(RX)+H*  | 970.97             |                   | 972.19            |
| 6-40      | Zry-4(RX)+H** | 929.93             |                   | 933.57            |
| 6-41      | M-MDA(SR)     | 853.24             |                   | 856.37            |
| 6-42      | M-MDA(SR)+H*  | 850.12             |                   | 852.95            |

表 4.6.4-4(b) 試験片重量測定結果(IFA-736 に装荷されたもの)



(a) Zry-4



(b) Zr-Nb(-Fe or Cr)系合金





(c) Zr-Nb-Sn(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-3(続き) 照射成長量と高速中性子フルエンスとの関係(IFA-735。照射温度 300℃)



(a) Zry-4



(b) Zr-Nb-Sn(-Fe or Cr)系合金





(a) Zry-4



(b) Zr-Nb(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-4 照射成長量と高速中性子フルエンスとの関係(IFA-736。照射温度 320℃)



(c) Zr-Nb-Sn(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-4(続き) 照射成長量と高速中性子フルエンスとの関係(IFA-736。照射温度 320℃)



(a) Zry-4



(b) Zr-Nb-Sn(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-4(続き) 照射成長量と高速中性子フルエンスとの関係(IFA-736。照射温度 320℃)



(a) Zry-4



(b) Zr-Nb(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-5 単位面積当たりの増量(mg/dm<sup>2</sup>)と高速中性子フルエンスとの関係 (IFA-735。照射温度 300℃)



(c) Zr-Nb-Sn(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-5(続き)単位面積当たりの増量(mg/dm<sup>2</sup>)と高速中性子フルエンスとの関係 (IFA-735。照射温度 300℃)



(a) Zry-4



(b) Zr-Nb(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4-6 単位面積当たりの増量(mg/dm<sup>2</sup>)と高速中性子フルエンスとの関係 (IFA-736。照射温度 320℃)



(c) Zr-Nb-Sn(-Fe or Cr)系合金

図 4.6.4·6(続き)単位面積当たりの増量(mg/dm<sup>2</sup>)と高速中性子フルエンスとの関係 (IFA-736。照射温度 320℃)

## 5章 結言

民間事業者は、資源の有効利用や二酸化炭素の放出削減などの社会的要請に一層応える ため、原子力発電炉の安全性を確保しつつ更なる高燃焼度化をはじめとする高度利用を目 指した燃料、いわゆる「改良型燃料」の研究開発を現在まで進めてきた。

改良型燃料は、従来の規格を大幅に超えて合金成分を変更した新合金被覆管や結晶組織 を変更したペレットを採用することで、現行型の燃料に比べて発電用軽水炉で使用中の燃 料被覆管の腐食や照射損傷等による劣化の抑制を図ったものであり、このような改良型燃 料の発電用軽水炉への導入は、原子力発電の安全性をより高めるものと考えられている。

本事業においては平成 29 年度までに、今後導入が見込まれる改良型燃料の照射試験で得 られた燃料試料を対象に反応度事故模擬実験(RIA 試験)、冷却材喪失事故模擬実験(LOCA 試験)を実施し、RIA 時の燃料挙動に関し、燃料破損限界、破損挙動及び破損影響(被覆 管破損形態、核分裂ガス放出、燃料微粒子化など)、LOCA 燃料挙動に関し、被覆管の酸化 速度、急冷時破断限界、膨れ及び破裂挙動、といった安全審査に反映できるデータを取得 する計画である。また、試験で得られた結果の評価を行うために、燃料挙動解析コード等 を用いた解析的評価を行う。さらに、改良型燃料への採用が考えられている Zr-Nb 二元系 合金被覆管を含む改良合金被覆管を試験炉で照射し照射に伴う伸び(照射成長)に関する データを取得する計画である。

平成 26 年度は、入手した高燃焼度改良型燃料に対する RIA 試験、RIA 試験の前後に行 う照射後試験、RIA 時に膨張したペレットから被覆管が受ける応力状態を適切に模擬でき る試験機を用いた機械特性試験、RIA 試験に係る計算コードを用いた解析、LOCA 試験並 びにハルデン炉において Zr-Nb 二元系合金を含む改良型燃料被覆管の照射成長試験を実施 した。

得られた成果を以下にまとめる。

(1) 反応度事故(RIA)に対する安全評価においては、原子炉出力の急上昇によって破損に至る燃料棒の本数を評価し、破損本数に応じて、破損に伴い圧力容器内で発生する機械的エネルギーや冷却材中に放出される放射性物質量の評価を行う。したがって、燃料が破損に至ると判断するための基準(破損しきい値)が適切に定められていることが重要である。燃焼が進んだ燃料の破損については、その主な原因がペレット被覆管機械的相互作用(PCMI)であること、また、燃焼度の増大とともに破損が起こりやすくなることが明らかになったことを受けて、平成10年にPCMI破損しきい値が燃焼度75GWd/tまでの範囲について定められた。しかし、既存の発電炉のさらなる安全性向上に向け改良型燃料の導入も見込まれる現在、RIA時の安全を確保するためには、75GWd/tを超える燃焼度域で燃料が破損に至る条件の定量化及び現行 PCMI破損しきい値が改良型燃料に対して有する安全余裕の把握が必要である。

