

JAERI-M

83-051

被覆燃料粒子のSiC層破損割合の統計的検討

1983年3月

小川 徹・井川 勝市

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1983

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

被覆燃料粒子の SiC 層破損割合の統計的検討

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

小川 徹・井川 勝市

(1983年2月18日受理)

1975～1981年に試作された被覆燃料粒子、計9種類について製造時SiC層破損割合 ϕ' をバン・リーチ法によって測定した。現在の仕様にしたがっている7種類の被覆燃料粒子については、ただ1種類を除いて、 ϕ' の95%信頼限界は 1×10^{-3} 以下であった。そして、これらの粒子に関しては、燃料コンパクト成型によっても ϕ' の有意なほどの増大は生じていないことが分かった。また、第3層粒子破壊強度を測定し、同強度のワイブル統計をもとに、被覆燃料粒子の寸法データから ϕ' を予測するための単純なモデルを提出した。さらに、同モデルに基づいて、寸法諸元の変更等 ϕ' の低減化法について考察した。

Statistical Approach to Defective SiC Fraction of
Coated Fuel Particles

Toru OGAWA and Katsuichi IKAWA
Division of Nuclear Fuel Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 18, 1983)

As-manufactured defective SiC fractions (ϕ') of nine groups of coated fuel particles, which were produced on an experimental basis in 1975-1981, were measured by the burn-leach techniques. Six out of seven groups conforming to the present specification showed ϕ' less than 1×10^{-3} with 95% confidence. And there was no significant increase in ϕ' of those particles by fuel compact fabrication. Third-layer crushing strength measurements were also performed; a simple model for predicting ϕ' from the particle size data was proposed on the basis of Weibull statistics of the third-layer crushing strength. Besides, possible means of reducing ϕ' such as the change of size specification were discussed in view of the model.

Keywords: Coated Fuel Particle, Defective SiC Fraction, Crushing Strength, Burn-leach Techniques, Statistical Approach

目 次

1. はじめに.....	1
2. 解析法.....	1
2.1 破損割合の統計的処理.....	1
2.2 破壊強度の統計的処理.....	3
3. 実験方法.....	5
4. 結 果.....	6
4.1 SiC層破損割合.....	6
4.2 第3層粒子破壊強度.....	10
5. 考 察.....	10
6. 結 論.....	18
謝 辞	19
参考文献.....	19

Contents

1. Foreword	1
2. Analysis	1
2.1 Statistical approach to fraction of defective SiC. ...	1
2.2 Statistical approach to crushing strength.	3
3. Experimental method	5
4. Results	6
4.1 Fraction of defective SiC.	6
4.2 Third-layer crushing strength.	10
5. Discussion	10
6. Conclusion	18
Acknowledgement	19
References	19

1. はじめに

Triso 被覆燃料粒子の被覆層は、内側から第1層低密度熱分解炭素（バッファー層）、第2層高密度熱分解炭素（ILT I層）^{注1)}、第3層SiC、第4層高密度熱分解炭素（OLTI層）の四重の構成になっている。このうちSiC層の最も重要な機能は、Cs、Sr等の金属FPに対する拡散障壁としての機能である。特にCsに対してはSiC層はきわめて良い拡散障壁であることが知られている⁽¹⁾。照射が比較的高温で長時間にわたる場合には、もはや熱分解炭素層にはCsに対する拡散障壁機能はほとんど期待できないので、一次系へのCs¹³⁴、Cs¹³⁷放出量は燃料粒子のSiC層破損割合によって定まると言える⁽²⁾。その意味で被覆燃料粒子の製造時SiC層破損割合の管理は、最も重要な課題の一つである。

また、上述の理由から、被覆燃料粒子の破損割合は二種類に区別して扱うことが必要である。一つは、第2層から第4層まで貫通した損傷を有する粒子の割合であって、貫通破損割合と呼ぶ。ここでは、OECD ドラゴン計画にならって、 ϕ と表わす。貫通破損割合は一次系への希ガス、Iの放出量を定める。というのは、これらのFPはLT I層が健全である限り、被覆燃料粒子の外には放出されないからである^{注2)}。もう一つの破損形態はSiC層破損であって、他の層が健全であると否とにかくわらず、SiC層が破損している場合をいう。したがって、この定義では、貫通破損粒子はSiC層破損粒子のなかに含めて数える。なぜなら、SiC層以外の被覆層の健全性は、金属FP放出量の評価にはほとんど影響しないからである。このSiC層破損割合をここでは ϕ' と表わす。

定義により $\phi \leq \phi'$ である。製造工程、あるいは被覆燃料粒子設計において特別の工夫をしない限り、製造時の ϕ' は ϕ を大きく上回るのが通例である。というのも、SiC層は粒子内部からの均一な応力に対しては安定であるが、外からの衝撃に対してはきわめて脆弱だからである。ここでは、製造時の ϕ' を測定するとともに、第3層粒子破壊強度^{注3)}を調べ、 ϕ' を決定する要因について考察した。

2. 解析法

2.1 破損割合の統計的処理

破損割合Pの被覆燃料粒子の集団からN粒子を採取したとき、ちょうどx個の破損粒子が検出

注1) Inner low-temperature isotropic。LT Iはプロピレンを原料とし、比較的低温で蒸着された等方質熱分解炭素の略称。

注2) ただし、OLTI層の汚染ウランからの放出が極微量ある。

注3) OLTI層を除去した状態での粒子の破壊強度。

1. はじめに

Triso 被覆燃料粒子の被覆層は、内側から第1層低密度熱分解炭素（バッファー層）、第2層高密度熱分解炭素（ILT I層）^{注1)}、第3層SiC、第4層高密度熱分解炭素（OLTI層）の四重の構成になっている。このうちSiC層の最も重要な機能は、Cs、Sr等の金属FPに対する拡散障壁としての機能である。特にCsに対してはSiC層はきわめて良い拡散障壁であることが知られている⁽¹⁾。照射が比較的高温で長時間にわたる場合には、もはや熱分解炭素層にはCsに対する拡散障壁機能はほとんど期待できないので、一次系への Cs^{134} 、 Cs^{137} 放出量は燃料粒子のSiC層破損割合によって定まると言える⁽²⁾。その意味で被覆燃料粒子の製造時SiC層破損割合の管理は、最も重要な課題の一つである。

また、上述の理由から、被覆燃料粒子の破損割合は二種類に区別して扱うことが必要である。一つは、第2層から第4層まで貫通した損傷を有する粒子の割合であって、貫通破損割合と呼ぶ。ここでは、OECD ドラゴン計画にならって、 ϕ と表わす。貫通破損割合は一次系への希ガス、Iの放出量を定める。というのは、これらのFPはLT I層が健全である限り、被覆燃料粒子の外には放出されないからである^{注2)}。もう一つの破損形態はSiC層破損であって、他の層が健全であると否とにかくわらず、SiC層が破損している場合をいう。したがって、この定義では、貫通破損粒子はSiC層破損粒子のなかに含めて数える。なぜなら、SiC層以外の被覆層の健全性は、金属FP放出量の評価にはほとんど影響しないからである。このSiC層破損割合をここでは ϕ' と表わす。

定義により $\phi \leq \phi'$ である。製造工程、あるいは被覆燃料粒子設計において特別の工夫をしない限り、製造時の ϕ' は ϕ を大きく上回るのが通例である。というのも、SiC層は粒子内部からの均一な応力に対しては安定であるが、外からの衝撃に対してはきわめて脆弱だからである。ここでは、製造時の ϕ' を測定するとともに、第3層粒子破壊強度^{注3)}を調べ、 ϕ' を決定する要因について考察した。

2. 解析法

2.1 破損割合の統計的処理

破損割合Pの被覆燃料粒子の集団からN粒子を採取したとき、ちょうどx個の破損粒子が検出

注1) Inner low-temperature isotropic。LT Iはプロピレンを原料とし、比較的低温で蒸着された等方質熱分解炭素の略称。

注2) ただし、OLTI層の汚染ウランからの放出が極微量ある。

注3) OLTI層を除去した状態での粒子の破壊強度。

される確率 $P(x)$ は、

$$P(x) = \left(\frac{N}{x}\right) P^x (1-P)^{N-x}$$

である。すなわち、変数 x の分布は二項分布である。

いま、母集団の破損割合 P が未知であるとき、1度のサンプリングにおいて破損粒子数 r （測定破損割合 r/N ）を得たとき、この r から P を区間推定する方法は次の通りである⁽³⁾。

① N および r が十分大きい場合。以下のように設定した t は近似的に標準正規分布 $N(0, 1)$ にしたがう。

$$t = \frac{\frac{r}{N} - P}{\sqrt{\frac{P(1-P)}{N}}}$$

95 % 信頼区間を考えると、 $P(|t| < t_0) = 0.95$ となる $t_0 = 1.96$ であるから、

$$t^2 = (1.96)^2$$

を与えるような P が信頼区間の限界を定める。すなわち、95 % 信頼限界として

$$\frac{r}{N} \pm \frac{1.96}{\sqrt{N}} \sqrt{\frac{r}{N} \left(1 - \frac{r}{N}\right)} \quad (1)$$

が得られる。

② N あるいは r が十分な大きさを持たない場合。変数 x が実現値 r を取ったとき、母平均値 P が小区間 $(P, P + dP)$ にある確率を $f(P) dP$ とすると、

$$f(P) \doteq \frac{P^r (1-P)^{N-r}}{\int_0^1 P^r (1-P)^{N-r} dP} = \frac{P^r (1-P)^{N-r}}{B(r+1, N-r+1)}$$

