

安全研究に係る中間評価結果

平成 31 年 1 月 23 日
原子力規制委員会

1. 中間評価の進め方

1.1 評価の対象

長官官房技術基盤グループで実施している安全研究プロジェクトのうち、中間評価の対象となるプロジェクトは表 1 に示す 1 件である。

表 1 中間評価対象プロジェクト

	プロジェクト名	実施期間
1	燃料健全性に関する規制高度化研究	H19－H33

1.2 評価方法

「今後の研究評価の進め方について」（平成 30 年 11 月 21 日原子力規制委員会報告）に基づき実施した。評価に当たり、燃料技術評価検討会の外部専門家及び専門技術者の意見を聴取した。

2. 中間評価結果

当該安全研究プロジェクトについては、海外試験炉の廃止に対応した研究計画の見直しの必要性が発生したが、研究の実施状況についてはおおむね適切に管理されていることなどを確認した。

当初計画の適切性及び研究の実施状況に対する評価結果の概要は表 2 のとおりである。当該プロジェクトの中間評価結果は、別紙 1 のとおり。

表 2 中間評価結果

評価項目		燃料健全性に関する規制高度化研究	
当初計画の適切性		計画を見直し継続する	
研究の実 施状況	項目別評価	①研究の進め方に対する技術的適切性	A(3)
		②研究マネジメントの適切性	B(2)
		③業務管理の適切性	A(3)
	総合評価	項目別評価結果の総合点	8
		項目別評価結果の平均点	2.7
評価結果(全体評語)		B	

- * 項目別評価に示す括弧内の数字は、SABC による項目別評価結果を数字に換算（S を 4 点、A を 3 点、B を 2 点、C を 1 点）したものを示す。
- * 総合評価の評価結果は、項目別評価結果の平均点が 3.3 点以上を S、3.0 点以上～3.3 点未満を A、2.0 点以上～3.0 点未満を B、2.0 点未満を C とする。

燃料健全性に関する規制高度化研究（H19～H33）の中間評価結果

1. 研究概要

- 異常過渡条件を保守的に模擬した研究炉照射試験において、高燃焼度燃料が従来知見とは異なる形態（被覆管外面割れ）で破損したことが観察されている。また、被覆管水素吸収量の増大により被覆管の延性が低下し、基準値に近づく傾向が見られる。これらを考慮した場合にも燃料破損防止に関する現行基準が妥当であることを確認するために、必要な知見の取得を目的とした研究を実施してきた。
- 改良型燃料の審査の際の技術根拠を取得する研究の一環として、燃料集合体の変形防止に関連し、合金組成を変えた改良燃料被覆管の照射成長挙動に関する知見を得ることを目的とした研究を行ってきた。

2. 現状の研究成果

- 被覆管外面割れについては、被覆管を用いた炉外試験を計画どおり完了し、外面割れ破損発生条件の定量化と破損に至るまでの時間を解析的に評価する手法の整備を行った。外面割れ破損発生条件を研究炉（ハルデン炉）にて確認する計画としていたが、ハルデン炉が廃止されたためこれを中止し、解析により炉内条件と炉外条件の差異を検討することとした。
- 被覆管の延性低下については、使用済燃料から採取した燃料被覆管に水素添加及び水素化物再配向処理を施した試験片を用いた内圧破裂試験を完了し、破断伸びデータを取得して、水素化物の配向と延性低下の関係を明らかにし、今後破損防止基準の妥当性について検討する。
- 改良合金被覆管の照射成長については、試験片の照射試験を完了し、今後合金の組成や水素濃度に依存した照射成長挙動を評価する。

3. 燃料技術評価検討会における主な意見及びその対応

- 多くの貴重な結果が得られており、得られた結果をどのように活用するかが重要であるとの意見があった。本プロジェクトで得られた成果については、論文等により適宜公表し、基準等の妥当性確認に活用していくこととする。
- ハルデン炉が使用できないことを受けて、当初の目的が達成できるか否かを確認し、場合によっては目標を含めて計画変更を検討するよう意見があった。ハルデン炉試験の代替として実施する解析とこれまでに得た炉外試験の結果を合わせることで、燃料ペレットと被覆管のクリープの影響等、炉内条件と炉外条件の差異を検討することは可能であると考えられる。
- 本研究において、他で実施されていない新たなアプローチをしているのであれば、アピールしたほうがよいとの意見があった。一例として、本研究では、被覆管水素化物の析出形態を画像処理により指標化して、被覆管の周方向破断伸びとの関係を整理している。このような独自のアプローチについては、論文等として取りまとめていくこととする。

4. 中間評価結果

(1) 当初計画の適切性（研究の必要性）： 計画の見直しが必要である

- 燃料破損形態の変化（被覆管の外面割れ）に関する研究については、異常過渡時の燃料破損防止に関連し知見を得る必要があることから、計画を基本的に継続する必要がある。ハルデン炉に代わる適当な代替炉が見当たらないことから、解析研究により補足して炉内条件での燃料挙動を評価することは、おおむね目標を達成するためにはやむを得ない対応であるが、これにあわせてプロジェクト終期は平成 33 年度から 32 年度に変更する必要がある。
- 水素吸収量の増加に伴う燃料被覆管の延性低下に関する研究は平成 30 年度を終期としており、燃料破損防止基準の技術的根拠を拡充するために、これまでに得られた成果を計画どおりに取りまとめ公表することが適切である。
- 改良被覆管の照射成長については、照射が終了したことから照射後試験を進め、平成 32 年度のプロジェクト終期までに成果の取りまとめと公表を行うことが適切である。

(2) 項目別評価

① 研究の進め方に対する技術的適切性： A

- 異常過渡時の燃料挙動を考慮した実験及び解析を組み合わせ、また、重要な現象に着目した評価手法を考案して研究を進めており、技術的に適切な手法をもって研究が行われていると判断する。

② 研究マネジメントの適切性： B

- 外的要因により研究炉での試験を取りやめることとなり研究計画に変更が生じるが、解析研究により炉内挙動を評価するなど目標をほぼ達成できる見込みである。一方、外部情勢や規制ニーズを考慮し研究計画の見直しを行って効率的に試験を進めることも可能であったと考える。これらを踏まえ、本研究では、一部問題があったものの、おおむね適切に研究マネジメントが行われていると判断した。

③ 事業管理の適切性： A

- 事業期間において予算執行や請負契約履行において問題は無く、適切に管理が行われたと判断できる。

(3) 総合評価

- 評価結果： B
- 評価コメント：

外部要因により一部の研究計画の見直しが必要であるが、目標とする知見がおおむね取得できる見込みである。計画に沿って着実に研究を進め、規制への反映に必要な知見の取得を完了し研究成果を取りまとめること。

5. 評価結果の今後の活用

- 評価結果に基づき研究計画の一部を見直し、異常過渡条件での被覆管外面割れ、水素吸収量増大に伴う被覆管延性低下、及び改良被覆管の照射成長に関する研究を平成 32 年度まで行い、燃料破損基準や燃料集合体健全性評価に必要な知見を取得し成果を取りまとめることとする。

安全研究成果調査票

燃料健全性に関する規制高度化研究

担当部署：システム安全研究部門
 担当責任者：北野 剛司 企画調整官
 担当者：山内 紹裕 技術研究調査官、秋山 英俊 技術研究調査官、小澤 正明
 技術研究調査官、緒方 恵造 技術参与、廣瀬 勉 技術参与

委託先：株式会社グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン（2.1, 2.2 に関する研究）
 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（2.3 に関する研究）

1. 研究概要（実施期間：平成 19 年度～平成 33 年度）

ジルコニウム合金製の燃料被覆管は軽水炉の通常運転中、冷却水との酸化反応によって発生した水素の一部を吸収し、固溶限を超えて吸収された水素はジルコニウム水素化物（以下「水素化物」という。）として析出する。過去実施された燃料棒に出力過渡を与える試験（以下「出力急昇試験」という。）において、水素化物が関与した新たな破損形態が観察された。また、水素化物の析出が著しく進行した場合、燃料被覆管の強度及び延性が低下する懸念がある。