平成 26 年度の RIA 試験 GR-1、VA-7 及び VA-8 は、それぞれ燃焼度 82、81 及び 78 GWd/tの PWR-UO2燃料を対象として実施した。GR-1燃料棒の被覆材料は M5 であり、 室温条件において NSRR 最大パルス出力で照射したところ、燃料エンタルピ増分は 110 cal/g に達したものの燃料は破損しなかった。現行の PCMI 破損しきい値は燃焼度 75GWd/t に対して 40cal/g と定義されているが、GR-1 実験の結果はそれを十分な安全 余裕をもって上回っている。VA-7 及び VA-8 燃料棒の被覆材料はそれぞれ SR 材、RX 材の M-MDA であり、高温条件において NSRR 最大パルス出力で照射したところ、VA-7 では燃料棒は破損しなかったが、VA-8 では燃料エンタルピ増分が 42 cal/g に達した時 点で燃料棒が破損した。以上から、現行の PCMI 破損しきい値を 82 GWd/t までの M5 被覆燃料及び 81 GWd/t までの M-MDA(SR)被覆燃料に適用することは妥当と考えられ る。なお M-MDA(RX)被覆管の実用化は計画されていない。

高温条件で実施した VA-7 及び VA-8、いずれも、同一燃料について室温条件で破損した VA-5 及び VA-6 実験結果に比べて破損限界の上昇を示す結果となった。破損時燃料 エンタルピ増分を被覆管の腐食量で整理した結果において、VA-5 から-7 の 4 実験は、同一腐食量で比較した場合に SR 材の破損限界が RX 材に比べ高くなる傾向、初期温度の上昇により破損限界が高くなる傾向を示しており、これは従来の結果から得られた傾向と一致している。また過去に行われた VA-1 及び VA-3 実験との比較から、初期温度の効果が破損限界に及ぼす影響の程度は被覆管の状態に依存し、ある基準温度における破損限界が大きいほど、温度上昇に伴う破損限界の上昇の度合も大きくなる傾向が示唆された。

多軸応力負荷試験では、熱処理条件が応力除去焼鈍(SR)のジルカロイ・4 未照射被 覆管試料に対して、室温から 200 ℃の温度域にて様々な比の軸方向・周方向応力を与 えて公称応力・公称ひずみ曲線のデータを取得した。これらの結果から、破損形態の軸 方向-周方向応力比依存性、降伏応力及び降伏曲面の温度依存性、破損時周方向ひずみ の温度依存性に関する知見を得た。これらを反映した機械特性モデルを構築し、燃料挙 動解析コードに組み込むことによって、RIA 時に燃料が破損に至る際の被覆管応力状態 をより正確に把握できるようになると考えられる。

(2) RIA 試験解析の目的は、燃料ペレット及び被覆管内部における温度や応力の分布といった直接計測できないデータを取得し、さらに、試験装置の制約を超えた条件下での燃料挙動を予測することで、RIA 試験から得られる知見を補完し、試験結果に対する理解を深めることである。このため、燃料のベース照射開始時から終了時までの燃料ふるまいを FEMAXI-7 コードにより解析し、これにより得られた燃料状態に関する情報を入力として、RANNS コードによる RIA 試験時燃料ふるまいの解析を行う。

平成 26 年度は、本年度実施した M5 被覆 PWR-UO<sub>2</sub>燃料実験 GR-1 を対象とした実 験解析、今後実施予定の M5 被覆 PWR-MOX 燃料実験 CN-1、低 Sn Zirlo 被覆 PWR-UO<sub>2</sub> 燃料実験 VA-9 を対象とした予測解析を行った。NSRR で実現可能な最大の投入反応度 条件下で解析を行った結果、GR-1、CN-1 及び VA-9 実験のパルス照射によるエンタル ピ増分最大値はそれぞれ 450、680、450 J/g、被覆管最高温度はそれぞれ 400℃、500℃、 1000℃、被覆管周方向永久ひずみ(肉厚中央部)は 1.0%、2.0%及び 1.4%程度となる ことが予測された。PCMI 破損の有無については、RANNS コードの破壊力学モデル等 により、いずれのケースでも非破損となることが予測された。PCMI 後の FP ガス圧を 駆動力とする変形については、CN-1 ではガス圧に起因する被覆管変形が生じる可能性 は小さいこと、VA-9 では 25%以上の FP ガス放出が生じた場合にガス圧を駆動力とす る被覆管の大変形が生じる可能性があることが予測された。GR-1 実験で得られた過度 計測データとの比較から、PCMI 破損の有無、DNB の発生、被覆管表面の到達温度、 ガス圧を駆動力とする変形の有無、等について、現行の解析モデルは概ね妥当な予測を 与えることが示された。

