

J A E R I - M  
90-115

高温工学試験研究炉の試験燃料体の健全性評価

1990年7月

林 君夫・塩沢 周策・福田 幸朔・鶴田 晴通  
井川 勝市・豊田 純二・佐藤 貞夫・飛田 勉  
白鳥 徹雄・赤堀 光雄・新藤 隆一・沢 和弘  
丸山 創・山下 清信

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, 1990

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の試験燃料体の健全性評価

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・塩沢 周策・福田 幸朔<sup>+</sup>・鶴田 晴通<sup>+-</sup>  
井川 勝市<sup>+</sup>・豊田 純二・佐藤 貞夫・飛田 勉<sup>+</sup>  
白鳥 徹雄<sup>+</sup>・赤堀 光雄<sup>+</sup>・新藤 隆一・沢 和弘  
丸山 創・山下 清信

(1990年6月26日受理)

高温工学試験研究炉(HTTR)の試験燃料体として装荷するB型燃料体の健全性の評価を行った。

B-1型燃料体の被覆燃料粒子の仕様は、ドライバー燃料であるA型燃料体の仕様に比べて、燃料核直径及び被覆層厚さを若干変更したが、これは、より高温・高燃焼度まで使用可能な改良燃料の開発をめざすもので、いずれも安全側への変更である。B-2型燃料体は、SiC層の代りに高温下での化学的安定性に優れたZrC層を用いるもので、燃料核移動、Pdを含むFPによる腐食、異常高温時の被覆層破損に対して、A型燃料体よりも健全性が向上することが実証されている。B-3型燃料体は、(U, Th)O<sub>2</sub>燃料核-SiC被覆粒子を用いるものであり、HTTRにおける使用条件は、その健全性データが十分取得されている範囲(1,000°C, 22,000 MWd/t)までとしたものである。

以上のことから、これらのB型燃料体のHTTR通常運転条件下における健全性は保たれると判断した。また、燃料許容設計限界として、運転時の異常な過渡変化に燃料最高温度が1,600°Cを超えないことと定めることの妥当性を示した。

Integrity Assessment of Test Fuel Assemblies of the High Temperature  
Engineering Test Reactor

Kimio HAYASHI, Shusaku SHIOZAWA, Kousaku FUKUDA<sup>+</sup>, Harumichi TSURUTA<sup>++</sup>  
Katsuichi IKAWA<sup>+</sup>, Junji TOYOTA, Sadao SATO, Tsutomu TOBITA<sup>+</sup>  
Tetsuo SHIRATORI<sup>+</sup>, Mitsuo AKABORI<sup>+</sup>, Ryuichi SHINDO, Kazuhiro SAWA  
So MARUYAMA and Kiyonobu YAMASHITA

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

(Received June 26, 1990)

Assessment of integrity has been made on the B-type fuel assemblies, which will be loaded in the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) as test fuel assemblies.

Specifications of coated fuel particles for the B-1 type fuel assembly have been slightly changed in the fuel kernel diameter and thickness of coating layers from those for the A-type fuel assembly, which is employed as the driver fuel. These changes have been directed toward safer side in developing this advanced fuel for use up to higher burnups at higher temperatures. The B-2 type fuel assembly uses the zirconium-carbide (ZrC) coating layer with excellent high-temperature chemical stability, instead of the silicon carbide (SiC) layer. This change has lead to demonstration of its better performance than the A-type fuel assembly in the kernel migration, corrosion by fission products including palladium, and coating failure at extremely high temperatures. The B-3 type fuel assembly adopts the  $(U, Th)O_2$  kernel - SiC TRISO coated fuel articles. The service condition ( $1000^{\circ}\text{C}$  and 22,000MWd/t) of the B-3

---

+ Department of Fuels and Materials Research

++ Department of Research Reactor Operation

type fuel assembly is decided as the range within which the performance data of the fuel have been sufficiently obtained.

Thus, it has been judged that the integrity of these B-type fuel assemblies will be maintained under the normal operating conditions of the HTTR. Moreover, the validity of the permissible design limit of the fuel has been confirmed, which requires that the fuel temperature shall not exceed 1,600°C at anticipated operational transients.

Keywords: Fuel, Safety Assessment, Silicon Carbide, Zirconium Carbide, Thorium, Advanced Fuel, Accident, Coated Fuel Particle, Failure, Kernel Migration, Palladium Corrosion, Transient, HTTR, HTGR

## 目 次

1.はじめに .....	1
2.高温工学試験研究炉用燃料の概要 .....	3
2.1 高温工学試験研究炉及び燃料の概要 .....	3
2.2 燃料の設計方針 .....	3
2.3 燃料の仕様 .....	4
2.3.1 被覆層の機能 .....	4
2.3.2 B型燃料体の被覆燃料粒子の仕様 .....	5
2.3.3 燃料コンパクトの仕様 .....	5
2.4 B型燃料体のHTTRにおける使用条件 .....	6
3.試験燃料体の健全性評価 .....	23
3.1 健全性評価の項目 .....	23
3.2 健全性評価の方法 .....	24
3.3 B-1型燃料体の健全性 .....	24
3.3.1 通常運転時の健全性 .....	24
3.3.2 異常高温時の被覆層破損 .....	26
3.3.3 まとめ .....	26
3.4 B-2型燃料体の健全性 .....	27
3.4.1 通常運転時の健全性 .....	27
3.4.2 異常高温時の被覆層破損 .....	28
3.5 B-3型燃料体の健全性 .....	29
3.5.1 通常運転時の健全性 .....	29
3.5.2 異常高温時の被覆層破損 .....	31
3.6 B型燃料体の健全性のまとめ .....	32
4.結論 .....	55
謝辞 .....	56
参考文献 .....	57
付録1 B型燃料体のHTTR照射試験の位置付け .....	59
付録2 B型燃料体の製作性 .....	62
付録3 燃料核移動及びPdによるSiC層の腐食の評価方法 .....	65
付録4 B型燃料体の健全性データのまとめ(表) .....	68
付録5 B型燃料体関連文献リスト .....	72

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Outline of HTTR fuels .....	3
2.1 Outline of HTTR and its fuels .....	3
2.2 Design criteria for fuels .....	3
2.3 Specifications of fuels .....	4
2.3.1 Functions of coating layers .....	4
2.3.2 Specifications of coated fuel particles of B-type fuel assemblies .....	5
2.3.3 Specifications of fuel compacts .....	5
2.4 Service conditions of B-type fuel assemblies in HTTR .....	6
3. Integrity assessment of test fuel assemblies .....	23
3.1 Items for integrity assessment .....	23
3.2 Methods for integrity assessment .....	24
3.3 Integrity of B-1 type fuel assembly .....	24
3.3.1 Integrity under normal operating conditions .....	24
3.3.2 Coating failure at extremely high temperatures .....	26
3.3.3 Summary .....	26
3.4 Integrity of B-2 type fuel assembly .....	27
3.4.1 Integrity under normal operating conditions .....	27
3.4.2 Coating failure at extremely high temperatures .....	28
3.5 Integrity of B-3 type fuel assembly .....	29
3.5.1 Integrity under normal operating conditions .....	29
3.5.2 Coating failure at extremely high temperatures .....	31
3.6 Summary of integrity assessment of B-type fuel assemblies ..	32
4. Conclusions .....	55
Acknowledgements .....	56
References .....	57
Appendix 1 Significance of HTTR irradiation tests of B-type fuel assemblies .....	59
Appendix 2 Production of B-type fuel assemblies .....	62
Appendix 3 Methods for assessment of kernel migration and corrosion of SiC layer by palladium .....	65
Appendix 4 Summary of performance data for B-type fuel assemblies (Tables) .....	68
Appendix 5 List of literatures relevant to B-type fuel assemblies ..	72

## 1. はじめに

本報告書は、日本原子力研究所（原研）において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（HTTR, High Temperature Engineering Test Reactor)<sup>(1-3)</sup> の試験燃料体の健全性を、安全審査に供する立場から評価した結果について述べたものである。

HTTR は、低濃縮二酸化ウラン被覆粒子燃料を用いる黒鉛減速ヘリウムガス冷却炉であり、これまでに蓄積した高温ガス炉の要素技術を集め成し、これらの実証試験及び総合性能試験を行うことにより、高温ガス炉の技術基盤を確立するとともに、将来の実用化に向けた高温ガス炉技術の高度化及び高温に関する先端的基礎研究を実施するための試験研究炉である。

HTTR の炉心燃料（A 型燃料体）は、六角柱状の黒鉛ブロック中に燃料棒（燃料要素）を挿入する構造のピン・イン・ブロック型であり、UO<sub>2</sub> 燃料核を熱分解炭素（PyC）、炭化ケイ素（SiC）で被覆した被覆燃料粒子を用いる。A 型燃料体の仕様は、原研における高温ガス炉開発の比較的初期に多目的高温ガス炉第 1 次概念設計仕様（Mark-III 仕様）<sup>(4-6)</sup> として定めたものを基礎としており、同仕様に基づく燃料は、長年にわたる製造及び照射の実績<sup>(7)</sup>を有している。A 型燃料体の設計方針及び製作性<sup>(8)</sup>並びに健全性評価の結果<sup>(8,9)</sup>については、すでに報告している。

これに対して、本報告書に記述する試験燃料体（B 型燃料体）は、A 型燃料体よりも高温（高冷却材温度）、高燃焼度、高出力密度を達成すること及び将来のトリウム燃料利用を目的に開発されてきたものである。そのため、被覆燃料粒子の被覆層（燃料粒子被覆層）の厚さ、材質等に改良を施した燃料要素及び（U, Th）O<sub>2</sub> 燃料核を用いる燃料要素を採用している。

B 型燃料体には、以下の特徴を持つ 3 種類がある。

- (1) A 型燃料体と同じく、UO<sub>2</sub> 燃料核 - SiC 被覆燃料粒子であるが、A 型燃料体の場合より燃料核直径若干小さくし、低密度熱分解炭素層（バッファ層）及び SiC 層の厚さを厚くしたもの（B-1 型燃料体）
- (2) 被覆燃料粒子の SiC 層のかわりに、炭化ジルコニウム（ZrC）層を用いるもの（B-2 型燃料体）
- (3) 燃料核として、UO<sub>2</sub> のかわりに、ウラン・トリウム混合酸化物 [(U, Th) O<sub>2</sub>] を用いるもの（B-3 型燃料体）

B 型燃料体の仕様の特徴と開発目的をまとめて Table 1.1 に示す。

これらの試験燃料は、照射試験を目的としているが、同時に炉出力を分担しており、いわゆるドライバー燃料として取扱う。

本報告では、HTTR の試験燃料体として装荷を予定している B 型燃料体について、HTTR 使用条件下で健全性が保たれることを立証することに力点をおいた。以下の第 2 章では HTTR とその燃料の概要を示すと共に、試験燃料体の開発目的及び仕様の特徴について述べる。第 3 章では、試験燃料体の通常運転時の健全性評価及び異常高温時の被覆燃料粒子破損について述べる。第 4 章では、以上の結論を述べる。

また、付録 1 では、B 型燃料体の開発目的について詳細に述べる。付録 2 では、B 型燃料体の製

作性の評価を行う。付録3では、B型燃料体の健全性評価にあたって必要となる燃料核移動及びPdによるSiC層の腐食の評価方法を要約する。付録4では、B型燃料体の健全性データの取得状況を一覧表として示す。また、付録5では、B型燃料体関連の文献を一覧として示す。

Table 1.1 Characteristic specifications and objectives of the B-1, B-2 and B-3 type fuel assemblies.

