

JAERI - M

86-083

被覆燃料粒子の製造過程における破損機構

1986年6月

湊 和生・小林 紀昭・菊地 啓修・福田 幸朔

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。
入手の間合わせは、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、お申しこしてください。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 Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

被覆燃料粒子の製造過程における破損機構

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

湊 和生・小林 紀昭・菊地 啓修・福田 幸朔

(1986年5月16日受理)

高温ガス炉用被覆燃料粒子の製造時の破損率を低減するために、被覆燃料粒子の製造過程における破損機構について検討した。数千粒の被覆燃料粒子について、X線ラジオグラフ観察、断面組織観察、光学顕微鏡観察などを行なった。その結果、2種類の破損機構があることがわかった。1つは内側熱分解炭素層が破損しているかまたは内側熱分解炭素層のガス透過性が高いと、 UO_2 燃料核が炭化する際に生じるCOガスが、SiCの蒸着を妨害し、SiC層破損粒子ができるという機構である。他の1つは、SiC蒸着の際の粒子流動状態が適切でないと、内部に欠陥をもった強度の小さいSiCが被覆され、このSiC層が破損するという機構である。また、SiC層破損粒子は、燃料コンパクト成型の際に、貫通破損粒子になりやすいということがわかった。被覆層の破損と粒子のいびつさとの関係は、明らかにはならなかった。

Failure Mechanisms of Coated Fuel Particles during Fabrication

Kazuo MINATO, Fumiaki KOBAYASHI, Hironobu KIKUCHI
and Kousaku FUKUDA

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 16, 1986)

In order to decrease failure fraction of as-fabricated coated fuel particles for HTGR, failure mechanisms of the coated fuel particles during fabrication were studied. More than eight thousand as-fabricated coated fuel particles from seven coating batches were observed by means of X-ray micro-radiography, ceramography, optical microscopy, etc. Two possible failure mechanisms were suggested through the observations. One of SiC failure mechanisms is that SiC will not deposit on defective inner pyrolytic carbon (IPyC) or gas-permeable IPyC because CO gas generated by carbonization of UO₂ kernel interferes with SiC deposition. The other SiC failure mechanism is that flawed SiC will deposit under undesirable fluidizing condition of the particles and that the flawed SiC is apt to fail because of its low strength. It was also suggested that SiC failure lead to total coating failure easily during fuel compact fabrication. The relation between coating failure and odd shape of the particles was not clear.

Keywords : HTGR, Fuel, Coated Fuel Particles, Silicon Carbide,
Coating Failure, X-ray micro-radiography, Ceramography,
Pyrolytic Carbon, Failure Mechanism

目 次

1. はじめに	1
2. 実験	1
2.1 試料	1
2.2 実験方法	2
3. 結果	3
3.1 試料G-125	3
3.2 試料G-281	4
3.3 試料G-300	4
3.4 試料G-449	5
3.5 試料G-509	6
3.6 試料G-636	6
3.7 試料G-764	6
4. 考察	6
4.1 燃料核の炭化と破損	6
4.2 SiC層の欠陥と破損	7
4.3 いびつな形と破損	8
5. 結論	8
謝辞	9
参考文献	9

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	1
2.1 Samples	1
2.2 Procedure	2
3. Results	3
3.1 Sample G-125	3
3.2 Sample G-281	4
3.3 Sample G-300	4
3.4 Sample G-449	5
3.5 Sample G-509	6
3.6 Sample G-636	6
3.7 Sample G-764	6
4. Discussion	6
4.1 Coating failure due to carbonization of UO ₂ kernel	6
4.2 Coating failure due to flaws of SiC layer	7
4.3 Coating failure due to odd shape of particle	8
5. Conclusions	8
Acknowledgements	9
References	9

1. はじめに

高温ガス炉用燃料のTRISO被覆燃料粒子は、微小球状の燃料核を、低密度熱分解炭素層（buffer PyC）、内側高密度熱分解炭素層（IPyC）、炭化ケイ素層（SiC）、および外側高密度熱分解炭素層（OPyC）で被覆したものである。一番内側のbuffer PyC層は、ガス状の核分裂生成物（FP）を収納する空間を与えるとともに、IPyC層を反跳核分裂片や燃料核のスウェーリングなどから守る役割を持っている。IPyC層は、ガス状FPの拡散障壁である。SiC層は、PyC層を容易に拡散して来てしまう金属FPの拡散障壁である。一番外側のOPyC層は、ガス状FPの拡散障壁であるとともに、内側のSiC層を機械的に保護する役割も持っている。このように、これらの被覆層は、全体として、FPを粒内に保持する機能を有している。

したがって、被覆層が一部分でも破損していたならば、FPを保持する役割を充分果たすことができず、FPは放出されやすい。被覆層の破損の形態としては、種々のものが考えられるが、被覆層の機能低下の観点から、貫通破損およびSiC層破損の2種類が重要である。貫通破損とは、全被覆層が破損していることである。貫通破損粒子からは、ガスFPおよび金属FPが放出されやすい。一方、SiC層破損とは、SiC層は破損しているが、貫通破損ではないことである。SiC層破損粒子からは、金属FPは放出されやすいが、ガスFPは健全な高密度PyC層で保持される。

被覆層の破損は、照射によっても生じるが、製造過程においても発生する。照射による破損の機構としては、核移動（アメーバ効果）による破損⁽¹⁾、内圧上昇による破損^(2,3)、FPによるSiC層の腐食^(4,5)などがある。製造過程における破損の機構については、製造時の破損率を低減するために、諸外国においても、その原因の究明が行なわれている⁽⁶⁻⁸⁾。しかし、製造過程における破損は、製造法が異なっていたり、製造装置が異なっていたりすると、それぞれに特有な問題であるため、他の研究は参考にはなるが、その結果を直接あてはめることはできない。

ここでは、被覆燃料粒子の製造時の破損率を低くするためには、何を、どのように改善すべきかを明らかにすることを目的とし、燃料コンパクト成型前の被覆燃料粒子について種々の観察および試験を行ない、被覆燃料粒子の製造過程における破損発生機構について検討した。

2. 実 験

2.1 試 料

実験に用いた試料は、燃料コンパクト成型前の製造バッチの異なる7種類の UO_2 核TRISO被覆燃料粒子である。7種類の被覆燃料粒子試料の寸法、密度などの測定値を、Table 1に示す。これらの被覆燃料粒子は、いわゆるMK-III燃料仕様のものである。これらの被覆燃料粒子試料

1. はじめに

高温ガス炉用燃料のTRISO被覆燃料粒子は、微小球状の燃料核を、低密度熱分解炭素層（buffer PyC）、内側高密度熱分解炭素層（IPyC）、炭化ケイ素層（SiC）、および外側高密度熱分解炭素層（OPyC）で被覆したものである。一番内側のbuffer PyC層は、ガス状の核分裂生成物（FP）を収納する空間を与えるとともに、IPyC層を反跳核分裂片や燃料核のスウェーリングなどから守る役割を持っている。IPyC層は、ガス状FPの拡散障壁である。SiC層は、PyC層を容易に拡散して来てしまう金属FPの拡散障壁である。一番外側のOPyC層は、ガス状FPの拡散障壁であるとともに、内側のSiC層を機械的に保護する役割も持っている。このように、これらの被覆層は、全体として、FPを粒内に保持する機能を有している。

したがって、被覆層が一部分でも破損していたならば、FPを保持する役割を充分果たすことができず、FPは放出されやすい。被覆層の破損の形態としては、種々のものが考えられるが、被覆層の機能低下の観点から、貫通破損およびSiC層破損の2種類が重要である。貫通破損とは、全被覆層が破損していることである。貫通破損粒子からは、ガスFPおよび金属FPが放出されやすい。一方、SiC層破損とは、SiC層は破損しているが、貫通破損ではないことである。SiC層破損粒子からは、金属FPは放出されやすいが、ガスFPは健全な高密度PyC層で保持される。

被覆層の破損は、照射によっても生じるが、製造過程においても発生する。照射による破損の機構としては、核移動（アマーバ効果）による破損⁽¹⁾、内圧上昇による破損^(2,3)、FPによるSiC層の腐食^(4,5)などがある。製造過程における破損の機構については、製造時の破損率を低減するために、諸外国においても、その原因の究明が行なわれている⁽⁶⁻⁸⁾。しかし、製造過程における破損は、製造法が異なっていたり、製造装置が異なっていたりすると、それぞれに特有な問題であるため、他の研究は参考にはなるが、その結果を直接あてはめることはできない。

ここでは、被覆燃料粒子の製造時の破損率を低くするためには、何を、どのように改善すべきかを明らかにすることを目的とし、燃料コンパクト成型前の被覆燃料粒子について種々の観察および試験を行ない、被覆燃料粒子の製造過程における破損発生機構について検討した。

2. 実 験

2.1 試 料

実験に用いた試料は、燃料コンパクト成型前の製造バッチの異なる7種類のUO₂核TRISO被覆燃料粒子である。7種類の被覆燃料粒子試料の寸法、密度などの測定値を、Table 1に示す。これらの被覆燃料粒子は、いわゆるMK-III燃料仕様のものである。これらの被覆燃料粒子試料

の破損率として、燃料コンパクト成型前の被覆燃料粒子の貫通破損率およびSiC層破損率、ならびに燃料コンパクト成型後の被覆燃料粒子の貫通破損率を、Table 2にまとめて示す。

燃料コンパクト成型前の貫通破損率は、硝酸浸出法で測定された値である。貫通破損率は、10 gの被覆燃料粒子を硝酸溶液に入れて20時間煮沸したとき、硝酸溶液中に溶出したウラン量と全ウラン量との比で表わされる。

燃料コンパクト成型前のSiC層破損率は、燃焼-硝酸浸出法で測定された値である。SiC層破損率は、10 gの被覆燃料粒子を空气中850°Cで9時間加熱し、OPyC層を燃焼除去した後、試料を硝酸溶液に入れて5時間煮沸したとき、硝酸溶液中に溶出したウラン量と全ウラン量との比で表わされる。

燃料コンパクト成型後の被覆燃料粒子の貫通破損率は、電気化学的解砕-酸浸出法で測定された値である。貫通破損率は、2個の燃料コンパクトを硝酸溶液中で電気化学的に解砕した後、20時間煮沸したとき、硝酸溶液中に溶出したウラン量と全ウラン量との比で表わされる。

2.2 実験方法

実験方法の概略をFig. 1に示す。被覆燃料粒子の製造過程における破損の発生機構を調べるために、まず、被覆燃料粒子をX線ラジオグラフ法により観察した。X線ラジオグラフでは、被覆層の破損や欠陥、燃料核の異常などがわかる。X線ラジオグラフの観察結果から、破損粒子などの特定の粒子を選び出せるように、X線ラジオグラフの撮影に際しては、被覆燃料粒子1粒づつに番号を付けておいた。

SiC層破損率が高い試料G-300については、約2,000粒の被覆燃料粒子を観察したが、他の6種類の試料については、1試料あたり約1,000粒を観察した。同一試料についてのX線ラジオグラフ撮影回数は1回としたが、SiC層破損率が高い試料G-125については、撮影を10回繰り返した。

X線ラジオグラフの観察結果により、被覆層の破損、欠陥などの種類別に、観察した被覆燃料粒子を試料ごとに数個の集団に分けた。X線ラジオグラフ法は、非破壊法であるので、これら各集団の被覆燃料粒子について、さらに種々の試験を行なうことができ、また、集団間の差異を見ることが可能である。