CN-1 及び VA-9 実験の実施条件、計装項目、等の決定にあたっての上記解析結果に 基づく留意点は以下の通りである。近年の高燃焼度燃料実験では、被覆管表面温度取得 のため行う溶接式の被覆管熱電対取付けが PCMI 破損挙動に影響を及ぼす可能性を排 除するため、被覆管の腐食がある程度進んだ燃料については、熱電対の取り付けを行わ ないケースがあった。CN-1 及び VA-9 実験では PCMI 破損が生じる可能性は小さいも のと予想され、熱電対溶接が燃料挙動に及ぼす影響は小さいと見込まれることから、熱 電対取付けを行うことで有効な温度データを取得できる可能性は大きい。特に CN-1 は 高燃焼度で、且つ非破損が予想される MOX 燃料としては非常に高い燃料エンタルピが 想定されることから、内圧、温度、FGR、(ガス圧による)変形量、等のデータ取得が 主たる目的となる。VA-9 については非破損と予想されるものの、今年度既に温度デー タ取得に成功している VA-8 と極めて近い燃料状態及び実験条件となることも同時に予 想されることから、破損挙動に影響する可能性がある溶接式の被覆管熱電対取付けは行 わない選択肢も考えられる。

- (3) LOCA 時の安全性を確保するためには、炉心の冷却性すなわち冷却可能形状の維持が 必要とされる(ECCS 性能評価指針)。同指針では、被覆管最高温度が 1200°C を超え ないこと、等価被覆酸化量が被覆管肉厚の 15%を超えないことが規定されているが、こ れは被覆管の著しい脆化を防ぎ脆化による広範な燃料棒の破損を防ぐことにより炉心 の冷却可能形状を維持することを目的としている。最高温度及び酸化量に関する基準値 はジルカロイ被覆管に関するデータを基に決められたものであり、改良型被覆管につい てはジルカロイ被覆管と比較した LOCA 時性能の確認が基本的に必要である。確認す べき性能は以下の通りである。
  - ・ 脆化に関する基準は酸化量を指標としていることから、酸化量を評価する酸化速度 を精度良く求めておく必要がある。また、酸化速度がジルカロイと比べて著しく大

きくないことが必要である。

- 被覆管の酸化挙動を調べ酸化量と脆化の関係に影響する不均一な酸化膜の成長や、
  特定の条件における酸化速度の増大や過度の水素吸収(ブレークアウェイ酸化)が
  起こらないことを確認する必要がある。
- ・ 脆化や LOCA 時に被覆管の破断が起こりやすくなる酸化量(しきい酸化量)について調べ、しきい酸化量が基準値(15%)以下にならないことを確認する必要がある。

平成 26 年度は、欧州で照射された高燃焼度改良型 PWR 燃料(燃焼度 80 GWd/t)から採取した低スズ ZIRLO 燃料被覆管を対象に LOCA 試験を実施し、その LOCA 時挙動を評価した。同燃料を用いた急冷破断試験により、以下の知見を得た。

- 約 1473 K で約 20% ECR の酸化量を与えた後に冠水により急冷したが、被覆管試料は破断しなかった。
- ・ 高燃焼度低スズ ZIRLO 燃料被覆管は、規制基準値(15%ECR)を超える約 20%ECR という酸化量を与えても約 530 N の拘束力条件下において破断することはなく、平 成 18、19 及び 23~25 年度に実施した急冷破断試験の結果と同等であったことか ら、低スズ ZIRLO 燃料被覆管に関しては、燃焼が進んだ場合においても現行燃料 被覆管に比べて破断限界が著しく低下することはないと考えられる。

また、PWR 高燃焼度改良型燃料(燃焼度 81 GWd/t)から採取した M-MDA 被覆管 を対象に、約 1173 及び 1323 K における酸化速度評価試験を実施し、以下の知見を得た。

酸化温度 1173 及び 1323 K において照射材は未照射材に比べ低い酸化速度を有したことから、本事業にて酸化速度評価試験を行った温度範囲内では、高燃焼度領域においても M-MDA 被覆管の酸化速度が著しく変化することはなく、この材料の安全性評価において Baker-Just 酸化速度式<sup>(3)</sup>を利用することは妥当であると考えられる。

なお、平成23年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故を鑑みると、現 行の ECCS 性能評価指針の策定の際に想定された LOCA 条件のみならず、これを超え るような LOCA の条件及びシナリオの下での燃料挙動について、今後データや知見を 取得、蓄積していくことも重要と考えられる。これらのデータや知見は、設計基準を超 える事故時における炉心損傷防止の考え方や判断基準に反映され得ると考えられる。

