

JAERI - M

89-162

高温工学試験研究炉用燃料の健全性の  
評価と許容設計限界

1989年10月

林 君夫・沢 和弘・塩沢 周策・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 Division  
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura,  
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 いばらき印刷株

## 高温工学試験研究炉用燃料の健全性の評価と許容設計限界

日本原子力研究所大洗研究所高温工学試験研究炉開発部  
林 君夫・沢 和弘・塩沢 周策・福田 幸朔<sup>+</sup>

(1989年9月29日受理)

本報告は、高温工学試験研究炉(HTTR)の安全設計の一環としての燃料の健全性評価の結果について述べたものである。HTTR燃料の特性を明らかにするため、被覆燃料粒子の各被覆層の機能について調査検討した。燃料核移動(アーマーバ効果)、パラジウムによる炭化ケイ素(SiC)層の腐食による燃料破損についての解析により、HTTR通常運転条件下での燃料の健全性が確保されることを示した。燃料の健全性は、照射健全性試験の良好な結果によって実証されている。被覆燃料粒子の破損挙動を考慮して、燃料許容設計限界として、異常な過渡変化時に燃料温度が1600°Cを超えないことと定めた。燃棒許容設計限界をこのように定めることの妥当性は被覆燃料粒子の異常高温加熱試験の結果により確かめられている。

Assessment of Fuel Integrity of the High Temperature Engineering  
Test Reactor (HTTR) and its Permissible Design Limit

Kimio HAYASHI, Kazuhiro SAWA, Shusaku SHIOZAWA and Kousaku FUKUDA<sup>+</sup>

Department of HTTR Project  
Oarai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received September 29, 1989)

This report describes the results of integrity assessment of the HTTR fuel as a part of safety design of the reactor. Functions of individual coating layer of the coated fuel particles were investigated to clarify the characteristic properties of the HTTR fuel. Integrity of the fuel under normal operating conditions of HTTR was shown to be maintained through analyses on fuel failure and due to kernel migration (amoeba effect) and corrosion of the silicon carbide layer by palladium. The fuel integrity has been demonstrated by successful results of the irradiation performance tests. By considering the failure behavior of coated fuel particles, the permissible design limit of the fuel was determined such that the fuel temperature should not exceed 1600°C under abnormal transient conditions. The validity of the determination of the limit has been confirmed by results of heating experiments of coated fuel particles at extremely high temperatures.

Keywords: Safety, Fuel, HTTR, Design, Integrity, Palladium, Corrosion, Kernel Migration, Coated Fuel Particle, Failure, Abnormal Transient, Accident

---

+ Department of Fuels and Materials Research, Tokai Research Establishment

## 目 次

1. 序 論 .....	1
1.1 はじめに .....	1
1.2 設計方針 .....	2
1.2.1 用語の定義 .....	2
1.2.2 関連設計方針 .....	2
2. 被覆燃料粒子の各被覆層の機能 .....	4
2.1 被覆燃料粒子の種類 .....	4
2.2 各被覆層の主な機能 .....	4
3. 通常運転時の燃料の健全性 .....	13
3.1 燃棒の健全性評価の考え方 .....	13
3.2 通常運転時の燃料の健全性に関する研究 .....	14
3.2.1 燃料核移動（アーマーバ効果） .....	14
3.2.2 Pd による SiC 層の腐食 .....	15
3.2.3 燃焼に伴う内圧の上昇 .....	18
3.2.4 製造時の被覆層の欠陥 .....	18
3.2.5 照射健全性試験 .....	18
3.3 HTTR 通常運転条件下での燃料の健全性の評価 .....	20
3.3.1 燃料核移動距離の評価 .....	20
3.3.2 Pd による SiC 層の腐食距離の評価 .....	22
3.3.3 内圧破損の評価 .....	24
3.3.4 製造時の被覆層の欠陥による破損の評価 .....	24
3.3.5 照射健全性の評価 .....	25
3.4 まとめ .....	25
4. 燃料の許容設計限界 .....	49
4.1 基本的考え方 .....	49
4.2 異常高温時の燃料粒子被覆層の健全性に関する研究 .....	49
4.3 異常な過渡変化時の燃料粒子被覆層の破損の判断基準 .....	52
4.4 燃料許容設計限界以外の制限 .....	53
4.5 まとめ .....	53
5. まとめ .....	66
謝 辞 .....	67
参考文献 .....	68
付録 1 被覆燃料粒子の被覆層の機能に関する補足 .....	71
付録 2 通常運転時の燃料の健全性に関する補足 .....	75

## Contents

1. Introduction .....	1
1.1 Introduction .....	1
1.2 Design criteria .....	2
1.2.1 Definition of terms .....	2
1.2.2 Related design criteria .....	2
2. Functions of individual coating layer of coated fuel particle ..	4
2.1 Classification of coated fuel particle .....	4
2.2 Main functions of individual coating layer .....	4
3. Fuel integrity under normal operating conditions .....	13
3.1 Philosophy of fuel integrity assessment .....	13
3.2 Research on fuel integrity under normal operating conditions .....	14
3.2.1 Kernel migration (amoeba effect) .....	14
3.2.2 Corrosion of SiC layer by palladium .....	15
3.2.3 Increase of internal pressure with burnup .....	18
3.2.4 Defects of coating layers during production .....	18
3.2.5 Irradiation performance tests .....	18
3.3 Assessment on fuel integrity under normal operating conditions .....	20
3.3.1 Assessment of kernel migration distance .....	20
3.3.2 Assessment of distance of SiC-layer corrosion by palladium .....	22
3.3.3 Assessment of pressure vessel failure .....	24
3.3.4 Assessment of failure due to defects of coating layers developed during production .....	24
3.3.5 Assessment of irradiation performance .....	25
3.4 Summary .....	25
4. Permissible design limit of fuel .....	49
4.1 Basic philosophy .....	49
4.2 Research on integrity of coating layers of coated fuel particles at extremely high temperatures .....	49
4.3 Criteria for coating failure of fuel particles under abnormal transient conditions .....	52
4.4 Limitations other than permissible design limit .....	53
4.5 Summary .....	53
5. Summary .....	66

Acknowledgements .....	67
References .....	68
Appendix 1 Supplements on functions of coating layers of coated fuel particle .....	71
Appendix 2 Supplements on fuel integrity under normal operating conditions .....	75

## 1. 序 論

### 1.1 はじめに

本報告書は、原研が現在建設準備を進めている試験研究用の高温ガス炉である高温工学試験研究炉 (High Temperature Engineering Test Reactor, 以下 HTTR) の安全設計の一環として、標準的な炉心燃料である A型燃料体の被覆燃料粒子及び燃料コンパクトの通常運転時の健全性の評価並びに許容設計限界の検討の結果について述べたものである。

なお、燃料の安全設計のうち、燃料の設計方針、製作性及び燃料体全体の総合的安全評価については、前報<sup>(1)</sup>に述べた。

#### (1) 燃料の研究開発の経緯と本報告書の位置づけ

原研における高温ガス炉用被覆粒子燃料の研究開発は、20年前の1969年（昭和44年）に始められた<sup>(2)</sup>。それ以来、燃料の製造、検査、特性、照射挙動、核分裂生成物挙動等について様々な試験研究が行われてきた。これらの試験研究の結果、燃料の製作性、品質管理、通常運転時の照射健全性、異常時安全性等に関するデータが蓄積されており、HTTRの炉心燃料としての健全性及び安全性を保証するものとなっている。

また、現在はHTTR装荷用燃料の製造に向け、燃料メーカーの量産体制も整備されつつあり、量産製造燃料の品質の向上がはかられている。

本報告書は、上に述べた研究開発から得られた様々な知見及びデータを、HTTR条件下での健全性及び安全性評価の観点から整理したものである。本報告書の内容はHTTRの設置許可申請書<sup>(3)</sup>（以下、HTTR申請書または単に申請書という）に反映されている。

#### (2) 本報告書の構成

まず本章1.2節では、本報告書に記述するA型燃料体の健全性に関連する用語の定義及び設計方針について概説する。

次に、第2章では高温ガス炉燃料の最小基本単位である被覆燃料粒子の被覆層（以下「燃料粒子被覆層」ともいう）の機能について述べる。燃料粒子被覆層は熱分解炭素及び熱分解炭化ケイ素（以下 SiC）なるセラミック材料から成っており、これが、高温ガス炉燃料が軽水炉等の金属被覆管型燃料と通常運転時及び異常時の挙動、核分裂生成物放出挙動等の点で大きな違いを示す原因となっている。そこで、被覆層の機能及び特性について調査検討し、燃料の通常時及び異常時の挙動を明らかにする基礎とした。

第3章では通常運転時の健全性に関する研究方法及び結果、並びに健全性の評価方法及び結果について述べる。更に第4章では、異常高温における燃料破損挙動を調べる試験の結果に基づき、燃料許容設計限界を定め方とその妥当性の検討結果について示す。言うまでもなく、原子炉用燃料の健全性及び安全性を評価する上で、照射健全性及び異常時挙動試験データは中心的な位置を占めるものである。そこで、これらの試験研究の方法、条件、結果及び結果についての解釈やモデル化について詳細にレビューすると共に、健全性の評価や結果についても詳細に記述する。

最後の第5章において、1.2節に示す設計方針と第3章及び第4章に述べる評価の結果との対応についてまとめた。

上述のとおり、本報告書の内容は被覆燃料粒子及び燃料コンパクトの健全性に関連するものであり、黒鉛ブロックの健全性を含めた総合的健全性評価については、前報<sup>(1)</sup>の第6章にまとめている。

なお、第2章の被覆層の機能に関する補足を付録1に、第3章の通常運転時の健全性に関する補足を付録2にまとめて示す。

## 1.2 設計方針<sup>(3)</sup>

本報告書に記述するA型燃料体の通常運転時の健全性及び許容設計限界に関する設計方針の概要を以下に示す。

### 1.2.1 用語の定義

本報告に用いる幾つかの用語の定義を以下に与える。

- (1) 「燃料の許容設計限界」とは、原子炉の設計と関連して、燃料の損傷が安全上許容される程度であり、かつ、継続して原子炉の運転をすることができる限界をいう。
- (2) 「通常運転」とは、計画的に行われる起動、停止、出力運転、燃料取替等の原子炉施設の運転であって、その運転状態が所定の制限内にあるものをいう。
- (3) 「異常状態」とは、通常運転を逸脱させるような、何らかの外乱が原子炉施設に加えられた状態であって、運転時の異常な過渡変化及び事故をいう。
- (4) 「運転時の異常な過渡変化」とは、原子炉施設の寿命期間中に予想される単一の機器の故障若しくは誤動作又は運転員の単一誤操作及びこれらと類似の頻度で発生すると予想される外乱によって生ずる異常な状態をいう。
- (5) 「事故」とは、「運転時の異常な過渡変化」を超える異常な状態であって、発生する頻度は稀であるが、原子炉施設の安全設計の観点から想定されるものをいう。

### 1.2.2 関連設計方針

燃料（燃料体）の設計方針のうちで、本報告に記述する内容と直接関連するものを以下に示す。燃料要素（燃料棒）は核分裂生成物の生成及び放出、熱膨張、照射クリープ等を考慮し、健全性が確保されるように設計する。このため、燃料要素は通常運転時及び運転時の異常な過渡変化時において、次の方針を満足するように設計する。

- a. 通常運転時の被覆燃料粒子からの核分裂生成物の放出を少なくするため、運転中に発生する燃料粒子被覆層の破損は十分許容しうる小さな値に制限する。
- b. 運転時の異常な過渡変化時において、燃料粒子被覆層の有意な破損及びPdによるSiC層腐食や燃料核の移動による燃料粒子被覆層の著しい劣化を生じさせないため、燃料最高温度は1,600°Cを超えないこととする。

c. 燃料コンパクトは、熱的効果（主として熱応力）及び照射効果（被覆燃料粒子と黒鉛素地との照射変形の差による相互作用）に対して割れ、欠け等が生じないようにする。

これらの設計方針に対応する解析方法及び評価結果は第3章及び第4章に記述し、その結果は第5章にまとめる。

## 2. 被覆燃料粒子の各被覆層の機能

HTTR の燃料には被覆燃料粒子が用いられる。この燃料の特徴は、燃料からの核分裂生成物の放出を防ぐ機能を、軽水炉等のように金属製被覆管に持たせているのとは異なり、主に燃料粒子被覆層に持たせていることである。そこで、HTTR 燃料の基本的特性を明らかにするため、高温ガス炉燃料に関する諸外国での被覆燃料粒子の開発の経緯について文献調査を行うと共に、主に核分裂生成物の閉じ込めの観点から各被覆層ごとの機能について検討した。その結果を以下に示す。

HTTR に使用する被覆燃料粒子は、Fig. 2.1 に示すとおり、燃料核を熱分解炭素等で四重に被覆したものである。燃料粒子被覆層は、内側から順に低密度熱分解炭素（第 1 層）、高密度熱分解炭素（第 2 層）、炭化けい素（SiC）（第 3 層）、高密度熱分解炭素（第 4 層）を材料とし、燃料核で発生する核分裂生成物の放出を防止する。

要約すれば、以下に示すように、HTTR に使用する被覆燃料粒子の被覆形式及び材料は、外国の炉による高温ガス炉燃料開発の経験をふまえて選定されたものであり、HTTR 用燃料の研究開発の過程でその機能が確かめられていると言える。

### 2.1 被覆燃料粒子の種類<sup>(4)～(6)</sup>

現在までに開発された主な被覆燃料粒子の被覆形式と使用原子炉を Table 2.1 に示す。初期には高密度熱分解炭素による単一被覆層の被覆燃料粒子が製造され、Peach Bottom 炉の初装荷燃料として用いられた。しかし、後述するように、第 1 層として高密度熱分解炭素被覆を用いることにより、スピアヘッドアタック（被覆の亀裂）による破損が生じたため<sup>(7)(8)</sup>、これ以後、第 1 層にはこの破損を防止する目的で低密度熱分解炭素が用いられている。

現在までに実用化されている被覆燃料粒子は、熱分解炭素二重被覆燃料粒子（BISO型）及び四重被覆燃料粒子（TRISO型）である。BISO 型被覆燃料粒子では、高温、長期間照射の場合、セシウムなど金属核分裂生成物の放出が十分抑制できないため、現在は TRISO 型四重被覆燃料粒子の使用が主流となっている。また、米国のモジュール型高温ガス炉（MHTGR）など新しく建設予定の原子炉では、いずれも HTTR と同じく四重被覆燃料粒子が使用される計画となっている。

### 2.2 各被覆層の主な機能

#### (1) 低密度熱分解炭素層（第 1 層）

低密度熱分解炭素層は、燃料核表面から核分裂により飛出した核分裂片を受止め、外側の高密度熱分解炭素層（第 2 層）が、核分裂片により損傷するのを防ぐ機能を有する。

被覆燃料粒子開発の初期には、高密度熱分解炭素のみによる一重被覆燃料粒子が用いられたが、Fig. 2.2 に示すような反跳核分裂片による高密度熱分解炭素の収縮のため、被覆の亀裂（スピア

ヘッドアタック) が生じた<sup>(7)(8)</sup>。低密度熱分解炭素は、これによる被覆燃料粒子の破損を防ぐために導入されたものである。低密度熱分解炭素は、高密度熱分解炭素に比べてより多孔質であり強度が弱いため、反跳核分裂片照射による収縮に起因する亀裂が高密度熱分解炭素層(第2層)に伝播しにくく、従って被覆層の破損が起こりにくくなる。

また、低密度熱分解炭素層は、ウランの核分裂に伴って燃料核から放出される気体状の核分裂生成物及び一酸化炭素ガスを蓄えるための空間を提供する。一酸化炭素ガスは、燃料核の  $\text{UO}_2$  中においてウランが核分裂することによって生じた酸素のうち燃料核の中に保持されずに燃料核から放出されたものと、熱分解炭素との反応によって生じるものである。

更に、低密度熱分解炭素層は、燃焼度の増加に伴う燃料核のスウェーリングを吸収する機能を有する。燃料核のスウェーリングは、固体状核分裂生成物及び気体状核分裂生成物が燃料核中に保持されることによって生じるものである。低密度熱分解炭素は、燃料核のスウェーリングを吸収し、高密度熱分解炭素(第2層)及びその外側の被覆層に燃料核のスウェーリングによる内圧が作用するのを緩和する役割を持っている。

### (2) 高密度熱分解炭素層(第2層)

高密度熱分解炭素(第2層)は、気体状の核分裂生成物を保持する能力を有する。高密度熱分解炭素中の Kr の拡散係数を Fig. 2.3 に示す<sup>(2)</sup>。気体状核分裂生成物の多くは半減期が短く、またこの図に示すように、高密度熱分解炭素中の拡散係数が小さいので、燃料核の保持能力と相まって、第2層が健全である限り気体状核分裂生成物の放出は実際上の問題とならない程わずかな量となる。

また、高密度熱分解炭素層(第2層)は、第3層及び第4層とともに気体状核分裂生成物及び一酸化炭素ガスによる内圧に耐える機能を有している。

更に、この第2層は、燃料製造工程の1つである SiC 被覆層の蒸着の際に、原料のメチルトリクロルシラン( $\text{CH}_3\text{SiCl}_3$ )と水素の反応によって生じる塩化水素(HCl)が燃料核と反応するの防止するとともに、燃料核のウランと SiC の反応や燃料核の炭化反応を防ぐことによって、健全な SiC 被覆層の蒸着を可能にする機能を有している。

### (3) SiC 層(第3層)

SiC 層は、気体状及び金属状の核分裂生成物に対して優れた保持能力を有する。SiC 中の Xe の拡散係数を Fig. 2.4 に示す<sup>(2)</sup>。気体状核分裂生成物の多くは半減期が短く、またこの図に示すように、SiC 中の拡散係数は小さいので、第3層は第2層と同様に気体状核分裂生成物の保持能力を有する。同一の照射条件で照射した TRISO 型四重被覆燃料粒子(HTTR 用 A型燃料体の被覆燃料粒子と同じ仕様)と、低密度熱分解炭素層及び高密度熱分解炭素層のみからなる二重(BISO)被覆燃料粒子からの金属状の核分裂生成物である Cs の放出割合の比較をしたもの

Fig. 2.5 に示す<sup>(9)</sup>。また、SiC 層及び高密度熱分解炭素層中の Cs の拡散係数を比較したものを Fig. 2.6 に示す<sup>(6)</sup>。明らかに SiC 層のほうが高い Cs 保持能を有している。これは SiC 層による金属核分裂生成物の保持効果が大きいことを示す一例である。

高速中性子照射量の増加に伴う、SiC の寸法変化を Fig. 2.7<sup>(4)</sup> に示す。この図から分かるように、SiC 層は照射中の寸法変化が小さく、被覆燃料粒子の寸法安定性を保持する機能を果たしている。

また、SiC層は、高密度熱分解炭素層（第4層）の照射収縮による締付効果とあいまって、被覆燃料粒子の機械的強度を保つ機能を有している。

#### (4) 高密度熱分解炭素層（第4層）

最外層の高密度熱分解炭素層は、照射中に収縮することにより、外部からSiC層を締付け、SiC層が内部ガス圧により引張り状態になることを防ぎ、これにより被覆燃料粒子が破損することを防止する機能を有している。

照射に伴う高密度熱分解炭素単体の寸法変化をFig. 2.8に示す<sup>(4)</sup>。被覆燃料粒子においては、SiCの寸法変化が小さいため、SiC層の拘束をうけて高密度熱分解炭素は大きな寸法変化をせず、逆にSiC層に周方向の圧縮応力を及ぼすことになる。

更に、この第4層は、SiC層（第3層）の破損した被覆燃料粒子において、気体状の核分裂生成物を保持する機能を有している。また、第4層は、SiC層が比較的脆いので、これらを外から保護することにより、燃料製造中の取扱いによるSiC層の破損を防ぐ機能を有している。

以上述べた各被覆層の主な機能をまとめてTable 2.2に示す。

Table 2.1 Classification of coating types of coated fuel particles.

被覆形式	被 覆 層 の 材 質				使 用 原 子 炉
	第1層	第2層	第3層	第4層	
— 重 Duplex	高密度熱分解炭素	な し	な し	な し	Peach Bottom(初装荷)
	高密度熱分解炭素	な し	な し	な し	AVR(初装荷)
BISO	低密度熱分解炭素	高密度熱分解炭素	な し	な し	AVR(2次装荷), THTR
	低密度熱分解炭素	炭化けい素	高密度熱分解炭素	な し	Dragon
TRISO (TRISO-I)	低密度熱分解炭素	高密度熱分解炭素	炭化けい素	高密度熱分解炭素	Fort St. Vrain, AVR, HTTR, MHTGR
	低密度熱分解炭素	高密度熱分解炭素	炭化けい素	高密度熱分解炭素	

Table 2.2 Main functions of individual coating layer of coated fuel particle<sup>(4)</sup>.

被 覆 層		主 な 機 能
第 1 層	低密度熱分解炭素	(1) 核分裂片損傷による破損の防止 (2) 気体状核分裂生成物及びCOガスのガス溜め (3) 燃料核スウェーリングの吸収
第 2 層	高密度熱分解炭素	(1) 気体状核分裂生成物の閉じ込め (2) 被覆燃料粒子の機械的保護 (3) 燃料核、核分裂生成物とSiC層との反応防止 (SiC層蒸着中の燃料核保護)*
第 3 層	炭化けい素(SiC)	(1) 被覆燃料粒子の寸法安定性保持及び構造的強度保持 (2) 気体状、金属状核分裂生成物の閉じ込め
第 4 層	高密度熱分解炭素	(1) SiC層の機械的保護 (2) SiC層の破損した被覆燃料粒子の気体状核分裂生成物の閉じ込め (3) 取扱い時のSiC層保護

\* 文献(4)に一部加筆した。

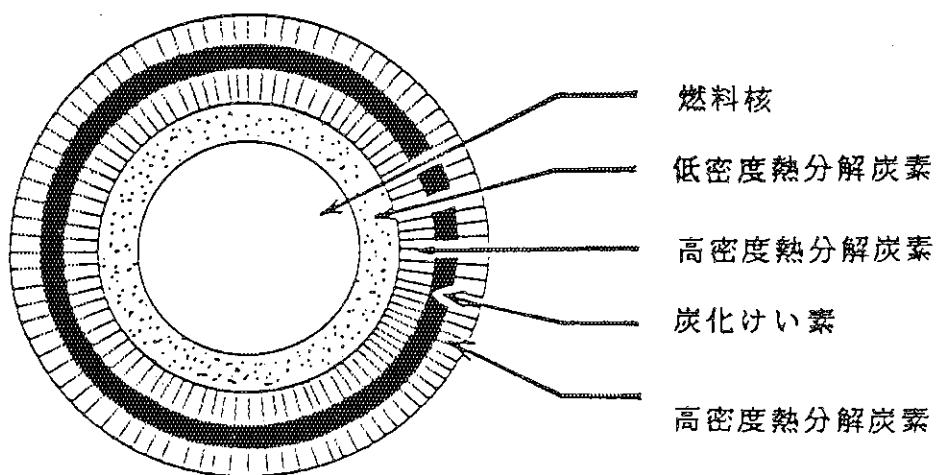


Fig. 2.1 Components of coated fuel particle.

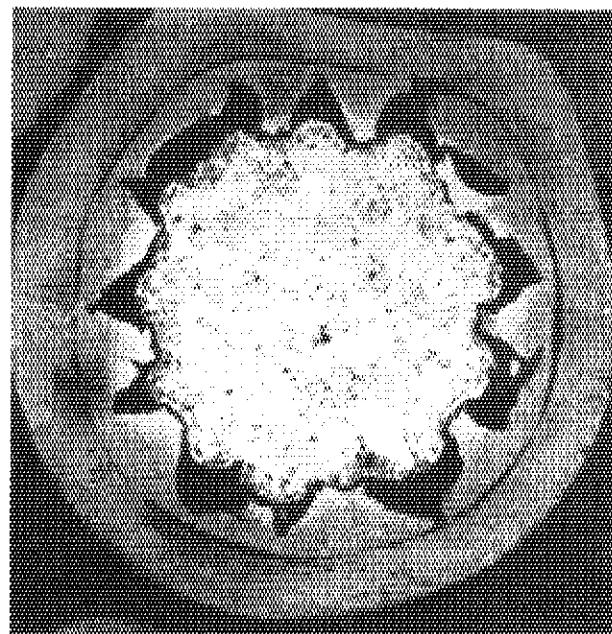


Fig. 2.2 Spear-head attack observed in fuel particle  
of  $\text{UC}_2$  kernel coated by high-density  
pyrocarbon<sup>(7)(8)</sup>.

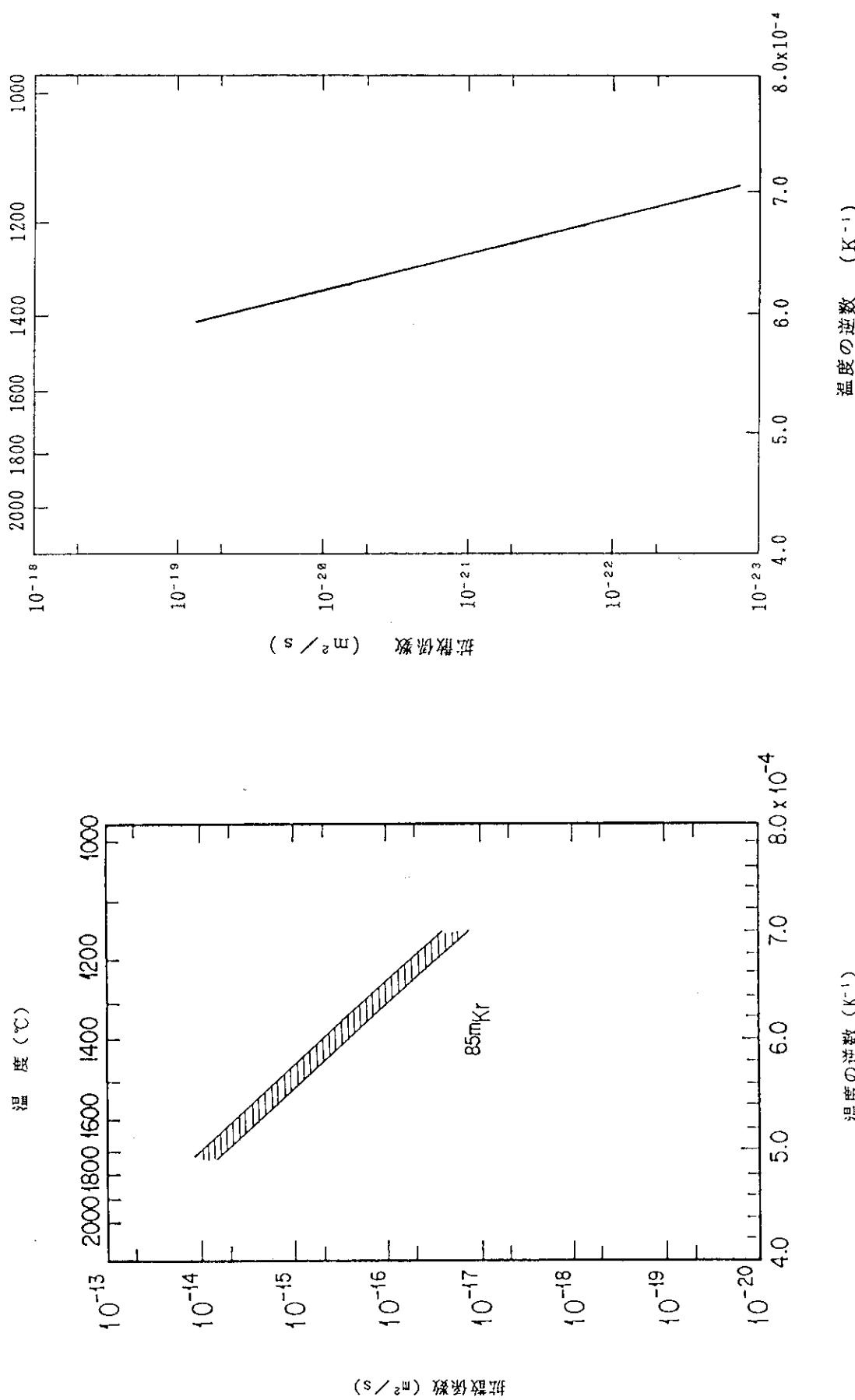


Fig. 2.3 Diffusion coefficient of Kr in high-density pyrocarbon of coated fuel particle(2).

Fig. 2.4 Diffusion coefficient of Xe in SiC layer of coated fuel particle(2).

温度の逆数 (K<sup>-1</sup>)

温度の逆数 (K<sup>-1</sup>)

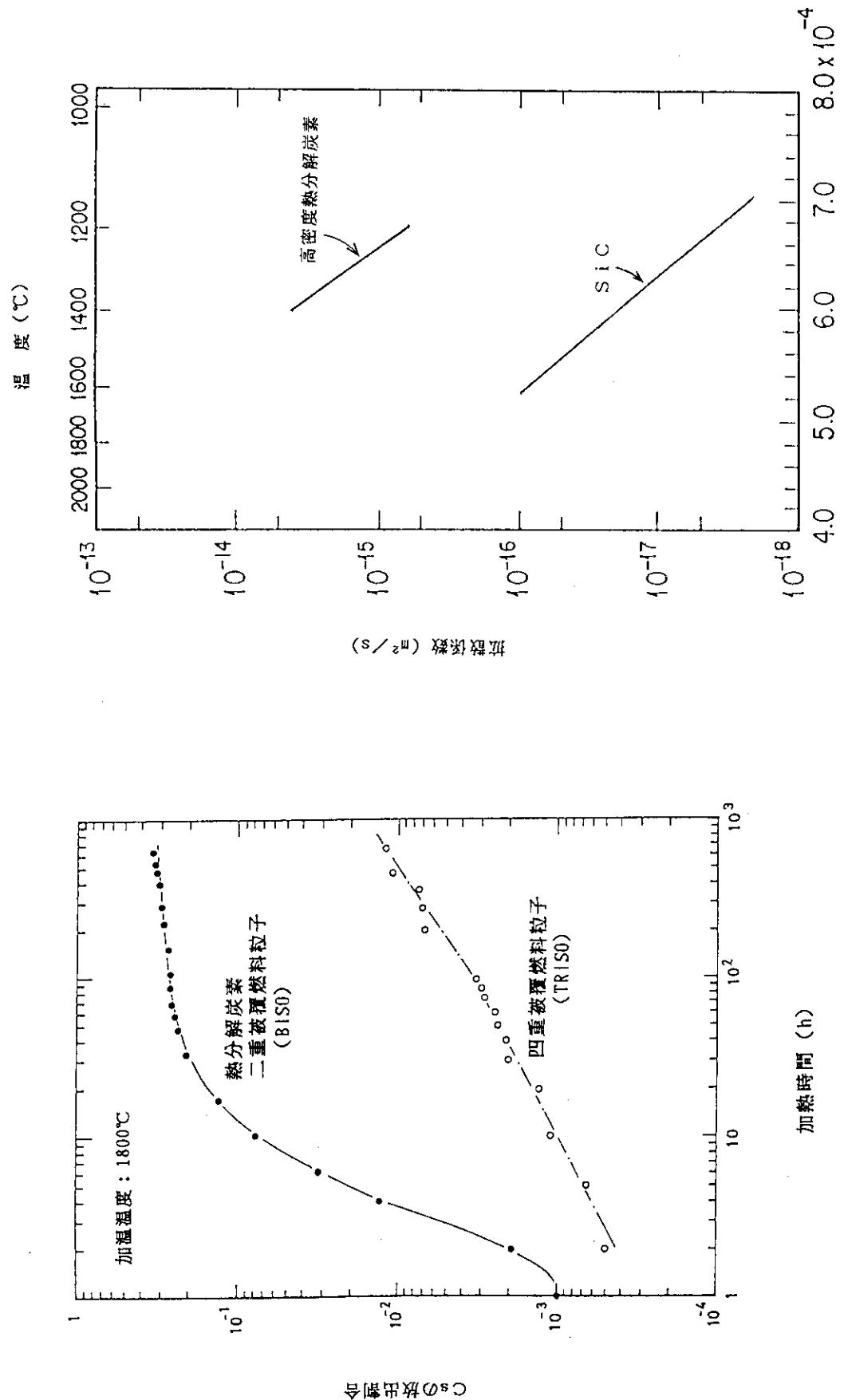


Fig. 2.5 Comparison of Cs retention by TRISO- and BISO-coated fuel particles(9).

温度の逆数 ( $K^{-1}$ )

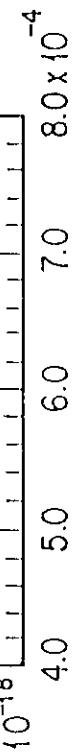


Fig. 2.6 Diffusion coefficients of Cs in SiC and high-density pyrocarbon(2).

