

# 高燃焼度改良型燃料の事故時挙動に関する研究

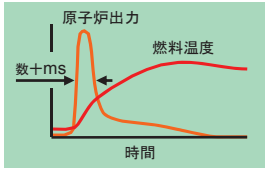
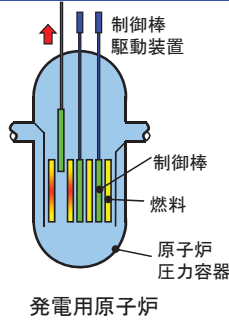
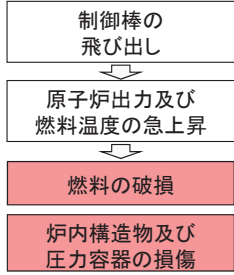
日本原子力研究開発機構 安全研究センター 燃料安全研究グループ

安全性向上の観点から、従来の材料に比べ腐食等による劣化が少ないとされる「改良型燃料」\*の導入が、今後国内の原子力発電所で見込まれる

(\*改良型燃料とは：従来の燃料材料から、耐食性向上のため合金組成を変更した被覆管やFPガス放出抑制等のため結晶組織を変更したペレットを採用した燃料)

・事故時挙動データ等、その安全性を審査する際の技術的根拠を国として保有している必要がある  
・現行の規制基準の妥当性を確認する必要がある

## 反応度事故(RIA)

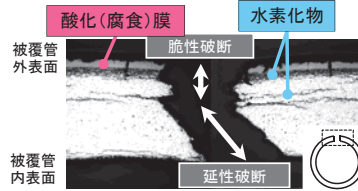


RIAにおける原子炉出力の暴走をNSRRのパルス出力運転により模擬

## 発電用原子炉で長期間使用された燃料(高燃焼度燃料)で見られるPCMI(ペレット-被覆管機械的相互作用)破損



NSRR実験でPCMI破損した高燃焼度PWR燃料棒の外観例\*1

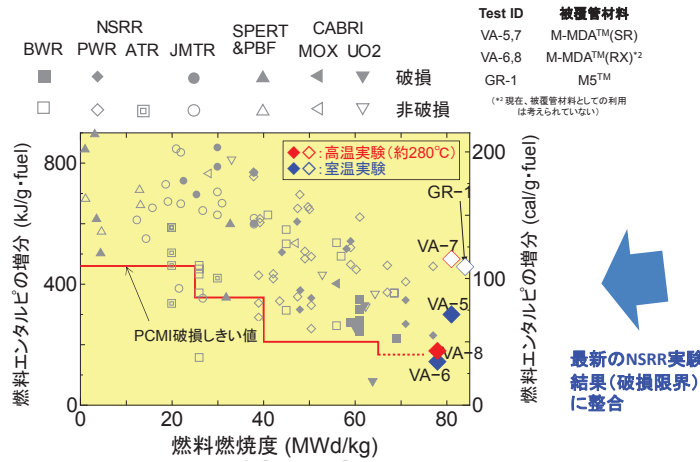


PCMI破損したPWR燃料被覆管の断面\*

・燃料の原子炉内滞在時間が長くなると、燃料被覆管(Zr合金)は、冷却材による外表面の酸化(腐食)及びこれに伴い発生する水素が金属部に吸収されることで脆化  
・RIA時の急速な燃料出力上昇に伴いペレットの温度が上昇し、この際のペレットの熱膨張によって、脆化した被覆管が内側から急速に押し上げられることで、燃料棒の破損に至ることがある

\*1 Fuketa T. et al., J. Nucl. Mater., 248 (1997).

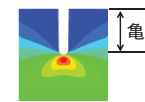
## 最近の研究成果



高燃焼度改良型燃料のPCMI破損限界\*4

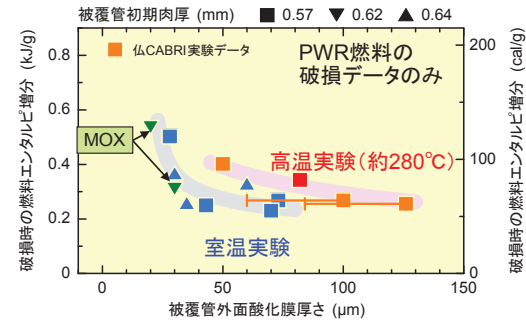
現在のPCMI破損しきい値(規制基準)が、燃焼度80 MWd/kg程度まで妥当であること及び改良型燃料にも適用できることを確認