耐食性を改善するために合金元素含有量を調整した改良合金被覆管については、通常運転中の照射に伴う燃料棒の伸び（照射成長）に関する知見の取得が十分ではなく、照射成長量が多い場合は、燃料棒及び燃料集合体が過度に変形する可能性がある。

これらの燃料健全性に関し生じた課題を踏まえ、以下を実施してきた。

（1）外面割れ破損限界に関する技術知見の拡充

過去に試験炉において実施した出力急昇試験において観察された、高燃焼度 BWR 燃料被覆管の外面に発生した初期亀裂が内面に向かって進展することにより生じる燃料破損（以下「外面割れ破損」という。）の様子を図 1 に示す。現行の燃料健全性に関する判断根拠¹⁾整備時には、外面割れ破損は観察されていなかった。そのため、当該判断根拠の見直しの要否を検討するため、外面割れ破損の発生メカニズム・発生条件を明らかにすることとした。なお、過去の試験により、PWR 条件では発生した亀裂が進展せず、外面割れ破損に至らないことが確認されている。

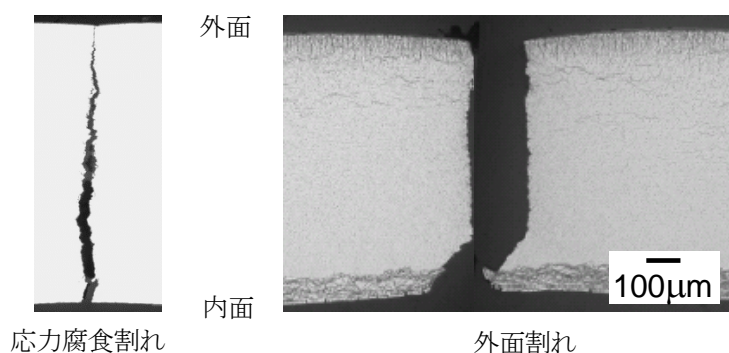


図 1 応力腐食割れと外面割れの断面比較

Fig. 1 Comparison of the cross-section between stress corrosion cracking and outside-in cracking

これまで、使用済燃料被覆管単体を用いた炉外での過渡模擬試験を実施し、被覆管外面における水素化物析出条件、外面における初期亀裂発生応力、発生した亀裂の進展速度等に関するデータを取得した。平成 31 年度以降、これらの炉外試験結果に基づき、過渡時燃料棒線出力と被覆管に発生する応力、外面割れ破損に至るまでの時間等を解析的に評価する。なお、これらの炉外試験及び解析により得られた知見を検証するために試験炉（ハルデン炉、ノルウェー）において使用済燃料棒を用いた出力急昇試験の実施を計画していたが、ハルデン炉の廃止を受けて同試験計画は中止した。

(2) 燃料被覆管の機械的健全性に関する技術知見の拡充

燃料被覆管には異常な過渡変化時に破損しないことが要求されている。それに対応する具体的判断基準は、「被覆管の円周方向の平均塑性ひずみが 1%以下であること」とされており¹⁾、塑性ひずみ 1%以下では被覆管は破損しないと評価されてきた。当該判断基準の策定時と比較して燃料は高燃焼度化し、それに伴い被覆管の水素濃度が増加している²⁾ (図 2)。被覆管の水素濃度が増大すると延性は低下する傾向にあり³⁾ (図 3)、現状の知見では被覆管の周方向破断伸び (破損に至る平均塑性ひずみ) の下限値は 1%より大きいものの、判断基準に対する余裕が少なくなっている。水素濃度が更に増加した場合には、破損に至る平均塑性ひずみが 1%以下となる可能性も考えられるため、水素濃度が大きく増加した燃料被覆管が機械的破損に至る応力、ひずみ等に関する知見を拡充してきた。

これまで、使用済燃料被覆管の内圧破裂試験により、水素濃度及び周方向破断伸びの関係を調べた。また、水素化物析出状態が異なる試験片を用いた内圧破裂試験により、水素化物の析出形態が被覆管の強度、延性等の機械特性に与える影響を調べた。これらを整理・考察し、現行判断基準の高燃焼度燃料への適用性を確認する。

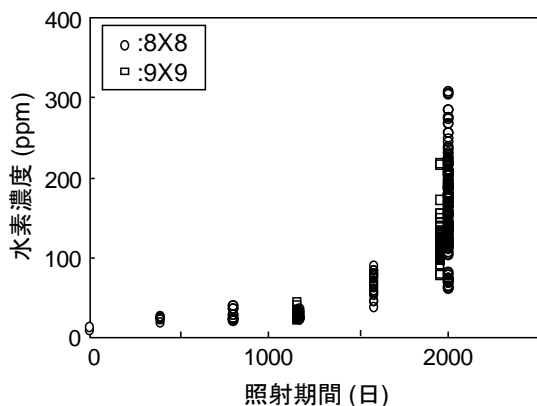


図 2 燃料被覆管中の水素濃度と照射期間の関係²⁾
Fig. 2 Hydrogen content of cladding in relation to irradiation time¹⁾

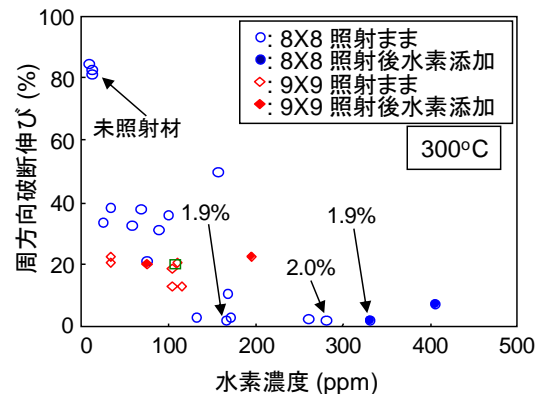


図 3 燃料被覆管の内圧破裂試験による破断伸びと燃料被覆管中の水素濃度の関係³⁾
Fig.3 Fracture elongation in relation to hydrogen content²⁾

(3) 改良合金被覆管の照射成長試験

安全性向上の観点から、耐食性の改善を目的として、現行燃料から被覆管の合金元素含有量等を調整した PWR 及び BWR 改良型燃料の開発が国内外で進められており、海外ではその一部が既に実用化され、商業炉における利用が進んでいる。国内においても改良型燃料の導入が見込まれており、導入の際の適合性審査に向け、燃料の健全性には重要であるが知見が十分でない合金成分や被覆管の加工及び熱処理条件が照射成長挙動に及ぼす影響に関して技術知見を拡充してきた。

これまで、試験炉（ハルデン炉）における各種改良合金被覆管試料の照射を平成 23 年度に開始し、試験炉の定期停止時に中間試験を実施しつつ平成 29 年度末まで照射を継続し、照射成長に関する知見を拡充した。今後、試験片の照射後試験を実施し、合金成分、熱処理条件等と照射成長量との関係を評価する。

(4) 全体工程

研究の全体工程を表 1 に示す。

表 1 全体工程
Table 1 Overall time schedule

	平成 19 ~26 年度	平成 27 年度	平成 28 年度	平成 29 年度	平成 30 年度	平成 31 年度	平成 32 年度	平成 33 年度
(1) 外面割れ破 損限界に関 する技術知 見の拡充	炉外試験 (~H23 年度)	出力急昇試験準備 ▼ 成果公表			出力過渡時の被覆管 応力、外面割れ破損 に至るまでの時間等 の解析的評価		得られた 成果の総 合評価	▼ 成果公表
(2) 燃料被覆管 の機械的健 全性に関す る技術知見 の拡充	内圧破裂試験 (H22 年度~)	供試材断面金相写真の画像解析、 水素化物析出形態及び被覆管延性 の関係に関する検討 ▼ 成果公表			▼ 成果公表	得られた成果 の総合評価	▼ 成果公表	
(3) 改良合金被 覆管の照射 成長試験	試験炉における照射試験 (H23 年度~) ▽▽▽▽ 中間試験による照射成長データ取得				照射後試験		得られた成果 の総合評価	▼ 成果公表