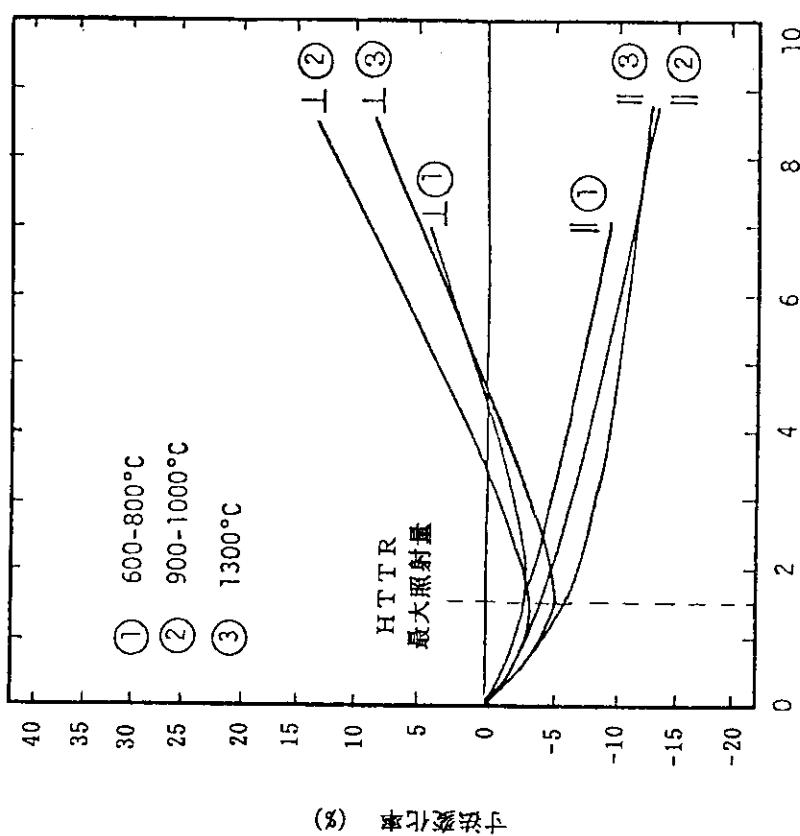
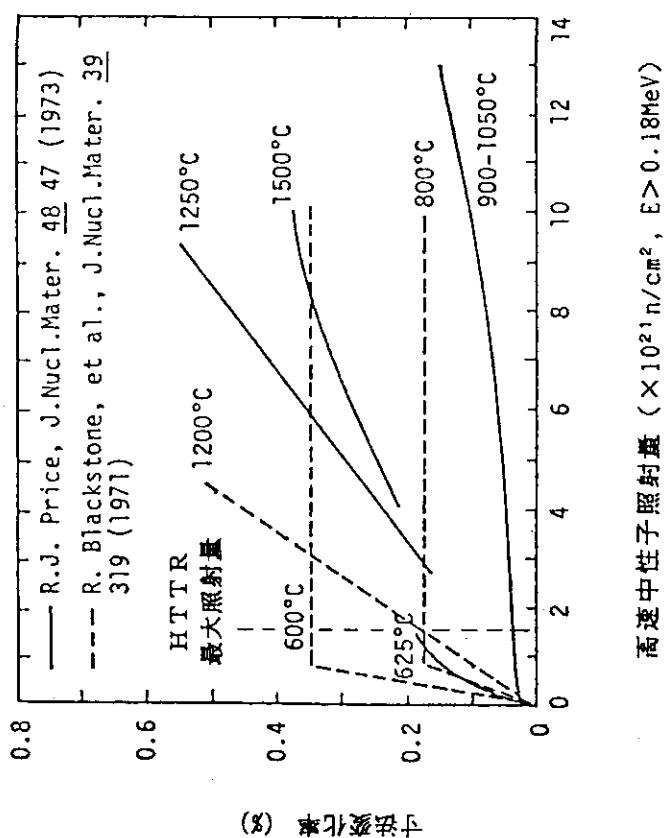


Fig. 2.8 Dimensional change of high-density pyrocarbon induced by fast-neutron irradiation under no restriction(4).



### 3. 通常運転時の燃料の健全性

#### 3.1 燃料の健全性評価の考え方

一般に原子炉燃料の健全性の評価においては、評価の対象とする燃料と同一の仕様を持つ燃料について同一の型式の原子炉による運転実績、またはキャップセル等による照射健全性実証データが十分豊富にあり、かつ当該燃料の使用条件がそれらの実証データ内にあれば、当該燃料の使用条件下での健全性は保たれると判断できる。また、燃料の挙動について、十分確立した理論又は経験則があれば、それらを適用することによって健全性を評価することができる。

しかし、HTTR用燃料のように開発中の原子炉の燃料は、たとえ海外炉等における照射試験を行ったとしても、全く同一の型式の原子炉による照射経験が少ないのでむしろ当然である。そこで、この場合燃料の健全性の評価にあたっては、健全性評価の点で重要な項目を選定して、それらの点から評価を行うと共に、総合的な結果としての照射健全性データを用いて、その試験範囲（温度、燃焼度等）と実炉条件の範囲との対応を明らかにした上で、実炉条件下での燃料健全性の評価を行うことになる。

HTTRで使用する燃料は、原子炉内における使用期間を通じ、起こり得る種々の劣化等を考慮してもその健全性を失うことがないよう設計することを基本的設計方針としている。

HTTRの燃料要素は、被覆燃料粒子を含んだ燃料コンパクト、黒鉛スリーブ等から構成されており、核分裂生成物は主として燃料粒子被覆層によって閉じ込められることから、燃料粒子被覆層の核分裂生成物の閉じ込め性を確保することが重要である。

このような観点から、HTTR用燃料の健全性評価においては、燃料粒子被覆層の破損原因として、

- ① 燃料核移動（アメーバ効果）
- ② PdによるSiC層の腐食
- ③ 燃焼に伴う内圧の上昇
- ④ 製造時の欠陥

を取り上げ、3.2節で試験研究の方法、結果、モデル化等についてレビューし、3.3節でこれらの点について健全性評価を行う。

次に、燃料の照射健全性試験の結果をレビューし（3.2.5項）、HTTR使用条件下における燃料の健全性について評価する。照射健全性試験は、上に示したもの以外の破損原因も含めて、燃料の健全性を調べるためにものである。

以下に示すように、これらの健全性評価にあたっては、燃料照射研究室によって取得されたデータ<sup>(2)</sup>を評価用データとして用いる。なお、燃料核の移動距離、PdによるSiC層の腐食距離等を算出するためのHTTRにおける温度計算方法及び燃料最高温度については、付録2の〔A〕にまとめる。

### 3.2 通常運転時の燃料の健全性に関する研究

本節では、3.1節に示した考え方へ従って、HTTRのA型燃料体の燃料（被覆燃料粒子及び燃料コンパクト）と本質的に同一な燃料の試験研究の方法及び結果、並びに試験研究において提案されたモデル等について記述する。

#### 3.2.1 燃料核移動（アーベル効果）

本現象は、照射下で温度勾配の方向に沿って燃料核が燃料粒子被覆層の中に食い込んで行くものである。

##### (1) 燃料核移動の機構及び理論式

酸化物燃料の燃料核移動の機構としては、次のように考えられている。すなわち、燃焼に伴って過剰となつた酸素が炭素被覆層と反応して一酸化炭素が生じるが、熱力学的な平衡から、この反応の進行は高温側と低温側で異なるため、反応によって生じた一酸化炭素が高温側から低温側に輸送されて低温側で酸素と析出炭素に解離する結果、燃料核が低温側から高温側へ移動するものである<sup>(10)</sup> とされている<sup>(11)</sup>（付録2の[B]参照）。

##### (2) 燃料核移動に関する実験<sup>(2, 12)</sup>

燃料核移動に関する照射試験は、鹿志村<sup>(2, 12)</sup>らによりFig. 3.1に一例を示すキャップセルにディスク状試料を装荷し、JRR-2で照射することによって行われた。これは、ディスク状試料の中心にヒーターとして高濃縮度の被覆燃料粒子を装荷し、ディスク径方向に大きな温度勾配をかけた状態で照射を行うものである。照射条件をTable 3.1<sup>(2)</sup>に示す。

燃料核の移動距離は、X線ラジオグラフィによって、被覆燃料粒子内における照射前後の燃料核の位置（SiC層に対する相対位置）から求められた。また、各被覆燃料粒子の温度及び温度勾配は、Fig. 3.1に示した熱電対の測定結果から算出された。

試験により得られたデータは、燃料核の移動距離を照射時間で除した燃料核移動速度（kernel migration rate：KMRまたは $dy/dt$ ）が、被覆燃料粒子の温度勾配 $dT/dr$ （K/m）及び温度T（K）と

$$KMR = (KMC) \frac{1}{T^2} \frac{dT}{dr} \quad (3-1)$$

$$KMC = a_0 \exp(-Q/RT) \quad (3-2)$$

なる関係を有する<sup>(10, 13)</sup>と仮定することにより、整理された。

ここで、

KMC：燃料核移動速度係数（K・m<sup>2</sup>/s）

$a_0$ ：定数（K・m<sup>2</sup>/s）

R：気体定数（8.314 J/mol・K）

Q：定数（J/mol）

である。

このようにして求めたKMCのデータを燃料核の濃縮度が4 wt %のものをFig. 3.2(a)に、8 wt %のものをFig. 3.2(b)<sup>(2)</sup>に示す。本図に示したデータ点は、ディスク内の代表的な被覆燃料

粒子からのデータをプロットしたものである。Table 3.1 に示したように、顕著な燃料核移動が見られたのは、VOF-1H 及び VOF-14H キャプセル照射試料である。Fig. 3.2 (a) 及び 3.2 (b) に、それらから得られた KMR のデータを示す。

なお、これらの図中には、KMR の実測値 (Table 3.1 に示したように、温度勾配は VOF-1H については  $164\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 、VOF-14H については  $150\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$  である) との比較の意味で、3.3.1 項に述べる設計式において温度勾配を  $150\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$  とした時の設計曲線を示している。また、この図中には、仮に燃料温度  $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$  で 660 日運転すると仮定した時の燃料核移動距離は、この HTTR 設計式によって評価すれば  $56\text{ }\mu\text{m}$  となることを示している。設計式の設定の方法及び HTTR 条件下での燃料核の最大移動距離の評価については、3.3.1 項で述べる。

### 3.2.2 Pd による SiC 層の腐食

この現象は、核分裂生成物である Pd が燃料核から放出されて SiC 層に達し、SiC 層と反応して、主として Pd のけい化物と炭素を生成することによって SiC 層が腐食されるものである。被覆燃料粒子の SiC 層が完全に腐食されると、特に金属状核分裂生成物の保持能力が低下する。

以下に示すように、Pd による SiC 層の腐食挙動の観察は、湊ら<sup>(2, 14, 15)</sup> によって行われ、腐食挙動のモデル化<sup>(2, 14)</sup> が行われた。

#### (1) Pd 腐食に関する実験

実験は主に JMTR 密封キャップセルで照射した燃料コンパクトについて行われた。JMTR 密封キャップセルの 1 例を Fig. 3.3<sup>(2)</sup> に示す。また、観察の行われた試料の照射条件を Table 3.2<sup>(2)</sup> に示す。SiC 層の腐食が Pd によるものであることを確認は、X 線マイクロアナライザにより行われた。Pd 腐食反応部の断面組織の例は文献(14)に示されている。Pd による SiC 層の腐食は周方向に均一ではなく、局所的(ノジュール状)である。Pd による SiC 層の腐食距離の測定は、光学顕微鏡及び X 線マイクロアナライザを用いて行われた。照射済燃料コンパクトの断面における、各被覆燃料粒子ごとの最大腐食距離の実測値は観察面で頻度分布を持つ<sup>(16)</sup>。

各断面での SiC 腐食距離(分布を有する)と下の(2)に示す Pd 放出量の関係をまとめたものを Fig. 3.4<sup>(2)</sup> に示す。ただし、この図中の 1 点は必ずしも観察された腐食距離に対応するものではなく、 $2 \sim 3\text{ }\mu\text{m}$  以下の腐食距離に典型的に見られる多数の観察データは Fig. 3.4 中では重なり合うとしてプロットしたものである<sup>(16)</sup>。

#### (2) Pd 腐食のモデル<sup>(2, 14)</sup>

上に示した実測データから、被覆燃料粒子の照射中の Pd による SiC 層の腐食モデルが提案された。このモデルの基本的仮定は以下のとおりである。

- ① 炉外実験の結果<sup>(17, 18)</sup> から、Pd と SiC 層の反応深さは、Pd 供給量のみに支配されるとする。
- ② Pd による SiC 層腐食プロセス全体における律速過程は、燃料核からの Pd の放出であるとし、燃料核からの放出は反跳と拡散放出によって記述されるものとする。
- ③ 高密度熱分解炭素中の Pd の拡散は、燃料核中の拡散に比べて十分に速い<sup>(18)</sup> ので、燃料核から放出された Pd は瞬時に SiC 層内面に到達するものとする。

以上の仮定のもとで、Fig. 3.4 の横軸の Pd 放出量は以下のように計算される。

燃料核から Pd は拡散及び反跳によって放出されると仮定し、反跳放出割合は下の（3-4）式によって与えられるとする。拡散に関しては、燃料核中で Pd が一様に生成し、Booth モデル<sup>(19)</sup>に従って“等価球”内の拡散によって等価球の表面から放出されると仮定する<sup>(2,20)</sup>。この時、燃料核全体を等価球とみなし、Pd が燃料核の表面から放出されるとすると、燃料核からの Pd の放出量は、球座標系における次の 1 次元拡散方程式（3-7）を解くことによって得られる<sup>(21)</sup>。

$$X = \frac{B}{4\pi \cdot r_s^2} \{ Fr + (1 - Fr) Fd \} \quad (3-3)$$

$$Fr = \frac{3}{4} \left( \frac{R}{a} \right) - \frac{1}{16} \left( \frac{R}{a} \right)^3 \quad (3-4)$$

$$Fd = \frac{4\pi a^2}{B} \int_0^T J(a, t) dt \quad (3-5)$$

$$J(r, t) = -D_{eff} \frac{\partial C}{\partial r} \quad (3-6)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = b + D_{eff} \left( \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial C}{\partial r} \right) \quad (3-7)$$

ここで、

X : SiC 層の内表面積あたりの Pd 放出量 (atoms/m<sup>2</sup>)

B : Pd の生成量 (atoms)

r<sub>s</sub> : 燃料核の中心から SiC 層内面までの距離 (m)

Fr : Pd 生成量に対する反跳による放出割合 (—)

Fd : Pd 生成量に対する拡散による放出割合 (—)

R : 燃料核中の Pd の反跳距離 (m)

a : 燃料核半径 (m)

J : 拡散による Pd 流束 (atoms/m<sup>2</sup>·s)

D<sub>eff</sub> : 燃料核中の Pd の（実効）拡散係数（温度の関数） (m<sup>2</sup>/s)

C : 燃料核中の Pd の濃度 (atoms/m<sup>3</sup>)

b : Pd の生成速度 (atoms/m<sup>3</sup>·s)

T : 照射期間（評価期間） (s)

である。

ただし、Pd による SiC 層の腐食において実際上問題になるのは Pd の安定核種に限られるため、（3-7）式において Pd の崩壊は無視している。また、実効拡散係数 D<sub>eff</sub> は、燃料核中の位置や時間には依存しない定数（温度の関数）であると仮定している。D<sub>eff</sub> については後で説明する。

拡散方程式（3-7）の Booth モデルによる放出量の解は、換元拡散係数 D' (s<sup>-1</sup>) を用いて、Pd の生成速度の燃焼度依存性を考慮し、燃焼度ステップごとに放出量を計算することにより得られる<sup>(2,20)</sup>。

$$Fd = 1 - \left\{ \sum_{i=1}^{K-1} [ b_i (1 - Fr) (\tau_i g_i - \tau_{i+1} g_{i+1}) / D'_i ] + b_K \Delta t_k g_k \right\} / \sum_{i=1}^K b_i \Delta t_i \quad (3-8)$$

ここで、

$$\begin{aligned}
 F_d &: 拡散放出割合 \\
 b_i &: i - ステップにおける Pd 生成速度 (atoms/s) \\
 \Delta t_i &: i - ステップにおける時間 (s) \\
 D'_i &: i - ステップにおける換元拡散係数,  $D' = D/a_1^2$  (s<sup>-1</sup>) \quad (3-9)
 \end{aligned}$$

$$\tau_i = \sum_{j=1}^K D'_j \Delta t_j \quad (3-10)$$

$$g_i = g(\tau_i) = 1 - 4\sqrt{\tau_i/\pi} + 3\tau_i/2, \quad \tau \leq 0.1 \quad (3-11a)$$

$$g_i = g(\tau_i) = \frac{1}{15\tau_i} - \frac{6}{\tau_i} \sum_{n=1}^3 \frac{\exp(-n^2\pi^2\tau_i)}{n^4\pi^4}, \quad \tau > 0.1 \quad (3-11b)$$

である。 (3-9) 式における  $a_1$  は Booth モデルにおける等価球半径 (m) であり、  $D$  は等価球内における Pd の (真の) 拡散係数である。  $D'$ ,  $D$  及び  $D_{eff}$  の間には、

$$D' = \frac{D}{a_1^2} = \frac{D_{eff}}{a^2} \quad (3-12)$$

の関係がある。上述のように実効拡散係数  $D_{eff}$  は、燃料核自体が等価球に一致するとみなした場合の燃料核 (等価球) 内での拡散係数に相当する。

以上のように、換元拡散係数  $D'$  を用いることにより、燃料核からの Pd の放出量は燃料核の半径には依存しない値となる。なお、(3-11a) 式及び (3-11b) 式は、拡散方程式 (3-7) 式の十分良い近似解である。

(3-7) 式中の時刻  $t$  における Pd 生成速度  $b$  は、核種ごとに考えると、

$$b = \frac{f(t) Y(t)}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3-13)$$

で与えられる<sup>(16)</sup>。ここで、

$$\begin{aligned}
 \lambda &: Pd (核種) の崩壊定数 (s<sup>-1</sup>) \\
 f(t) &: 燃料粒子の核分裂速度 (s<sup>-1</sup>) \\
 Y(t) &: Pd (核種) の核分裂収率 (s<sup>-1</sup>) \\
 Y(t) &= [1 - f_{Pu}] \cdot Y_U + f_{Pu} \cdot Y_{Pu} \quad (3-14) \\
 f_{Pu} &: 燃料粒子の Pu 核分裂割合 \\
 Y_U &: Pd のウラン核分裂による核分裂収率 \\
 Y_{Pu} &: Pd のプルトニウム核分裂による核分裂収率
 \end{aligned}$$

である。すなわち、Pd の核分裂収率  $Y(t)$  は、燃焼度の関数 (または時間の関数) として与えられる。

ただし、<sup>106</sup>Pd については、その親核種の<sup>106</sup>Ru の半減期が長い (367 日)<sup>(22)</sup> ため、<sup>106</sup>Ru からの崩壊による生成を考慮したが、それ以外の Pd 核種については核分裂により直ちに生成するものとして、(3-13) 式により生成量を計算する<sup>(16)</sup>。

次に、(3-3) 式に示すように、Pd の放出量を SiC 層の内表面積で除した値を  $X$  (atoms/m<sup>2</sup>) とする。この SiC 層内表面積あたりの Pd 放出量と SiC 層腐食距離の関係については、データ

タが不充分であり、どのような関数形になるか明らかではないが、Fig. 3.4 から、最大腐食距離の観測値は、Pd 放出量計算値に依存していることがわかる<sup>(2)</sup>。Fig. 3.4 中に破線で示したものは、最大腐食距離の観察値を Y(m)として、

$$Y = a_1 X^{1/3} \quad (3-15)$$

と表わされると仮定した時の曲線である<sup>(16)</sup>。これは、放出された Pd が SiC 層を立体的（3 次元的）に腐食するものとして提案された<sup>(16)</sup>。ただし、 $a_1$  は Fig. 3.4 のように最大腐食距離の観察データを包絡するように定めた定数であり、

$$a_1 = 1.15 \times 10^{-12}$$

と与えられる。

なお、Pd 放出量を SiC 層内表面積当たりとしたのは、被覆燃料粒子の寸法が異なる場合にも同様に放出量と腐食距離の関係を求めることができるようとするためである。

### 3.2.3 燃焼に伴う内圧の上昇

被覆燃料粒子内では、ウランの核分裂に伴って燃料核から気体状の核分裂生成物が放出されると共に、一酸化炭素(CO)ガスが生成し、燃焼度と共に内圧は徐々に上昇する。COガスは、燃料核の UO<sub>2</sub> 中においてウランが核分裂することによって生じた酸素のうち、燃料核から放出されたものと、低密度熱分解炭素との反応によって生じるものである。これらの気体は、低密度熱分解炭素層（第 1 層）の気孔中に蓄積される。

被覆燃料粒子中の気体状核分裂生成物及び CO ガスの圧力は、国内<sup>(23), (24)</sup> 及び海外<sup>(25)</sup> で測定された。菊池ら<sup>(23)</sup> による国内における測定方法を Fig. 3.5<sup>(24)</sup> に示す。照射済みの被覆燃料粒子を流動パラフィンで充填した装置内に装荷し、垂直ハンドルで 10 kg/cm<sup>2</sup> 程度まで加圧した状態でまず水平ハンドルで被覆層に亀裂を生じさせる。この状態から垂直ハンドルを操作してパラフィンの圧力を徐々に下げるとき、この圧力と被覆燃料粒子の内圧とが釣り合ったとき、被覆燃料粒子内の気体が気泡となってパラフィン液中に発生するのが観察される。この時の圧力を測定し、被覆燃料粒子の内圧としている。

測定に用いた被覆燃料粒子の照射条件及び得られた内圧測定結果を Table 3.3<sup>(24)</sup> に示す。内圧の値はいずれも 4 kg/cm<sup>2</sup> 以下と低い値であった。

### 3.2.4 製造時の被覆層の欠陥

被覆燃料粒子の製造時の欠陥を調べた例としては、湊ら<sup>(26)</sup> の研究がある。この研究では、X 線ラジオグラフィ、断面組織観察、SiC 層外表面観察及び被覆燃料粒子破壊荷重測定が行われた。断面組織観察によって得られた SiC 層に欠陥が入っている例を Fig. 3.6<sup>(26)</sup> に示す。このような欠陥を持った SiC 層は、局所的に強度が小さいので、SiC 層を蒸着した後、第 4 層を被覆するまでの間の取扱い時などに SiC 層破損粒子になりやすいと考えられている<sup>(26)</sup>。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考えられている<sup>(26)</sup>。

### 3.2.5 照射健全性試験

HTTR に使用する国産燃料の通常運転時の照射試験健全性の実証は、JMTR 等における照射

試験により行われた<sup>(2)</sup>。照射試験は、OGL-1 照射試験並びに密封及びスイープガスキャップセル照射試験に大別できる。

#### (1) OGL-1 照射試験

OGL-1 (Oarai Gas Loop - 1) は、Fig. 3.7<sup>(2)</sup> に示すように、JMTTR 内に設置した、HTTR 条件を模擬した高温高圧の炉内ガスループである。本実験においては、Fig. 3.8<sup>(2)</sup> に示すような、HTTR とほぼ同一仕様の燃料棒を模擬燃料ブロックに挿入して、約 30 気圧の冷却材 He を流しながら照射し、照射中の気体状核分裂生成物の放出率を測定することができる。

OGL-1 照射試験期間中の気体状核分裂生成物 (<sup>88</sup>Kr) の放出率 (R/B) を Fig. 3.9 に示す。R/B は、生成速度 (birth rate) に対する放出速度 (release rate) の比である。Fig. 3.9 は小林ら<sup>(2,27)</sup> によって得られた R/B の実測データを、第 1 次～第 10 次 OGL-1 燃料体についてまとめて示したものである。本図にみられるように、照射試験期間中の <sup>88</sup>Kr の放出率はほぼ一定であり、照射に起因する有意な破損の増加がなかったことが分かる。<sup>88</sup>Kr の放出率が照射試験ごとに異なるのは、気体状核分裂生成物の放出の原因となる燃料の製造時破損率が異なるのが主な原因である<sup>(28)</sup>。また、照射開始直後に <sup>88</sup>Kr の放出率が減少する原因としては、燃料核の焼結が照射と共に進行することなどが考えられている<sup>(28)</sup>。

照射試験後の燃料は、種々の項目からなる照射後試験によって、燃料の健全性、破損挙動等が調べられる。OGL-1 燃料体の照射後試験の項目の一例を Fig. 3.10 に示す。

#### (2) スイープガスキャップセル照射試験

スイープガスキャップセルは、Fig. 3.11<sup>(2)</sup> に示すように、被覆燃料粒子、又は 2 個ないし 3 個の燃料コンパクトを黒鉛容器に入れ、約 3 kg/cm<sup>2</sup> G の He ガスを流すことによって、OGL-1 照射と同様に照射中の気体状核分裂生成物の放出率を測定することができる。

スイープガスキャップセル照射中の気体状核分裂生成物の放出率の測定例を Fig. 3.12 に示す。燃料コンパクトの温度は独立に制御される。放出率は低いレベルにあり、また、照射に伴って有意に増加していないことが分かる。

#### (3) 密封キャップセル照射試験

密封キャップセルは、Fig. 3.3 に一例を示したように、燃料コンパクトを金属製の密封容器に納めて照射するものである。密封キャップセル照射は、高温、高燃焼度での燃料挙動を調べるために活用されており、燃料の健全性の評価は、照射後試験によって行われる。

#### (4) 照射健全性試験の範囲及び結果

以上の照射試験における照射条件及び照射前後の燃料破損率を、Table 3.4 及び Table 3.5 に示す。更に、照射温度と燃焼度をパラメータとして照射試験の範囲を Fig. 3.13 に示す。また、照射温度と高速中性子照射量をパラメータとしたものを、Fig. 3.14 に示す。これらは、燃料照射研究室による上記の照射健全性試験<sup>(2)</sup> の範囲をまとめたものである。なお、燃料破損率（被覆燃料粒子の貫通破損率）は、主に燃料照射研究室による実測データを林ら<sup>(2)</sup> がまとめたものである。

Table 3.4 及び Table 3.5 に示したように、照射後の被覆燃料粒子破損率は  $3.7 \times 10^{-3}$  以下であり、多くは  $10^{-5} \sim 10^{-4}$  の範囲にある。また、これらの表において最大の燃焼度である 82 F-1 A キャップセル照射燃料についても、破損率は  $6.6 \times 10^{-4}$  であり、ここに示した範囲で燃焼

度の増加に伴う破損率の有意な上昇傾向は見られていない。

なお、林、飛田、湊らによって示されたように、OGL-1 及び密封キャップセルによって照射した燃料コンパクト及び黒鉛スリーブに有意な割れ、欠けの発生はなく、構造健全性が維持されていた<sup>(2)</sup>。

### 3.3 HTTR 通常運転条件下での燃料の健全性の評価

前節では、HTTR の A 型燃料体の被覆燃料粒子と本質的に同一な被覆燃料粒子について、3.1 節に示した各破損原因ごとの試験研究の方法及び結果、並びに試験研究において提案されたモデル等について記述すると共に、照射健全性試験の方法及び結果について述べた。

本節では、前節に述べた試験研究結果に基づき、HTTR 通常運転条件下における燃料の健全性について評価を行う。

#### 3.3.1 燃料核移動距離の評価

##### (1) 燃料核移動に対する設計評価式

前節の Fig. 3.2(a) 及び Fig. 3.2(b) に示した濃縮度 4 wt % 及び 8 wt % の被覆燃料粒子についての KMR から得られた KMC データ<sup>(2)</sup> を合わせてプロットしたものを Fig. 3.15 に示す。

この図に示した設計式は、図に示した KMC データに対して保守性を有するように定めたものであり、

$$KMR = 2 \times 10^{-6} \exp(-1.48 \times 10^4 / T) \frac{1}{T^2} \frac{dT}{dr} \quad (3-16)$$

と表わされる。

この式は、3.2.1 に示した実測データに対して、片側 95 % の信頼度 (2 σ レベル) 以上の保守性を有している。ただし、1250 °C 以下の温度における KMC データは測定誤差が大きいため、(3-16) 式を設定する際には使用していない。

HTTR の設計評価においては、(3-16) 式によって求めた燃料核の移動距離が、第 3 層 (SiC 層) の内面までの厚さに達した時点で、すなわち燃料核の移動距離が第 1 層と第 2 層の厚さの和である 90 μm に達した時点で、被覆層の破損が生じるものとする。

これは、SiC 層と燃料核が接触しなければ、第 3 層及び第 4 層は破損にいたることではなく、第 3 層及び第 4 層で核分裂生成物を保持できると考えられるが、SiC 層と燃料核が接触した場合、SiC 層が燃料核と反応して SiC 層が破損する可能性があり、SiC 層破損が生じると核分裂生成物に対する保持能力が低下するうえ、内圧等が原因で更に第 4 層も破損して貫通破損が生じる可能性があるためである。

ただし、後に示すように、HTTR の設計では被覆層厚さの製作公差等を考慮して、燃料核の最大移動距離が 55 μm を越さないように高温試験運転期間の制限を設けている。

##### (2) 燃料核移動距離の評価と高温試験運転への制限

前報<sup>(1)</sup> の第 5 章にも示したように、高温試験運転を考慮して、HTTR 運転中の燃料核の移動距離の評価を行った。高温試験運転は冷却材出口温度を 950 °C として行う運転であり、この場

合、(3-16)式により求めた燃料核移動距離が最大となる燃料温度（系統的な性質を有する工学的安全係数を考慮した温度、システムティック温度）は約1410°Cである<sup>(30)(31)</sup>。一方、定格運転は冷却材出口温度850°Cで行うものであり、同上の燃料温度は約1270°Cである<sup>(30)(31)</sup>。

上の(3-16)式を用いて評価を行うと、燃焼日数と燃料核の最大移動距離の関係はFig. 3.16のようになる。この図には、

- A : 高温試験運転のみをA型燃料体だけからなる炉心（基準炉心）で行う場合
- B : 試験燃料体（B型燃料体）<sup>(3)</sup> または照射物を装荷して冷却材出口温度850°Cで運転を行う場合（照射炉心）
- C : 基準炉心で高温試験運転を行わない場合

についての燃料核の最大移動距離を示している。種々の組合せ運転を行う場合には、各々の運転パターンでの燃焼日数における最大移動距離を加算すれば良い。

ここで、高温試験運転時に燃料核の移動距離が大きくなるのは、上述のとおり燃料最高温度が高くなるためである。また、照射炉心(Fig. 3.16中の直線B)の方が、高温試験運転を行わない基準炉心(Fig. 3.16中の直線C)より燃料核の移動距離が大きくなるのは、照射炉心のほうが燃料最高温度が高いためである。

Fig. 3.16に示した結果は、保守的な温度評価（システムティック評価）における燃料温度を用いて評価し、高温試験運転を660日続けたとしても、第1層と第2層の和である90 μmには達しないことを意味している。実際のHTTR通常運転時の燃料温度は、上に述べた保守的な温度評価値より低いため、燃料核移動距離は上の評価値より小さく、また炉心内の燃料温度分布<sup>(30)</sup>を考慮すれば、燃料核移動による被覆層の破損は十分低い値に抑えることができると判断しうる。

しかし、運転に伴なう被覆燃料粒子の破損を極力抑えるため、燃料核の最大移動距離を約55 μm以下となるよう、高温試験運転の期間を制限することとした。これは、第3層までの燃料粒子被覆層厚さのノミナル値は約90 μmであるが、製作公差（現状での製作公差（標準偏差）は第1層厚さで±12 μm、第2層厚さで±2 μmである）、燃料受入れ時の判定基準などを考慮して、燃料粒子被覆層の破損率が十分小さくなるようにするためである。

以上のことより、燃料核移動の観点からは、高温試験運転期間はFig. 3.17に示すように以下のようになる。

高温試験運転のみを行う場合	約500日以下	
A : 基準炉心のみで運転を行う場合	約220日以下	合計燃焼日数 660日
B : 基準炉心及び照射炉心で運転を行う場合	約110日以下	合計燃焼日数 660日

この関係に加えて、黒鉛ブロックに発生する照射応力による高温試験運転期間の制限をFig. 3.17に示す（詳細は前報<sup>(1)</sup>の第5章参照）。Fig. 3.17のA点及びB点の場合の燃料核の最大移動距離と運転日数の関係をFig. 3.18に示す。

以上述べたように、高温試験運転期間を制限することによって、燃料核の最大移動距離を約55 μm以内に抑えることができる。従って燃料核移動による燃料粒子被覆層の破損率は、十分小さな値に抑えることができると評価できる。

### 3.3.2 PdによるSiC層の腐食距離の評価

#### (1) はじめに<sup>(2)</sup>

PdによるSiC層の腐食については、米国のORNL<sup>(32)</sup>及びGAT社<sup>(33)</sup>でも研究が進められてきたが、HTTR用燃料と同様の低濃縮UO<sub>2</sub>核被覆燃料粒子のデータは、原研以外からは殆んど報告されていない<sup>(2)</sup>。

核分裂生成物(FP)によるSiC層の腐食の速度式としては、いわゆるGAT式<sup>(33)</sup>が知られている。これらのデータの詳細は不明であるが、燃料核はUO<sub>2</sub>でなく、大部分がUC<sub>2</sub>であると推定される。UC<sub>2</sub>核被覆燃料粒子の場合には、PdとSiCとの反応のほかに希土類元素とSiC層の反応が生じるが、原研で進めているUO<sub>2</sub>燃料核の場合には、希土類-SiC反応は生じない<sup>(2)</sup>。

また、GAT式では、FP-SiC反応速度(反応深さ/時間)を温度のみの関数として扱っており、FPの生成速度の時間依存性を考慮していない。しかし、HTTR用の低濃縮ウラン燃料では、Pdの核分裂収率が<sup>239</sup>Puの場合は<sup>235</sup>Uの約10倍であるため、Pdの生成速度は時間と共に増加する。

