

# 高燃焼度対応改良燃料の開発

## Development of Advanced Fuel for High Burnup

原子力事業本部 高橋利通\*1

神戸造船所 土井莊一\*2 鈴木成光\*3

ニュークリア・デベロップメント株式会社 小松和志\*4

経済性向上及び使用済み燃料発生量低減の観点から、燃料の高燃焼度化が望まれている。燃料の高燃焼度化に当っては燃料被覆管の腐食増加、ペレット-被覆管相互作用 (PCI) に対する設計余裕の減少及び燃料棒内圧増加による燃料健全性への影響が課題となる。このため、当社では1980年代後半からそれぞれの対策として、耐食性改良 Zr 基合金燃料被覆管、集合組織調整燃料被覆管及び結晶粒径を大きくした大粒径ペレットの開発を進めてきた。これまでに多くの炉外試験、海外試験炉での照射試験を実施した結果、優れた改良効果を確認している。スペイン及び国内の商業炉で実施中の先行照射の成果を踏まえた上で、2002年以降に高燃焼度対応改良燃料の実用化を図ることとしている。

Fuel burnup extension is required to improve nuclear economy and reduce spent fuel generation. Fuel cladding waterside corrosion, pellet-cladding interaction (PCI) and fuel rod internal pressure are concerned at higher burnup. Mitsubishi has developed an advanced fuel with zirconium based alloy cladding of higher corrosion resistance, a radial texture controlled cladding of higher PCI resistance and large grain pellets to decrease fission gas release, since the latter half of the 1980s. The superior behavior of these advanced design has been confirmed by a lot of out of pile and irradiation tests in experimental and commercial reactors. Fuel demonstration programs in a Spanish and a Japanese commercial PWR are underway to prove fuel integrity at higher burnup upto the final target burnup of 55 GWd/t. After confirming fuel integrity in these programs, the advanced fuel for high burnup will be introduced as practical use in Japanese PWR plants from 2002 on.

### 1. ま え が き

燃料の高燃焼度に関しては、図1に示されるように、第1ステップとして燃料集合体取出し燃焼度制限を39 GWd/tから48 GWd/tへの引上げを1990年代初めから実施している。さらに、2002年以降には第2ステップとして、55 GWd/tへの引上げを計画している。燃料のこうした高燃焼度化は、今後予想される原子力発電所の長期サイクル運転による稼働率の向上における使用済み燃料発生量を抑制し、より原子力発電の経済性を向上させることができる。このような電力会社のニーズに対応するため、当社は1980年代後半から高燃焼度燃料の開発を進めてきた。これまで当社の自社研究や電力共通研究として実施してきた数多くの炉外試験及び海外試験炉での照射試験を経て、(財)原子力発電技術機構高燃焼

度等燃料確証試験計画の一環として、高燃焼度対応改良燃料を1994年6月からスペイン Vandellos 2号機にて照射を開始し、3サイクルの照射終了時に約45 GWd/tの燃焼度を達成し、更に継続照射中である。また、関西電力(株)大飯4号機でも燃料集合体取出し燃焼度55 GWd/tを目標として、1997年3月から先行照射を開始している。

### 2. 燃料高燃焼度化の技術的課題

燃料高燃焼度化の技術的課題は図2に示すように、次の3点が挙げられる。炉内滞在時間が増大すると燃料被覆管の腐食が増大し、腐食に伴う水素吸収量が増大する。また、初期反応度の増加に伴い炉心内で発生する出力変化が増加し、ペレット-被覆管相互作用 (PCI: Pellet Cladding Interaction) による燃料破損に対