となる。

信頼度 95 % の信頼区間を得るには、 $x=r$ であるとき、 $P>P_1$ あるいは $P<P_2$ である確率がそれぞれ 2.5 % であるような P_1, P_2 を求めれば良い。すなわち、測定された破損粒子数が r であるとき、母集団の破損割合の信頼区間は、 $P_2 < P < P_1$ である。いま、

$$n_1 = 2(r+1)$$

$$n_2 = 2(N-r+1)$$

$$F = n_2 P / n_1 (1-P)$$

と置けば、 F は自由度 n_1, n_2 の F 分布にしたがう^{注4)}。 F 分布の 2.5 % の点を F_1 とすると、これに対応する P の値は、

$$P_1 = n_1 F_1 / (n_1 F_1 + n_2) \quad (2)$$

注4) F の確率密度 $G(F)$ として、 $G(F) dF = f(P) dP$ より容易に示される。

であり、 $P > P_1$ となる確率もまた 2.5 %である。同様に、

$$n'_1 = 2(N - r + 1) = n_2$$

$$n'_2 = 2(r + 1) = n_1$$

$$F' = n'_2 (1 - P) / n'_1 P$$

とおいて、F 分布の 2.5 %の点を F_2 とし、

$$P_2 = n'_2 / (n'_1 F_2 + n'_2) \quad (3)$$

とすれば、 $P < P_2$ となる確率はやはり 2.5 %である。具体的には、 N , r から n_1 , n_2 , n'_1 , n'_2 を求めて、F 分布表⁽⁴⁾から $P = 0.025$ の F を読み、(2), (3)式から P_1 , P_2 を計算すれば良い。信頼度 95 %で P の信頼区間は、 $P_2 < P < P_1$ である。

したがって、 $N = 2000$, $r = 1$ の場合と、 $N = 20000$, $r = 10$ の場合とでは、実測破損割合はともに 5×10^{-4} であっても、(2), (3)式による 95 %信頼度での信頼区間は、それぞれ、 $P < 2.8 \times 10^{-3}$, $2.8 \times 10^{-4} < P < 9.2 \times 10^{-4}$ となる。また、仕様の限界破損割合を例えば 1×10^{-3} に定める場合、試料粒子数としては 5000 粒以上を必要としよう。 $N = 5000$, $r = 1$ で既に、95 %信頼度での信頼区間は $P < 1.1 \times 10^{-3}$ となってしまうからである。同様に、限界破損割合 1×10^{-4} に対しては、50000 粒以上の検査が必要となろう。なお、 $N = 3000$, $r = 0$ でも $P < 1.2 \times 10^{-3}$ であるから、限界破損割合 1×10^{-3} に対して理論上必要な最小の試料粒子数は 3000 粒である。ただし、3000～5000 の試料粒子数に対してたまたま 1 つでも破損があれば、その集団は 95 %信頼度では仕様外になってしまう。

なお、F 分布表が手元にないときは、次の近似式を用いて計算できる⁽⁵⁾。

$$F(n_1, n_2) \approx \left\{ \frac{a'b' + u \sqrt{a'^2 b + b'^2 a - abu^2}}{b'^2 - bu^2} \right\}^3 \quad (4)$$

$$a = 2 / 9 n_1, a' = 1 - a$$

$$b = 2 / 9 n_2, b' = 1 - b$$

そして、95 %信頼限界に関して、

$$u = 1.96 \sqrt{N}$$

である。

2.2 破壊強度の統計的処理

被覆燃料粒子の破壊強度は、粒子を一対の平面ではさんだとき、被覆層に破壊を生じさせる荷重によって表わされる。Triso 被覆燃料粒子は複雑な複合材料であるので、一対の平面から静荷重を受ける際の応力分布は良く理解されていない。したがって、その場合の破壊挙動についても十分把握されていない。しかし、幾つかの観察から、第 3 層粒子破壊挙動(すなわち、第 3 層 SiC

被覆まで施した段階の粒子の破壊挙動)は、基本的にヘルツ破壊(Hertzian fracture)であることが推定されている⁽⁶⁾⁽⁷⁾。すなわち、接触面近傍におけるきわめて局所的な応力場の形成が、外力による第3層の破壊をもたらすものと考えられる。そして、このようなヘルツ破壊の場合、破壊荷重を定める物性は主として表面エネルギーであって、材料の強度とは直接関係しない⁽⁸⁾。したがって、第3層粒子破壊強度は単に外力による破損に対する抵抗の指標となるものであって、照射時の内圧破損に対する抵抗の指標としては用いることができない。というのも、後者の場合は、応力はSiCの内面あるいは外面の全体にわたってほぼ均一であると仮定することが可能であり、SiC層の引張り強度が粒子の耐え得る内圧の限界を定めるからである。

しかし、もし第3層粒子破壊挙動が厳密な意味でのヘルツ破壊にしたがうとするなら、破壊強度Fは、表面エネルギーをγ、粒径をaとして、ほぼ $F \propto \gamma a$ であり、第3層表面に存在するきず(flaw)の寸法とその分布には依存しない⁽⁸⁾。その場合、我々が破壊強度データを整理する際に用いている、ワイブル統計を採用する根拠はきわめて薄弱になってしまふ。したがって、以下で、やはりワイブル統計を用いているのは、いまのところ全く便宜上の理由によるものであることを断つておく。とはいひ、個々の被覆燃料粒子のあいだでは粒径、真球度、およびSiC層の組織、組成にはらつきがあるので、ワイブル統計を想定することが全く不合理であるとも言えないであろう。

ここでは次のような累積分布関数 P_f を仮定する。

$$P_f = 1 - \exp \left[- \left(\frac{F}{F_0} \right)^m \right] \quad (1)$$

ここで、 F_0 、 m は定数であり、それぞれ特性強度、ワイブル・モデュラスと呼ばれる。上式は次のように変形される。

$$y = \ell_n \ell_n \left(\frac{1}{1 - P_f} \right) = -m \ell_n F_0 + m \ell_n F \quad (2)$$

すなわち、 y を $\ell_n F$ に対してプロットするとき、勾配 m の直線になる。これは、ワイブル確率紙上でデータ点に対して最小自乗法によって直線をあてはめることに等しい。ただし、測定された F を大きさ順に、 $F_1 \leq F_2 \leq \dots \leq F_n$ と並べたとき、 $P_f(F_i) = i / (n+1)$ とする。このようにして求められたワイブル・モデュラス m_s は、真の m から一定量へだたる傾向にあることが知られている。このへだたりの程度 m_s/m と、 m の標準誤差は、Fig. 1に示すように試料数に依存する⁽⁹⁾。Fig. 1より、試料数 25 および 50 のとき、

$$\begin{aligned} m_s/m &= 0.903 & (n = 25) \\ &= 0.924 & (n = 50) \end{aligned}$$

であり、 m の標準誤差はそれぞれ 18 % および 14 % である。なお、 $P_f(F_i) = (i - 1/2) / n$ としても良いが、その場合は、 m_s/m および標準誤差は Fig. 1 とは異なったものになる。

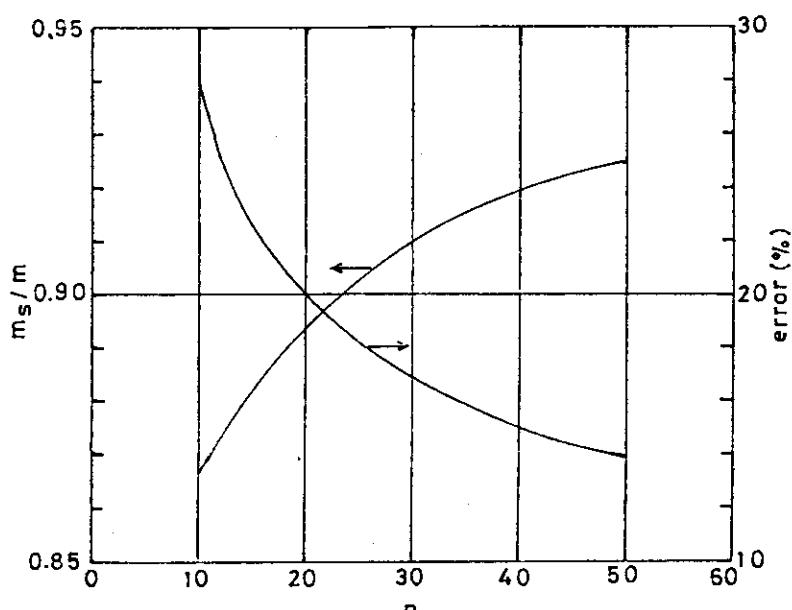


Fig. 1 Bias m_s/m of the Weibull modulus m_s determined by least square analysis and standard error of m as functions of sample size (Jayatilaka (9)).