水素化合物が高密度に析出した領域(水素化合物リム)の内側まで亀裂が到達



・亀裂先端に応力集中  
・形成した亀裂の深さ(水素化合物リムの厚さ)によって、亀裂を進展させる力が変化  
被覆管の破損限界は水素化合物リムの厚さに依存:  
腐食量に基づく整理が有効

最新のNSRR実験結果(破損限界)に整合

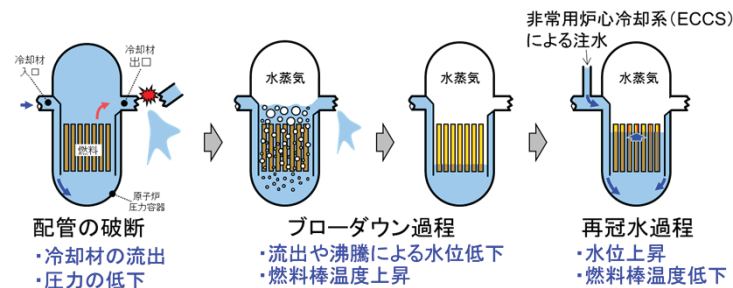


PCMI破損メカニズムに基づく試験結果の整理\*3

水素化合物リムの厚さは被覆管外面酸化膜厚さに依存することから、破損限界と外面酸化膜厚さには相関があると考えられ、上図はこの考察を裏付けている。また、高温時に破損限界が上昇すること、またMOX燃料の破損限界がUO<sub>2</sub>と同等であることも示唆

\*3 Sugiyama T. et al., Proc. Top Fuel 2009, paper no. 2086, (2009)

## 冷却材喪失事故(LOCA)



## 被覆管の脆化に関する規制基準(旧原子力安全委員会決定・ECCS性能評価指針)

目的: 被覆管の著しい脆化を防ぎ、炉心の冷却が可能な形状を維持(燃料棒の破断や破砕の広範な発生を防止)

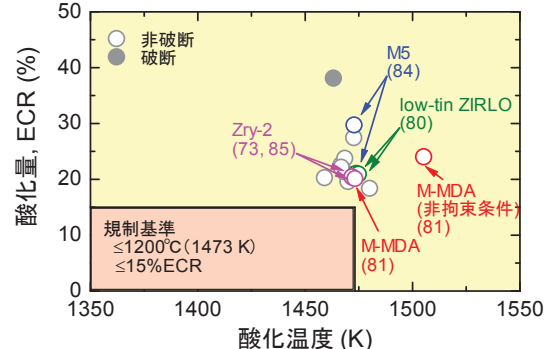
基準値: 燃料被覆最高温度は1200°C(1473 K)以下

酸化割合は被覆管厚さの15%以下

根拠: 急冷時に被覆管が破断しない酸化条件

## 最近の研究成果

・LOCA時の温度履歴及び軸方向荷重を適切に模擬した被覆管急冷破断試験を燃料試験施設にて実施



高燃焼度改良型燃料被覆管の急冷破断試験結果\*4(括弧内数値は燃焼度(GWd/t))

改良型燃料被覆管は急冷時に破断せず → 現行の規制基準が改良型燃料被覆管及び85 GWd/tまでの燃焼度範囲において妥当であることを確認

\*4 Amaya M. et al., proc.of Top Fuel 2016, paper no. 17289, (2016).

発電用原子炉施設の安全性に関する規制基準の妥当性確認及び高度化に貢献する成果を取得

(本研究の一部は、原子力規制庁からの委託事業で実施したものです)

## 軽水炉燃料の事故時挙動に関する研究

日本原子力研究開発機構 安全研究センター 燃料安全研究グループ

### ■ 高燃焼度改良型燃料の事故時挙動に関する研究

発電用原子炉施設が安全に設計されていることを確認するため、通常時に加え、様々な事故を想定した場合について安全評価が行われます。この評価において想定される事故は設計基準事故と呼ばれ、その代表例が、制御棒が何らかの理由により炉心から急に抜けた際の出力暴走すなわち反応度事故（RIA）、及び配管の破断等により原子炉内の水が失われる冷却材喪失事故（LOCA）です。

発電用原子炉施設の安全確保は様々な機器類によって達成され、燃料には「放射性物質の閉じ込め」、「冷却可能形状の維持」及び「制御棒挿入性の維持」という安全上の役割が求められます。RIA 時及び LOCA 時にも発電用原子炉施設の安全確保に必要な機能が維持されることを確認するためには、これらの事故時に燃料の安全機能が維持される限界を把握しておくことが必要かつ重要です。