そこで、つぎに、これら各集団について、SiC層破損確認試験、SiC層外表面観察、粒子破壊荷重測定、粒子断面組織観察などを行なった。SiC層破損確認試験では、被覆燃料粒子を空气中900°Cで9時間加熱することにより、SiC層破損粒子であるか否かを調べた。SiC層外表面観察ではOPyC層を燃焼除去した粒子を対象とし、実体顕微鏡を用いて観察した。粒子破壊荷重測定ではTRISO被覆燃料粒子およびOPyC層を燃焼除去した粒子を対象とし、測定粒子数は10粒とした。

また、試料G-125については、被覆燃料粒子10粒を粉碎して、X線回折法により、燃料核の異常を調べた。

3. 結 果

3.1 試料G-125

X線ラジオグラフでは、大別して、燃料核が異常な粒子、SiC層に欠陥のある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子の4種類が観察された。

燃料核が異常な粒子のX線ラジオグラフの代表例を、Photo. 1に示す。また、断面組織観察写真を、Photo. 2に示す。このように燃料核が異常な粒子は、1,054粒中35粒であった。これらの燃料核の異常は、X線回折法により、二酸化ウランの一部がPyC層と反応し、炭化ウランが形成されている状態であることがわかった。X線回折結果をFig. 2に示す。Photo. 2において、燃料核の外縁およびbuffer-PyC層の内縁で白く光って見える部分は、炭化ウランであると考えられる。

これらの粒子の特徴は、buffer-PyC層、IPyC層、およびSiC層の内側の3つの被覆層がすべて破損しており、OPyC層が健全であることである。X線ラジオグラフまたは断面組織観察では、被覆層の破損が見えない粒子もあったが、SiC層破損確認試験により、SiC層が破損していることがわかった。このことは、X線ラジオグラフまたは断面組織観察では、観察が一断面に限られているためであると考えられる。

また、燃料核が炭化している粒子および特に異常が見られなかった粒子の破壊荷重を測定した。その結果、Table 3に示すように、燃料核が炭化している粒子の破壊荷重の平均は0.96 kgであり、特に異常が見られなかった粒子の場合の1.47 kgに比べ、約35%小さかった。このことは、燃料核の炭化している粒子は、燃料コンパクト成型時等に、貫通破損粒子になりやすいことを示している。

SiC層に欠陥のある粒子のX線ラジオグラフの代表例を、Photo. 3に示す。SiC層の欠陥とは、SiC層が円周方向に部分的に剥離していることである。このようなSiC層の粒子は、1回目のX線ラジオグラフの観察では、1,054粒中42粒であったが、X線ラジオグラフの撮影を10回繰り返したところ、1,054粒中124粒であった。SiC層の欠陥は部分的であるため、X線ラジオグラフで必ず観察されるというものではない。

X線ラジオグラフではSiC層の円周方向の部分的な剥離は見られたが、SiC層の破損は見られなかった。しかし、SiC層破損確認試験では、124粒中5粒がSiC層破損粒子であることがわかった。

いびつな形の粒子のX線ラジオグラフの代表例を、Photo. 4に示す。ここでは、いびつな形について定量的な定義をしなかったが、被覆層厚さが極端に不均一なもの、および粒子の形が丸いとはいえないものを、いびつな形の粒子とした。いびつな形の粒子は、1,054粒中56粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子はなかった。

X線ラジオグラフの観察において、異常等が見られた粒子には、40粒のSiC層破損粒子が含まれていた。この試料のSiC層破損率は、Table 2に示したように、 5.0×10^{-2} であるので、X

線ラジオグラフの観察により、ほぼ全数のSiC層破損粒子を分離することができたと考えられる。SiC層破損粒子は、燃料核が炭化していた粒子、およびSiC層に欠陥のある粒子であった。

3.2 試料G-281

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥のある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子のX線ラジオグラフをPhoto. 5に示す。試料G-125の場合と見比べると、この粒子では、燃料核がごく僅かに炭化しているのかもしれないが、詳細は不明である。このように燃料核が少し異常な粒子は、1,054粒中11粒であった。被覆層の破損は、X線ラジオグラフで見られなかった。また、SiC層破損確認試験においても、SiC層の破損は見られなかった。

SiC層に欠陥のある粒子のX線ラジオグラフをPhoto. 6に示す。また、断面組織観察写真をPhoto. 7に示す。Photo. 6(a)、Photo. 7(a)および(b)は、SiC層が円周方向に部分的に剥離しているもので、試料G-125で見られたものと同様の欠陥である。Photo. 6(b)、Photo. 7(c)および(d)は、SiC層が円周方向に部分的に欠落しているものであり、部分的な剥離から発展したものと考えられる。SiC層の部分的な欠落は、OPyC層の被覆前である。SiC層に欠陥のある粒子は、1,054粒中75粒であった。

SiC層に欠陥のある60粒について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層の欠落があるものでも、SiC層の破損は見られなかった。SiC層破損確認試験後のSiC層外表面観察写真を、Photo. 8に示す。Photo. 8(a)および(b)では、SiC層が部分的に欠落している粒子が見える。また、ほとんどの粒子に白っぽい斑点のようなものが見えるが、これは、SiC層が剥離している部分であると考えられる。

いびつな形の粒子は、1,054粒中79粒であった。69粒のいびつな形の粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損は見られなかった。

SiC層に欠陥のある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られなかった粒子について、粒子の破壊荷重を測定した。その結果をTable 4に示す。3種類の粒子間に、破壊荷重の差はほとんど認められなかった。また、OPyC層除去後のSiC層に欠陥のある粒子および特に異常の見られなかった粒子について、粒子の破壊荷重を測定した。その結果をTable 5に示す。この場合も、破壊荷重の差は、ほとんど認められなかった。

3.3 試料G-300

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥のある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子とは、Photo. 5に示したような、試料G-281で見られたものと同様のものである。このような粒子は、2,108粒中11粒であった。また、試料G-281の場合と同様に、SiC層破損確認試験において、SiC層の破損は見られなかった。

SiC層に欠陥のある粒子のX線ラジオグラフをPhoto. 9に示す。SiC層の欠陥としては、SiC層が円周方向に部分的に剥離しているものが見られたが、欠落は見られなかった。SiC層が部分的に剥離している粒子は、2,108粒中85粒であった。SiC層が部分的に剥離している61粒について、SiC層破損確認試験を行なったところ、1粒がSiC層破損粒子であった。SiC層破損確認試験後のSiC層外表面観察写真を、Photo. 10に示す。写真では、白っぽい斑点のようなものが見えるが、これは、SiC層が剥離している部分であると考えられる。

いびつな形の粒子のX線ラジオグラフをPhoto. 11に示す。Photo. 11に示した粒子は、粒子の表面に窪みのあるもので、X線ラジオグラフでは、SiC層が2重に見えている。いびつな形の粒子は、2,108粒中122粒であった。SiC層破損確認試験では、SiC層破損粒子は見られなかった。

この試料のSiC層破損率は、Table 2に示したように、 1.2×10^{-2} であるが、X線ラジオグラフの観察により選り出された粒子の中には、SiC層破損粒子は1粒だけあった。SiC層破損粒子は、SiC層に欠陥のある粒子集団の中にあつた。SiC層破損粒子が1粒だけしか分離されなかったのは、1回のX線ラジオグラフの観察では、SiC層に欠陥のある全ての粒子を分離することができなかったためと考えられる。

3.4 試料G-449

X線ラジオグラフでは、燃料核が異常な粒子、SiC層に欠陥のある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が異常な粒子は、Photo. 12に示すような、試料G-125で見られた燃料核の外周部が炭化した粒子と同様のものが、1,054粒中2粒であった。これらの粒子は、SiC層破損確認試験において、SiC層破損粒子であることがわかった。試料G-125で行なったような、燃料核組成のX線回折による確認は、この試料については行なっていないが、X線ラジオグラフの観察から、燃料核の炭化と推定される。

また、試料G-281で見られたのと同様な、燃料核が少し異常な粒子は、1,054粒中18粒であった。これらの粒子のSiC層破損確認試験では、SiC層破損は見られなかった。

SiC層に欠陥のある粒子のX線ラジオグラフをPhoto. 13に示す。SiC層が円周方向に部分的に剥離している粒子が見られた。このような粒子は、1,054粒中164粒であった。X線ラジオグラフでは、SiC層破損は見られなかったが、SiC層破損確認試験では、158粒中1粒がSiC層破損粒子であることがわかった。

いびつな形の粒子は、1,054粒中37粒であった。SiC層破損確認試験では、SiC層破損粒子は見られなかった。

X線ラジオグラフの観察において、異常が見られた粒子には、3粒のSiC層破損粒子が含まれていた。この試料のSiC層破損率は、Table 2に示したように、 3.1×10^{-3} であるので、X線ラジオグラフの観察により、ほぼ全数のSiC層破損粒子を分離することができたと考えられる。SiC層破損粒子は、燃料核が炭化していた粒子、およびSiC層に欠陥のある粒子であった。

3.5 試料G-509

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥がある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子は、試料G-281で見られたものと同様のもので、1,054粒中2粒であった。SiC層に欠陥がある粒子は、SiC層が円周方向に部分的に剥離したもので、1,054粒中6粒であった。いびつな形の粒子は、1,054粒中24粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子は、どの場合にも見られなかった。

特に異常の見られない粒子について、粒子の破壊荷重を測定した。その結果をTable 6に示す。破壊荷重の平均は、2.04 kgであった。

3.6 試料G-636

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥がある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子は、試料G-281で見られたものと同様なもので、1,054粒中26粒であった。SiC層に欠陥がある粒子は、SiC層が円周方向に部分的に剥離したもので、1,054粒中54粒であった。いびつな形の粒子は、1,054粒中14粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子は、どの場合にも見られなかった。

3.7 試料G-764

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥がある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子は、試料G-281で見られたものと同様なもので、1,054粒中6粒であった。SiC層に欠陥がある粒子は、SiC層が円周方向に部分的に剥離したもので、1,054粒中53粒であった。いびつな形の粒子は、1,054粒中20粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子は、どの場合にも見られなかった。

4. 考 察

4.1 燃料核の炭化と破損

試料G-125およびG-449において、燃料核 UO_2 の外周部が炭化している粒子が見られた。この粒子の特徴は、SiC層が破損していることである。いくつかの粒子では、buffer-PyC層、IPyC層、およびSiC層が破損しているのが観察された。OPyC層の破損は見られなかった。

3.5 試料G-509

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥がある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子は、試料G-281で見られたものと同様のもので、1,054粒中2粒であった。SiC層に欠陥がある粒子は、SiC層が円周方向に部分的に剥離したもので、1,054粒中6粒であった。いびつな形の粒子は、1,054粒中24粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子は、どの場合にも見られなかった。

特に異常の見られない粒子について、粒子の破壊荷重を測定した。その結果をTable 6に示す。破壊荷重の平均は、2.04 kgであった。

3.6 試料G-636

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥がある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

燃料核が少し異常な粒子は、試料G-281で見られたものと同様なもので、1,054粒中26粒であった。SiC層に欠陥がある粒子は、SiC層が円周方向に部分的に剥離したもので、1,054粒中54粒であった。いびつな形の粒子は、1,054粒中14粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子は、どの場合にも見られなかった。

3.7 試料G-764

X線ラジオグラフでは、燃料核が少し異常な粒子、SiC層に欠陥がある粒子、いびつな形の粒子、および特に異常の見られない粒子が観察された。

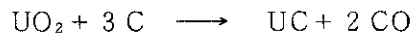
燃料核が少し異常な粒子は、試料G-281で見られたものと同様なもので、1,054粒中6粒であった。SiC層に欠陥がある粒子は、SiC層が円周方向に部分的に剥離したもので、1,054粒中53粒であった。いびつな形の粒子は、1,054粒中20粒であった。これらの粒子について、SiC層破損確認試験を行なったが、SiC層破損粒子は、どの場合にも見られなかった。

