解説

「核燃料技術高度化の現状と展望」シリーズ②

軽水炉燃料技術の高度化

(株)グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン) 田辺 朗,
(住友金属工業株) 穴田 博之, (原子燃料工業株) 小林 慎一,
(電力中央研究所) 木下 幹康, (三菱重工業株) 土井 莊一,
(日本原子力研究所) 中村 仁一, 更田 豊志, 永瀬 文久, 鈴木 元衛, 上塚 寛

軽水炉燃料は国内外で多くの運転実績を蓄積し、これまでに設計、製造技術の改良が進められ、系統的な燃料破損を克服して信頼性の向上が図られてきた。これに留まらず、高い信頼性と高い経済性の両立を目指した高性能燃料の開発が進められている。本稿では、最近の商用軽水炉燃料について、信頼性向上および経済性向上に関する設計製造、研究開発の各方面での動向を紹介する。

I. 高燃焼度化燃料の開発

経済性向上の観点から、燃料サイクル費の低減、使用済燃料発生量の低減、長期運転サイクルへの対応を目指した高燃焼度化燃料の開発が行われている。これらの開発は既存炉へもバックフィットできることが必要であり、限られた変更裕度の中で進められている。

BWR 燃料では、使用実績を確認しながらステップ I, II, III と段階的に高燃焼度化が図られている。新型 8 × 8 ジルコニウムライナ燃料(ステップ I)では、ジルコニウムライナ被覆管を採用して耐 PCI(燃料ペレット-被覆管相互作用)特性を飛躍的に改善し、取出平均燃焼度は約 33 GWd/t となった。高燃焼度 8 × 8 型燃料(ステップ II)は、燃料集合体構造部材の設計改良とともに、濃縮度を従来よりも高くして高燃焼度化を図り、経済性をさらに向上させた燃料である。取出平均燃焼度は 39.5 GWd/t に、また集合体最高燃焼度もステップ I の 40 GWd/t から 50 GWd/t に増加した。ステップ II 燃料では、照射中の FP ガス放出を抑制するために、燃料棒の初期ヘリウム加圧量の増加(5 気圧)、ペレット密度の増加などの改良が施されている。また、太径のウォーターロッド 1 本を集合体中央に配し、その周りに 60 本の燃料棒を 8 行 8 列(8 × 8)に配して構成されている。スペーサに

は、限界出力特性などを向上する目的で丸セル型スペーサ、上部タイプレートは低圧損型の設計が採用されている。

現在、本格使用が開始された 9 × 9 型燃料(ステップ III)では、燃料棒配列を 9 行 9 列とし、濃縮度を上げて取出平均燃焼度を 45 GWd/t、集合体最高燃焼度を 55 GWd/t に増加している。高燃焼度化のために濃縮度を上げると、中性子スペクトルの硬化によるボイド反応度係数増加、炉停止余裕の減少など、炉心特性上好ましくない現象が生じる。これは水対ウラン比を増加させて中性子スペクトルを柔らかくすることで解決するが、8 行 8 列の格子では燃料棒本数が減少し、熱的余裕が小さくなる。また、燃料棒本数の減少には核設計の自由度が小さくなるデメリットもある。そこで、燃料棒配列を 9 行 9 列に変更することにより燃料集合体当たりの燃料棒本数を増加させ、平均線出力密度を低下させるとともに、核設計の自由度を増加させる設計としている。これら燃料構造の変遷を第 1 図(ステップ III 燃料は A 型のみ)に示す。

将来燃料では、改良型 9 × 9 燃料や燃料サイクル上の制約を超えた大幅高燃焼度化が考えられており、改良燃料ペレットおよび構造材料用新合金の開発が推進されている¹⁾。

PWR では、高燃焼度化の第 1 段階(ステップ I)として、集合体最高燃焼度 39 GWd/t から 48 GWd/t に引き上げられた燃料が 1989(平成元)年より実用化された。さらにステップ II として、集合体最高燃焼度 55 GWd/t への引き上げが計画され、1997(平成 9)年から少数体による先行照射が実施され 2001(平成 13)年度以降の導入が計画されている。また、中性子経済を向上させる改良とし

Advances in Nuclear Fuel Technology-(2) *Advances in Nuclear Fuel Technology for LWRs*: Akira TANABE, Hiroyuki ANADA, Shinichi KOBAYASHI, Motoyasu KINOSHITA, Soichi DOI, Jinichi NAKAMURA, Toyoshi FUKETA, Fumihisa NAGASE, Motoe SUZUKI, Hiroshi UETSUKA.