(4) 民間事業者は、既存の発電用軽水炉のさらなる有効活用と安全性向上等のため、軽水 炉燃料被覆管の組成を従来の材料から変更することで外表面腐食量や水素吸収量の抑 制を図った改良型燃料被覆管合金の開発を進めてきている。この改良合金を対象として、 ノルウェー・エネルギー技術研究所が保有する試験用原子炉(ハルデン炉)を用いた照 射成長試験を平成23年度より開始している。

平成 26 年度には、昨年度に引続き 2 つの照射試験リグ(IFA-735 及び-736)を用い て試験片の照射を実施し、高速中性子フルエンスは約 4.5x10<sup>21</sup>(n/cm<sup>2</sup>)に到達した。 また、原子炉の停止期間中に試験片の中間検査を実施した。中間検査項目として、外観 観察、試験片の長さ測定及び重量測定を行った。長さの変化量(伸び量)及び重量増量 は、合金の種類によって異なる傾向が見られているが、その関係を定量的に把握、議論 するためには、照射を継続しさらにデータを蓄積する必要がある。
#### (参考文献)

1章

- T. Fuketa, H. Sasajima and T. Sugiyama, "Behavior of High Burnup PWR Fuels with Low-Tin Zircaloy-4 Cladding Under Reactivity-Initiated-Accident Conditions", Nuclear Technology, Vol. 133, No.1, pp.50-62, (2001).
- (2) T. Nakamura, K. Kusagaya, T. Fuketa and H. Uetsuka, "High-burnup BWR Fuel Behavior under Simulated Reactivity-Initiated-Accident Conditions", Nuclear Technology, Vol.138, pp.246-259, (2002).
- (3) F. Nagase and H. Uetsuka, "Study of High Burn up Fuel Behavior under LOCA Conditions at JAERI: Hydrogen effects on the failure bearing capability of cladding tubes", Nuclear Safety Research Conference, Washington, U.S.A., October 22-24, 2001(NUREG/CP-0176, May 2002).
- (4) "Cladding Embrittlement during Postulated Loss-of-Coolant Accidents", NUREG/CR-6967, ANL-07/04, (2008).
- (5) 平成14年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、日本原子力研究所、平成 15年3月.
- (6) 平成 15 年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、日本原子力研究所、平成 16 年 3 月.
- (7) 平成16年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、日本原子力研究所、平成 17年3月.
- (8) 平成 17 年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、(独)日本原子力研究開 発機構、平成 18 年 3 月.
- (9) 平成 18 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成 19 年 3 月.
- (10) 平成 19 年度燃料等安全高度化対策事業(高度化軽水炉燃料安全技術調査)に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成 20 年 3 月.
- (11) 平成 20 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独) 日本原子力研究開発機構、平成 21 年 11 月.
- (12) 平成 21 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独) 日本原子力研究開発機構、平成 22 年 3 月.
- (13) 平成 22 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独) 日本原子力研究開発機構、平成 23 年 9 月.
- (14) 平成 23 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独) 日本原子力研究開発機構、平成 25 年 3 月.
- (15) 平成 24 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独) 日本原子力研究開発機

構、平成26年3月.

(16) 平成25年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成26年3月.

2章

- "Cladding Embrittlement during Postulated Loss-of-Coolant Accidents", NUREG/CR-6967, ANL-07/04, (2008).
- (2) F. Nagase, T. Otomo and H. Uetsuka, "Oxidation Kinetics of Low-Sn Zircaloy-4 at the Temperature Range from 773 to 1,573K", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.40, No.4, pp.213-219 (2003).
- (3) M. Billone, Y. Yan, T. Burtseva and R. Daum, "Cladding Embrittlement During Postulated Loss-of-Coolant Accidents", NUREG/CR-6967 (2008).
- (4) F. Nagase and T. Fuketa, "Recent results from LOCA study at JAERI", Nuclear Safety Research Conference, Washington D. C., U.S.A., Oct. 20-21 (2003).
- (5) F. Nagase and T. Fuketa, "Behavior of pre-hydrided Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.42, No.2, pp.209-218 (2005).
- (6) 平成 19 年度燃料等安全高度化対策事業(高度化軽水炉燃料安全技術調査)に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成 20 年 3 月.
- (7) 「軽水炉燃料のふるまい」、(財)原子力安全研究協会、平成10年7月.
- (8) V. Fidleris, "The irradiation creep and growth phenomena", J. Nucl. Mater., Vol. 159, pp.22-42 (1988).

4章

- 4.3 RIA 試験
- 平成24年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成26年3月.
- (2) 平成25年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成26年3月.
- (3) 平成18年度燃料等安全高度化対策事業(高度化軽水炉燃料安全技術調査)に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成19年3月.
- (4) 平成22年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、
  平成23年9月.
- (5) 平成23年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成25年3月.
- (6) 桑原利彦、成原浩二、吉田健吾、高橋進、塑性と加工、第44巻、第506号 pp.281-286
  (2003).