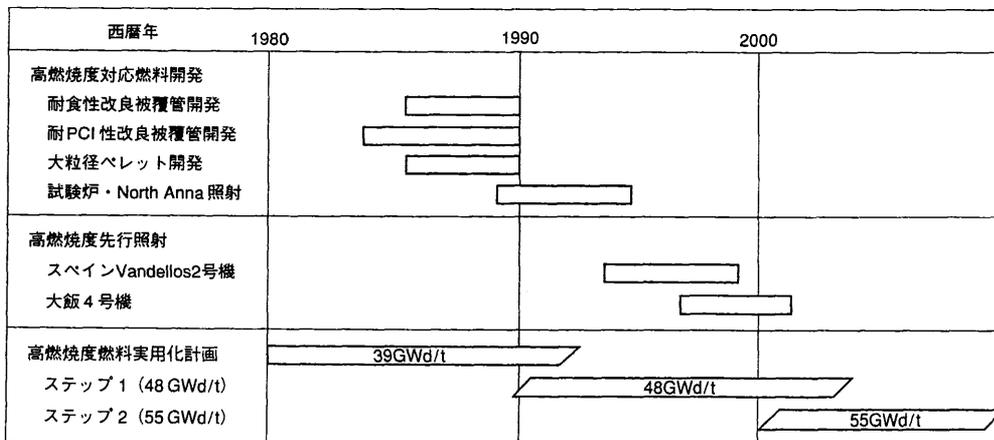


図1 高燃焼度対応改良燃料の開発計画 三菱の炉外試験、試験炉照射試験等の開発工程及び電力会社の実用化計画を示す。  
Development program on advanced fuel for burnup extension

\*1 原子力技術センター原子炉・安全技術部燃料技術課長  
\*2 原子燃料・炉心技術部燃料設計課主務

\*3 原子燃料・炉心技術部燃料設計課長  
\*4 研究部長

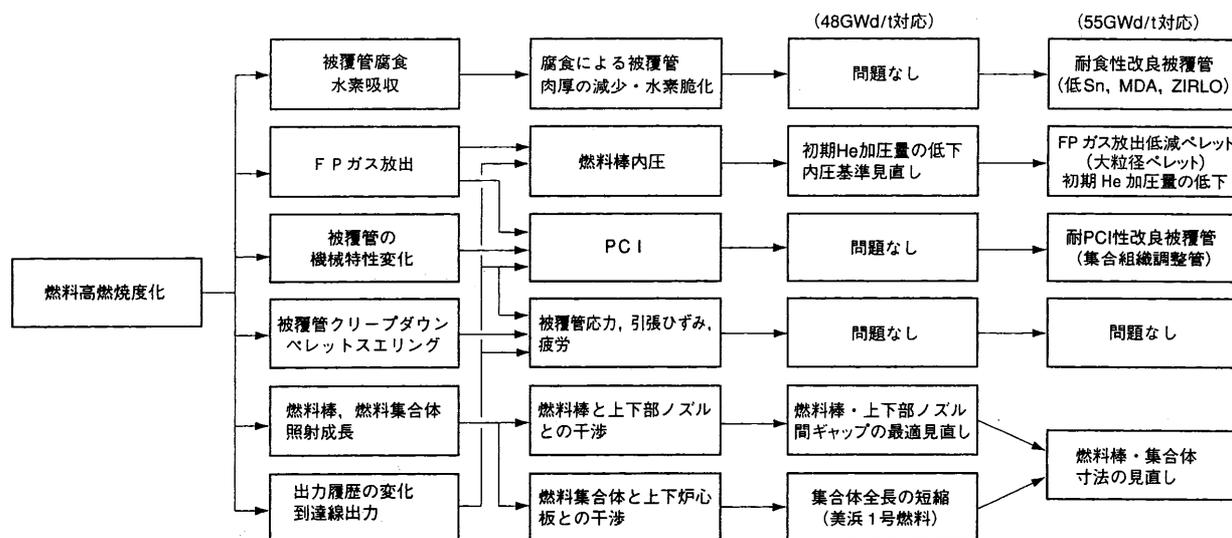


図2 燃料高燃焼度化の技術的課題と対策 燃料の高燃焼度化の課題と対策を48 GWd/t (ステップ1) と55 GWd/t (ステップ2) ごとにまとめた。

Concerns and countermeasures on fuel burnup extension

する余裕が減少する。さらに燃料の燃焼に伴い、核分裂生成物の蓄積によりペレットの体積膨張(スエリング)が起り燃料棒内空間体積が減少する一方、ペレット外への核分裂生成物(FP: Fission Product)ガス放出増大により燃料棒内圧が増大する。