(2002年 6月13日 受理)

第1図 BWR 燃料構造の変遷

て、ジルカロイグリッドの開発が行われている。現在、開発が終了し、少数体8体の発電炉での照射試験が実施され、今後、実用化が図られていく計画である。

Ⅱ. 高燃焼度化に伴う燃料挙動

高燃焼度化に伴う燃料挙動上の主な特徴は、炉内滞在時間が増すことから被覆管の外表面酸化腐食量および水素吸収量が増加し、延性が低下すること、またFPガス放出による燃料棒内圧が増大するため被覆管への機械的負荷が増加し、設計基準に対する裕度が減少することにある。このため、被覆管の耐食性改善やFPガス放出率の低減を狙った燃料棒構成要素の改良開発が進められている。

また、高燃焼度特有の現象として、燃料ペレットの外周部に気孔率の高い領域が出現する現象(リム効果)や燃料ペレットの熱伝導率の低下に代表される熱特性の変化などが観測され、これらが燃料性能上どの程度影響を及ぼすかを把握する研究が進められている。

1. 被覆管改良・開発²⁾

被覆管の耐食性改善では、組成調整(低Sn化)や新しいZr合金の開発、また製造工程での熱処理条件を制御することで耐食性の向上が図られている。

BWRでは、ノジュラー腐食と呼ばれるこぶ状の局部

酸化物が生成し、その抑制が課題であった。化学成分としてはSn量の低下やFe、Ni量の増加がノジュラー腐食抑制に有効であり、現在のジルカロイ-2はその規格の範囲内で、Snは低い側に、FeおよびNiは高い側に制御している。また、製造工程で熱処理条件($\alpha+\beta$ 焼入れの導入や中間熱処理温度)を制御した高耐食性ジルカロイ-2被覆管に改良され、従来型ジルカロイ-2被覆管で見られたノジュラー腐食は発生していない。さらに、55 GWd/tを超える大幅高燃焼度の達成が視野に入れられており、この場合はジルカロイ-2に代わる新しい合金の開発が進められている。候補合金はジルカロイ-2を基本として、規格の範囲を超えた低Sn化、高(Fe, Ni)化が検討されている。

PWRの高燃焼度化に際しては、ジルカロイ-4は同様加速腐食が起り、耐食性は裕度が低いことが当初から指摘されていた。燃焼度が48 GWd/tの燃料に対してはジルカロイ-4の規格成分内で最適化を図り、Sn添加の範囲をジルカロイ-4の規格範囲の下限近くで制御している。Feが耐食性改善に対して有効な元素で、Fe/Cr比も耐食性に寄与することが知られている。しかし、ジルカロイ-4の化学成分規格におけるFe、Crの範囲が狭く、工業的に制御するのは不可能である。Si、Cといった不純物レベルの元素でも腐食に影響があることがわか

り、それぞれ適正值に制御されている。55 GWd/t 用の新 Zr 合金の開発が進められており、Sn 添加量はジルカロイの成分規格よりさらに低く、Fe や Cr の添加量はジルカロイの規格を超えて添加され、Nb、Ni 等を添加し、耐食性の改善や水素吸収の低減が図られている。ジルカロイ系とは異なる Zr-Nb 系の合金も優秀な耐食性を有している。

耐食性の観点から、BWR 用ジルカロイ-2 およびジルカロイ-4 と、PWR 用ジルカロイ-4 とで、溶体化処理における目的と方法が異なる。

BWR 用のジルカロイ-2 は、ノジュラー腐食を防止する必要があり、金属間化合物の微細化が非常に有効である。ジルカロイ-2 中に析出している金属間化合物は $ZrCr_2$ や Zr_2Ni などが主体で、粒径は溶体化処理の冷却速度が大きいほど細くなる。そこで、ペレットを小径化(直径約150 mm)し、さらに中心部を孔繰りして、溶体化処理の冷却速度を上げる工夫がなされている。溶体化処理しても下流工程で熱処理が加わるので、微細であった金属間化合物も再び成長する。そこで、できるだけ下流工程の段階で溶体化処理する方法も採用されている。