燃料体	仕様の特徴 (A型燃料体との主要な相異)	開発目的
B-1型	燃料核直径を小さくし、燃料粒子被覆層の及び第3層を厚くする。	高温(高冷却材温度)、高燃焼度、高出力密度を達成する。
B-2型	燃料粒子被覆層の第3層材質をZrCとする。	同上
B-3型	燃料核の材質を(U, Th)O <sub>2</sub> とする。	将来のトリウム燃料の利用に備える。

## 2. 高温工学試験研究炉用燃料の概要

### 2.1 高温工学試験研究炉及び燃料の概要<sup>(1-3)</sup>

HTTR の原子炉及び炉心は、炉心を構成する要素（炉心構成要素）、炉内構造物及び反応度制御設備から構成する。原子炉及び炉心の設備仕様の概略を Table 2.1 に示す。

炉心は、六角柱状の黒鉛ブロックである燃料体、制御棒案内ブロック及び可動反射体ブロックから構成し、これらの炉心構成要素を円柱状に積上げたものである。また、ブロックを積上げた軸方向の 1 列をカラムと称する。炉心は合計 61 カラムからなり、Fig. 2.1 及び Fig. 2.2 に示すように、燃料体を含む燃料領域及びその外側を囲む可動反射体領域に分けられる。

燃料体には A 型燃料体及び B 渡燃料体があり、更に B 型燃料体には B-1 型、B-2 型及び B-3 型燃料体の 3 種類がある。B 型燃料体は、燃料照射試験時に A 型燃料体の一部と交換して、試験燃料体として使用する。炉心には、燃料体として A 型燃料体のみを用い照射試験を行わない炉心（基準炉心）と照射試験を行う炉心（照射炉心）がある。照射試験としては、(i) 試験燃料体を装荷する燃料照射試験、(ii) 反射体領域での材料・燃料照射試験、並びに(iii) 中央カラムでの材料照射試験及び燃料限界照射試験を行う。

A 型燃料体は、六角柱状の黒鉛ブロックに燃料要素である燃料棒を挿入する構造で、燃料棒は、黒鉛スリーブ、燃料コンパクト等から構成する。燃料コンパクトは、二酸化ウランの燃料核を熱分解炭素層等で四重に被覆した被覆燃料粒子を、黒鉛と炭素の混合物からなる素地（黒鉛素地または黒鉛マトリックス）に分散した中空の円柱状である。

B 型燃料体は、A 型燃料体と同じ外形寸法を有する六角柱状の黒鉛ブロックに試験用の燃料要素である燃料棒を挿入する構造である。B-1 型、B-2 型及び B-3 型燃料体の装荷位置は、Fig. 2.3 に示すとおりである。即ち、各燃料体は、炉心中央の 3 カラムの A 型燃料体と交換して、カラムの燃料領域の上段から 2 段目に 1 体、最大 3 カラム、計最大 3 体装荷する。

燃料体の水平方向の位置決めは、ダウエルピン及びダウエルソケットにより行う。

### 2.2 燃料の設計方針<sup>(3.8)</sup>

B 型燃料体の設計方針のうち、燃料コンパクト、燃料棒（黒鉛スリーブ）、燃料体（黒鉛ブロック）については、A 型燃料体の場合<sup>(3.8.9)</sup>と全く同一であるので、本報告書では割愛する。以下には、A 型燃料体の場合を含めて、被覆燃料粒子の設計方針について示す。

- a. 被覆燃料粒子からの核分裂生成物 (FP) の放出を少なくするため、被覆燃料粒子被覆層 (燃料粒子被覆層) の初期 (製造時) 破損率は、貫通破損率及び炭化けい素層 (SiC 層) 又は炭化ジルコニウム層 (ZrC 層) 破損率の和で 0.2% 以下とする。燃料粒子被覆層の破損率は、全被覆燃料数に対する燃料粒子被覆層の破損している被覆燃料粒子数の比率で表わす。
- b. 通常運転時の被覆燃料粒子からの FP 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。
- c. 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。

A 型燃料体について、燃料温度と燃料粒子被覆層の破損に関する試験データを、Fig. 2.4<sup>(1c)</sup> に示す。B 型燃料体についての試験データは、第 3 章に示す。

### 2.3 燃料の仕様

燃料要素及び燃料体の概略を Table 2.2 に示す。また、燃料体の構造を Fig. 2.5 に、燃料要素 (燃料棒) の構造を Fig. 2.6 に示す。B 型燃料体の仕様は、被覆燃料粒子の仕様及び燃料コンパクトの粒子充填率の仕様を除いて、燃料棒 (黒鉛スリーブ)、燃料体 (黒鉛ブロック) については、A 型燃料体の場合<sup>(1-3.8)</sup>と全く同一である。A 型及び B 型燃料体の被覆燃料粒子の仕様の相違を Table 2.3 に示す。

以下には、A 型燃料体と共にものを含めて、燃料コンパクト及び被覆燃料粒子の仕様について述べる。

#### 2.3.1 被覆層の機能<sup>(3,9)</sup>

被覆燃料粒子は、Fig. 2.6 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)、SiC (B-2 型燃料体の粒子では、ZrC) (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 FP の放出を防止する。

低密度熱分解炭素層 (第 1 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、これにより損傷するのを防ぐとともに、気体状の FP 及び一酸化炭素ガスを蓄えるための空間を提供し、燃料核のスウェーリングを吸収する機能を有する。

低密度熱分解炭素層の外側の高密度熱分解炭素層 (第 2 層) は、特に希ガス (Kr, Xe) 及びヨウ素 FP を保持する能力を有する。

SiC 層及び ZrC 層 (第 3 層) は、希ガス及びヨウ素 FP 並びに金属 FP に対して優れた保持能力を有する。更に、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。

最外層の高密度熱分解炭素層（第4層）は、希ガス及びヨウ素FPを保持する能力をもつとともに、高温照射中に収縮することにより外部からSiC層又はZrC層を締付け、SiC層又はZrC層が内部ガス圧により引張り状態になり破損することを阻止する機能を有している。

### 2.3.2 B型燃料体の被覆燃料粒子の仕様

#### (1) B-1型燃料体

B-1型燃料体は、被覆燃料粒子の燃料核（直径570μm）をA型燃料体の燃料核（直径600μm）より小さくし、逆に低密度熱分解炭素層（第1層、80μm）及びSiC層（第3層、35μm）をA型燃料体の場合（各々60μm及び25μm）に比べて厚くしたものである。

第1層を厚くすることは、燃料核移動に対して耐久性を増すとともに、気体FP及び一酸化炭素(CO)ガスによる被覆燃料粒子の内圧を緩和する効果がある。また、SiC層を厚くすることは、PdによるSiC層腐食に対する耐久性を増すとともに、希ガス及びヨウ素FP並びに金属FPに対する保持能を高める効果がある。B-1型燃料体は、このような被覆層厚さの変更を通して、被覆燃料粒子の高温、高燃焼度における照射健全性を増すことを目的としたものである。

#### (2) B-2型燃料体

B-2型燃料体は、PdによるSiC層腐食に起因する燃料粒子被覆層の破損を防止し、A型燃料体より高温かつ高燃焼度の照射に耐えられるように、被覆燃料粒子の第3層としてSiCの代わりに炭化ジルコニウム(ZrC)を用いるものである。ZrCは、Fig.2.7に示すように、炭素との共融点（共晶温度）が約2,880°Cである<sup>(11)</sup>。この温度は、被覆燃料粒子中のSiCの熱分解が観察される温度（短時間では約2,200°C）より高く、より高温まで高い化学的安定性が期待できる。なお、SiCについては、Fig.2.8<sup>(11)</sup>に示すように、炭素との包晶反応温度は2,545°Cとされているが、それ以下の温度で熱分解が生じ、被覆燃料粒子の破損が起こる（3.3.2項参照）。

また、B-2型燃料体は、B-1型燃料体と同じく高温、高燃焼度までの使用に耐えるよう、A型燃料体の場合よりも燃料核を小さくし、第1層を厚くしている。

#### (3) B-3型燃料体

B-3型燃料体の被覆燃料粒子は、将来のトリウム燃料の利用を目的として開発しているもので、被覆燃料粒子の燃料核として、二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)ではなくウラン・トリウム混合酸化物(U, Th)O<sub>2</sub>を用いる。Th(<sup>232</sup>Th)は、それ自体では核分裂は殆ど起こらないが、中性子の吸収により核分裂性の<sup>233</sup>Uを作り出すための親物質として用いる。

B-3型燃料体の被覆燃料粒子の仕様は、燃料核直径を500μmと小さくしたこと及びSiC層の厚さを30μmとした点がA型燃料体の被覆燃料粒子の仕様と異なっている点であり、それ以外はA型燃料体の仕様と同一である。なお、B-3型燃料体の被覆燃料粒子の寸法仕様は、多目的高温ガス炉予備設計仕様<sup>(1)</sup>に基づくものである。A型燃料体の仕様は、その後の第1概念設計仕様(Mark-III仕様)<sup>(4-6)</sup>に変更されたが、トリウム燃料の場合は予備設計仕様のまま継続されたものである。

### 2.3.3 燃料コンパクトの仕様

燃料コンパクトは、Fig.2.6に示すように、被覆燃料粒子を黒鉛素地に分散させた中空の円柱

形状である。黒鉛素地は、天然黒鉛粉末及び人造黒鉛粉末を、それぞれ、約 80 w/o 及び約 20 w/o の割合で混合してバインダのフェノール樹脂を添加し、焼成したものであり、バインダーの一部は炭素化する。

A 型燃料体と B 型燃料体の燃料コンパクトの仕様は、被覆燃料粒子の充填率を除いて、全く同一である。A 型燃料体の粒子充填率は、第 1 次概念設計仕様<sup>(4-6)</sup>に基づき 30 vol% に設定しており、B-3 型燃料体も同一である。一方、B-1 型及び B-2 型燃料体は、35 vol% である。これは、B 型燃料体では A 型燃料体に比べて、燃料核の大きさが小さく、従って、ウラン量が少ないため、これによる発熱量の減少を補うため充填率を高めたものである。

## 2.4 B 型燃料体の HTTR における使用条件

HTTR における B 型燃料体の使用条件を A 型燃料体の使用条件と比較して Table 2.4 に示す。通常運転時についての、系統的な性質を有する工学的安全係数を考慮した燃料温度（システムティック温度）の最高値は、B-1 及び B-2 型燃料体については約 1,300°C であり、B-3 型燃料体については 995°C である。B 型燃料体の燃料最高温度が A 型燃料体のそれに比べて低いのは、高温試験運転（原子炉出口冷却材温度 950°C の運転）は A 型燃料体のみを装荷した炉心（基準炉心）で行うこととし、B 型燃料体は装荷しないからである。また、B-3 型燃料体についての燃料最高温度が特に低いのは、HTTR における使用条件を、3.5 節に示すトリウム燃料の健全性データが十分取得されている範囲（1000°C）までとしたからである。B-3 型燃料温度の低減は、上部遮へい体に設置した流量調節板等により冷却材流量配分を調整することによって行う。

また、最大燃焼度は、B-1 及び B-2 型燃料体については A 型燃料体の場合と同じく 33,000 MWd/t である。これに対して B-3 型燃料体については 22,000 MWd/t としたが、これもトリウム燃料の照射実績を考慮したものである。ただし、HTTR の初装荷燃料については、初期においては基準炉心（A 型燃料体のみを装荷する炉心）で運転を行う予定であり、また高温試験運転も基準炉心で行うことを考慮すれば、B-3 型燃料体の最高燃焼度の制限は、実際には殆ど問題とならない。

運転時の異常な過渡変化時については、B 型燃料体のいずれについても燃料最高温度が 1600°C を超えないことを制限条件とする。これは、燃料温度が 1600°C を超えない限り、燃料粒子被覆層の有意な破損並びにパラジウム (Pd) による SiC 層腐食及び燃料核の移動による燃料粒子被覆層の著しい劣化は生じないと判断できるからである。運転時の異常な過渡変化時の制限をこのように定めることの妥当性は、3.3.2 項、3.4.2 項、3.5.2 項に記述する。

Table 2.1 Major specifications of HTTR<sup>(3)</sup>.