高燃焼度化ステップ1(48 GWd/t)では燃料棒内の封入Heガス圧の低減と燃料棒内圧基準の見直し等により実用化を達成した。一方、ステップ2(55 GWd/t)では、前述の高燃焼度化の技術的課題を解決するため、以下に述べるような耐食性改良被覆管、耐PCI性改良被覆管及びFPガス放出低減ペレットを開発している。

### 3. 耐食性改良被覆管

#### 3.1 開発経緯

PWRの燃料被覆管材として使用しているジルカロイ-4は中性子経済性に優れているばかりでなく、耐食性、照射挙動も優れており、これまで、世界各国で40年以上もの長い間使用されている。この豊富な実績を基に耐食性、照射による寸法安定性を更に向上させたMDA合金(Mitsubishi Developed Alloy)を開発した。

耐食性を改良するために、熱処理条件の最適化及び合金組成の変更による検討を行ったが、前者については、既に改良が実施されてきたことから更なる耐食性改良効果は小さく、大幅な向上は望めなかった。後者については、ジルコニウム(Zr)にせず(Sn)、鉄(Fe)、クロム(Cr)のジルカロイ-4合金成分のほか、ニオブ(Nb)、モリブデン(Mo)、マンガン(Mn)等を添加した材料を製作し、腐食、水素吸収、機械的強度、延性を調べ、最終的に燃料被覆管としての要求を満足する合金組成を決定した<sup>(1)</sup>。このMDA合金はジルカロイ-4と同様、中性子吸収断面積が小さいZrを主成分(98%)としているが、耐食性を向上させるため、Sn含有率を低減し、機械的強度、水素吸収特性向上の観点からNbを添加している。Nb添加量は、成型加工性の観点から、ZrにおけるNbの固溶限(約0.6%)以内で最も効果的な0.5%としている。

MDA合金の主成分を表1に示す。ここでZIRLO合金(ウエスチングハウス社の登録商標)は、耐食性が良好で水素吸収率が低いZr-Nb合金に機械的強度を向上させるため、Sn, Feを添加したウエスチングハウス社が開発したZr基合金である。

表1 耐食性改良管の合金成分

Alloy element of corrosion resistant cladding

主成分	ジルカロイ-4			耐食性改良	
	規格	従来Sn	低Sn	MDA	ZIRLO
Sn (wt %)	1.2~1.7	1.5	1.3	0.8	1.0
Fe (wt %)	0.18~0.24	0.2	0.2	0.2	0.1
Cr (wt %)	0.07~0.13	0.1	0.1	0.1	—
Nb (wt %)	—	—	—	0.5	1.0

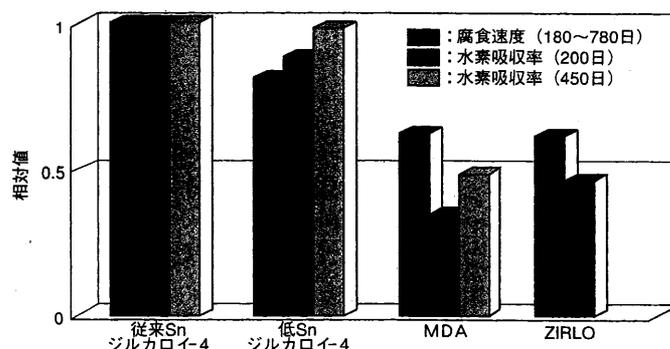


図3 耐食性改良被覆管の炉外耐食性と水素吸収特性 耐食性改良被覆管(MDA, ZIRLO)の炉外腐食試験結果から腐食速度、水素吸収率を従来Sn管に対する相対値として示す。