PWR 用ジルカロイ-4 における溶体化処理の第1の目的は、添加元素の均質化による局所的な腐食の防止である。直径200 mm 程度のペレット(丸棒)を β 相温度に加熱後、水中に焼入れを行い均質化と組織を調整する。耐食性の確保のため金属間化合物($ZrCr_2$)をある程度の大きさまで成長させるため、製造工程の中で何度か行われる焼きなましを累積焼鈍パラメータ(Σ_{at})で制御している。

2. 燃料ペレット改良・開発³⁾

燃料ペレットに対しては高燃焼度化を背景に、以下のようなペレットの改良が試みられている。ペレット改良の目的は、FP ガス放出率低減による燃料棒内圧の軽減、PCI 低減、燃料温度低下等である。

FP ガス放出率低減には一般に、燃料の基本構成要素である UO_2 ペレットの結晶粒を増大させる方法が取られる。結晶粒の増大によって核分裂で生じた FP ガス原子の結晶粒界への拡散時間を増大させ、最終的にペレットからの放出を小さくさせるためである。一般に、結晶粒径の増大による FP ガス放出率の減少は様々な照射試験により認められている(第2図¹⁾および第3図²⁾)。

結晶粒の増大方法には、原料粉末や焼結条件を最適化する方法のほか、 MgO や Nb_2O_5 あるいは Al_2O_3/SiO_2 等の添加物を混入する方法が採られている。

しかしその減少率は、添加物を加えた大粒径ペレットの場合、無添加型の大粒径ペレットに比べ、小さい場合が多い。これは添加された物質が UO_2 マトリックスや結晶粒界の FP ガスの拡散に影響を及ぼすためと考えられる。大粒径化のために必要な添加物の量は少ない(<0.5

第2図 活性化粉末の大粒径ペレットのFP ガス放出率

第3図 微酸化雰囲気焼結の大粒径ペレットのFP ガス放出率

wt%) ので、熱伝導度などの熱的特性への影響は少ない。

PCI 低減には一般に添加物を加える方法が取られる。ある種の添加物は UO_2 の結晶マトリックスや結晶粒界の特性を変化させてペレットのクリープ速度を増加させる。これによってペレット被覆管接触時にペレット自身の変形を容易にさせ、被覆管にかかる応力を減少させる。添加物としては Ti, Cr, Nb, Al, Si 等の酸化物が利用される。これらの化合物は、前述した大粒径化を目的とした添加物と大部分が共通している。一般的に大粒径化するとクリープ速度は減少するが、PCI 低減を目指したペレットの場合、添加物の影響の方が大粒径化による効果に比して大きいため、PCI 特性が改善される結果となる。炉外試験の結果によると、添加物の量、種類、試験温度によって異なるが、クリープ速度は数倍から数100倍改善されている(第4図)。

このように、特に添加物を利用した場合、PCI 特性を改善すると FP ガス放出率に影響を与える等、他の特性に影響を及ぼす場合が多い。また PCI 特性は被覆管の

第4図 各種添加物入りペレットのクリープ特性

特性(ライナーの有無等)が大きく影響を及ぼす。このためFPガス低減, PCI低減等の改良は燃料棒全体の設計結果として評価すべき項目である。

燃料温度の低減は過渡時の温度制限に対する裕度を増すとともに, FPガス放出率低減, PCI低減にも効果のある改良である。

ペレットの温度を低減させるためには, 熱伝導度の大きい添加物をペレット内に析出させる方法が採られている。熱伝導度が大きい物質としてはベリリア(BeO)やMoが考えられている。これらの添加物は, ペレットのマトリックスもしくは結晶粒界に析出するようペレットの焼結条件を調整して製造される。必要添加量は目的によって変化すると考えられるが, 例えば4.5%ガドリニア入り燃料にさらに1.6 wt%のベリリアを加えると, ガドリニア添加によって生じる熱伝導度の低下を担保できるという報告がある。