炉心熱出力	約 30 MW
1次冷却材全流量	約 12.4 kg/s (高温試験運転時は、 約 10.2 kg/s)
原子炉圧力容器入口冷却材温度	約 395 °C
原子炉圧力容器出口冷却材温度	約 850 °C (高温試験運転時は、 約 950 °C)
原子炉運転圧力	約 40 kg/cm <sup>2</sup> G
炉心燃料領域	
有効高さ	約 2.9 m
等価直径	約 2.3 m
反射体領域厚さ	
半径方向(平均)	約 1 m
上部及び下部	約 1.2 m
全ウラン装荷量(基準炉心の場合)	約 900 kg
トリウム最大装荷量 (B-3型燃料体装荷時)	11 kg
冷却回路数	1

Table 2.2 Specifications of HTTR fuels (3).

	A型燃料体	B-1型及びB-2型燃料体	B-3型燃料体
(1) 燃料要素			
燃料要素形式 被覆燃料粒子	燃料棒	燃料棒	燃料棒
粒子形式	4重被覆型	4重被覆型	4重被覆型
粒子直径	約 920 $\mu\text{m}$	約 940 $\mu\text{m}$	約 830 $\mu\text{m}$
燃料核 材質	$\text{UO}_2$	$\text{UO}_2$	$(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$
密度	理論密度の約 95 %	理論密度の約 95 %	理論密度の約 95 %
直 径	約 600 $\mu\text{m}$	約 570 $\mu\text{m}$	約 500 $\mu\text{m}$

Table 2.2 (Continued)

A型燃料体		B-1型及びB-2型燃料体	B-3型燃料体
被覆層材質、厚さ		低密度熱分解炭素	低密度熱分解炭素
第1層	約 60 $\mu$ m	約 80 $\mu$ m	約 60 $\mu$ m
第2層	高密度熱分解炭素 約 30 $\mu$ m	高密度熱分解炭素 約 30 $\mu$ m	高密度熱分解炭素 約 30 $\mu$ m
第3層	炭化けい素 約 25 $\mu$ m	炭化けい素 (B-1型) 約 35 $\mu$ m	炭化けい素 約 30 $\mu$ m
第4層	高密度熱分解炭素 約 45 $\mu$ m	高密度熱分解炭素 約 40 $\mu$ m	高密度熱分解炭素 約 45 $\mu$ m
ウラン235濃縮度	約 3~10 wt% (平均約 6 wt%)	約 5 wt%	約 20 wt%

Table 2.2 (Continued)

A型及びB型燃料体	
構造 材質	寸法
燃料コンパクト	
中空円柱	
被覆燃料粒子、 黒鉛と炭素混合材（黒鉛素地）	
粒子充填率	
約 30 vol% (A型, B-3型)	
約 35 vol% (B-1型, B-2型)	
外径 約 26 mm、内径 約 10 mm	
燃料コンパクト1個の高さ 約 39 mm	
燃料部有効長さ 約 546 mm (燃料コンパクト 14個)	
黒鉛スリーブ	
構造 材質	円筒 黒鉛

Table 2.2 (Continued)

A型及びB型燃料体	
寸 法	
外径 約 34 mm	
厚さ 約 4 mm	
長さ 約 580 mm	
燃料コンパクトと黒鉛スリーブ ギャップ幅 (直径)	約 0.25 mm
(2) 燃料体	
形 式	ピン・イン・プロック型
形 状	六角柱状ブロック
プロック寸法	
対面間距離	約 360 mm
高 さ	約 580 mm
燃料棒挿入孔径	約 41 mm

Table 2.2 (Continued)

A型及びB型燃料体	
プロック間ピッチ	約 362 mm
プロック材質	黒鉛 ( IG-110 相当 )
燃料体当たり燃料要素数	33 (ただし、燃料領域最外周は31)
(3) その他の構造	
<ul style="list-style-type: none"> <li>・反応度調整材装荷孔をブロックに設ける。</li> <li>・ブロック水平方向位置決めのため、ブロックにダウエル及びシケットを、それぞれ3個設ける。</li> </ul>	

Table 2.3 Difference in specifications of coated fuel particles  
for A- and B-type fuel assemblies.

	燃料核	第1層	第2層	第3層	第4層	粒子直径
A型	$UO_2$ $600 \mu m$	低密度熱分解炭素 $60 \mu m$	高密度熱分解炭素 $30 \mu m$	SiC $25 \mu m$	高密度熱分解炭素 $45 \mu m$	$920 \mu m$
B-1型	$UO_2$ $570 \mu m$	低密度熱分解炭素 $80 \mu m$	高密度熱分解炭素 $30 \mu m$	SiC $35 \mu m$	高密度熱分解炭素 $40 \mu m$	$940 \mu m$
B-2型	$UO_2$ $570 \mu m$	低密度熱分解炭素 $80 \mu m$	高密度熱分解炭素 $30 \mu m$	ZrC $35 \mu m$	高密度熱分解炭素 $40 \mu m$	$940 \mu m$
B-3型	$(U, Th)O_2$ (Th/U比約4) $500 \mu m$	低密度熱分解炭素 $60 \mu m$	高密度熱分解炭素 $30 \mu m$	SiC $30 \mu m$	高密度熱分解炭素 $45 \mu m$	$830 \mu m$

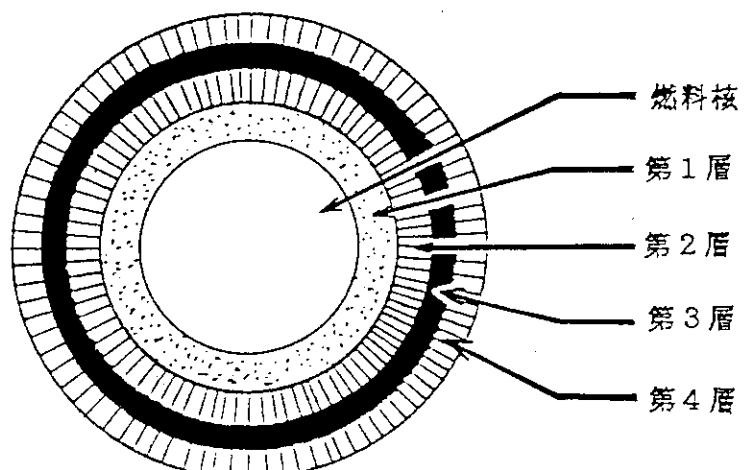
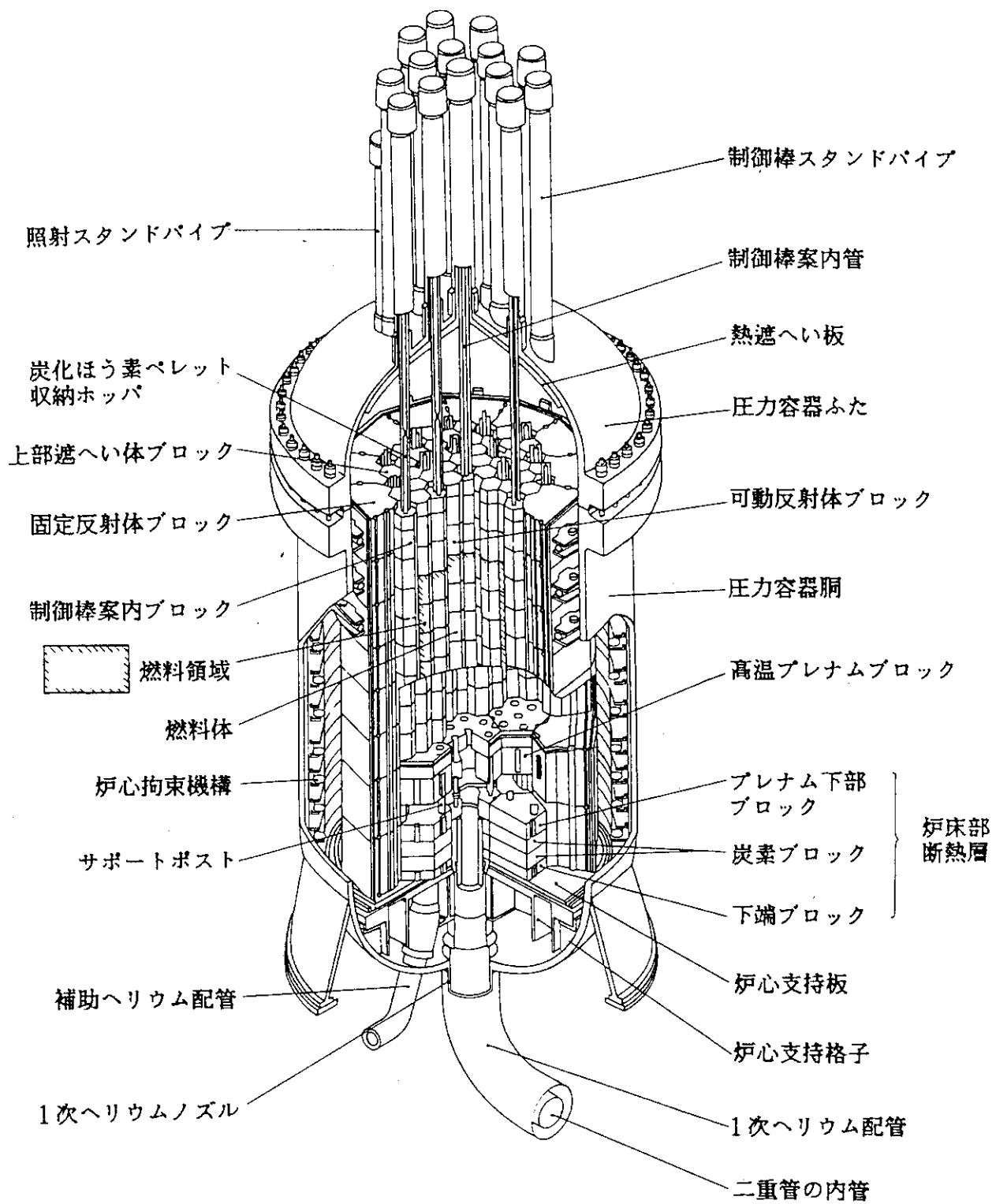


Table 2.4 Maximum temperatures and burnups for A- and B-type fuel assemblies.

