論 文

BWR 高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証

宮下 俊靖^{1,†}, 中江 延男^{1,*}, 緒方 恵造¹, 馬場 利和¹,
上村 勝一郎¹, 松岡 徹之², 垣内 一雄³

Verification Program of BWR 9×9 Fuel

Toshiyasu MIYASHITA^{1,†}, Nobuo NAKAE^{1,*}, Keizo OGATA¹, Toshikazu BABA¹,

Katsuichiro KAMIMURA¹, Hitoshi MATSUOKA² and Kazuo KAKIUCHI³

¹Japan Nuclear Energy Safety Organization, 3-17-1 Toranomon, Minato-ku, Tokyo 105-0001, Japan

²Global Nuclear Fuel-Japan, 2-3-1 Uchikawa, Yokosuka-shi, Kanagawa 239-0836, Japan

³Nuclear Fuel Industries, Ltd., 3135-41 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1196, Japan

(Received April 22, 2008 and accepted in revised form July 1, 2008)

The high-burnup BWR 9×9 lead use fuel assemblies (LUAs), which are designed for a maximum assembly burnup of 55 GWd/t in Japan, have been examined after irradiation in a commercial BWR to confirm the reliability of the current safety evaluation methodology and to accumulate data for judging the adequacy of its application to the future higher burnup fuel. The irradiation performance of 9×9 LUAs for two different designs, types A and B, is generally on the extended trend of 8×8 fuel, but some new findings in terms of fuel performance have been addressed after 5 cycle irradiations. Accelerated corrosion of cladding for the corner rods in Type-B fuel assemblies and spacers in both types is observed after 5 cycle irradiations. The increasing trend of high hydrogen concentration seems to be an issue, which should be paid much attention with respect to fuel integrity during high-burnup irradiation. The large difference in fission gas release rate between two types of fuel is confirmed after 3 and 5 cycle irradiations, and the release rate of Al-Si-O doped pellets is particularly higher than the others.

KEYWORDS: BWR, high burnup, irradiation performance, postirradiation examination, fuel assembly, fuel rod, corrosion, fission gas, high hydrogen concentration

I. 緒 言

我が国の軽水炉燃料の高燃焼度化は、使用済燃料発生量の低減と燃料サイクルコストの低減を図る観点から進められている。国内の BWR 燃料は高燃焼度化が段階的に進められてきており、9×9 型燃料は取出平均燃焼度約 45 GWd/t、燃料集合体最高燃焼度 55 GWd/t を目指して開発されたものである。9×9 型燃料には、9×9A 型燃料(2本の太径ウォーターロッド等採用)と 9×9B 型燃料(角型構造ウォーターチャンネル等採用)の設計の異なる 2 種類がある。

高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証は、これら 2 種類の先行使用燃料集合体を対象として、燃料集合体の製造時から

燃焼、照射後試験に至る一貫したデータを採取して、燃料集合体の燃焼挙動を評価し、現行安全評価手法の信頼性を確認、実証し、また、将来の高燃焼度燃料に現行の安全評価手法を適用する妥当性を判断するためのデータを整備、蓄積することを目的としたものである。国内商用炉で燃焼した BWR 燃料の挙動に関しては、これまで集合体燃焼度約 48 GWd/t までの照射後試験結果がまとめられており¹⁻⁵⁾、本試験ではこれを超える国内最高の燃焼度におけるデータを系統的に取得した。

本報は高燃焼度 9×9 型燃料信頼性実証の全体計画と試験で得られた燃料の燃焼に伴う主要なふるまいの変化などについて総合的に評価した結果をまとめたものである。

II. 試験の内容

照射後試験工程を **Table 1** に示す。本事業は、1992 年度(平成 4 年度)から 2003 年度(平成 15 年度)の上期まで(財)原子力発電技術機構(NUPEC)で実施され、2003 年度(平成 15 年度)の下期より(独)原子力安全基盤機構(JNES)が実

¹ 独原子力安全基盤機構 規格基準部

² ㈱グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン

³ 原子燃料工業㈱

* Corresponding author, E-mail: nakae-nobuo@jnes.go.jp

† 現在、原子燃料工業㈱

Table 1 Schedule of high burnup 9×9 fuel test program

Fiscal year	98	99	00	01	02	03	04	05	06
Irradiation in a BWR plant		3rd	4th	5th					
Enforcement organization	NUPEC					JNES			
Pre characterization									
Post irradiation examination	3 cyc Irradiation fuel					5 cyc Irradiation fuel			

Table 2 Development step of BWR fuel assembly¹⁾

Fuel design	Step I (8×8 BJ)	Step II	Step III	
			Type-A	Type-B
Start of loading	1987	1991	1996 ^{a)}	
Fuel rod array	8×8	8×8	9×9	
Average discharge burnup (GWd/t)	33	39.5	45	
Maximum discharge burnup (GWd/t)	40	50	55	
Fuel pellet	UO ₂ UO ₂ +Gd ₂ O ₃	UO ₂ UO ₂ +Gd ₂ O ₃	UO ₂ UO ₂ +Gd ₂ O ₃	
Fuel pellet density (%TD)	95	97	97	
Cladding tube	Zry-2/Zr-liner	Zry-2/Zr-liner	Zry-2/Zr-liner	
Cladding outer diameter (mm)	12.3	12.3	11.2	11.0
Cladding thickness (mm)	0.86 ^{b)}	0.86 ^{b)}	0.71 ^{b)}	0.70 ^{b)}
He pressure (MPa)	0.3	0.5	1.0	
Number of fuel rods (/bundle)	62	60	74 ^{c)}	72
Number of water rods	2	1 ^{d)}	2 ^{d)}	1 ^{e)}
Spacer type	Eggcrate	Ferrule	Ferrule	

^{a)} : Start of loading with a small number of LUAs

^{b)} : Including Zr-liner thickness of about 0.1 mm

^{c)} : Including 8 partial length rods

^{d)} : Large diameter

^{e)} : Rectangular water channel

施したものである。

1. 燃料集合体の仕様

9×9A 型燃料集合体と 9×9B 型燃料集合体の主要仕様および構造を **Fig. 1** および **Table 2** に示す。9×9A 型燃料集合体の構造は、燃料集合体中央部 7 本の燃料要素の領域を 2 本の太径ウォーターロッド (ジルカロイ-2) で置換し、さらに 8 本の燃料要素は標準燃料要素より全長が短い部分長燃料要素を採用しており、燃料要素の本数は 74 本である。標準燃料要素のうち 8 本は結合燃料要素 (タイロッド) であり、その両端はねじにより上下タイプレートと結合している。9×9B 型燃料集合体の構造は、燃料集合体中央部の 3 行 3 列の燃料要素に相当する部分の領域を角型のウォーターチャンネル (ジルカロイ-4) で置換しており、燃料要素の本数は 72 本である。9×9A 型燃料集合体と同様に燃料要素のうち 8 本は結合燃料要素であり、