#### (2) HTTR用燃料についてのPdによるSiC層腐食の評価の考え方

PdによるSiC層の腐食の理論的解釈は、現在のところ必ずしも確立していない。しかし、HTTR用燃料として用いる低濃縮UO<sub>2</sub>核被覆燃料粒子についてのPdによるSiC層の腐食については、原研における試験データが最も蓄積されている。また、それらのデータに基づいて、湊ら<sup>(2)(14)</sup>によって提案されたモデルは、PdによるSiC層の腐食距離の温度、燃焼度及び時間への依存性等の点で今までに得られた実測データ全体と矛盾がなく、最大腐食距離を評価するための妥当性を有すると判断できる。

従って、HTTR用燃料のPdによるSiC層の腐食距離を評価するための方法として、3.2.2項に述べた湊らのモデルによる方法を採用する。

SiC層のPdによる腐食は文献(14)に示されているとおり局所的であり、たとえ最大腐食距離がSiC層の厚さまで達したとしても、直ちに他の熱分解炭素層の核分裂生成物保持能力が低下するわけではなく、第4層で気体状核分裂生成物を保持できる。しかし、Pdによる腐食距離がSiC層の厚さまで達すると、被覆燃料粒子内の内圧等が原因となって第4層が破損に至る可能性があるため、安全側の仮定としてSiC層の腐食距離がSiC層の厚さに達した時点で、被覆層の破損が生じるものとする。

#### (3) SiC層の腐食距離の観察データと最大腐食距離の関係

上のことから、PdによるSiC層の腐食に起因する燃料粒子被覆層の破損を評価するにあたっては、SiC層の最大腐食距離の評価を行うことが重要である。

これまでの試験結果によれば、SiC層の腐食は低温側に多く観察されている<sup>(2)</sup>ことから、SiC層腐食は温度勾配に沿って低温側に多く進行するものと考えられる。照射試験においては、試験体の燃料コンパクトは、内面で温度が高く、外で低い半径方向の温度勾配を持っているため、最大腐食距離の生じる箇所は、被覆燃料粒子の中心軸を通る横断面上に多く出現すると考えられる。SiC層の腐食距離の測定においては、被覆燃料粒子の中心から大きくずれた断面の被覆燃料粒子は除外した燃料コンパクトの横断面を観察しているため、優先的に最大腐食距

離が生じる箇所を観察していることになる。

SiC層腐食は局所的に発生するため、観察している断面に必ずしも腐食距離の最大値が現れているとは限らない。しかし、データ点を多くすることにより、ほぼ最大の腐食距離が得られていると考えることができる。Fig. 3.19 に示したデータ点（白丸または白三角）は、Fig. 3.4 に示したデータ<sup>(2)</sup>のうち燃料コンパクト 1 断面当たり約 100 粒子を観察したデータについて最大腐食距離をプロットしたものである。

これまでに観察を行った被覆燃料粒子について、各被覆燃料粒子ごとの SiC 層の最大腐食距離は、Fig. 3.4 からも分かるように大部分は数  $\mu\text{m}$  以下であり、Fig. 3.4 に示した試料において最大腐食距離が  $10 \mu\text{m}$  程度となるのは、1 粒子のみで観察されたものである。また、燃料コンパクトの 1 断面における観察粒子数は多いもので約 100 粒子であり、観察粒子数を更に増加させても、最大腐食距離がこの実測値より著しく大きくなることは考え難い。

以上のことから、Fig. 3.19 で示した最大腐食距離の観察データ（包絡線）は、ほぼ最大腐食距離を表していると考えることができる。

#### (4) Pd 放出量と SiC 層の最大腐食距離の関係についての設計式

Fig. 3.19（オリジナルは Fig. 3.4<sup>(2)</sup>）にプロットした、実験データについて検討し、Pd 放出量と SiC 層最大腐食距離の関係についての設計式の定め方について検討する。

Fig. 3.19 に示した Pd による SiC 層の腐食の観察データを Fig. 3.20 のように両対数で整理し、最大腐食距離に近いものを対象にして直線を引くと、Pd 放出量と腐食距離の相関関係は、約  $1/3$  乗となっている。これは、現象的には、3.2.2 の(2)に述べたように放出された Pd が局所的に集中して<sup>(2)</sup>、SiC 層を立体的に（3 次元的に）腐食する<sup>(16)</sup> ものと解釈できる。すなわち、3.2.2 の(3-15) 式は、最大腐食距離を包絡する曲線として妥当性を有している。このことも考慮して、HTTR における Pd による SiC 層の最大腐食距離を評価する式として、(3-15) 式を採用する。なお、この評価式は、Fig. 3.20 に示したように、最大腐食距離に近い 4 点から定めた基準式に対して、約  $1.6 \sigma$  の相当分の保守性を持っていることになる。

#### (5) Pd による SiC 層の最大腐食距離の評価

上述のとおり、(3-15) 式を採用し、(3-3) ~ (3-14) 式と HTTR の温度及び出力を用いて、SiC 層の最大腐食距離を評価した。

高温試験運転を考慮した Pd による SiC 層の腐食距離が最大となるのは、Fig. 3.17 に示す B 点の場合（運転パターンは Fig. 3.17 の上図）であり、約  $11 \mu\text{m}$  程度である。この値は、制限値である SiC 層厚さ  $25 \mu\text{m}$  に比して小さい値である。

A 型燃料体の Pd の放出量は、工学的安全係数を考慮しない場合（ノミナル評価）、最大約  $3.8 \times 10^{20} \text{ atoms/m}^2$  となる。これに対応する SiC 層の最大腐食距離は、Fig. 3.19 より約  $9 \mu\text{m}$  である。

また、A 型燃料体において、実験データの Pd 放出量の最大値（約  $5.7 \times 10^{20} \text{ atoms/m}^2$ ）に対応する燃料最高温度は、約  $1,360^\circ\text{C}$  である<sup>(31)</sup>。燃料温度の計算に用いる系統的な性質を有する工学的安全係数の出現頻度を  $2 \sigma$  程度として統計的に扱うと、実験データで求めた最大の Pd 放出量である約  $5.7 \times 10^{20} \text{ atoms/m}^2$  を超える確率は、約  $10^{-5}$ （約  $4 \sigma$  相当）となる。更に、Pd による SiC 層腐食距離が大きくなる部分の全燃料に対する体積割合を考慮すれば、

SiC層腐食距離が許容値  $25 \mu\text{m}$  を超える確率は十分低い値である。

#### (6) まとめ

以上のように、HTTR条件下におけるPdによるSiC層腐食の評価において、最大腐食距離が許容値が  $25 \mu\text{m}$  を超える確率は十分低く、また、評価の条件となる温度、燃焼度に関して十分な保守性を持たせてあるので、総合的にみて、PdによるSiC層腐食に対する燃料体の健全性は確保できると判断することができる。

#### 3.3.3 内圧破損の評価

一般に、被覆層が内圧破損するおそれがあるのは、燃焼度の増加に伴って生成する一酸化炭素(CO)ガス及び核分裂生成物の蓄積により、被覆層に対する内圧が高くなつた場合である。(第1層(バッファー層)の内圧破損防止機能については2.2節の(1)参照)。

燃焼度と内圧破損の関係については西独で調べられている<sup>(34)</sup>。その結果によると、例えば、照射温度  $1550^\circ\text{C}$ では、約  $7 \sim 8\%$  fima (1% fima は約  $9,000 \text{ MWd/t}$ )で内圧による破損が認められるようになる。

ただし、これは評価の対象とした西独の被覆燃料粒子の仕様についての計算値と実測値の比較評価である。従って、破損の開始する燃焼度の値を、仕様の異なるHTTR燃料に直接適用することはできないが、定性的には高燃焼度になるにつれて除々に破損が生じ、燃焼度が十分高くなると破損率は著しく増加するはずである。

これは、与えられた照射条件に対して、内圧を支配する燃料核の大きさと第1層(バッファーレン)の厚さが、被覆燃料粒子ごとに製造時のバラツキを持つためである。すなわち、統計的な分布において燃料核が大きく、第1層の厚さが薄い被覆燃料粒子では内圧がより高くなる。これに加えて、内圧破損防止の機能を持つSiC層及び熱分解炭素層(第2層及び第4層)の厚さにも製造時のバラツキがあるうえ、これらの材料には脆性材料特有の強度のバラツキが存在する。従って、燃焼度が増加するにつれて内圧破損により破損率が徐々に上昇し、燃焼度が更に増大すると破損率の著しい上昇が生じるはずである。

しかし、A型燃料体の被覆燃料粒子と同一仕様の燃料では、3.2.5項に示したように、燃焼度約  $43000 \text{ MWd/t}$  の密封キャップセル照射燃料についても、照射後の破損率は約  $6.6 \times 10^{-4}$  と十分低い値であり、内圧破損によるものも含めて有意な破損率の増加がなかったことがわかる。また、燃焼度の増加に伴う破損率の顕著な増加傾向も見られないことから、内圧破損は支配的な破損機構となってはいないことがわかる。また、これまでの通常運転時を模擬したHTTR燃料に関する実験において、内圧によって破損したと思われる例は見い出されていない<sup>(2)</sup>。

なお、HTTR条件下での被覆燃料粒子の内圧破損について、被覆層の応力解析コードを用いた評価も行っている。その結果の記述は別報告書に譲る。

#### 3.3.4 製造時の被覆層の欠陥による破損の評価

上述の燃料核移動、PdによるSiC層の腐食及び燃焼に伴う内圧の上昇による系統的な破損とは別に、製造時に燃料粒子被覆層の欠陥がある場合、燃焼とともに燃料粒子被覆層が破損する可能性がある。3.2.4項に示したFig. 3.8のように、SiC層に欠陥が入っている場合、初期におい

ては核分裂生成物の閉じ込め機能を有していても、運転中に SiC 層が破損する可能性がある。

高温ガス炉の被覆燃料粒子のように数が多くなると (HTTR では、被覆燃料粒子の総数は約 10 億個)，この種の破損はある程度避けられないものである。

しかし、OGL-1, キャップセル照射試験における照射後の燃料粒子被覆層の貫通破損率は、3.2.5 項に示したように最大でも  $3.7 \times 10^{-3}$  であり、初期の貫通破損率及び SiC 層破損率等を考慮すれば、製造時の欠陥が照射中に貫通破損に至る割合は十分許容し得る小さな値である。また、被覆燃料粒子の製造工程において、各被覆層の密度、厚さ、断面組織等の検査を実施するため、系統的な要因による被覆層の欠陥を除去しうると考えることができる。

### 3.3.5 照射健全性の評価

Fig. 3.13 及び Fig. 3.14 に示した温度、燃焼度及び高速中性子照射量の範囲は、HTTR における燃料の使用条件をほぼ満たすものである。なお、ここに示した燃料最高温度は、高温試験運転時についての、統計的及び系統的な性質を有する工学的安全係数を考慮した温度 (ランダム・システムティック温度、約  $1492^{\circ}\text{C}$ <sup>(30)</sup>) であり、すなわち、安全係数を加味した保守的な評価温度である。一方、HTTR の運転中における実際の燃料最高温度は、ノミナル値 (安全係数を全て 1.0 とした値、約  $1330^{\circ}\text{C}$ <sup>(30)</sup>) により近い値であると考えられる。この点からすると、上に示した照射実績が HTTR 用燃料の使用条件を満たす充足度はより高くなると言える。

これと共に指摘しておく必要のあるのは、当然のことながら、HTTR 炉心内の燃料温度、燃焼度及び高速中性子照射量には分布があることである。しかし、Fig. 3.13 及び Fig. 3.14 に示したように、温度、燃焼度、高速中性子照射量の広い範囲にわたって照射が行われており、しかも、それらのいずれについても十分低い燃料破損率が達成されていることから見て、HTTR 燃料の使用条件である温度、燃焼度及び高速中性子照射量の点で、燃料の健全性が確保されると判断できる。

HTTR では、燃料の初期 (製造時) 破損率を貫通破損率と SiC 層破損率の和で  $2 \times 10^{-3}$  (0.2%) 以下と定め、また、運転中の貫通破損率を  $10^{-2}$  (1%) 以下になるように制限している。これに比べると、Table 3.4 及び Table 3.5 中の照射後破損率は最大 (第 5 次 OGL-1) でも  $3.7 \times 10^{-3}$  であり、多くは  $10^{-5} \sim 10^{-4}$  の範囲にあることから、上の制限値を十分満たしている。

また、3.2.5 項に示したように、照射中の希ガス ( $^{88}\text{Kr}$ ) 放出率及び照射後の燃料破損率 (貫通破損率) には、燃焼度の増加に伴う系統的な增加傾向が見られない。これは、内圧破損を典型的な例とする燃焼度の効果の大きい破損機構に起因する破損が、HTTR での制限値に比べて有意でないことを示している。このことは、3.3.3 項にも述べた。

## 3.4 まとめ

HTTR 用炉心燃料である A型燃料体の通常運転時の健全性の評価を行った。はじめに、核分裂生成物に対する閉じ込め機能を中心的に担う燃料粒子被覆層の破損原因として、燃料核移動、Pd による SiC 層の腐食、内圧破損、製造時の被覆層の欠陥について取り上げ、これらに対する被覆層の健全性について評価及び検討を行った。次に、照射健全性試験の結果から、HTTR における

使用条件下での燃料の健全性について評価した。

- 1) 燃料核移動については、試験データから保守的に定めた設計式を用いて、保守的な燃料最高温度評価値（システムティック温度）を用いて、高温試験運転を 660 日続けると仮定しても、燃料核の最大移動距離は、第 1 層と第 2 層の厚さの和である  $90 \mu\text{m}$  には達しない。さらに、製作公差を考慮し燃料核の最大移動距離が約  $55 \mu\text{m}$  以下となるように、高温試験運転の期間を制限することにより、燃料核移動による被覆燃料粒子の破損率は十分低く保たれると判断できる。
- 2) Pd による SiC 層の腐食について、実験データから湊らによって提案されたモデルを用いて、湊らにより提案された実験データを包絡する式を設計評価式として採用することにより、Pd による SiC 層の最大腐食距離の評価を行った。その結果、燃料最高温度の保守的な評価値（システムティック温度）を用いても、高温試験運転期間を制限する条件のもとで、SiC 層の最大腐食距離は約  $11 \mu\text{m}$  と評価された。この値は、制限値である  $25 \mu\text{m}$  (SiC 層の厚さ) に比べて十分低い値である。
- 3) 内圧破損及び製造時の欠陥による破損については、照射健全性試験結果によって評価することとした。照射健全性試験において、燃焼度の増加に伴う燃料破損率の有意な上昇傾向は見られないことから、HTTR 通常運転下における内圧による被覆層の有意な破損は生じないと判断できる。
- 4) 燃料の照射健全性試験において、HTTR 用燃料の温度、燃焼度及び高速中性子照射量を満たす範囲について、照射後の燃料破損率（被覆燃料粒子の貫通破損率）は、 $3.7 \times 10^{-3}$  以下であり、HTTR の制限値 ( $10^{-2}$ ) に比べて十分小さい値であった。このことから、上に挙げた 4 つの破損原因及び評価を行っていない破損原因を含めて、燃料の通常運転条件下における健全性は確保されると判断できる。

なお、本報告で行ったのは、HTTR 条件のもとでの保守的に設定した HTTR 制限値に対する健全性の評価である。今後は、HTTR 条件をより正確に評価したうえで、燃料の健全性の余裕を定量的に明らかにすることが必要である。また、ここでは定量的な評価を行わなかった内圧破損や製造時の欠陥による破損を含め、破損機構及び破損条件のより詳細な解明及び評価が必要となろう。

Table 3.1 Summary of irradiation conditions and results  
of post-irradiation examinations on kernel  
migration (amoeba effect) by JRR-2 capsules (2).

	キャップセル名	照射温度 (°C) 〔温度勾配(°C/cm)〕	照射時間 (日)	照射後試験結果概要
1	ICF - 3 H	1330～1040 〔 220 〕	55	アメーバ効果認められず
2	ICF - 9 H	1330～1250 〔 160 〕	54	"
3	VOF - 1 H	1700 〔 164 〕	84	顕著なアメーバ効果発生 温度, 濃縮度依存性有
4	VOF - 2 H	1140～940 〔 110 〕	108	アメーバ効果認められず
5	VOF - 8 H	1360～1170 〔 150 〕	156	わずかにアメーバ効果認められる
6	VOF - 14H	1600～1210 〔 150 〕	139	顕著なアメーバ効果発生 温度, 濃縮度依存性有 照射後試験一部実施中
7	VOF - 20H	1550～960 〔 80～140 〕	48	照射後試験実施中

Table 3.2 Irradiation conditions of fuel compacts used for ceramographic and EPMA analyses of SiC-layer corrosion by palladium(2).

キャプセル名	試料名	濃縮度 ( $^{235}\text{U}\%$ )	照射日数 (日)	燃焼度* (MWd/t)	温度 (°C)
75F-5A	75FP2A-1	4.0	78	15,000	1,500 ~ 1,200
76F-5A	78FP2A-1	4.0	120	33,000	1,400 ~ 1,000
77F-4A	76FP1A-9	4.0	101	13,000	1,200 ~ 1,000
77F-5A	77FP2A-1	4.0	183	9,000	1,200 ~ 1,000
78F-3A	79FP2A-14	8.0	82	47,000	1,550 ~ 1,200
78F-3A	79FP2A-15	8.0	82	33,000	1,350 ~ 1,250
5次OGL-1	790P(B-10)	19.9	142	27,000	1,400 ~ 1,250
80F-6A	80FP3A-6	8.0	117	32,000	1,700 ~ 1,400
80F-6A	80FP3A-8	8.0	117	35,000	1,650 ~ 1,350
80F-6A	80FP2A-3	8.0	117	35,000	1,600 ~ 1,350
82F-1A	T82F1A-4	8.0	86	42,000	1,400 ~ 1,300
82F-1A	T82F1A-8	8.0	86	43,000	1,350 ~ 1,250
82F-1A	T82F1A-9	8.0	86	40,000	1,500 ~ 1,350

\* 表中の燃焼度は文献(2)より 1% fima = 9140 MWd/t (HTTR 条件) により換算したものである。

( HTTR で Pd による SiC 層の腐食距離が最大となる位置では、濃縮度は約 5.2%，燃焼度は約 31,000 MWd/t，燃料温度は約 1,390°C となる (高温試験運転時)。 )

Table 3.3 Results of internal-pressure measurements for irradiated coated fuel particles(24).

照射キャプセル名 (試料コンパクト名)	第3次OGL-1 燃料体 (770P-09)	第4次OGL-1 燃料体 (780P1-42)	第5次OGL-1 燃料体 (790P-52)
燃焼度 (MWd/t)*	4,800	18,000	28,000
内圧 (kg/cm <sup>2</sup> )	検出限界以下	2.2	3.1
	検出限界以下	2.7	4.0

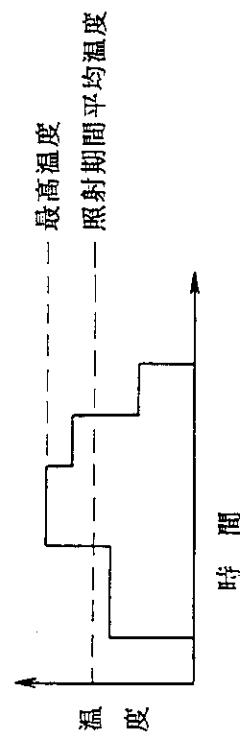
\* 文献(25)より 1% fima = 9140 MWd/t で換算

Table 3.4 Irradiation conditions and results for OGL-1 fuel assemblies.

OGL-1 燃料体	コンパクト 数 <sup>1)</sup> ,	燃料濃縮度 (%)	最大高速中性子量 (n/cm <sup>2</sup> , E>0.18MeV)	最大燃焼度 (MWd/t)	燃料温 度 (°C) <sup>2)</sup>		照射後燃料 破損率 <sup>3)</sup> ,	照射前燃料 破損率 <sup>3)</sup> ,
					最 高 <sup>2)</sup>	照 射 期 間 平 均 <sup>2)</sup>		
第1次	54	12.0	$1.2 \times 10^{20}$	5,800	1,440	1,380	$2.7 \times 10^{-5}$	$3.7 \times 10^{-6}$
第2次	60	12.0	$2.0 \times 10^{20}$	8,500	1,470	1,430	$1.4 \times 10^{-5}$	$1.0 \times 10^{-4}$
第3次	20	12.0	$8.9 \times 10^{19}$	4,800	1,320	1,320	$7.1 \times 10^{-4}$	$8.5 \times 10^{-4}$
第4次	60	19.9	$2.3 \times 10^{20}$	18,000	1,350	1,340	$7.3 \times 10^{-5}$	$1.1 \times 10^{-4}$
第5次	60	19.9	$3.8 \times 10^{20}$	30,000	1,360	1,350	$3.7 \times 10^{-3}$	$1.9 \times 10^{-3}$
第6次	20	19.8	$4.1 \times 10^{19}$	3,900	1,480	1,480	$9.6 \times 10^{-5}$	$5.0 \times 10^{-5}$
第7次	60	19.7	$1.6 \times 10^{20}$	12,000	1,380	1,380	$7.1 \times 10^{-5}$	$2.7 \times 10^{-5}$
第8次	20	19.7	$1.2 \times 10^{20}$	9,100	1,390	1,380	$1.1 \times 10^{-4}$	$5.9 \times 10^{-6}$
第9次 <sup>4)</sup>	20	19.1	$2.8 \times 10^{20}$	24,000	1,340	1,340	$1.4 \times 10^{-3}$	$8.7 \times 10^{-4}$
第10次 <sup>4)</sup>	20	19.5	—	26,000	1,490	1,340	$4.9 \times 10^{-4}$	$2.5 \times 10^{-4}$

1) 1 コンパクト当たりの被覆燃料粒子数 約10,000～20,000個

2) 最高温度位置における温度であり、以下の定義による。



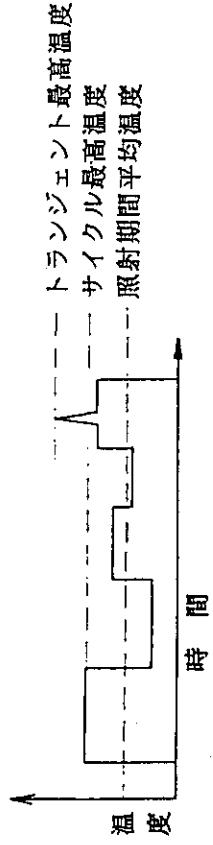
3) 酸浸出率の値

4) 量産規模の燃料試作

Table 3.5 Irradiation conditions and results for fuel compacts loaded in gas-sweep and closed capsules.

キヤブセル名	種類	コンパクト 数 <sup>1)</sup>	燃料濃縮度 (%)	最大電離子量 (n/cm <sup>2</sup> , E>0.18MeV)	最大燃焼度 (MWd/t)	燃料温度 (°C) <sup>2)</sup>		照射後燃料 破損率 <sup>3)</sup>	照射前燃料 破損率 <sup>3)</sup>
						トランジエント最高	サイクル最高		
74F-1A 76F-6A	密封	(粒子) 14	8.0 4.0	9.6×10 <sup>20</sup> 1.8×10 <sup>21</sup>	27,000 16,000	1,220 —	1,140 1,290	1.5×10 <sup>-3</sup> 7.1×10 <sup>-4</sup>	<2 ×10 <sup>-5</sup> 5.3 ×10 <sup>-5</sup>
77F-4A 77F-5A		9 15	4.0 4.0	7.4×10 <sup>20</sup> 4.1×10 <sup>20</sup>	18,000 16,000	— —	1,400 1,360	3.1×10 <sup>-4</sup> 3.9×10 <sup>-5</sup>	4.0 ×10 <sup>-5</sup> <2 ×10 <sup>-5</sup>
80F-3A 80F-6A		4 16	8.0 8.0	7.9×10 <sup>20</sup> 1.6×10 <sup>21</sup>	28,000 35,000	— 1,720	1,240 1,690	1.5×10 <sup>-3</sup> 1.8×10 <sup>-3</sup>	9 ×10 <sup>-5</sup> 4.6 ×10 <sup>-5</sup>
82F-1A 82F-2A		13 4	4.0 4.0	2.5×10 <sup>21</sup> 7.7×10 <sup>20</sup>	43,000 13,000	— 1,600	1,200 1,510	1.5×10 <sup>-3</sup> 1.470	3.1 ×10 <sup>-6</sup> 2.4 ×10 <sup>-5</sup>
74F-9J 74F-7J	(粒子)	8.0	7.1×10 <sup>20</sup>	22,000	—	1,670	1,300	2 ×10 <sup>-4</sup>	<1 ×10 <sup>-4</sup>
75F-4A 75F-5A	(粒子) 6	4.0, 12.0 4.0	1.1×10 <sup>21</sup> 1.1×10 <sup>21</sup>	14,000 15,000	— —	1,450 1,750	1,200 1,430	1 ×10 <sup>-3</sup> 5 ×10 <sup>-4</sup>	<2 ×10 <sup>-5</sup> 1.1 ×10 <sup>-5</sup>
76F-5A		4	4.0	4.1×10 <sup>21</sup>	32,000	—	1,370	1,190	4 ×10 <sup>-5</sup> 1.9 ×10 <sup>-4</sup>
79F-1A 80F-5A 83F-2A	密封 (温度急 上昇用)	5 5 5	8.0 8.0 4.0	3.0×10 <sup>19</sup> 1.0×10 <sup>20</sup> 1.0×10 <sup>21</sup>	4,600 9,100 11,000	1,510 1,520 1,900	1,210 1,250 1,400	1.2×10 <sup>-3</sup> 7.8×10 <sup>-5</sup> 1.7×10 <sup>-3</sup>	2 ×10 <sup>-5</sup> 7.0 ×10 <sup>-5</sup> 5.5 ×10 <sup>-5</sup>

- 1) 1コンパクト当たりの被覆燃料粒子数 約10,000~20,000個  
 2) 最高温度位置における温度であり、各温度は以下の定義による。



- 3) 放出率の値

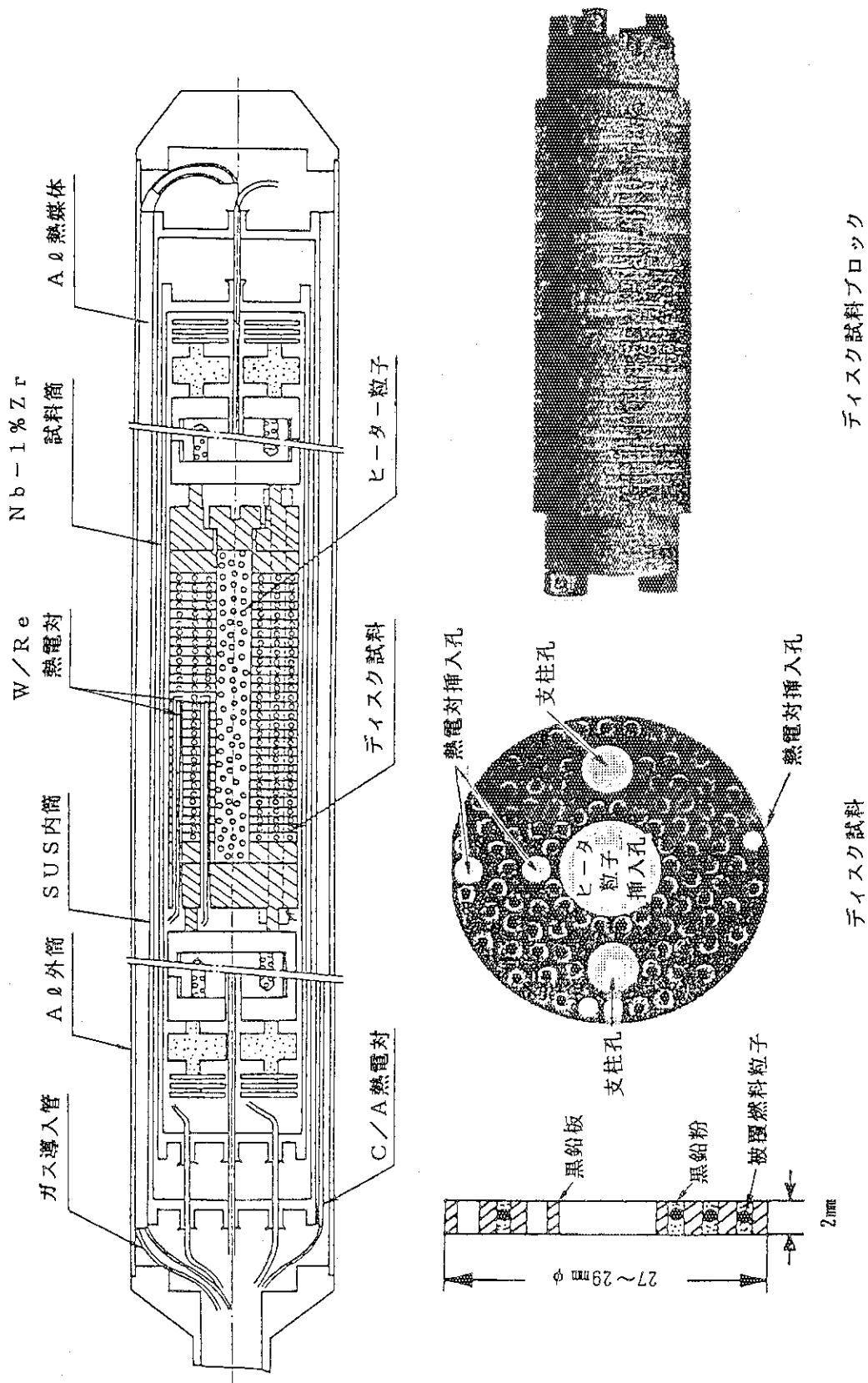


Fig. 3.1 Structure of a kernel migration (amoeba) capsule for JRR-2 irradiation and its fuel specimens (2).

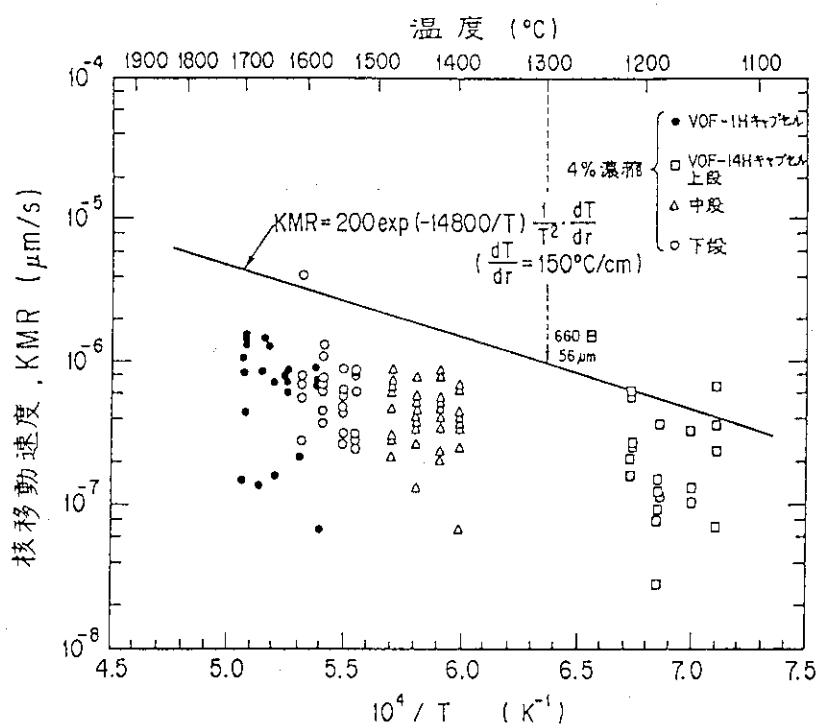


Fig. 3.2(a) Kernel migration rate (KMR) in TRISO-coated  $\text{UO}_2$  (4%EU) particles irradiated in VOF-1H and VOF-14H capsules<sup>(2)</sup>.

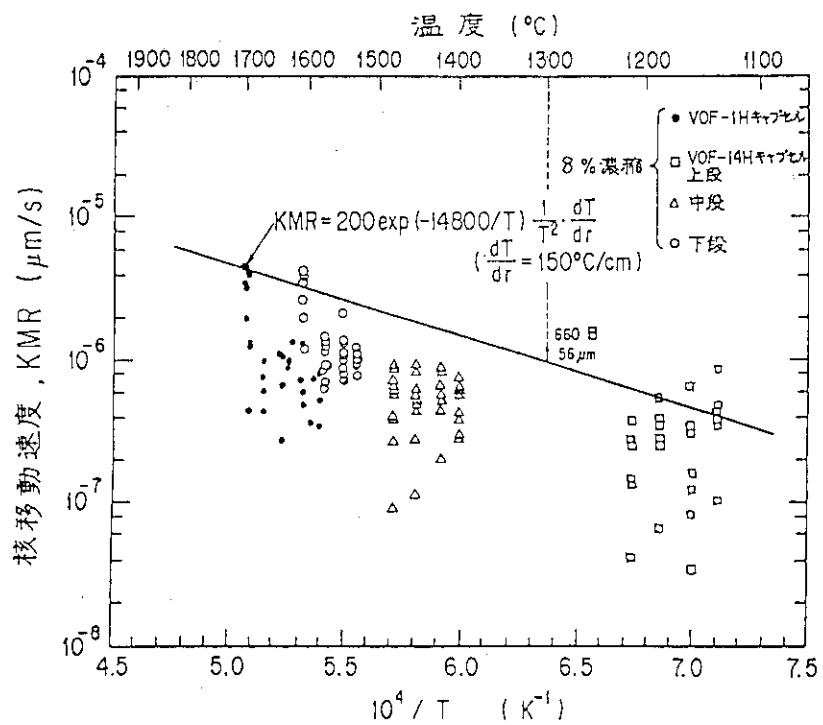


Fig. 3.2(b) Kernel migration rate (KMR) in TRISO-coated  $\text{UO}_2$  (8%EU) particles irradiated in VOF-1H and VOF-14H capsules<sup>(2)</sup>.