燃料体	A 型	B-1型	B-2型	B-3型
濃縮度 (wt%)	約 3 ~ 10 (平均約 6)	約 5	約 5	約 20 (Th/U 比約 4)
ノミナル最高温度 (°C)	約 1320 <sup>*1</sup>	約 1100	約 1100	約 870 <sup>*1</sup>
システムティック 最高温度 (°C)	1492 <sup>*1</sup>	約 1300	約 1300	995 <sup>*2</sup>
燃料許容設計限界 (異常過渡時)(°C)	≤ 1600	≤ 1600	≤ 1600	≤ 1600
燃料体平均の最大 燃焼度 (MWd/t)	33,000	33,000	33,000	22,000
燃料体平均の高速 中性子照射量 (n/cm <sup>2</sup> , E > 0.18 MeV)	$1.2 \times 10^{21}$	$1.2 \times 10^{21}$	$1.2 \times 10^{21}$	$0.8 \times 10^{21}$

\* 1 高温試験運転時 (原子炉出口冷却材温度 950°C の運転)。

\* 2 冷却材流量配分の調整により燃料温度の制限を行う。

Fig. 2.1 Structure of HTTR<sup>(3)</sup>.

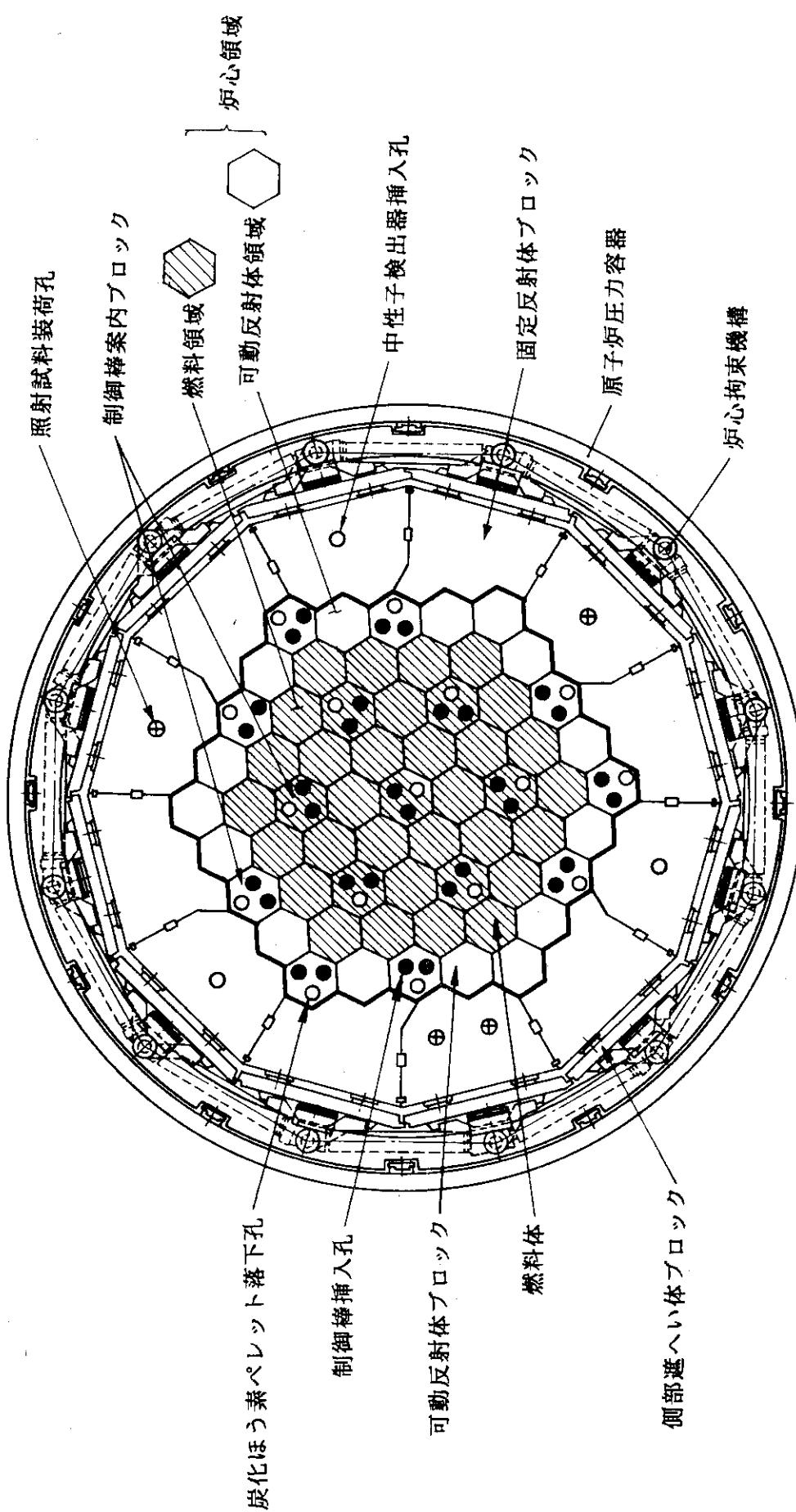
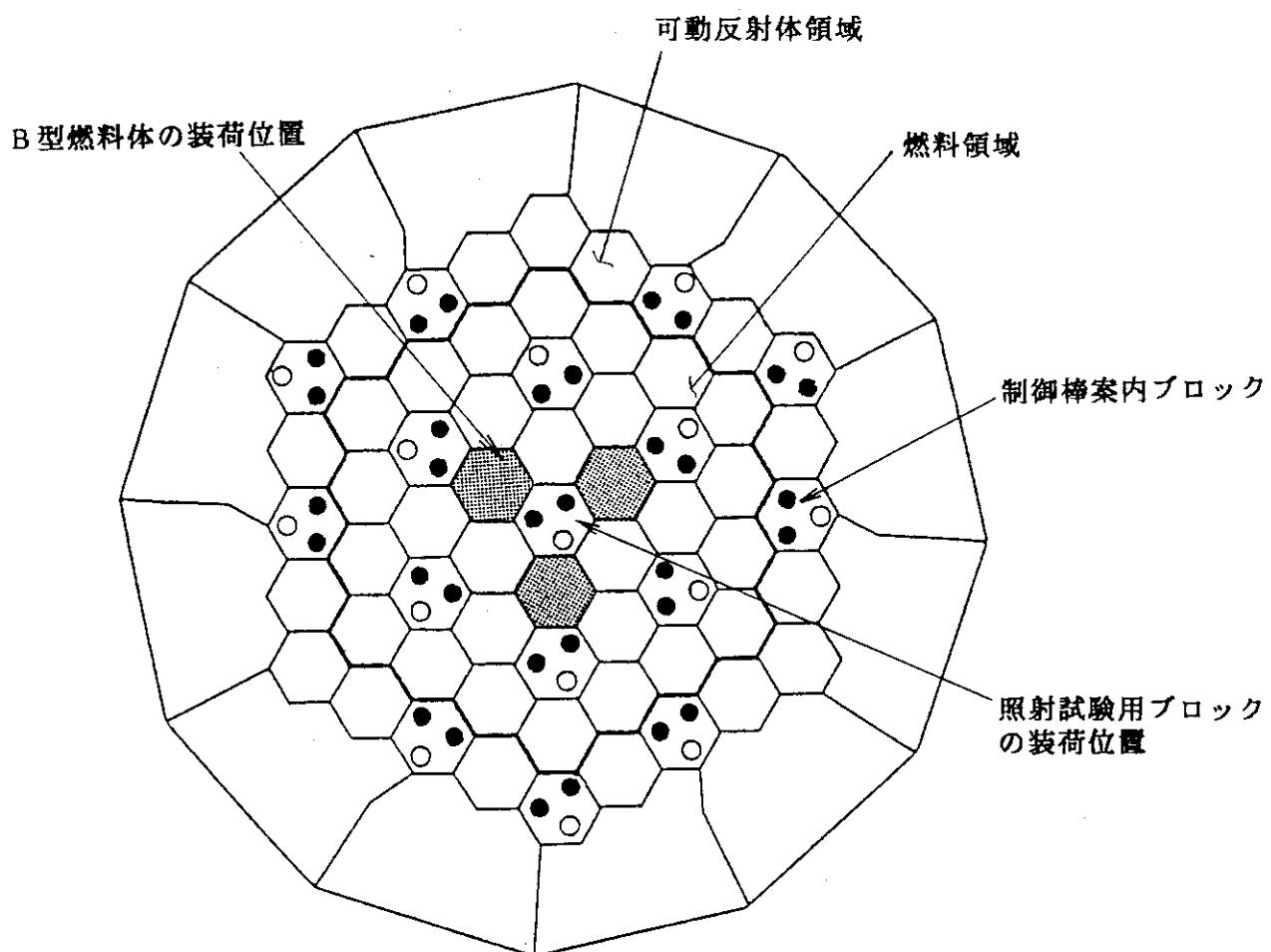
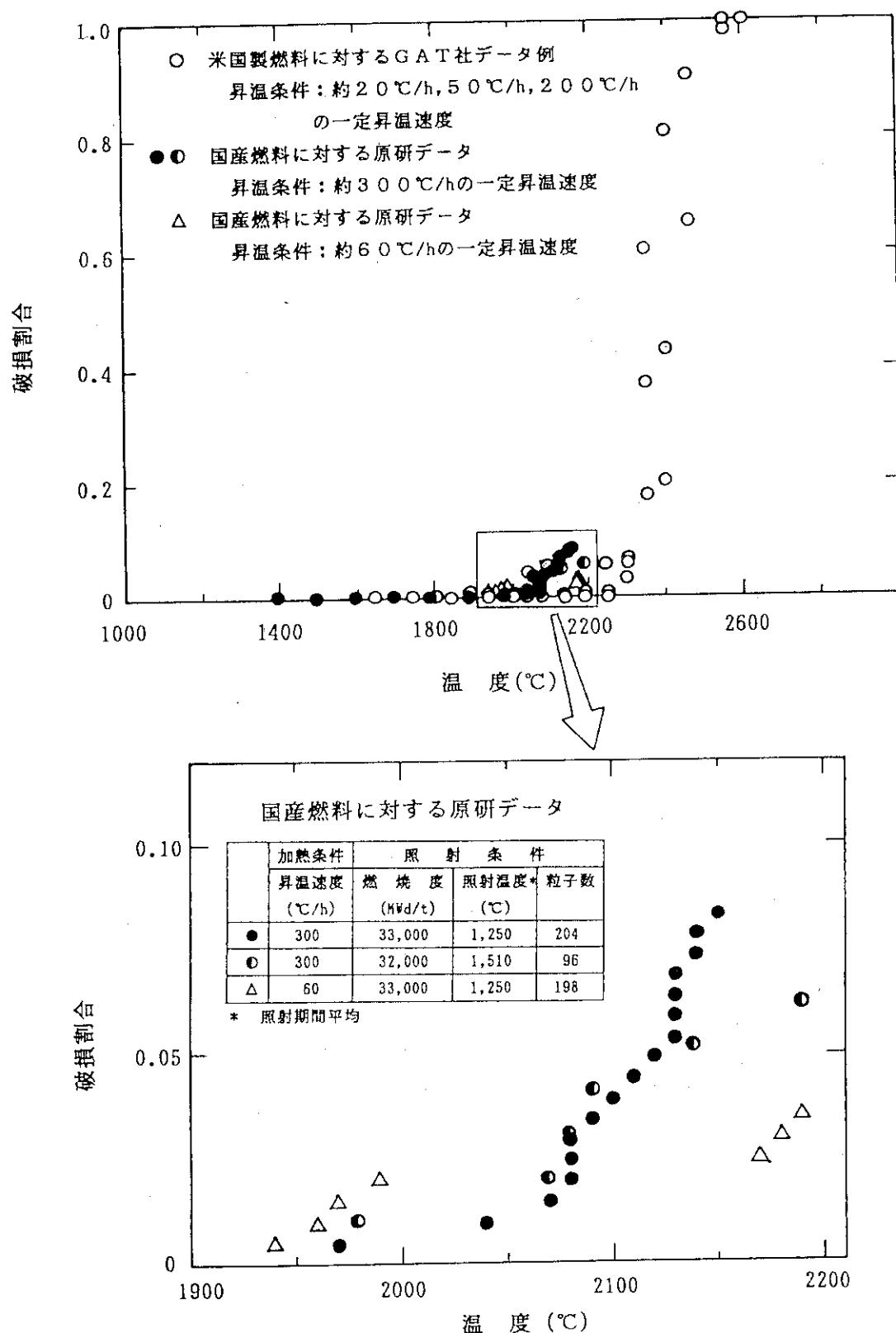


Fig. 2.2 Plan view of HTTR core arrangement (3).