Fig. 1 Schematic views of step III fuel assemblies

その両端はねじにより上下タイプレートと結合している。なお、9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料の燃料要素は 8×8 型燃料と比較して細径化され、燃料ペレットと被覆管のギャップコンダクタンスの低下を防ぎ、FP ガス放出量を抑制するために、燃料要素の内圧を 8×8 燃料の約 0.3 MPa (新型 8×8 ジルコニウムライナ燃料集合体)、約 0.5 MPa (高燃焼度 8×8 燃料集合体) に対して、約 1 MPa に増加させている。

試験対象は取替燃料として少数体装荷されたもので、9×9A 型燃料には標準ペレットのほかに Al_2O_3 および SiO_2 を微量添加した Al-Si-O 添加型ペレットも一部の燃料要素に使用されているが、9×9B 型燃料には標準ペレットのみが使用されている。また、平均濃縮度は、パッチ装荷燃料 (約 3.7%) とは異なり約 3.4% である。

9×9A 型燃料のスペーサはジルカロイ-2 製の枠 (スペーサセルおよびスペーサバンド) とインコネル製の押さえね (スペーサスプリング) からなっており、軸方向に等間隔に 7 個配置され、燃料要素間隔を適切に保つ役割を果たしている。9×9B 型燃料のスペーサについても、基本的には 9×9A 型燃料と同様にジルカロイ-2 製の枠とスペーサスプリングからなっているが、5 サイクル燃焼後に試験に供した 9×9B 型燃料には、材料検討に資する目的で、一部のスペーサバンドをジルカロイ-4 材としたものが組み込まれている。

2. 照射履歴および照射後試験

試験対象とした燃料集合体は福島第二原子力発電所の第 12 サイクルから第 16 サイクルにかけて燃焼され、第 14 サイクル燃焼後 (3 サイクル燃焼後) および第 16 サイクル燃焼後 (5 サイクル燃焼後) に、9×9A 型および 9×9B 型の各 1 体を取り出して照射後試験に供した。5 サイクル燃焼後の

集合体平均燃焼度は、9×9A 型燃料で 53.0 GWd/t、9×9B 型燃料で 53.5 GWd/t であった。

なお、照射後試験は、9×9A 型燃料については日本核燃料開発㈱の照射後試験施設、9×9B 型燃料については ㈱日本原子力研究開発機構の燃料試験施設で実施した。主な照射後試験の一覧を Table 3 に示す。

III. 試験結果

1. 燃料集合体の外観と寸法変化

(1) 燃料集合体外観

いずれの燃料集合体についても、燃料集合体構造のねじれ、ゆがみ等の異常は認められなかった。また、燃料要素間隔についても狭小箇所は認められなかった。なお、5 サイクル燃焼後の 9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料のスペーサの一部に欠けや微小変形が認められたが、同燃料集合体の燃焼終了後には原子炉サイトで外観検査等が行われており、その時点では外観に異常がなかったことが確認されていることより、燃焼終了後の輸送または照射後試験施設等での取り扱い中に生じたと推定される。また、5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料の燃料集合体寸法測定後に、第 5 スペーサ^{a)}ではスペーサバンド溶接部およびコーナー部でスペーサバンドが破断していたが²⁾、これは、外観観察終了後の燃料集合体寸法測定を実施中に照射後試験施設内の検査プール内の構造物と接触^{b)}してスペーサが破損したものと考えられた。これらスペーサの破損は照射後試験中の取り扱い上の問題であるが、材料そのものの特性の劣化に起因していることも考えられることから、走査型電子顕微鏡 (SEM) により観察等を実施した。破面は脆性的な様相を呈しており、水素吸収量の増加により、延性が低下した材料に衝撃荷重が作用して脆性的に破断したものと考えられる。なお、スペーサの水素吸収については、後述の「III-7. 燃焼集合体部材の照射ふるまい」に記述する。

(2) 燃料要素間隔

燃料集合体の外観観察の結果より測定した燃料要素間隔を Fig. 2 に示す。燃料要素間隔は燃焼に伴い製造時と比較してばらつきは大きくなる傾向があるが、いずれの燃料も従来データ³⁾と同様の傾向である。なお、9×9B 型燃料は超音波洗浄後の測定結果であるのに対して、9×9A 型燃料は洗浄前であり、ソフトグラッドの寄与が考えられるが、どちらも燃料要素間隔は適切に保たれており、冷却材流路確保の観点から異常は認められない。

(3) 燃料集合体長さ

燃料集合体の長さを上部タイプレートの下面と下部タイ

Table 3 Contents of post irradiation examination

The items to be discussed for high burnup fuel	The main post irradiation examination items
-Corrosion and hydrogen uptake of cladding	[Assembly] Length, Fuel rod withdrawal force
-Pellet rim structure	
-Bonding between pellet and cladding	[Fuel rod] Outer diameter/Length, Puncture test, EC oxide film thickness
-FP gas release rate	
-Pellet physical-properties	[Cladding] Metallography, Hydrogen analysis, Mechanical test
-Pellet swelling	
-Spacer spring force	[Pellet] Metallography, Density, Burnup measurement
-Effect of Zr liner	
	[Component] Metallography, Hydrogen analysis

a) 燃料集合体の軸方向に 7 個配置されているスペーサを、下から順に第 1~7 スペーサと称している。

b) 外観観察終了後、検査プール内で燃料集合体寸法測定のため集合体を降下させている最中に、検査プール内の観察台構造物に第 4 スペーサおよび第 5 スペーサの下面部分が当たったために破損したと考えられる。

Fig. 2 Burnup dependence on rod-to-rod spacing gap

Fig. 3 Burnup dependence on fuel assembly length

Fig. 4 Burnup dependence on rod withdrawal force

プレートの上下面間の長さとして定義し、燃焼に伴う変化を調べた。製造時からの変化量を Fig. 3 に示す。9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料の燃料集合体の長さの変化は、従来データ³⁾と同様に燃焼とともにほぼ直線的に増加する傾向を示しているが、5 サイクル燃焼後の燃料集合体の長さの変化はやや小さい傾向である。この傾向は後述する燃料要素長さと同様である。