Out of pile corrosion and hydrogen pickup properties of corrosion resistant cladding

#### 3.2 耐食性改良効果

耐食性改良被覆管(MDA, ZIRLO)の炉外腐食試験結果を、図3に示す。これより、MDA, ZIRLO被覆管の腐食速度は、従来ジルカロイ-4に比べ約35%以上、水素吸収率は約50%以上低下している。また、米国North Anna 1号炉における炉内の耐食性データを図4に示す。これより、MDA, ZIRLO被覆管の耐食性改良効果が認められる<sup>(2)(3)</sup>。

#### 3.3 その他の特性

燃料被覆管の照射下での寸法安定性は燃料設計上重要である。炉内クリープについては、固溶Nbと固溶Snが多いほど小さく、しかもNbの効果はSnの効果の2倍程度といわれている<sup>(4)</sup>。これは、クリープが転位(材料中に元々ある結晶格子のずれ)の移動によるものであるのに対し、Zr中に固溶しているSn, Nbは転位

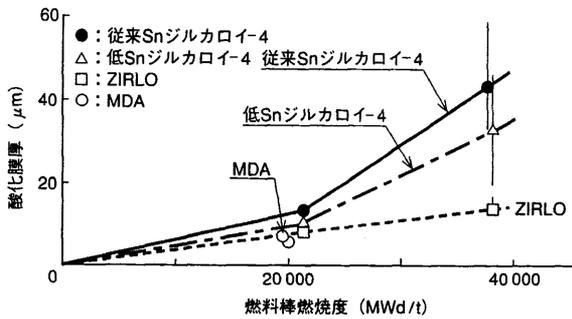


図4 耐食性改良被覆管の炉内耐食性 (North Anna 炉照射) 耐食性改良被覆管 (MDA, ZIRLO) 燃料を North Anna 炉で照射し各サイクル照射後にオンサイトで酸化膜測定を実施した結果を示す。  
In pile corrosion behavior of corrosion resistant cladding

を捕獲し、その動きを抑制するためと考えられている。一方、照射成長の支配要因は、 $\alpha$ -Zr のちゅう密六方晶の向きが比較的そろった組織において、中性子照射で生じる格子欠陥のうち空孔は六方晶の底面へ、格子間原子は柱面へ選択的に集まるためといわれているが、前記のクリープ同様、固溶した Sn 及び Nb は照射欠陥の動きを抑制するため、固溶量が多いほど、照射成長は小さくなるためと考えられる。実際、North Anna 炉での MDA 及び ZIRLO 被覆管の炉内クリープについては、ジルカロイ-4 の約 80%，また、照射成長についてはジルカロイ-4 の約 1/2 となっている<sup>(2)(3)</sup>。

また、MDA, ZIRLO 合金はジルカロイ-4 と同等の Zr をベースとしているため、機械的強度、延性、溶融点、熱伝導率、密度等の基本的材料物性は、ジルカロイ-4 と同等である<sup>(1)(2)</sup>。