- (7) 「軽水炉燃料のふるまい」、(財)原子力安全研究協会、平成10年7月.
- (8) F. Nagase and T. Fuketa, "Investigation of Hydride Rim Effect on Failure of Zircaloy-4 Cladding with Tube Burst Test", J Nucl. Sci. Technol., Vol. 42, No. 1, pp.58-65 (2005).
- 4.4 RIA 試験解析
- M.Suzuki, H.Saitou and T.Fuketa, "Analysis on split failure of cladding of high burnup BWR rods in reactivity- initiated accident conditions by RANNS code", Nucl.Eng.Design, 236, pp.128-139 (2006).
- (2) Y. Udagawa, M. Suzuki and M. Amaya, "Model Development of Light Water Reactor Fuel Analysis Code RANNS for Reactivity-initiated Accident Conditions", JAEA-Data/Code 2014-025 (2014).
- (3) 平成23年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、(独)日本原子力研究開発 機構 平成24年3月
- (4) 平成22年度高度化軽水炉燃料安全技術調査に関する報告書、(独)日本原子力研究開発
  機構 平成23年3月
- (5) 鈴木元衛、斎藤裕明、宇田川 豊, "軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造", JAEA-Data/Code 2010-035 (2011).
- (6) K. Okumura, T. Mori, M. Nakagawa and K. Kaneko, "Validation of a continuousenergy Monte Carlo burn-up code MVP-BURN and its application to analysis of post irradiation experiment", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 37, No. 2, pp.128-138 (2000).
- (7) G. Wikmark, L. Hallstadius and K. Yueh, "CLADDING TO SUSTAIN CORROSION, CREEP AND GROWTH AT HIGH BURN-UPS", Nucl. Eng. Design, Vol. 41, pp.143-148 (2009)
- (8) K. Suyama, K. Junichi, U. Ookawa and M. Ishikawa, "Libraries based on JENDL-3.2 for ORIGEN2 code : ORLIBJ32", JAERI-Data/Code 99-003 (1999).
- (9) 須山 賢也、清住 武秀、望月 弘樹、"統合化燃焼計算コードシステム SWAT 改訂版", JAERI-Data/Code 2000-027 (2000).
- (10) R.E. Alcouffe, F.W. Brinkley, D.R. Marr and R.D. O'Dell, "User's Guide for TWODANT: A Code Package for Two-Dimensional, Diffusion-Accelerated, Neutral-Particle Transport", LA-10049-M (1984).
- 4.5 LOCA 試験
- (1) H. Uetsuka, T. Furuta and S. Kawasaki, "Zircaloy-4 cladding embrittlement due to inner surface oxidation under simulated loss-of-coolant condition," J. Nucl. Sci.

Technol., Vol. 18, No.9, 705 (1981).

- (2) H. Uetsuka, T. Furuta and S. Kawasaki, "Failure-bearing capability of oxidized Zircaloy-4 cladding under simulated loss-of-coolant condition," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 20, No. 11, 941 (1984).
- (3) L. Baker and L. C. Just, "Studies of Metal-Water Reaction at High Temperatures; III. Experimental and Theoretical Studies of the Zirconium-Water Reaction," ANL-6548, Argonne National Laboratory (1962).
- (4) K. Honma, S. Doi, M. Ozawa, et al., "Thermal-Shock Behavior of PWR High-Burnup Fuel Cladding Under Simulated LOCA Conditions," Proc. ANS Annual Meeting, Milwaukee, Wisconsin (2001).
- (5) T. Murata, Y. Taniguchi, S. Urata, et al., "LOCA Simulation Test of the Cladding for High-Burnup Fuel," Proc. ANS Annual Meeting, Milwaukee, Wisconsin (2001).
- (6) Y. Udagawa, F. Nagase and T. Fuketa, "Effect of Cooling History on Cladding Ductility under LOCA Conditions," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 43, No. 8, 844 (2006).
- (7) 平成25年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成26年3月.
- (8) 平成18年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成19年3月.
- (9) 平成 19 年度燃料等安全高度化対策事業(高度化軽水炉燃料安全技術調査)に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成 20 年 3 月.
- (10) 平成 23 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独) 日本原子力研究開発機構、平成 25 年 3 月.
- (11) 平成24年度燃料等安全高度化対策事業(高度化軽水炉燃料安全技術調査)に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成26年3月.
- (12) 平成 21 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、平成 22 年 3 月.
- (13) M. Ozawa and T. Takahashi, "Behavior of irradiated Zircaloy-4 fuel cladding under simulated LOCA conditions," Zirconium in the Nuclear Industry: Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, 279 (2000).
- (14) T. Chuto, F. Nagase and T. Fuketa, "High temperature oxidation of N b-containing Zr alloy cladding in LOCA conditions," Nucl. Eng. Technol., Vol. 41, No. 2, 163 (2009).
- (15) F. Nagase, T. Otomo and H. Uetsuka, "Oxidation kinetics of low-Sn Zircaloy-4 at the temperature range from 773 t o1,573 K," J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 40, No. 4, 213 (2003).