4. 考 察

4.1 燃料核の炭化と破損

試料G-125およびG-449において、燃料核 UO_2 の外周部が炭化している粒子が見られた。この粒子の特徴は、SiC層が破損していることである。いくつかの粒子では、buffer-PyC層、IPyC層、およびSiC層が破損しているのが観察された。OPyC層の破損は見られなかった。

燃料核 UO_2 の炭化は、次式による。



しかし、平衡するCOガスが粒子から抜け出なければ、炭化反応は進行しない。このことから、燃料核が炭化している粒子では、被覆層の破損またはガス透過性の高い被覆層のため、COガスが粒子から抜け出たと考えられる。

これらのことから、燃料核の炭化および被覆層の破損の機構は、つぎのように考えられる。

- ① SiC層を被覆するために、IPyC層まで被覆した粒子を被覆装置に入れ、流動させながらSiC蒸着温度（約1,600°C）まで加熱する。
- ② IPyC層のガス透過性が高いと、COガスがIPyC層を通して外へ抜け出し、燃料核の炭化が始まる。

または、

- ②' IPyC層のガス透過性が低くても、粒子の流動中に衝突によりIPyC層が破損し、燃料核の炭化が始まる。
- ③ SiCの蒸着が始まっても、COガスが多量に出てくる部分では、SiCが完全には被覆されず、SiC層破損粒子になる。
- ④ OPyC層の蒸着は、SiC層の蒸着よりも、温度は低く（約1,400°C）、時間も短い（数分間）ので、被覆層が破損していても、OPyC層は完全に被覆される。

このようにして、燃料核が炭化しているSiC層破損粒子ができると考えられるが、この粒子では、試料G-125において測定したように、健全粒子よりも粒子の破壊荷重が小さい。このため、粒子の取り扱い中および燃料コンパクト成型中に、外力によって、SiC層破損粒子が貫通破損粒子になり易いと考えられる。

製造過程において、燃料核 UO_2 が炭化しているSiC層破損粒子ができないようにするためには、SiC層の被覆時に、燃料核が炭化しないようにすることである。すなわち、① IPyC層のガス透過性を低くすること、および② IPyC層まで被覆した粒子が割れないようにすること、が挙げられる。①に関しては、蒸着条件の変更が必要である。②に関しては、被覆装置内での粒子の流動状態の改善が必要である。また、IPyC層を厚くすることも考えられる。

4.2 SiC層の欠陥と破損

ここで観察した7種類のすべての試料において、SiC層が円周方向に部分的に剥離している粒子が見られた。また、試料G-281において、この部分的な剥離から生じたと考えられる、SiC層の部分的な欠陥が見られた。これらの粒子の特徴は、ほとんどの粒子のSiC層は破損していないが、一部の粒子のSiC層は破損していることである。OPyC層の破損は見られなかった。

ここでの観察結果およびSiC層蒸着の様子から、SiC層の円周方向の部分的な剥離および欠陥は、つぎのようにしてできると考えられる。

- ① 粒子の流動状態が悪い状態で、SiC層の蒸着を始める。
- ② 一部の粒子は、温度の低い流動床の上部まで吹き上げられ、管壁等に捕えられる。

または、

- ② 一部の粒子は、温度の低い流動床のノズル周辺に停留している。
- ③ 温度が低いところにある粒子には、SiCではなく、SiC + Si が蒸着される⁽⁹⁾。
- ④ 粒子表面の一部分にSiC + Si が蒸着された粒子が、再び通常の蒸着領域に戻り、SiCの蒸着が再開される。
- ⑤ SiC層の蒸着温度(約1,600°C)は、Siの融点(1,414°C)よりも高いので、Siは蒸発し、その部分のSiC層は不連続になり、剥離しているように見える。
- ⑥ SiC層が部分的に剥離しているものは、SiC層蒸着中またはOPyC層蒸着前に欠落することもある。

SiC層に欠陥のある粒子の破壊荷重は、OPyC層がある場合もない場合も、特に異常が見られなかった粒子の破壊荷重とほとんど差が見られなかった。しかし、剥離している部分が欠落するなど、SiC層に欠陥がある粒子のSiC層は、局所的に弱いことは明白である。したがって、SiC層に欠陥がある粒子のいくつかは、SiC層破損粒子になると考えられる。また同様に、これらの粒子は、燃料コンパクト成型の際に、貫通破損粒子になり易いと考えられる。

製造過程において、SiC層に欠陥のある粒子ができないようにするためには、SiC層蒸着のときの粒子の流動状態を改善することが必要である。粒子の流動状態には、流動床の形状、ガス流量、粒子装荷量などが関係しており、流動状態の改善にあたっては、これらの因子を総合的に考慮しなければならない。

4.3 いびつな形と破損

ここで観察した7種類のすべての試料において、いびつな形の粒子が見られた。粒子がいびつな形になるのは、燃料核がいびつな場合、およびbuffer - PyC層の厚さが不均一な場合が主であった。いびつな形をしていても、SiC層の破損は認められなかった。

Heitらの報告⁽⁸⁾によると、いびつな形の粒子は、ボール型燃料の成型の際に、成型圧に耐えられずに、被覆層に破損が生じやすいという。ここでの観察では、試料G-281およびG-300にいびつな形の粒子が比較的多く、Table 3に示したように、燃料コンパクト成型後の貫通破損率も高かった。しかし、これらの試料では、燃料コンパクト成型前のSiC層破損率も高いので、いびつな形の粒子が燃料コンパクト成型の際に破損したとは断定できない。ここで観察した試料においては、燃料コンパクト成型後の貫通破損粒子は、いびつな形の粒子から生じたものもあるかもしれないが、4.1節および4.2節で考察したように、SiC層の破損した粒子、または欠陥をもった粒子からの寄与が大きいと考えられる。

5. 結 論

被覆燃料粒子の製造過程における被覆層の破損発生の機構を調べるために、燃料コンパクト成型前の製造バッチの異なる7種類のUO₂核TRISO被覆燃料粒子を用いて、種々の観察および

- ②' 一部の粒子は、温度の低い流動床のノズル周辺に停留している。
- ③ 温度が低いところにある粒子には、SiCではなく、SiC + Si⁽⁹⁾が蒸着される。
- ④ 粒子表面の一部分にSiC + Siが蒸着された粒子が、再び通常の蒸着領域に戻り、SiCの蒸着が再開される。
- ⑤ SiC層の蒸着温度(約1,600°C)は、Siの融点(1,414°C)よりも高いので、Siは蒸発し、その部分のSiC層は不連続になり、剥離しているように見える。
- ⑥ SiC層が部分的に剥離しているものは、SiC層蒸着中またはOPyC層蒸着前に欠落することもある。

SiC層に欠陥のある粒子の破壊荷重は、OPyC層がある場合もない場合も、特に異常が見られなかった粒子の破壊荷重とほとんど差が見られなかった。しかし、剥離している部分が欠落するなど、SiC層に欠陥がある粒子のSiC層は、局所的に弱いことは明白である。したがって、SiC層に欠陥がある粒子のいくつかは、SiC層破損粒子になると考えられる。また同様に、これらの粒子は、燃料コンパクト成型の際に、貫通破損粒子になり易いと考えられる。

製造過程において、SiC層に欠陥のある粒子ができないようにするためには、SiC層蒸着のときの粒子の流動状態を改善することが必要である。粒子の流動状態には、流動床の形状、ガス流量、粒子装荷量などが関係しており、流動状態の改善にあたっては、これらの因子を総合的に考慮しなければならない。

4.3 いびつな形と破損

ここで観察した7種類のすべての試料において、いびつな形の粒子が見られた。粒子がいびつな形になるのは、燃料核がいびつな場合、およびbuffer - PyC層の厚さが不均一な場合が主であった。いびつな形をしていても、SiC層の破損は認められなかった。

Heitらの報告⁽⁸⁾によると、いびつな形の粒子は、ボール型燃料の成型の際に、成型圧に耐えられずに、被覆層に破損が生じやすいという。ここでの観察では、試料G-281およびG-300にいびつな形の粒子が比較的多く、Table 3に示したように、燃料コンパクト成型後の貫通破損率も高かった。しかし、これらの試料では、燃料コンパクト成型前のSiC層破損率も高いので、いびつな形の粒子が燃料コンパクト成型の際に破損したとは断定できない。ここで観察した試料においては、燃料コンパクト成型後の貫通破損粒子は、いびつな形の粒子から生じたものもあるかもしれないが、4.1節および4.2節で考察したように、SiC層の破損した粒子、または欠陥をもった粒子からの寄与が大きいと考えられる。

5. 結 論

被覆燃料粒子の製造過程における被覆層の破損発生の機構を調べるために、燃料コンパクト成型前の製造バッチの異なる7種類のUO₂核TRISO被覆燃料粒子を用いて、種々の観察および

試験を行なった。その結果、つぎの結論を得た。

- (1) IPyC層のガス透過性が高いか、またはIPyC層に破損があると、 UO_2 燃料核は、SiC層蒸着時に炭化され、COガスが多量に出てくる部分にはSiC層が蒸着されず、SiC層破損粒子となる。
- (2) SiC層の蒸着の際に、粒子の流動状態が悪いと、欠陥をもったSiC層が蒸着される。この欠陥をもったSiC層は、局所的に強度が小さいので、SiC層破損粒子になり易い。
- (3) SiC層破損粒子は、燃料コンパクト成型の際に、貫通破損粒子になり易い。
- (4) 粒子のいびつさと燃料コンパクト成型後の破損率との関係は、明らかにはならなかった。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、御激励下さった前燃料工学部長岩本多實氏、および燃料工学部長近藤達男氏に感謝致します。また、本報告をまとめるにあたり、有益な御助言を下された燃料照射研究室の諸兄に感謝致します。

参 考 文 献

- (1) M. Wagner-Loffler, Nucl. Technol., 35, 372 (1977).
- (2) T.D. Gulden, et. al., Nucl. Technol., 16, 100 (1972).
- (3) K. Bongartz, Nucl. Technol., 35, 379 (1977).
- (4) T.N. Tiegs, ORNL/TM-7203 (1980).
- (5) R.L. Pearson, et. al., ORNL/TM-8059 (1982).
- (6) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-16919 (1982).
- (7) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-17110 (1983).
- (8) W. Heit, et. al., Nucl. Technol., 69, 44 (1985).
- (9) K. Minato, et. al., JAERI-M 85-043 (1985).

試験を行なった。その結果、つぎの結論を得た。

- (1) IPyC層のガス透過性が高いか、またはIPyC層に破損があると、 UO_2 燃料核は、SiC層蒸着時に炭化され、COガスが多量に出てくる部分にはSiC層が蒸着されず、SiC層破損粒子となる。
- (2) SiC層の蒸着の際に、粒子の流動状態が悪いと、欠陥をもったSiC層が蒸着される。この欠陥をもったSiC層は、局所的に強度が小さいので、SiC層破損粒子になり易い。
- (3) SiC層破損粒子は、燃料コンパクト成型の際に、貫通破損粒子になり易い。
- (4) 粒子のいびつさと燃料コンパクト成型後の破損率との関係は、明らかにはならなかった。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、御激励下さった前燃料工学部長岩本多實氏、および燃料工学部長近藤達男氏に感謝致します。また、本報告をまとめるにあたり、有益な御助言を下された燃料照射研究室の諸兄に感謝致します。

参 考 文 献

- (1) M. Wagner-Loffler, Nucl. Technol., 35, 372 (1977).
- (2) T.D. Gulden, et. al., Nucl. Technol., 16, 100 (1972).
- (3) K. Bongartz, Nucl. Technol., 35, 379 (1977).
- (4) T.N. Tiegs, ORNL/TM-7203 (1980).
- (5) R.L. Pearson, et. al., ORNL/TM-8059 (1982).
- (6) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-16919 (1982).
- (7) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-17110 (1983).
- (8) W. Heit, et. al., Nucl. Technol., 69, 44 (1985).
- (9) K. Minato, et. al., JAERI-M 85-043 (1985).