#### 4. 耐 PCI 性改良被覆管

##### 4.1 開発経緯

ペレット-被覆管の相互作用 (PCI) による破損は、燃料棒出力が急激に上昇した場合には、腐食性 FP ガス雰囲気形成されること、及び被覆管よりペレットの熱膨張が大きく、被覆管に過大な応力が発生することにより起る応力腐食割れ (SCC) 破損といわれている。PWR における出力調整は、主に冷却材中のほう素の濃度調整により行われるため、通常運転中の出力変動は小さく PCI 破損の可能性は小さい。しかしながら、ほう素の異常な希釈、制御棒の異常な引抜き等の異常な過度変化事象が起きた場合には、比較的大きな出力上昇が生じ PCI 破損の可能性が考えられる。現在、この PCI 破損の評価は、試験炉での出力急昇試験結果を踏まえて“出力上昇幅”と“最大出力レベル”を燃焼度で整理して設定したしきい値に対して行われている。“出力上昇幅”はペレット-被覆管がなじんだ出力からの出力上昇幅であり、被覆管の応力に相当する指標と考えることができる。また、“最大出力レベル”はペレット温度及び FP ガス放出量に相当する指標である。PCI 破損は“出力上昇幅”のしきい値と“最大出力レベル”のしきい値の両方を同時に超える出力変化の場合に発生するが、これは材料 (ジルカロイ)、応力 (出力上昇幅)、及び雰囲気 (最大出力レベル) の 3 要素がそろって発生する SCC と考えることができる。

この PCI 破損限界を上昇させるための手段として、ジルカロイ被覆管の集合組織を調整する方法が考えられる。

Zr 金属は、ちゅう密六方晶の集合組織から成り異方性を示す。SCC 破面はこのちゅう密六方晶の底面に平行であることが分かっている。旧来からの様々な被覆管を評価検討した結果、集合組織

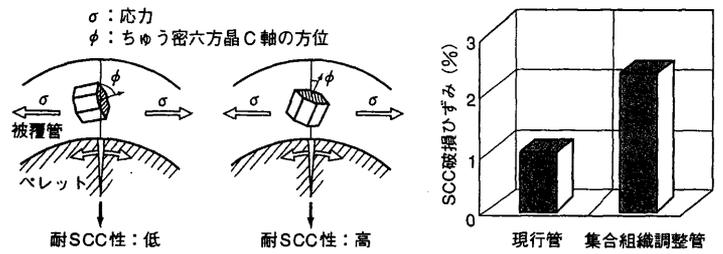


図5 集合組織調整管の概念と炉外 SCC 特性 Zr 合金被覆管のちゅう密六方晶と SCC 性の関係及び炉外マンドレル試験による破断ひずみを示す。  
Concept and out of pile SCC properties of radial texture controlled cladding

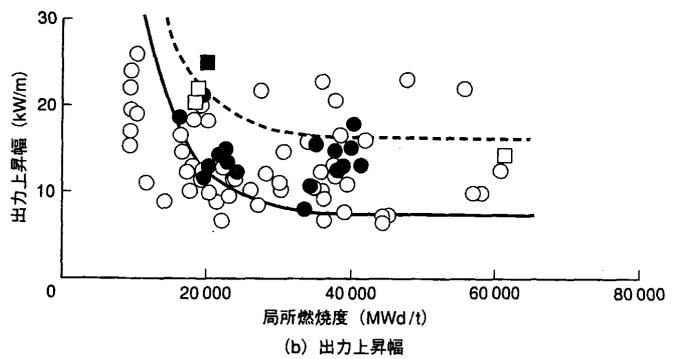
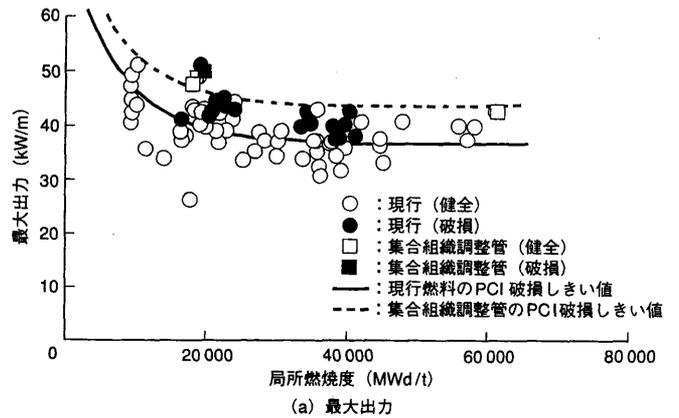