そのほか, 改良型可燃性毒物としてエルビア(Er₂O₃)添加燃料が考案されている。これはエルビアが従来, 使用されているガドリニアに比べて比較的中性子吸収断面積が小さいので多数の燃料棒に低濃度で添加し, 出力ピーキングを抑えることを目的としている。また, 解体核兵器等から発生する余剰プルトニウムを軽水炉等で消費するために, ジルコニア等のイナート(不活性)マトリックスとPuを混合したペレットも考えられている。

以上のようなペレット自身の物性を改良すること以外にも, その形状を改良して良好な燃焼特性を得ることを

狙った中空ペレット, 樽型ペレット等が考えられてきたが, U装荷量の減少や製造コストの問題等から, 現在の軽水炉用ペレットではその大部分が, ディッシュもしくはチャンファを付けた円筒状の形状である。

3. リム効果⁴⁾

高燃焼度特有の現象として, 燃焼度が進むと酸化ウランペレットの周辺部, 表面近傍(リム部)にポロシティ率の高い領域が出現する。この現象をリム効果と呼ぶが, これは, (1)炉物理的な局所燃焼度の増加, (2)材料学的な組織変化の2つの課題を持つ。前者は, 共鳴断面積が大きい熱外群の中性子がペレット表面で²³⁸Uに吸収されPuを形成し, 局所的にリム部の燃焼が進む過程である。後者は, UO₂結晶が細粒化し, かつ高いポロシティ率を生じる現象で, その組織は発生場所からリム組織とも呼ばれる。第5図に商用PWRで9サイクル照射の結果, ペレット平均燃焼度102 MWd/kgMに達した燃料(KWU製)のリム組織を示す。

リム組織の形成には燃焼度および温度に明確なしきい条件が認められる。現行製造法の酸化ウラン燃料でのしきい条件はほぼ解明されつつあり, 温度1,400 K以上では発生しないことが, 100 MWd/kgUまでの試験範囲で明らかとなっている。しかし発生メカニズムの実験的解明は遅れている。リム組織形成プロセスでは, 主要な観察事項として結晶粒径の微細化(細粒化)とFPガスの析出による大型気泡(粗大化気泡)の形成の2つがあるが, その順序関係にもいまだに異説がある。発生しきい条件を左右する因子についても経験的にデータを蓄積する段階にあり, 大粒径化や機械的拘束力の燃焼度しきい値への効果が報告されているが, その度合いは十分に明らかではなく, リム化を抑制する方法を検討できるまでには至っていない。

この新しい組織の形成による燃料性能へのインパクトは, 現知見の範囲では, (1)気泡スエリングによる体積の膨張, (2)FPガスが放出されやすくなること(機械的破壊による表面積増大)の2点がある。これらは高燃焼に達した燃料健全性・安全性に関して, 燃料設計および安全性評価の両側面から解明すべき重要な項目である。

4. 燃料ペレット熱特性の変化⁵⁾

UO₂ペレットは, 燃焼度の増大とともにFPの生成と固溶, 照射損傷の蓄積等により, 熱伝導率, 比熱容量(比熱), 融点等が変化する。これらの熱特性は, 燃料の温度, FPガス放出, PCMI(燃料ペレット-被覆管機械的相互作用)等に影響を与え, 燃料挙動に大きな影響を与える。最近の軽水炉燃料の高燃焼度化に対応して, これらペレットの熱特性の燃焼度依存性データが蓄積されつつある。

照射済みペレットの熱伝導度が, 主としてレーザーフラッシュ法による熱拡散率測定から求められている。照射試料の熱拡散率は未照射UO₂の熱拡散率に比べて低

第5図 PWR 燃料のリム組織

下しており、特に低温側での低下幅が大きい。また、測定を繰り返すと、熱拡散率は次第に上昇する回復現象を示す。高燃焼度 UO_2 ペレットの照射欠陥については、その回復現象が格子定数の測定と TEM 観察により調べられ、照射点欠陥による格子定数の変化が比較的低温で回復し、欠陥クラスターや微小気泡による不均一格子歪みがより高温で回復することが報告されている。Hirai らはこの照射欠陥の回復と熱拡散率の回復を対応させ、熱拡散率の回復が照射欠陥の回復に起因するとした。また、Klemens のモデルに基づいて照射高燃焼度燃料の熱伝導度を表現するモデルが提案されており、実測値とよい一致を示している。