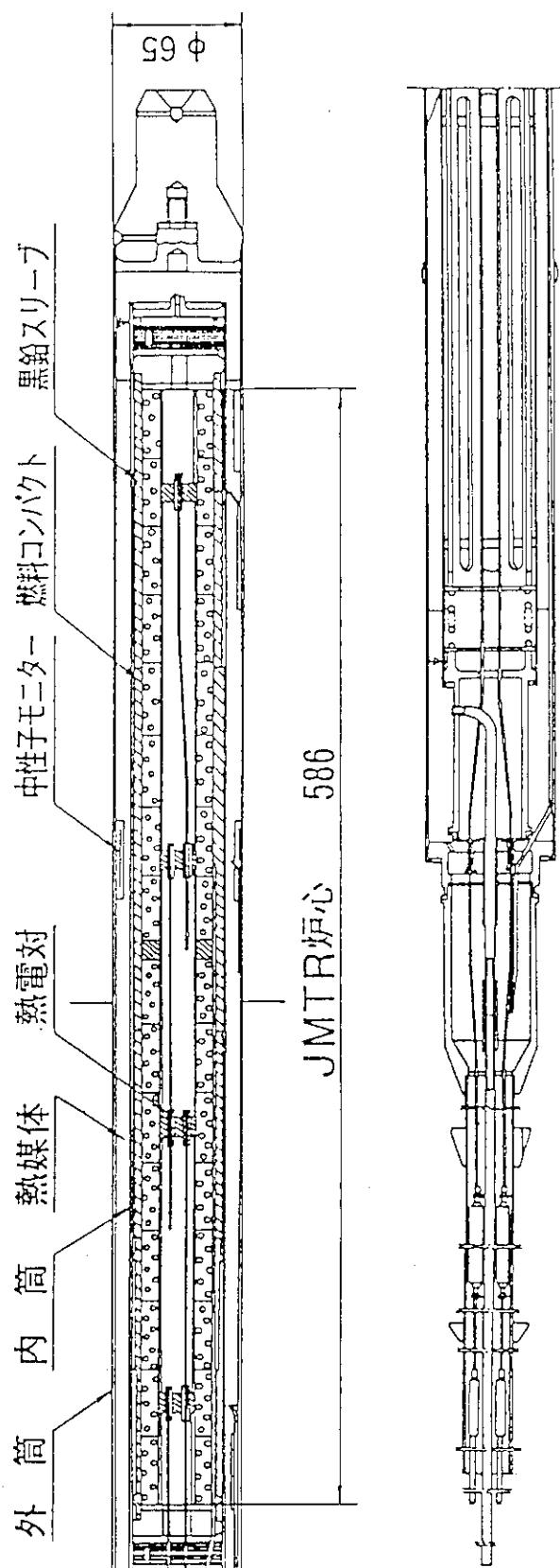


Fig. 3.3 Example of closed capsule for irradiation in JMTR (80F-6A capsule) (2).

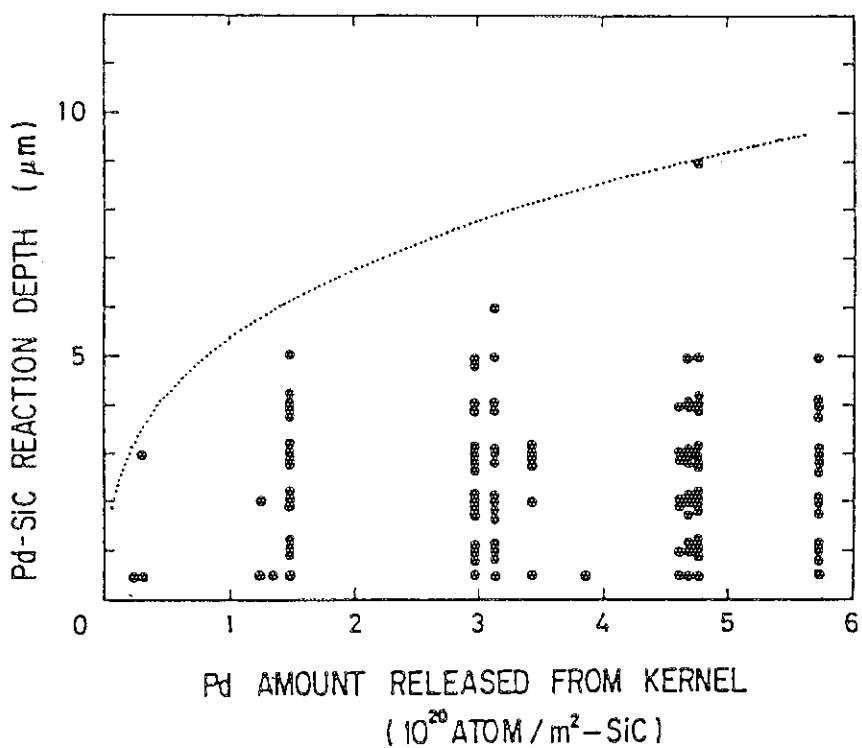


Fig. 3.4 Relationship between Pd/SiC reaction depth and calculated Pd release from kernel<sup>(2)</sup>.

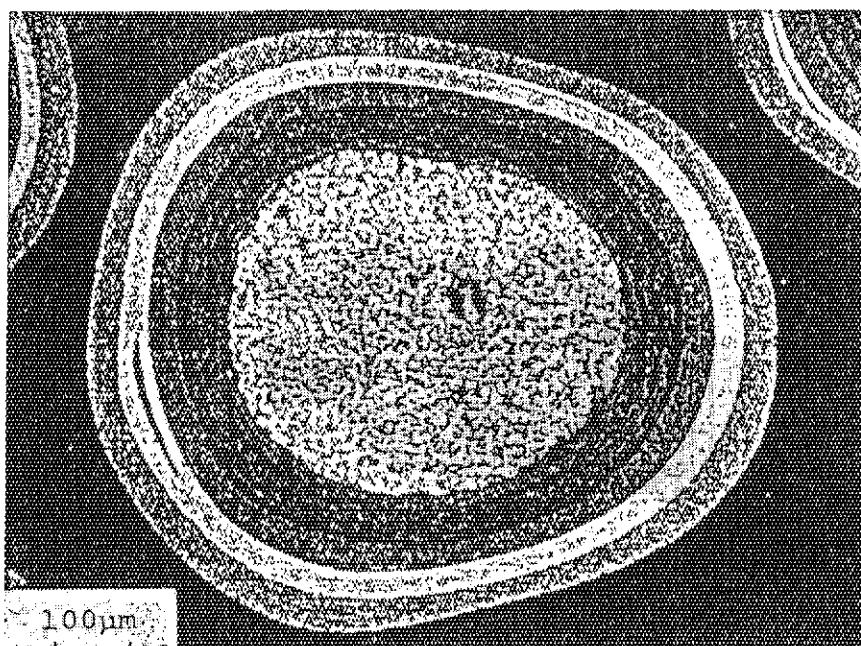
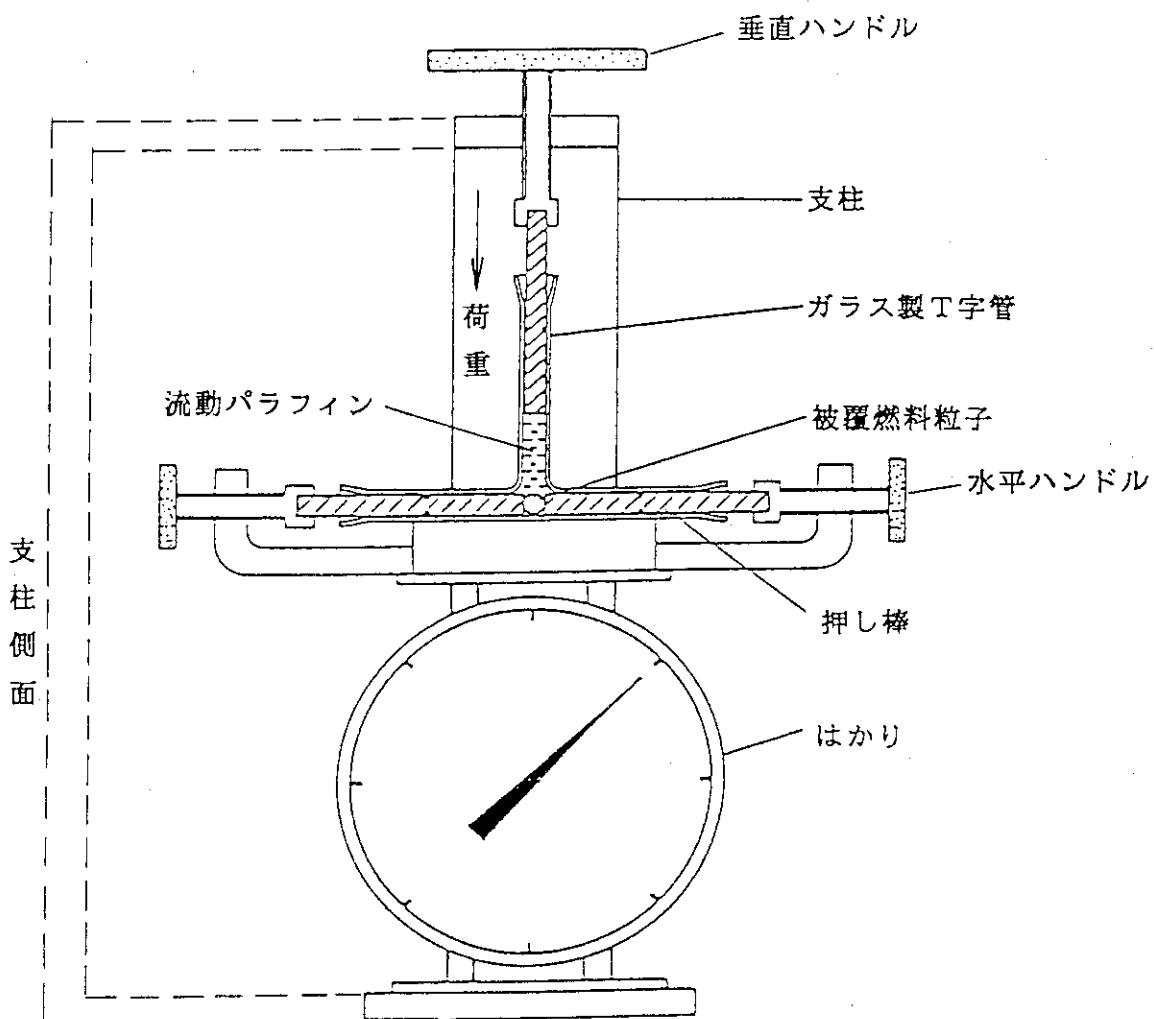


Fig. 3.6 Example of defective coating layer (circumferential defect in SiC layer)<sup>(26)</sup>.



はかりは、垂直ハンドルを押し下げた時に流動パラフィンにかかる荷重を測定し、この荷重をT字管断面積で除することにより、流動パラフィン圧力（被覆燃料粒子に対する外圧）を求めるために用いる。

Fig. 3.5 Apparatus for measuring internal pressure of single coated-fuel-particle irradiated<sup>(24)</sup>.

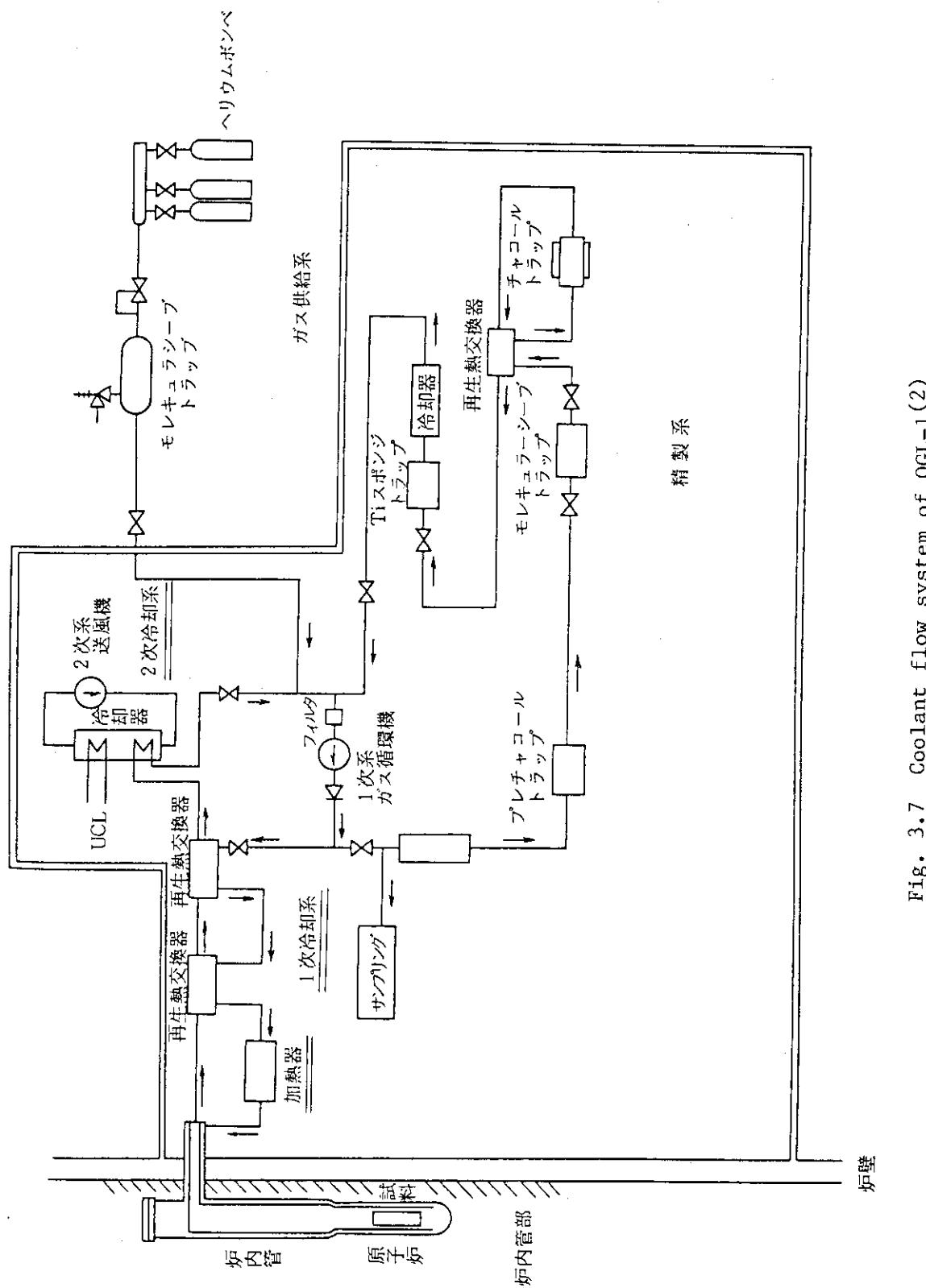


Fig. 3.7 Coolant flow system of OGL-1 (2).

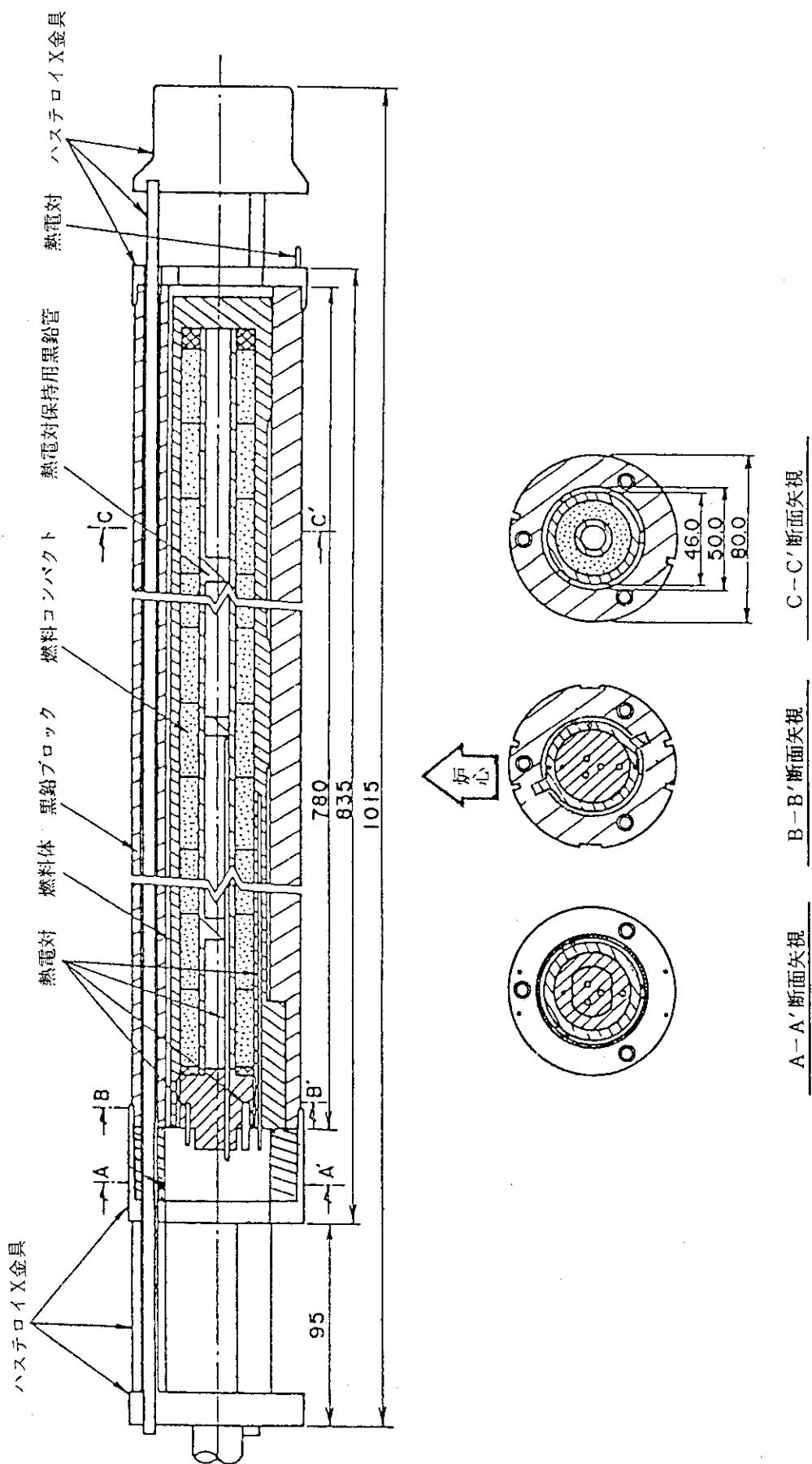


Fig. 3.8 Structure of the eighth OGL-1 fuel assembly (2).

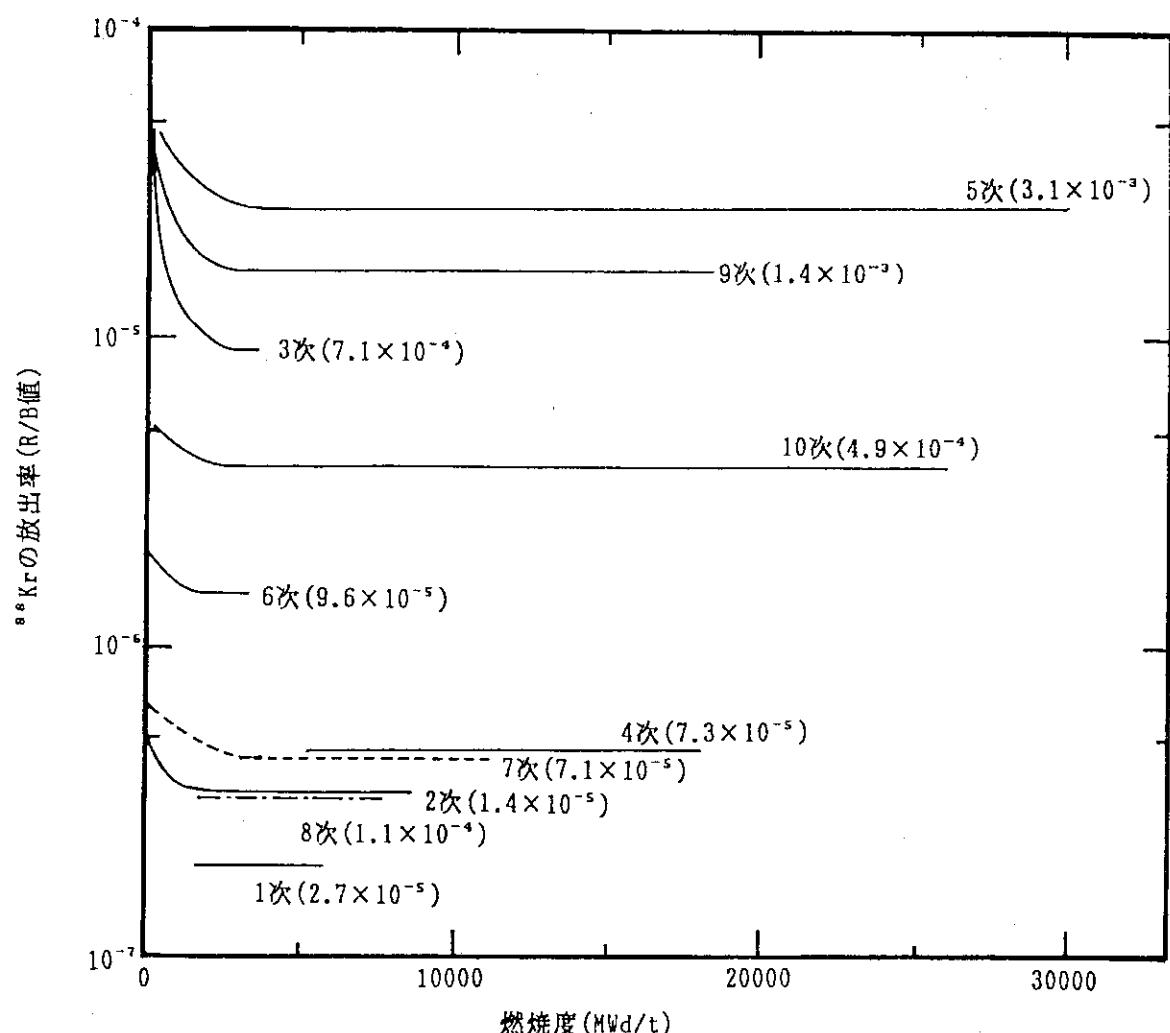


Fig. 3.9 Release (R/B) of  $^{88}\text{Kr}$  during irradiation of OGL-1 fuel assemblies: failure fractions of coated fuel particles at end of life are noted in parenthesis.

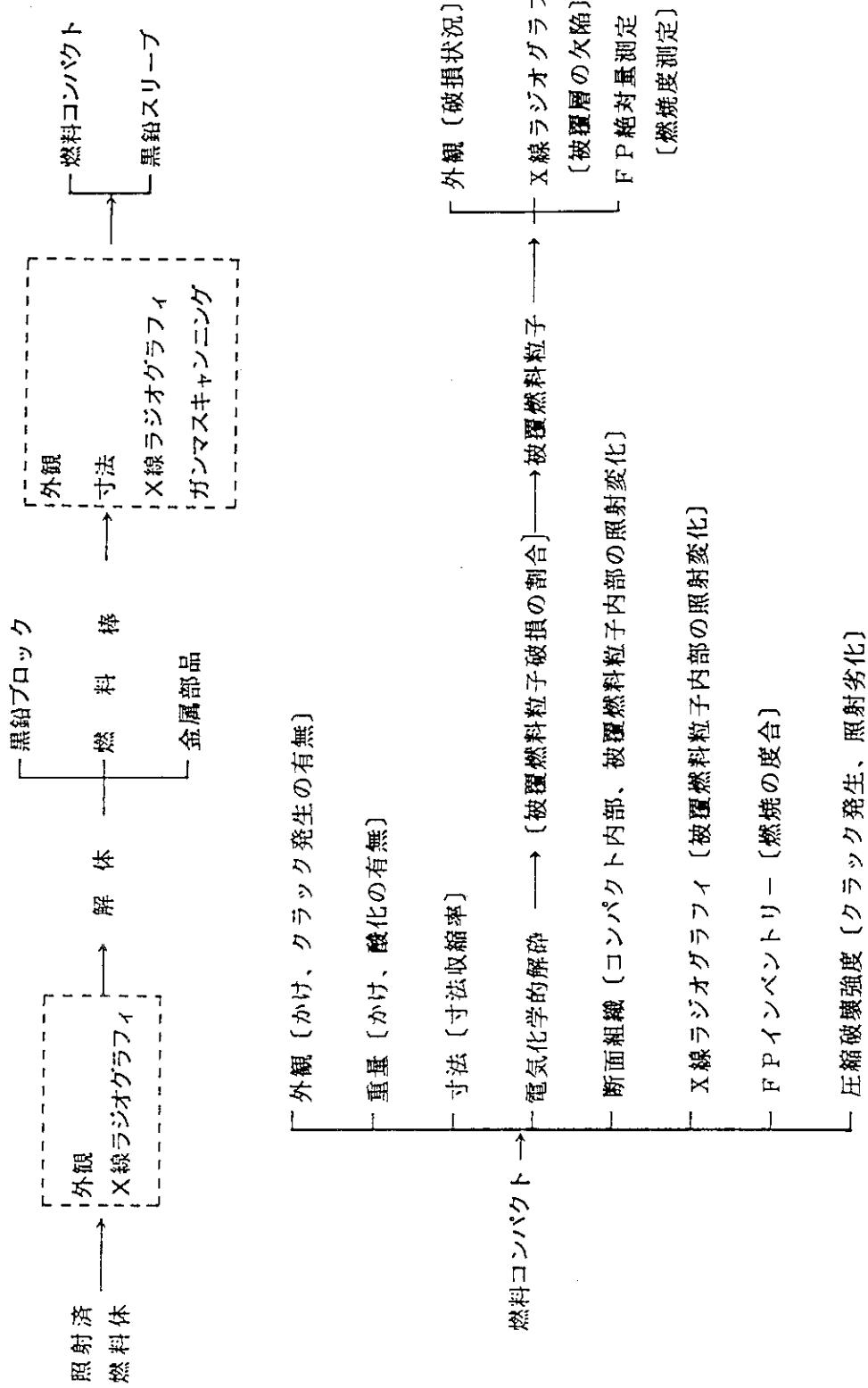


Fig. 3.10 Items and objectives of post-irradiation examination of OGL-1 fuel assembly.

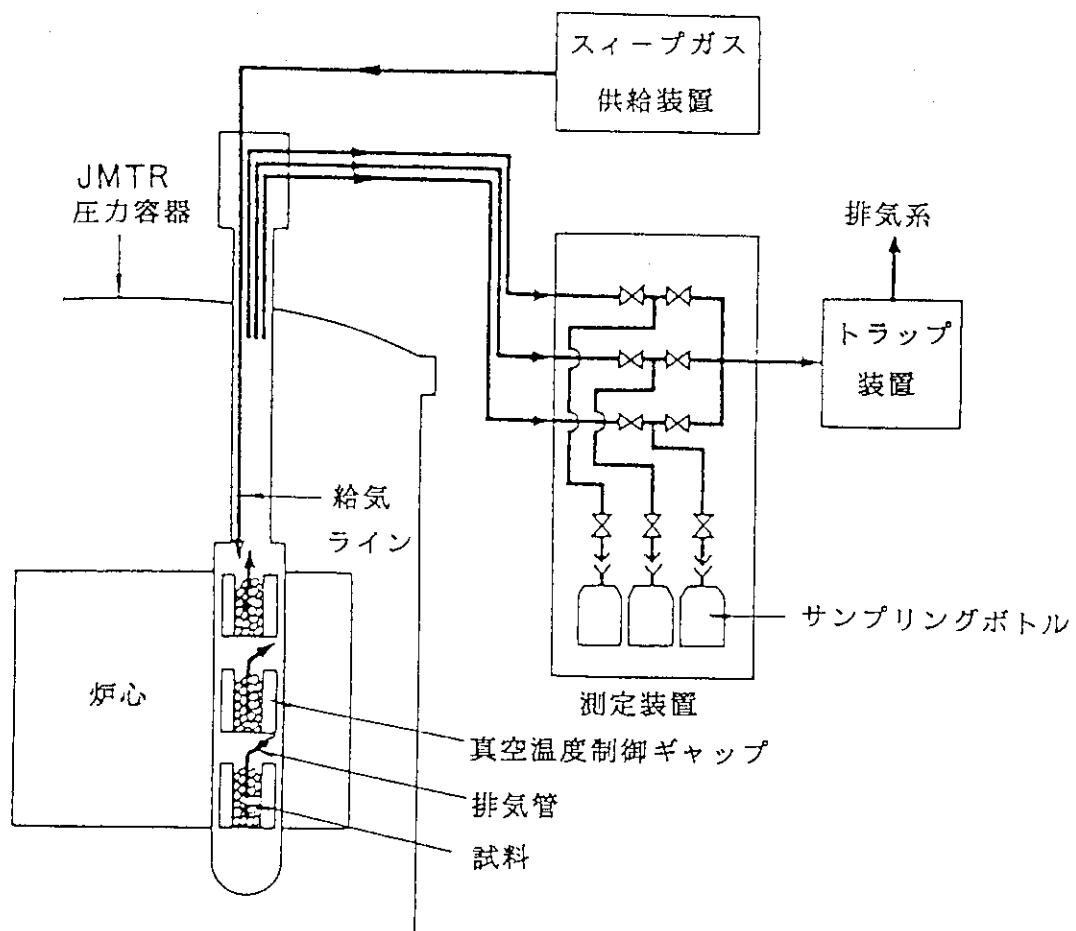


Fig. 3.11 Schematic drawing of irradiation facility of sweep-gas capsule<sup>(2)</sup>.