- ・ B型燃料体は、燃料領域の2段目に装荷する。
- ・ 中央カラムを制御棒案内カラムとして使用しないときは、  
必要に応じて照射試験用ブロックを装荷する。

Fig. 2.3 Loading positions of B-type fuel assemblies in HTTR core<sup>(3)</sup>.



A型燃料体の被覆燃料粒子の炉外における定速昇温加熱試験結果

Fig. 2.4 Relationship between fuel temperature and failure fractions of coated fuel particles under abnormal conditions<sup>(10)</sup>.

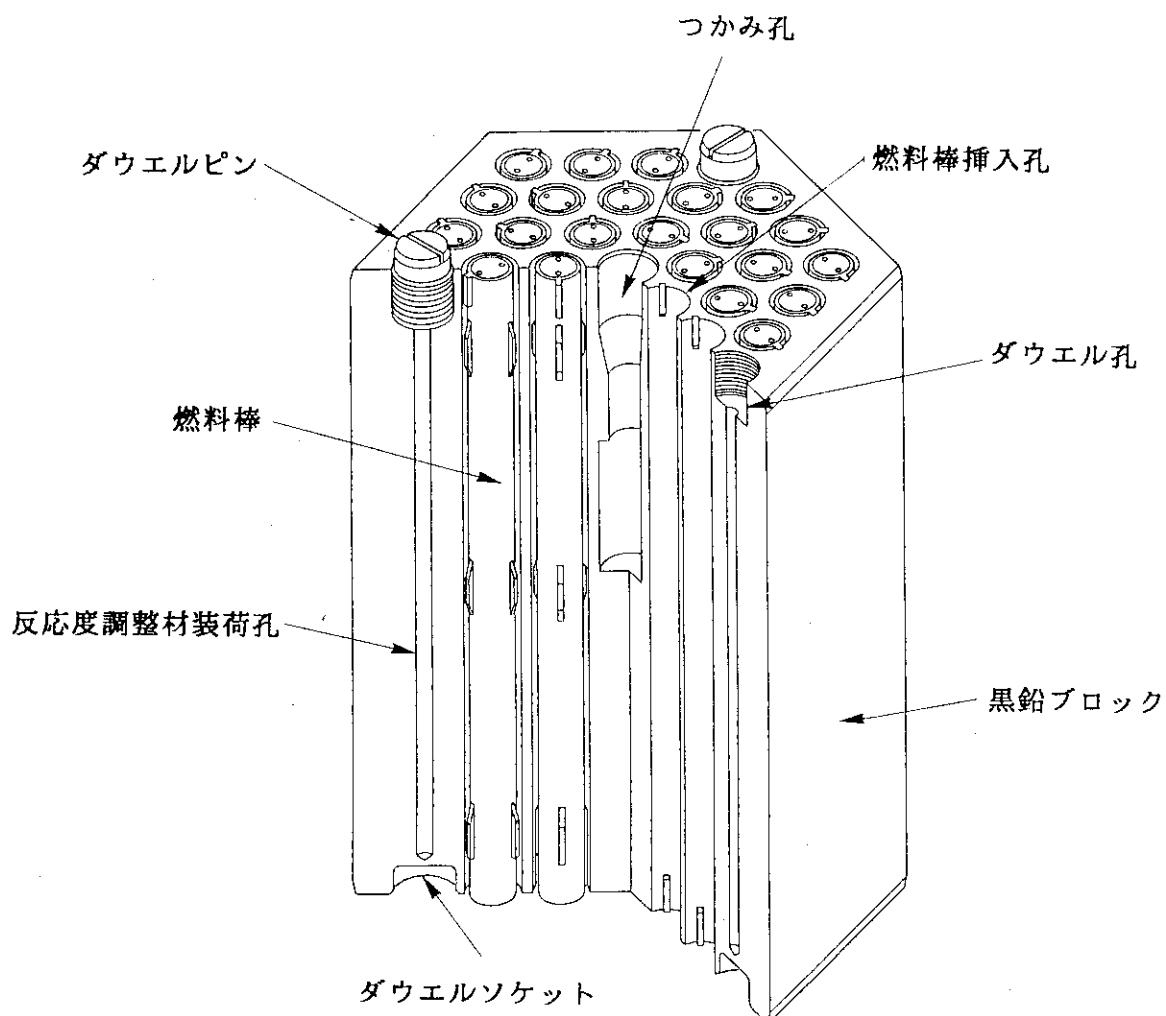


Fig. 2.5 Structure of fuel assembly of HTTR<sup>(3)</sup>.

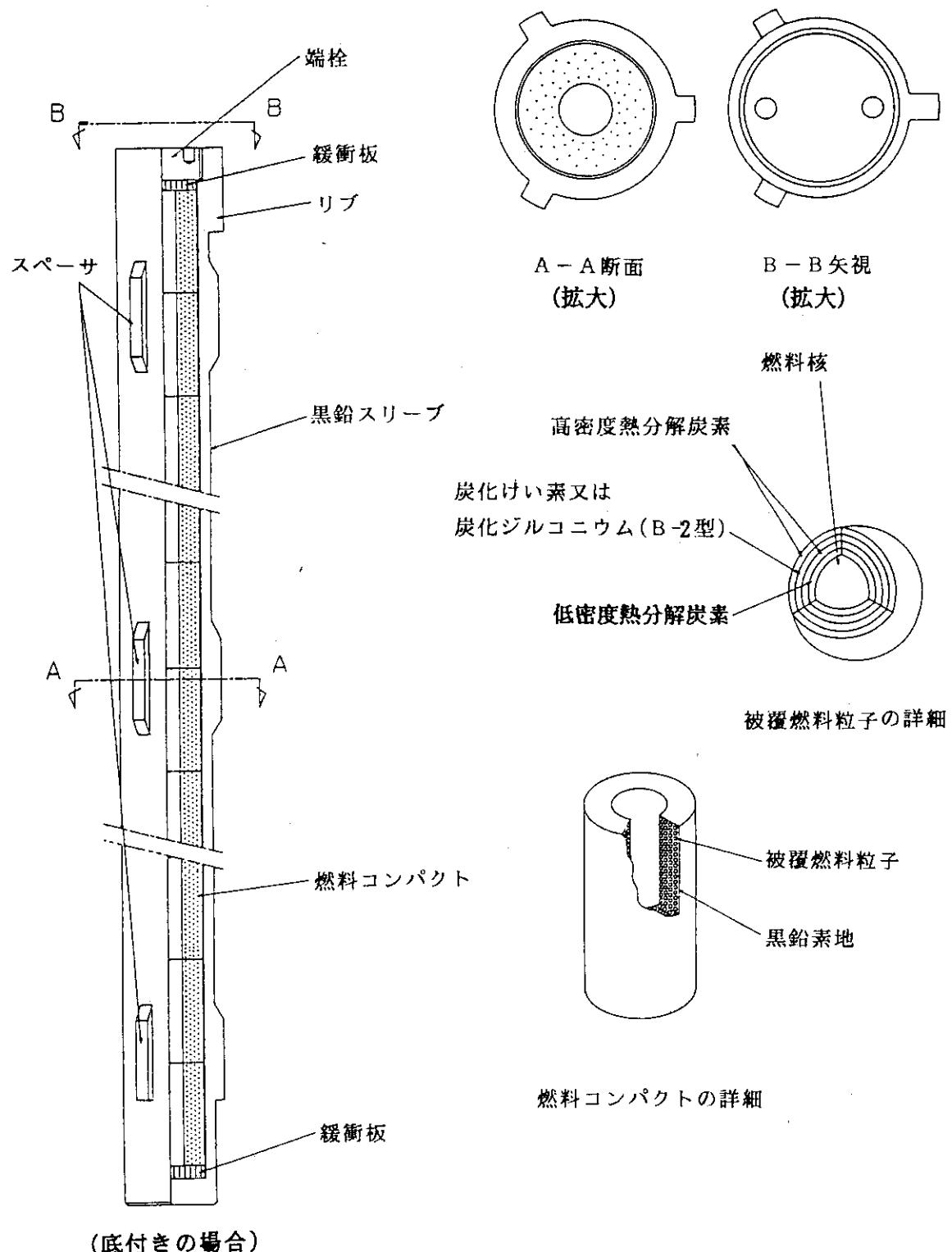
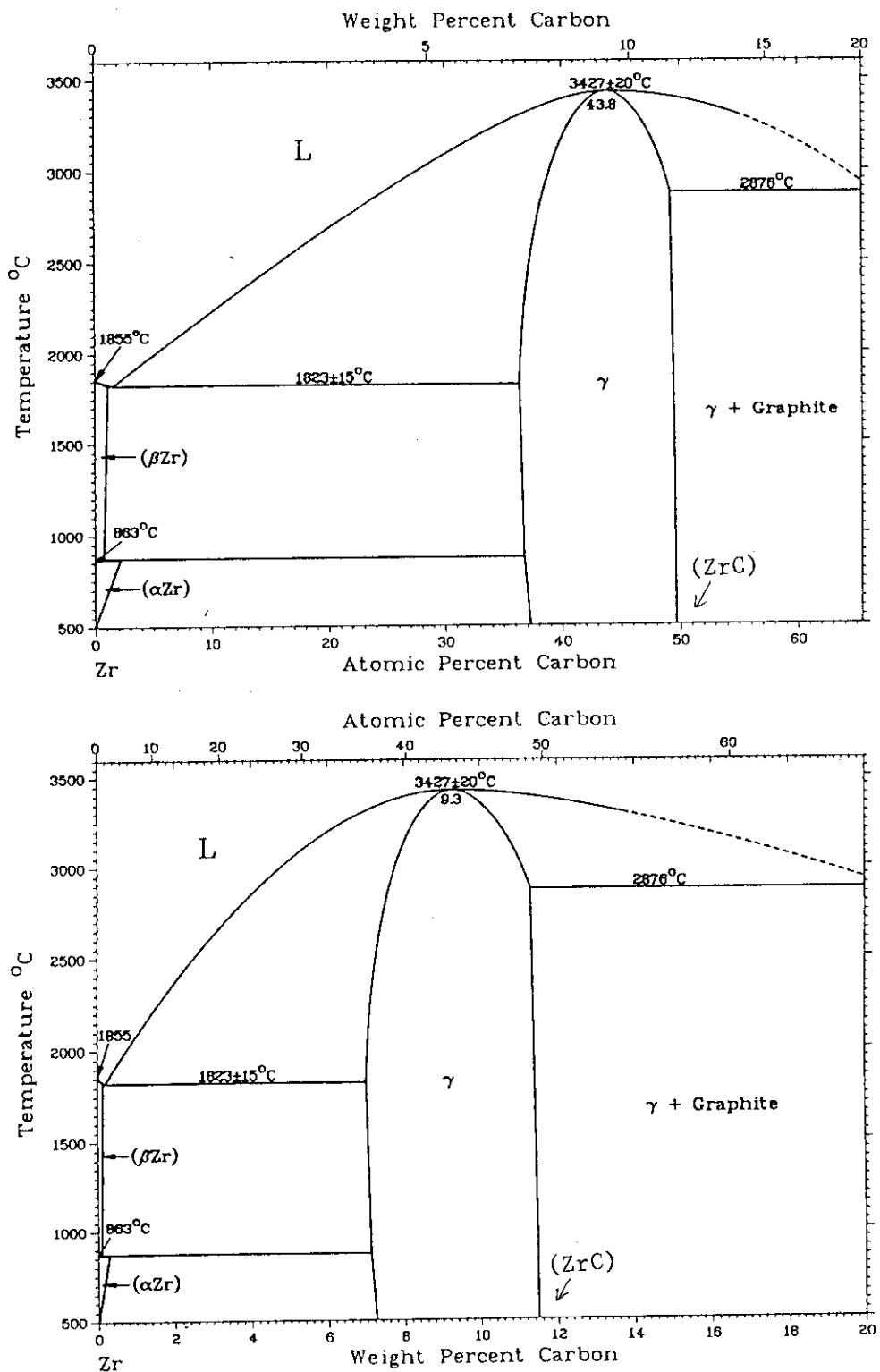