2. 平成 30 年度までの主要成果

2.1 外面割れ破損限界に関する技術的知見の拡充

2.1.1 外面割れ破損限界に係る炉外試験

異常な過渡変化により燃料棒出力が増大すると、ペレットが膨張し被覆管との機械的相互作用（PCMI：Pellet-Cladding Mechanical Interaction）が生じる。また、ペレット中心から被覆管外面への熱流束が増大することで被覆管内外面温度勾配も増大し、被覆管中に固溶している水素原子は外面側に熱拡散する。外面割れは、PCMI による被覆管への荷重負荷及び水素原子の熱拡散が重畳して発生する事象と考えられるため、これらを模擬するため、中心ヒータによる熱流束下で燃料被覆管に内圧を负荷する試験装置（図 4）を用いて各種試験を実施した。試験にあたっては、図 5 に示すように外面割れの発生機構を、(1) 被覆管外面近傍における半径方向水素化物析出、(2) 外面初期亀裂発生及び (3) 亀裂進展の各過程に区分し、(1) 及び (2) についてはその発生条件を、(3) については応力状態と亀裂進展速度の関係をそれぞれ定量評価した。また、それらの結果に基づき炉外試験における外面割れ破損時間を解析的に評価した。

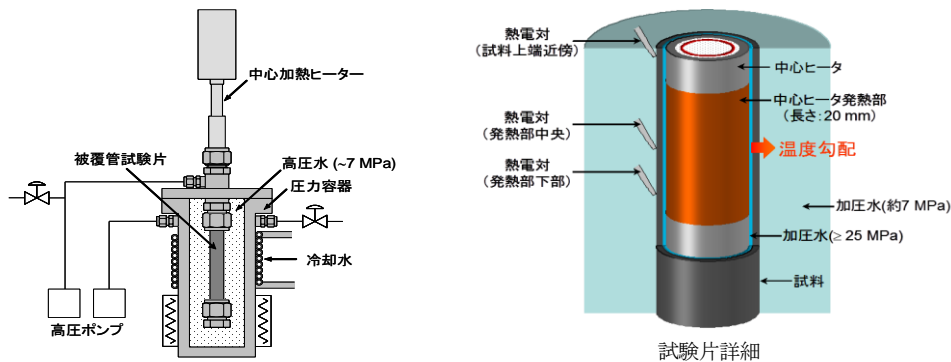


図 4 温度勾配下内圧負荷試験装置の模式図

Fig. 4 Schematic diagrams of the device of internal pressure loading test under temperature gradient

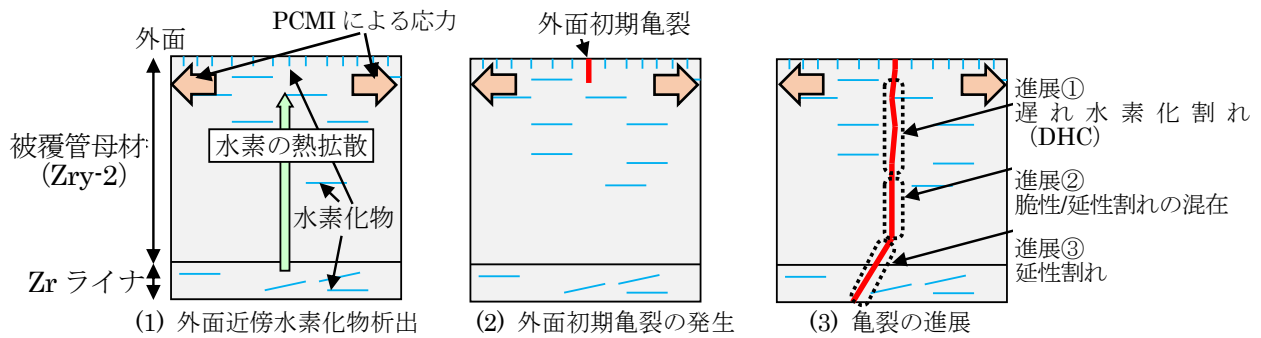


図 5 外面割れ発生機構の模式図

Fig. 5 Schematic illustrations of the outside-in cracking process

(1) 水素熱拡散試験

被覆管外面近傍における半径方向水素化物析出挙動を調べるため、使用済 8×8 型及び 9×9A 型燃料被覆管に温度勾配下で周方向引張応力（平均応力 200~400MPa）を負荷し、一定時間保持する水素熱拡散試験を実施した。試験後、断面金相を観察し外面近傍における半径方向水素化物析出の有無を確認した。供試材及び試験条件を表 2 に、試験後の金相写真例を図 6 に、試験結果を図 7 に示す。なお、試験結果は中心ヒータの偏心により生じる周方向の温度不均一の影響を解析により補正した実効線出力を用いて整理した。得られた試験結果に基づき、温度勾配下での水素拡散挙動を解析し、被覆管外面近傍に半径方向水素化物が析出するまでの時間と線出力の関係を得た。（図 7 に併記）

(2) 外面割れ模擬試験

外面初期亀裂発生条件について調べるため、使用済 8×8 型及び 9×9A 型燃料被覆管に温度勾配下で上記水素熱拡散試験より高い応力（平均応力 650~700Mpa）相当の内圧を負荷した状態で一定時間保持し、亀裂進展による被覆管の破損有無を調べる外面割れ模擬試験を実施した。内圧の保持時間は最長 120min とし、内圧急減により被覆管破損を検知した場合はその時点で試験を終了した。供試材及び試験条件を表 3 に示す。各条件における破損の有無を、有限要素法により算出した被覆管外表面応力及び実効線出力で整理した結果を図 8 に示す。実効線出力が高い条件（約 47kW/m）では、他と比べて低い外表面応力（644MPa）で破損が発生したものの、破損が発生する外表面応力の線出力依存性は明確ではない。

破損に至らなかった試料の外観及び断面金相観察では外表面に未貫通亀裂は観察されなかったことから、本試験において初期亀裂が発生した試料は全てその進展により破損に至ったと判断した。以上を踏まえ、破損に至った試験における最小の外表面応力を初期亀裂が発生する最小の応力とした。

表 2 水素熱拡散試験の試験条件
Table 2 Conditions of hydrogen diffusion test

供試材	水素濃度 (ppm)	ヒータ出力 (kW/m)	周応力 (MPa)	保持時間 (min)
5 サイクル照射材 (8X8 型)	231	45	200	120
	208		400	
	220		650	
5 サイクル照射材 (9X9A 型)	301	30	200	120
	269	35	200	120
	253	45	200	30
	264			60
	103			120
	261			400
	249			

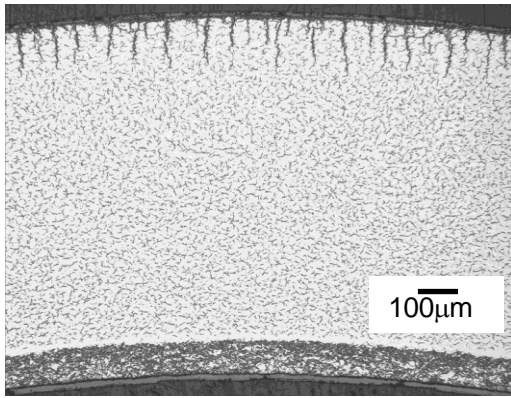


図 6 水素熱拡散試験後の金相写真例
Fig. 6 Example of optical microscope of the specimen after hydrogen diffusion test