(4) 燃料要素引抜き力

燃料要素引抜き力の結果を Fig. 4 に示す。燃料要素を燃料集合体から引抜く際に要する力はスぺーサスプリングの燃料要素に対する拘束力を間接的に示していると考えら

Typical
(Non-Corner Position)

Corner Position

Fig. 5 Rod appearance observation (Type-B after 5 cycle irradiation)

Fig. 6 Burnup dependence on rod length change

れ、引抜き力測定によりスぺーサの拘束力を評価した。燃料要素引抜き力はスぺーサスプリングによる燃料要素押付け力の緩和等に伴って燃焼初期に低下するものの、その後は飽和する傾向にあることが報告されている³⁻⁵⁾。本試験結果もその延長にあり、スぺーサによる燃料要素拘束力が保持されていることを示している。

2. 燃料要素の外観と寸法変化

(1) 燃料要素外観

燃料要素表面に付着しているソフトクラッドを除去した後、燃料要素の全長に渡って外観観察を行った。9×9A 型燃料については、取り扱い時のすり傷や一部の燃料要素外面で皮膜の剥がれが観察されたものの、高耐食性被覆管採用後の従来データと同様に、被覆管表面には一様な酸化膜が形成されている。

5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料の集合体内のコーナー部に配置された燃料要素(以下、コーナー燃料要素という)の第2 スパン部(第1 スペースと第2 スペースの間)の外観を **Fig. 5** に示す。5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料の中で観察対象としたすべてのコーナー燃料要素において、点状模様が観察された。また、コーナー燃料要素と隣接する一部の外周燃料要素でも同様の点状模様が観察されたが、それ以外の燃料要素(3 サイクル燃焼後のコーナー燃料要素を含む)では点状模様は認められなかった。この点状模様は、後述するコーナー燃料要素の特異な腐食によるものと考えられる。

(2) 燃料要素長さ

Figure 6 に、製造時データをもとに算出した燃焼後の燃料要素の伸び変化率を示す。9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料ともに燃料要素の伸びは燃焼とともに増加しており、従来データ³⁾と同様の傾向であるが、5 サイクル燃焼後の燃料要素では伸びが小さくなる傾向である。

(3) 燃料要素外径

Figure 7-1 および **Fig. 7-2** に 3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料の代表的な燃料要素外径の測定結果の例を示す。3 サイクル燃焼後は、被覆管のクリープダウンにより製造時と比較して外径は減少する傾向であるが、5 サイクル燃焼後は、3 サイクル燃焼後と比較してペレットのスエリングにより外径が増加する傾向にある。また、3 サイクル燃焼後 Al-Si-O 添加 UO_2 燃料要素の特徴として燃料要素中央から下部にかけて 2 方位(0° , 90°)の外径が異なる楕円変形(以下、「オバリティ」という)が認められる。なお、5 サイクル燃焼後 Al-Si-O 添加 UO_2 燃料要素中央から下部にかけてのオバリティは 5 サイクル燃焼後 UO_2 燃料要素に比べてやや大きいもののオバリティの程度は 3 サイクル燃焼後より小さくなっている。後述する金相観察の結果から、3 サイクル燃焼後は被覆管とペレット間のギャップが残っている様子が観察されており、1~3 サイクル燃焼中に Al-Si-O 添加ペレットは端面の固着によりある方向に偏心した状態での被覆管のクリープダウンにより、オバリティが生じたと考えられる。また、4 サイクル燃焼以降はスエリングによるペレットの体積膨張で、ペレット-被覆管が接触し PCMI(ペレットと被覆管の相互作用)が生じた結果、外側への変形量が大きくなって、オバリティが解消されていったと推察される。

燃料要素スタック部の外径変化量(製造時外径との差)の燃焼度変化を **Fig. 8** に示す。外径変化挙動は、いずれの燃料要素も 3 サイクル燃焼後は製造時と比較して減少し、その後、燃焼の増加に伴い増加する傾向が認められる。燃料タイプごとにみると、9×9A 型燃料は、9×9B 型燃料や従来データ³⁾と比較して 3 サイクル燃焼後の減少の幅が大きく、5 サイクル燃焼後もその影響が残っており、燃料要素外径変化は従来データ等と比較して(-)側に大きくなっている。また、9×9B 型燃料では約 50 GWd/t

を超える辺りから初期の外径より大きくなっており、燃焼度の増加とともに PCMI が、これまで以上に大きくなってきていることが示唆される。

3. 被覆管の外表面酸化と水素吸収

(1) 皮膜厚さ

Figure 9-1 および **Fig. 9-2** に 5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料の代表的な皮膜厚さ(渦電流法により測定したクラッド厚さを含む被覆管外表面の酸化膜厚さに相当)の測定結果の例を示す。9×9B 型燃料の燃料要素では、3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後の測定結果でスペーススプリングの対向部となる軸方向位置および角度で大きな局所的なピークがある。同様の傾向は 9×9A 型燃料の一部の燃料要素でも確認されているが、特に 9×9B 型燃料の測定結果で顕著である。後述する 9×9B 型燃料の金相観察の結果では、同箇所にはクラッドと思われる付着物の存在も確認されており、この局所的なピークは、異種金属が近接することにより発生する局所的な腐食の増加(シャドウ腐食)による酸化膜の増加に加えて、このようなクラッド等の付着物の影響も受けているものと考えられる。また、5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素では系統的に軸方向下部側で皮膜厚さが厚くなる傾向が認められ、また、燃料要素内でも周方向分布ではチャンネルボックスコーナー部対向方位で皮膜厚さが厚くなる傾向が認められている。これについては、金相による詳細な観察結果を後述の III-3-(2)および III-3-(4)で述べる。

(2) 金相観察

Figure 10 に、金相観察法による最大酸化膜厚さの燃焼度依存性を示す。スペース対向部以外および 5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の測定結果を除くデータは低い値で推移しており、高耐食性被覆管採用後の従来データ³⁾と同様の傾向である。従来データの一部でも確認されていたが、スペース対向部(スペーススプリング対向部)での酸化膜の増加が顕著となっている。**Figure 11-1** に 5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料について、追い込み研磨により金相観察を行った結果を示す。同箇所はスパン部と比較して酸化膜が厚くなっていることが確認されたが、最大値近傍の酸化膜厚さの分布は一様ではない。**Figure 11-2** に同箇所の中央部を拡大した観察結果を示すが、スペーススプリング(インコネル)と被覆管(ジルカロイ-2)の接触部と推定される位置では、局所的に酸化膜厚さが薄くなっている箇所があることが確認され、異種金属が近接することにより発生するシャドウ腐食のメカニズムとして、ガルバニック腐食説⁶⁾を裏付ける試験結果であると考えられる。なお、**Fig. 11-3** に示すように、スペース対向部(スペーススプリング対向部)ではクラッドと思われる付着物の存在も確認される。