試験を行なった。その結果、つぎの結論を得た。

- (1) IPyC層のガス透過性が高いか、またはIPyC層に破損があると、 UO_2 燃料核は、SiC層蒸着時に炭化され、COガスが多量に出てくる部分にはSiC層が蒸着されず、SiC層破損粒子となる。
- (2) SiC層の蒸着の際に、粒子の流動状態が悪いと、欠陥をもったSiC層が蒸着される。この欠陥をもったSiC層は、局所的に強度が小さいので、SiC層破損粒子になり易い。
- (3) SiC層破損粒子は、燃料コンパクト成型の際に、貫通破損粒子になり易い。
- (4) 粒子のいびつさと燃料コンパクト成型後の破損率との関係は、明らかにはならなかった。

謝 辞

本研究を実施するにあたり、御激励下さった前燃料工学部長岩本多實氏、および燃料工学部長近藤達男氏に感謝致します。また、本報告をまとめるにあたり、有益な御助言を下された燃料照射研究室の諸兄に感謝致します。

参 考 文 献

- (1) M. Wagner-Loffler, Nucl. Technol., 35, 372 (1977).
- (2) T.D. Gulden, et. al., Nucl. Technol., 16, 100 (1972).
- (3) K. Bongartz, Nucl. Technol., 35, 379 (1977).
- (4) T.N. Tieg, ORNL/TM-7203 (1980).
- (5) R.L. Pearson, et. al., ORNL/TM-8059 (1982).
- (6) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-16919 (1982).
- (7) HTGR Fuel Technology Program Semiannual Report, GA-A-17110 (1983).
- (8) W. Heit, et. al., Nucl. Technol., 69, 44 (1985).
- (9) K. Minato, et. al., JAERI-M 85-043 (1985).

Table 1 Characteristics of the samples.

Sample	UO ₂ kernel		buffer PyC		IPyC		SiC		OPyC	
	Diameter (μm)	Density (%T.D.)	Thickness (μm)	Density (Mg/m^3)	Thickness (μm)	Density (Mg/m^3)	Thickness (μm)	Density (Mg/m^3)	Thickness (μm)	Density (Mg/m^3)
	G-125	606	95.8	64.2	1.11	31.8	1.82	26.1	3.20	46.1
G-281	590	93.2	68.5	1.14	32.5	1.88	23.5	3.22	47.0	1.84
G-300	598	94.5	62.5	1.10	33.5	1.86	22.0	3.20	44.5	1.87
G-449	583	96.4	67.0	1.15	30.0	1.85	25.5	3.21	46.0	1.89
G-509	592	96.6	55.2	1.16	30.4	1.85	27.2	3.21	46.7	1.85
G-636	601	96.8	63.0	1.12	28.6	1.84	24.8	3.22	46.0	1.88
G-764	595	96.3	64.5	1.11	27.5	1.85	24.5	3.21	43.0	1.88

Table 2 Failure fractions of the samples.

Sample	Coated fuel particles		Fuel compacts	
	Total coating failure	SiC failure	Total coating failure	
G-125	2.4×10^{-4}	5.0×10^{-2}	1.7×10^{-3}	
G-281	1.3×10^{-7}	2.5×10^{-3}	9.0×10^{-4}	
G-300	2.9×10^{-4}	1.2×10^{-2}	3.2×10^{-3}	
G-449	2.8×10^{-7}	3.1×10^{-3}	2.9×10^{-5}	
G-509	1.3×10^{-7}	3.4×10^{-4}	8.4×10^{-4}	
G-636	2.5×10^{-7}	7.2×10^{-3}	5.0×10^{-5}	
G-764	4.0×10^{-7}	3.3×10^{-4}	7.3×10^{-6}	

Table 3 Crushing strength of sample G-125 particles.

Number	Crushing load (kg)	
	Particles with carbonized kernels	Intact particles
1	1.31	1.76
2	1.15	1.74
3	1.07	1.66
4	0.96	1.58
5	0.95	1.45
6	0.91	1.45
7	0.88	1.40
8	0.88	1.34
9	0.82	1.15
10	0.71	1.14
mean	0.96	1.47

Table 4 Crushing strength of sample G-281 particles.

Number	Crushing load (kg)		
	Particles with flawed SiC layers	Odd-shaped particles	Intact particles
1	2.64	2.45	2.06
2	2.64	2.36	1.98
3	2.36	2.36	1.98
4	2.23	2.10	1.96
5	1.83	1.77	1.86
6	1.78	1.74	1.80
7	1.66	1.71	1.73
8	1.64	1.68	1.56
9	1.53	1.63	1.50
10	1.22	1.35	1.40
mean	1.95	1.92	1.78

Table 5 Crushing strength of sample G-281 particles without OPyC layers.

Number	Crushing load (kg)	
	Particles with flawed SiC layers	Intact particles
1	1.07	1.31
2	1.04	1.17
3	0.99	0.94
4	0.96	0.92
5	0.96	0.89
6	0.88	0.88
7	0.88	0.84
8	0.76	0.82
9	0.73	0.66
10	0.59	0.66
mean	0.89	0.91

Table 6 Crushing strength of sample G-509 particles.

Number	Crushing load (kg)
	Intact particles
1	2.81
2	2.64
3	2.51
4	2.48
5	2.04
6	1.90
7	1.86
8	1.43
9	1.38
10	1.34
mean	2.04

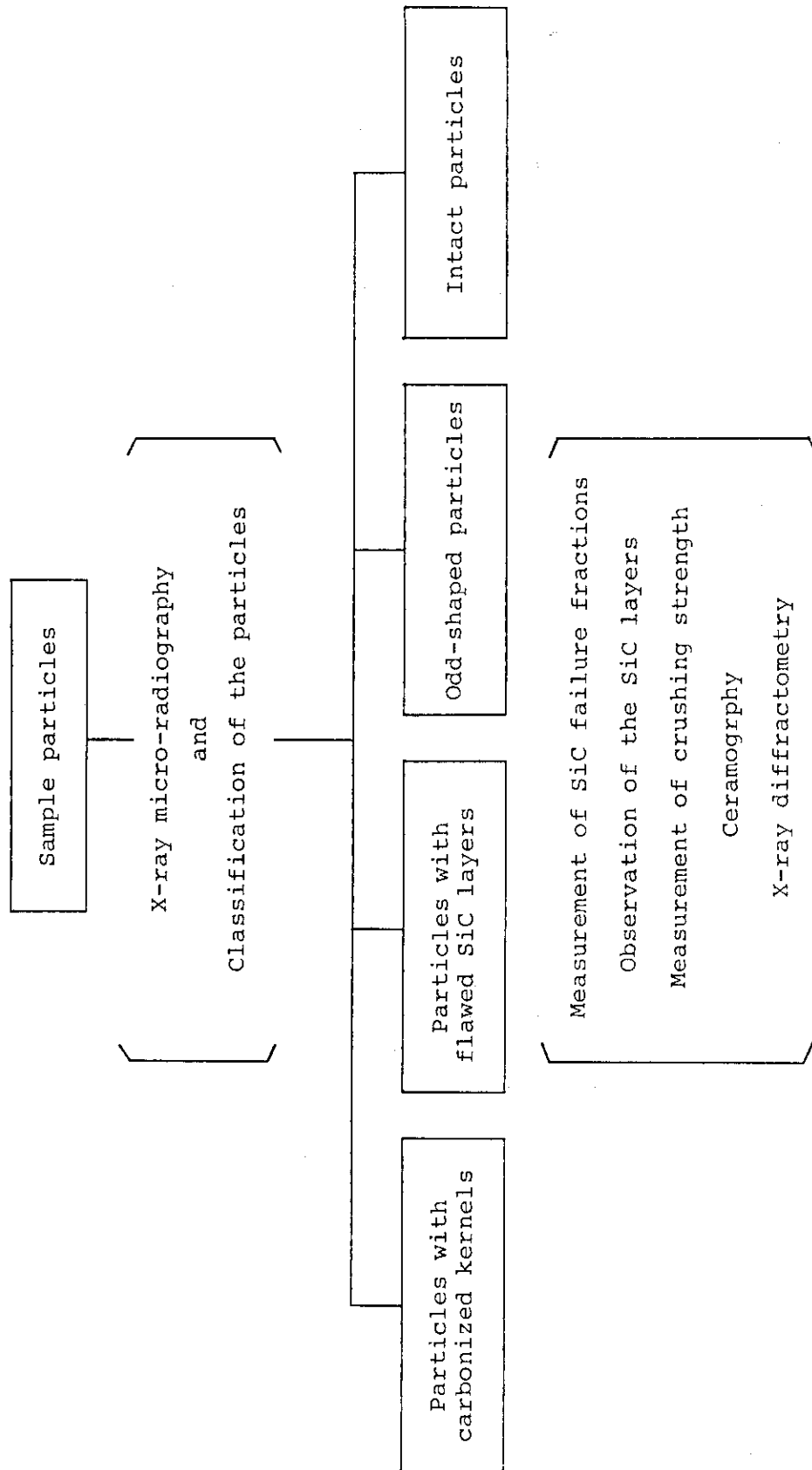


Fig. 1 Summary of experimental procedure.