3. 実験方法

SiC層破損割合の測定はいわゆるバーン・リーチ(burn-leach)法によった。これは、被覆燃料粒子を空気中加熱したのち硝酸溶液中で煮沸するものである。空気中で加熱することにより第4層熱分解炭素は酸化除去されるうえ、SiC層が破損している場合には、第1、2層も酸化除去される。そして、 UO_2 核は U_3O_8 に転換して体積を増すので、SiC層の亀裂が開口することが期待される。SiC層自体は空気中での加熱に対して安定であって、健全なSiC層が酸化によって損傷を受けるおそれはない。

酸化条件は扉を数cm開いたマッフル炉中で900°C 6時間とした。ただし、燃料コンパクト中の被覆燃料粒子のSiC層破損割合の測定に当っては、コンパクトをまるごとアルミナるつぼに入れ、マトリックス黒鉛の酸化時間を見込んで、900°C 24時間の空気中加熱を行なった。酸化後の浸出条件は、1:1硝酸溶液中で煮沸1時間とした。浸出液については、U蛍光分析を行なって溶出U量を求めた。そして、SiC層破損割合を(溶出U量)/(全U量)として求めた。また、浸出後の粒子については、乾燥後に実体顕微鏡下で観察し、SiC層破片の数をかぞえた。このとき、個々の破片の形状、大きさをFig. 2の見本と照合しながらおおよその破片寸法(以下、寸法因子 f_i)をわりあてた。ただし $f_i = 1/8$ より小さい破片は、破片の破片と見なして、勘定からははずした。各寸法因子に対応する破片の数を n_i 、試料粒子数を N_0 としたとき、

$$\phi' = \sum_i f_i \cdot n_i / N_0$$

として求めることが出来る。後述のように、今回の実験の結果、 $\sum n_i$ が十分大きいときは、 $f_i = 1/4$ として良い近似が得られることが分かった。その場合は、

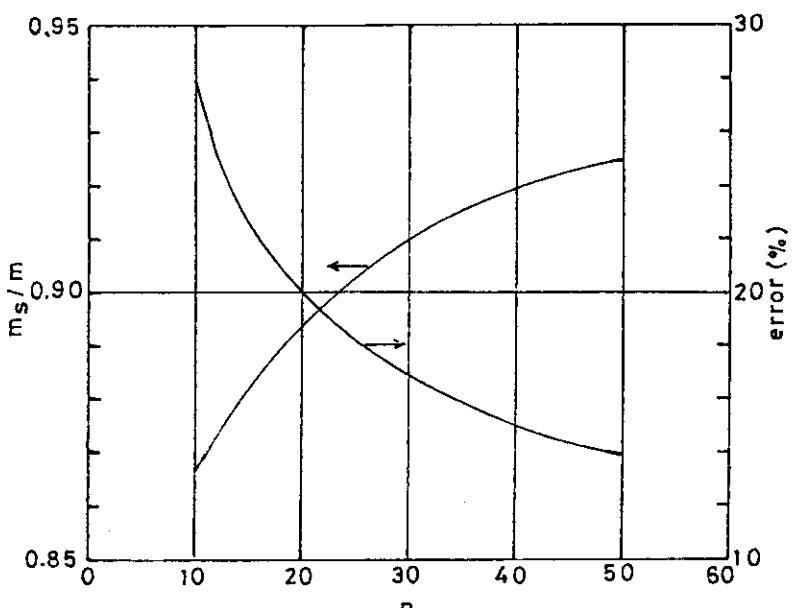


Fig. 1 Bias m_s/m of the Weibull modulus m_s determined by least square analysis and standard error of m as functions of sample size (Jayatilaka (9)).

3. 実験方法

SiC層破損割合の測定はいわゆるバーン・リーチ(burn-leach)法によった。これは、被覆燃料粒子を空气中加熱したのち硝酸溶液中で煮沸するものである。空气中で加熱することにより第4層熱分解炭素は酸化除去されるうえ、SiC層が破損している場合には、第1、2層も酸化除去される。そして、 UO_2 核は U_3O_8 に転換して体積を増すので、SiC層の亀裂が開口することが期待される。SiC層自体は空气中での加熱に対して安定であって、健全なSiC層が酸化によって損傷を受けるおそれはない。

酸化条件は扉を数cm開いたマッフル炉中で900°C 6時間とした。ただし、燃料コンパクト中の被覆燃料粒子のSiC層破損割合の測定に当っては、コンパクトをまるごとアルミナるつぼに入れ、マトリックス黒鉛の酸化時間を見込んで、900°C 24時間の空气中加熱を行なった。酸化後の浸出条件は、1:1硝酸溶液中で煮沸1時間とした。浸出液については、U蛍光分析を行なって溶出U量を求めた。そして、SiC層破損割合を(溶出U量)/(全U量)として求めた。また、浸出後の粒子については、乾燥後に実体顕微鏡下で観察し、SiC層破片の数をかぞえた。このとき、個々の破片の形状、大きさをFig. 2の見本と照合しながらおよその破片寸法(以下、寸法因子 f_i)をわりあてた。ただし $f_i = 1/8$ より小さい破片は、破片の破片と見なして、勘定からはずした。各寸法因子に対応する破片の数を n_i 、試料粒子数を N_0 としたとき、

$$\phi' = \sum_i f_i \cdot n_i / N_0$$

として求めることが出来る。後述のように、今回の実験の結果、 $\sum n_i$ が十分大きいときは、 $f_i = 1/4$ として良い近似が得られることが分かった。その場合は、

$$\phi' = \sum_i n_i / 4 N_0$$

である。ただし、上2式において分子には小数点以下を四捨五入した値を用いた。

破壊強度測定法は既報⁽⁷⁾に述べたものと同様である。ただし、試料はコンパクト成型前の被覆燃料粒子から採り、上記による SiC 層破損割合を測定した後のものを用いた。また、これらの試料粒子については V-スロット法により外径を測定した。V-スロット法では金属厚板に V 字溝を切り、その中に既知数の粒子を並べて、その全長をノギスによって測定する。ここでは粒子数を 200 とした。粒子の平均外径は全長を \varnothing として $\varnothing/200$ である。同一の 200 粒子について 2 回の測定を行い、その平均をとった。すなわち、一度 V 字溝中での全長を測ったのち粒子を回収し、粒子数を再確認し、再度 V 字溝に並べ直して測長した。これは個々の粒子の大きさがまちまちなので、配列の仕方が全長に影響する可能性があるためと、粒子が小さいので数え間違えたり、並べている途中でいつの間にか数粒が失われているおそれがあるためである。しかし、2 度の測定値が最も大きく異なるものでも、粒子外径で $2 \mu\text{m}$ の差にすぎなかった。したがって、このようにして求められた外径に誤差があるとしても、ほとんどはサンプリングに由来するものと考えられる。すなわち、約 5×10^5 粒以上の寸法を 200 粒についての平均値で代表させることの誤差である。

4. 結 果

4.1 SiC 層破損割合

1975～1981 年度の試作被覆燃料粒子および燃料コンパクトについて、SiC 層破損割合 ϕ' ^{注5)} を調べた。燃料コンパクトについては、コンパクト成型前後における ϕ' を調べた。Table 1 には試料の概略を示す。これらの粒子およびコンパクトは、75F 4A, 75F 5A, 76F 4A, 76F 5A, 78F 3A, 80F 4A, 81F 10A の計 7 本のスリーピガス・キャップセルの試料である。

Table 2 には目視および化学分析による結果をまとめてある。同表には、また、2.1 に述べた方法による 95 % 信頼度での ϕ' の区間推定結果を示した。

目視によって ϕ' を求めるに当っては、試料粒子数が十分多く、したがって SiC 層破片の総数 $\sum n_i$ が大きくなる場合には、破片の寸法因子 $f_i = 1/4$ として良い近似が得られることが分かった。Fig. 2 は破片の寸法因子 f_i の度数分布を示している。分布の中央値および平均値がともに $f_i = 1/4$ となっていることが分かる。すなわち、SiC 層は UO₂ 核の酸化時に $1/4$ の破片として開裂する傾向にある。Fig. 3 には、 $\phi' = \sum f_i n_i / N_0$ 、および $\phi' = \sum n_i / 4 N_0$ の、二つの値を化学分析による ϕ' と比較してある。ほぼ ± 30 % の範囲で、目視による ϕ' は化学分析による ϕ' と一致していることが分かる。換言すれば、目視と化学分析との二種の方法による ϕ' の値は、互いの信頼性を ± 30 % 程度の水準で保証していることになる。

Table 2 から、異例に SiC 層破損割合の大きかった 79FP 2A を除けば、いずれの燃料コンパクトにおいても、 ϕ' はコンパクト成型前後で有意なほどの変化は示していないことが分かる。また、被覆燃料粒子寸法が現在の標準粒子より小さい 2 種のコンパクト (75FP 2A, 75FP 3A)

注 5) 原子燃料工業製

$$\phi' = \sum_i n_i / 4 N_0$$

である。ただし、上2式において分子には小数点以下を四捨五入した値を用いた。

破壊強度測定法は既報⁽⁷⁾に述べたものと同様である。ただし、試料はコンパクト成型前の被覆燃料粒子から採り、上記による SiC 層破損割合を測定した後のものを用いた。また、これらの試料粒子については V-スロット法により外径を測定した。V-スロット法では金属厚板に V 字溝を切り、その中に既知数の粒子を並べて、その全長をノギスによって測定する。ここでは粒子数を 200 とした。粒子の平均外径は全長を \varnothing として $\varnothing/200$ である。同一の 200 粒子について 2 回の測定を行い、その平均をとった。すなわち、一度 V 字溝中での全長を測ったのち粒子を回収し、粒子数を再確認し、再度 V 字溝に並べ直して測長した。これは個々の粒子の大きさがまちまちなので、配列の仕方が全長に影響する可能性があるためと、粒子が小さいので数え間違えたり、並べている途中でいつの間にか数粒が失われているおそれがあるためである。しかし、2 度の測定値が最も大きく異なったものでも、粒子外径で $2 \mu\text{m}$ の差にすぎなかった。したがって、このようにして求められた外径に誤差があるとしても、ほとんどはサンプリングに由来するものと考えられる。すなわち、約 5×10^5 粒以上の寸法を 200 粒についての平均値で代表させることの誤差である。