一方、炉内燃料中心温度のオンライン測定から評価した熱伝導度の燃焼度依存性モデルもハルデンプロジェクトから提案されている。

高燃焼度では、ペレット外周部に粗大化した FP ガス気泡と微細化した結晶粒よりなる高燃焼度組織(リム組織)が観察される。この組織はポーラスな構造を持つため、熱伝導度が低いものと推定され、高燃焼度でリム組織の幅が増したとき、ペレットの温度を上昇させるのではないかと懸念された。最近、このリム組織の燃料温度への影響についてもいくつかの評価が報告されている。リム部の粗大化気泡を囲む微細化した結晶粒は再結晶化していると推定され、マトリックス中の照射欠陥等は回復して熱伝導率は上昇している。しかしこれと気孔率の増大による熱伝導率の低下が競合して、結果として、リ

ム部の熱伝導率はあまり低下しないとの推定がなされている。高燃焼度リムプロジェクトでは、リム構造をもったディスク試料の熱拡散率を測定する試みが行われており、試料の密度、気孔率等の情報が不足しているものの、リム組織形成の燃焼度しきい値を超えても熱拡散率は大きく変化しないことが示されている。また、照射 UO_2 の比熱測定データや高燃焼度における燃料の融点測定データも得られてきている。

5. PCI 破損⁶⁾

1964～66年頃の試験炉(GETR, Halden 炉)での燃料損傷および軽水炉においては、長期間低出力運転後の速い出力上昇における燃料の系統的な破損が見られた。これら破損燃料は、損傷部での FP の析出物を伴うピンホールあるいは X マークと呼ばれる破損外観を呈していた。その後の国際プログラム(インターランプ、オーバーランプ等)等における試験炉を用いた出力急昇試験の結果、ペレットリッジ変形部、あるいはペレットクラック部に対応したところで第6図に示す被覆管クラックが見られた。詳細な観察により、クラック破面には脆性破面がみられ、脆性破損であることが確認された。また、FP 元素の一つである、ヨウ素を用いた炉外 SCC(応力腐食割れ)試験において、ジルカロイ材が SCC 破損を起こすことが確認され、このような破損は、出力急昇中の燃料棒内のヨウ素雰囲気下での PCMI による SCC 破損(PCI)と結論付けられた。

SCC の発生は、ヨウ素に対する SCC 感受性の高い材

第6図 出力ランプ試験でのPCI破損例

料を使用していること、ヨウ素腐食性雰囲気が形成されていること、さらに過大な応力 (PCMI) の負荷により起ることから、PCI 破損への対策としてはこれら3つの条件の少なくとも一つを回避することが必要となる。このような観点から、Zr ライナー被覆管、集合組織調整管、 Nb_2O_5 あるいは Al-Si-O 添加ペレット、中空ペレット等を採用した改良燃料の研究開発、実用化が行われている。

さらに高燃焼度域での PCI 性能を把握するため、高燃焼度域での出力ランプ試験が行われている。これまでの知見では、BWR 燃料では若干の破損レベルの低下が見られたが、損傷部の外観観察から、低燃焼度域での SCC 破損とは異なる様子を呈していることがわかった。これらは被覆管の水素吸収量の増加との関連に着目され、今後、詳細な調査研究が実施される予定である。一方、PWR 燃料の出力ランプ試験では高燃焼度域での破損例の報告はないが、被覆管腐食に伴い、吸収された水素が温度の低い被覆管外面に水素化物として偏析し、そこでのクラックが見られている。このような被覆管外面からのクラックの発生は内面で発生する PCI 損傷とは異なるが、今後、高燃焼度燃料の出力変動時の燃料損傷モードとして、注意していく必要があるとされている。

6. 解析コード⁷⁾

高燃焼度化に向け改良・開発された材料の性能評価と燃料設計用モデル構築のための照射試験が行われ、これにより得られたデータを反映した高燃焼度対応の燃料挙動解析コードの開発が継続して行われている。