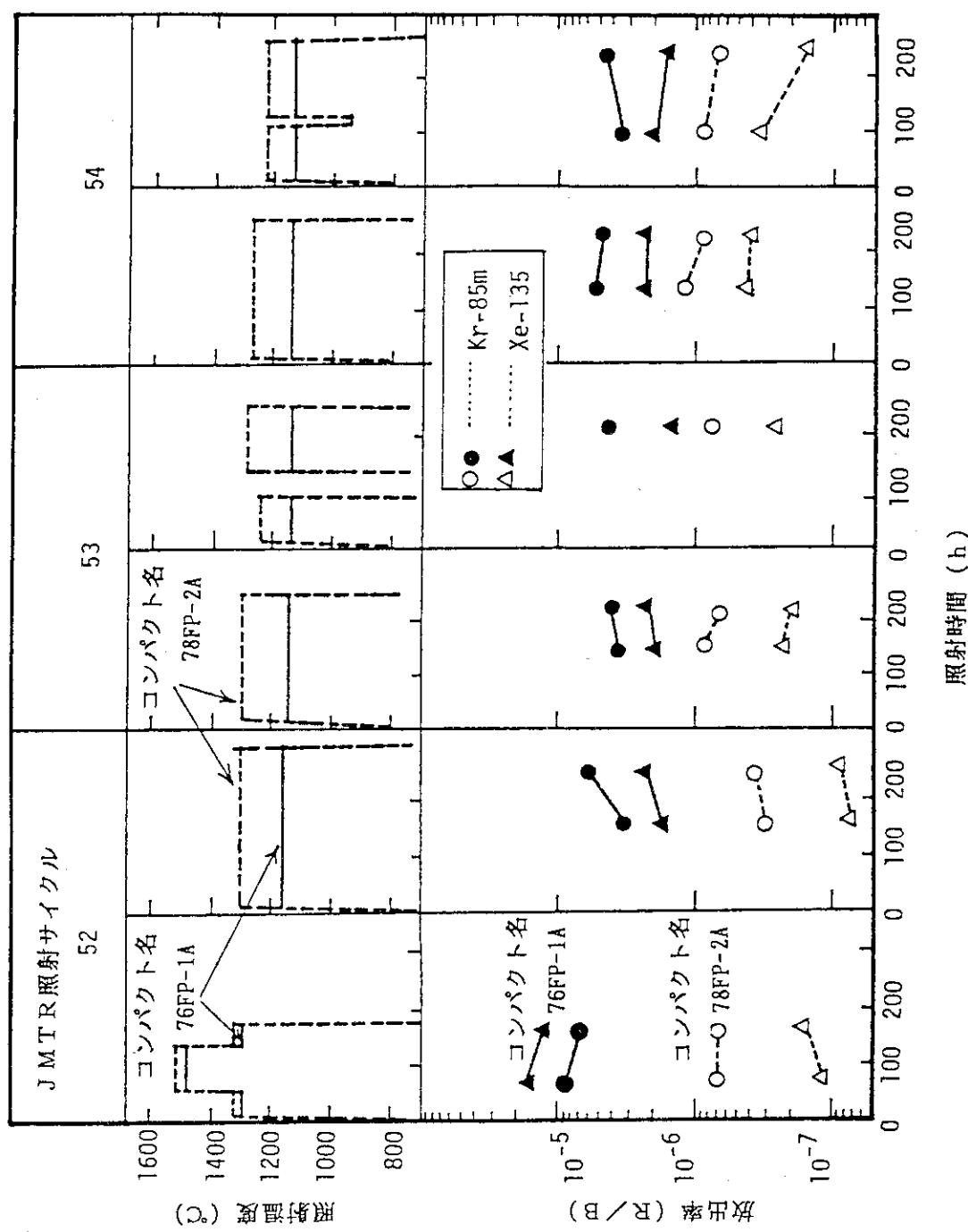
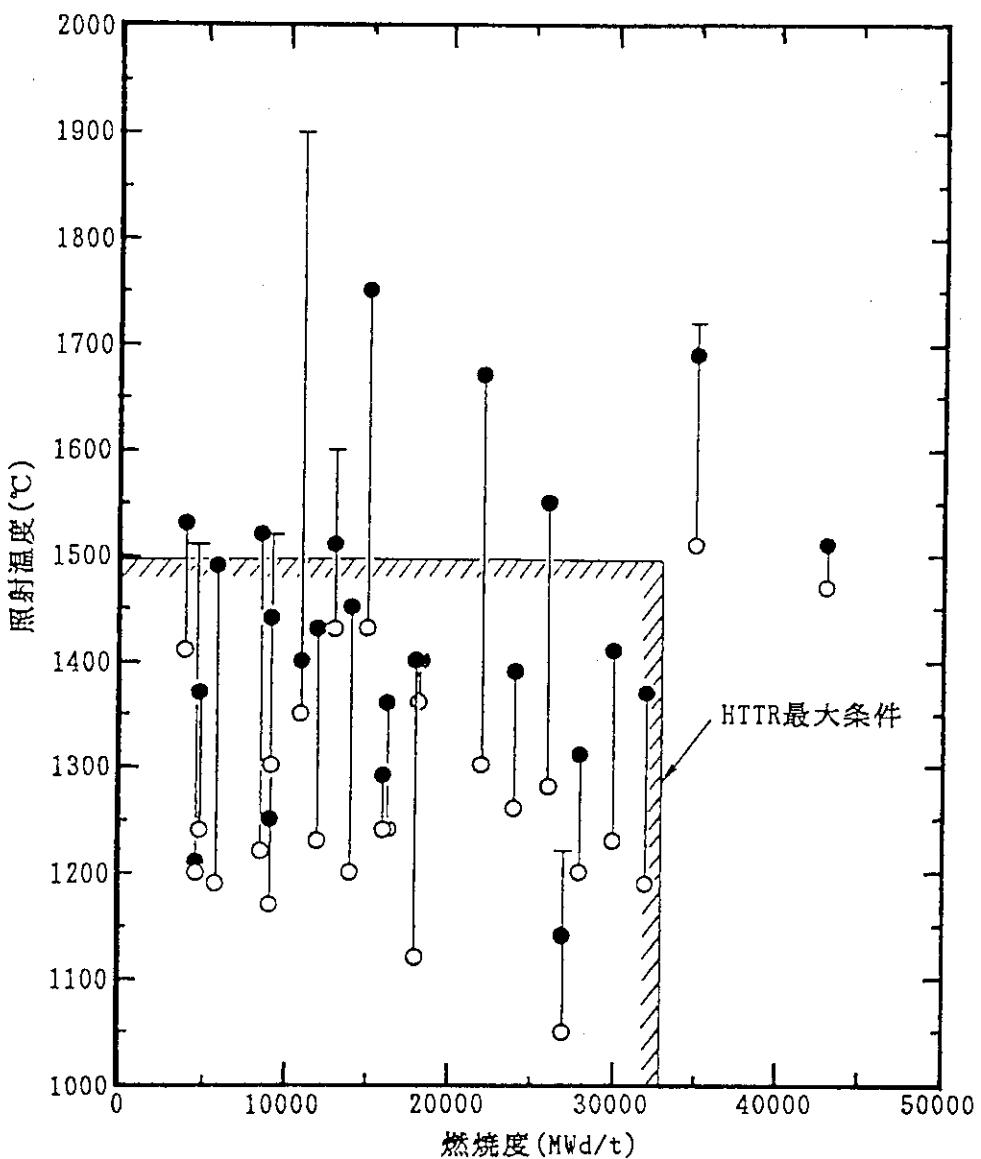


Fig. 3.12 Release (R/B) of gaseous fission products during irradiation of gas-sweep capsule (76F-5A)(29).



┌…………トランジエント最高温度  
 ┌…………サイクル最高温度 ┘ ホットスポットにおける温度  
 ○…………照射期間平均温度  
 (温度の定義は、Table 3.4 及びTable 3.5 による)

Fig. 3.13 Range of irradiation tests of fuels for HTTR development as a function of temperature and burnup (A-type fuel assembly).

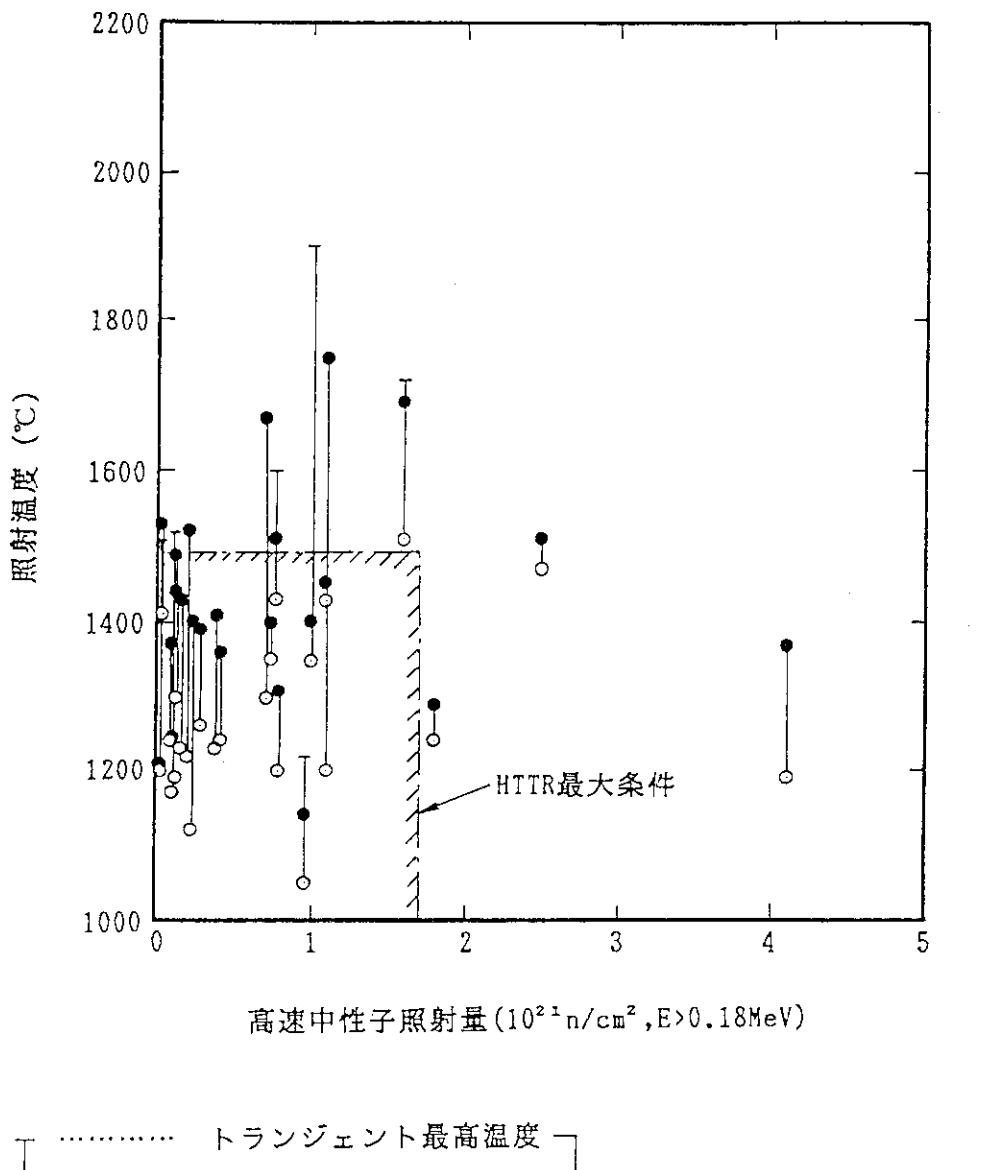


Fig. 3.14 Range of irradiation tests of fuels for HTTR development as a function of temperature and fast-neutron fluence (A-type fuel assembly).

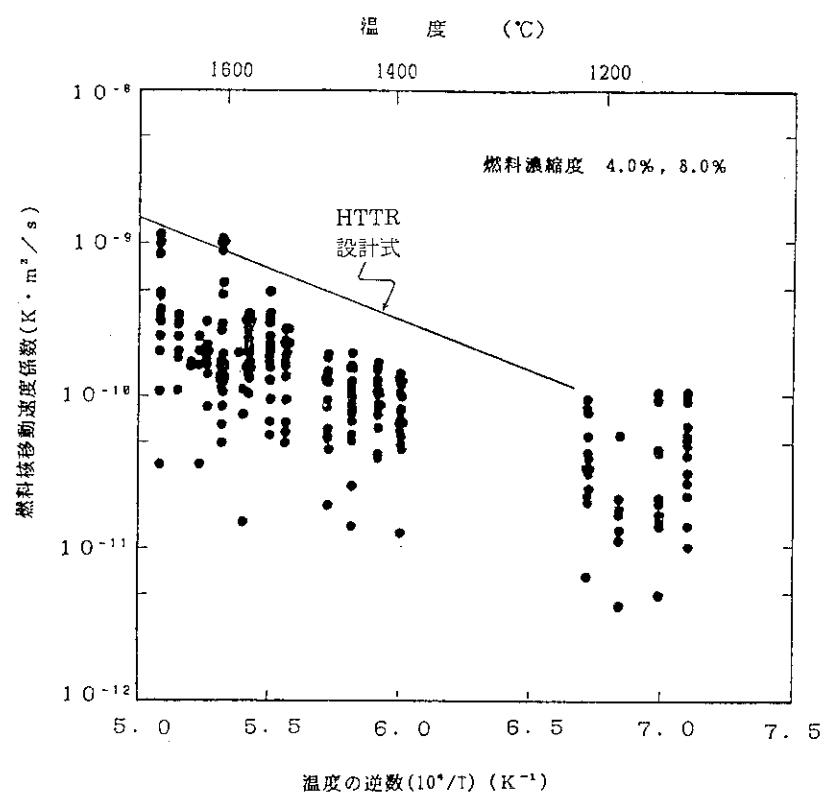


Fig. 3.15 Experimental data on kernel migration coefficients (KMC) for  $\text{UO}_2$  kernels and its HTTR design curve.

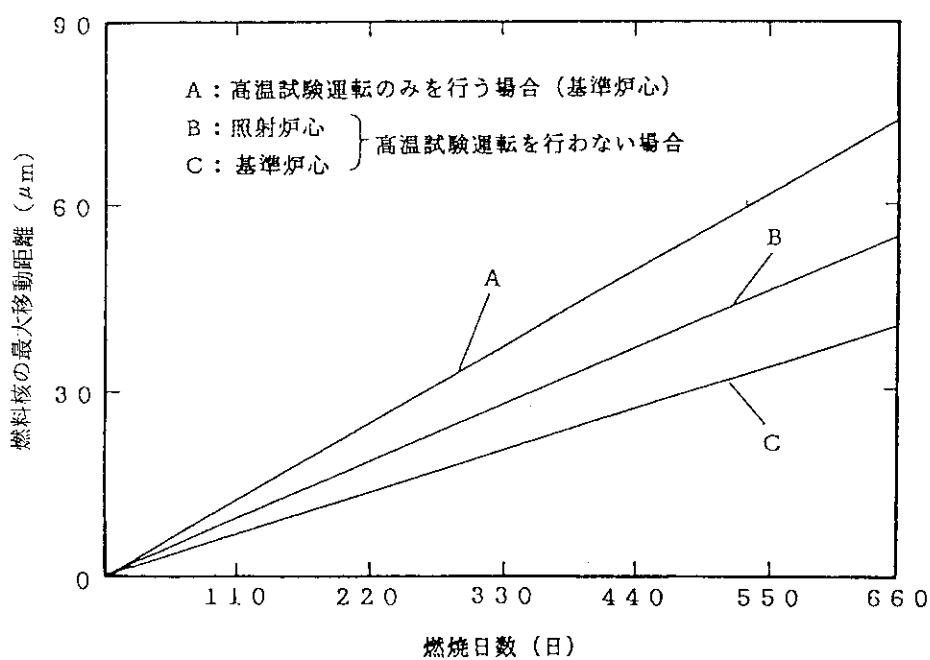
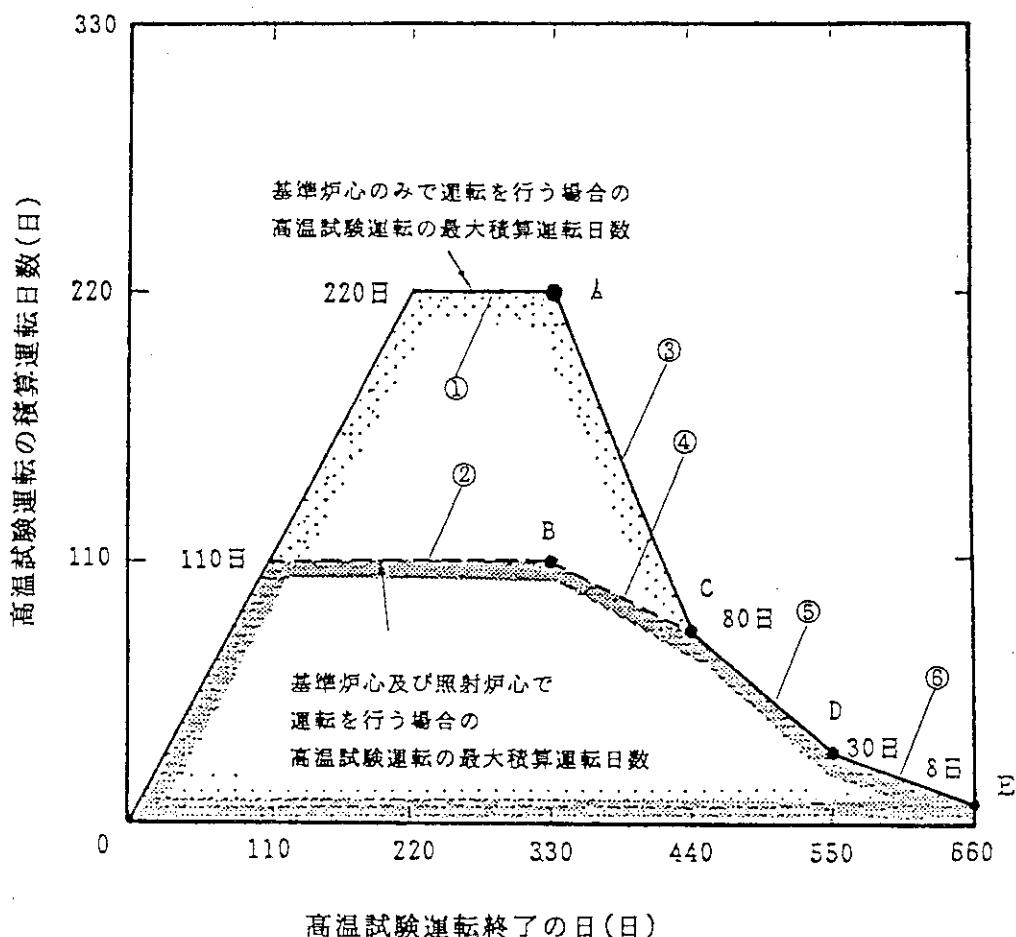
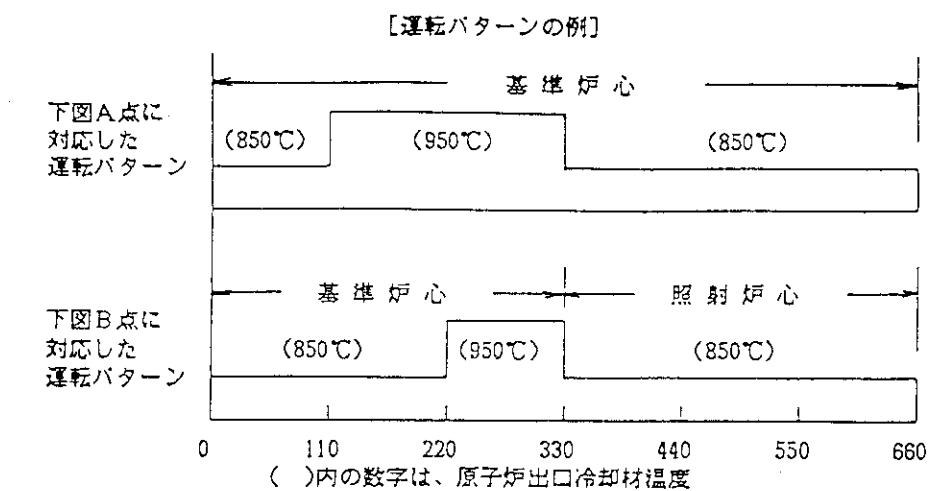
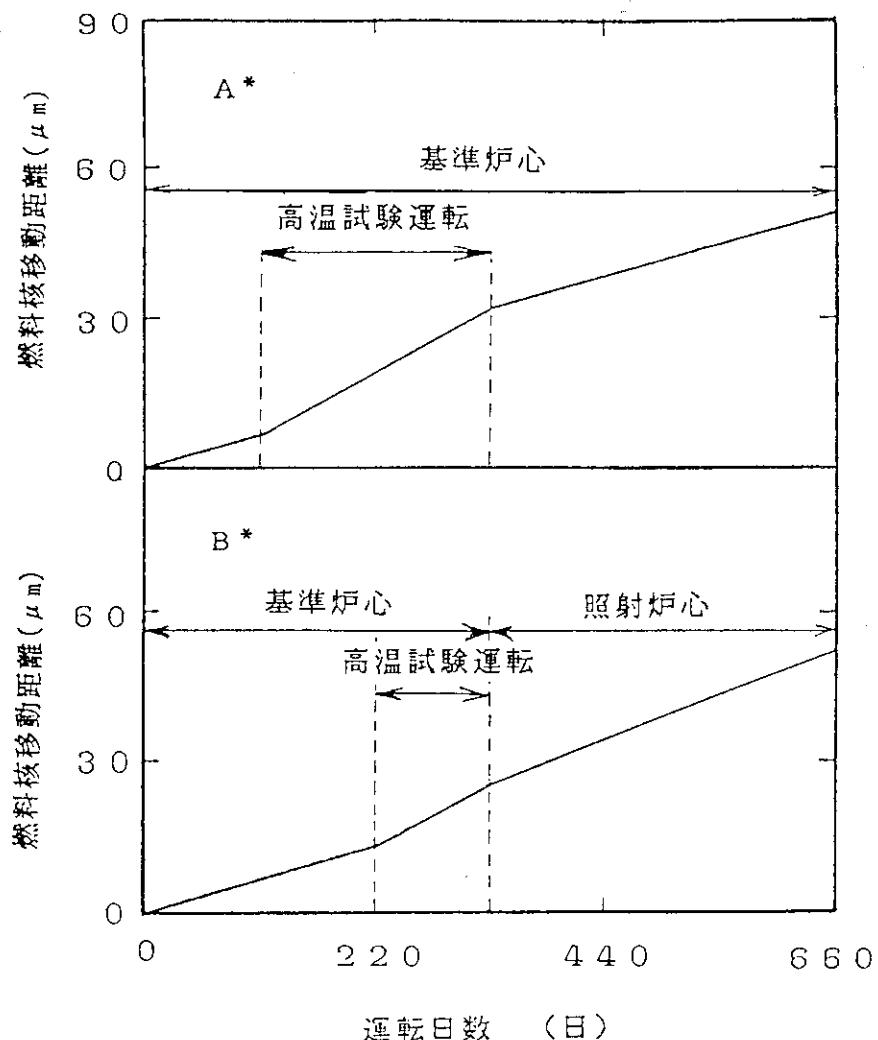


Fig. 3.16 Relationship between operation period and kernel migration distance.



(但し、高温試験運転のみを行う場合は、最大330日とする。)

Fig. 3.17 Limitation on period of high-temperature test operation.



\* A,BはFig.3.17のA,Bに対応する。

Fig. 3.18 Results of calculation on kernel migration distance for different operation modes.

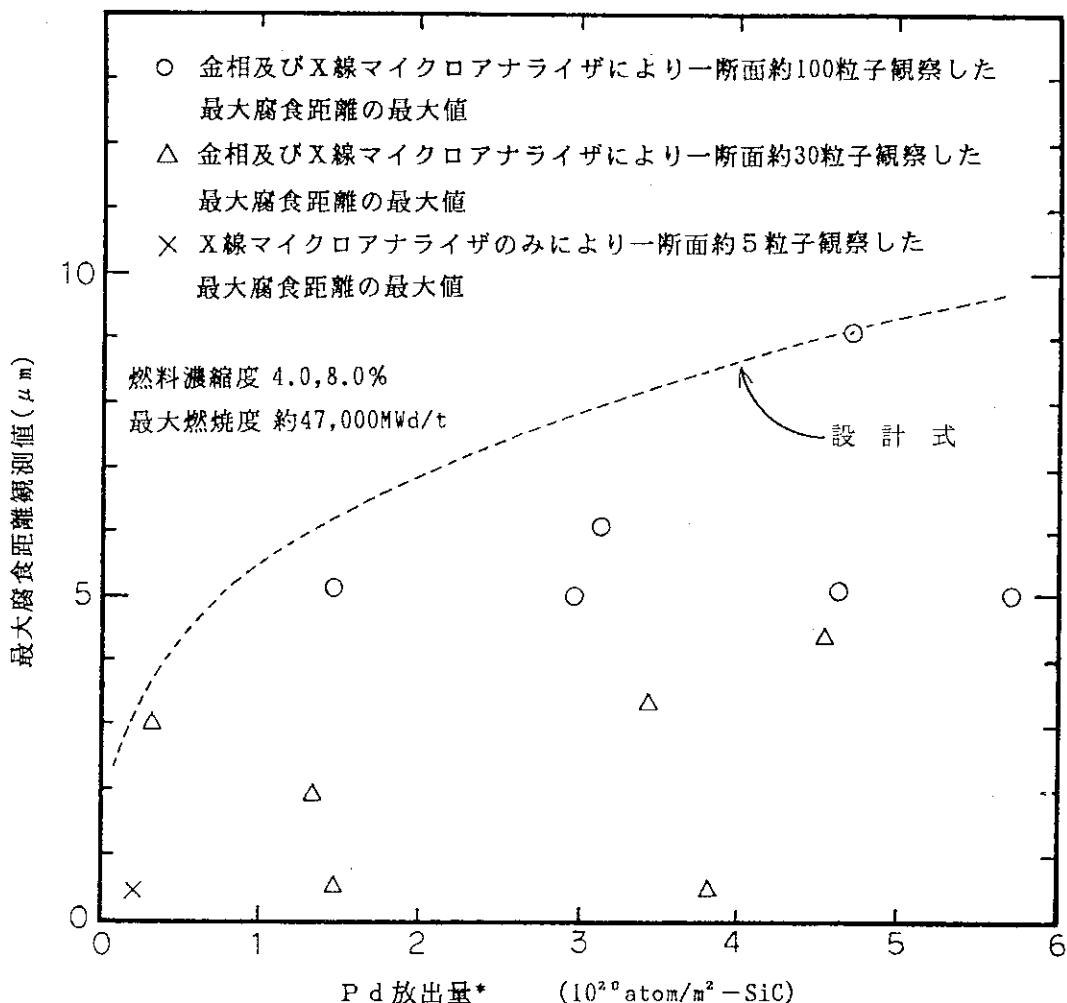


Fig. 3.19 Maximum corrosion distance of SiC by palladium in observed cross-section of fuel compact. The distance was determined as a function of temperature, time and burnup, assuming diffusion control from fuel kernel. (The present figure has been made by modification of Fig. 5.4.3 in ref.(2)).

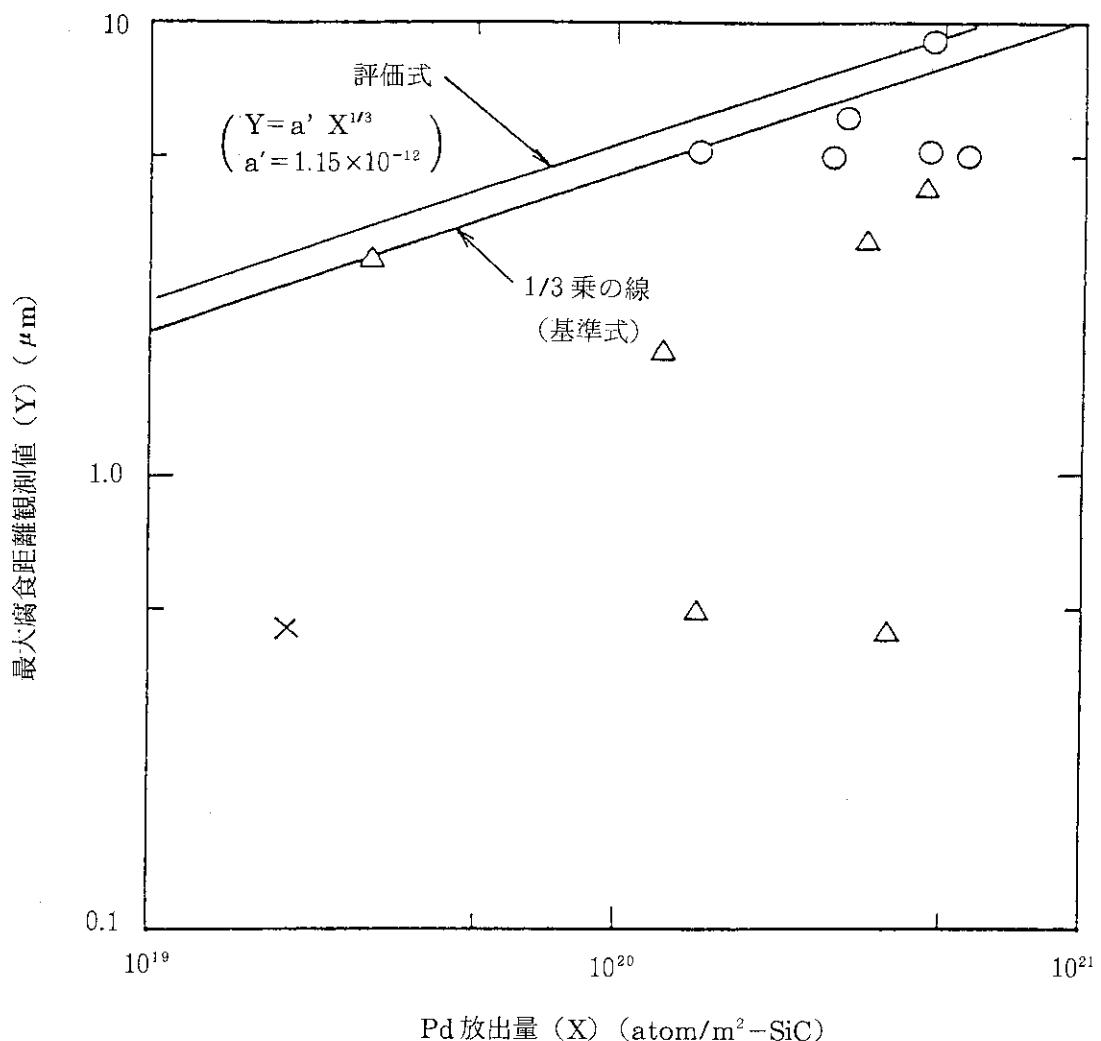


Fig. 3.20 Maximum corrosion distance of SiC layer by palladium (logarithm plot).