4. 結 果

4.1 SiC 層破損割合

1975～1981 年度の試作被覆燃料粒子および燃料コンパクトについて、SiC 層破損割合 ϕ' ^{注5)} を調べた。燃料コンパクトについては、コンパクト成型前後における ϕ' を調べた。Table 1 には試料の概略を示す。これらの粒子およびコンパクトは、75F 4A, 75F 5A, 76F 4A, 76F 5A, 78F 3A, 80F 4A, 81F 10A の計 7 本のスイープガス・キャプセルの試料である。

Table 2 には目視および化学分析による結果をまとめてある。同表には、また、2.1 に述べた方法による 95 % 信頼度での ϕ' の区間推定結果を示した。

目視によって ϕ' を求めるに当っては、試料粒子数が十分多く、したがって SiC 層破片の総数 $\sum n_i$ が大きくなる場合には、破片の寸法因子 $f_i = 1/4$ として良い近似が得られることが分かった。Fig. 2 は破片の寸法因子 f_i の度数分布を示している。分布の中央値および平均値がともに $f_i = 1/4$ となっていることが分かる。すなわち、SiC 層は UO_2 核の酸化時に $1/4$ の破片として開裂する傾向にある。Fig. 3 には、 $\phi' = \sum f_i n_i / N_0$ 、および $\phi' = \sum n_i / 4 N_0$ の、二つの値を化学分析による ϕ' と比較してある。ほぼ ±30 % の範囲で、目視による ϕ' は化学分析による ϕ' と一致していることが分かる。換言すれば、目視と化学分析との二種の方法による ϕ' の値は、互いの信頼性を ±30 % 程度の水準で保証していることになる。

Table 2 から、異例に SiC 層破損割合の大きかった 79FP 2A を除けば、いずれの燃料コンパクトにおいても、 ϕ' はコンパクト成型前後で有意なほどの変化は示していないことが分かる。また、被覆燃料粒子寸法が現在の標準粒子より小さい 2 種のコンパクト (75FP 2A, 75FP 3A)

注 5) 原子燃料工業製

Table 1 Description of samples for the present study.

Sample	Particle size	Compact size	Volume loading (%)
75FP2A	B	c	22
75FP4A	B	c	30
75FP4A	A	c	30
76FPC1	A	-	-
76OPC3	A	-	-
78FP2A	A	a	30*
79FP2A	A	b	30*
80FP1A	A	b	30*
81FP1	A	b	30*

*Containing inert particles with sintered SiC kernel.

Particle size (μm)	A**	B
Kernel diameter	600 ± 60	500 ± 20
Buffer thickness	60 ± 15	40 ± 5
ILTI thickness	30 ± 5	30 ± 5
SiC thickness	25 ± 5	25 ± 5
OLTI thickness	45 ± 5	45 ± 5
Compact size (mm)	a**	b
Outer diameter	36	24
Inner diameter	18	8
Length	36	40

** Reference design for VHTR.

Table 2 Defective SiC fractions by chemical analysis ϕ'_{chem} , and visual inspection
 $\phi'_{\text{vis.}} = \sum n_i f_i / N_0$ and $\phi'_{\text{vis.}}^B = \sum n_i / 4N_0$. $\phi'(95)$ is 95% confidence
 limit by binomial distribution; $\phi'(95)_{\text{C+P}}$ is that from both compact and particles.

Sample	Form ^{a)}	$U_0(\text{g})$	$\phi'_{\text{chem.}}$	No.	$\sum n_i f_i / 4$	$\phi'_{\text{vis.}}^A$	$\phi'_{\text{vis.}}^B$	$\phi'(95)$	$\phi'(95)_{\text{C+P}}$
75FP2A	C	9.51	19	2.0×10^{-3}	15050	25	1.7×10^{-3}	1.7×10^{-3}	$1.4 \times 10^{-3} - 2.8 \times 10^{-3}$
75FP3A	C	12.49	20	1.6×10^{-3}	19600	28	2.4×10^{-3}	1.1×10^{-3}	$1.1 \times 10^{-3} - 2.3 \times 10^{-3}$
75FP4A	P	1.75	0.8	$< 7 \times 10^{-4}$	1520	1	$1 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$	3.2×10^{-4}	3.2×10^{-4}
		1.89	0.2	$< 6 \times 10^{-4}$	1640	0		$< 1.8 \times 10^{-3}$	4.0×10^{-4}
C	14.11	11	7.8×10^{-4}	12250	10	11	8.2×10^{-4}	9.0×10^{-4}	$4.5 \times 10^{-4} - 1.5 \times 10^{-3}$
76FPC1	P	2.79	1.8	6.5×10^{-4}	2620	2	$2 \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}$	4.7×10^{-4}	4.7×10^{-4}
		3.95	1.0	2.5×10^{-4}	3710	1		$2.2 \times 10^{-4} - 1.0 \times 10^{-3}$	d)
76OPC3	P	1.70	< 0.1	$< 6 \times 10^{-4}$	1660	0	$0 \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}$	1.8×10^{-4}	1.8×10^{-4}
		3.89	0.8	$< 3 \times 10^{-4}$	3800	1		$< 1.0 \times 10^{-3}$	
78FP2A	P	4.12	1.0	2.4×10^{-4}	3890	1	b)	2.6×10^{-4}	$< 1.4 \times 10^{-3}$
		4.70	1.9	4.0×10^{-4}	4440	2	b)	4.5×10^{-4}	$< 1.6 \times 10^{-3}$
80FP1A	P	7.12	2.5	3.5×10^{-4}	6850	3	b)	4.4×10^{-4}	$1.5 \times 10^{-4} - 1.3 \times 10^{-3}$
C	3.78	1.0	2.6×10^{-4}	3840	1	b)	2.6×10^{-4}	$< 1.5 \times 10^{-3}$	1.5×10^{-4}
81FP1	P	7.33	2.0	2.7×10^{-4}	7050	2	b)	1.9×10^{-4}	$7.0 \times 10^{-5} - 5.6 \times 10^{-4}$
		8.81	0.9	1.0×10^{-4}	8470	1	b)		1.3×10^{-4}
C	7.09	3.6	6.1×10^{-4}	6820	3	3	4.4×10^{-4}	4.4×10^{-4}	5.9×10^{-4}
79FP2A	P3-1 ^{e)}	1.91	21	1.1×10^{-2}	1850	17	21	9.2×10^{-3}	1.1×10^{-2}
	P3-2	1.67	17.5	1.0×10^{-2}	1620	c)	c)		$7.5 \times 10^{-3} - 1.7 \times 10^{-2}$
P ^{f)}		5.75	.26	4.5×10^{-3}	5570	c)	c)		$6.1 \times 10^{-3} - 1.6 \times 10^{-2}$
C	2.43	69	2.8×10^{-2}	2360	39	39	1.7×10^{-2}	1.7×10^{-2}	$4.9 \times 10^{-3} - 7.8 \times 10^{-3}$

a) C: compact. P: loose particles before compact fabrication.

b) $\sum n_i$ was too small.

c) not determined.

d) including results by Kashimura (13)

e) particle before OLTI coating (1st of two batches).

f) particle mixed after OLTI coating.

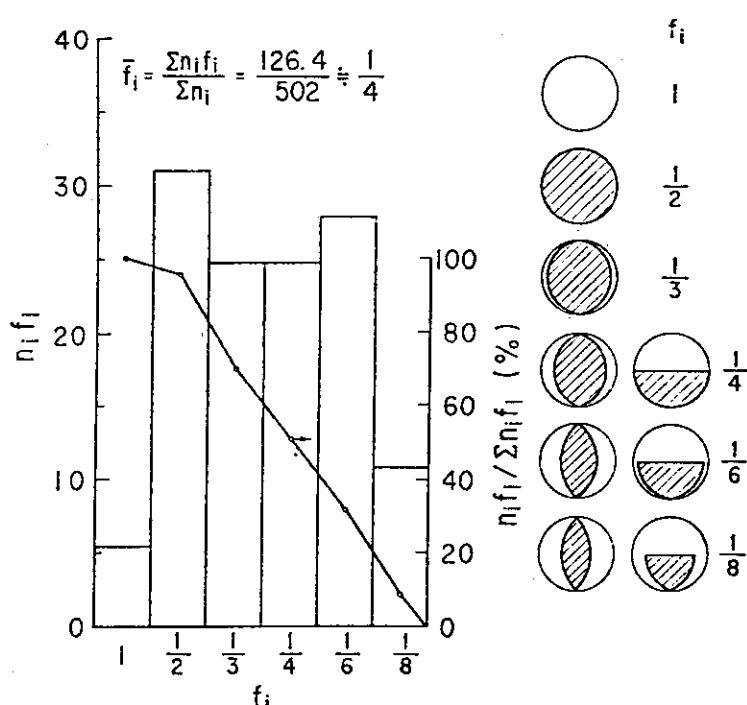


Fig. 2 Distribution of size factor f_i of SiC fragments recovered after the burn-leaching of Triso-coated UO₂ particles (left). And sample figure for assigning appropriate f_i to individual fragment (right).