- 4.6 改良型燃料被覆管の照射成長試験
- (1) 「軽水炉燃料のふるまい」、(財)原子力安全研究協会、平成10年7月.
- (2) 平成 22 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成 23 年 9 月.
- (3) 平成 23 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成 25 年 3 月.
- (4) 平成 25 年度燃料等安全高度化対策事業に関する報告書、(独)日本原子力研究開発機構、 平成 26 年 3 月.

### (用語の解説)

#### (ア行)

### ECCS: Emergency Core Cooling System, 非常用炉心冷却系

原子炉冷却系の配管破断が起きるなどして冷却材が炉心から喪失した場合に、直ちに冷却材を炉心に注入して炉心を冷却する安全システム。

異常過渡:

原子炉運転時の異常な過渡変化。原子炉施設の寿命期間中に予想される機器の単一故障、 運転員の単一の誤操作等によって生じる異常な状態をいう。

一次元円筒体系:

燃料棒の数値解析モデルにおいて、燃料棒を中心軸に対称な円筒形状で近似し、温度及 び変形を、軸方向に一様で半径方向に分布を持つと近似して計算する体系。

E110、E635:

**VVER**型原子炉用燃料被覆管に使用されている材料。E110 が Zr-Nb2 元系合金であるの に対し、E635 は Zr-Sn-Nb-Fe の 4 元系合金である。

#### NSRR: Nuclear Safety Research Reactor, 原子炉安全性研究炉

燃料の安全性研究を目的として、1975年に日本原子力研究所(現:(独)日本原子力研 究開発機構)に建設された研究炉。原子炉出力の上昇に対して強い負のフィードバック を有するため、意図的な制御棒引き抜きにより過大な反応度を投入しても、出力暴走に は至らず、短時間のうちに自動的に出力が収束するという特長を備える。この特長を利 用したパルス出力運転により、反応度事故(RIA)時の原子炉出力履歴を安全に模擬する ことが可能である。

### FP:Fission Product,核分裂生成物

核分裂により生成される核種。FPの多くが核的に不安定(放射性)であり、環境に放出 された場合には公衆の被ばく要因となる。原子炉においては、燃料ペレット、燃料被覆 管、原子炉圧力容器、原子炉格納容器、原子炉建家といった障壁により、環境へのFP放 出を防止している。

### FGR: Fission Gas Release, FP ガス放出率

燃料内で生成されたXeやKrといった気体状核分裂生成物(FPガス)は、その多くが燃料

の結晶粒内に蓄積されるが、一部は拡散により結晶粒の表面に到達し、結晶粒界気泡を 形成する。結晶粒界気泡がペレット外部に連結していた場合、FPガスはペレットの外部 に放出される。FPガスの生成量に対して放出量が占める割合をFPガス放出率と呼ぶ。特 に指定しない限り、ペレットから燃料棒内の自由空間への放出率を示すものであり、被 覆管の外部への放出を意味するものではない。

なお、RIA時に燃料温度が急上昇する場合には、ペレットの熱応力や結晶粒界蓄積ガスの 熱膨張により、結晶粒界気泡と外部との連結が増大するため、FPガス放出率も増大する。

M5 :

AREVA社(旧フラマトム社)が開発した高耐食性燃料被覆管合金。ジルコニウムとニオブの2元系合金。仏では多くの使用実績があり、国内でも今後、実用化が見込まれる。 M5をさらに改良した材料(Q12等)の開発も進められている。

M-MDA :

三菱原子燃料株式会社が開発している高耐食性燃料被覆管合金で、Zry-4の組成に近く、 ニオブが添加されたもの。MDA(PWRステップ2燃料(55000 MWd/t)の被覆管として 使用されている)の耐食性および水素吸収率をさらに改善した材料である。

#### (カ行)

機械的エネルギー:

原子炉の炉心あるいは燃料棒の破損によって発生する機械的な破壊力。発生する原因としては、高温の溶融した燃料や炉心構造材が冷却材と接触して生ずる蒸気爆発等が考えられている。

金相試験:

金属等の断面のミクロ組織観察を行う試験のこと。

高温待機時:

温態停止状態ともいう。緊急停止などの一時的な計画外停止での待機状態で、一次冷却 材ポンプからの入熱などで、一次冷却材の温度が一定(約286℃)に維持される状態をい う。

降伏 (Yielding):