Figure 12-1 に 5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の金相観察による代表的な観察結果の例を示

(a) Fuel Rod with Standard Pellet

(b) Fuel Rod with Al-Si-O doped Pellet

Fig. 7-1 Profile of rod outer diameter (Type-A after 3 cycle irradiation)

(a) Fuel Rod with Standard Pellet

(b) Fuel Rod with Al-Si-O doped Pellet

Fig. 7-2 Profile of rod outer diameter (Type-A after 5 cycle irradiation)

す。5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素は傾向が異なり、酸化膜厚さが 3 サイクル燃焼後以降に加速的に増加する傾向であり、燃料要素内でも周方向分布ではチャンネルボックスコーナー部対向方位で皮膜厚さが

Fig. 8 Burnup dependence of rod outer diameter **Fig. 9-1** Typical profile of EC oxide film thickness (Type-B after 5 cycle irradiation) **Fig. 9-2** Profile of EC oxide film thickness for corner rod (Type-B after 5 cycle irradiation) **Fig. 10** Burnup dependence of cladding oxide thickness measured by metallography observation

Fig. 11-1 Specified cross section of the cladding in proximity to the spacer-spring

Fig. 11-2 Center of shadow corrosion at specified cross section (enlargement of Fig. 11-1)

Fig. 11-3 Center of shadow corrosion at specified cross section

厚くなる傾向が認められている。また、**Fig. 12-2**には水素化物の析出状況に関する観察結果を示すが、被覆管外周部に水素化物が集積している様子が観察される。

9×9A 型燃料については、コーナー燃料要素の金相観察による酸化膜厚さは他の燃料要素と同等であったが、後述のとおり一部の燃料要素内圧が高いことが確認されており、この燃料要素について水素化物の析出状況を確認した結果では、高い水素化物方位係数となっていることが確認され、高い内圧によって被覆管に引張応力が働き水素化物の析出に影響した可能性⁷⁾が考えられる。

Fig. 12-1 Metallographic photograph of corner rod at the 2nd span (Type-B after 5 cycle irradiation)

Fig. 12-2 Metallographic photograph of corner rod at the 2nd span (Type-B after 5 cycle irradiation)

(3) 水素吸収

被覆管の水素濃度の燃焼期間の依存性を **Fig. 13** に示す。酸化膜厚さの増加が確認された 5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の第 2 スパン部および第 3 スパン部から採取した試料は、従来データ³⁾と比較して、非常に高い水素濃度となっている。その他の燃料要素については、全体的に、5 サイクル燃焼後の結果において、水素濃度が急増する傾向がみられる。なお、図中のデータには、前述のスペーサ位置でのシャドウ腐食の測定結果も含

まれているが、同位置での特異な水素濃度の増加は認められない。

Figure 14 に水素吸収率を酸化膜厚さで整理した結果を示す。酸化膜厚さが増加するにともない水素吸収率が高くなる傾向が示されており、5 サイクル燃焼後の水素濃度の急増は、被覆管の腐食の増加に伴う発生水素量の増加と水素吸収率の増加が重畳した結果であることが示されている。なお、5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の結果については、従来データと比較して高い値となっており、酸化膜が厚い部分では水素吸収率が約100%となっている。

(4) コーナー燃料要素の腐食挙動に関する検討

5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の

Fig. 13 Irradiation time dependence of hydrogen concentration of cladding

Fig. 14 Hydrogen pick-up rate

		High Fe		Low Fe (less than 0.16%)	
		High Si	Low Si	High Si	Low Si
Type A	Non-corner rod	○	○		
	Corner rod	○	○		
Type B	Non-corner rod	○ ⁹⁾			○
	Corner rod	○ ⁹⁾			●

- DT results show acceleration of corrosion.
- ▲ NDT results show acceleration of corrosion.
- DT results show No acceleration.
- NDT results show No acceleration.

Fig. 15 Summary of incidence of accelerated corrosion after 5 cycle irradiation

腐食特性に及ぼす影響について、材料要因および環境要因の観点から、以下の検討を行った⁸⁾。

(a) 材料要因

試験対象とした5サイクル燃焼後 9×9B 型燃料 (2F1ZN3) と炉心対象位置に装荷され、ほぼ同一の照射履歴で燃焼された 9×9B 型燃料 (2F1ZN1) に対して実施されたプールサイド試験における皮膜厚さ測定結果⁹⁾ではコーナー燃料要素に特異な皮膜厚さは認められていない。この燃料集合体 (2F1ZN1) は、本事業で用いた燃料集合体と異なる製造ロットの被覆管が使用されている。被覆管の化学

成分を比較すると、本事業の試験対象とした被覆管は、プールサイド試験対象の燃料集合体の被覆管と比較して、Fe および Si 濃度が低い値となっている。

Figure 15 に 5 サイクル燃焼後 9×9 型燃料の皮膜厚さ・酸化膜厚さ測定結果のまとめを示す。Si 濃度が低い被覆管は 9×9A 型燃料でも使用されていたが、特異な酸化膜厚さは認められていない。また、9×9A 型燃料では Fe および Si の両方の濃度が低い被覆管は使用されていない。これらのことから、被覆管の Fe および Si の濃度が低いことが腐食/水素吸収特性に影響を及ぼした可能性が考えられる。なお、ジルカロイ-4 を BWR 条件下で 5 サイクルまで燃焼した後の腐食増量は、Si 濃度が低い場合には炉内耐食性のばらつきが大きくなり、腐食増量が増加するものもみられること¹⁰⁾、また、近年では Fe および Si の両方の濃度が低い被覆管は使用されていないこと¹¹⁾が報告されている。

(b) 環境の影響

本事業で試験対象とした 5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料集合体内のすべての燃料要素は同一の被覆管ロットで構成されているが、集合体内のコーナー位置に配置された燃料要素の下部側のみで酸化膜厚さおよび水素濃度が増加する傾向が認められた。このため、集合体内の環境の違いを確認するため、RINGS CODE¹²⁾を用いて、冷却材流速やボイド率等について集合体断面の 1/8 対称モデルで評価を行った。また、燃料集合体内部の熱中性子束および高速中性子照射量の分布を評価するために、サブチャンネル解析によるボイド率の分布を反映した核的解析を行った。