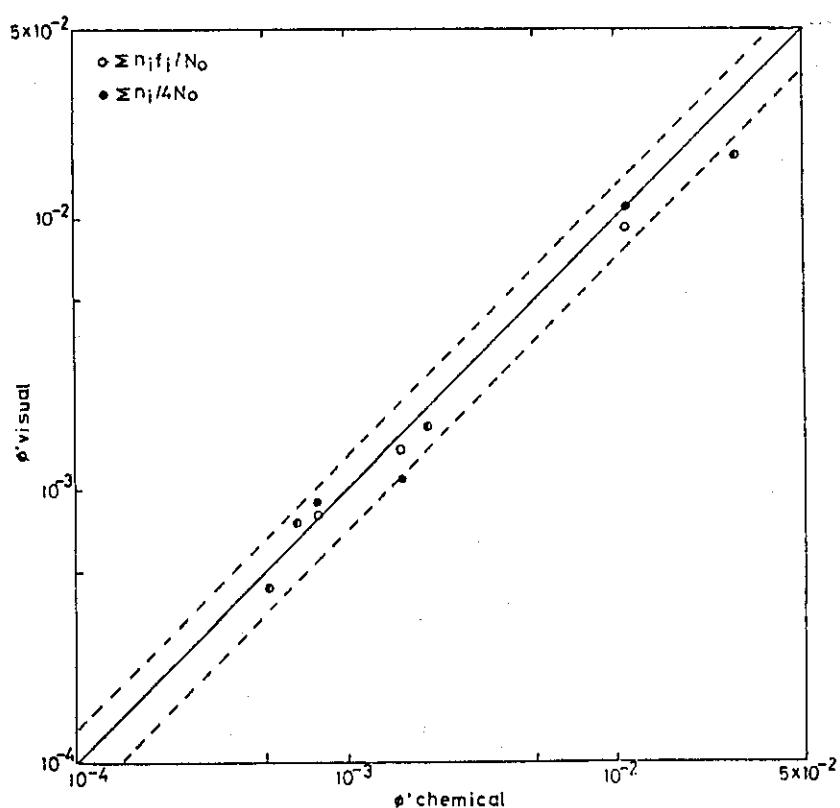


Fig. 3 Comparison between fraction of defective SiC by visual inspection ϕ'_{vis} and that by chemical analysis $\phi'_{\text{chem.}}$.

と 79 FP 2A を除けば、95 % 信頼度で $\phi' \leq 1 \times 10^{-3}$ であると言える。ほとんどの場合、コンパクト 1 個当たりの粒子数が十分多くないために、区間推定の幅が著しく広がってしまう結果、それぞれのコンパクトだけから得た ϕ' の上側信頼限界は 1×10^{-3} を越えてしまう。しかし、コンパクト成型前の粒子についての結果と合わせると、 $\phi' \leq 1 \times 10^{-3}$ となることは同表に示したとおりである。

79 FP 2A コンパクトの結果は異例であって、 ϕ' がこれ程大きくなつた原因については、第 5 章で考察する。

4.2 第 3 層粒子破壊強度

第 3 層粒子破壊強度測定における試料粒子数の影響を Fig. 4 に示す。ワイブル確率紙上での測定点のプロットが直線から著しくずれない限り、25 粒の測定でワイブル・パラメータ m 、 F_0 は一応安定した値を示していることが分かる。このようにして求めたモデュラス m および特性強度 F_0 を Table 3 に示した。6 種の試料について $m \approx 5 \sim 7$ 、平均 $m = 6.0$ である。2.2 に述べた通り、 m についてはサンプリング誤差だけで 14 ~ 18 % あることを考えると、現状における第 3 層粒子破壊強度のワイブル・モデュラスは $m = 6$ で代表させて良いであろう。一方、特性強度 F_0 は 668 g から 937 g までばらついている。しかし、 m と F_0 の間には何の相関も見出すことができない。

我々は既報⁽⁷⁾において、平均の第 3 層粒子破壊強度 F と平均の粒子寸法とがおおよそ次式によって関係づけられることを示した。

$$F = C \cdot r_3 \{ r_3^2 - r_2^2 \}$$

C : 定数 (kg/cm^3)

r_3 : 第 3 層外径 (cm)

r_2 : ($r_3 - t_3$)

t_3 : SiC 層厚さ (cm)

ここでは、特性強度 F_0 について

$$F_0 = C_0 \cdot r_3 \{ r_3^2 - r_2^2 \}$$

と仮定して、Table 4 に C_0 の値を算出した。これから、 $C_0 \approx 1.1 \times 10^5 \text{ kg}/\text{cm}^3$ と置けることが分かる。

5. 考察

Table 3 には、また、静荷重下における破壊の累積確率 P_f が SiC 層破損割合 ϕ' に等しくなる荷重、 F ($P_f = \phi'$) を F_0 から 2.2(1) 式を用いて算出してある。ただし、破壊強度の実測から得られた m の誤差の大きさを考察して、一律に $m = 6$ と仮定した。これから分かることおり、 F ($P_f = \phi'$) は、79 FP 2A 粒子を除けば、ほぼ 200 ~ 250 g になっている。そこで、いま 2.2(1)

と 79 FP 2A を除けば、95 % 信頼度で $\phi' \leq 1 \times 10^{-3}$ であると言える。ほとんどの場合、コンパクト 1 個当たりの粒子数が十分多くないために、区間推定の幅が著しく広がってしまう結果、それぞれのコンパクトだけから得た ϕ' の上側信頼限界は 1×10^{-3} を越えてしまう。しかし、コンパクト成型前の粒子についての結果と合わせると、 $\phi' \leq 1 \times 10^{-3}$ となることは同表に示したところである。

79 FP 2A コンパクトの結果は異例であって、 ϕ' がこれ程大きくなつた原因については、第 5 章で考察する。

4.2 第 3 層粒子破壊強度

第 3 層粒子破壊強度測定における試料粒子数の影響を Fig. 4 に示す。ワイブル確率紙上での測定点のプロットが直線から著しくずれない限り、25 粒の測定でワイブル・パラメータ m 、 F_0 は一応安定した値を示していることが分かる。このようにして求めたモデュラス m および特性強度 F_0 を Table 3 に示した。6 種の試料について $m \approx 5 \sim 7$ 、平均 $m = 6.0$ である。2.2 に述べた通り、 m についてはサンプリング誤差だけで 14 ~ 18 % あることを考えると、現状における第 3 層粒子破壊強度のワイブル・モデュラスは $m = 6$ で代表させて良いであろう。一方、特性強度 F_0 は 668 g から 937 g までばらついている。しかし、 m と F_0 の間には何の相関も見出すことができない。

我々は既報⁽⁷⁾において、平均の第 3 層粒子破壊強度 \bar{F} と平均の粒子寸法とがおおよそ次式によって関係づけられることを示した。

$$F = C \cdot r_3 \{ r_3^2 - r_2^2 \}$$

C : 定数 (kg/cm^3)

r_3 : 第 3 層外径 (cm)

r_2 : ($r_3 - t_3$)

t_3 : SiC 層厚さ (cm)

ここでは、特性強度 F_0 について

$$F_0 = C_0 \cdot r_3 \{ r_3^2 - r_2^2 \}$$

と仮定して、Table 4 に C_0 の値を算出した。これから、 $C_0 \approx 1.1 \times 10^5 \text{ kg}/\text{cm}^3$ と置けることが分かる。

5. 考察

Table 3 には、また、静荷重下における破壊の累積確率 P_f が SiC 層破損割合 ϕ' に等しくなる荷重、 F ($P_f = \phi'$) を F_0 から 2.2(1) 式を用いて算出してある。ただし、破壊強度の実測から得られた m の誤差の大きさを考察して、一律に $m = 6$ と仮定した。これから分かることおり、 F ($P_f = \phi'$) は、79 FP 2A 粒子を除けば、ほぼ 200 ~ 250 g になっている。そこで、いま 2.2(1)

Table 3 Results of third-layer crushing strength measurement. n: sample size.
 Fo: characteristic strength. m: Weibull modulus. Also included are
 fractions of defective Sic (ϕ') and the load F at which $P_F = \phi'$.

Sample	n	Fo (g)	m	ϕ'	F ($P_F = \phi'$) (g) c)
76OPC3	25	853	4.63	$< 1.0 \times 10^{-3}$	< 270
78FP2A	50	764	5.01	1.3×10^{-4}	1.1×10^{-3}
80FP1A	25	801	6.73	1.5×10^{-4}	9.6×10^{-4}
81FP1	50	937	7.13	1.3×10^{-4}	5.9×10^{-4}
79FP2A					$210 - 271$
3L-1 a)	25	668	5.05	7.5×10^{-3}	1.7×10^{-2}
3L-2 b)	25	771	7.36	6.1×10^{-3}	1.6×10^{-2}
					$330 - 388$

- a) Particle before OLTI coating. The first batch of the two.
 b) Particle before OLTI coating. The second batch of the two.
 c) Assuming m=6.

Table 4 Correlation between characteristic strength F_o and particle size: t_3 the SiC thickness and r_3 the radius of third-layer coated particles.