図6 集合組織調整管の PCI 破損限界 現行集合組織管と集合組織調整管燃料の出力急昇試験結果から最大出力と出力上昇幅を燃焼度で整理した結果を示す。  
PCI failure threshold of radial texture controlled cladding

の調整により、耐 PCI 特性を向上させることができることが判明した。この検討では、出力急昇試験を炉外で模擬するマンドレル SCC 試験を行うとともに、実際の性能は試験炉における出力急昇試験により確認した<sup>(5)</sup>。

この集合組織調整管は被覆管の最終冷間加工工程において、外径の減少率より肉厚減少率を大きくとることにより製造することができる。スペイン及び国内実炉での先行照射では、MDA, ZIRLO 合金に対しても集合組織を調整した被覆管を照射している。

##### 4.2 耐 PCI 性改良効果

炉外 SCC 試験の結果を図 5 に示すが、SCC 雰囲気下での延性は集合組織を調整した被覆管の方が高いことが分かる。

集合組織調整管を用いた試験燃料棒を、ベルギー BR 2 炉及びスウェーデン R-2 炉で出力急昇試験した結果を図 6 に示す。集合組織調整管の PCI 破損しきい値は、現行管のそれに比較し高く、燃焼度によらず耐 PCI 性の改良効果が顕著であるといえる<sup>(3)</sup>。

なお、集合組織調整による機械的性質、クリープ特性、照射成

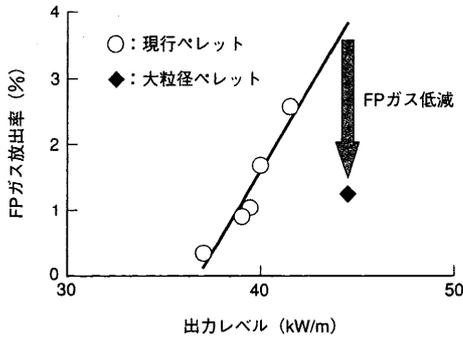


図7 大粒径ペレットのFPガス放出低減効果  
出力急昇試験を実施した後、内部圧力測定とガス分析を行い、FPガス放出率を求めた結果で現行粒径ペレットと大粒径ペレットの比較を示す。  
FP gas release of large grain pellet

長へ与える影響はないことを確認している<sup>(5)</sup>。

## 5. FPガス放出低減ペレット

### 5.1 開発経緯

燃料の高燃焼度化においては燃料棒の内圧増加抑制のため、ペレットからのFPガス放出を抑制する必要がある。ペレット結晶粒内で発生したFPガス原子は拡散によって粒界まで到達し、粒界を通してペレット外へ放出される。現行の二酸化ウランペレットは約8 $\mu$ m程度の結晶粒から成るが、この粒径を大きくすることによりペレット外への放出を抑制できる。ペレット結晶粒を粗大化するためには、ペレット焼結条件の変更や添加物による方法等があるが、当社では粉末特性の改良により焼結特性を高め、結晶粒を粗大化(25 $\mu$ m)させる方法を採用した。

### 5.2 FPガス放出低減効果

ベルギーBR2炉で燃焼度26GWd/tまで照射した後、出力急昇試験を実施した結果、図7に示すように、粒径の粗大化に伴いFPガス放出率が低下していることを確認した<sup>(3)</sup>。また、この大粒径ペレットと現行ペレットをノルウェーHalden炉にて燃焼度21GWd/tまで照射試験を行ない、照射中の燃料棒内圧変化を測定した結果、現行粒径ペレットに比較して、大粒径ペレットのFPガス放出が低いことを確認した。

### 5.3 その他の特性

大粒径ペレットは、焼結しやすい粉末を用いて製造されているため、密度上昇も速やかに起り、焼結後のペレットは焼きしまりが少ない特性となっている。この結果、照射による焼きしまりも現行ペレットに比較して小さくなる。一方、スエリング挙動は核分裂生成物の蓄積によるため、現行ペレットと同等である<sup>(2)</sup>。