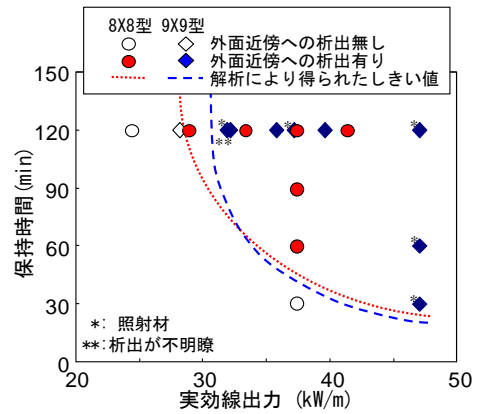


図 7 外面近傍に半径方向水素化物が析出するまでの時間と線出力の関係
Fig. 7 Diffusion time and heat generation rate relations for outer rim hydride precipitation

表 3 外面割れ模擬試験の試験条件
Table 3 Conditions of simulated outside-in cracking test

供試材	水素濃度 (ppm)	ヒータ出力 (kW/m)	周方向応力 (MPa)	保持時間 (min)	備考
5 サイクル照射材 (8X8 型)	220	45	650	120	照射まま
	212	35		120	
	239	40		120	
	169	45	700	94	
	141	45		84	
	196	35	750	34	
	205	40		26	
	193	45		15	
5 サイクル照射材 (9X9 型)	295	40	600	120	水素添加
	280	45		120	
	100	45	670	71	照射まま
	281	35	700	75	水素添加
	266	40		53	
	258	45		28	
	100	45	700	39	照射まま
	103	45		50	
	101	40		51	
	294	40	730	91	水素添加
	273	45		28	

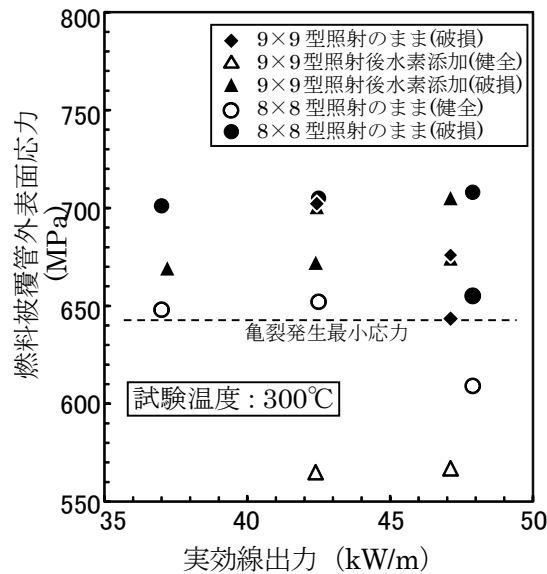


図 8 外面割れ模擬試験における破損の有無と燃料被覆管外表面応力及び線出力の関係
 Fig. 8 Presence or absence of cladding failure in the relationship of outer surface stress and heat generation rate during the outside-in cracking simulation test

(3) 亀裂進展試験

外面初期亀裂発生後の亀裂進展挙動について調べるため、予亀裂を形成した使用済 8×8 型及び 9×9A 型燃料被覆管並びに未照射 9×9A 型燃料被覆管 (図 9) に、温度勾配下で周方向引張応力 (200~400MPa) を負荷し、一定時間保持する亀裂進展試験を実施した。供試材及び試験条件を表 4 に示す。試験後の破面形態からその進展の過程が①DHC (Delayed Hydride Cracking; 遅れ水素化割れ)、②脆性と延性が混在した亀裂進展 (「脆性/延性」と表記)、③延性破壊であることがわかった。また、試験結果より亀裂進展速度と応力拡大係数との関係を得た。(図 10) なお、照射材及び未照射材を亀裂が進展しなかった試料 (亀裂進展速度が 0) 以外で比較すると、照射材は亀裂進展が開始する応力拡大係数が高く、亀裂進展速度も高い値を示した。

(4) 外面割れ破損に至る時間の解析的評価

外面割れ破損の発生機構のうち、水素の熱拡散による被覆管外面近傍への半径方向水素化物析出、初期亀裂の発生及び亀裂進展は時間依存の過程であり、被覆管への応力負荷から破損に至るまでに遅れ時間 (以下「破損時間」という。) がある。破損時間は、外面割れ破損に対する過渡時燃料健全性を評価する上で重要であるため、得られた試験結果に基づき、外面割れ模擬試験条件下での破損時間を以下のとおり解析的に評価した。

破損時間は、被覆管外面近傍に半径方向水素化物が析出し始めるまでの時間 (t_1)、析出した半径方向水素化物が一定の長さに成長するまでの時間 (t_2)、発生した亀裂が進展し肉厚を貫通するまでの時間 (t_3) の和とした。 t_1 は、Sawatzky⁴⁾による拡散方程式に(1)の結果から算出した輸送熱を取り入れ水素拡散を解析し、Takagi ら⁵⁾が示した析出、溶解モデルを用いることで算出した。 t_2 については、(2)の結果から初期亀裂長さと被覆管外表面の周方向応力、実効線出力との関係を求め、その初期亀裂長さまで半径方向水素化物が成長するまでの時間として計算した。なお、水素化物の成長速度は線出力に依存するとした。 t_3 については、亀裂進展速度が応力拡大係数に依存するものとして計算した。この手法により計算した破損時間及び試験における破損時間を比較した結果を図 11 に示す。本手法で得られた破損時間はばらつきがあるものの、外面割れ模擬試験結果の傾向を比較的良く説明していると考えられる。

表 4 亀裂進展試験の試験条件
Table 4 Conditions of crack propagation test

供試材	水素濃度 (ppm)	ヒータ出力 (kW/m)	周方向応力 (MPa)	保持時間 (min)	予き裂長さ (mm)	
					発熱部	非発熱部
5 サイクル照射材 (8×8 型)	188	40	200	30	0.28	0.27
	179	40	300	30	0.24	0.28
	186	30		30	0.30	0.21
	194	20		17	0.15	0.24
	173	40	400	4	0.22	0.20
5 サイクル照射材 (9×9A 型) (水素添加、徐冷)	268	40	300	5	0.27	0.33
	259	30		10	0.18	0.29
	258	20		19	0.28	0.31

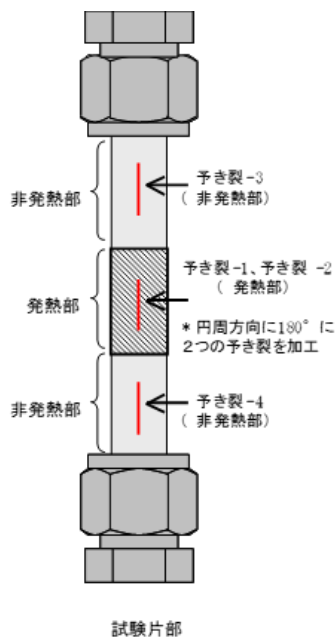


図 9 予亀裂を形成した試験片の模式図
Fig. 9 Schematic diagram of a pre-cracked specimen

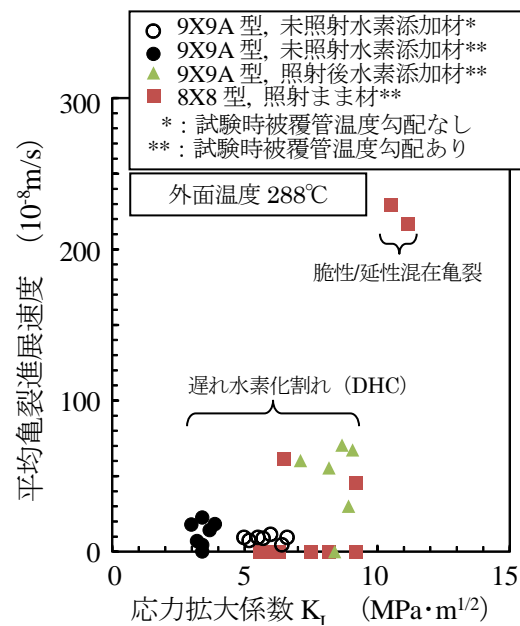


図 10 平均亀裂進展速度と応力拡大係数の関係
Fig. 10 Average crack propagation velocity in relation to stress intensity factor