## 4. 燃料の許容設計限界

### 4.1 基本的考え方

HTTRで使用する燃料は、原子炉内における使用期間を通じ、起り得る種々の劣化等を考慮してもその健全性を失うことがないよう設計することを基本的設計方針としている。

燃料の健全性確保の考え方は、軽水炉等では核分裂生成物の閉じ込め機能を担う燃料被覆管の破損防止に着目し、その判断基準として最小限界熱流束比や最小限界出力比が許容値を下回らないこと等としている。一方、HTTRでは燃料要素の核分裂生成物の閉じ込め特性及び破損挙動が軽水炉燃料等とは異なるため、新たに燃料の健全性確保についての考え方を明確にする必要がある。

HTTRの燃料要素は、被覆燃料粒子を含んだ燃料コンパクト、黒鉛スリーブ等から構成されており、核分裂生成物は主として被覆燃料粒子内に閉じ込められる。従って、被覆燃料粒子の核分裂生成物の閉じ込め性を確保することが重要であり、この閉じ込め性の劣化防止に着目して燃料許容設計限界を定める。

被覆燃料粒子からの核分裂生成物の放出形態は、主に次の3つに大別できる。

- (イ) 製造時に被覆層が破損した被覆燃料粒子（以下「破損粒子」という）からの放出
- (ロ) 健全な被覆燃料粒子（以下「健全粒子」という）から温度上昇に伴う拡散による放出
- (ハ) 原子炉の運転中に被覆層が破損（追加破損）した被覆燃料粒子からの放出

上記イ項については、この種の燃料の特性上、製造時の被覆層破損を全くゼロとすることはできないが、製造時の破損粒子割合は十分小さく管理できるので、破損粒子からの核分裂生成物の放出量は十分少ない。ロ項による核分裂生成物の放出は、核分裂生成物が健全粒子の被覆層中を拡散することによって生じるものであり、温度上昇に伴って増加するものの、被覆燃料粒子が健全である限りその放出量は十分少ない。そこで、燃料許容設計限界は、上記の核分裂生成物の閉じ込め性の劣化防止の観点から、ハ項の照射中における燃料粒子被覆層の破損を許容できる範囲に制限するよう定める。

### 4.2 異常高温時の燃料粒子被覆層の健全性に関する研究

#### (1) 国内における試験

HTTRで使用する国産燃料を異常時を模擬して昇温した場合の破損挙動は、以下の照射試験及び炉外試験によって調べられた<sup>(2)</sup>。

##### A. 照射試験

JMTRのキャプセル照射試験による異常時の昇温を模擬したトランジエント試験は鹿志村ら<sup>(2)(35)</sup>及び飛田ら<sup>(36)</sup>によって行われた。

トランジエント試験に使用するJMTR超高温キャプセルの概念図をFig.4.1<sup>(2)</sup>に示す。本

図に示すように、照射中に熱媒体を急速に移動させ、熱伝導率を変えることによって温度を急速に上昇させ、10時間前後高温状態に保持する試験が行われた。

このほかに、通常の密封キャップセルの照射中に、比較的短時間1600°Cを超える温度で照射した試験も行われた<sup>(36)(37)</sup>。

これらのトランジェント試験の照射条件及び結果をTable 4.1<sup>(35)(36)(37)</sup>に示す。この表に示した照射後の燃料破損率はいずれも  $2 \times 10^{-3}$  以下であり、この結果からみて、燃料最高温度1900°Cまでのトランジェント試験において、著しい燃料破損は生じなかつたと考えることができる。

## B. 炉外試験

非照射及び照射済みの被覆燃料粒子を用いて、異常時の昇温を模擬した加熱試験が行われた。現在までに行われた試験には、①小川ら<sup>(38)</sup>による照射済被覆燃料粒子の定速昇温加熱試験、②鹿志村ら<sup>(2)(35)(39)</sup>による非照射被覆燃料粒子の等温加熱試験、③林ら<sup>(2)(9)</sup>による照射済被覆燃料粒子の等温及び等時昇温加熱試験、④小川ら<sup>(2)(40)</sup>による非照射被覆燃料粒子入り模擬燃料コンパクト及び模擬燃料棒の加熱試験などがある。これらについて、実験方法及び結果を以下に示す。

(a) 照射済被覆燃料粒子の定速昇温加熱試験は、約100個の被覆燃料粒子を一定の昇温速度で加熱しながらHeガスでスイープする試験である。

昇温加熱中に燃料粒子被覆層の破損に伴って、気体状核分裂生成物(<sup>85</sup>Kr)が急激に放出される。そこで、被覆燃料粒子1個当たりの放射能の校正結果を用いて、燃料粒子被覆層の破損率が求められた<sup>(41)</sup>。試験に用いた被覆燃料粒子の照射条件はFig. 4.6中に示すとおりであり、燃焼度は32000～33000 MWd/tである。

定速昇温加熱試験の結果<sup>(38)</sup>をGAT社の結果と比較したものをFig. 4.2<sup>(38)(44)</sup>に示す。燃料の破損は1900°Cを超える温度で始まっており、1900°C以下では燃料の有意な破損は生じていない。

(b) 非照射の被覆燃料粒子の等温加熱試験は、Fig. 4.3<sup>(39)</sup>に示す装置で行われた。これは、黒鉛製の直接通電型発熱体内に、10個の被覆燃料粒子又は模擬燃料コンパクトを装荷して加熱し、加熱後に酸浸出、X線ラジオグラフィ等により破損率を求めるものである。

(c) 照射済被覆燃料粒子の等温加熱試験及び等時昇温加熱試験は、Fig. 4.4<sup>(9)</sup>に示す装置で1個の被覆燃料粒子について行われた。これらの試験における昇温速度は約10°C/sである。等時昇温加熱試験は、Fig. 4.5<sup>(9)</sup>に示すように、1400°Cから2200°Cまで2時間ずつ保持し、階段状に昇温保持したものである。これらの試験においては、燃料粒子被覆層の金属状核分裂生成物の保持能力を把握するため、黒鉛電極中に移行したCs等の金属状核分裂生成物の放射能を測定し、燃料からの放出割合が求められた。なお、これらの試験に用いた被覆燃料粒子の燃焼度は約9000 MWd/tである。

(d) 非照射被覆燃料粒子の等温加熱試験並びに照射済被覆燃料粒子の等温及び等時昇温加熱試験の結果を合わせてFig. 4.6<sup>(9)(39)</sup>に示す。また、照射済被覆燃料粒子(1個)の等温加熱及び等時昇温加熱試験の結果を各々Fig. 4.7<sup>(9)</sup>及びFig. 4.8<sup>(9)</sup>に示す。

いずれの結果においても、1900°C以下では燃料粒子被覆層の有意な破損は生じていない。

(b)の装置による加熱試験後の被覆燃料粒子の断面組織観察の結果、 $2100^{\circ}\text{C}$ で100時間の加熱後には異常は見られなかった<sup>(2)(39)</sup>。しかし、Fig. 4.9<sup>(2)(39)</sup>に示すように $2200^{\circ}\text{C}$ で51時間の加熱後にはSiC層の厚さが薄くなり、 $2500^{\circ}\text{C}$ で10秒間の加熱後にはSiC層中に気孔が発生していた<sup>(2)(39)</sup>。

(e) 非照射の被覆燃料粒子入り模擬燃料棒の加熱試験はFig. 4.10<sup>(2)(40)</sup>に示す試料を用いて行われた。このほかに、燃料コンパクトのみの加熱試験も行われた。試験は、He 気流中でこれらの試料を種々の昇温速度で加熱し、燃料粒子被覆層の破損に伴って放出される一酸化炭素(CO)ガスの放出を測定し、破損率を測定するという方法によって行われた。COガスは、高温において $\text{UO}_2$ から熱的に解離した酸素が被覆層の炭素と反応してCOとなるものであり、健全粒子では高密度熱分解炭素層及びSiC層がガス不透過であるため、被覆燃料粒子の内圧として働くが、被覆層が破損していると $\text{UO}_2$ と炭素との反応が進行してCOガスとして放出されるものである。

試験結果の一例をFig. 4.11<sup>(2)(40)</sup>に示す。この図に示した温度は二色式高温計による模擬燃料棒底面の温度であり、燃料コンパクトの真の温度は約 $100^{\circ}\text{C}$ 高いことが一連の校正実験から分かっている。

Fig. 4.11において、ノミナル温度 $2300^{\circ}\text{C}$ （補正温度約 $2400^{\circ}\text{C}$ ）以上で、破損率の急激な上昇が生じていることがわかる。加熱後の被覆燃料粒子の断面組織観察によって、SiCの熱分解によるSiC層破損が見られている<sup>(2)(40)</sup>。

Fig. 4.11には、健全な被覆燃料粒子内で発生するCOガス内圧とSiC層の熱的劣化を考慮したモデル<sup>(2)(40)</sup>に基いて計算された被覆燃料粒子の破損率を合わせて示している。実測値と計算値の妥当な一致が得られている。また、照射済の被覆燃料粒子の異常高温加熱試験との結果と上のモデルによる計算結果の妥当な一致も得られている。

更に、Fig. 4.11に示したものを受け、一連の実験により、被覆燃料粒子(ルース状)に比べて、燃料コンパクト、更に模擬燃料棒にすることにより、被覆燃料粒子の破損率の上昇が抑えられることがわかっている。

## (2) 海外における試験

異常高温における燃料粒子被覆層の破損については、西独及び米国においても多数の実験データが取得されている<sup>(42)~(45)</sup>。それらのうち代表的なものをFig. 4.12<sup>(43)</sup>及びFig. 4.13<sup>(44)</sup>に示す。

これらの図からわかるように、燃料粒子被覆層の破損率は、 $1800^{\circ}\text{C}$ まではほとんど零で、 $1800^{\circ}\text{C}$ 程度から徐々に増加し、約 $2200^{\circ}\text{C}$ 以上で急激に増加する。 $2200^{\circ}\text{C}$ を超えると、SiC被覆層の熱分解(熱的劣化)が急速に進み、これに伴って燃料粒子被覆層の破損が急速に進むため、気体状核分裂生成物( $^{85}\text{Kr}$ )の急激な放出が起こるものとされている。

## (3) 試験結果のまとめ

上述の国内における試験結果から、HTTRにおける最高到達燃焼度約 $33000\text{ MWd/t}$ についても、燃料粒子被覆層の有意な破損は $1900^{\circ}\text{C}$ 以下では生じないと見える。また、非照射および燃焼度約 $9000\text{ MWd/t}$ の被覆燃料粒子の試験結果において2時間以上の加熱によって有意な破損が検出されたのは、約 $2200^{\circ}\text{C}$ であることから見て、異常高温における燃料粒子被覆層の

破損に及ぼす燃焼度の影響は認められるものの、著しく大きなものではないと考えができる。

この燃焼度の影響については、上に述べた加熱後の被覆燃料粒子の断面組織観察結果、破損モデルによる破損率の計算値と実測値との妥当な一致等を考慮すると、次のように考えられる。すなわち、2000°C程度の異常高温における被覆層の破損は、SiCの熱分解に伴うSiO層の機械的強度の劣化と、核分裂生成物及びCOガスによる内圧の上昇が主な原因である。燃焼度の増加は、COガス圧に加えて、核分裂生成物による内圧の上昇や核分裂生成物によるSiC層の腐食等を通じて、被覆層破損の生じる温度の低下をもたらすことは考えられるが、その効果は著しく大きくないと判断することができる。

#### 4.3 異常な過渡変化時の燃料粒子被覆層の破損の判断基準

4.2節に述べた試験結果にもとづき、異常な過渡変化時の燃料粒子被覆層の判断基準を検討する。

燃料粒子被覆層の破損は、一般に温度と燃焼度（運転時間）で定まるが、運転時の異常な過渡変化では、その継続時間が限られているので、それまでの燃焼度にはあまり依存せず、異常な過渡変化時の温度とその継続時間によって被覆層の破損が決まると考えることができる。また、HTTRにおいては、燃料受入検査時に燃料の初期（製造時）破損率を十分低く抑えることから、通常運転時においてはHTTRでの燃焼度程度に最高燃焼度を制限した場合、殆んど温度によって被覆層の破損が決まると考えることができる。従って、HTTR条件下では温度が燃料粒子被覆層の破損に関する重要な因子となる。

上に述べたように、異常高温加熱試験の結果から、保守的に見ても、異常な過渡変化時において、燃料温度が1600°Cを超えない時には、燃料粒子被覆層の有意な破損は生じないと判断することができる。

また、通常運転時については、第3章及び後の4.4節(1)に示すように、燃料最高温度を制限するため、燃料粒子被覆層の追加破損は十分少ないと判断できる。

以上のことから、燃料許容設計限界の判断基準は、燃料粒子被覆層の破損を十分許容しうる小さな値とするために

「運転時の異常な過渡変化時において、燃料最高温度が1600°Cを超えないこと」とする。

ここで1600°Cという温度を採用するのは、HTTR申請書<sup>(3)</sup>に記述したように、異常な過渡変化時の事象の解析評価において、重要であると考えられる全ての場合について、燃料最高温度が1600°Cを超えることがなく、原子炉の運転の継続性の点で、このように設定することが合理的でありかつ十分保守的であるからである。

なお、1次冷却設備循環放射能量、燃料破損率等を判断基準とすることも考えられるが、これらは燃料破損の要因を直接制限することにはならないので、燃料許容設計限界の判断基準としては適切ではない。

#### 4.4 燃料許容設計限界以外の制限

##### (1) 通常運転時の制限

運転時の異常な過渡変化時において燃料最高温度が1600°Cを超えないようにするため、通常運転時の最高温度は1600°Cより低く制限する。また、通常運転時の燃料粒子被覆層の追加破損が、安全設計上許容される程の十分少ない量になるよう、通常運転時の燃料温度を制限する。このため、HTTRの設計においては、熱的制限値として、通常運転時の定格出力条件下での燃料最高温度を定める。

##### (2) 1次冷却材中の循環放射能

プラントの健全性の確保或いは一般公衆の放射線被ばくの低減という観点から、1次冷却材中の循環放射能量の制限を設け、この制限値に基づいてプラントの安全設計を行う。1次冷却材中の放射能量を求めるに際しては、被覆層が破損した燃料粒子が炉心内に一様に1%存在するものとし、システムティック及びランダムな工学的安全係数を考慮した燃料温度を用いて、燃料から1次冷却材中への気体状核分裂生成物の放出量を求め、その後、崩壊による減衰、1次ヘリウム純化設備による除去等を考慮して、循環放射能量が保守的（大きめ）になるように算出する。本方法によって算出された循環放射能量を運転上の制限値として、この制限値を超える場合は原子炉をスクラムする。

制限値は、被ばく評価上重要な希ガス核種の1次冷却系循環放射能量で約 $9.25 \times 10^{13}$  MeV·Bg (2,500 MeV·Ci)とし、1次冷却系循環放射能量の測定は、全ガンマ線モニタで行う。スクラム設定値は、解析等により、1次冷却系循環放射能量の制限値に等価な全ガンマ線量率を解析等により求めることによって定める。

#### 4.5 まとめ

以上の国内外における異常高温時の被覆燃料粒子の破損に関する実験結果に基づき、異常な過渡変化時の燃料許容最高温度は、HTTR条件下で想定される昇温速度の範囲では、昇温速度によらず安全余裕をみて1600°Cと定めることができる。

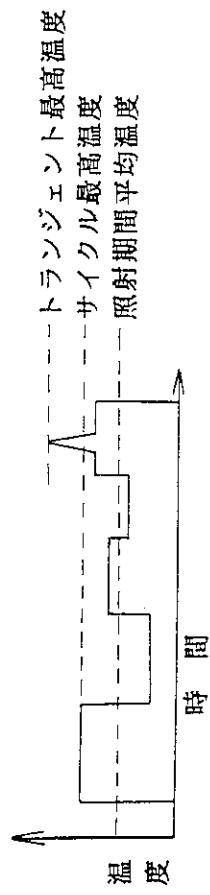
なお、異常な過渡変化時の燃料最高温度の評価に用いる初期値（通常運転時の燃料温度）は、出力分布や流量配分の不確かさ並びに原子炉熱出力の測定誤差等の系統的な性質を有するシステムティック因子及び製作公差、熱流動関係諸定数のばらつきなどの統計処理を行うランダム因子からなる工学的安全係数を用いて計算する。

また、事故時に燃料最高温度が1600°Cを超える場合は、安全余裕をもって燃料粒子被覆層の破損率を評価する。具体的には、HTTR申請書<sup>(3)</sup>の添付書類十の安全評価によれば事故時に1600°Cを超えるのは、燃料体内冷却材流路閉塞事故のみで、この時燃料最高温度は、約1653°Cまで上昇する。この場合の1600°Cを超えた部分の燃料粒子被覆層の破損率は、事故の継続時間が長いものとして、100%と評価する。

Table 4.1 Conditions and results of temperature transient irradiations of fuel compacts(35)(36)(37).

キャプセル名	種類	コンパクト 数 <sup>1)</sup>	燃料濃縮度 (%)	最大高速中性子量 (n/cm <sup>2</sup> , E>0.18MeV)	最大燃焼度 (MWd/t)	燃料温度 (°C) <sup>2)</sup>		照射後燃料 破損率 <sup>3)</sup>	照射前燃料 破損率 <sup>3)</sup>
						トランジット量 サイクル量	照射期間平均 サイクル量		
80F-6A	密封	16	8.0	$1.4 \times 10^{21}$	35,000	1,720	1,690	$1.8 \times 10^{-3}$	$4.6 \times 10^{-5}$
82F-2A		4	4.0	$7.7 \times 10^{20}$	13,000	1,600	1,510	$1.2 \times 10^{-4}$	$2.4 \times 10^{-5}$
79F-1A	密封 (温度急 上昇用)	5	8.0	$3.0 \times 10^{19}$	4,600	1,510	1,210	$1.2 \times 10^{-3}$	$2 \times 10^{-5}$
80F-5A		5	8.0	$1.0 \times 10^{20}$	9,100	1,520	1,250	$7.8 \times 10^{-5}$	$7.0 \times 10^{-5}$
83F-2A		5	4.0	$1.0 \times 10^{21}$	11,000	1,900	1,400	$1.7 \times 10^{-3}$	$5.5 \times 10^{-5}$

- 1) 1 コンパクト当たりの被覆燃料粒子数 約10,000~20,000個  
 2) 最高温度位置における温度であり、各温度は以下の定義による。



- 3) 酸浸出率の値

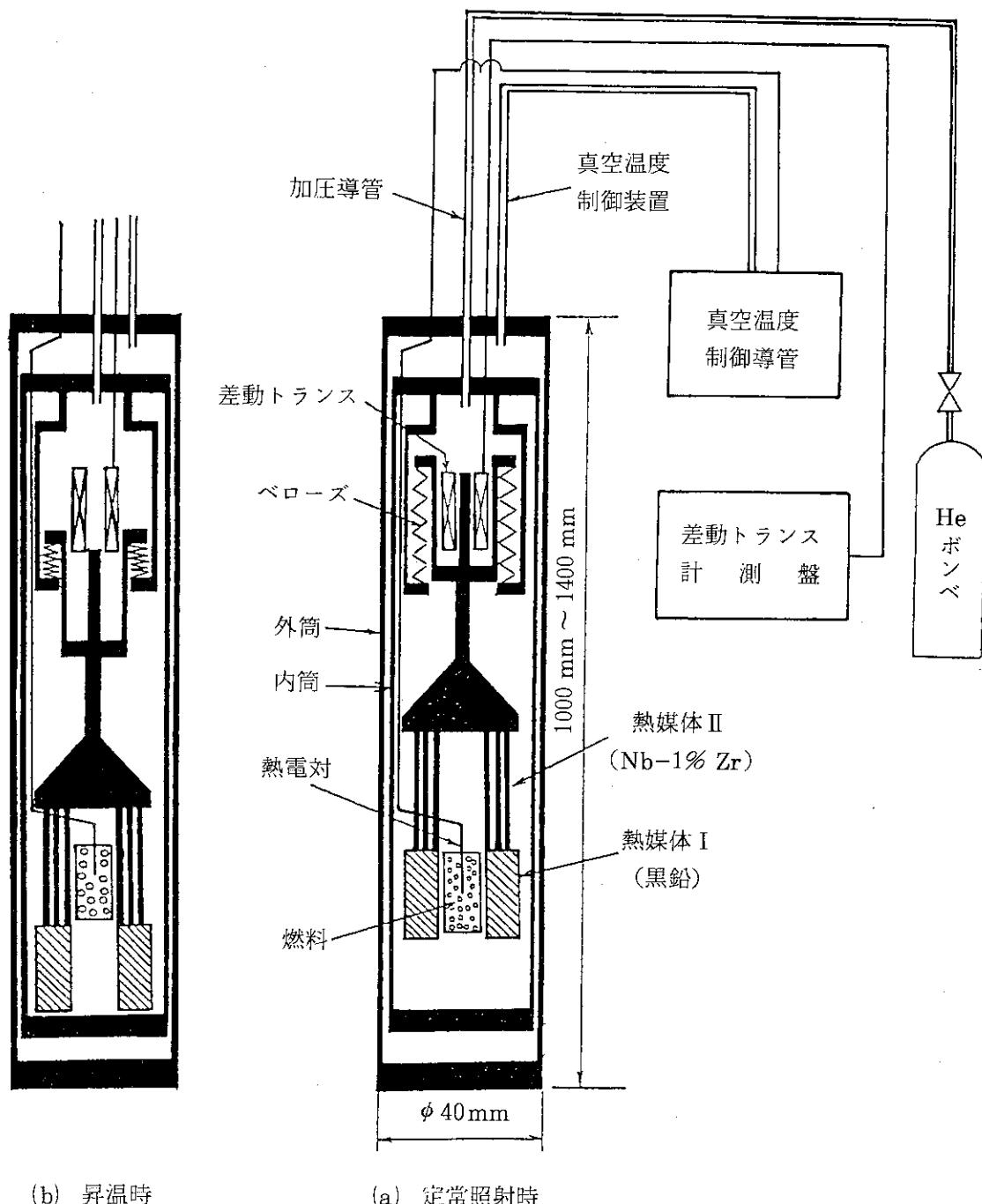


Fig. 4.1 Schematic drawing of transient capsule for irradiation in JMTR<sup>(2)</sup>.

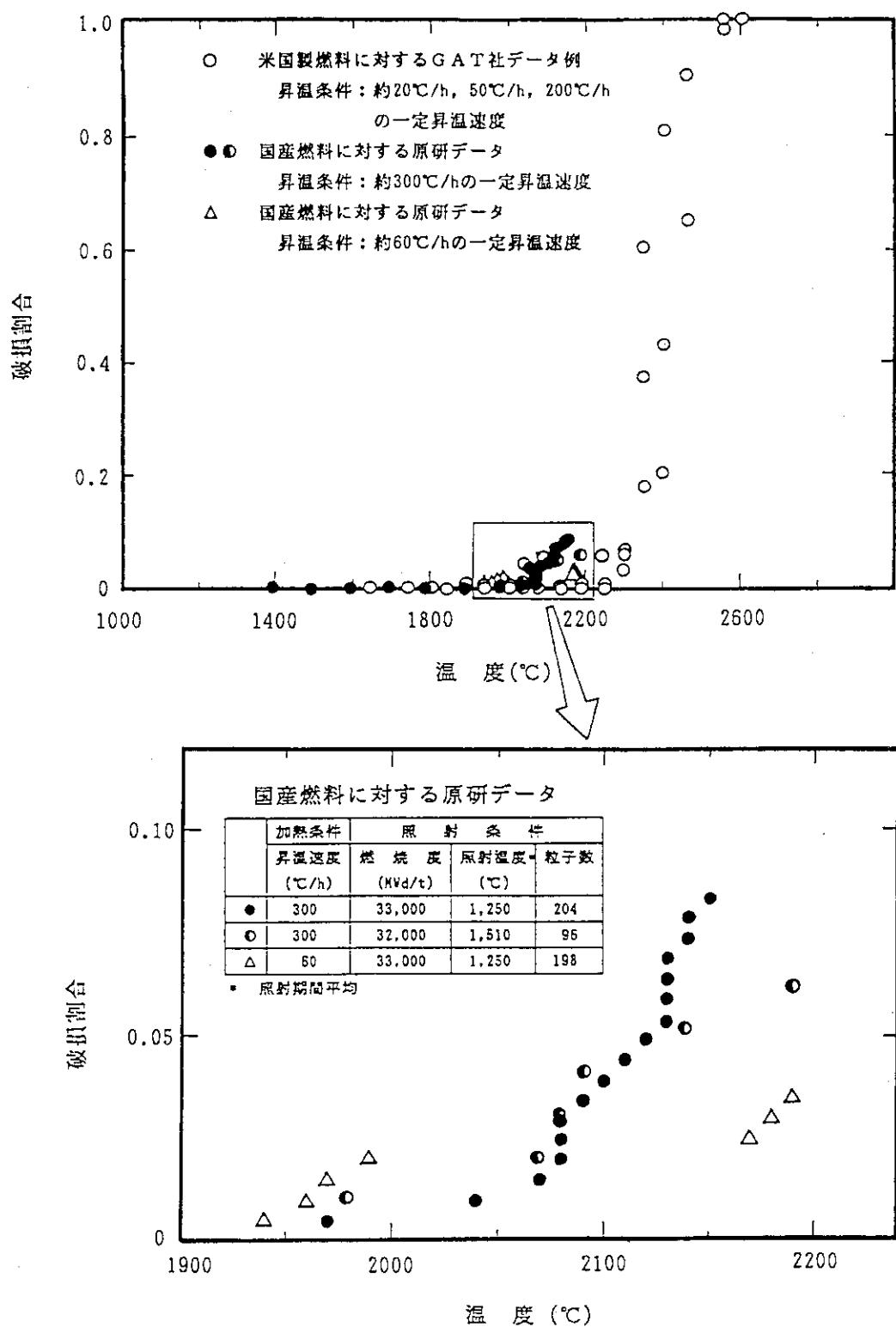


Fig. 4.2 Results of out-of-pile ramp test(38)(44);  
failure fractions were determined from  
 $^{85}\text{Kr}$  release peaks.

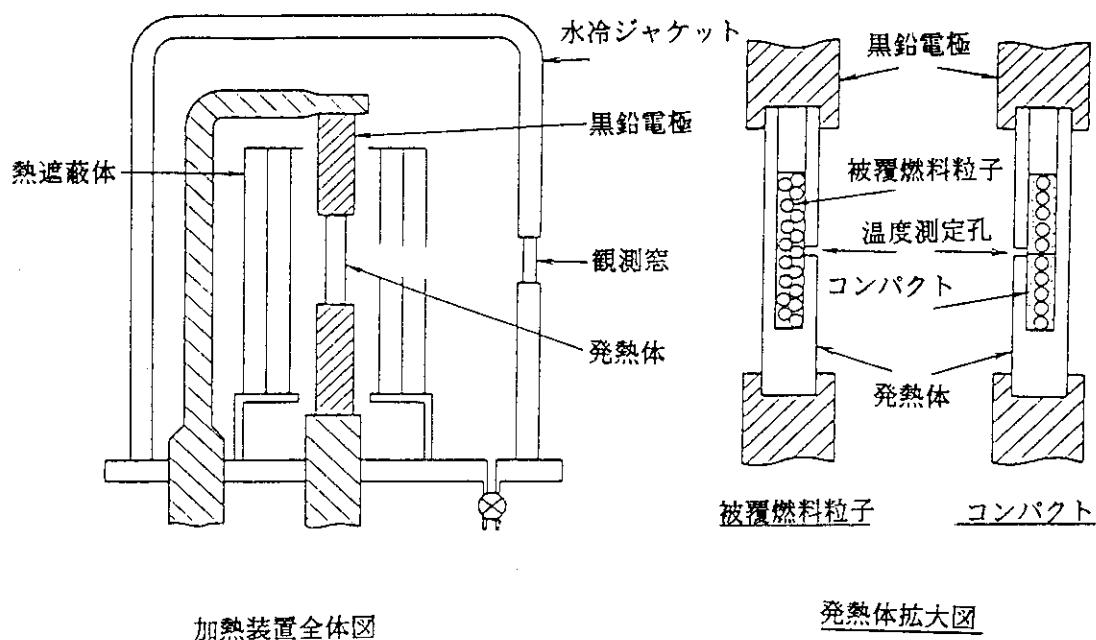


Fig. 4.3 Apparatus for isothermal heating of unirradiated  
coated fuel particles(39).

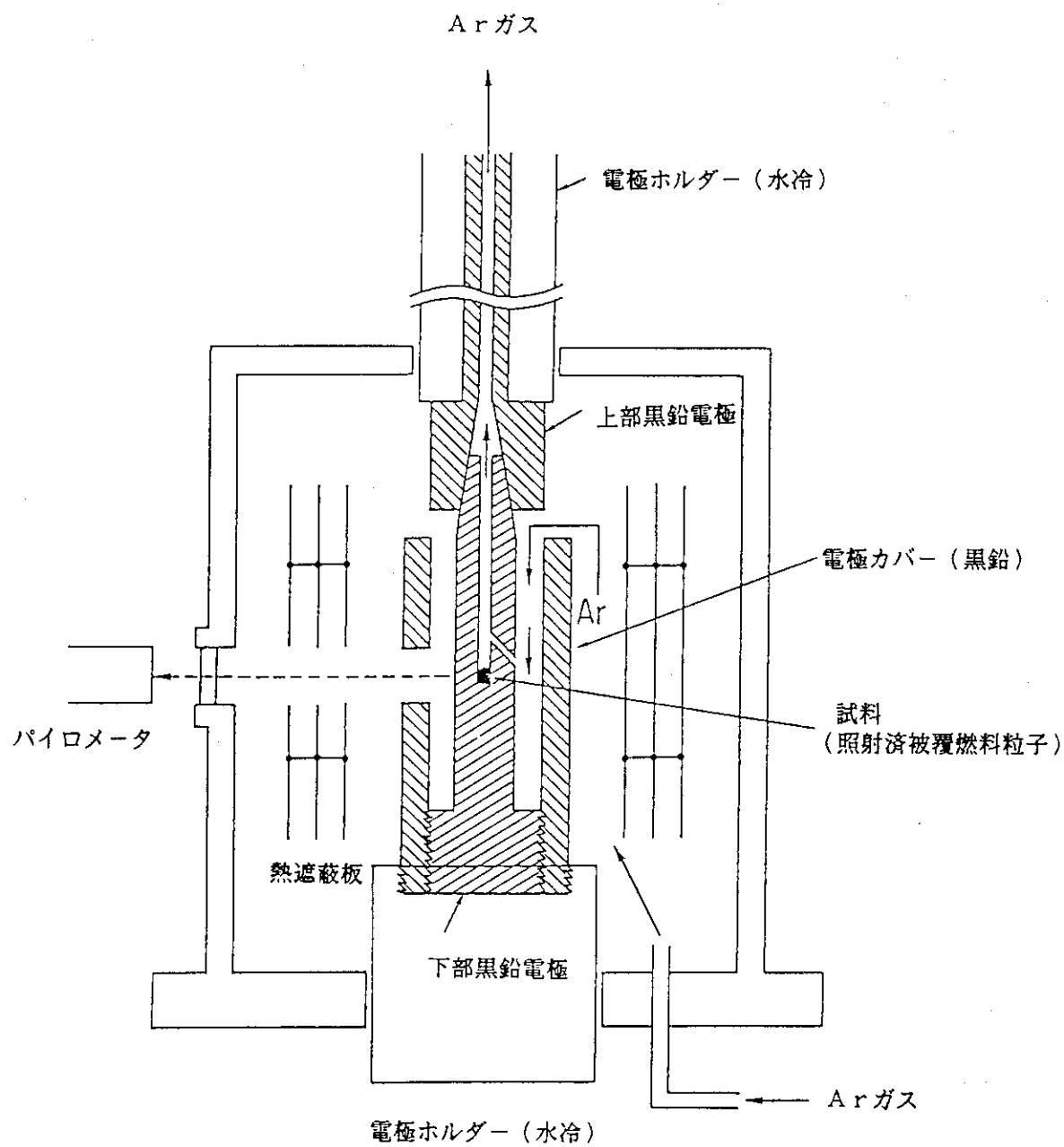


Fig. 4.4 Apparatus for isothermal and isochronal heating of single coated-fuel-particle irradiated(9).

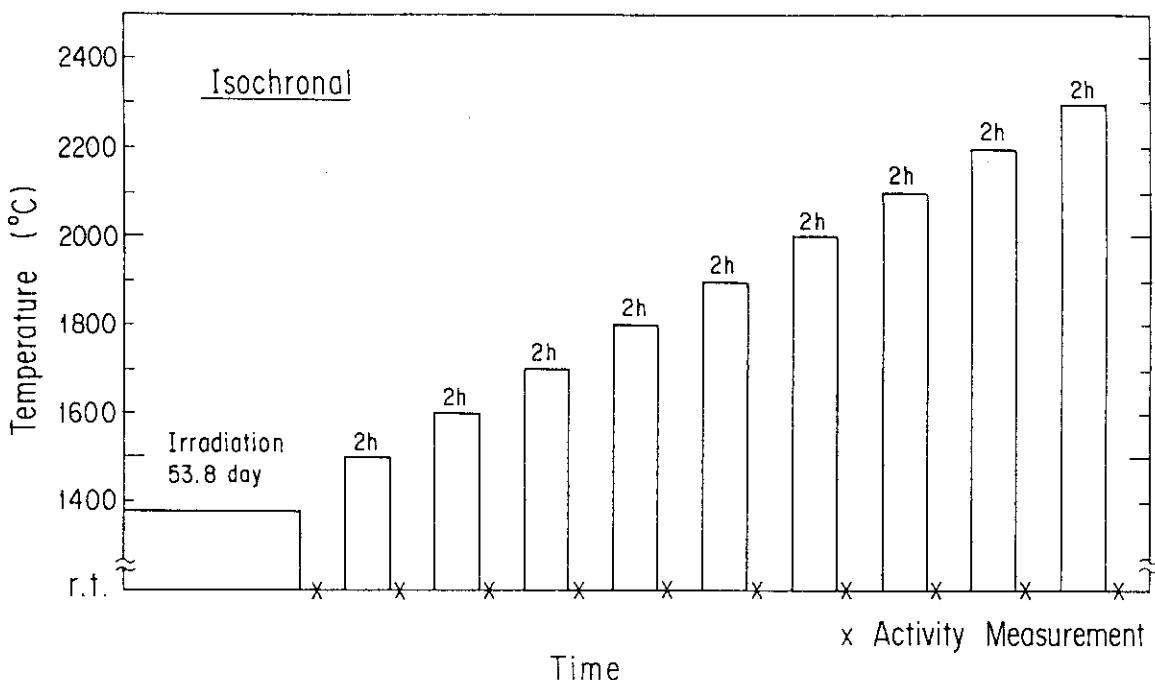
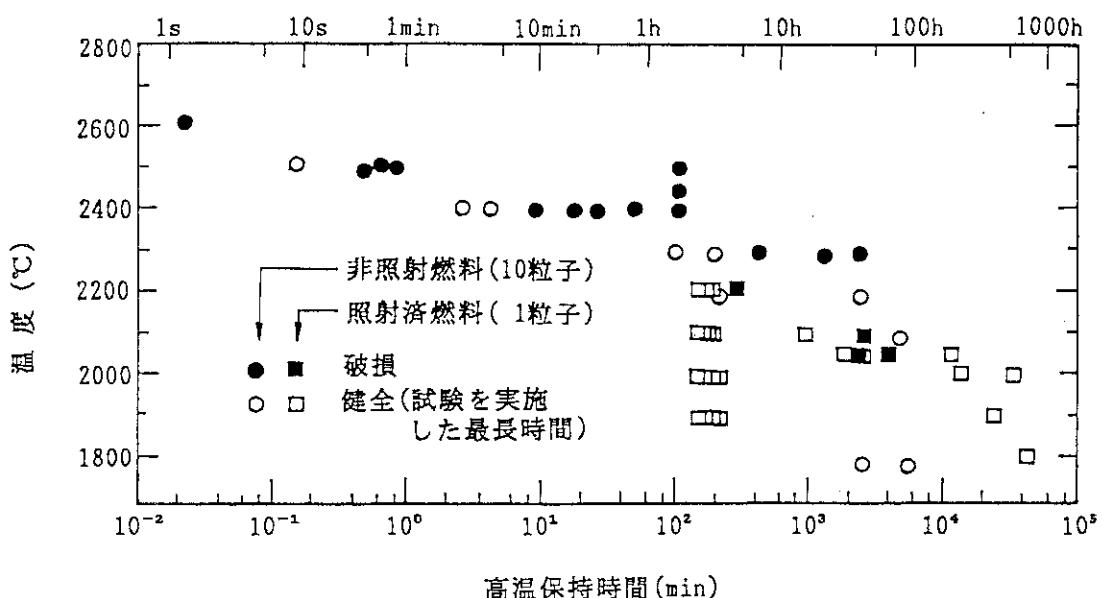


Fig. 4.5 Schematic drawing for isochronal heating of single coated-fuel-particle irradiated<sup>(9)</sup>.



非照射燃料は、10個の被覆燃料粒子を一度に加熱し、  
1個でも破損した場合には破損と見なした。

Fig. 4.6 Results of isothermal heating experiments simulating abnormal transient conditions; limits of survival temperature of domestic coated-fuel-particles as a function of holding time. (Results by apparatuses shown in figs. 4.3 and 4.4)<sup>(9)(39)</sup>.