燃料安全研究グループでは、日本原子力研究開発機構が所有する原子炉安全性研究炉（NSRR）、燃料試験施設（RFEF）、等の施設を活用して RIA や LOCA の模擬実験を行い、設計基準事故における燃料挙動や破損メカニズムに関する理解を深めると共に、発電用原子炉施設の安全評価に必要なデータの拡充及び燃料に関する安全評価手法の開発を行っています。近年は、安全性向上の観点から導入が見込まれる改良型燃料に関して、国としてその安全性を審査する際の技術的根拠を取得するため、及び現行の規制基準を適用する妥当性を確認するために必要な研究を進めています。この研究においては、欧州より輸送した高燃焼度改良型燃料を対象とした RIA 模擬試験及び LOCA 模擬試験を実施しています。

#### (1) 高燃焼度改良型燃料に対する RIA 模擬試験

RIA 時の急速な反応度投入に伴い、事故直後には燃料ペレット温度が急激に上昇します。通常運転中の被覆管には腐食に伴い発生した水素の一部が吸収されますが、この水素吸収によって被覆管が脆化している場合、熱膨張したペレットが被覆管を押し広げるペレット-被覆管機械的相互作用（PCMI）により燃料が破損する恐れがあります。NSRR を用いて現在までに RIA 模擬試験を実施した改良型燃料については、高燃焼度においても Zry-4 被覆管を用いた従来設計の燃料に比べ破損限界が高い傾向があること、及び破損限界の上昇は主として耐食性の改善に伴う水素吸収量の低減によることを明らかにしました。

#### (2) 高燃焼度改良型燃料に対する LOCA 模擬試験

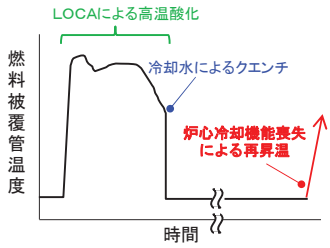
LOCA 時には炉心に非常用炉心冷却系から冷却材が急速に注入されますが、炉心が再冠水するまでの間、被覆管は高温水蒸気に曝されて酸化し、酸化による脆化が著しい場合には炉心再冠水時の急冷に伴う熱衝撃によって燃料棒が破断する恐れがあります。LOCA 時の炉心が冷却可能な形状に維持されるかを評価する上で、被覆管の破断条件及び破断限界を把握しておくことが極めて重要です。LOCA 模擬急冷破断試験を実施した結果、高燃焼度改良型被覆管の LOCA 時の破断限界が従来材料と同等であること、また、現行の規制基準が改良型被覆管及び 85 GWd/t までの燃焼度域において妥当であることを明らかにしました。

本研究の一部は、原子力規制庁からの委託事業で実施したものです

# LOCA時の酸化/急冷が再昇温時の被覆管の酸化/脆化挙動へ及ぼす影響\*

日本原子力研究開発機構 安全研究センター 燃料安全研究グループ

## 冷却材喪失事故(LOCA)後の再昇温



LOCAにおいて、高温酸化した燃料棒はECCSからの冷却水注入で急冷(クエンチ)される

急冷後の長期冷却中に炉心冷却機能喪失事象が生じると、燃料棒が再昇温する可能性がある

LOCA時の酸化・急冷を経た被覆管の酸化/脆化挙動は明らかでない

## 研究の目的

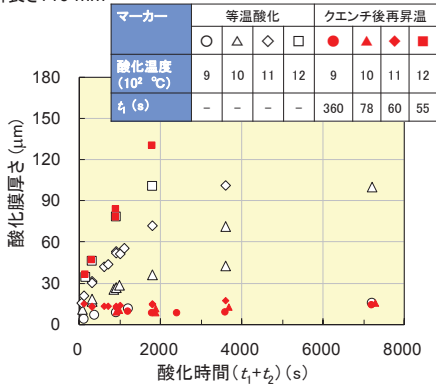
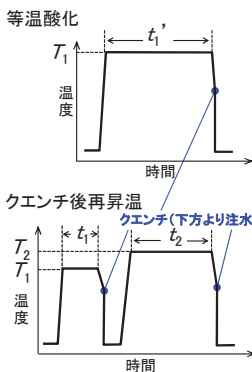
再昇温前のLOCA時の酸化・急冷が、再昇温時のジルカロイ-4被覆管の酸化/脆化挙動に及ぼす影響を調べる