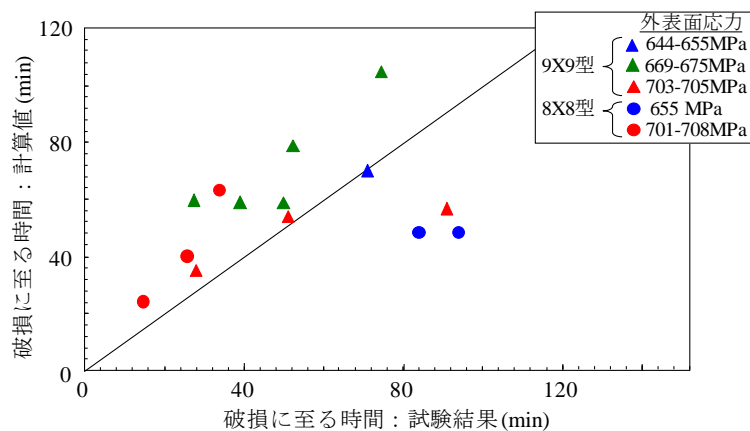


図 11 外面割れ破損に至るまでの時間の計算値と試験結果の比較
Fig. 11 Comparison of time to fracture between test result and calculation

2.1.2 炉内試験による外面割れ発生条件の妥当性確認

2.1.1 で述べた被覆管単体を用いた炉外試験では内圧加圧によって一定応力を負荷したが、実際の燃料棒では、被覆管応力は PCMI により発生し、またその応力は燃料ペレット及び被覆管のクリープ変形により時間とともに緩和するなど挙動が異なる。そのため、試験炉で使用済燃料棒を用いた出力急昇試験を実施し、被覆管単体での炉外試験により取得した外面割れ発生条件及びそれに基づく破損時間評価手法を確認・検証する計画としていた。しかし、出力急昇試験に用いるハルデン炉の廃止が決定された（平成 30 年 6 月）ため、本試験は中止した。これに伴い研究計画を変更し、異常過渡時の燃料棒線出力と PCMI による被覆管応力及びその経時変化を燃料挙動解析コードにより評価し、炉外試験結果から定量化した外面割れ破損発生条件の妥当性を評価する方針とした。

2.2 燃料被覆管の機械的健全性に関する技術的知見の拡充

燃料被覆管中の水素濃度及び水素化物析出形態が燃料被覆管の延性等に及ぼす影響を調べるため、使用済高燃焼度燃料被覆管を用いた内圧破裂試験を実施した。

2.2.1 被覆管の強度及び延性に及ぼす水素濃度の影響

商用 BWR で 5 サイクル使用した高燃焼度 8×8 型及び 9×9A 型燃料から採取した被覆管試験片を用いて内圧破裂試験を実施した。試験片として、照射ままの被覆管に加えて LiOH 水溶液中で加熱することにより水素添加した被覆管を準備した。試験方法は、被覆管試験片の両端を Oリングを介したカバーで密封し、内圧による軸方向引張荷重が試験片に負荷されない構造とすることで円周方向単軸引張応力状態となるオープンエンド内圧破裂方式とした。得られた強度及び周方向破断伸びと水素濃度の関係を図 12 に示す。なお、周方向破断伸びは、試験後の破損部最大直径から求めた周長から破損開口幅を引いた値を試験前の周長で除した値である。また、水素濃度は被覆管内面の Zr ライナ層も含めて分析したものである。図中には過去に実施した、試験片の端部に端栓を取り付けて内圧による周方向と軸方向応力が試験片に負荷される二軸応力状態（周方向対軸方向応力比 2 : 1）のクローズドエンド内圧破裂試験の結果³⁾も併せて示した。また、オープンエンド内圧破裂試験による強度及び周方向破断伸びは、評価時にクローズドエンド内圧破裂試験の二軸応力条件相当の値に補正した⁶⁾。

強度に関しては、水素濃度が増加しても大きな変化はみられなかった。周方向破断伸びは水素濃度の増加とともに低下する傾向を示したもののばらつきが大きかった。試験温度 300℃における周方向破断伸びは、水素濃度が 200~400ppm で約 2%程度まで低下したがそれ以上の水素濃度では低下傾向は見られず、水素濃度 1200ppm でも周方向破断伸びは約 2.4%であった。

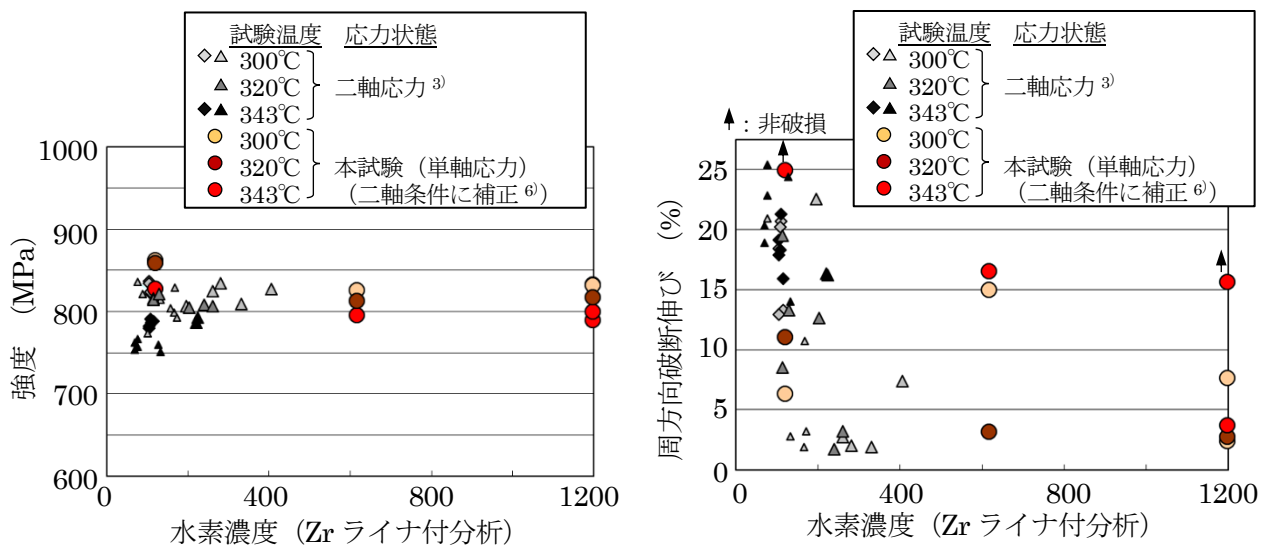


図 12 内圧破裂試験による破断伸びと燃料被覆管中の水素濃度の関係
Fig.12 Fracture elongation in relation to hydrogen content

2.2.2 被覆管の延性に及ぼす水素化物析出方位の影響

被覆管の延性に及ぼす水素化物析出方位の影響を調べるため、商用 BWR で 5 サイクル使用した高燃焼度 8×8 型及び 9×9A 型燃料から採取した被覆管に水素化物析出方位調整処理を施した試験片を用いて内圧破裂試験を実施した。水素化物析出方位調整処理は、被覆管試料に円周方向引張応力約 150MPa 相当の内圧を負荷した状態で LiOH 水溶液中で加熱することにより水素を添加することで行った。内圧破裂試験はオープンエンド方式とし、試験温度は 300°Cとした。過去に 300°Cで実施したクローズドエンド内圧破裂試験の結果^{3) 6)}も評価に加えた。オープンエンド内圧破裂試験による破断伸びは、評価時に二軸応力条件相当の値に補正した⁴⁾。また、内圧破裂試験後の試験片の端部近傍から採取した試料を用い、試験片の水素濃度分析及び金相観察を実施した。試験片の水素濃度分析においては、Zr ライナ付の被覆管全体の平均水素濃度を求める分析と、被覆管試験片から Zr ライナ層を研削除去した Zry-2 領域のみの平均水素濃度を求める分析を行った。試験片の水素分析結果及び内圧破裂試験条件を表 5 に、被覆管中の水素化物析出状態を観察した金相写真を図 13 に示す。