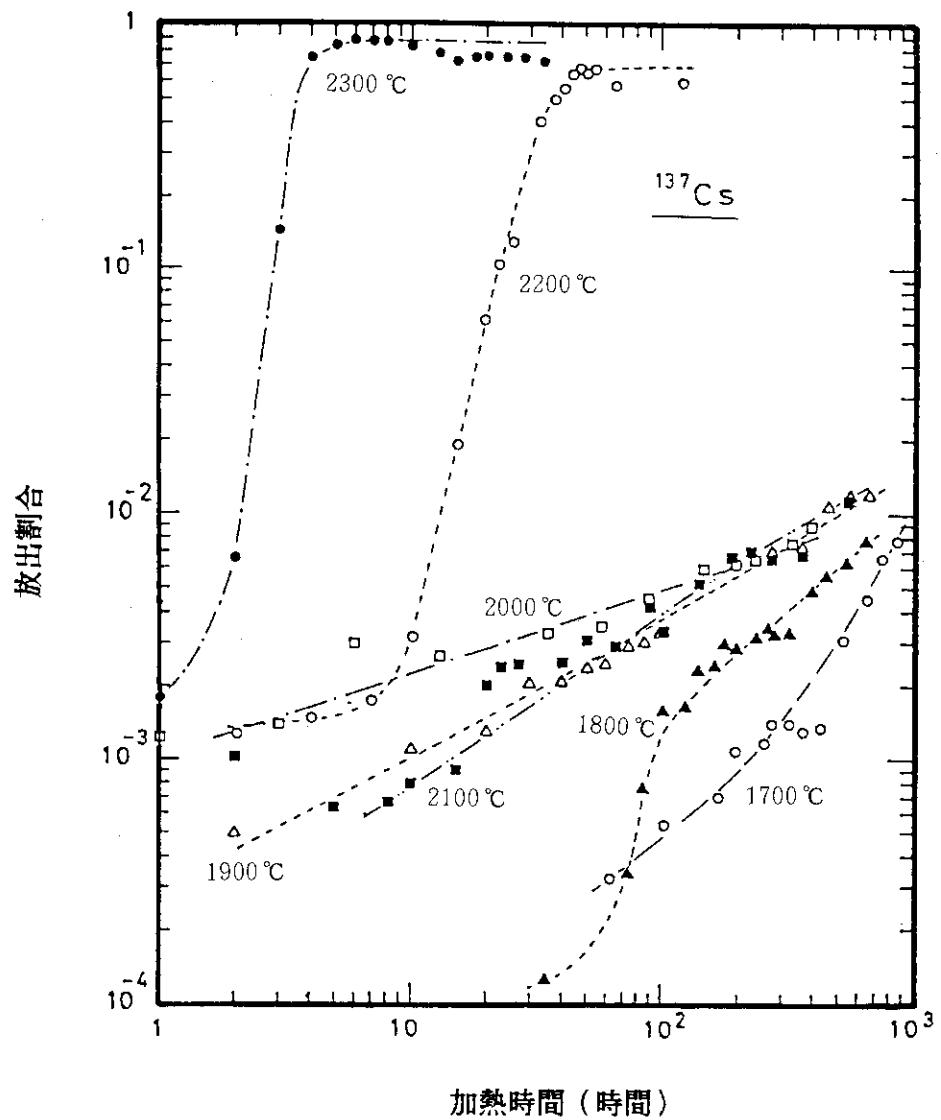


Fig. 4.7 Fractional release of  $^{137}\text{Cs}$  from coated fuel particles during isothermal heating (results by apparatus shown in fig. 4.4 for single particle)<sup>(9)</sup>; temperatures has been revised from ref.(9).

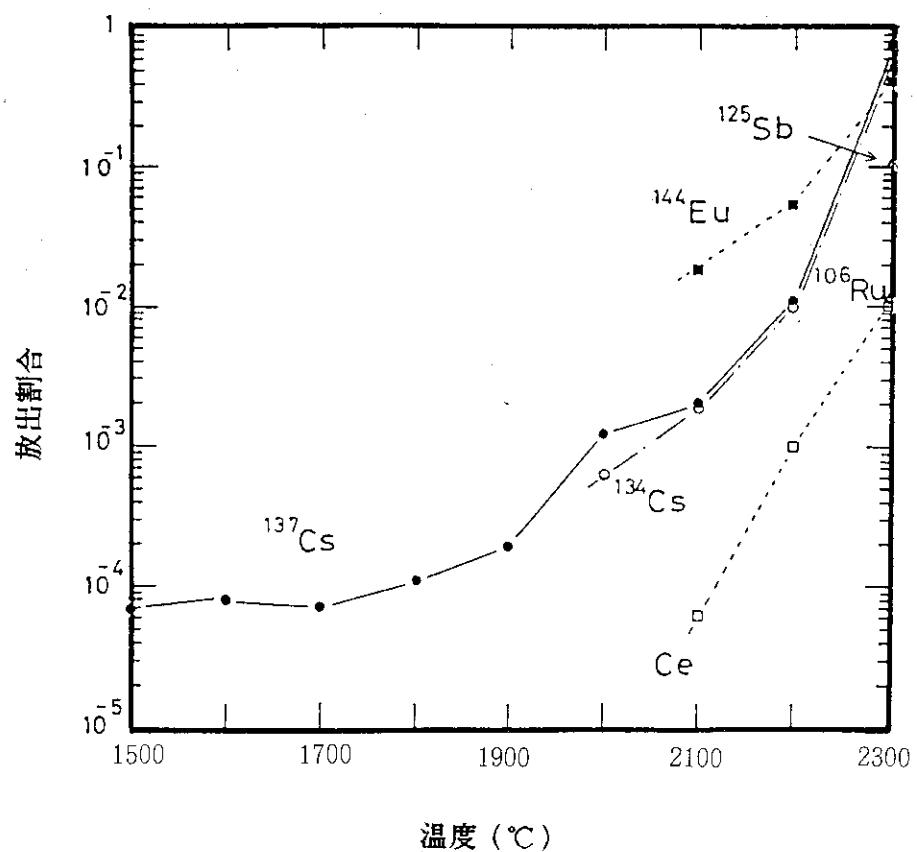


Fig. 4.8 Fractional releases of fission products from single coated-fuel-particle during isochronal heating for 2 h at each temperature. (Results by apparatus and heating history shown in figs. 4.4 and 4.5, respectively)<sup>(9)</sup>; temperatures have been revised from ref.(9).

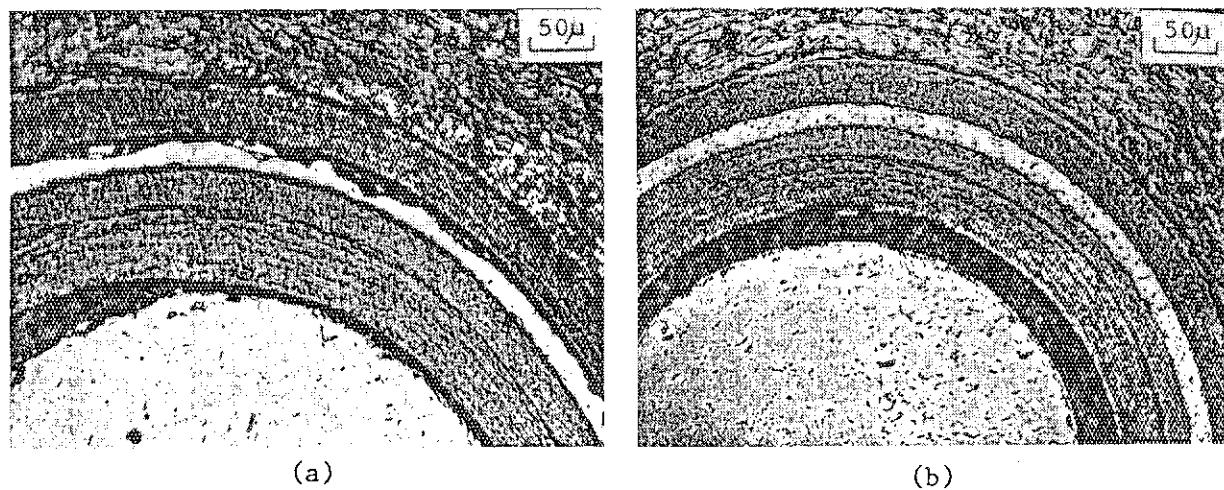


Fig. 4.9 Microphotographs of consolidated particles after heating  
(a) at 2200°C for 5h and (b) at 2500°C for 10s<sup>(2)</sup>.

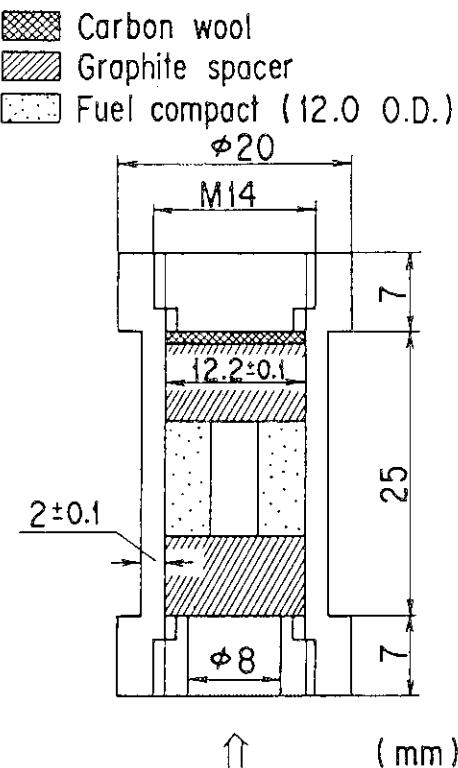


Fig. 4.10 Model fuel pin employed  
for accident simulation  
tests<sup>(2)(40)</sup>.

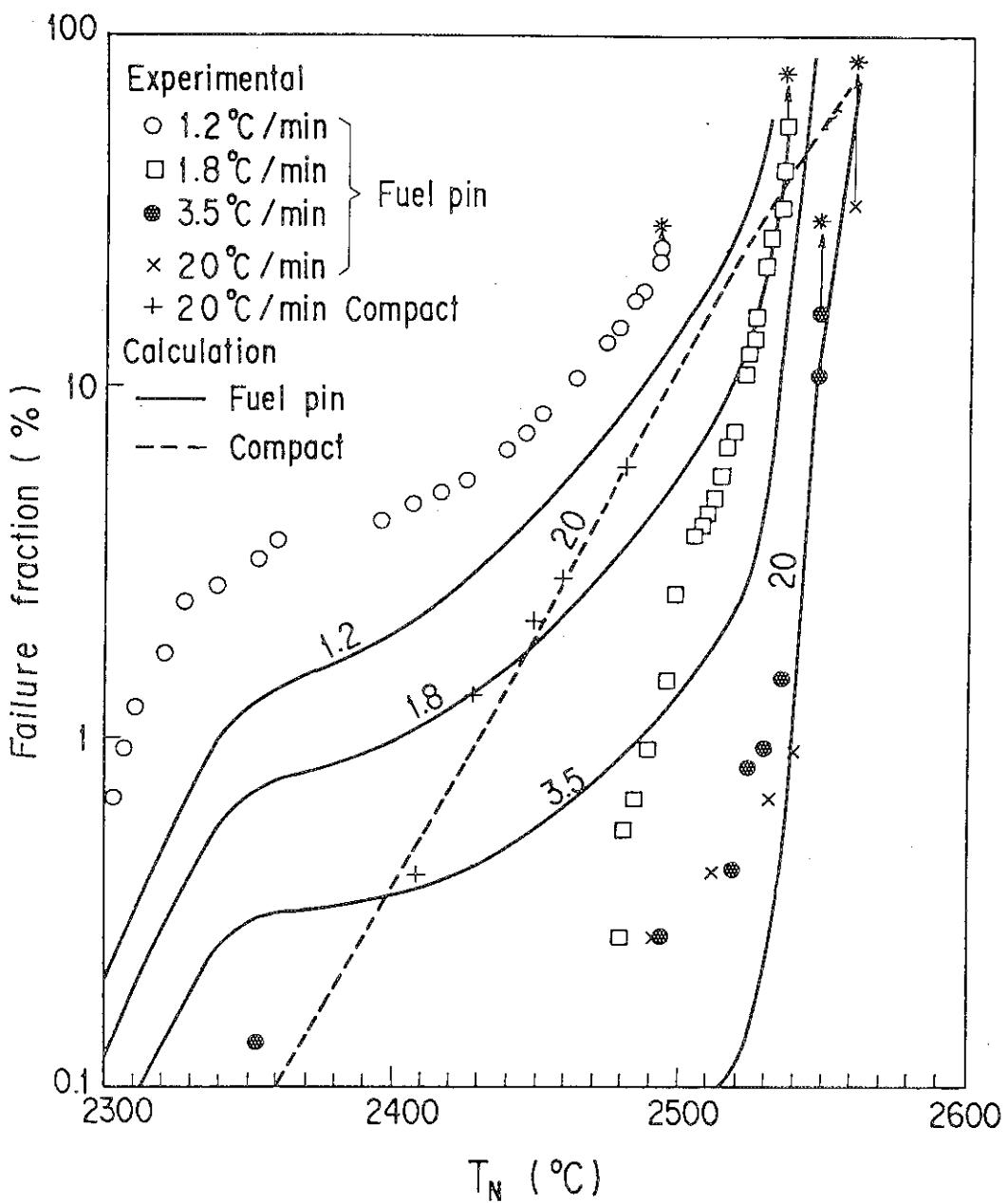


Fig. 4.11 Failure of coated fuel particles in model fuel pins during thermal ramp at  $1.2^\circ$  to  $20^\circ\text{C}/\text{min}$ . That in fuel compact without graphite sleeve at  $20^\circ\text{C}/\text{min}$  is also shown. Results of calculation by the proposed mechanistic model are shown by a dashed line for the compact and solid lines for the fuel pins<sup>(2)(40)</sup>.

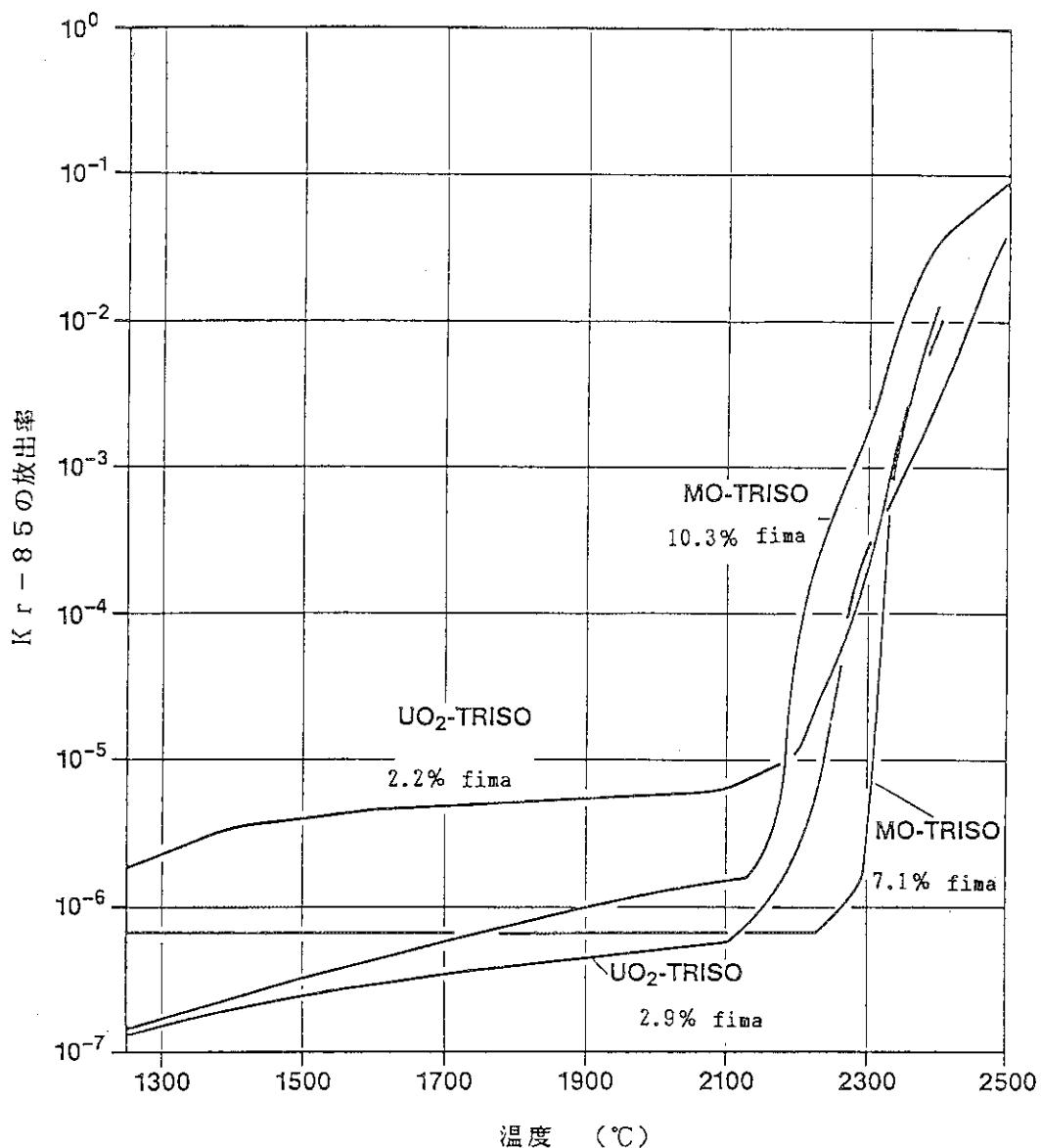


Fig. 4.12 Release of fission product ( $^{85}\text{Kr}$ ) during ramp heating (~50°C/h) of spherical fuel elements load with TRISO-coated fuel particles; MO =  $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$  mixed oxide fuel kernel (43).

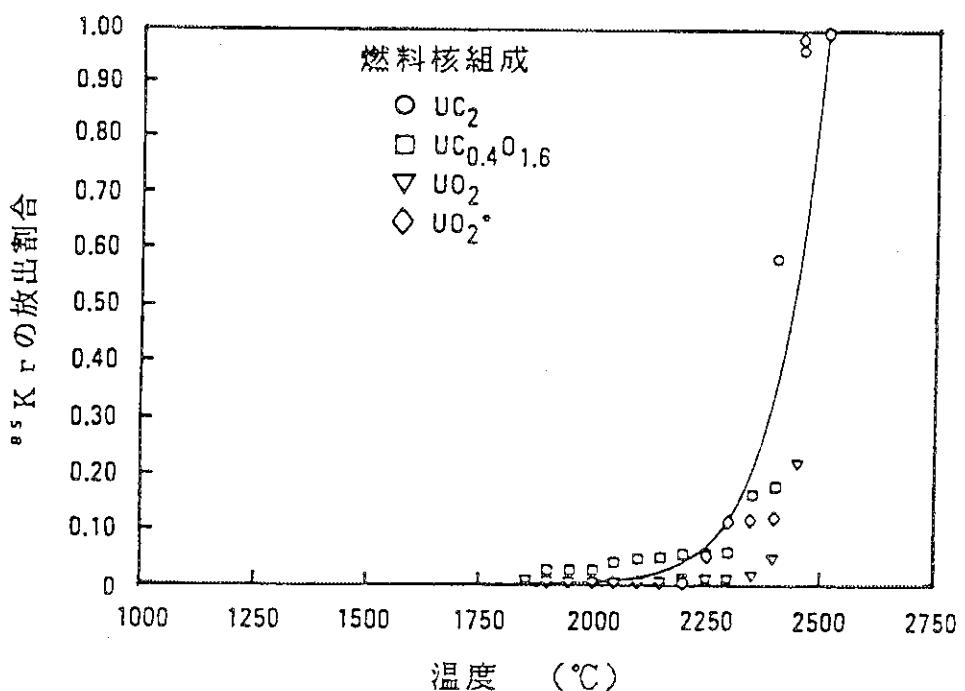


Fig. 4.13 Release of  $^{85}\text{Kr}$  as a function of temperature and kernel composition from LEU candidates tested under simulated accident conditions (tests at GAC, Inc., USA) (44).

## 5. ま　と　め

第1章 1.2.2項に述べた設計方針に対応して、A型燃料体の被覆燃料粒子及び燃料コンパクトの健全性の評価の結果を以下にまとめる。

- a. 高温試験運転を考慮したPdによるSiC層の腐食距離が厳しくなるのは、Fig. 3.17に示すB点の場合で、約 $11\mu\text{m}$ 程度であり、SiC層厚さ $25\mu\text{m}$ に比して小さい値である。また、同様に、燃料核の移動距離が厳しくなるのは、Fig. 3.17に示すA点及びB点の場合で、約 $55\mu\text{m}$ 程度であり、第3層までの被覆層の厚さ $90\mu\text{m}$ に比して小さい値である。更に、第3章のFig. 3.9に示したように、実際の運転を模擬した条件下での実験(OGL-1照射試験)によると、核分裂生成物の放出率は運転期間中ほぼ一定であり、照射中の有意な燃料粒子被覆層の追加破損はないことが確認されている<sup>(2)</sup>。以上のことより、運転中に発生する燃料粒子被覆層の有意な破損はないと評価できる。なお、有意な破損の基準は、HTTRの通常運転時における被覆燃料粒子の(貫通)破損率の制限値である $10^{-2}$ である。
- b. 第4章に示した異常高温時の燃料粒子被覆層の破損に関する実験結果から、燃料温度を $1600^\circ\text{C}$ 以下に制限すれば被覆燃料粒子破損率を許容しうる十分小さい値に抑えることができる。運転時の異常な過渡変化時における燃料最高温度は、HTTR申請書<sup>(3)</sup>添付書類十「2.運転時の異常な過渡変化の解析」に示すように $1600^\circ\text{C}$ を超えることはない。
- c. 3.2.5項に示したように、A型燃料体の燃料要素とほぼ同一の仕様の燃料要素についての照射試験実績より、燃料コンパクトの構造健全性は、使用条件において十分確保できると評価できる。

以上により、通常運転時及び運転時の異常な過渡変化時における被覆燃料粒子及び燃料コンパクトの健全性は確保できる。また、燃料許容設計限界として、「運転時の異常な過渡変化時において、燃料最高温度が $1600^\circ\text{C}$ を超えないこと」とすることは妥当である。

なお、黒鉛スリーブ、黒鉛ブロックを含めた燃料体全体の総合的健全性評価については、前報<sup>(1)</sup>の第6章にまとめた。

## 謝 辞

本報告書は、原研における約20年間にわたる高温ガス炉用燃料の研究開発の成果をもとに、HTTR用燃料としての燃料の健全性評価を行ったものである。これらの研究開発は燃料・材料工学部燃料照射研究室、大洗研究所材料試験炉部の計画課、照射第一課、照射第2課、照射第3課及びホットラボ課、東海研究所研究炉管理部ホットラボ管理室、技術部工作課を含む原研における多くの方々によって推進されてきたものである。

本報告書に述べた燃料の健全性の評価にあたって、燃料照射研究室の鹿志村悟氏には燃料核移動及び異常高温における燃料破損の研究方法及び結果等について、小川徹氏には異常高温における燃料破損の実験結果及び破損機構等について、飛田勉氏には密封キャップセル照射試験の結果等について、小林紀昭氏にはOGL-1照射中のFPガス放出率等について、湊和生氏にはPdによるSiC層の腐食の試験データ及び腐食モデル等について、菊地啓修氏には製造時の被覆層の欠陥に関する研究結果等について、各々貴重な知見の御教示を頂いた。

本報告書のもととなった資料作成にあたっては、高温工学試験研究炉部原子炉建設室及び計画室の方々の協力及び教示を頂いた。特に、原子炉建設室の佐藤貞夫氏には資料作成上の協力を頂いた。また計画室の数上幸夫室長にはHTTRの安全審査の過程で貴重な助言を頂き、また竹口省三氏及び瀬谷東光氏には資料作成のための助言や協力を頂いた。

本報告書の作成にあたっては、高温工学試験研究炉開発部の斎藤三次長及び田中利幸建設室長の激励を頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- (1) 林君夫, 他, “高温工学試験研究炉用燃料の設計方針, 製作性及び総合的健全性評価”, JAERI-M 89-161 (1989).
- (2) 福田幸朔, 他, “高温ガス炉用燃料に関する試験研究”, JAERI-M 89-007 (1989); 研究開発の歴史は p. 440.
- (3) 日本原子力研究所, “日本原子力研究所大洗研究所原子炉設置変更許可申請書〔HTTR(高温工学試験研究炉)原子炉施設の設置〕”, 1989.
- (4) 日本原子力研究所原子炉研修所, 原子炉研修所講義テキスト燃料編, 第Ⅱ分冊 (1984) p. 313.
- (5) 長谷川正義, 三島良績, 原子炉材料ハンドブック, 日刊工業新聞社 (1977) p. 221.
- (6) 岩本多實, “被覆粒子燃棒の概要と研究現状”, 日本原子力学会誌 15 (1973) p. 86.
- (7) W. V. Goeddel and J. N. Siltanen, "Materials for high-temperature nuclear reactors", Annual Review of Nuclear Science, vol. 17, pp. 189-252 (Annual Reviews, Inc., Palo Alto, 1967).
- (8) J. B. Sayers, "Behavior of fuels at high burn-up levels", Nucl. Eng. 9 (1964) p. 135.
- (9) 林君夫, 福田幸朔, “照射済被覆燃料粒子の異常高温加熱時の核分裂生成物放出挙動”, JAERI-M 89-003 (1989).
- (10) M. Wagner-Löffler, "Amoeba behavior of UO<sub>2</sub> coated particle fuel", Nucl. Technol. 35 (1977) p. 392.
- (11) 鈴木弘茂, 孫鳳根, 岩本多實, “被覆粒子燃料のアメーバ効果”, 日本原子力学会誌 18 (1976) p. 277.
- (12) 鹿志村悟, 足立守, 福田幸朔, “高温ガス炉用被覆粒子燃料のアメーバ効果挙動”, 日本原子力学会昭和63年年会 (1988年4月, 東工大) K 26.
- (13) T. D. Gulden, "Carbon thermal diffusion in the UC<sub>2</sub>-C system", J. Am. Ceram. Soc. 55 (1972) p. 14.
- (14) 湊和生, 他, “照射済被覆燃料粒子におけるPdとSiC層の反応”, 日本原子力学会昭和62年秋の大会 (1987年10月, 北大) J 74.
- (15) K. Minato, T. Ogawa, K. Fukuda, K. Ikawa and K. Iwamoto, "Electron probe micro-analysis of irradiated TRISO-coated UO<sub>2</sub> particles (II)", JAERI-M 84-002 (1984).
- (16) 湊和生, 私信.
- (17) T. Ogawa and K. Fukuda, "Reactions of Pd with SiC and ZrC", High Temp. Sci. 22 (1986) p. 179.
- (18) 難波隆司, 湊和生, 山脇道夫, 福田幸朔, “炭化ケイ素とパラジウムの反応に関する研究”, JAERI-M 87-218 (1987).

- (19) A. H. Booth and G. T. Rymer, "Determination of the diffusion constant of fission xenon in UO<sub>2</sub> crystals and sintered compacts", A.E.C.L. No.692 (1958).
- (20) Am. Nucl. Soc., "Americana national release of volatile fission products from oxide fuel", ANSI/ANS-5.4-1982.
- (21) 沢和弘, 藤井貞夫, 塩沢周策, 平野光将, "高温工学試験研究部における被覆燃料粒子の破損及びFP放出率の評価法", JAERI-M 88-258 (1988).
- (22) C. M. Lederer and V. S. Shirley ed., Table of Isotopes, 7th ed. (1978).
- (23) 菊池輝男, 他, "照射済被覆燃料粒子の内蔵ガス圧測定試験", 日本原子力学会昭和60年年会(1985年3月, 東京) K42.
- (24) 福田幸朔, 他, "OGL-1第3次, 第4次および第5次燃棒体の照射試験", JAERI-M 86-092 (1986) p. 100.
- (25) G. W. Horseeley, G. J. Weldrick, J. A. Turnbull and R. Shipp, "Influence of irradiation temperature, burnup, and fuel composition on gas pressure (Xe, Kr, CO, CO<sub>2</sub>) in coated particle fuels", J. Am. Ceram. Soc. 59 (1976) p.1.
- (26) 湊和生, 小林紀昭, 菊地啓修, 福田幸朔, "被覆燃料粒子の製造工程における破損機構", JAERI-M 86-083 (1986).
- (27) 例えば, 小林紀昭, 他, "OGL-1照射によるHTTR被覆粒子燃料からのFPガス及びヨウ素の放出挙動", 日本原子力学会昭和63年秋の大会(1988年10月, 神戸商船大) H8.
- (28) 小林紀昭, 私信.
- (29) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第23号", (原研未公開所内報) (1982) p. 57.
- (30) 丸山創, 藤本望, 山下清信, 村田勲, 新藤隆一, 数土幸夫, "高温工学試験研究炉用炉心熱流力設計", JAERI-M 88-255 (1988).
- (31) 丸山創, 私信.
- (32) 例えば, T. N. Tiegs, "Fission product Pd-SiC interaction in irradiated coated-particle fuels", Nucl. Technol. 57 (1982) p.389.
- (33) 例えば, O. M. Stansfield and F. J. Homan, "Interaction of fission products and SiC in TRISO fuel particles", GA-A 17183 (1983).
- (34) K. Bongartz and H. Nabielek, "A universal model for coated particle failure", SMiRT paper C4/2 (1981).
- (35) S. Kashimura, T. Ogawa, K. Fukuda and K. Iwamoto, "HTGR fuel behavior at very high temperature", JAERI-M 86-046 (1986).
- (36) 飛田勉, 他, "高温ガス炉用燃料コンパクトの照射挙動", 日本原子力学会昭和62年年会(1987年4月, 名大工) G31.

- (37) 鹿志村悟, 私信.
- (38) 小川徹, 湊和生, 足立守, 福田幸朔, "被覆燃料粒子の超高温加熱試験(Ⅲ)ランプ加熱試験結果", 日本原子力学会平成元年年会(1989年3月, 阪大) H15.
- (39) S. Kashimura and K. Ikawa, "Survival temperature limit of unirradiated coated fuel particles", JAERI-M 85-068 (1985).
- (40) T. Ogawa and K. Fukuda, "Performance of the model fuel pin of the very high-temperature gas-cooled reactor at temperatures above 2000°C", Nucl. Eng. Des. 92 (1986) p.15.
- (41) 小川徹, 私信.
- (42) W. Schenk, A. Naoumidis and H. Nickel, "The behavior of spherical HTR fuel elements under accident conditions", J. Nucl. Mater. 124 (1984) 25.
- (43) W. Schenk, D. Pitzer and H. Nabielek, "Fission product release profiles from spherical HTR fuel elements at accident temperatures", Jü1-2234 (1988); Jü1-2091 (1986) (in German).
- (44) D. T. Goodin, "Accident condition performance of fuels for high-temperature gas-cooled reactors", J. Am. Ceram. Soc. 65 (1982) p.238.
- (45) H. Nabielek, W. Schenk, W. Heit, A.-W. Mehner, D. T. Goodin, "The performance of high-temperature reactor fuel at extreme temperatures", Nucl. Technol. 84 (1989) p.62.

## 付録 1 被覆燃料粒子の被覆層の機能に関する補足

- 〔A〕 照射に伴う被覆燃料粒子と黒鉛素地の隙間の発生について
  - 〔B〕 燃料核のスウェーリングについて
  - 〔C〕 健全な被覆燃料粒子からの気体状核分裂生成物の放出について
- 文献

### 〔A〕 照射に伴う被覆燃料粒子と黒鉛素地の隙間の発生について

照射後の燃料の状態を示す例として、密封キャップセル（82F-1A）で照射した燃料コンパクトの断面組織をFig.A 1. 1 に示す<sup>(1)</sup>。この図から分かるように、被覆燃料粒子と黒鉛素地の間に隙間は生じていない。

HTTRの高速中性子照射量範囲では、燃料コンパクトはFig.A 1. 2 に示すようにわずかに収縮する<sup>(2)</sup>。これは、主に照射に伴う黒鉛素地の照射収縮を表わしているものと考えることができる。被覆燃料粒子と黒鉛素地の間に隙間が生じないのは、この黒鉛素地の照射収縮の効果であると考えられる。

本文、Fig. 2. 7 及び Fig. 2. 8 に示したSiC及び高密度熱分解炭素（PyC）の高速中性子照射による寸法変化は無拘束状態のものである。

実際の被覆燃料粒子の状態においては、強度が最も大きな被覆層であるSiCの照射寸法変化が小さいため、被覆燃料粒子全体の寸法変化は殆ど生じず、黒鉛素地の照射収縮の効果が支配的となって、被覆燃料粒子と黒鉛素地の間に隙間が生じないものと考えることができる。

### 〔B〕 燃料核のスウェーリングについて

HTTRに用いる被覆燃料粒子の燃料核は軽水炉等で使用されているのと同様な低濃縮UO<sub>2</sub>燃料（95%理論密度）である。従って、その照射によるスウェーリング挙動については、通常のUO<sub>2</sub>燃料のデータ<sup>(3)</sup>が適用でき、HTTRの最大燃焼度では燃料核の体積膨張率は数%程度（線膨張率は2%程度）であると評価できる。このため、燃料核のスウェーリングが低密度熱分解炭素層に機械的荷重を与える可能性がある。

しかし、燃料核のスウェーリングと同時に、高速中性子照射による低密度熱分解炭素の収縮も起こる。また、低密度熱分解炭素層は、高密度熱分解炭素層及びSiC層に比べて強度が小さく<sup>(4)</sup>、多孔質であることから、燃料核から荷重が作用する場合にはクリープ変形等によりスウェーリングを吸収するものと考えられる。即ち、燃料核の線膨張率が2% (6 μm)の場合、低密度熱分解炭素が半径方向に約10%収縮すれば、燃料核のスウェーリングは吸収できることになる。これは、低密度熱分解炭素層の被期密度、約1.1 g/cm<sup>3</sup>が、約1.2 g/cm<sup>3</sup>になることに相当しており、照射下では十分可能な収縮量である<sup>(5)</sup>。

以上のことより、HTTRの条件下では、燃料核のスウェーリングが被覆層に対して機械的荷重を与える、被覆層を破損させることは考え難い。事実、これまでの通常運転時を模擬したHTTR燃料に関する実験において、スウェーリングによる破損を含めて、有意な破損率の増加は認められていない。

### [C] 健全な被覆燃料粒子からの気体状核分裂生成物の放出について

HTTR用燃料の照射中の気体状核分裂生成物の放出は、被覆層が破損した被覆燃料粒子（破損粒子）、健全な被覆燃料粒子（健全粒子）及び燃料コンパクトの黒鉛素地中の汚染ウランによる放出から成る。実際には、破損率の検査において、破損率とウラン汚染を区別して求めることはできず、両者の和としての露出ウラン率が酸浸出法によって求められる。

福田らによって求められたOGL-1燃料照射中の<sup>88</sup>Krの放出率（R/B）<sup>(6)</sup>と照射後燃料破損率<sup>(7)</sup>の関係をFig.A 1.3に示す。この図から、放出率は破損率にはほぼ比例して増加することがわかる。

また、破損率が $10^{-4}$ 以下のとき、放出率は $10^{-6}$ 以下であることが分かる。この時の<sup>88</sup>Krの放出源は、ごくわずかの破損粒子、汚染ウラン及び健全粒子であるから、健全粒子だけからの<sup>88</sup>Krの放出率は $10^{-6}$ より小さいと言える。

一方、破損率が $10^{-4}$ より十分大きい時には、気体状核分裂生成物の放出は破損粒子からの放出に支配され、健全粒子からの放出は無視できる。

### 文 献

- (1) 飛田勉、私信。
- (2) 林君夫、他，“OGL-1燃料体の燃料コンパクトと黒鉛スリープの照射寸法変化”，JAERI-M 88-107 (1988) p.47.
- (3) 三島良績、編、核燃料工学（昭和47年、同文書院）p.245.
- (4) T. G. Godfrey et al., "Coated particle fuels", ORNL-4324 (1968) p.55.
- (5) J. L. Kaae, "Irradiation-induced microstructural changes in isotropic pyrolytic carbons", J. of Nucl. Mater. (1975) p.82.
- (6) 福田幸朔、他，“高温ガス炉用燃料に関する試験研究”，JAERI-M 89-007 (1989) p. 104.
- (7) 同 上, p.273.