Figure 16-1 および **Fig. 16-2** に第 4 サイクルにおけるボイド率および高速中性子束の分布を示す。ボイド率は、軸方向上部に向かうに従い増加する傾向がある。また、第 4 サイクルまでは他の燃料集合体内の位置と比較して、コーナー位置でボイド率が小さくなる傾向がある。なお、第 5 サイクルでは第 2 スパン(下部側)の集合体断面でほとんどの集合体内の位置でボイド率が 0% となった。また、液相流速はボイド率の増加を反映して軸方向上部に向かうに従い増加傾向があり、燃料集合体内の位置で比較すると、全サイクルを通してコーナー位置の液相流速が遅くなっている。熱中性子束はコーナー位置で高い傾向を示し、燃焼に伴い熱中性子束は低下する傾向である。高速中性子束は熱中性子束の傾向とは反対となり、コーナー位置で低い傾向となった。また、軸方向の分布では中央付近で最大となった。

熱水力の評価の結果等をもとに、LwrChem コード¹³⁾を用いて軸方向および集合体断面方向の冷却材中のラジカル濃度の分布を評価した結果、コーナー燃料要素については、皮膜厚さおよび酸化膜厚さの軸方向分布はラジカル濃度分布の解析結果との相関関係が比較的認められるものの、集合体断面方向で比較した場合に、コーナー部が他の位置と比較して特徴的な傾向は認められなかった。冷却材

中のラジカル濃度と被覆管の腐食挙動の相関関係について Nishino ら¹⁴⁾による報告があるが、本事象ではラジカル濃度以外の要因を含めた考慮が必要であると考えられる。

(c) 被覆管温度増加の影響

被覆管外表面の酸化膜が厚くなることで酸化膜の熱抵抗により金属との界面温度が上昇し、腐食がさらに加速するという熱的フィードバック効果が生じる可能性がある。機械設計コード¹⁵⁾を用いて被覆管の表面温度を解析した結果、コーナー燃料要素の第 2 スパンの酸化膜形成による温度増加は 10°C 程度であった。

また、燃焼中に被覆管が高温を経験すると、照射欠陥の回復が起こり、硬度が減少することが報告されており^{16~18)}、照射後試験で被覆管硬度の確認を行ったが、特に大きな変化はみられず、少なくとも照射硬化が回復するまでの特異な高温経験はなかったと考えられる。

これらの検討結果より、5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素で認められた酸化膜厚さおよび水素濃度の増加は、材料、環境および高燃焼度(炉内での長期間滞在)の 3 因子が重畳作用して発生したものと推定されるが、今後も各種データの蓄積を図るとともに、それらの結果を踏まえて適宜検討を加えていく必要があると考える。

4. 被覆管の機械的特性

試験温度 300°C での内圧破裂試験による周伸びと水素濃度の関係について、従来データ³⁾と合わせて整理した結果を **Fig. 17-1** に示す。また、5 サイクル燃焼後 9×9B 型

Fig. 16-1 Void distribution during mid of 4th cycle

Fig. 16-2 Neutron fluxes at the second lowest span during mid of 4th cycle

Fig. 17-1 Elongation in burst test as a function of hydrogen concentration

Fig. 17-2 Elongation in burst test as a function of hydrogen concentration (less than 300 ppm)

Fig. 18 Cross section of cladding after burst test (Corner rod of type-B after 5 cycle irradiation)

燃料コーナー燃料要素の結果を除いて、周伸びについて整理した結果を **Fig. 17-2** に示す。

5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料については、一部の燃料要素で金相観察において半径方向に配向して析出した水素化物が多く生じていることが認められたが、同燃料要素から採取した試料の結果は、他の試料と大きな違いはなく、周伸びは比較的大きい値である。内圧破裂試験後の試料外観は、300℃および343℃で試験したすべての試料は破損部が膨らむ形態で延性破断したことを示した。343℃における水素固溶濃度は約 110 ppm, 300℃の固溶濃度は約 65 ppm であり¹⁹⁾、9×9A 型燃料の内圧破裂試験に使用

Standard Pellet (Type-A)
with burnup of 67.6GWd/t

Al-Si-O doped Pellet (Type-A)
with burnup of 67.6GWd/t

Fig. 19 Cross section of fuel pellets (Type A after 5 cycle irradiation)

した試験片近傍の水素濃度は約 110～120 ppm であったことから、試験温度では多くの水素が固溶するため、すべての試料が延性破断したと考えられる。

一方、5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の内圧破裂試験後の試料外観は、有意な膨れ変形が認められず、軸方向全長に渡りクラックが認められ、周伸びは 0.4% である。従来データでも水素濃度の増加に伴って周伸びが低くなる傾向が得られていたが、この結果は従来データの範囲を下回り 1% 未満である。5 サイクル燃焼後 9×9B 型燃料のコーナー燃料要素の内圧破裂試験後の軸方向中央位置での被覆管横断面の金相観察結果を **Fig. 18** に示す。破断部では、被覆管外表面に 100 μm 程度の水素化物層がみられ、水素化物層では荷重方向に対してほぼ垂直に破断している。水素化物層より内面では、破断面は荷

重方向(周方向)に対しておよそ45°の角度を有しており、せん断破断となっている。破断面以外にも被覆管外表面の水素化物層にはクラックの発生がみられるが、破断面以外のクラックは被覆管外表面の水素化物層で止まっている。

5. ペレットの微細組織と密度変化

(1) ペレット組織変化

5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料ペレットのマクロ金相写真(横断面エッチング後)を **Fig. 19** に示す。ペレット中央部に黒っぽい変色領域(以下、「ダークゾーン」と称す。)が二重、三重となっている様子が観察される。また、 UO_2 ペレットではダークゾーンがペレット中心部からほぼ同心円状に広がっているのに対して、Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットや Al-Si-O 添加 Gd_2O_3 入り UO_2 ペレットではダークゾーンが偏心している。一般に、燃焼が進んだ燃料の照射後試験において、ペレット研磨面をエッチングすると黒色のリングが現れ、この部分は結晶粒内に小さい FP ガス気泡(直径 0.1~0.2 μm)が多数析出している部分であるとされている。このリングより内側の部分では結晶粒内の気泡個数は減るが、結晶粒内で比較的大きな気泡(直径約 0.6 μm まで)ができることや結晶粒界における気泡の連結等により、ペレットからのガス放出が顕著になることが報告されている^{20,21)}。