Sample	t_3 (μm)	r_3 (μm)	F_o (g)	$C = F_o / r_3 [r_3^2 - (r_3 - t_3)^2]$ (kg/cm^3)
76OPC3	25.5	400	853	108,000
78FP2A	23.7	409	764	99,000
79FP2A 3L-1	20.0	400	668	107,000
3L-2	22.5	408	771	106,000
80FP1A	23.7	406	801	106,000
81FP1	23.0	428	937	114,000

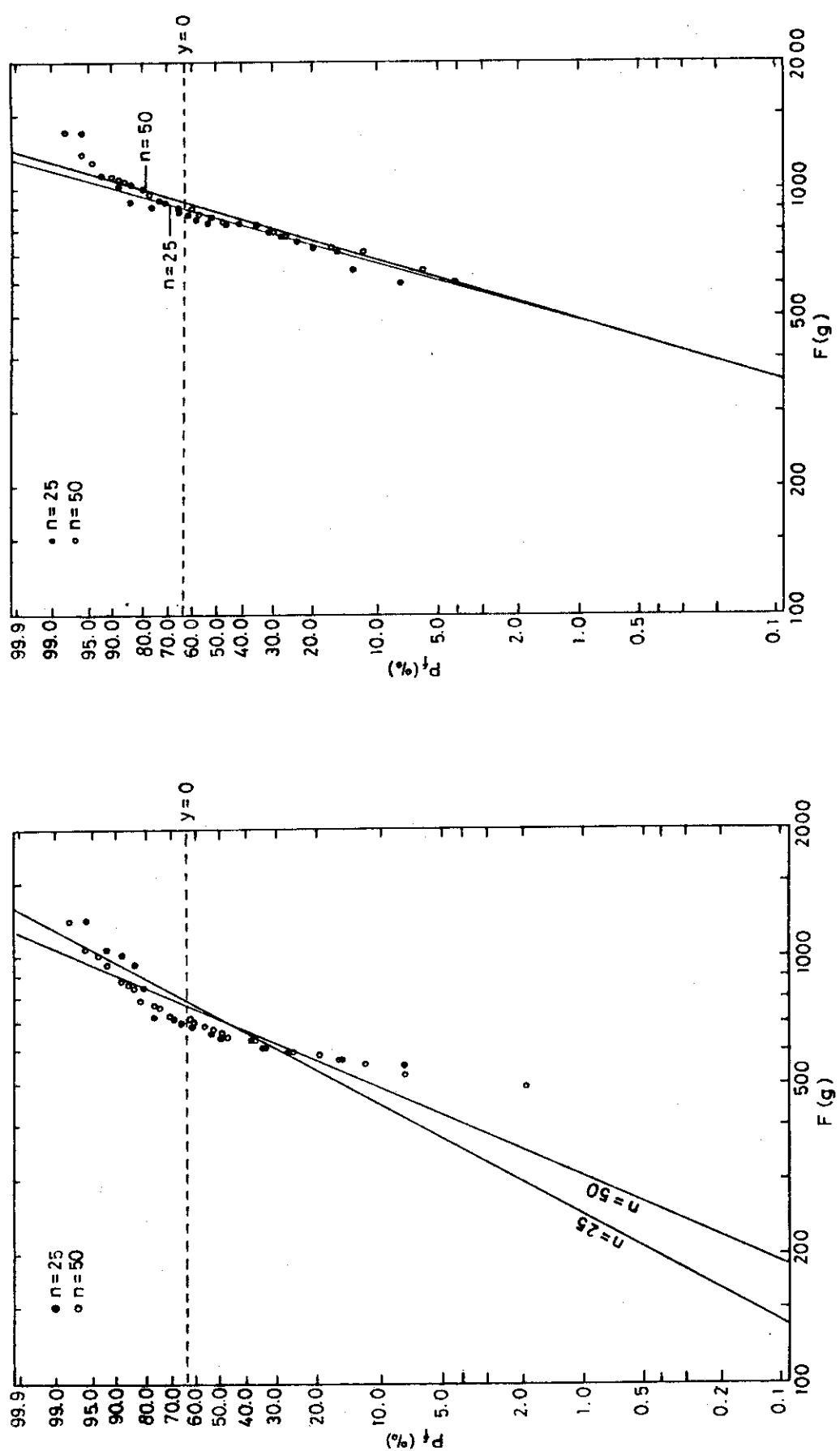


Fig. 4 Webull plots of third-layer crushing strengths of 78FP2A (left) and 81FP1 (right) particles.

式から、

$$\phi'_{\text{cal}} = P_f = 1 - \exp \left[- \left\{ \frac{F(P_f = \phi')}{F_0} \right\}^m \right] \quad (1)$$

として、SiC層破損割合を予測できるものと仮定する。すなわち、 m , $F(P_f = \phi')$, F_0 が分かれば、 ϕ' を上式によって計算することができるとする。Table 3の結果を参照して、暫定的に
 $m = 6$

$$F(P_f = \phi') = 225 \pm 25 \text{ g}$$

と置くことができる。また、4.2に見たように、 F_0 は次式によって評価できる。

$$F_0 = C_0 \cdot r_3 \left\{ r_3^2 - (r_3 - t_3)^2 \right\} \quad (2)$$

$$C_0 = 1.1 \times 10^8 \text{ g/cm}^3$$

したがって、このようにモデル化すると、 r_3 , t_3 さえ知れば ϕ' は予測できることになる。なお、上で $F(P_f = \phi')$ は第3層被覆粒子回収等の取扱い中に加わった外力の指標と見なすことができ、製造・取扱い条件に関する定数である。

Fig. 5には、上のモデルを用いて得た ϕ'_{cal} と実測の ϕ' とを比較してある^{注6)}。ただし、同図からは79FP2A粒子についての結果は除いてある。上述のような粗いモデルとしては、予測値と実測値が良く一致していることが分かる。しかし、上のモデルが、本実験に供したのと全く異なる寸法、仕様の被覆燃料粒子についても妥当するかどうかは、保証の限りではない。というのも、粒子の寸法・重量が大きく異なれば、同様の取扱いをしても加わる外力の大きさは異なるはずだからである。また、 F_0 に関する(2)式についても、2.2に述べたような第3層被覆燃料粒子の破壊挙動の複雑さを考えると、 r_3 と t_3 のあらゆる組合せについて妥当するという保証はない。

しかし、例えば、現在の被覆燃料粒子の寸法・仕様(Table 1, 粒子寸法A)の部分的な変更が ϕ' に及ぼす影響の評価には、上記モデルは有効であろう。Fig. 6には、SiC層厚さ t_3 が ϕ' に及ぼす影響を予測した。現在の仕様では、 $r_3 = 390 \mu\text{m}$, $t_3 = 25 \mu\text{m}$ である。したがって $\phi' \approx 4 \times 10^{-4}$ と評価される(図中白丸)。しかし、Table 1に見るとおり、仕様上、粒子の平均寸法にはある許容幅が存在する。そこで仕様の許容限界ぎりぎりに小さく、SiCの薄い粒子では、 $\phi' \approx 4 \times 10^{-3}$ となるであろう(黒丸)。すなわち、ある幅をもった寸法仕様に合うように多数のバッチの被覆燃料粒子を用意したとき、それらの ϕ' は 4×10^{-4} の付近に密に分布するはずだが、ごくまれには $\phi' \approx 4 \times 10^{-3}$ といったバッチも出現する可能性がある。しかし、現実には、製品の歩止りを考慮するなら、製造者は仕様限界ぎりぎりの粒径の製品ができるような条件は避けるであろう。また、一方で被覆工程上の理由から、 t_3 は仕様の中央値 $25 \mu\text{m}$ よりやや薄くなる傾向にある。これらの要因を考えるなら、第3層被覆粒子の回収条件等に著しい変更がない限り、現在の仕様の粒子については $\phi' \approx 1 \times 10^{-3}$ で代表させることができよう。そして、 ϕ' を現在の値より約1けた下げるには、 $t_3 = 35 \pm 5 \mu\text{m}$ が要求される。しかし、現状ではさらに 35 ± 5

注6) 75FP2A, 3A, 4Aおよび76FPC1の r_3 , t_3 についてはメーカーの検査値を使用。

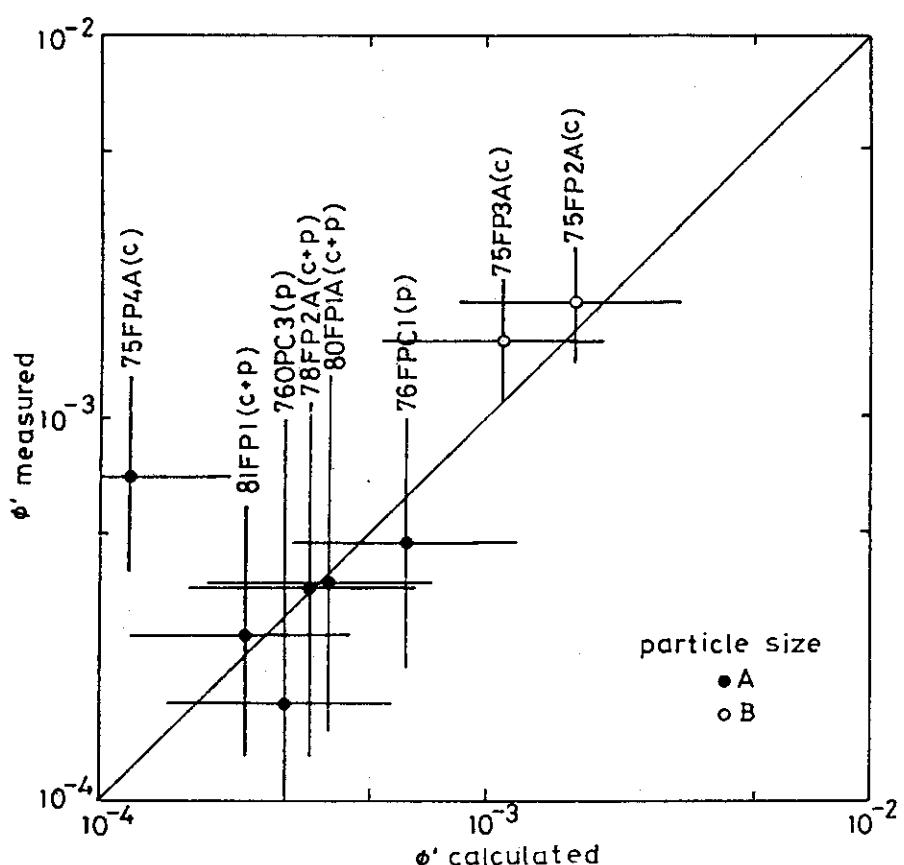


Fig. 5 Comparison between measured ϕ' and calculated ϕ' according to the model eq.(1) in Ch. 5.