計算コードによる解析の目的は、一般には実験や現象の解析と、想定された条件下での予測計算である。燃料ふるまいを支配する基本的要因は、ペレットと被覆管の変形、FP ガス放出、被覆管の酸化等であるが、これらの背景には複雑な熱的、機械的相互作用が存在する。したがって、定量的な解析には計算コードを用いることが不可欠である。また同時に、燃料解析コードは燃料に関

する研究知見を有機的に結合して統一的な機能を実現しており、さらに新たなモデルを加えることにより、それが他の様々な燃料要因 (モデル) との関連においてどのようにふるまうかを予測、検証するためのプラットフォームとしての機能を果たす。

高燃焼度領域では、ペレットの組織変化、熱伝導率変化、ペレットと被覆管の非局所的 PCMI が著しくなり、新たな解析モデルと方法の開発が要求される。かつ、高燃焼度領域でのふるまい解析は、燃料をその照射初期 (低燃焼度) から出力履歴や冷却材条件などを一貫して追いつつ解析を続けた計算結果をベースとするので、低～中燃焼度までのコードの予測性能には一層の精度が要求される。このような要求に対し、コード検証のための燃料物性値データベース、燃料照射データベースの拡充と、近年の著しい計算機システムの発達に即した解析コードの開発が継続されている。

Ⅲ. 高燃焼度燃料に関する安全性研究

安全性の観点からは、高燃焼度燃料に関する反応度事故 (RIA) 時および冷却材喪失事故 (LOCA) 時の燃料挙動研究が進められている。

RIA 時の燃料挙動研究では、高燃焼度燃料の反応度事故における燃料の破損しきい値の検討、事故時の燃料破損挙動の研究が進められている。

LOCA 時の研究では、冷却材喪失時の燃料棒の膨れによる冷却材流路閉塞の程度、高温状態における被覆管の高温酸化と脆化、緊急炉心冷却装置 (ECCS) 作動後の再冠水時熱衝撃による被覆管の破断、破碎の研究が進められている。特に、高燃焼度燃料は、高燃焼度化に伴う被覆管の酸化腐食量や水素吸収量の増大により被覆管の延性が低下することから、再冠水による急冷時の耐破損特性に着目した研究が推進されている。

1. RIA⁸⁾

高燃焼度領域における PWR 燃料の破損は PCMI (燃料ペレット/被覆管機械的相互作用) によって生じ、被覆管水素吸収の影響を強く受けたもの (Hydride assisted PCMI failure) であることが明らかになっている。

これまでの実験から、被覆管外面酸化膜の内側に水素化物が堆積した層 (Hydride rim) で脆性破断が認められており、内側の延性部は周方向応力により延性破断に至ることがわかっている (第7図)。燃料破損は、パルス照射時の出力変化におけるごく初期に発生しており、燃料破損に至った時点では未だ被覆管温度が低い値に止まっている。DNB (核沸騰限界) を生じ、温度が上昇すれば、被覆管の延性は回復することから、破損発生の有無は、DNB に至る以前に被覆管がどれだけの機械的負荷をペレットから受けるか、そして、低温時に被覆管がどれだけの延性を有しているかに左右される。

BWR 燃料については、燃焼度 56 MWd/kgU までの

第7図 PCMI 破損を生じた高燃焼度 PWR 燃料の被覆管亀裂部

範囲の NSRR (原子炉安全性研究炉) 実験において燃料破損が見られておらず、比較的広いペレット/被覆管ギャップが存在することなどから、PWR 燃料に比べて大きな安全余裕があるものと考えられていた。しかし、2000年に入って開始した燃焼度61 MWd/kgU の BWR 燃料を対象とする2回の実験では、ともに燃料破損に至った。これらの実験に供した燃料においては、被覆管に径方向に配向した水素化物が存在したこと、被覆管内面と燃料ペレットにボンディングを生じており、燃料ペレットの変形が直接的に被覆管に与えられたことなどが破損発生に大きく影響したものと考えられている。

また、燃料破損直後に機械的エネルギーの発生が測定されている。発生エネルギーの支配的な要因は、ギャップガスの噴出ではなく、燃料ペレットの微粒子と冷却材との斉時的な接触による水蒸気発生であることが、燃料粒子と冷却材間の熱流束評価や、燃料粒子径分布と機械的エネルギー発生量との相関ならびにギャップガスが有する内部エネルギーに関する評価により明らかとなった。