表 5 内圧破裂試験片の水素分析結果及び試験条件

Table 5 Specimen hydrogen contents and test conditions for the internal pressurization burst test

試験片 番号	試験片種類	試験片			内圧破裂試験	
		水素添加	水素濃度 (ppm)		試験温度 (°C)	試験方式
			ライナ付	ライナ除去後		
(1)	5 サイクル照射 BWR8×8 型 燃料被覆管	なし (照射まま)	205	133	300	オープンエンド方式
(2)		なし (照射まま)	187	128		オープンエンド方式
(3)		なし (照射まま)	261	分析値なし		クローズドエンド方式 ³⁾
(4)		なし (照射まま)	281	分析値なし		クローズドエンド方式 ³⁾
(5)		あり (内圧加圧なし)	331	分析値なし		クローズドエンド方式 ³⁾
(6)		あり (内圧加圧下)	713	192		オープンエンド方式
(7)		あり (内圧加圧下)	763	222		オープンエンド方式
(8)		あり (内圧加圧下)	1303	320		オープンエンド方式
(9)		あり (内圧加圧下)	1401	343		オープンエンド方式
(10)	5 サイクル照射 BWR9×9A 型 燃料被覆管	なし (照射まま)	119	65		オープンエンド方式
(11)		なし (照射まま)	120	67		オープンエンド方式
(12)		あり (内圧加圧なし)	615	284		オープンエンド方式 ³⁾
(13)		あり (内圧加圧下)	265	102		オープンエンド方式
(14)		あり (内圧加圧下)	277	150		オープンエンド方式
(15)		あり (内圧加圧下)	661	204		オープンエンド方式
(16)		あり (内圧加圧下)	655	113		オープンエンド方式
(17)		あり (内圧加圧下)	1434	213		オープンエンド方式
(18)		あり (内圧加圧下)	1515	315		オープンエンド方式

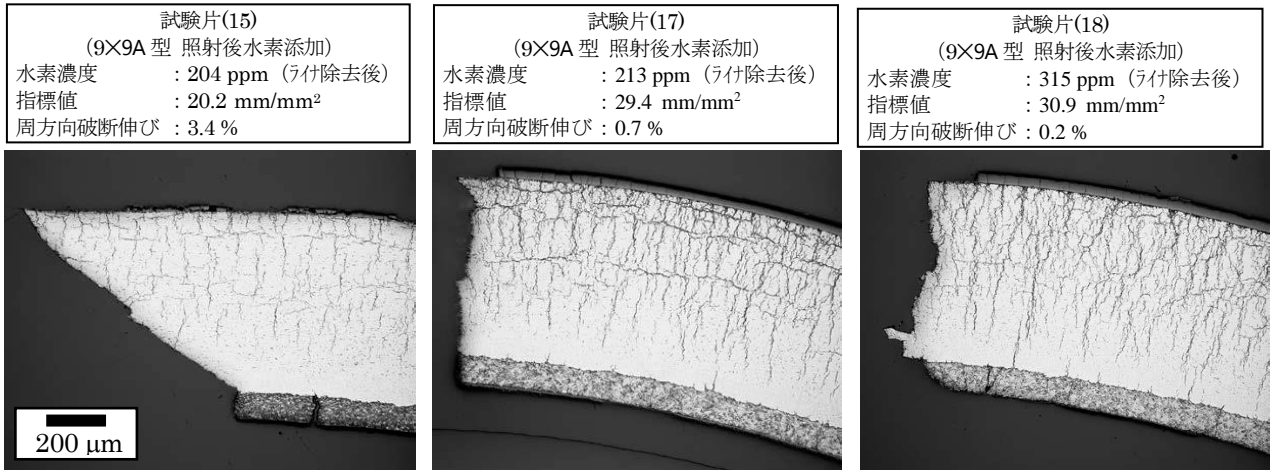


図 15 亀裂部分の断面金相写真の例

Fig. 15 Examples of micrographs of cross-sections at fracture openings

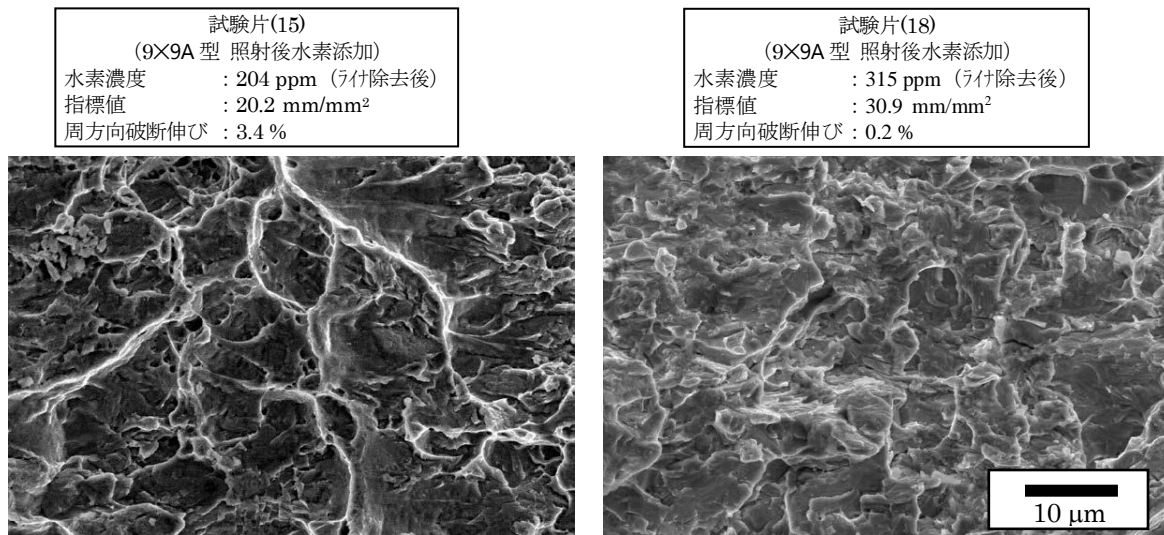


図 16 破面 SEM 写真の例

Fig. 16 Examples of SEM images of fracture surfaces

2.3 改良合金被覆管の照射成長試験

改良型燃料被覆管について、原子炉内での使用中に燃料棒及び燃料集合体に過度の変形をもたらす原因となる照射成長挙動に関する知見を取得するため、Zr-Nb 二元系合金を含む PWR 用改良燃料被覆管試験片をハルデン炉で照射する照射成長試験を実施した。供試材とした改良合金被覆管の組成を表 6 に示す。一部の合金については、冷間加工で加工した後の熱処理を行わない冷間加工 (CW) 材、加工組織が全て再結晶化する熱処理を行った再結晶化焼鈍 (RX) 材、再結晶化はしないが冷間加工による残留応力を除去する熱処理を行った応力除去焼鈍 (SR 材)、及び部分的に再結晶化する熱処理を行った部分再結晶化焼鈍 (P-RX) 材等の熱処理条件が異なる材料が含まれている。