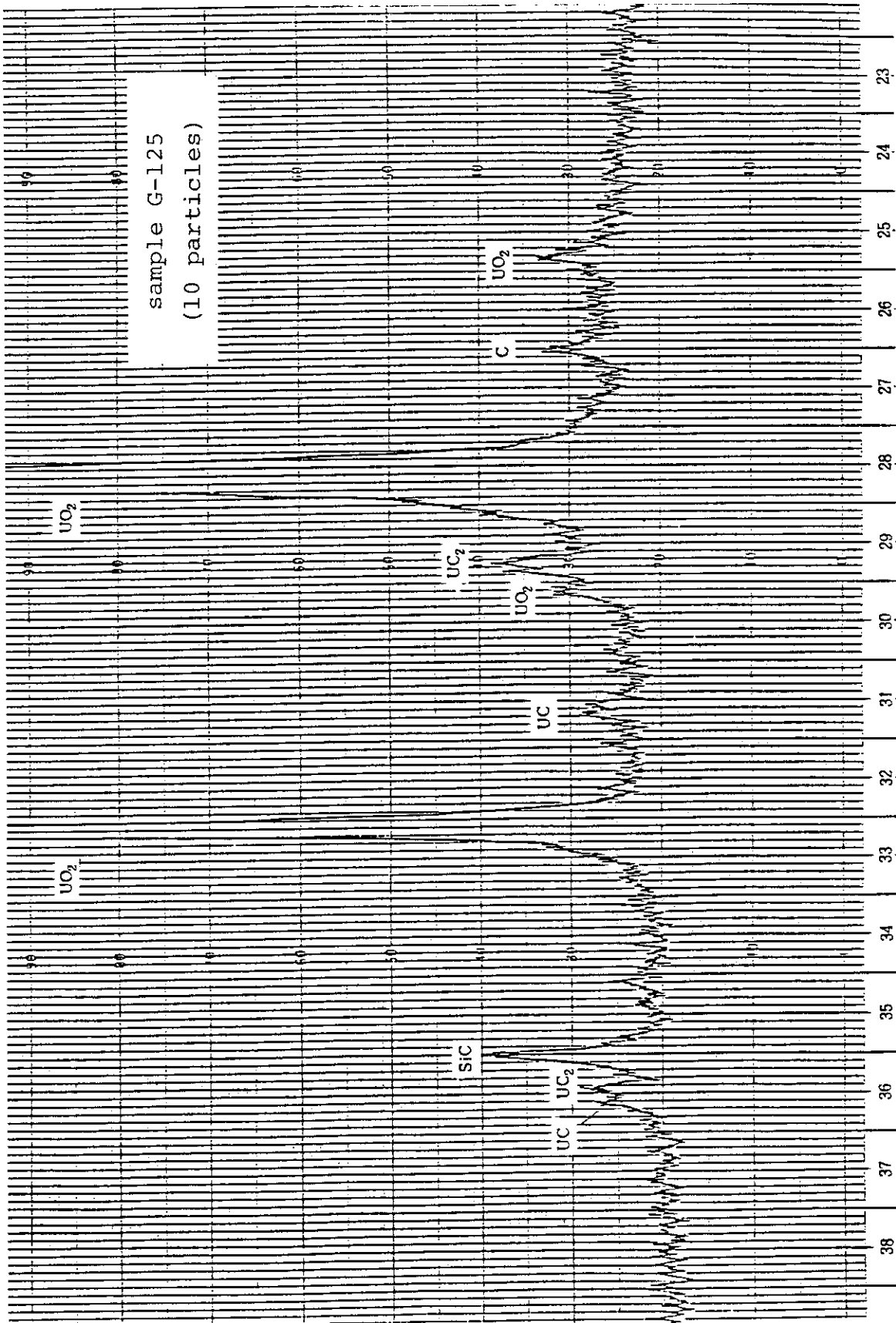
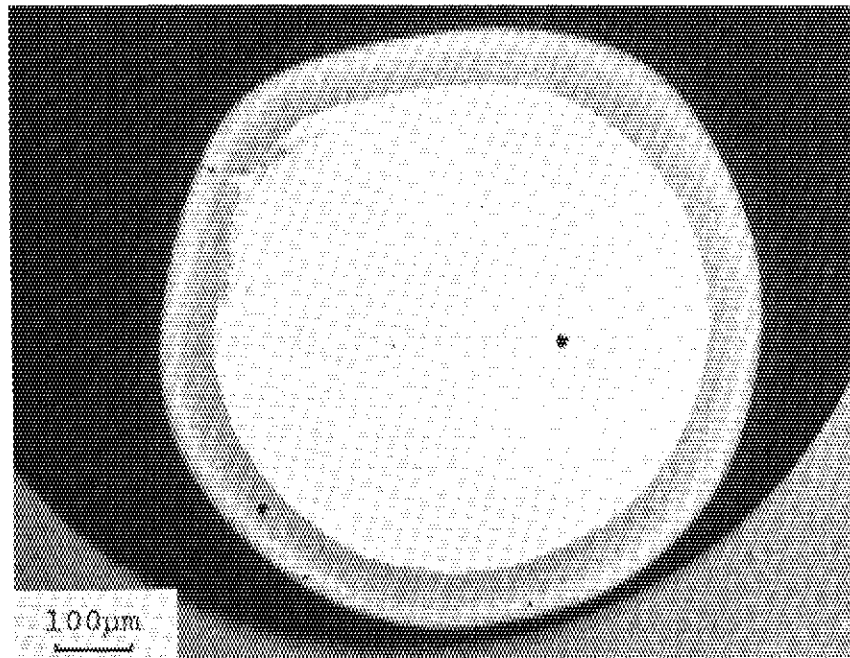
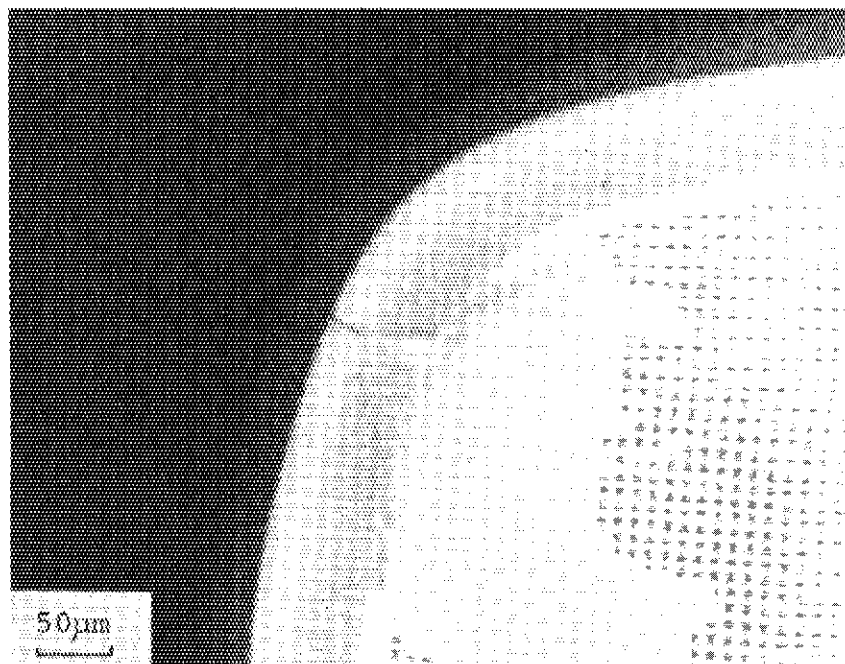


Fig. 2 X-ray diffraction of the particles with carbonized kernels.

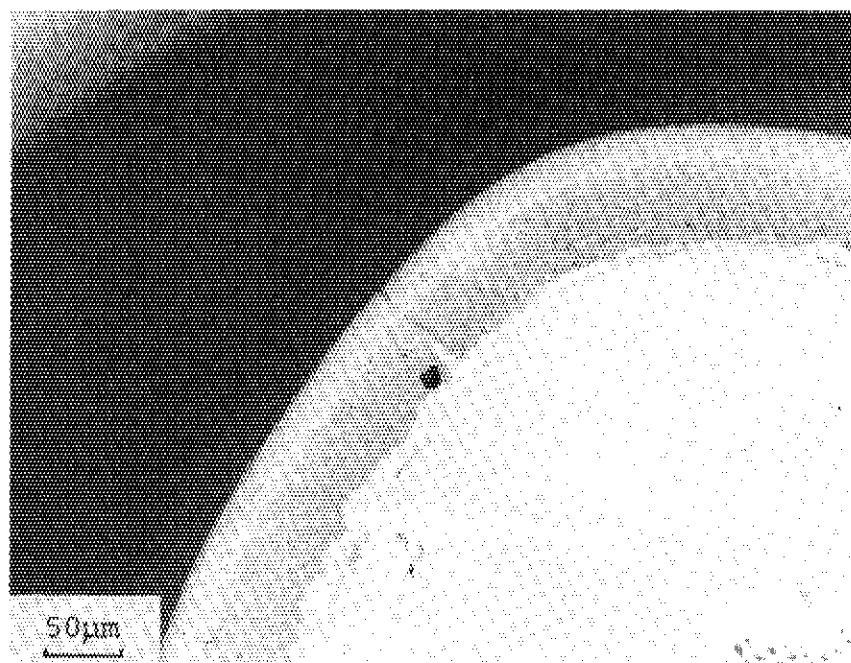


(a)

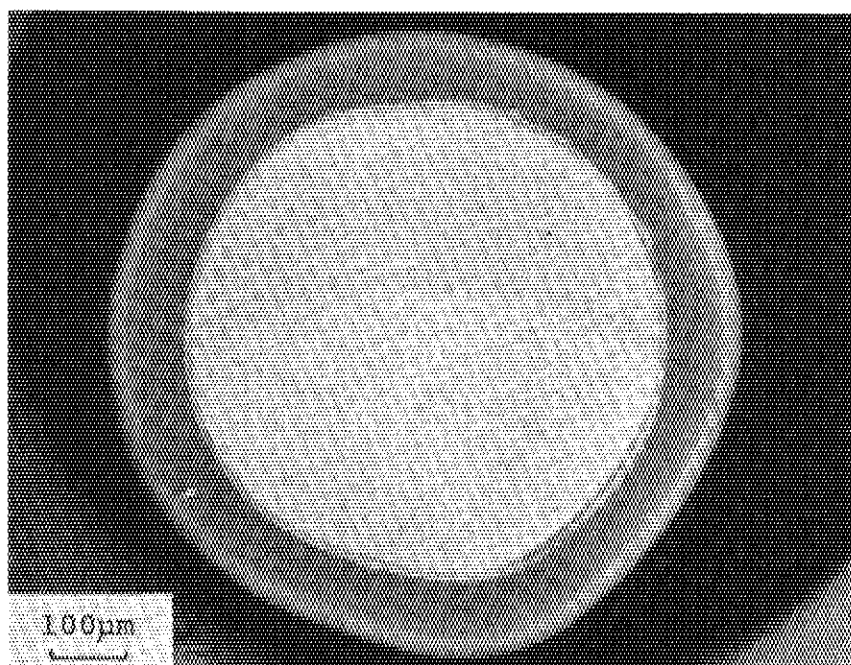


(b)

Photo. 1 X-ray micro-radiographs of the particles with carbonized kernels. (sample G-125)

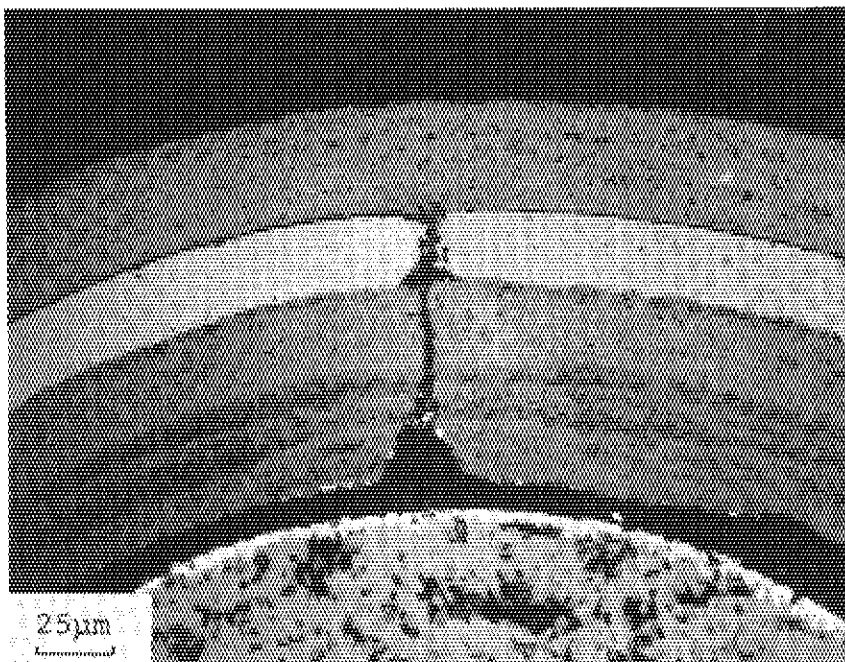


(c)

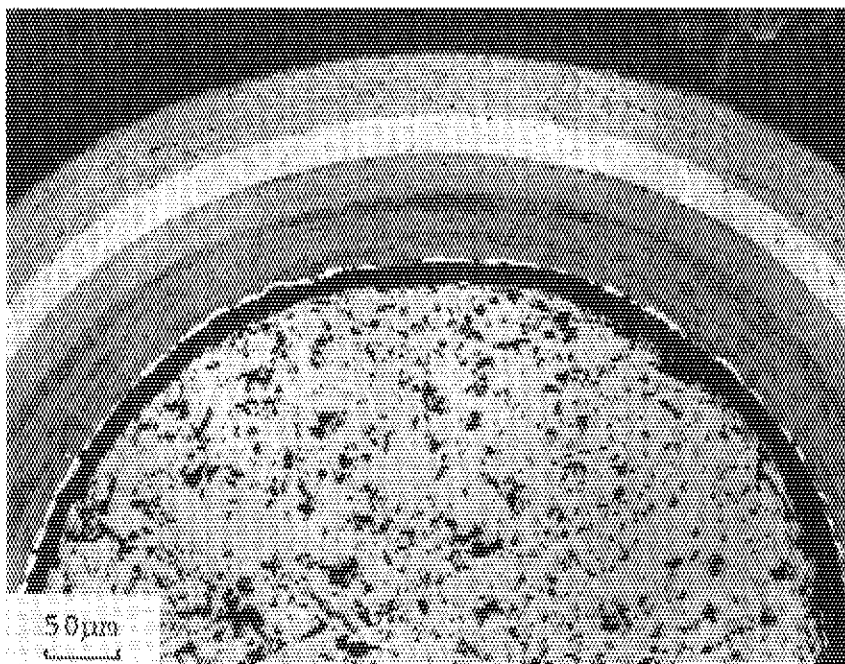


(d)