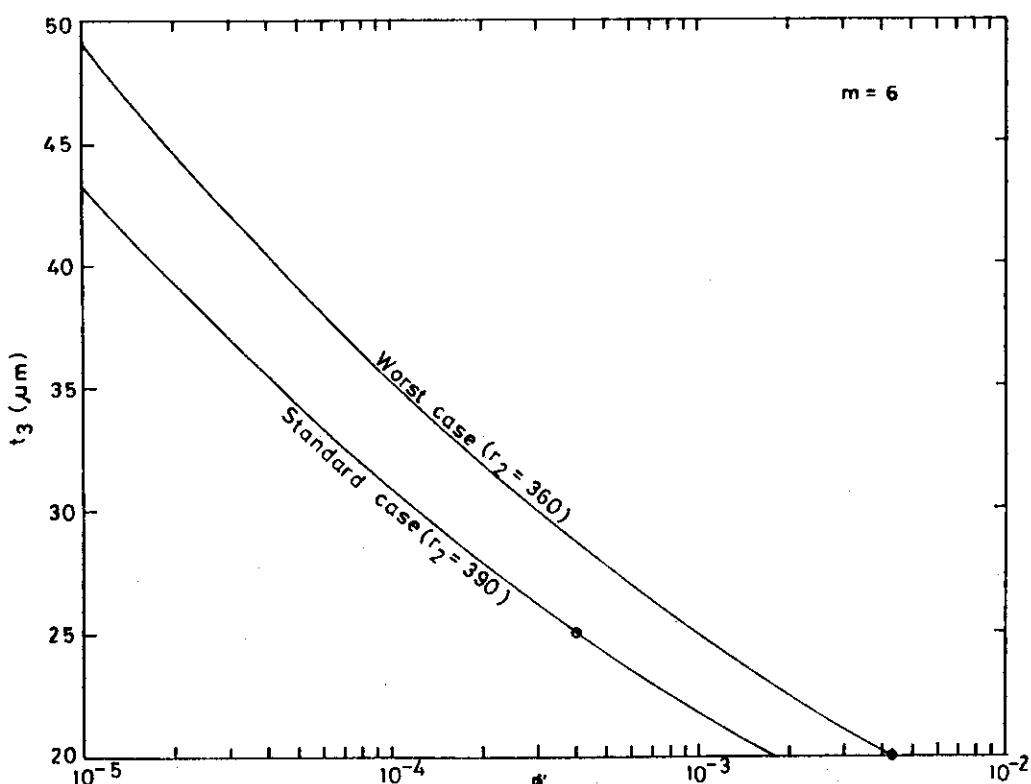


Fig. 6 Prediction of the effect of SiC thickness on ϕ' . Open circle stands for the particle having nominal size of the present specification; solid circle for the smallest permissible in the present specification.

μm 以上に SiC 層を厚くすることは、製造時の ϕ' の制御という観点からはあまり意味を持たないであろう。というのも、コンパクト製造時の貫通破損率 ϕ が現状ではほぼ 1×10^{-4} に達するからである。Table 5 に見るとおり、コンパクト中の被覆燃料粒子の ϕ と ϕ' との間には通常明らかな相関はなく、 ϕ の制御と ϕ' の制御とは一応独立した問題であると考えられる。というのも、SiC 層が破損するのは第 3 層被覆粒子の流動床からの回収等の取扱い時であり、貫通破損は主としてコンパクト成形時であると考えられるからである。すなわち、 ϕ は第 3 層粒子破壊強度よりは、むしろ第 4 層被覆後の粒子の破壊強度に関係しているはずである。

Table 5 Comparison between fraction of defective SiC ϕ' and that of through-coating failure ϕ of the fuel compacts.

	$\phi'(95\% \text{ limit})$	ϕ
75FP2A	$1.4 \times 10^{-3} - 2.8 \times 10^{-3}$	$< 6 \times 10^{-5}$ a)
75FP3A	$1.1 \times 10^{-3} - 2.3 \times 10^{-3}$	4.4×10^{-5} a)
75FP4A	$4.5 \times 10^{-4} - 1.5 \times 10^{-3}$	9.5×10^{-5} a)
78FP2A	$1.3 \times 10^{-4} - 1.1 \times 10^{-3}$	1.9×10^{-4} b)
81FP1	$1.3 \times 10^{-4} - 5.9 \times 10^{-4}$	$< 1 \times 10^{-4}$

a) by Minato et al. (14)

b) by Kobayashi. (15)

上のモデル (1式) の示すところでは、 ϕ' の低減化には三つの行き方がある。

- ① ワイブル・モデュラス m を大きくする。
- ② 特性強度 F_0 を大きくする。
- ③ $F(P_f = \phi')$ を小さくする。

上で論じたような SiC 層厚さ t_3 の変更は、 F_0 を大きくすることに他ならない。 m を大きくするには、パッチ内の粒子の諸寸法や SiC 層品質の統計的分布を改善しなければならないであろう。しかも、どの因子が m を決定するうえで最も大きく作用しているのか、いまのところ全く明らかでない。したがって、 m を意図的に大きくすることは不可能に近い。むしろ、今後の製造規模の拡大に関連して、 m の低下が懸念される。 $F(P_f = \phi')$ を小さくするというのは、第 3 層被覆後、第 4 層を被覆するまでの間に粒子に加わる外力を小さくすることを意味する。一つには、第 3 層被覆粒子の回収方法を工夫することである。しかし、最も有効なのは、第 3 - 4 層連続蒸着法^{注7)} の採用であろう。すなわち、第 3 層被覆段階では流動床から取り出さず、引き続き第 4 層を被覆してしまうことである。

最後に、上記モデルの観点から、79FP2A の異例に大きな ϕ' の原因について考察して見よう。

注7) ZrC-Triso 粒子については実験室規模で試験されている(10)。

同粒子は、それぞれ独立の工程を経て互いに寸法の全く異なっている、2つのバッチのTriso被覆粒子を混合したものである。各バッチからは第4層被覆前に一定量が分取され、第3層までの被覆粒子として別に納入された。Table 2, 3, 4に3L-1, 2として示されているのがそれらの第3層被覆粒子である。そのうち、3L-1粒子のSiC層は $20\text{ }\mu\text{m}$ と薄いので、上のモデルによる予測でも ϕ' は 2×10^{-3} に達する。モデル中のパラメータ、 $F(P_f = \phi')$ は第3層被覆粒子に加わった外力の尺度と解することができる。したがって、標準的な場合よりも若干大きな $F(P_f = \phi') \approx 300\text{ g}$ 相当の外力が加わったと想定すれば、3L-1粒子の破損割合は十分説明できる。しかし3L-2粒子のSiC層の厚さは $22.5\text{ }\mu\text{m}$ あり、標準的な取扱いを受けている限り、 ϕ' が 1×10^{-3} を超えることはあり得ないはずである。Table 3に見るとおり、同粒子の ϕ' を説明するには $F(P_f = \phi') \approx 350\text{ g}$ としなければならない。すなわち、取扱い過程のどこかで不必要な衝撃が加えられた可能性が大きい。ここで興味深いのは、混合後の79FP2A粒子の ϕ' が、3L-1, 2の ϕ' のほぼ半分になっていることである。そこで、一つの可能な説明は、混合前に ϕ' が大きかったのは3L-1粒子の方だけであって、3L-2粒子は分取時、あるいは分取後に納入されるまでのどこかで、衝撃を加えられたというものである。第3層被覆粒子を移送する等の操作はできる限り避けた方が良い。Fig. 7に、このような取扱い過程で破損した粒子の例を示した。写真の粒子はバーン・リーチ法によってSiC層破損割合を測定した後のものであり、外観検査、粒径測定などの過程で破損したものと考えられる。なお、79FP2A粒子の ϕ' はコンパクト成型後にさらに5倍にはね上がっている(Table 2)。これも他の試料には見られない特徴である。一つの原因として考えられるのは、同粒子の第4層熱分解炭素密度は 1.65 g/cm^3 と標準値 $1.85 \pm 0.05\text{ g/cm}^3$ に比べて著しく低かったことである。そのために、コンパクト成型時にSiC層が著しく破損するという異例な事象が起きたものと考えられる。事実、同コンパクトの貫通破損率 ϕ も約 1×10^{-3} と^{注8)}異例に大きな値を示している。