- ✓ 酸化挙動評価 → 両面酸化試験
- ✓ 脆化挙動評価 → リング圧縮試験
- ✓ 総合評価 → 急冷破断試験

## 酸化/脆化挙動評価試験

### 両面酸化試験

被覆管試料長さ: 10 mm



両面酸化試験時の試料温度履歴 被覆管酸化膜厚さと等温酸化時間の関係

酸化温度1000及び1100°Cでは、クエンチ後再昇温において酸化膜の成長(酸化)が抑制された

クエンチ後再昇温 ( $T_1=T_2$ ) の酸化膜結晶構造の推定

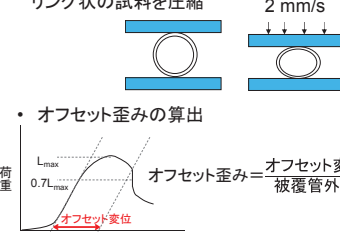
保持温度[°C]	初期酸化	再昇温後
900	単斜晶	単斜晶
1000	正方晶	単斜晶
1100	正方晶	単斜晶
1200	正方晶	正方晶

- 結晶構造変化なし
- 結晶構造変化あり
- Anomalous oxidation
- 結晶構造変化なし

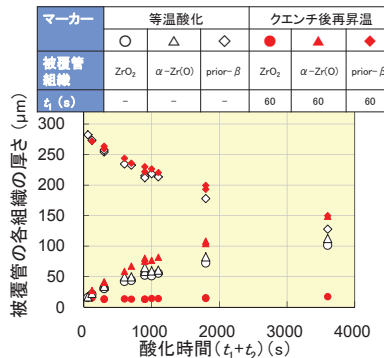
酸化膜( $ZrO_2$ )の結晶構造は冷却を経て正方晶から酸素が拡散しにくい単斜晶に変化する(Anomalous oxidation) [1,2]  
→酸化膜成長(酸化速度)の差はこれに起因すると考えられる

### リング圧縮試験

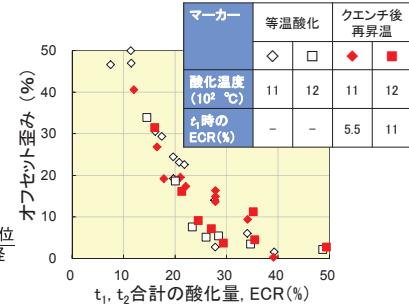
135°Cの恒温槽内で、長さ8 mmのリング状の試料を圧縮



リング圧縮試験の概要

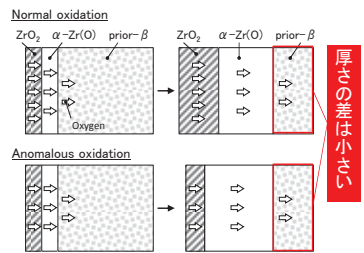


被覆管の各組織厚さと等温酸化時間の関係 (酸化温度: 1100°C ( $T_1=T_2$ ))



オフセット歪みと酸化量(ECR)の関係 (ECRはBaker-Just式による計算値)

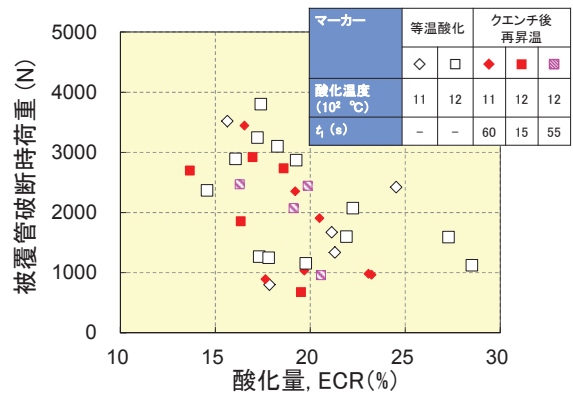
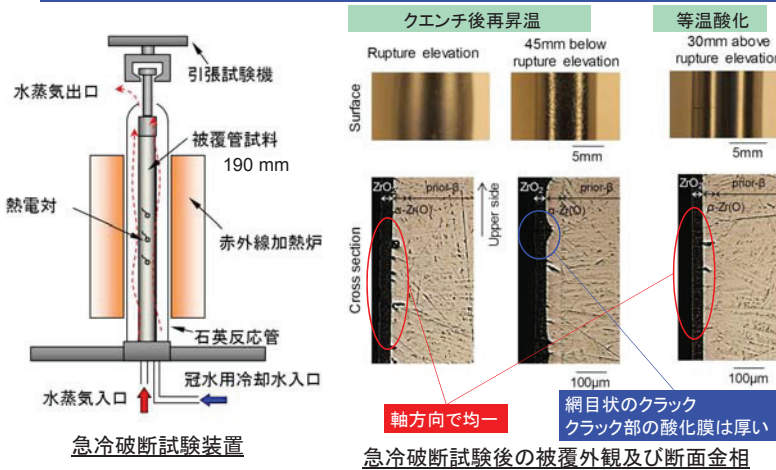
被覆管の脆化の程度を示すオフセット歪みに対し、Anomalous oxidationの影響は小さい