また、3 サイクル燃焼後においては、Al-Si-O 添加 UO_2 燃料要素ではペレットが偏心して片側にペレット-被覆管ギャップが生じていることが観察されたが、5 サイクル燃焼後では、ペレット-被覆管ギャップはほぼ閉じている。なお、ペレットの外周部では、多孔質領域(結晶粒界がはっきりせず細かな気泡が多数観察され、結晶粒が細粒化している領域)が観察されており、この詳細については後述の III-5-(2)で述べる。

5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料のペレットのマクロ金相写真(縦断面)を **Fig. 20** に示す。いずれのペレットとも割れパターンに特に変わったところはみられず、 UO_2 燃料ではペレット端面およびチャンファは明瞭に観察され、ペレット端面の隙間はペレット中心部が外周部よりも広い傾向がすべての観察位置で認められる。しかし、Al-Si-O 添加 UO_2 燃料では 3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後においてペレット端面が部分的に明瞭でなくなっているところが観察される。Al-Si-O は、 UO_2 ペレットの粒界に析出し、高温でガラス層を形成して焼結を促進することが報告²²⁾されており、試験対象とした燃料でも製造時において、 UO_2 ペレットの平均粒径(二次元粒径)が約 7 μm であるのに対して、Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットは約 23 μm と大粒径化が生じており、微量に添加した Al-Si-O の影響で拡散が促進され、ペレット端部の接触面での癒着が生じていると考えられる。

Figure 21 に 5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料のペレット結晶粒の観察結果を示す。ペレット結晶粒は等軸晶であ

り、約 1,700°C 以上の温度領域で観察される柱状晶の形成は観察されておらず、そのような高温への温度上昇はなかったことが確認できる。なお、中間部から中心部にかけて白っぽい金属状 FP 析出物が観察されており、これらは Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットの方がより外周側で観察され、また、中心部で観察された金属状 FP 析出物は Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットの方が UO_2 ペレットより大きい傾向があった。また、この金属状 FP は 3 サイクル燃焼後の Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットでは中間部でも観察されたが UO_2 ペレットではまばらであった。これらは、気泡中に析出しているもので、後述する FP ガス放出挙動との相関関係があると考えられる。

(2) ペレット-被覆管境界部の状態

Figure 22 に金相観察により測定した多孔質領域の幅と燃焼度との関係を示す。多孔質領域の幅は、ペレット平均燃焼度約 30 GWd/t 近傍から観察され始め、燃焼度の増加に伴って広がっており、従来データ³⁾と同様の傾向であるが、特に 9×9B 型燃料でばらつきが大きい。なお、一般に、リム組織はペレットの粒界近傍から発生すると考えられ、結晶粒径が大きいほどリム化し難いとされているが、5 サイクル燃焼後の Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットは、結晶粒径が大きいものの、通常の結晶粒径のペレットに比較して多孔質領域の幅が広がっている様相を呈している。従来データ²³⁾での Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットでは結晶粒界からリム化が進んでいる様子が観察されていたが、本試験では粒界でのリム化が比較的少なく、粒内でのリム化が起きている様子が観察されており、そのため結晶粒が大きいものの UO_2 ペレットよりリム化が進んだ可能性が考えられる。

(3) ペレットの密度変化

ペレット密度の燃焼度変化を従来データ^{3~5)}とともに **Fig. 23** に示す。ペレット密度は、従来データと同様に、燃焼度の増加に伴い低くなる傾向が認められる。なお、9×9A 型燃料については、低出力位置から採取された UO_2 および Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットの密度は同程度の燃焼度の従来データより低い傾向があり、核分裂密度が小さい状態での照射で焼きしまりによる密度増加が少なかったことが示唆されている。また、5 サイクル燃焼後 Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットの密度変化はばらつきが大きい傾向である。

6. FP ガス放出挙動

(1) 燃焼度および経験出力との関係

Figure 24-1 に、パンクチャ試験および非破壊法による FP ガス放出率の燃焼度依存性を従来データ³⁾と合わせて示す。3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料の FP ガス放出率は、従来データや 9×9B 型燃料の FP ガス放出率と比較しても高い傾向であり、9×9A 型燃料のなかでも Al-Si-O 添加 UO_2 燃料要素の FP ガス放

Fig. 20 Longitudinal cross section of fuel pellets (Type A after 5 cycle irradiation)

Fig. 21 Microstructure of pellet center (Al-Si-O doped pellet of type A after 5 cycle irradiation)

出率が UO_2 燃料要素より特に大きい傾向である。Figure 24-2 に、FP ガス放出率の経験最高出力依存性を示す。3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料は、従来データと比較して低い経験最高出力で FP ガス放出が起きている。

9×9A 型燃料の高 FP ガス放出率の要因について、出力履歴、製造時データを含めて照射後試験結果を検討した結

Fig. 22 Burnup dependence of rim width estimated by ceramograph

Fig. 23 Burnup dependence of pellet density

果、燃料要素の外径変化等の傾向から、比較的燃焼が進んだ時点においてもペレット-被覆管ギャップが残存した可能性があること、また、Al-Si-O 添加 UO_2 ペレットではペレット端面の固着によりペレットと被覆管の中心が偏心した状態が生じ、 UO_2 ペレットと比較して広いギャップが残った可能性があること等が挙げられる。なお、FP ガス放出率に影響するパラメータを選定し、燃料挙動解析コード²⁴⁾により、測定 FP ガス放出率を模擬した解析を行った結果、9×9A 型燃料の一部の燃料要素(UO_2 燃料要素および Al-Si-O 添加 UO_2 燃料要素)の燃料要素内圧は冷却材圧力 7.1 MPa を超えるレベルであった。

Fig. 24-1 Burnup dependence of fission gas release rate (FGR)

Fig. 24-2 Dependence of fission gas release rate (FGR) on max. LHGR after 10 GWd/t

Fig. 25 Radial distribution of Xe in pellet (Type A)

(2) ペレット半径方向 FP 分布測定

ペレット半径方向の FP 分布を測定するため、ペレットマイクロガンマスキャン、ペレット電子線微小分析 (EPMA 分析) およびペレット X 線蛍光分析 (XRF 分析) を実施した。なお、XRF 分析に際しては比較のため隣接位置から採取した試料を用いた EPMA 分析も実施した。