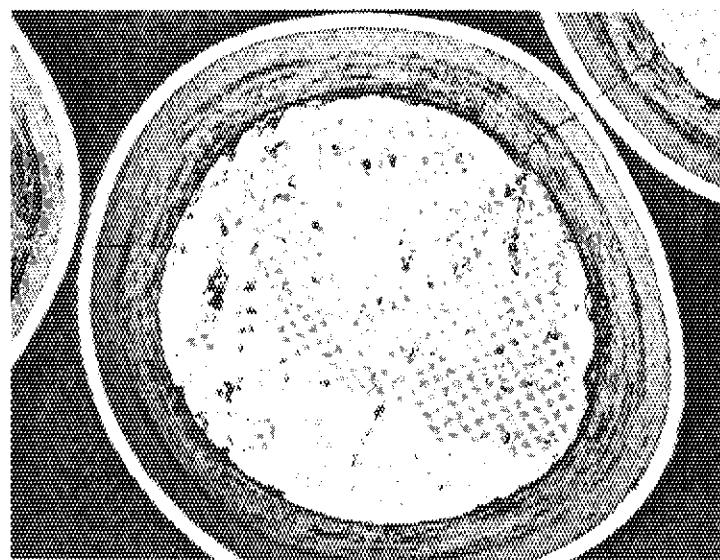


Fig. 7 Metallograph of a particle having defective SiC layer.
Defect should have been introduced after the burn-leaching.

注8) 照射時R/Bから推定。

以上、本研究ではバーン・リーチ法による SiC 層破損割合について調べた。近年、金属 FP 放出に関わる SiC 層の欠陥を正確に検出する方法として、バーン・リーチ法では不十分であることが指摘されてきている^[11, 12]。この問題については、今後さらに検討が必要である。

6. 結論

1975-1981 年度の国産試作被覆燃料粒子について、SiC 層破損割合 ϕ' をバーン・リーチ法によって調べ、次の結果を得た。

- ① 現在の仕様にしたがって試作した被覆燃料粒子、およびそれらの粒子を分散したコンパクトについては、 ϕ' の 95 % 上側信頼限界値は 1×10^{-3} 以下であった。
- ② 燃料コンパクト成型によっては、成型前の状態に比べて ϕ' の有意な程の上昇は起こらない。

ただし、上の観察には、1979 年度試作品（79FP2A）のような例外があり、同試作品 ϕ' が異例に大きかった原因については第 5 章に考察した。

なお、 ϕ' の求め方に関しては、今回あらたに以下の結果を得た。

- ③ 酸浸出液中の U 量を化学分析によって求めた ϕ'_{chem} と、酸浸出後に回収した SiC 層破片を数えて得た ϕ'_{vis} とは、±30 % の水準で良く一致していた。
- ④ SiC 層破片の数が十分多いときは、破片の数を N、サンプル粒子数を N_0 として、 $\phi'_{\text{vis}} = N/N_0$ によって十分良い近似が得られることが分かった。

また、第 3 層粒子破壊強度のワイブル統計と、SiC 層破損割合の測定結果との対比から、次のモデルを得た。

- ⑤ ϕ' はワイブル統計に基づく次式によって、粒子寸法データから予測できる。

$$\phi'_{\text{cal}} = 1 - \exp \left[- \left\{ \frac{F(P_f = \phi')}{F_0} \right\}^m \right]$$

$$F_0(g) = 1.1 \times 10^8 \cdot r_3 \left\{ r_3^2 - (r_3 - t_3)^2 \right\}$$

r_3 : 第 3 層被覆粒子半径 (cm)

t_3 : SiC 層厚さ (cm)

$m = 6$

そして、 $F(P_f = \phi')$ は SiC 層被覆条件・粒子回収条件に関する定数と見なされ、現在のところ $F(P_f = \phi') = 225 \pm 25$ g と置くことができる。

同モデルに基づいて、寸法諸元の変更等、 ϕ' の低減化の方法について考察した。

以上、本研究ではバーン・リーチ法による SiC 層破損割合について調べた。近年、金属 FP 放出に関わる SiC 層の欠陥を正確に検出する方法として、バーン・リーチ法では不十分であることが指摘されてきている^[11, 12]。この問題については、今後さらに検討が必要である。

6. 結論

1975-1981 年度の国産試作被覆燃料粒子について、SiC 層破損割合 ϕ' をバーン・リーチ法によって調べ、次の結果を得た。

- ① 現在の仕様にしたがって試作した被覆燃料粒子、およびそれらの粒子を分散したコンパクトについては、 ϕ' の 95 % 上側信頼限界値は 1×10^{-3} 以下であった。
- ② 燃料コンパクト成型によっては、成型前の状態に比べて ϕ' の有意な程の上昇は起こらない。

ただし、上の観察には、1979 年度試作品（79FP2A）のような例外があり、同試作品 ϕ' が異例に大きかった原因については第 5 章に考察した。

なお、 ϕ' の求め方に関しては、今回あらたに以下の結果を得た。

- ③ 酸浸出液中の U 量を化学分析によって求めた ϕ'_{chem} と、酸浸出後に回収した SiC 層破片を数えて得た ϕ'_{vis} とは、±30 % の水準で良く一致していた。
- ④ SiC 層破片の数が十分多いときは、破片の数を N、サンプル粒子数を N_0 として、 $\phi'_{\text{vis}} = N/N_0$ によって十分良い近似が得られることが分かった。

また、第 3 層粒子破壊強度のワイブル統計と、SiC 層破損割合の測定結果との対比から、次のモデルを得た。

- ⑤ ϕ' はワイブル統計に基づく次式によって、粒子寸法データから予測できる。

$$\phi'_{\text{cal}} = 1 - \exp \left[- \left\{ \frac{F(P_f = \phi')}{F_0} \right\}^m \right]$$

$$F_0(g) = 1.1 \times 10^8 \cdot r_3 \left\{ r_3^2 - (r_3 - t_3)^2 \right\}$$

r_3 : 第 3 層被覆粒子半径 (cm)

t_3 : SiC 層厚さ (cm)

$m = 6$

そして、 $F(P_f = \phi')$ は SiC 層被覆条件・粒子回収条件に関する定数と見なされ、現在のところ $F(P_f = \phi') = 225 \pm 25 \text{ g}$ と置くことができる。

同モデルに基づいて、寸法諸元の変更等、 ϕ' の低減化の方法について考察した。

謝 辞

本報告をまとめるにあたり、御助言と御激励をいただいた燃料工学部岩本多実部長に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1 E.H. Voice et al., in "Nuclear Fuel Performance", paper 20, British Nuclear Energy Society, London (1973)
- 2 R.H. Flowers, *ibid*, paper 23
- 3 奥川光太郎, 「数理統計学概説」, 学術図書 (1970)
- 4 春日屋伸昌編集, 「実用数表体系第14巻, 統計数値表(その2)」, 技報堂 (1970)
- 5 竹内 啓, 藤野和建, 「二項分布とポアソン分布」, 東京大学出版会 (1981)
- 6 A. Briggs et al., *J. Nucl. Mater.* 61, 233 (1976)
- 7 T. Ogawa and K. Ikawa, *J. Nucl. Mater.* 98, 18 (1981)
- 8 F.C. Frank and B.R. Lawn, *Proc. Roy. Soc. (London)* A299, 291 (1967).
- 9 A. de S. Jayatilaka, "Fracture of Engineering Brittle Materials", Applied Science Publishers, London (1979)
- 10 小川 徹, 井川勝市, JAERI -M 9568 (1981)
- 11 W.J. Kovacs, GA-A-16215 (1981)
- 12 D.P. Stinton and W.J. Lackey, *Cer. Bull.* 57, 568 (1978)
- 13 鹿志村 悟, 未発表
- 14 湊 和生他, JAERI -M 9339 (1981)
- 15 小林紀昭, 未発表

謝 辞

本報告をまとめるにあたり、御助言と御激励をいただいた燃料工学部岩本多実部長に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1 E.H. Voice et al., in "Nuclear Fuel Performance", paper 20, British Nuclear Energy Society, London (1973)
- 2 R.H. Flowers, ibid, paper 23
- 3 奥川光太郎, 「数理統計学概説」, 学術図書 (1970)
- 4 春日屋伸昌編集, 「実用数表体系第14巻, 統計数値表(その2)」, 技報堂 (1970)
- 5 竹内 啓, 藤野和建, 「二項分布とボアソン分布」, 東京大学出版会 (1981)
- 6 A. Briggs et al., J. Nucl. Mater. 61, 233 (1976)
- 7 T. Ogawa and K. Ikawa, J. Nucl. Mater. 98, 18 (1981)
- 8 F.C. Frank and B.R. Lawn, Proc. Roy. Soc. (London) A299, 291 (1967).
- 9 A. de S. Jayatilaka, "Fracture of Engineering Brittle Materials", Applied Science Publishers, London (1979)
- 10 小川 徹, 井川勝市, JAERI -M 9568 (1981)
- 11 W.J. Kovacs, GA-A-16215 (1981)
- 12 D.P. Stinton and W.J. Lackey, Cer. Bull. 57, 568 (1978)
- 13 鹿志村 悟, 未発表
- 14 湊 和生他, JAERI -M 9339 (1981)
- 15 小林紀昭, 未発表