2. LOCA⁹⁾

LOCA 時の燃料挙動に関連し、燃料棒の膨れおよび破裂挙動、水蒸気による被覆管の高温酸化、著しく酸化した被覆管の脆化や再冠水による急冷時の耐破損特性が広く調べられている(第8図)。しかし、多くの知見は、非照射試料を用いた実験で得られたものである。低燃焼度範囲では、燃料ペレットや被覆管における特性変化は小さく、LOCA 時の燃料挙動に及ぼす影響は小さいと考えられる。しかし、高燃焼度化に伴い、被覆管における腐食酸化膜の成長や水素吸収量が無視できないレベルに達するため、高燃焼度燃料の LOCA 時挙動は軽水炉燃料の安全性に関し懸案となっている。特に、水側腐食量や水素吸収量の増大により被覆管の延性が低下することから、高温で酸化した被覆管の脆化および急冷時耐破損特性に着目した研究が現在進められている。

急冷時耐破損特性を評価するために、LOCA 時に燃料棒が経験する過程、すなわち、燃料棒の加熱→水蒸気中での酸化→再冠水による急冷を模擬し、様々な温度お

第8図 集合体を用いた破裂実験の例(原研で実施)

よび時間で試験燃料棒を酸化し急冷する試験が行われている。これまでの試験により、被覆管の水側腐食に伴う水素吸収が急冷時の燃料棒破断しきい値に及ぼす影響が明らかになった。ある一定条件以上に酸化が進むと、被覆管は急冷によって破断するが、高燃焼度燃料被覆管を模擬して水素をあらかじめ添加した被覆管については、水素を添加しない被覆管より少ない酸化量で破断するようになる。今後は、発電炉で実際に使用された燃料被覆管を用いて同様の実験を行い、高燃焼度燃料の LOCA 時の安全性を確認していくことが必要である。

3. シビアアクシデント¹⁰⁾

シビアアクシデント時の研究では、燃料と炉心構成材料の高温反応、燃料集合体の損傷と熔融、燃料からの FP 放出等に関する研究が行われている。

燃料と炉心構成材料の反応については、主要反応である UO_2 -ジルカロイ反応と燃料以外の構成材料の反応としてジルカロイ/インコネル反応、ジルカロイ/ステンレス鋼反応等が調べられ、実質的な反応開始温度や反応速度などについての知見が得られている。データは燃料損傷の初期過程のモデル化に役立てられ、反応速度式は解

析コードに取り込まれて活用されている。

燃料集合体の損傷と溶融に関しては、集合体規模での炉外実験や研究用原子炉を用いた実験が各国で実施され、燃料損傷過程に関する様々な知見が得られている。これらの実験によって TMI-2 炉心で生じた現象の理解が進み、また、溶融の進展には燃料の溶融に先行して生じる比較的低融点の制御棒材やインコネル・スパーサゲリッドの溶融の影響が大きいことが示された。

燃料からの FP 放出に関しても、研究用原子炉による実験や照射済み燃料を用いたホットセルでの実験が米国を中心に広範に実施された。これらの研究によって、希ガス、揮発性および難揮発性 FP の放出に関するデータが取得され、事故時における放出を予測するモデルが開発されている。しかし、放出に及ぼす雰囲気、温度、圧力の影響は十分には解明されていないため、現在もフランスや我が国で実験研究が続けられている。

Ⅳ. 軽水炉でのプルトニウム利用

社会的なニーズ(日本においては、核不拡散への配慮、資源有効利用の観点)から、軽水炉燃料は Pu を消費する役割を受け持つべきとの考えがある。

Pu は海外再処理により、現在約 15 t が蓄積されており、2010 年までに合計 34 t が取り出される予定である。また、2005 年の六ヶ所再処理工場の運転開始による Pu がこれに加わり、これらを着実に利用することが求められている。

当初、軽水炉での Pu 利用は比較的短期間との考え方もあったが、FBR の実用化が先送りとなった現状、長期的かつ大量の Pu 利用が求められ、軽水炉 MOX 燃料のより高い信頼性の確立が重要となっている。