EPMA 分析の結果、3 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料では燃焼度の高い UO_2 燃料および Al-Si-O 添加 UO_2 燃料から採取した試料の最外周部で Xe 濃度が若干減少しているのが認められ、5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料ではその傾向が顕著であった。Figure 25 に XRF 分析と EPMA 分析によるペレット径方向の Xe 残存量の評価結果を示す。5 サイクル燃焼後 9×9A 型燃料より採取した UO_2 ペレットの外周部 (リム領域) の XRF 分析結果は、EPMA 分析結果の傾向と異なり、ペレット内の燃焼度分布に対応した Xe 濃度の増加がみられる。EPMA 分析は電子線の浸透深さ (約 $1\ \mu\text{m}$) が小さく、表面近傍のみの分析であることと比較して、XRF 分析は X 線の浸透深さ (約 $15\sim 20\ \mu\text{m}$) が深く、微小な気泡内に存在する Xe を検出できることから、リム領域に Xe が残留している可能性が高いことを示唆している。

7. 燃料集合体部材の照射ふるまい

(1) 酸化膜厚さ

Figure 26 に部材の酸化膜厚さを燃焼期間で整理した結果を示す。9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料のジルカロイ-2 材のスペーサの酸化膜厚さは、3 サイクル燃焼後までは従来データ³⁾と同等の傾向であるが、5 サイクル燃焼後は、ばらつきが顕著になり酸化膜の厚さの増加も顕著になる傾向である。

9×9B 型燃料のジルカロイ-4 材のウォータチャンネルの酸化膜厚さは、ジルカロイ-2 材のスペーサや 9×9A 型燃料のウォータロッドと比較して厚い酸化膜となっており、ジルカロイ-2 材と同様、3 サイクル燃焼後と比較して 5 サイクル燃焼後では増加する傾向である。Figure 27 に示すように外観観察の結果では、ジルカロイ-2 材では黒色の均一な表面を呈しているのに対して、ジルカロイ-4 材では酸化膜の隆起が観察されており、ジルカロイ-2 材とジルカロイ-4 材は BWR 炉心環境での腐食特性が異なり、ジルカロイ-2 材の合金成分である Ni が腐食抑制に効果があるためと考えられる²⁵⁾。

(2) 水素吸収

Figure 28 に部材の水素吸収量を燃焼期間に対してプロットした結果を示す。5 サイクル燃焼後の 9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料のジルカロイ-2 材のスペーサの水素濃度は大幅に増加する傾向である。なお、9×9A 型燃料のウォータロッド水素吸収量データは 5 サイクル燃焼後だけであり、燃焼期間依存性の評価は難しいが、同じ材質のスペーサ材料の傾向から燃焼期間とともに増加傾向にあ

Fig. 26 Irradiation time dependence of oxide thickness of fuel assembly components

Zry-2 Spacer band

Zry-4 Spacer Band

Fig. 27 Spacer appearance observation (Type-B after 5 cycle irradiation)

Fig. 28 Irradiation time dependence of hydrogen absorption of fuel assembly components

ると推察される。9×9B 型燃料のジルカロイ-4 材のウォータチャンネルの水素吸収量も、3 サイクル燃焼後から 5 サイクル燃焼後にかけて増加傾向にあるが、ジルカロイ-2 材の範囲内である。

Figure 29 に部材の水素吸収率を燃焼期間に対してプロットした結果を示す。3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後の 9×9A 型燃料および 9×9B 型燃料のジルカロイ-2 材の水素吸収率は従来データ³⁾と比較して大きい傾向

Fig. 29 Irradiation time dependence of hydrogen pick-up rate of fuel assembly components

Fig. 30 Change of spacer outside width in relation to hydrogen absorption

である。また、ジルカロイ-2 材の方がジルカロイ-4 材よりも水素吸収率が大きい傾向がある。ジルカロイ-4 材のウォータチャンネルの水素吸収率は、3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後で約 10% であり、特に照射日数依存性は認められない。ジルカロイ中の Ni 添加は水素吸収を促進させる作用があり²⁶⁾、ジルカロイ-2 材とジルカロイ-4 材の水素吸収率の相違は合金成分である Ni の有無に起因した影響と考えられる。

(3) スペーサ寸法

Figure 30 にスペーサ外幅寸法変化率と水素濃度増加量との相関を示す。スペーサ外幅寸法の増加に及ぼす因子としては、酸化膜形成、照射成長および水素吸収の影響が考えられ、図には水素化物形成による体積膨張を等方的に起こると仮定したときの理論値²⁷⁾を合わせて示した。水素濃度増加量とスペーサ外幅寸法変化率との相関は比較的良好で、スペーサ外幅の寸法増加は水素吸収が主要因と考えられる。なお、酸化膜厚さはバラツキが大きいために、本整理ではスペーサ外幅寸法変化率への酸化膜厚さ分の補正を行っていないが、5 サイクル燃焼後の最大酸化膜厚さを考慮した場合、スペーサ外幅寸法変化率への影響は 0.1% 未満と考えられる。

IV. 高燃焼度における BWR 燃料の ふるまいについて

9×9 型燃料集合体の基本設計である熱・機械設計および熱水力設計の手法, 安全評価における判断基準等については, 本試験対象とした少数体装荷燃料の照射開始に先立って, 「沸騰水型原子炉に用いられる 9 行 9 列型燃料集合体について (平成 6 年 3 月 3 日原子力安全委員会了承)」がまとめられている。しかし, 本試験等で確認された高燃焼度燃料のふるまいでは, コーナー燃料要素の腐食挙動, スペース対向部のシャドウ腐食, 燃料被覆管の水素脆化に伴う延性の低下や燃料要素内圧の増加などにおいて, 従来データとは異なる傾向も認められており, 今後の高燃焼度燃料の評価に当たっては, 燃料被覆管円周方向平均塑性歪, 燃料棒内圧, 燃料被覆管表面酸化およびクラッド付着, 燃料被覆管およびスペースの水素脆化等の項目の内容については, 本試験の結果等を考慮する必要がある。

V. 結 言

福島第二原子力発電所 1 号機に装荷された 9×9 型少数体装荷燃料から, 3 サイクル燃焼後および 5 サイクル燃焼後にそれぞれ 9×9A 型燃料, 9×9B 型燃料各 1 体を取り出し, 照射後試験を実施した結果, これらの燃料が健全に燃焼を終了したことを確認した。なお, その結果に対する総合評価により, 燃料の高燃焼度化によって, 被覆管の腐食および水素吸収等で従来データとは異なる傾向が認められ, これらの燃料ふるまいについては, 今後の高燃焼度燃料の評価に考慮する必要があると考えられる。