なお、大粒径ペレットは、現行ペレットと同じ二酸化ウランから成るため、燃料健全性評価上重要な熱伝導率及び熱膨張率等の基本的材料物性は、現行ペレットと同等であることを炉外試験で確認している<sup>(2)</sup>。

## 6. 高燃焼度対応改良燃料集合体の仕様

改良被覆管、大粒径ペレットの改良効果及びその他の照射挙動に関するデータは現在実施中の先行照射からも得られ、今後の許認可に有効に活用することができる。また、これらのデータに基づき燃料棒設計コードの改良等を行うとともに、製造コスト等を勘案して、高燃焼度対応改良燃料集合体の最終仕様を決定する予定である。

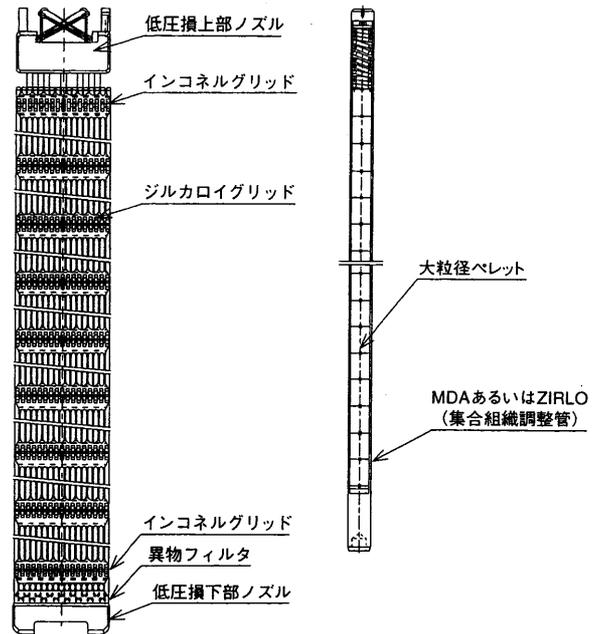


図8 高燃焼度対応改良燃料の構造  
Overview of advanced fuel for burnup extension

高燃焼度対応改良燃料の仕様及び構造案を図8に示す。中間グリッドには中性子経済上有利なジルカロイ-4材を採用する予定である。

また、SCC対策を施した上部ノズルリーフスプリングやRCC不完全挿入事象への対応についても検討するとともに、上部ノズル精密製造化、上・下部インコネルグリッドの溶接化等各種コスト低減策を織込む予定である。さらに、炉心設計上のフレキシビリティ向上のため、現行に比較して、Gdの濃度を高めた仕様とする予定である。

## 7. あとがき

高燃焼度対応改良燃料は、現在スペイン及び国内の商業炉で先行照射を実施中であり、これらの成果を踏まえて、2002年以降には高燃焼度燃料の実用化を図ることとしている。

さらに、燃料集合体最大取出し燃焼度を55GWd/t以上に伸長することを目標に、ここで報告したステップ2高燃焼度燃料の適用性を見極める一方、更なる改良を目指した燃料開発にも着手している。

### 参考文献

- (1) 木戸ほか、高燃焼度対応改良被覆管の開発(2)、日本原子力学会(1994春の年会)
- (2) Suzuki, S. et al., Burnup Extension and Improved Reliability, ANS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Florida, April 17-20 (1994)
- (3) Takahashi, T. et al., Advanced Fuel Development For Burnup Extension, ANS International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, March 26 (1997)
- (4) Fuchs, H. P. et al., Cladding and structural Material Development for Advanced Siemens PWR Fuel "FOCUS", ANS/ENS Topical Meeting on LWR Fuel Performance April 21-24, Avignon France (1991)
- (5) Ozawa, D. et al., Improvement In PCI Property of Zircaloy Fuel Cladding Tube, ANS/ENS Topical Meeting on LWR Fuel Performance, April 21-24, Avignon France (1991)