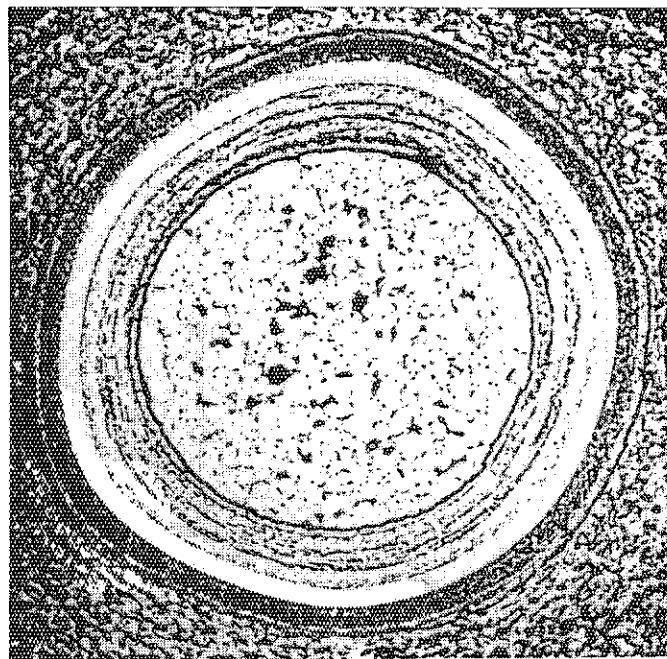


Fig. A1.1 Ceramography of fuel compact irradiated in 82F-1A (closed) capsule<sup>(1)</sup>.

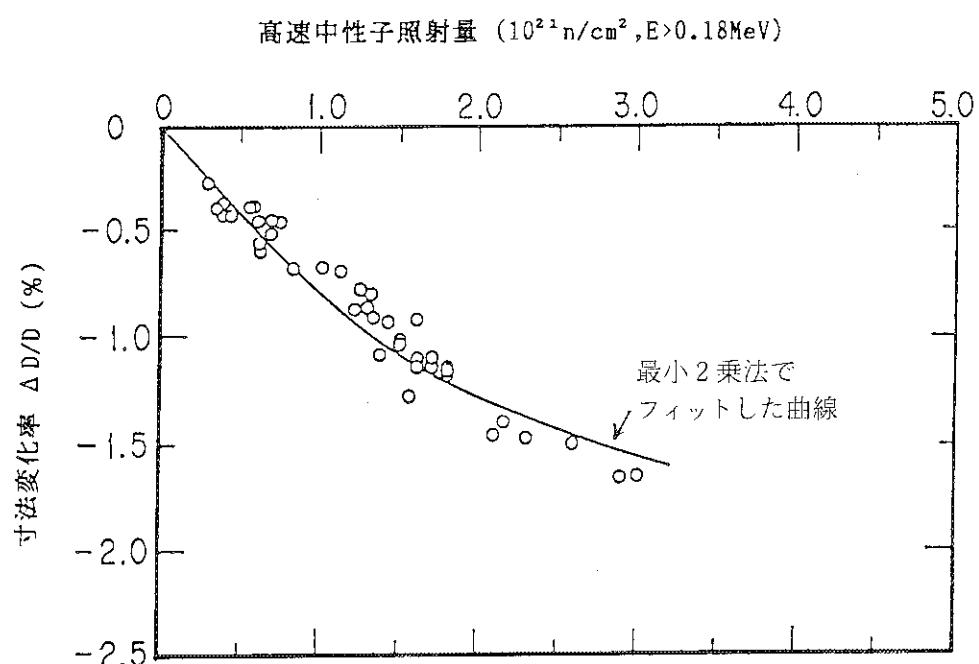


Fig. A1.2 Relationship between dimensional change of outer diameter of fuel compacts and fast-neutron fluence<sup>(2)</sup>.

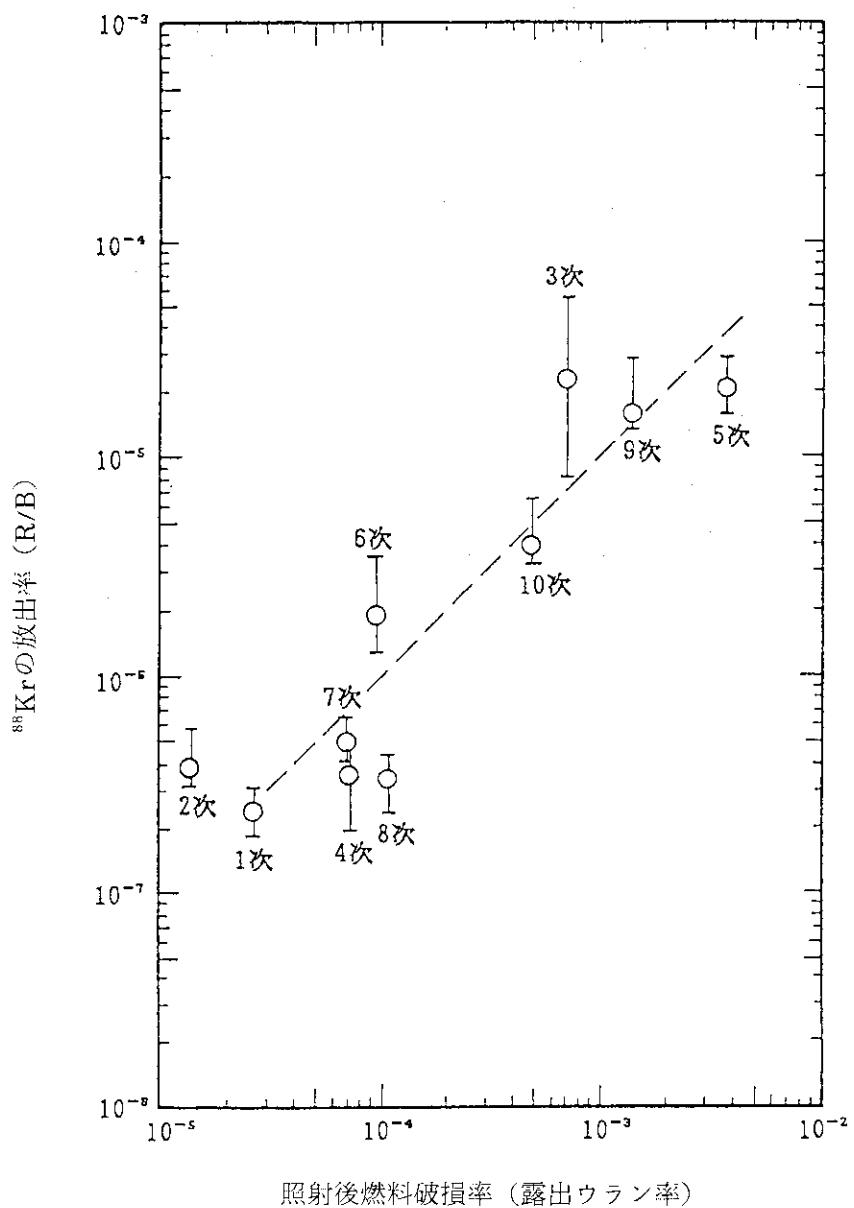


Fig. A1.3 Relationship between fuel failure fraction and release ( $R/B$ ) of  $^{88}\text{Kr}$ .  
(range and average of measured values of  $R/B$ ).

## 付録2 通常運転時の燃料の健全性に関する補足

- 〔A〕 燃料粒子被覆層の破損の評価に使用する温度
- 〔B〕 燃料核移動（アーベバ効果）の機構について
- 〔C〕 燃料照射試験における温度測定精度について
- 文献

### 〔A〕 燃料粒子被覆層の破損の評価に使用する温度

燃料核の移動距離、PdによるSiC層の腐食距離等を算出するために用いる温度は、出力分布や流量配分の不確かさ及び原子炉熱出力の測定誤差等の系統的な性質を有する工学的安全係数を考慮して、次に示す式を用いて計算する。

$$T = T_{gin} + \sum_{i=1}^5 (f_i \cdot \Delta T_i)$$

ここで、T：燃料温度

$T_{gin}$ ：炉心入口冷却材温度

$\Delta T_i$ ：温度差又は温度上昇

$f_i$ ： $\Delta T_i$ に係る因子

i=1：冷却材温度上昇

2：膜温度差

3：被覆部温度差

4：ギャップ温度差

5：燃料部温度差

である。

温度差又は温度上昇に係る因子 $f_i$ は、次の式により求める。

$$f_i = \prod_{j=1}^{n(i)} S_{i,j}$$

ここで、 $S_{i,j}$ ： $\Delta T_i$ に係る系統的性質を有するシステムティック因子

$n(i)$ ： $\Delta T_i$ に係る $S_{i,j}$ の数

である。

被覆燃料粒子の破損評価用温度計算に用いる工学的安全係数の項目と値をTable A 2.1に示す。

なお、工学的安全係数( $f_i$ )をすべて1.0とした場合、燃料最高温度は約100°C低下し、約1,330°Cとなる。この時、燃料核の移動距離の最大値は、約30 μmとなる。また、上記温度に対する工学的安全係数の他、同計算において使用している燃焼度に対する工学的安全係数を考慮しない場合のPdによるSiC層の腐食距離の最大値は、約8 μmとなる。

〔B〕 燃料核移動（アーベル効果）の機構について<sup>(1)</sup>

## 1. 概要

燃料核移動（アーベル効果）の機構は、炭化物（ $UC_2$ ）燃料核被覆燃料粒子については確立されている。即ち、燃料核固相中の炭素の熱拡散（温度勾配を駆動力とする拡散）とされ、実測データは燃料核移動速度係数（KMC）で整理できる。

一方、酸化物（ $UO_2$ , (U, Th)O<sub>2</sub>, ThO<sub>2</sub>）燃料核被覆燃料粒子については、確定的ではないが、燃焼に伴う遊離酸素の燃料核固相中の拡散が律速であると考えるのが妥当であるとされている。この場合、燃料核の移動速度は炭化物燃料核の場合と同じ形式のKMCによって表現される。

2. 炭化物燃料核の場合<sup>(2)</sup>

炭化物燃料核の場合には、非照射でも、高温でかつ温度勾配が大きいときには燃料核移動が生じる。このことと、Gulden<sup>(2)</sup>の以下に示すような  $UC_2-C$  系の熱拡散測定から、燃料核移動は炭化物燃料核中の炭素の固体熱拡散機構によると考えられている。

Guldenは、熱分解炭素を両面に被覆した  $UC_2$  ディスクを加熱することによって、Fig.A 2.1 に示したように、低温側界面に黒鉛層が析出し、 $UC_2$  が高温側に移動することを見出し、次のように解析した。

温度勾配  $dT/dx$  のもとでは、炭素流束  $J_c$  は理論的に

$$J_c = -D_c \left( \frac{\partial n_c}{\partial x} + \frac{Q^*}{1 + \partial \ln r / \partial \ln n_c} \frac{n_c}{RT^2} \frac{dT}{dx} \right) \quad (A2-1)$$

で与えられる。ここで、

$D_c$  :  $UC_2$  中の炭素の拡散係数 ( $m^2/s$ )

$n_c$  :  $UC_2$  中の炭素の濃度 ( $mol/m^3$ )

$r$  : 活動度係数 (-)

$Q^*$  : 輸送熱 ( $J/mol$ )

であり、ウラン原子は固定しているものと考えている。(A2-1) 式の右辺第1項は濃度勾配による拡散、右辺第2項は温度勾配による拡散（熱拡散）を表現している。

Guldenは、温度勾配を逆にした測定などによって (A2-1) 式の濃度拡散の項は熱拡散の項に対して無視できることを確かめた。したがって、(A2-1) 式は、

$$J_c = \frac{-D_c Q^*}{1 + \partial \ln r / \partial \ln n_c} \frac{n_c}{RT^2} \frac{dT}{dx} \quad (A2-2)$$

となる。ここで、

$$D_c^* = \frac{D_c}{1 + \partial \ln r / \partial \ln n_c}$$

とおく。この  $D_c^*$  は考へている濃度領域における炭素の  $UC_2$  中の拡散係数 ( $m^2/s$ ) である。これより、 $UC_2$  燃料核の移動速度 KMR は、黒鉛のモル体積を  $\Omega_c$  ( $m^3/mol$ ) として

$$KMR = -J_c \Omega_c$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{D_c^* Q^* n_c \Omega_c}{RT_2} \frac{dT}{dx} \\
 &= KMC \cdot \frac{1}{T^2} \frac{dT}{dx} \tag{A2-3}
 \end{aligned}$$

となる。すなわち、KMCは、

$$\begin{aligned}
 KMC &= \frac{Q^* n_c \Omega_c D_c^*}{R} \\
 &= KMR \cdot T^2 / \frac{dT}{dx} \tag{A2-4}
 \end{aligned}$$

であり、燃料核移動の起りやすさを表す指標として用いられる。また、輸送熱 $Q^*$ が温度によって変わらないと仮定すると、

$$KMC = a_0 \exp(-\Delta H/RT)$$

$a_0$  : 定数 (温度が無限大のときのKMCの値) ( $K \cdot m^2/s$ )

$\Delta H$  : 活性化エネルギー ( $J/mol$ )

のように書ける。Fig.A 2.2 に示すように、炭化物燃料核ではこの関係がよく成立している<sup>(3)</sup>。

### 3. 酸化物燃料核の場合<sup>(4)</sup>

酸化物燃料核のアメーバ効果の機構は、炭化物燃料核の場合より複雑である。酸化物燃料核の場合には、照射した場合にのみアメーバ効果が見られることから、核分裂に伴って生じる遊離酸素がその原因と考えられている。

高温側の熱分解炭素が低温側に輸送される機構としてはFig.A 2.3 に示した種々の機構、輸送経路が考えられている<sup>(5)</sup>。基本的には、高温側炭素が一酸化炭素(CO)の気体拡散によって低温側に輸送され、これを補う酸素が、固溶体酸素または $CO_2$ の形で低温側から高温側に輸送されるサイクルである。

#### a) 酸素の固相熱拡散

上記のとおり、酸素が固体中の熱拡散(温度勾配を駆動力とする拡散)によって高温側に移動し、これが律速であるとする機構である。この時、酸素の熱拡散流束 $J_o$ は(A2-2)式と同様に

$$J_o = - \frac{D^* Q^* n_o}{RT^2} \frac{dT}{dx} \tag{A2-5}$$

となる。ここで、

$D^*$  : 酸化物燃料核の固相中の酸素の拡散係数 ( $m^2/s$ )

$Q^*$  : 輸送熱 ( $J/mol$ )

$n_o$  : 気体定数 ( $8.314 J/mol \cdot K$ )

$T$  : 温度 ( $K$ )

$\frac{dT}{dx}$  : 温度勾配 ( $K/m$ )

である。燃料核移動速度KMRについても、炭化物燃料核の場合と同様に

$$KMR = - J_o \Omega_c$$

$$= - \frac{D^* Q^* n_0 \Omega_c}{R} \cdot \frac{1}{T^2} \frac{dT}{dx} \quad (A2-6)$$

となる。ここで、 $\Omega_c$ は黒鉛のモル体積であり、酸素原子と同数の炭素原子がCOとなって高温側から持ち去られることから、 $\Omega_c$ を用いる。

このとき、(A2-4)式と同様に

$$\begin{aligned} KMC &= \frac{D^* Q^* n_0 \Omega_c}{R} \\ &= KMR \cdot T^2 / \frac{dT}{dx} \end{aligned} \quad (A2-7)$$

となる。

ORNLおよびDragonプロジェクトで得られたUO<sub>2</sub>燃料核被覆燃料粒子のKMCのデータをFig.A 2.4に示す<sup>(6)</sup>。データのバラツキは大きいが、KMCによって整理することが可能である。また、酸化物燃料核中の核分裂数はKMCに影響しないと見られている<sup>(7)</sup>。

ThO<sub>2</sub>や(U, Th)O<sub>2</sub>燃料核の場合も、Fig.A 2.5に示すように、データのバラツキは大きいが、KMCによって整理することが可能である<sup>(1)</sup>。

### b) CO-CO<sub>2</sub>気相拡散

原理的には、上記のとおり



の反応によって、燃料核の高温側の熱分解炭素が低温側に輸送される機構である。ただし、CO, CO<sub>2</sub>のバッファー層内拡散が律速であるか、低温側での分解反応



が律速となるかによって、2つの場合が考えられる。

### c) 上記のa), b)両機構の比較

Fig.A 2.6に示すように、実測データを説明できるのは、上記a)の酸素の固相拡散機構である<sup>(8)</sup>。照射の初期には過渡的に上記b)の機構が律速となることも考えられるが、燃焼度が十分大きい時には、固相拡散機構が律速であると考えられている。

## 4. まとめ

酸化物燃料核の場合も、燃料核移動は上記3.のとおり酸素の固相熱拡散機構によると考えることができる。燃料核移動の実測データはKMCによって整理することができる。

## [C] 燃料照射試験における温度測定精度について

燃料の照射試験における燃料温度測定は、通常、燃料中心孔にタンクスチン・レニウム(W-5%Re/W-26%Re)熱電対を挿入することによって行っている。W/Re熱電対は、2,000°C程度の高温においても、精度良く安定に温度測定が行える熱電対である。

試験に使用する熱電対は校正済のものであり、照射開始時における誤差は0.5%以内(照射温度2,000°Cに対して10°C以内)である。

W/Re熱電対による照射中の温度測定の精度に関しては、中性子照射による核変換に伴って

生じる起電力の低下が問題となる。この問題は、JMTR<sup>(9)</sup>および外国(ハルデンプロジェクト)<sup>(10)</sup>において調べられた。

OGL-1照射については熱中性子照射量が低いため、起電力低下による測定誤差は最大でも2～5%（照射温度1,400°Cに対して30～70°C）程度である。

密封キャップセル及びスープガスキャップセルで高照射量まで照射した燃料については、文献<sup>(10)</sup>を用いて照射温度の補正を行っている。従って、その誤差は補正後の誤差であり、最大でも数10°C以内に収まっているものと評価できる。

## 文 献

- (1) 鈴木弘茂, 孫鳳根, 岩本多實, “被覆粒子燃料のアメーバ効果”, 日本原子力学会誌18(1976) p.277.
- (2) T. D. Gulden, "Carbon thermal diffusion in the UC<sub>2</sub>-C system", J. Am. Ceram. Soc. 55 (1972) p.15.
- (3) O. M. Stransfield, C. B. Scott and J. Chin, Nucl. Technol. 25 (1975) p.517.
- (4) M. Wagner-Löffler, "Amoeba behavior of UO<sub>2</sub> coated particle fuel", Nucl. Technol. 35 (1977) p.392.
- (5) M. Wagner-Löffler, Reactortagung (1975) p.378.
- (6) T. B. Lindemer and R. A. Olstad, ORNL-TM-4493 (1974).
- (7) K. Iwamoto, S. Kashimura and A. Kikuchi, J. Nucl. Sci. Technol. 9 (1972) p.465.
- (8) T. B. Lindemer and H. J. de Nordwall, ORNL-4926 (1974).
- (9) N. Tsuyuzaki et al., "Reliability of thermocouples experienced in the JMTR", Proc. Specialists' Meeting on In Core Instrumentation and Reactor Assessment.
- (10) C. Vitanza and T. E. Stien, "Assessment of fuel thermocouple de-calibration during in-pile service", J. Nucl. Mater. 139 (1986) p.11.

Table A2.1 Maximum fuel temperatures and factors used  
in temperature calculation for estimation  
of failure fraction of coated fuel particles.

	基準炉心の 定格運転時	高温試験 運転時	照射炉心
燃料最高温度	約 1420 °C	約 1492 °C	約 1456 °C
冷却材温度上昇	約 1.17	約 1.16	約 1.18
膜温 度 差	約 1.25	約 1.24	約 1.26
黒鉛スリーブ温度差	約 1.17	約 1.17	約 1.17
キャップ温度差	約 1.73	約 1.73	約 1.73
燃料コンパクト温度差	約 1.17	約 1.17	約 1.17

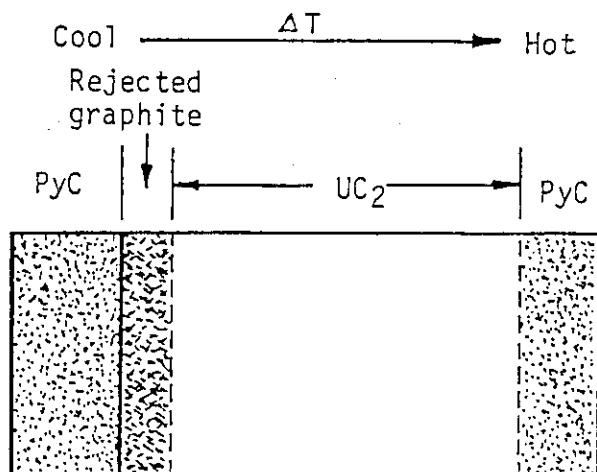


Fig. A2.1 Gulden's experiment to elucidate the mechanism of amoeba effect of  $\text{UC}_2$  kernel(2).

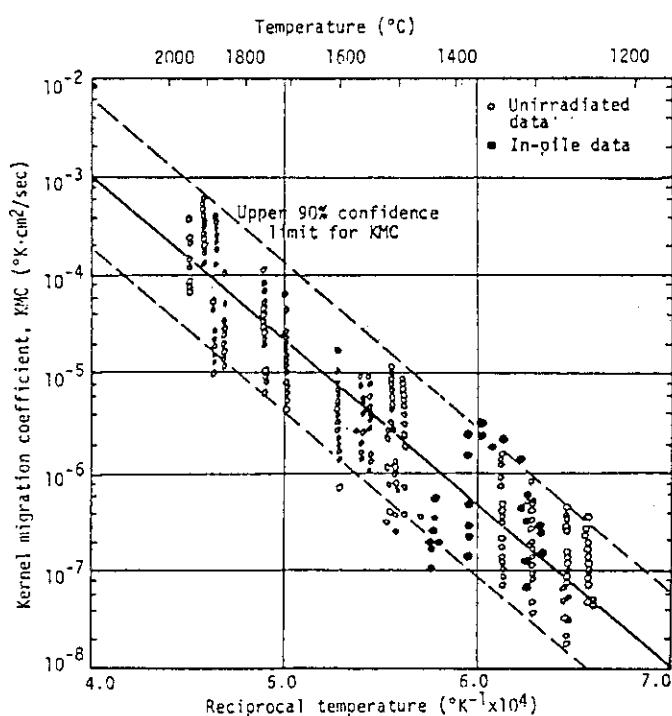


Fig. A2.2 Kernel migration coefficients (KMC) of coated fuel particles with  $\text{UC}_2$  kernel(3).

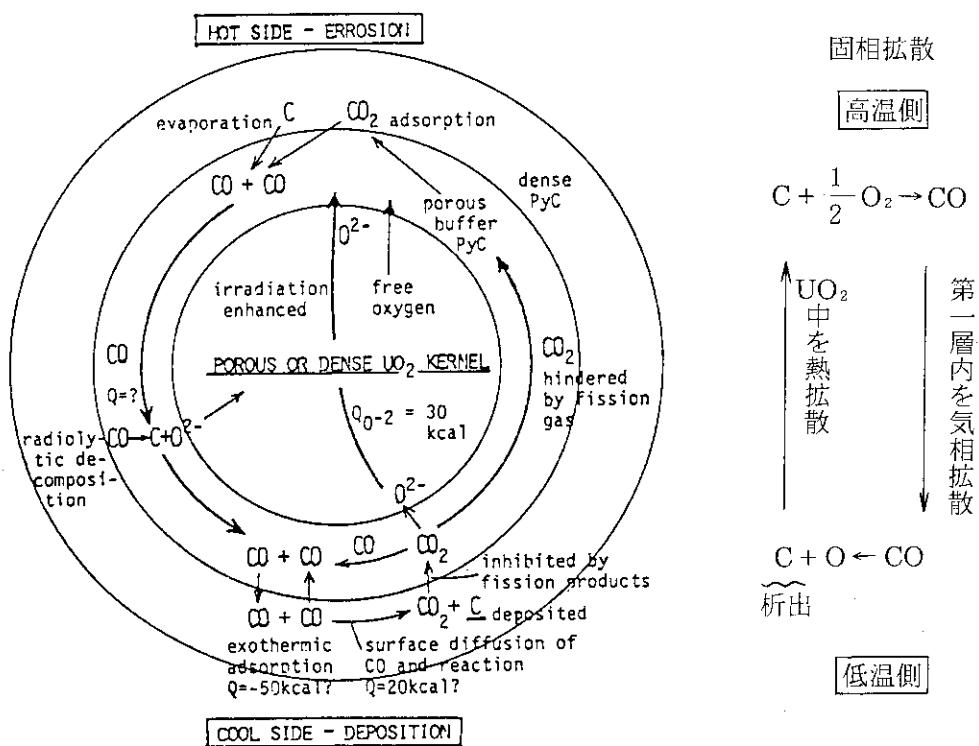


Fig. A2.3 Possible reactions and diffusion processes for amoeba effect of coated fuel particle with  $\text{UO}_2$  kernel<sup>(6)</sup>.

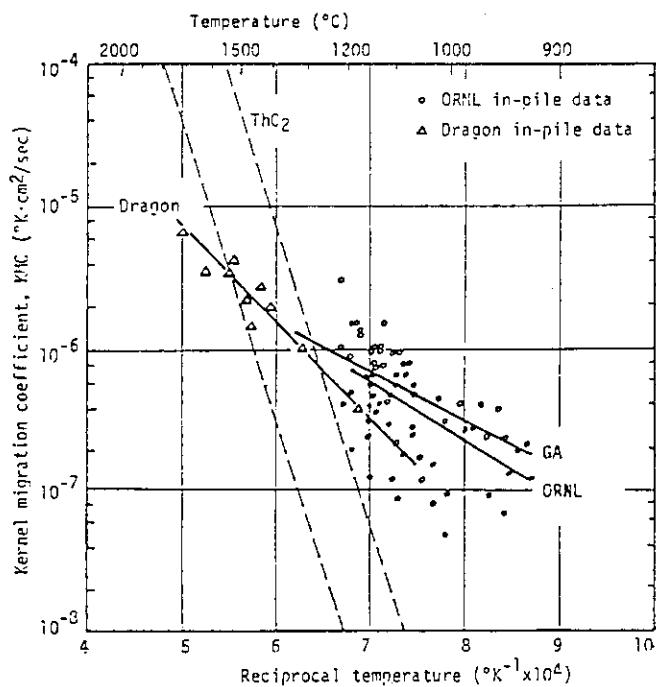
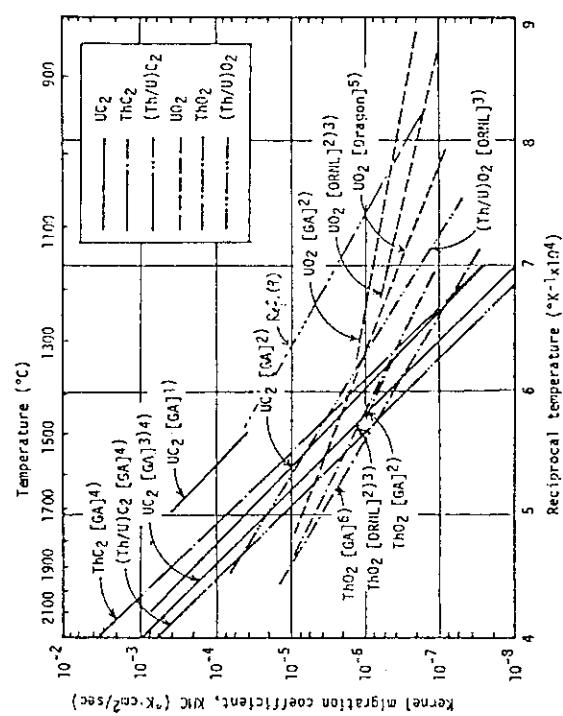


Fig. A2.4 Kernel migration coefficients of coated fuel particles with  $\text{UO}_2$  kernel<sup>(6)</sup>.



- 1) GULDEN, T.D.: *J. Amer. Ceram. Soc.*, 55, 14 (1972).
- 2) GULDEN, T.D., et al.: CONF-740501, p.176 (1974); GA-A 12877, (1974).
- 3) LINDEMAYER, T.B., OLSTAD, R.A.: ORNL-TM-4493, (1974).
- 4) STANSFIELD, O.M., et al.: *Nucl. Technol.*, 25, 517 (1974).
- 5) WAGNER-LÖEFFLER, M.: *Reaktortagung*, p.378 (1975).
- 6) SMITH, C.L.: GA-A 12971, (1974).

Fig. A2.5 Kernel migration coefficients of coated fuel particles with carbide and oxide kernels(1).

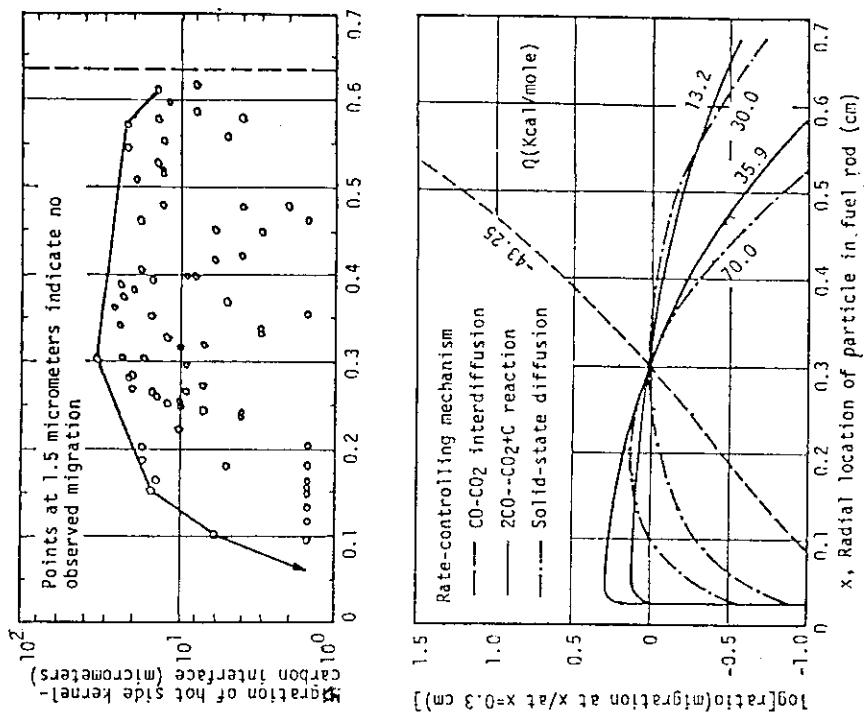


Fig. A2.6 Experimental data of kernel migration distance of  $\text{UO}_2$  kernels (upper figure) and relative migration distances calculated by three mechanisms (lower figure)(8).