ペレットや被覆管のような固体結晶に応力を加えると初めは弾性的なふるまいを示すが、 応力がある一定レベルを超えると塑性変形(永久変形)が生じる。この、弾性変形の限

#### (サ行)

再冠水:

冷却材喪失事故(LOCA)が発生して原子炉圧力容器内の水位が低下し、炉心部燃料が露 出する状態になった後、非常用炉心冷却系(ECCS)の作動により炉心に水が注入され、 再び炉心燃料が水に浸かり(冠水)、炉心が冷却される過程をいう。この過程を経ること により燃料棒温度は低下し、長期にわたる炉心崩壊熱除去が可能となる。

ZIRLO<sup>TM</sup> :

米国ウェスティングハウス社が開発した高耐食性燃料被覆管合金。Zry-4の組成に近く、 鉄及びニオブを添加したもの。また、ZIRLO<sup>TM</sup>をさらに改良したOpt-ZIRLO<sup>TM</sup>の開発が 現在進められている。

J 合金: J-Alloy

PWR 用燃料被覆管の更なる耐食性向上および水素吸収率低減を目的として、PWR 5 電力、燃料メーカおよび材料メーカが共同で開発した材料。Zr-1.8%Nb、Zr-1.6%Nb-0.1%Cr、Zr-2.5%Nb の 3 種類が開発され、それぞれ J1、J2、J3 合金と呼ばれている。

Zry: Zircaloy ジルカロイ

商用発電炉において黎明期から使用されてきた被覆管合金。ジルコニウムとスズを主成 分とする。添加物の違うZircaloy (Zry)-1~-4が開発され、使用条件での性能を考慮して、 PWRにおいてはZry-4が、BWRにおいてはZry-2が使用されている。近年の高燃焼度化に 伴い耐食性の高い合金に置き換えられつつある。

照射成長:

ジルコニウム合金燃料被覆管は、一般に高速中性子の照射によって燃料棒長手(軸)方向 に伸びる傾向がある。この現象を照射成長という。これは、六方晶の結晶構造を有する ジルコニウムにおいて高速中性子照射により生成する結晶格子欠陥のうち、空孔が底面 に、格子間原子が柱面に集積しやすいことと関係していると言われている。

照射試験リグ:

ノルウェー・エネルギー技術研究所が所有するハルデン炉(別項参照)において燃料試 料や材料試料を照射するための計装付き照射容器。試験片、温度測定用熱電対等の計装 類およびこれらを支える構造材等からなる。計装付き燃料体(Instrumented Fuel Assembly: IFA) とも呼ばれる。

水撃力:

水塊や水柱が壁面に衝突あるいは管内を流れる流体が塞き止められた時に生ずる衝撃力。 原子炉の安全評価においては、水蒸気爆発等によって吹き上げられた冷却材が炉内構造 物や圧力容器の上面に衝突することが想定される。

スペーサーグリッド (スペーサ):

燃料棒相互の間隔を正確に保持する目的で、燃料集合体の軸方向に数箇所分布して用いられる支持格子のこと。BWR 燃料における支持格子は、ジルカロイ製の円筒状部材とインコネル製のスプリングを組み合わせて燃料棒を支持する構造となっている。PWR 燃料においては、インコネル製あるいはジルカロイ製の薄板を格子状に組み上げ、板ばねと対面する突起により燃料棒を水平方向に支持する。

制御棒案内管:

PWR 燃料集合体において、制御棒の円滑な出し入れ案内を目的として設置される内部構造材。グリッドスペーサーを所定の位置に固定する役目も果たしており、案内管/グリッドスペーサー/上下部ノズルが一体となって燃料集合体骨格を形成し、構造強度の担い手となっている。

脆化:

材料の変形において、抗力が大きく変形能が小さくなり、さらに伸びや断面収縮率が低 下することを脆化といい、その性質を脆性またはもろさという。軽水炉燃料においては、 中性子照射による照射損傷の蓄積、水側腐食層の成長および腐食に伴う水素吸収と水素 化物の析出などにより被覆管の延性が低下する。

設計基準事象:

原子炉施設の安全設計とその評価に当たって考慮される事象。事象の分類として、安全 保護回路、工学的安全施設などの設計の妥当性を確認する観点で選定された「運転時の 異常な過渡変化」及び放射性物質の放出の可能性がある事象における工学的安全施設な どの妥当性を確認する観点で選定された「設計基準事故」がある。

(タ行)

多軸応力条件:

使用中の燃料の被覆管が受ける力学的負荷は、通常は周方向応力が主(一軸応力状態)

7-4

であるが、ペレットと被覆管が強い接触状態にあるなど、条件によっては周方向以外の 方向にも応力が作用する場合がある。このとき、被覆管は多軸応力条件下にあるという。

#### DNB: Departure from Nucleate Boiling (核沸騰膜沸騰遷移)

燃料被覆管表面から冷却水への伝熱において、熱流束の増加とともに核沸騰状態から膜 沸騰状態へ伝熱モードが急速に遷移すること。

低温時:

冷態停止状態ともいう。定期検査時、燃料取替作業時及び長期間におよぶ保修作業を伴 うような場合に維持される状態で、一次冷却材の温度が約 90℃以下の状態をいう。

等体積円筒リング要素:

燃料棒を一次元円筒体系で解析する場合、ペレットスタックを半径方向に複数の、かつ 等体積の(=軸方向長さは等しいが厚みが異なる)リング要素に分割し、要素内では温 度は一定として、応力歪みは連続的に変化するとして、数値計算を行う。

(ナ行)

二次元解析:

一次元解析は、軸方向が一様で半径方向のみの(温度、変形)分布を計算するが、二次 元解析では、軸方向及び半径方向の分布を計算する。

燃料スタック:

燃料棒に装填された燃料ペレット全体のこと。

燃料セグメント:

発電炉で使用されている長尺(約4m)の燃料棒に対し、実験用に短くした燃料棒のこと。

(ハ行)

パルス照射試験:

NSRRのパルス出力運転を利用したRIA模擬試験。試験においては、高い耐圧性及び気密 性を備えたステンレス鋼製のカプセルに試験対象となる燃料を封入してNSRR炉心にて 照射する。このため、試験燃料が破損した場合でも影響が及ぶ範囲はカプセル内に限ら れ、事故模擬試験を安全に行うことが可能である。また、カプセルごと試験燃料を交換 するため、比較的短期間に複数回の試験を実施することが可能である。 ハルデン炉:

ノルウェー南部のハルデン市に設置された、ノルウェー・エネルギー技術研究所(Institutt for energiteknikk: IFE) が所有する重水沸騰型試験炉(HBWR)。重水を冷却水として 使用しているため炉心が大きく計装の設置等が容易であるという特徴を有する。冷却材 温度および圧力は 240℃、3.3MPa である。

PCMI: Pellet-Clad Mechanical Interaction (ペレット被覆管機械的相互作用)

照射とともに燃料ペレットはFPガスバブルの成長などによって体積膨張し、一方被覆管 は冷却水圧力によってクリープダウンし、ギャップ空間は減少する。この状況で、出力 上昇によりペレットがさらに熱膨張して被覆管と接触し、被覆管を押し広げようとする。 このときペレットは被覆管から反力を受ける。こうしてペレットと被覆管は変形する。 このような、ペレットと被覆管の間の力学的な相互作用をPCMIと呼ぶ。ボンディング層 が生じている場合は、ペレットの変形が直接被覆管に作用するので、PCMIは強くなる。 また高燃焼度燃料の反応度事故においては、ペレットの急速な熱膨張により発生する PCMIが燃料破損の主要因となる。

プルサーマル:

プルトニウムを熱(サーマル)中性子炉で利用することを意味する和製英語。MOX 燃料 を軽水炉において使用することを指す。

Baker-Just 式:

ジルコニウムと水の反応速度について、米国・オークリッジ国立研究所で1960年代に求められた式。その後に行われたジルカロイ被覆管を用いた酸化速度式と比較して、大きな酸化速度を与えることが知られているが、酸化量に関して安全側の評価を行うために現在も安全評価において使用されている。

(マ行)

MIMAS 法: MIcronized MASter 法

MOX燃料製造法の一つ。燃料ペレット中のPuO<sub>2</sub>とUO<sub>2</sub>の混合状態をより均一化させるために開発された製造手法。まずPuO<sub>2</sub>粉末とUO<sub>2</sub>粉末を粉砕混合してマスターブレンド粉末を得、このマスターブレンド粉末にUO<sub>2</sub>粉末を加える2段階混合によって所定の富化度に調整する。ベルゴニュークリア社などが採用している。

MOX 燃料: Mixed OXide fuel, 混合酸化物燃料

使用済燃料の再処理により得られたプルトニウムをウランと混合して製造した燃料。高

速増殖炉及び新型転換炉用の燃料としてだけでなく、軽水炉において利用される場合も ある(プルサーマル)。

# (ラ行)

# RIA: Reactivity Initiated Accident, 反応度事故

原子炉設計時に想定する設計基準事象の一つであり、制御棒の落下(BWRの場合)や飛び出し(PWRの場合)などにより原子炉の出力が急速に上昇する事故である。出力暴走 事故とも呼ばれる。

### LOCA: Loss Of Coolant Accident, 冷却材喪失事故

原子炉設計時に想定する設計基準事象の一つであり、炉心で発生した熱を除去し熱交換 器あるいは蒸気タービンへ熱を伝達する役目をもつ原子炉冷却材が、1次系配管の破断等 によって流れ出し炉心の冷却機能が損なわれる事故。