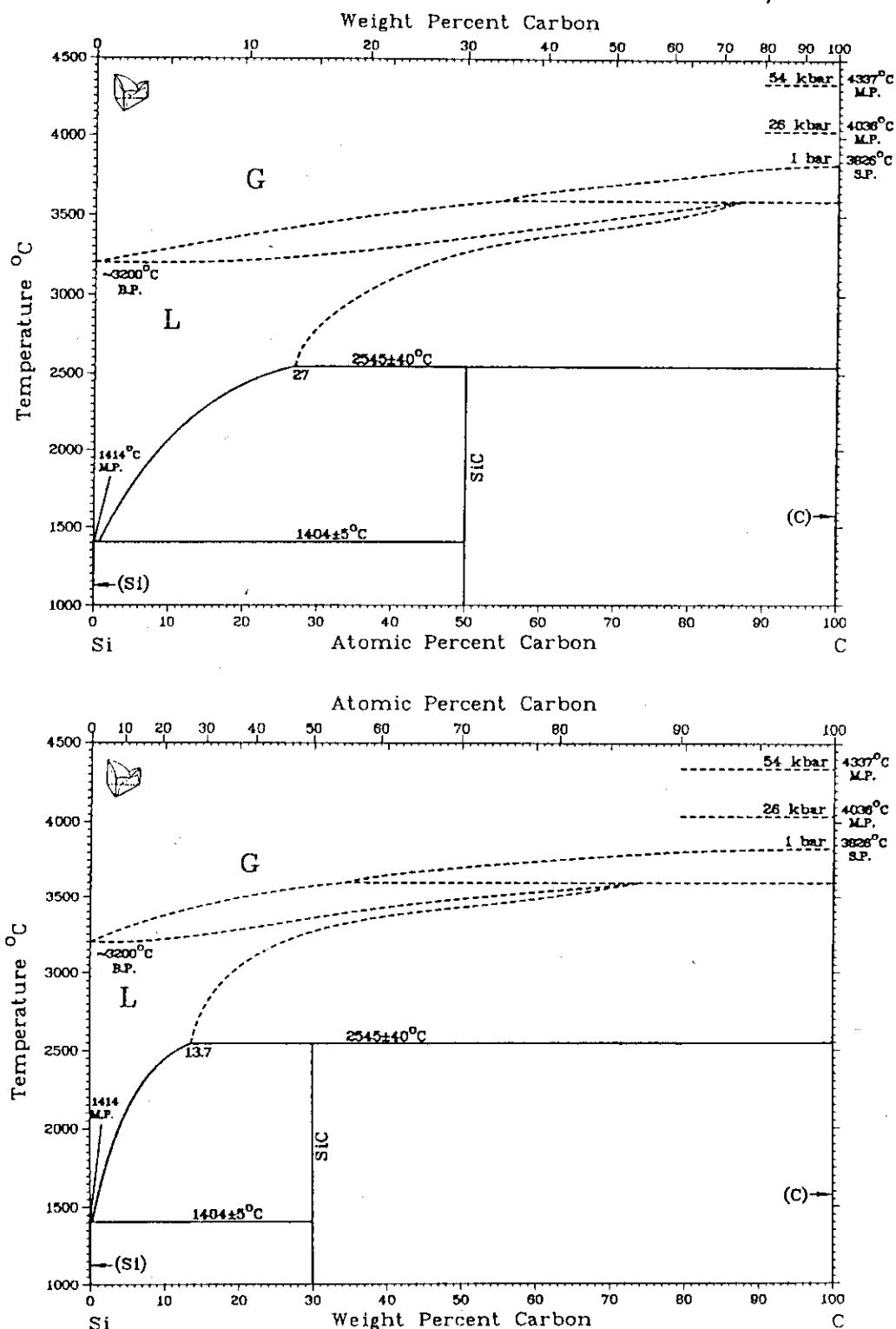
Fig. 2.6 Structure of fuel element of HTTR<sup>(3)</sup>.

**Zr-C Phase Diagram**

From [Metals].

Fig. 2.7 Phase diagram of zirconium - carbon system<sup>(11)</sup>.

## Assessed Si-C Phase Diagram



All temperatures have been adjusted to IPTS-68.

R.W. Olesinski and G.J. Abbaschian, 1984.

Fig. 2.8 Phase diagram of silicon - carbon system<sup>(11)</sup>.

### 3. 試験燃料体の健全性評価

#### 3.1 健全性評価の項目

B型燃料体の燃料要素は、被覆燃料粒子を含有する燃料コンパクト、黒鉛スリーブ等から構成されている。FPは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FPの閉じ込め性能を確保することが重要である。

以下に述べる健全性評価にあたっては、A型燃料体の場合<sup>(8,9)</sup>と同様に、次の項目について評価を行う。なお、B型燃料体の製作性については、付録2に示す。

##### (1) 通常運転時の健全性

###### a. 燃料粒子被覆層の破損

破損原因としては、燃料核移動及びPdによるSiC層又はZrC層の腐食を考慮する。

燃料核移動は、被覆燃料粒子の燃料核が照射下で温度勾配下で高温側に向って燃料粒子被覆層の中に食い込んで行くことによって移動する現象である<sup>(14,15)</sup>。燃料核が移動してSiC層に接触すると、被覆層の貫通破損（全被覆層破損）に至る可能性が高くなる。

PdによるSiC層の腐食は、FP元素の1つであるPdが燃料核から放出されてSiC層の内面に達し、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るSiC層の腐食である。被覆燃料粒子のSiC層が腐食されると、金属FPに対する保持能力が低下し、また気体FPの内圧に対する機械的強度が低下して、貫通破損に至る可能性が高くなる。

これら以外の原因による燃料粒子被覆層の破損は、照射健全性試験による評価項目として取扱う。

###### b. 照射健全性

燃料の照射試験データを用いて、HTTR条件下における健全性を評価する。具体的には、燃料粒子被覆層が、Pdを含むFPによる第3層(SiC層またはZrC層)の腐食、気体FPの内圧による破損、製造時の欠陥等、種々の破損原因に対して健全性を保ち、照射後破損率が十分許容しうる低い値であることを確認する。また、燃料コンパクトが割れ、欠けを生じず健全であることを確認する。

##### (2) 異常高温時の燃料粒子被覆層の破損

A型燃料体の場合には、燃料の許容設計限界の判断基準は、燃料粒子被覆層の破損率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」とした<sup>(3,9)</sup>。B型燃料体に対してこの基準が適用できるか否かについて評価する。

なお、燃料体の黒鉛ブロックについては、A型燃料体と全く同一仕様であり、「黒鉛構造設計方針」<sup>(12)</sup>に基づいてA型燃料体の黒鉛ブロックと同様の評価を行うことができ、その健全性が保たれるることは確認されている<sup>(8)</sup>。また、黒鉛スリーブの仕様は、A型燃料体の場合と同一であり、B型燃料体の照射条件(運転条件)はA型燃料体の照射条件よりも緩やかであるため、その健全性

は A 型燃料体の試験<sup>(7)</sup>によって実証されていると判断できる。また、燃料コンパクトについて  
は、B-1型及びB-2型燃料体の粒子充填率が35 vol%であること以外は、A型燃料体の場合  
と同一であり、その健全性は、A型燃料体の試験結果から推定できる。

本報告書では、主に被覆燃料粒子の健全性について評価し、合わせて燃料コンパクトの健全性  
についても評価を行う。

### 3.2 健全性評価の方法

通常運転時の燃料粒子被覆層の破損機構としては、これまでの国内外における燃料に関する試  
験結果<sup>(7)</sup>に基づき、燃料核の移動による破損及びPdによるSiC層の腐食を考慮する。なお、ZrC  
層は、Pdに対して十分な耐食性を有している<sup>(13)</sup>のでPdによるZrC層の腐食は考慮しない。A  
型燃料体についての燃料核移動及びPdによるSiC層の腐食の評価方法の詳細を、付録3に示  
す。

#### (1) 燃料核移動

B-1型及びB-2型燃料体については、燃料核移動速度は、これまでの燃料に関する試験  
結果<sup>(7)</sup>に基づき、A型燃料体についての評価式である次式を用いる。

$$\begin{aligned} KMR &= KMC \cdot 1/T^2 \cdot dT/dr \\ &= 2 \times 10^{-6} \exp(-1.48 \times 10^4/T) \cdot 1/T^2 \cdot dT/dr \dots \dots \dots \quad (1) \end{aligned}$$

ここで、

KMR : 燃料核移動速度 (m/s)

KMC : 燃料核移動速度係数 (K · m<sup>2</sup>/s)

T : 燃料温度 (K)

dT/dr : 燃料温度勾配 (K/m)