Photo. 1 (continued)

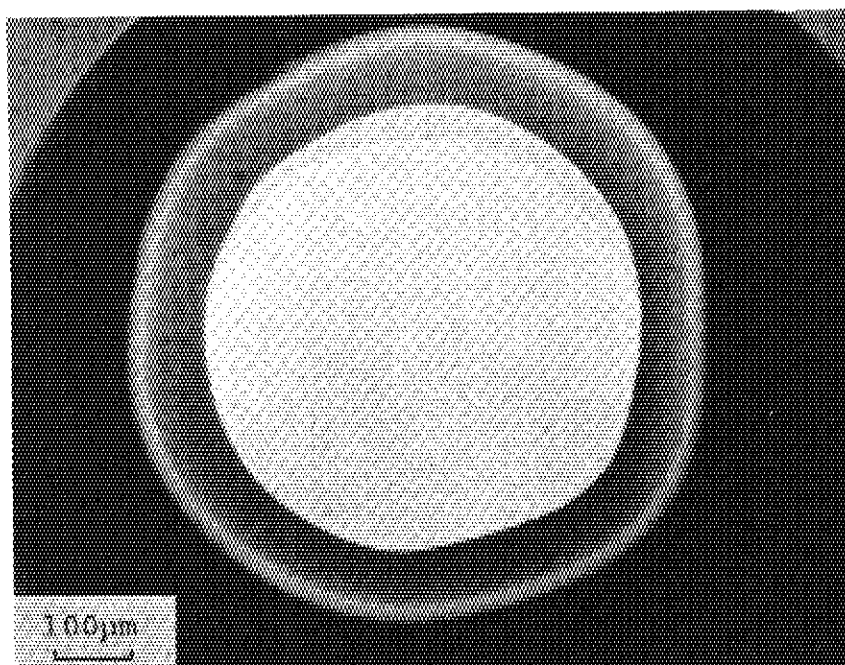


(a)

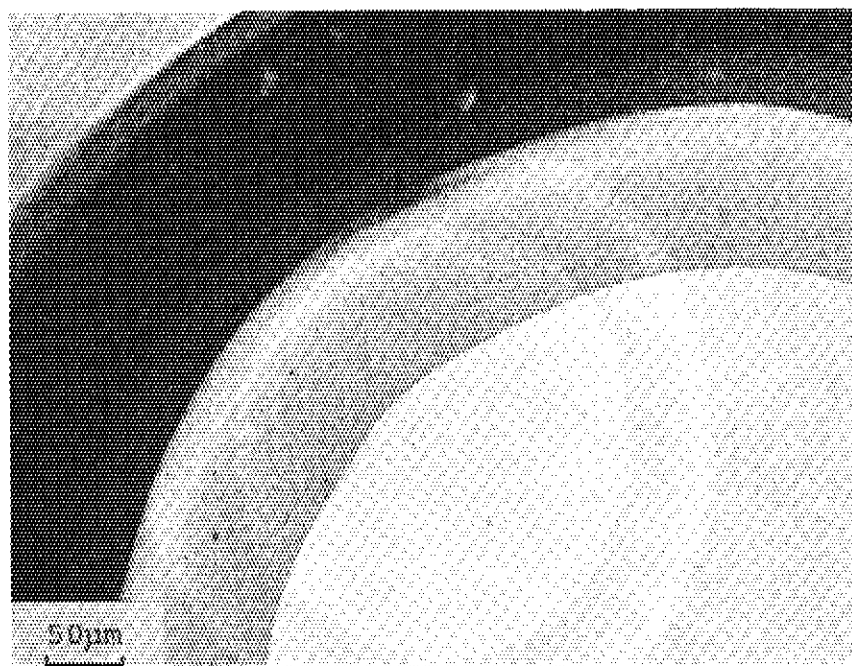


(b)

Photo. 2 Ceramographs of the particles with carbonized kernels. (sample G-125)



(a)



(b)

Photo. 3 X-ray micro-radiographs of the particle with flawed SiC layer. (sample G-125)

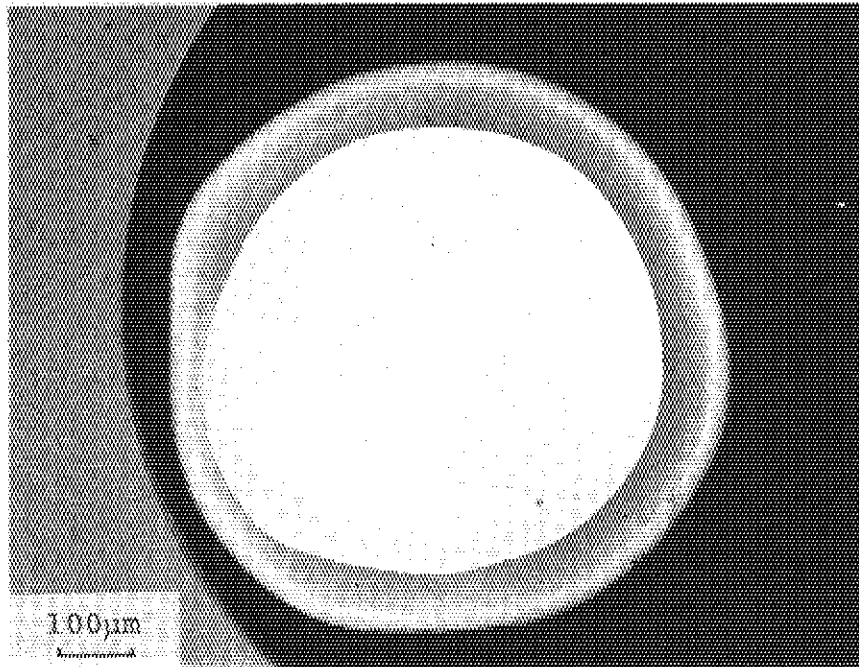


Photo. 4 X-ray micro-radiograph of the odd-shaped particle. (sample G-125)

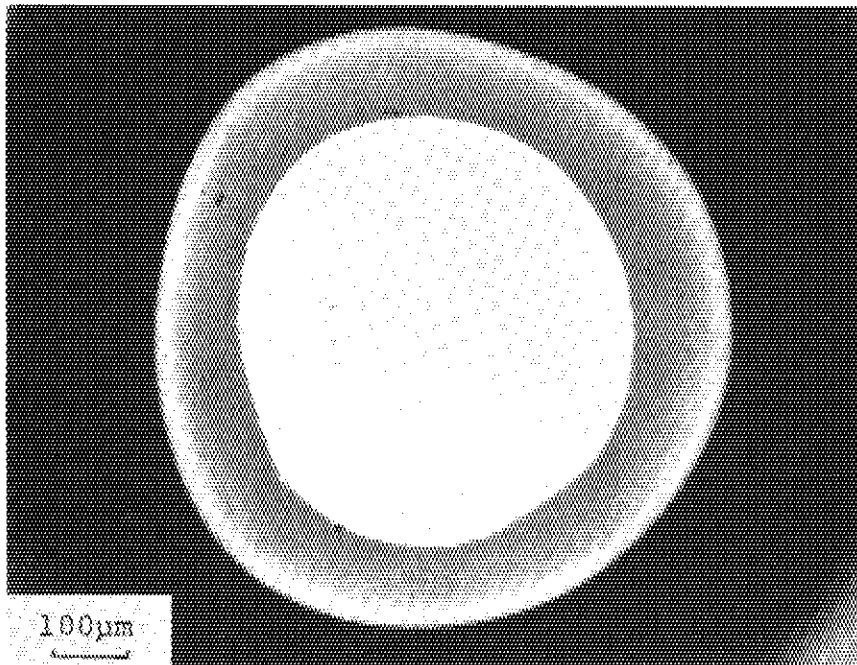
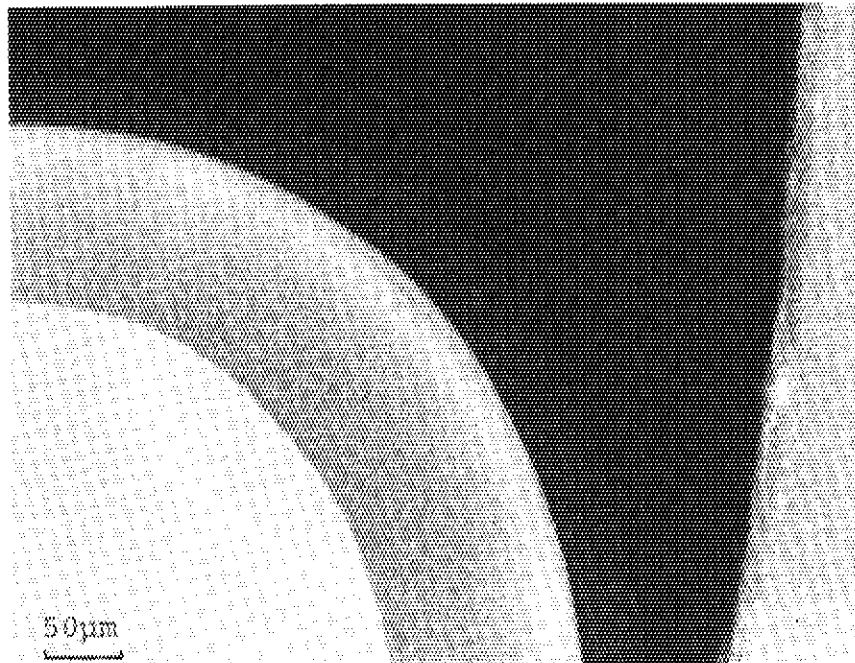
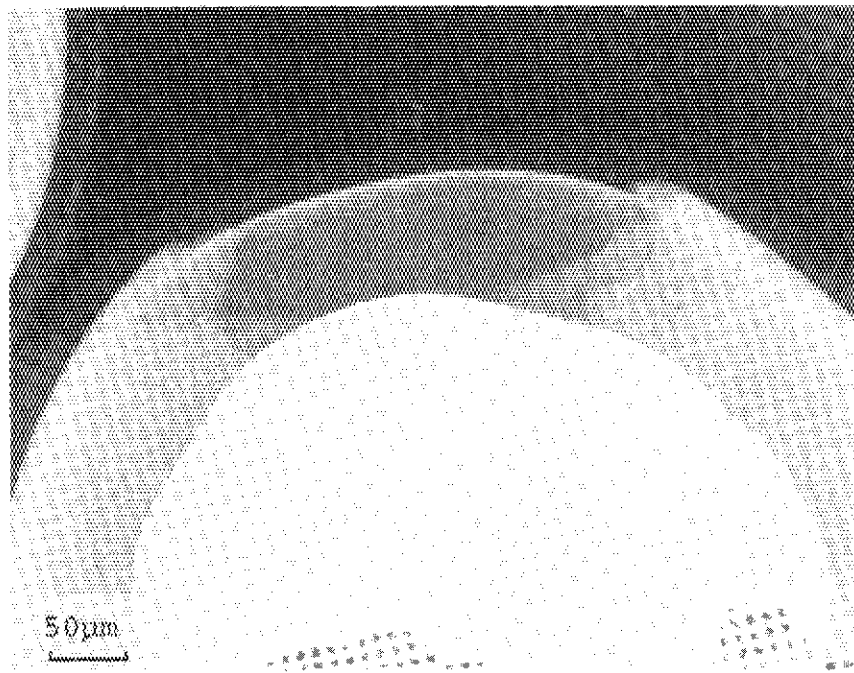