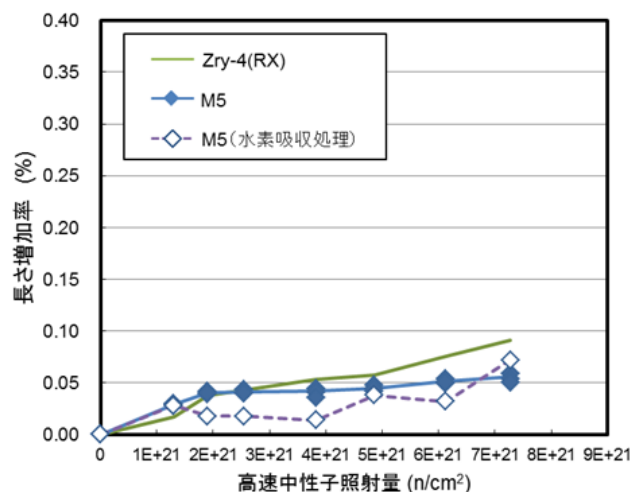
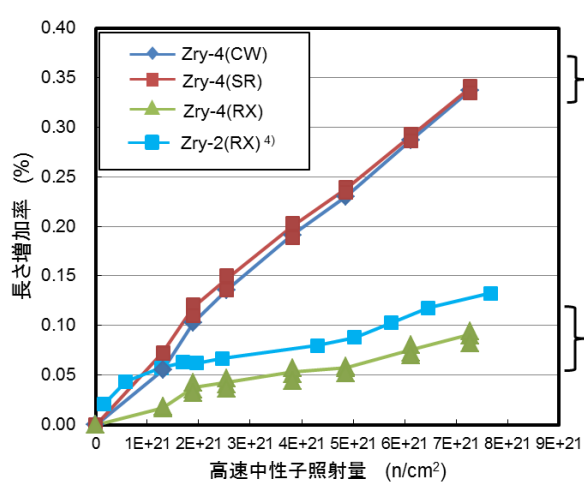
照射成長試験では、2つの照射試験リグを用いて温度 240℃、300℃、320℃で試験片を照射し、試験片を照射リグから定期的に取り出して長さを測定することで照射成長 (長さの増加率) を評価した。平成 23 年度に照射試験を開始したのち、平成 29 年度末までに高速中性子照射量は約 8×10^{21} n/cm² (E>1MeV) に到達した。

試験結果の代表例として、照射温度 300℃における照射成長量と高速中性子照射量の関係を図 17 に示す。高速

中性子照射量が約 $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ における各試験片の照射成長量は 0.05~0.4% である。Zry-4 試験片については、RX 材の照射成長が CW 材及び SR 材に比べ小さく、合金成分が同じでも熱処理により照射成長の挙動が異なることがわかる。M5 試験片（製造時最終熱処理は RX）及び Zry-4 (RX) を比較すると、約 $5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ までは同等の成長量を示している。それ以上の領域では Zry-4 (RX) の成長量の方が大きいようにも見られるため、今後照射後試験により詳細を調べる。また、水素吸収処理 M5 試験片は、通常の M5 試験片と成長挙動が異なるようにも見え、今後照射後試験を通して照射成長挙動に及ぼす水素の影響について考察を進める。

表 6 照射成長試験に供した改良合金被覆管の合金組成
Table 6 Composition of improved cladding alloys for the irradiation growth test

合金名	組成 (wt%)						備考
	Nb	Sn	Fe	Cr	O	Zr	
M5	1.0	—	0.04	—	0.14	Bal.	比較対照材料
M-MDA	0.5	0.5	0.3	0.4	—		
Q12	1.0	0.5	0.1	—	0.14		
J-Alloy_J2	1.0	—	—	0.1	0.1		
J-Alloy_J3	2.5	—	—	—	0.1		
Opt-ZIRLO	1.0	0.67	0.1	—	—		
Zry-4	—	1.20 – 1.70	0.18 – 0.24	0.07 – 0.13	0.09 – 0.13	Bal,	
ZIRLO	0.9 – 0.13	0.90 – 1.2	0.1	—	0.09 – 0.15		
E110opt	1.0		0.04	—	—		
E635M	0.8	0.8	0.35	—	—		



(1) Zry-4 (Zr-Sn-Fe-Cr系合金)

(2) Zr-Nb-Sn-Fe (-Cr)系合金

[CW: 冷間加工材, SR: 応力除去焼鈍材, RX: 再結晶化焼鈍材, P-RX: 部分再結晶化焼鈍材]

図 17 照射成長試験における試験片の長さ増加率と高速中性子照射量の関係 (照射温度 320°C)

Fig. 17 Irradiation growth of improved cladding alloys in relation to the fast neutron fluence (Irradiation temperature: 320°C)

3. まとめ

外面割れ破損発生機構の各過程について個別に炉外試験を実施し、初期亀裂の起点となる半径方向水素化物が燃料被覆管外面近傍に析出するための時間と出力との関係、初期亀裂が発生する燃料被覆管外表面応力、初期亀裂が進展する際の応力拡大係数と亀裂進展速度の関係を調べ、高燃焼度燃料の外面割れ発生条件を定量化した。また、得られた試験結果に基づき、外面割れ模擬試験条件下での破損時間を解析的に評価した。

使用済燃料から採取した燃料被覆管に水素添加及び水素化物再配向処理を施した試験片を用いて内圧破裂試験を実施することで、燃料被覆管の水素濃度、水素化物析出形態が燃料被覆管の機械的性質に及ぼす影響を調査した。試験結果より、水素濃度が高くかつ半径方向への水素化物析出の度合いが高い場合は、周方向破断伸びが1%以下になることがわかった。また、周方向破断伸び約1%を境に被覆管の破損挙動が変化しており、約1%以下の周方向破断伸びを示す被覆管は脆性的な破壊挙動を示していた。

Zr-Nb 二元系合金等の試験片をハルデン炉で約 $8 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ まで照射し、中間試験により照射成長量の高速中性子照射量依存性に関する知見を拡充した。

4. 研究の進捗及び目標の達成状況

外面割れ破損限界に関する技術知見の拡充については、被覆管単体を用いた炉外試験を計画どおり完了し、得られたデータから外面割れ破損発生条件を定量化し、また破損に至るまでの時間を解析的に評価する手法を整備した。試験炉で使用済燃料棒を用いた出力急昇試験により、応力緩和下での外面割れ破損挙動・外面割れ破損発生条件を調べる計画としていたが、ハルデン炉が廃止された（平成30年6月決定）ためこれを中止した。これに伴い研究計画を変更し、異常過渡時の燃料棒線出力とPCMIによる被覆管応力及びその経時変化を燃料挙動解析コードにより評価し、炉外試験結果から定量化した外面割れ破損発生条件の妥当性を評価する方針とした。

燃料被覆管の機械的健全性に関する技術知見の拡充については、使用済燃料から採取した燃料被覆管に水素添加及び水素化物再配向処理を施した試験片を用いた内圧破裂試験を完了し、現行判断基準の高燃焼度燃料への適用性確認に必要なデータを得ることができた。本項目は計画どおり進捗している。

改良合金被覆管の照射成長については、試験片の照射試験を完了し、概ね目標としていた照射量を得ることができた。また、中間試験で得られた各試料の長さ増加率から、製造条件が照射成長等の挙動に及ぼす影響に関する知見を拡充した。本項目は計画どおり進捗している。

5. 今後の課題及び安全研究計画の変更

外面割れ破損限界については、当初の計画では事業終了年度を平成33年度としていたが実施期間を短縮し、平成32年度に事業を終了することとする。また、得られた成果は平成32年度内に論文としてとりまとめる計画である。

燃料被覆管の機械的健全性に関する技術知見の拡充については、取得したデータの整理・考察を進め、現行判断基準の高燃焼度燃料への適用性を確認するとともに、平成30年度内に論文としてとりまとめる計画である。

改良合金被覆管の照射成長については、照射試験及び照射後試験で取得したデータの整理・考察を進め、改良合金被覆管を使用した燃料集合体の形状が使用期間中全体にわたって適切に維持されるか否かを判断する際の技術的根拠として活用できるように、平成32年度内に論文としてとりまとめる計画である。

6. 成果の活用について

6.1 外面割れ破損限界に関する技術知見の拡充

被覆管単体での炉外試験により外面割れ破損発生条件に関する技術知見を取得した。これに基づき、炉内条件下における異常過渡時の被覆管応力を解析的に評価し、炉外試験の妥当性を評価して外面割れ破損に関する技術的知見を拡充し、燃料健全性に関する判断根拠の見直し要否検討に資する。

6.2 燃料被覆管の機械的健全性に関する技術知見の拡充

被覆管の機械的健全性については、照射済燃料被覆管の内圧破裂試験により、被覆管の水素濃度及び水素化物析出方位が延性等の機械特性に与える影響を調べた。これらを整理して試験結果の考察を進め、現行判断基準の高燃焼度燃料への適用性を確認する。