である。

(1)式で求めた燃料核の移動距離が第3層の内面までの厚さに達した時点で、燃料粒子被覆層  
の破損が生じるものとする。

B-3型燃料体については、燃料核移動による燃料粒子被覆層の有意な破損のないことは、  
試験データに基づき確認する。

#### (2) PdによるSiC層の腐食

PdによるSiC層の腐食に起因する燃料粒子被覆層の有意な破損のないことは、試験データ  
により確認する。試験データの解析を行う際に用いるPd放出量(SiC層の内表面積あたり)  
の計算方法については、付録3に示すA型燃料体についての計算方法を用いる。

### 3.3 B-1型燃料体の健全性

#### 3.3.1 通常運転時の健全性

##### (1) 燃料粒子被覆層の破損の評価

### a. 燃料核移動

B-1型燃料体の被覆燃料粒子は、燃料核( $\text{UO}_2$ )、第1層(低密度熱分解炭素層)、第2層(高密度熱分解炭素層)とともにA型燃料体と同じ材料から成っており、それらの寸法諸元はA型燃料体のものとほぼ同様である。従って、B-1型燃料体の燃料核の移動距離は、A型燃料体の場合と同じ方法で評価することができる。

B-1型燃料体と同一仕様の燃料を用いたアーベ効果キャップセル等による燃料核移動データは取得していない。しかし、B-1型燃料体は高温試験運転(冷却材出口温度950°Cの運転)時には用いないため、その運転条件は、燃料の最高温度、最高温度勾配とともに高温試験運転時のA型燃料体の場合より低く、燃料核の最大移動距離はA型燃料体の場合より小さい。また、被覆燃料粒子の第1層を厚くしているため、燃料核移動による被覆層の破損については、A型燃料体の場合より問題が軽減される。

以上のことから、B-1型燃料体の燃料核移動に対する健全性は保たれると判断することができる。

### b. PdによるSiC層の腐食

A型燃料体についてのPdによるSiC層の腐食の設計曲線は、燃料核及び被覆層の寸法が変わっても、その材料が同じであれば使用でき、B-1型燃料体に対しても適用可能である。

B-1型燃料体は高温試験運転時には用いないため、その燃料最高温度は、高温試験運転時のA型燃料体の燃料最高温度より低い。そのため、A型燃料体の場合に比べて全運転期間を通じての燃料核からのPd放出量(SiC層の内表面積あたり)が少なく、従ってPdによるSiC層腐食距離はA型燃料体の場合より小さくなる。

さらに、B-1型燃料体は、A型燃料体に比べてSiC層の厚さを厚くしているため、PdによるSiC層の腐食距離がSiC層の厚さに達するまでには余裕がある。このため、PdによるSiC層の腐食に対する健全性は保たれ、A型燃料体より向上すると判断できる。

## (2) 照射健全性試験

B-1型燃料体の被覆燃料粒子の照射健全性については、本質的にA型燃料体の照射健全性と同様若しくは性能の向上が期待される。その確認のため、SiC層厚さが30μm及び45μmの被覆燃料粒子を用いた燃料コンパクトについて、Table 3.1に示す照射試験を実施している。これらの燃料コンパクト照射後の燃料粒子被覆層の破損率は、Table 3.2に示すようにA型燃料体の場合<sup>(9)</sup>と同程度であった。また、照射後の被覆燃料粒子の断面組織観察(82F-1A及び82F-2Aキャップセル)において、A型燃料体の場合と異なる破損や欠陥は見られなかつた<sup>(16)</sup>。更に、燃料コンパクトについても、照射後に割れ欠けの発生は見られず、構造健全性は維持されていた。例として、JMTR密封キャップセル(82F-1Aキャップセル)で照射した燃料コンパクトの外観及び断面組織をFig. 3.1に示す<sup>(16)</sup>。

以上の照射健全性試験結果から、SiC層の厚さが30μmと45μmの間にあるB-1型燃料体(SiC層厚さ35μm)についても、少なくともA型燃料体と同等の健全性が確保されると判断できる。

なお、B-1型燃料体の被覆燃料粒子の第4層(高密度熱分解炭素層)の厚さは40μmであり、A型燃料体の場合(45μm)に比べて、若干薄い。この第4層の厚さの影響を調べるため、

照射中の被覆層の応力を MICROS-2 コード<sup>(17-19)</sup>を用いて解析した。その結果、照射中の被覆層の応力は、第4層の厚さが 40 μm の場合でも 45 μm の場合でも殆ど変わらないことがあきらかになった。その解析の結果は改めて報告する。

A型燃料体の第4層厚さの仕様は、国内において高温ガス炉燃料の開発を進めるにあたって、製造時の破損を避けるために十分な余裕をもった仕様としたものであり、諸外国の高温ガス炉燃料仕様に比べても厚くなっている。以上のことから、この程度の第4層の厚さの変化にかかわらず、B-1型燃料体の健全性は保たれると判断できる。

### 3.3.2 異常高温時の被覆層破損

B-1型燃料体は、被覆層の寸法が A型燃料体の場合と若干異なるものの、その材質が A型燃料体の場合と同じであるため、異常高温時の挙動は A型燃料体の試験結果から推定できる。

被覆燃料粒子の SiC 層は、異常高温において SiC の熱分解に伴って徐々に破損に至る。ただし、被覆燃料粒子の SiC 層の熱分解反応は、第4層の熱分解炭素被覆層に覆われているため、不活性ガス雰囲気中に比べて抑制されると考えられている<sup>(20)</sup>。以下に、異常高温における SiC の熱分解及びこれに伴う SiC 層の劣化（機械的強度の低下）について検討する。

A型燃料体の被覆燃料粒子の異常高温加熱試験においては、1,900°C 以下の温度では、運転時の異常な過渡変化条件において被覆層の有意な破損は生じていない。また、燃料コンパクトに割れや欠け等の損傷は生じていない<sup>(7,9,10)</sup>。一方、1900°C 以上では徐々に被覆燃料粒子の破損率が増加することが観察されている<sup>(10)</sup>。これは、SiC 層の熱分解が徐々に進行する一方、加熱に伴って生じる一酸化炭素ガス及び燃料核から放出される気体 FP による内圧上昇のために、製造時に SiC 層が薄かったり被覆層に欠陥を持っていた被覆燃料粒子等から徐々に破損が生じ始めることによと思われる。

温度が更に上昇して 2000°C 程度となると、SiC 層の熱分解が急速に進行し、これに伴って SiC 層の機械的強度が急速に低下する。また、内圧の上昇も大きいため、製造時の被覆層の厚さのバラツキや欠陥の有無と殆ど無関係に、短時間のうちに被覆燃料粒子の破損率が急激に増大することが観察されている。参考として、西独 (HOBEG 社) で製造した被覆燃料粒子の SiC 層の厚さの減少速度と温度の関係<sup>(21)</sup>を Table 3.3 に示す。

なお、温度が 2200°C を超えると SiC 層の熱分解は更に急速になり、SiC 層内部に気孔が生じて密度が急速に減少し、それとともに被覆燃料粒子が更に短時間のうちに破損することが観察されている<sup>(22)</sup>。この場合には、2200°C 以下の温度の場合より更に急速に SiC 層の熱分解に伴う機械的強度の低下及び内圧上昇が生じているものと考えられる。

B-1型燃料体の異常高温時の被覆層破損については、被覆核及び被覆層の材質が A型燃料体の場合と同じであることから、その挙動は本質的には A型燃料体と同じであり、かつ、SiC 層が A型燃料体の場合より厚いため、異常高温時の健全性は A型燃料体の場合と少なくとも同程度であり、より低温側では A型燃料体の場合より向上すると考えることができる。

### 3.3.3 まとめ

以上述べたように、SiC 層の厚さが 30 μm 及び 45 μm の被覆燃料粒子を含有した燃料コンパ

クトの照射試験を行い、それらの健全性を確認している。

SiC 層は、被覆燃料粒子の寸法安定性、強度、FP 保持等の点で、各被覆層のうちで最も重要な位置を占める。現在までに取得した、SiC 層の厚い被覆燃料粒子の照射健全性データ数は多いとは言えないが、しかし、SiC 層の厚さをこのように変化させても、照射後の被覆燃料粒子の破損率や断面組織等、照射健全性の点で、A 型燃料体の照射の場合と異なった結果は得られておらず、A 型燃料体と同程度の健全性が保たれることができることが確認されている。従って、SiC 層の厚さが 30  $\mu\text{m}$  と 45  $\mu\text{m}$  の間にある B-1 型燃料体 (SiC 層厚さ 35  $\mu\text{m}$ ) についても、A 型燃料体と同等の健全性が保たれると判断することができ、さらに A 型燃料体に比べて健全性の向上が期待できる。

また、運転時の異常な過渡変化時においても、A 型燃料体と同程度の健全性は十分確保できると判断できる。

### 3.4 B-2 型燃料体の健全性

#### 3.4.1 通常運転時の健全性

##### (1) 燃料粒子被覆層の破損の評価

###### a. 燃料核移動

B-2 型燃料体の被覆燃料粒子は、燃料核 ( $\text{UO}_2$ )、第 1 層（低密度熱分解炭素層）、第 2 層（高密度熱分解炭素層）とともに A 型燃料体の被覆燃料粒子と同じ材料から成っており、それらの寸法諸元は A 型燃料体のものとほぼ同様である。そのため、B-2 型燃料体の燃料核の移動距離は、A 型燃料体の場合と同じ方法で評価することができる。

B-2 型燃料体は高温試験運転時には装荷しないことから、その燃料最高温度及び最高温度勾配は高温試験運転時の A 型燃料体の場合より低く、燃料核の移動距離は、A 型燃料体の場合より小さくなる。更に、被覆燃料粒子の第 1 層（バッファ層）の厚さを 80  $\mu\text{m}$  と A 型燃料体の場合 (60  $\mu\text{m}$ ) より厚くしているため、燃料核移動による被覆層の破損の問題は、A 型燃料体の場合よりも軽減される。

また、Fig. 3.2 に示すように、燃料核移動によって  $\text{UO}_2$  燃料核が ZrC 層と接触しても ZrC 層には反応が見られなかった<sup>(23)</sup>。この結果は、1,400°C ~ 1,700°C における炉外加熱実験において、ZrC と  $\text{UO}_2$  層の間に反応が見られなかった<sup>(24)</sup>ことに対応している。このように ZrC は高温で化学的に安定なため、燃料核移動のために燃料核が ZrC 層と接触しても ZrC 層の破損は SiC 層の破損に比べて軽減されると判断できる。

以上のように、燃料核移動距離及び ZrC 層の化学的安定性の点から見て燃料核移動による燃料粒子被覆層の破損は、HTTR の条件下では問題とならないと判断できる。

###### b. Pd による ZrC 層の腐食

Pd による ZrC 層の腐食の反応について調べる炉外実験が行われた<sup>(13)</sup>。実験は、高温で Pd 蒸気圧を変化させ、ZrC 被覆燃料粒子の ZrC 層の腐食反応を調べる方法によって行われた。その結果、SiC 層が相当腐食するような蒸気圧及び温度条件下においても、ZrC 層に有意な反応は見られなかった。即ち、この実験において、約 1,340°C (220 時間) では Pd は SiC 層

を透過し、約 1,560°C (6 時間) では Pd は SiC 層と激しく反応した。しかし、ZrC 層については、約 1,560°C (20 時間及び 50 時間)、約 1,650°C (25 時間)、約 1,78°C (7 時間)、約 1,880°C (7 時間) において Pd との反応は見られなかった<sup>(13)</sup>。また、照射後の被覆燃料粒子の断面組織においても、ZrC 層の有意な腐食は観察されていない。