Photo. 5 X-ray micro-radiograph of the particle with slightly carbonized kernel. (sample G-281)

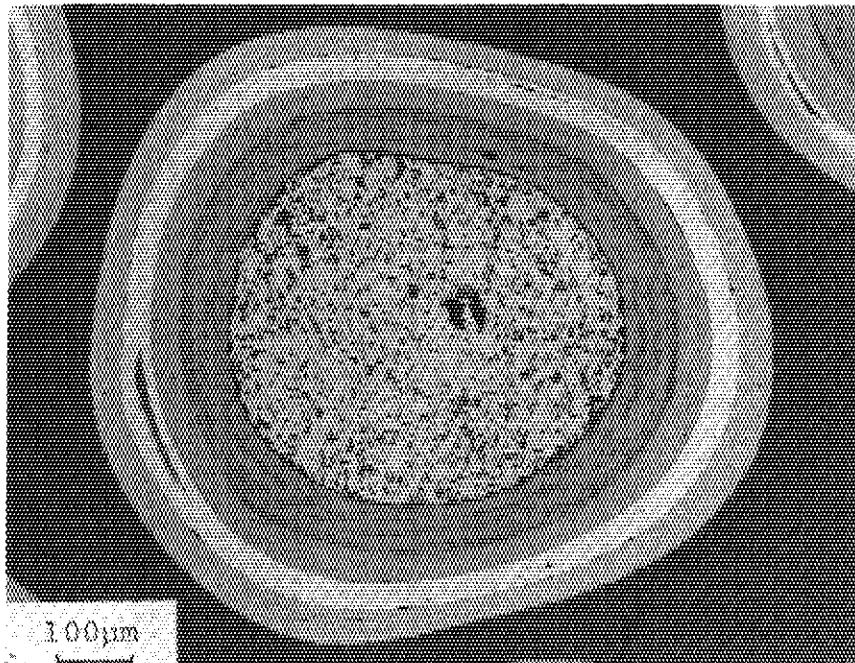


(a)

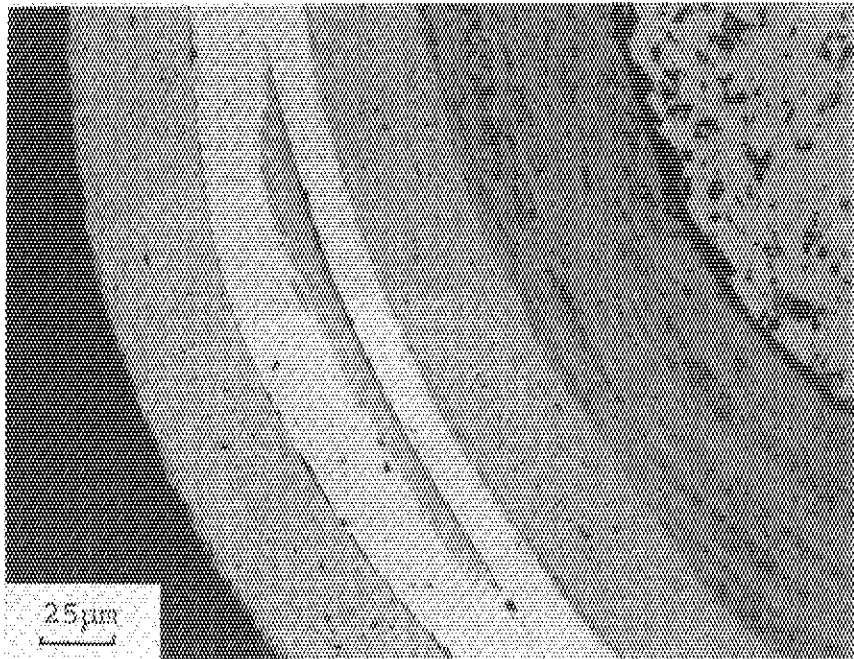


(b)

Photo. 6 X-ray micro-radiographs of the particles with flawed SiC layers. (sample G-281)

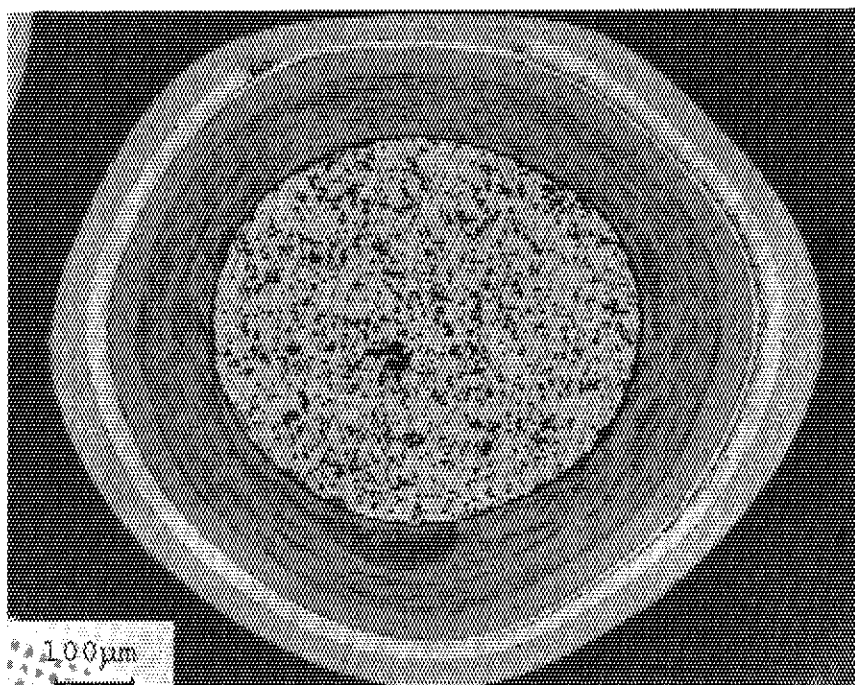


(a)

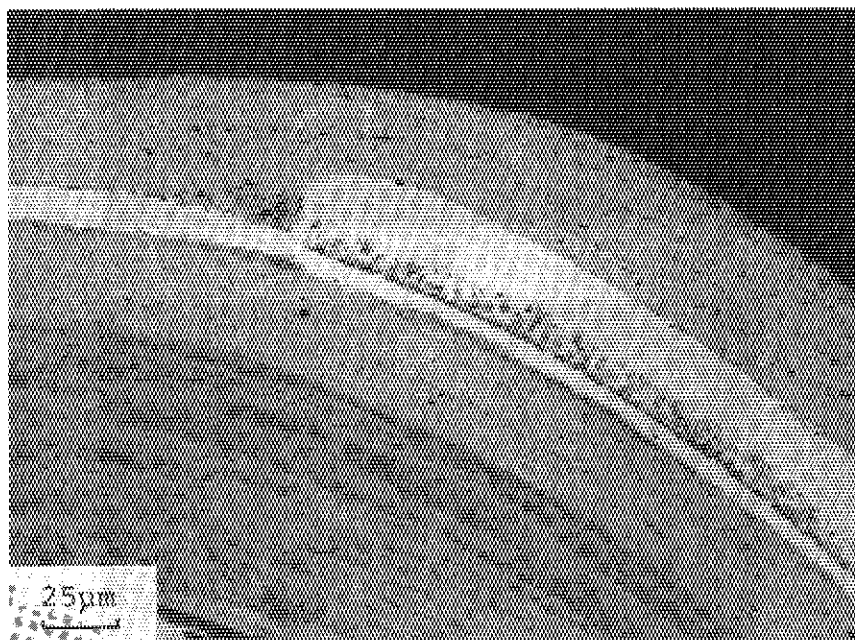


(b)

Photo. 7 Ceramographs of the particles with flawed SiC layers. (sample G-281)

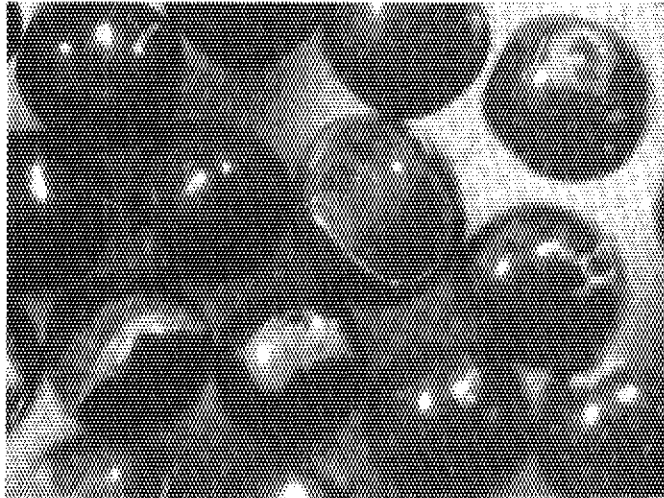


(c)

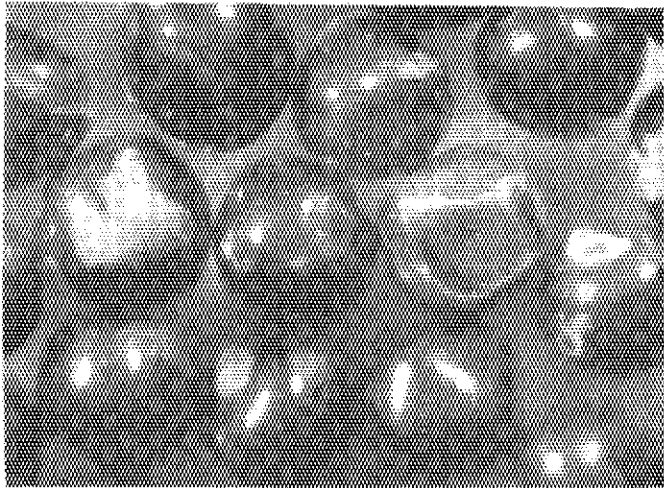


(d)

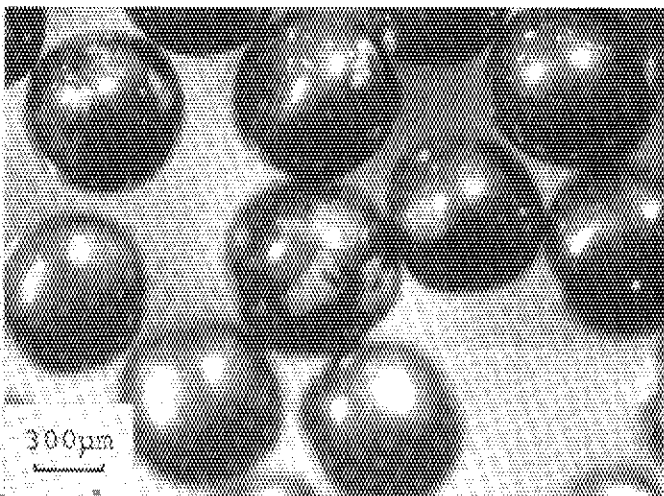
Photo. 7 (continued)



(a)