6.3 改良合金被覆管の照射成長

改良合金被覆管の照射成長については、試験炉（ハルデン炉）における各種改良合金被覆管試料の照射を継続し、照射成長に関するデータを取得した。今後、試験片の照射後試験を実施し、改良合金の組成、熱処理等が照射成長挙動に及ぼす影響に関する技術知見を取得し、審査等における判断の技術的根拠として活用する。

7. 成果の公表等

7.1 NRA 技術報告

なし

7.2 論文投稿

- (A) K. Une, K. Ogata, et al., The Terminal Solid Solubility of Hydrogen in Irradiated Zircaloy-2 and Microscopic Modelling of Hydrogen Behavior, Journal of Nuclear Materials, 389, pp. 127-136, 2009. (査読あり)
- (B) T. Kubo, K. Ogata, et al., In-Situ Scanning Electron Microscope Observation and Finite Element Method Analysis of Delayed Hydride Cracking Propagation in Zircaloy-2 Fuel Cladding Tube, Journal of ASTM International, Vol.8, No. 3, 2011. (査読あり)

7.3 国際会議プロシーディングス

- (C) K. Ogata, et al., Progress in the Research Programs to Elucidate Axial Cracking Fuel Failure at High Burnup, Proc. 2007 International LWR Fuel Performance Meeting, San Francisco, Sept. 30 – Oct. 3 (2007). (査読あり)
- (D) K. Ogata, et al., Separate Effects of Factors Affecting Outside-in Cracking of High Burnup Fuel Cladding, Proc. 2008 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Seoul, Seoul, Korea, Oct. 19-23, 2008. (査読あり)
- (E) Y. Endo, et al., Ab-initio Study of the Influence of Pressure on the Hydrogen Diffusion Behavior in Zirconium Hydrogen Solid Solution, Materials Science and Technology 2008, Pittsburgh, USA, Oct. 5-10, 2008. (査読あり)
- (F) K. Ogata, et al., Effects of Heat Flux on Hydrogen Diffusion and Hydride Induced Crack Propagation in Zr-lined Zircaloy-2 Cladding Tube, Proc. Top Fuel 2009, Paris, Sept. 6-10, 2009. (査読あり)
- (G) K. Ogata, et al., Hydrogen Thermal Diffusion and Crack Propagation Behaviors in Irradiated Zircaloy-2 Cladding Tubes, Proc. 2010 LWR Fuel Performance Meeting, Orlando, USA, Sept. 26-29, 2010. (査読あり)
- (H) K. Ogata, et al., Hydrogen-Induced Crack Initiation and Propagation in Zr-Lined Zircaloy-2 Cladding Tubes, 2011 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Chengdu, China, Sept. 11-14, 2011. (査読あり)
- (I) K. Ogata, et al., Effect of Increased Hydrogen Content on the Mechanical Performance of Irradiated Cladding Tubes, Proc. Top Fuel 2012, Manchester, UK, Sept. 2-6, 2012. (査読あり)
- (J) K. Ogata, et al., Conditions to Cause Cladding Failure by Hydrogen-Induced Cracking, Proc. 2013 LWR Fuel Performance Meeting, Charlotte, USA, Sept. 15-19, 2013. (査読あり)
- (K) A. Yamauchi, et al., An Overview of Experimental Studies On the Hydride-Induced Fuel Failure during Power Ramp, OECD/NEA Workshop – Pellet-Cladding Interaction (PCI) in Water-Cooled Reactors, Lucca, Italy, June, 2016. (査読なし)

7.4 学会発表

- (L) 緒方恵造 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (1) 温度勾配下における燃料被覆管中水素の再分布試験、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月 (査読なし)

- (M) 久保利雄 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (2) 燃料被覆管半径方向亀裂進展速度の微視的評価、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月 (査読なし)
- (N) 牟田浩明 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (3) 有限要素法による亀裂先端近傍の水素拡散解析、日本原子力学会 2008 年秋の大会、2008 年 9 月 (査読なし)
- (O) 久保利雄 他、日本原子力学会 2009 年秋の大会 (4) 燃料被覆管半径方向亀裂進展速度の微視的評価Ⅱ、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月 (査読なし)
- (P) 牟田浩明 他、日本原子力学会 2009 年秋の大会 (5) 有限要素法による亀裂近傍の水素流量評価、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月 (査読なし)
- (Q) 緒方恵造 他、日本原子力学会 2009 年秋の大会 (6) 熱拡散による燃料被覆管外周部への水素化物集積条件評価試験、日本原子力学会 2009 年秋の大会、2009 年 9 月 (査読なし)
- (R) 馬場利和 他、日本原子力学会 2010 年秋の大会 (7) 照射済み燃料被覆管の半径方向水素熱拡散試験、日本原子力学会 2010 年秋の大会、2010 年 9 月 (査読なし)
- (S) 緒方恵造 他、日本原子力学会 2010 年秋の大会 (8) 外面割れ亀裂発生模擬試験、日本原子力学会 2010 年秋の大会、2010 年 9 月 (査読なし)
- (T) 緒方恵造 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (9) 外面初期亀裂発生条件の評価、日本原子力学会 2011 年秋の大会、2011 年 9 月 (査読なし)
- (U) 緒方恵造 他、高燃焼度燃料破損限界試験 (10) 燃料被覆管の外面割れによる破損条件の検討、日本原子力学会 2012 年秋の大会、2012 年 9 月 (査読なし)
- (V) 山内紹裕 他、使用済 BWR 燃料被覆管の機械的性質に及ぼす水素化物析出形態の影響、日本原子力学会 2016 年春の年会、2016 年 3 月 (査読なし)
- (W) 山内紹裕 他、内圧破裂試験による高燃焼度 BWR 燃料被覆管の機械的性質評価、日本原子力学会 2018 年春の年会、2018 年 3 月 (査読なし)

7.5 その他

- (X) Research Program on the Key Factors Controlling Outside-in Cracking Fuel Failure, Enlarged Halden Programme Group Meeting, Loen, Norway, May 18-23 .2008.
- (Y) A. Yamauchi, et al., Quantification of Morphology of Zr-Hydride Precipitates for Evaluation of High-Burnup Fuel Cladding Mechanical Property, NuMat2016, Montpellier, Nov. 7-10, 2016.

文 献

- 1) 「燃料被覆管は機械的に破損しないこと」の解釈の明確化について、原子炉安全基準専門部会報告書、昭和 60 年 7 月 18 日原子力安全委員会了承
- 2) Y. Hirano, et al., Irradiation Characteristics of BWR High Burnup 9X9 Lead Use Assemblies, Proc. 2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting, Kyoto, Oct. 2-6, 2005.
- 3) 平成 18 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験 成果報告書、(独) 原子力安全基盤機構、07 基炉報-0003、平成 19 年 11 月
- 4) A. Sawatzky, Hydrogen in Zircaloy-2: Its Distribution and Heat of Transport, J. Nucl. Mater., 2, 4, pp.321-328 (1960) .
- 5) I Takagi, et al., A Simple Model for Hydrogen Re-Distribution in Zirconium-lined Fuel Claddings, J. Nucl. Science Technol.,30, 1 (2002) .
- 6) K. Ogata, et al., Effect of increased hydrogen content on the mechanical performance of irradiated cladding tubes, Proc. TOPFUEL 2012, Manchester, UK, Sept. 2-6, 2012.

技術評価検討会の外部専門家及び専門技術者

(1) 燃料技術評価検討会

外部専門家

有馬 立身 九州大学大学院工学研究院エネルギー量子部門助教
黒崎 健 大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻准教授

専門技術者

大塚 康介 東京電力ホールディングス株式会社原子力・立地本部
原子力人財育成センター所長
高島 勇人 関西電力株式会社原子燃料サイクル室
原子燃料サイクル部長
平井 睦 日本核燃料株式会社上席主幹研究員

(参考) 技術評価検討会の中間評価開催日程

燃料技術評価検討会	第2回検討会	平成30年11月30日(金)
	書面審議	平成30年12月17日(月)
		～平成30年12月18日(火)