MOX 燃料は UO_2 燃料と比べ、高燃焼度化によるコスト低減効果が期待できる反面、燃料製造のコストアップや再処理効率の低下を招くと考えられている。したがって、Pu リサイクル全体の経済性、安全性を考えた上での最適な利用方法を決定する必要がある、今後、十分な検討が必要である。

— 参 考 文 献 —

- 1) 田辺 朗, 最新核燃料工学—高度化の現状と展望, 日本原子力学会「高度燃料技術」研究専門委編, p. 21 (2001).
- 2) 穴田博之, 同 上, p. 37.
- 3) 小林慎一, 同 上, p. 55.
- 4) 木下幹康, 同 上, p. 85.
- 5) 中村仁一, 同 上, p. 93.
- 6) 土井莊一, 同 上, p. 107.
- 7) 鈴木元衛, 同 上, p. 131.
- 8) 更田豊志, 同 上, p. 141.
- 9) 永瀬文久, 同 上, p. 148.
- 10) 上塚 寛, 同 上, p. 156.

— 著 者 紹 介 —

田辺 朗(たなべ・あきら)

1984 年慶應義塾大学工学研究科修士課程修了。(株)東芝入社。BWR 燃料設計開発に従事。現在、(株)グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン燃料設計グループチーフスペシャリスト。

穴田博之(あなだ・ひろゆき)

1983 年大阪大学大学院原子力工学専攻修了。住友金属工業(株)に入社。総合技術研究所にて主として燃料被覆管材料の研究に従事。

小林慎一(こばやし・しんいち)

1984 年大阪大学大学院工学研究科原子力工学専攻修了。原子燃料工業(株)入社、燃料棒設計業務に従事。1992 年 2 月燃料開発業務に従事、現在に至る。

木下幹康(きのした・もとやす)

1974 年慶應義塾大学大学院工学研究科修士課程修了。電力中央研究所に入社。1977 年原研外来研究員を経て、1978~79 年ハルデン計画外来研究員。1983 年通産省原子力発電技術顧問、東京大学人工物工学研究センター客員研究員兼務。現在、電力中央研究所原子力システム部上席研究員として、高燃焼度化に向けて国際共同実験 HBRP を 1993 年より運営するとともに、燃料セラミックおよび被覆管材料の照射損傷による形態形成について理論的な研究を進めている。

土井莊一(どい・そういち)

1978 年名古屋大学工学部原子核工学科修士課程修了。三菱原子力工業(株)入社。燃料設計課配属。その後、一貫として PWR 燃料の高燃焼度化等、研究開発、設計に従事。現在、三菱重工業(株)原子燃料設計課に所属。

中村仁一(なかむら・じんいち)

1980 年東京工業大学大学院博士課程(原子力工学専攻)修了、工学博士。日本原子力研究所入所。ハルデン炉、JMTR、ホットラボ等を用いた軽水炉燃料の通常時挙動研究に従事。現在、原子炉安全工学部燃料安全研究室副主任研究員。

更田豊志(ふけた・とよし)

1987 年東京工業大学大学院博士課程(機械物理工学専攻)修了、工学博士。日本原子力研究所入所。一貫して NSRR による燃料の反応度事故時挙動研究に従事。2001 年 4 月より日本原子力研究所企画室調査役。

永瀬文久(ながせ・ふみひさ)

1997 年東北大学大学院工学研究科量子エネルギー工学科博士課程修了、工学博士。1986 年日本原子力研究所入所以来、軽水炉燃料の安全性に関する研究に従事。現在、原子炉安全工学部燃料安全研究室副主任研究員。

鈴木元衛(すずき・もとえ)

1975 年東京大学大学院修士課程(金属材料専攻)修了。同年、日本原子力研究所入所。軽水炉燃料の通常時挙動研究に従事。現在、原子炉安全工学部燃料安全研究室副主任研究員。

上塚 寛(うえつか・ひろし)

1976 年北海道大学大学院工学研究科修士課程修了、工学博士。1977 年日本原子力研究所入所。1977 年原子炉安全工学部燃料挙動安全研究室長、1999 年より同部燃料安全研究室長。原研入所以来、一貫して軽水炉燃料の安全性に関する研究に従事。