通常の酸化(等温酸化)とAnomalous oxidationの進行過程概略

等温酸化とAnomalous oxidationの間で、被覆管の強度への寄与が大きいprior-β相厚さの差は小さい  
→Anomalous oxidationが被覆管の脆化に及ぼす影響は小さい

## 急冷破断試験



被覆管破断時荷重と酸化量(ECR)の関係 (ECRはBaker-Just式による計算値)

Anomalous oxidation並びに急冷時の熱応力により酸化膜に生じるクラックは、被覆管破断時荷重に影響しない

- LOCA時の酸化/急冷は、再昇温時の被覆管の酸化膜成長(酸化速度)を抑制する
- 再昇温後の被覆管の脆化の程度は再昇温なしの場合と同等である

## ■ LOCA 時の酸化/急冷が再昇温時の被覆管の酸化/脆化挙動へ及ぼす影響

発電用原子炉施設が安全に設計されていることを確認するために想定される事故の一つとして、一次系配管の破断等により原子炉から冷却材が流出する冷却材喪失事故 (LOCA) があります。LOCA 時には炉心の水位の低下に伴い燃料棒の温度が上昇しますが、その後非常用炉心冷却系の作動により炉心に冷却水が注入されることで急冷されます。この冷却中ないし冷却後に冷却水の再循環機能喪失等の事象が発生した場合には、燃料が再び水蒸気雰囲気下で高温となる恐れがあります。このような再昇温時における被覆管の酸化及び脆化挙動に対し、最初の LOCA 時冷却水注入に伴う急冷時熱衝撃等が影響を及ぼすことが考えられますが、これに関する定量的な評価はこれまでほとんど行われていません。この影響を明らかにするため、水蒸気雰囲気中、900℃から 1200℃の温度で初期酸化した後室温の冷却水にて急冷し再び昇温、酸化及び急冷 (クエンチ後再昇温) した未照射ジルカロイ-4 被覆管試料を用いて両面酸化試験、リング圧縮試験及び急冷破断試験を実施しました。比較のため、途中で急冷を行わない場合 (等温酸化) の試料についても同様の試験を実施しました。ここで、酸化試験中の試料の酸化量 (ECR) が同等になるよう、安全評価で使用されている Baker-Just の酸化速度式を用いてクエンチ後再昇温試験条件と等温酸化条件を設定すると共に、同式に基づき評価した ECR で上記の試験結果を整理しました。

初期酸化後に 900℃から 1200℃の温度範囲で実施した両面酸化試験の結果、特定の急冷後再昇温の条件、すなわち、再昇温酸化時の温度が 1000℃及び 1100℃の条件では、等温酸化の場合に比べ被覆管の酸化膜成長や重量増加が抑制されることが分かりました。このような酸化速度の抑制は、酸化膜 ( $ZrO_2$ ) の結晶構造が急冷を経て正方晶から酸素が拡散しにくい単斜晶に変化することに起因していると考えられます (anomalous oxidation)。一方、両面酸化試験後試料の断面金相観察結果から、ECR が同等であれば prior- $\beta$ 相の厚さはクエンチ後再昇温の場合と等温酸化の場合とで同等であることが分かりました。prior- $\beta$ 相の厚さは急冷後の被覆管の機械強度と正の相関があることから、被覆管の脆化の程度を示すリング圧縮試験時のオフセット歪みにも同様な傾向が見られました。急冷破断試験においては、初期酸化後の急冷時の熱応力に起因して生じたと考えられるクラックがクエンチ後再昇温後の被覆管の表面酸化膜に見られましたが、急冷後再昇温を経た被覆管の破断時荷重は等温酸化の場合のそれと同等でした。これらの結果は、クエンチ後再昇温に伴う anomalous oxidation 及び初期酸化後の急冷に伴い発生する酸化膜中のクラックがクエンチ後再昇温後の被覆管の脆化にほとんど影響しないことを示唆しています。また、急冷後再昇温を含む温度推移条件下での被覆管の脆化挙動は、安全評価において使用されている Baker-Just 酸化速度式を用いて算出した ECR で整理及び評価できることが分かりました。

本研究で得られた、LOCA 時の高温酸化や急冷が LOCA 後の炉心冷却機能喪失時の燃料被覆管の酸化及び脆化挙動に及ぼす影響に関する知見は、設計基準事故を超える条件下の燃料被覆管の健全性の評価に資するものです。