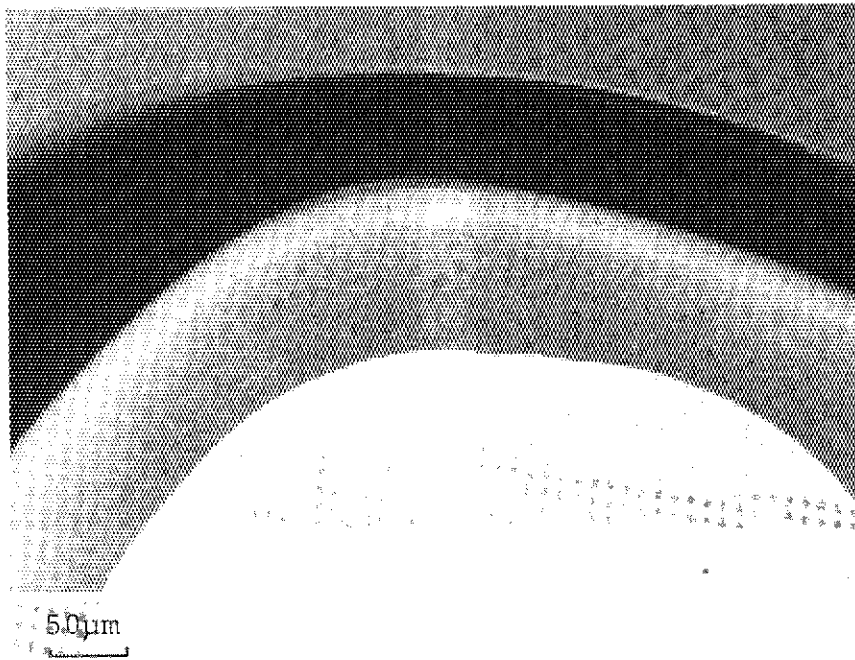


(b)

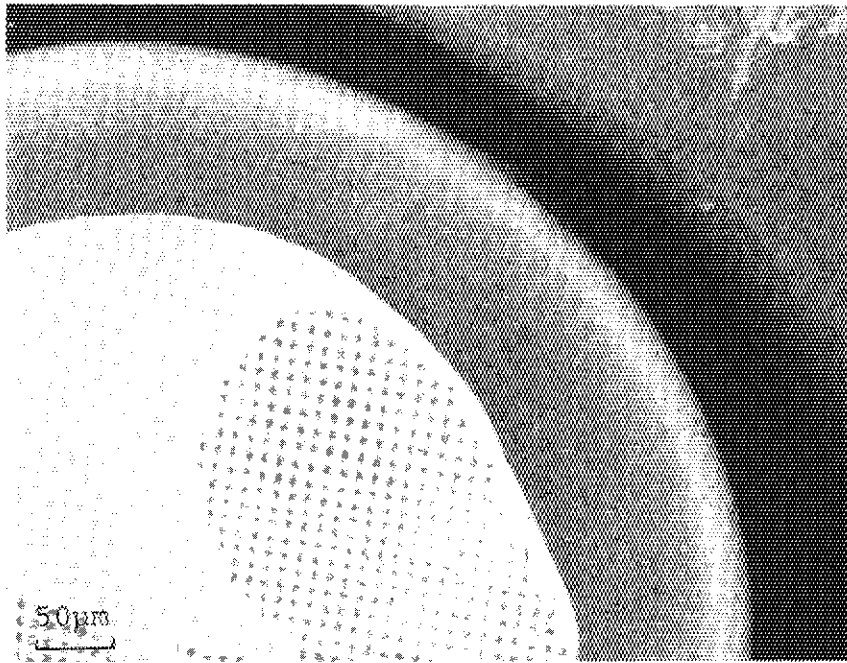


(c)

Photo. 8 Photographs of outer surface of flawed SiC layers. (sample G-281)



(a)



(b)

Photo. 9 X-ray micro-radiographs of the particles with flawed SiC layers. (sample G-300)

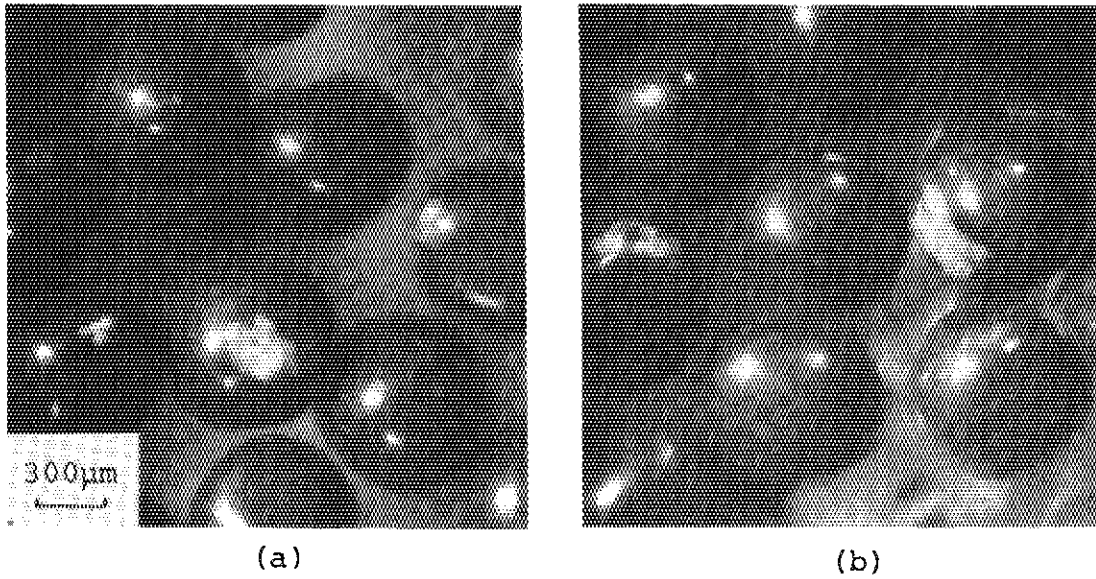


Photo. 10 Photographs of outer surface of flawed SiC layers. (sample G-300)

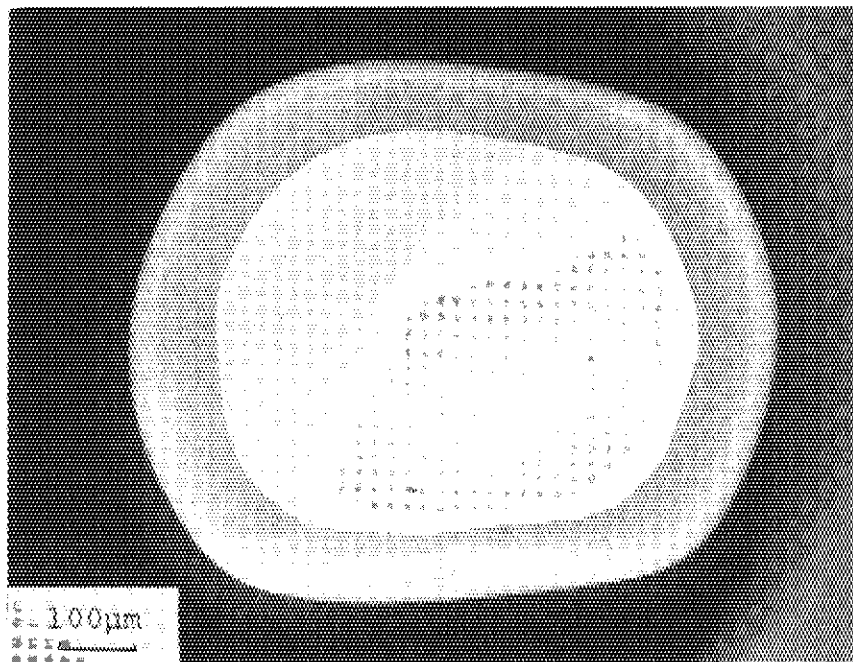


Photo. 11 X-ray micro-radiograph of the odd-shaped particle. (sample G-300)

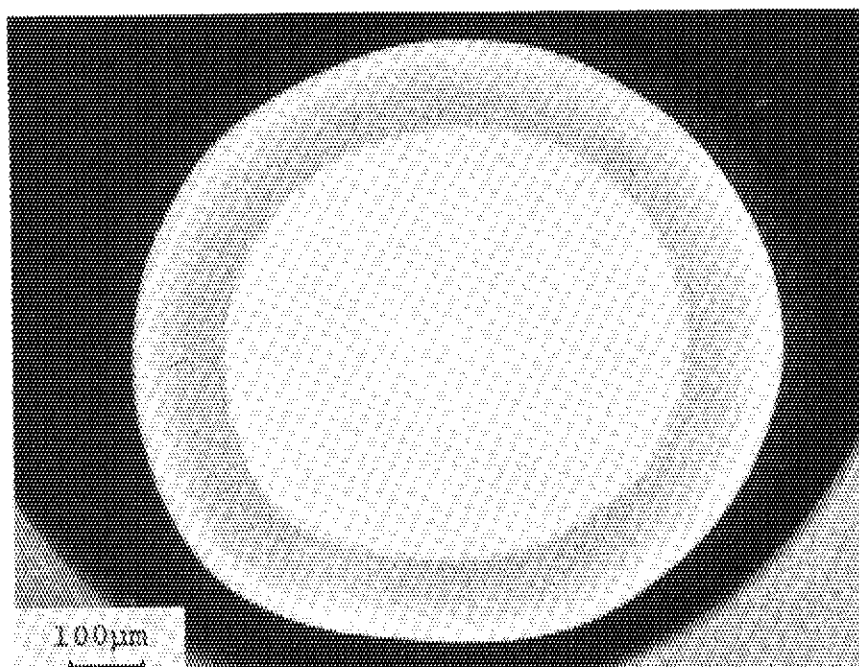


Photo. 12 X-ray micro-radiograph of the particle with carbonized kernel. (sample G-449)

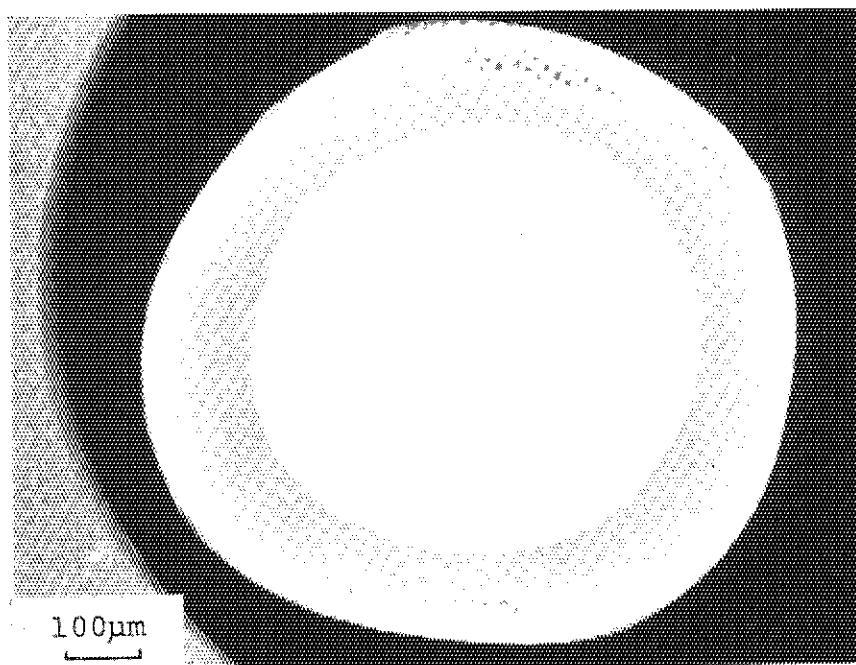


Photo. 13 X-ray micro-radiograph of the particle with flawed SiC layer. (sample G-449)