なお, 本試験の計画, 実施, 成果の評価については, 鈾原子力安全基盤機構内に設けた照射燃料検討会の委員よりご助言を頂いて実施したものであり, 供試燃料は東京電力 (株) より借用して実施したものである。本試験に参加頂いた関係各位の協力に感謝いたします。

— 参考文献 —

- 1) K. Ogata, A. Fukazawa, K. Ito *et al.*, “BWR fuel performance and recent R&D activities in Japan,” *Int. Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, Portland Oregon, Mar. 2–6, 1997.
- 2) Y. Hirano, Y. Mozumi, K. Kamimura *et al.*, “Irradiation characteristics of BWR high burnup 9×9 lead use assemblies,” *2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting*, Kyoto Oct. 2–6, 2005.
- 3) 平成 13 年度高燃焼度等燃料安全試験に関する報告書 (BWR 高燃焼度燃料 総合評価編), 鈾原子力発電技術機構, 平成 14 年 3 月.
- 4) 燃料集合体信頼性実証試験に関する調査報告書 (BWR 燃料集合体照射試験【総合評価】編), 鈾原子力工学試験センター, 昭和 61 年 3 月.
- 5) 軽水炉改良技術確証試験 (高燃焼度等燃料に関するもの) に関する報告書 (補足資料) (BWR 高性能燃料照射試験総合評価編), 鈾原子力発電技術機構, 平成 6 年 3 月.
- 6) G. Lysell, A. C. Nystrand, M. Ullberg, “Shadow corrosion mechanism of zircaloy,” *14th Int. Symp. on Zirconium Nuclear Industries*, ASTM STP 1467, 445–461.
- 7) D. O. Northwood, R. W. Gilbert, “Hydrides in zirconium–2.5 wt.% niobium alloy pressure tubing,” *J. Nucl. Mater.*, **78**, 112–116 (1978).
- 8) T. Miyashita, N. Nakae, K. Ogata *et al.*, “Corrosion and hydrogen pick-up behaviors of cladding and structural components in BWR high burnup 9×9 lead use assemblies,” *2007 Int. LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, California, Sep. 30–Oct. 3, 2007.
- 9) K. Ohira, J. Kamimura, N. Itagaki *et al.*, “Recent Experience and Development of BWR Fuel at NFI,” *2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting*, Kyoto Oct. 2–6, 2005.
- 10) H. J. Sell, S. T. Pritsching, F. Garzarolli, “Effect of alloying elements and impurities on in-BWR corrosion of zirconium alloys,” *14th Int. Symp. on Zirconium Nuclear Industries*, ASTM STP 1467, 404–417.
- 11) Y. Otsuka, M. Abe, K. Kakiuchi *et al.*, “The effects of cladding chemical composition on corrosion behavior of high burnup BWR fuel (Corrosion properties of low iron and low silicon content cladding)” *2007 Int. LWR Fuel Performance Meeting*, San Francisco, California, Sep. 30–Oct. 3, 2007.
- 12) P. Knabe, F. Whele, “Prediction of dryout performance for boiling water reactor fuel assemblies based on subchannel analysis with the RINGS CODE,” *Nucl. Technol.*, **112** (1995).
- 13) K. Lundgren, H. Wijkstrom, “Recent developments in the LwrChem radiolysis code,” *Int. Conf. on Water Chem. of Nuclear Reactor Systems*, San Francisco, Oct. 2004.
- 14) Y. Nishino, T. Yasuda, E. Ibe *et al.*, “Effects of water radiolysis on zircaloy corrosion,” *Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance*, Portland, Oregon, Mar. 1997.
- 15) NLR-14 「沸騰水型軽水炉用燃料の設計手法について」, 原子燃料工業 (株), 昭和 62 年 12 月.
- 16) T. Torimaru, T. Yasuda, M. Nakatsuka, “Changes in mechanical properties of irradiated Zircaloy-2 fuel cladding due to short term annealing,” *J. Nucl. Mater.*, **238**, 169–174 (1996).
- 17) K. Ogata, H. Matsuoka, T. Yamanaka *et al.*, “Post irradiation examination of the failed fuel rod in the Hamaoka Atomic Power Station Unit 1,” *Int. Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance*, West Palm Beach, Apr. 17–20, 1994.
- 18) D. Lee, “Recrystallization and mechanical behavior of Zircaloy-2 tubing,” *J. Nucl. Mater.*, **37**, 159–170 (1970).
- 19) 平成 16 年度高燃焼度燃料安全裕度確認試験成果報告書 被覆管特性評価試験, 鈾原子力安全基盤機構, 平成 17 年 12 月.
- 20) R. Manzel, R. Eberle, “Fission gas release at high burnup and the influence of the pellet rim,” *Proc. ANS/ENS Int’l Topical Meeting*, Avignon, France, 528 (1991).
- 21) S. K. Yagnik, A. J. Machiels, R. L. Yang, “Characterization of UO₂ irradiated in the BR-3 reactor,” *J. Nucl. Mater.*, **270**, 65–73 (1999).
- 22) T. Matsuda, Y. Yuasa, S. Kobayashi *et al.*, *Characteristics of Fuel Pellet with Additive of Al and Si*, IAEA-TECDOC-1036, 9–18, 1998.
- 23) K. Nogita, K. Une, “Irradiation-induced recrystallization in high burnup UO₂ fuel,” *J. Nucl. Mater.*, **226**, 302–310 (1995).

- 24) M. Ishida, T. Kogai, "A fuel performance code trust v1c and its validation," *IAEA Technical Committee Meeting on Water Reactor Fuel Element Modeling at High Burnup and Experimental Support*, Windermere, England, Sep., 1994.
 - 25) H. G. Weidinger, F. Garzarolli, C. M. Eucken *et al.*, *Effect of Chemistry on Elevated Temperature Nodular Corrosion*, Zirconium in the Nuclear Industry: ASTM STP 939, 364–386 (1987).
 - 26) W. E. Berry *et al.*, *Hydrogen Pickup During Aqueous Corrosion of Zirconium Alloys*, Corrosion-National Association of Corrosion Engineers, 109–117 (1961).
 - 27) S. J. King, R. L. Kesterson, K. H. Yueh *et al.*, *Impact of Hydrogen on Dimension Stability of ZIRLO Fuel Assemblies*, ASTM STP 1423, 471–489 (2002).
-