このように、ZrC の高温での化学的安定性が高いため、Pd による ZrC 層の腐食に起因する被覆層の破損は HTTR の条件下においては問題にならないと判断できる。

## (2) 腐食健全性試験

ZrC 被覆層を用いた四重(TRISO) 被覆燃料粒子の照射試験は、JMTR のスイープガスキャップセル、密封キャップセル及び JRR-2 キャップセルによって行われた<sup>(25)</sup>。

ZrC 被覆燃料粒子の照射試験の一覧を Table 3.4 に示す。また、これらのキャップセルの照射後試験の結果として、外観検査、X 線ラジオグラフィ及び酸浸出による破損率測定の結果を Table 3.5 にまとめて示す。照射は 7 本のキャップセルによって行われたが、これらの照射試験において、最高温度 1,360°C で HTTR 試験燃料体としての最大燃焼度を超える 35,000 MWd/t まで照射した場合 (78 F-4 A キャップセル) を含めて、ZrC 被覆燃料粒子には有意な破損は認められなかった。また、照射後の被覆燃料粒子の断面組織において、ZrC 層の有意な腐食は観察されていないことから、FP による腐食は問題にならないと判断できる。

照射下における FP の放出については、JMTR スイープガスキャップセルによって、短半減期の気体 FP 及び金属 FP の放出についての測定が行われた。その結果を Table 3.6 に示す。この表に見られるように約 1,000°C、約 14,000 MWd/t の燃焼度 (80 F-4 A キャップセル) の照射では、気体 FP の放出率は照射初期と末期においてほとんど変わらず、十分低い値であった。また、金属 FP の放出割合も十分低い値であり、SiC 被覆燃料粒子からの放出割合と同程度であった。

以上の試験結果は、ZrC 被覆燃料粒子の照射に対する健全性及び FP に対する保持機能を実証している。また、第 3 層を ZrC にすることによる性能の低下は、HTTR の条件においては特に考えられない。

また、燃料コンパクトについては、照射後に割れや欠けの発生は見られず、構造健全性は維持されていた。

以上のことより、B-2 型燃料体の通常運転時の照射健全性は確保されると判断できる。

### 3.4.2 異常高温時の被覆層破損

1,600°C を超える温度における ZrC 被覆燃料粒子の健全性を調べるため、照射済被覆燃料粒子の異常高温加熱試験が行われた<sup>(26)</sup>。

試験に用いた被覆燃料粒子は、Table 3.4 に示した 78 F-4 A キャップセルで照射したものであり、最高照射温度は 1,360°C、燃焼度は約 35,000 MWd/t、高速中性子照射量は  $2.2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ ) である。被覆燃料粒子の寸法は、燃料核が直径 500 μm で被覆層の厚さは A 型燃料体のものと同一である。すなわち、ZrC 被覆層の厚さは 25 μm である。

試験は A 型燃料体の被覆燃料粒子の加熱試験に用いた装置<sup>(10)</sup>によって、101 粒の ZrC 被覆燃料粒子を昇温速度 1 °C / 分で加熱し、加熱に伴う<sup>85</sup>Kr ガスの放射能を常時測定し、破損に伴う放

射能濃度ピークを検出するという方法で破損粒子数が求められた。なお試料の温度は、校正済みの光高温計（パイロメータ）で測定している。

試験結果を Fig. 3.3 に示す。この図に示すように、1 °C / 分の昇温速度で 2,400 °C まで加熱しても、<sup>85</sup>Kr の有意な放出は観察されず、破損粒子数はゼロであった。2,400 °C で温度を保持して更に加熱を維持したところ、この図に示すように <sup>85</sup>Kr の濃度ピークが検出され、初めて 1 粒の破損が生じたことが明らかになった。

以上の結果から、ZrC 被覆燃料粒子についての異常高温における健全性が実証された。従って、B-2 型燃料体についても、許容設計限界として、「運転時の異常な過渡変化時に燃料温度が 1,600 °C を超えないこと」と設定することは妥当である。

### 3.5 B-3 型燃料体の健全性

#### 3.5.1 通常運転時の健全性

##### (1) 燃料粒子被覆層の破損の評価

###### a. 燃料核移動

国内における試験により得られた (U, Th) O<sub>2</sub> 核被覆燃料粒子についての燃料核移動速度係数 (KMC) の実測データ及び HTTR 設計曲線 (A 型燃料体用) を Fig. 3.4 に示す。ただし、HTTR 設計値は A 型燃料体の実測データを統計的に処理して、95% 信頼度 (上側 2σ, σ は標準偏差) 以上となるように保守的に安めたものである。

Fig. 3.4 に示す実測データは、80 F-3 A 及び 84 F-11 A キャプセルで、黒鉛ディスクに装荷して照射した (U, Th) O<sub>2</sub> 核被覆燃料粒子<sup>(24)</sup>について求めたものである。試料の照射条件を Table 3.7 に示す。

試験方法は、A 型燃料体の場合<sup>(7, 9)</sup>にアーベー効果キャプセル照射によって行ったのと同じ方法である。すなわち、照射前後の各粒子ごとの X 線ラジオグラフを用いて、SiC 層内面と燃料核表面との距離の照射前後の差から燃料核の移動距離を求めた。その結果有意な燃料核移動は見られなかったため、検出限界 (保守的に見ても 0.3 μm 以下)<sup>(27)</sup> から KMC の値は、 $7 \times 10^{-8}$  K · cm<sup>2</sup>/s 以下と評価できる。Fig. 3.4 から分かるように、実測データは HTTR 設計値より十分低い値である。

海外において得られた UO<sub>2</sub>, ThO<sub>2</sub>, (U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核の燃料核移動速度係数 (KMC) の比較を Fig. 3.5 に示す<sup>(15)</sup>。この図から分かるように、約 1,500 °C 以下の低温側では、ThO<sub>2</sub> の KMC は、UO<sub>2</sub> の KMC より小さく、(U, Th) O<sub>2</sub> の KMC はその中間である。このデータは、上の国内データの妥当性を支持している。

実際、(2)に示すように、B-3 型燃料体の使用制限条件である燃焼度 22,000 MWd/t までの照射健全性試験において、有意な燃料核移動は観察されていない<sup>(27, 28)</sup>。

B-3 型燃料体では、燃料最高温度を 1,000 °C に抑える。このため、燃料核移動速度係数 (KMC) は十分小さくなり、従って燃料核移動による燃料粒子被覆層の破損に対して、B-3 型燃料体の健全性は確保されると判断することができる。

###### b. Pd による SiC 層の腐食

Pd による SiC 層の腐食を調べるための被覆燃料粒子の断面組織観察は 78 F-4 A キャプセル（最高温度 1,000°C, 最大燃焼度 22,000 MWd/t), 観察粒子数約 30 粒) で照射した被覆燃料粒子<sup>(28)</sup>及び 80 F-3 A キャプセル（最高温度 1,340°C, 最大燃焼度 60,000 MWd/t, 観察粒子数 430 粒) でディスクに埋めこんで照射した被覆燃料粒子<sup>(27)</sup>について行われた。しかし、いずれも SiC 層の Pd による有意な腐食は観察されなかった<sup>(27, 28)</sup>。断面組織写真の例を Fig. 3.6 及び Fig. 3.7 に示す。

ここで、B-3 型燃料体の (U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核中の Pd 生成量および Pd 拡散係数について検討する。

Pd の生成量は、<sup>235</sup>U, <sup>233</sup>U, <sup>239</sup>Pu などの核分裂性質の核分裂数及びこれらの核分裂性物質からの Pd の核分裂収率<sup>(29)</sup>によって定まる。

Table 3.8 に、(U, Th) O<sub>2</sub> 及び UO<sub>2</sub> 燃料について、HTTR による燃焼末期（燃焼度 33,000 MWd/t) における Pd の生成量の評価値（相対値）を示す。この表から分かるように、Pd の生成量（相対値）は (U, Th) O<sub>2</sub> のほうが UO<sub>2</sub> に比べて約半分であることがわかる。

次に、UO<sub>2</sub> と (U, Th) O<sub>2</sub> 物性について比較し、(U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核中の Pd の拡散係数について検討する。

金属 U<sup>(30, 31, 32)</sup>, 金属 Th<sup>(32)</sup>, UO<sub>2</sub><sup>(31, 32)</sup> 並びに ThO<sub>2</sub><sup>(31, 32)</sup> の諸物性の比較を Table 3.9 に示す。この表から分かるように、金属 U と金属 Th の物性は融点、相変態などの点で相当異っているが、UO<sub>2</sub> と ThO<sub>2</sub> はいずれも萤石 (CaF<sub>2</sub>) 型の結晶構造を持ち、物性的に似た性質を示す。また、UO<sub>2</sub> と ThO<sub>2</sub> は萤石型の結晶構造を保ったまま任意の比率で固溶する（全率固溶体となる）ことが分かっており、固溶体としての (U, Th) O<sub>2</sub> の物性は Th/U の組成比に応じて UO<sub>2</sub> と ThO<sub>2</sub> の物性の中間的な値を持つものと考えられる。

(U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核中の Pd の拡散係数に関する直接的なデータは得られていないが、Pd の拡散挙動は、Pd と化学的に似た性質を持つ銀 (Ag) の拡散挙動によって推測できる。UO<sub>2</sub> 及び (U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核中の Ag の拡散係数<sup>(34, 35)</sup>を Fig. 3.8 に示す。この図から分かるように UO<sub>2</sub> 及び (U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核中の Ag の拡散係数はほぼ一致している。このことから、(U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核中の Pd の拡散係数が、UO<sub>2</sub> 中の拡散係数と比較して極端に大きいことは考え難い。

また、西独の (U, Th) O<sub>2</sub> 燃料を用いたペブル・ベッド炉の通常運転条件下では、キャップセル照射試験及び AVR による運転を通じて SiC の腐食に起因する被覆層の破損は観察されていない<sup>(35)</sup>。

以上のことと合わせて、B-3 型燃料体では最高照射温度を 1,000°C に制限するので燃料核から放出される Pd の量は十分少なく、従って Pd による SiC 層の腐食に起因する被覆層の破損は十分小さく抑えられると判断できる。

## (2) 照射健全性試験

(U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核に二重 (BISO) 被覆又は四重 (TRISO) 被覆を施した被覆燃料粒子をそのまま、及びディスクまたは燃料コンパクトに成型したものを JRR-2 及び JMTR においてキャップセル照射している。現在まで照射を行ったキャップセル数は Table 3.10 a 及び 3.10 b に示すように JRR-2 が 7 本、JMTR が 6 本である。このうち、照射後試験の終了している範囲

は、Table 3.11 に示すように最高温度約 1,390°C、燃焼度約 67,000 MWd/t、高速性子照射量  $2.2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ )、[84 F - 11 A キャプセル] までである。照射後試験としては、被覆燃料粒子の外観観察、X 線ラジオグラフィ、断面顕微鏡観察、破損率測定等を実施している。これらの試験の結果によると、被覆燃料粒子は健全性を保っており、A 型燃料体の被覆燃料粒子と特に異なる挙動は認めていない。このことは、Fig. 3.7 に示した被覆燃料粒子の照射後の断面組織写真において、有意な燃料核移動、Pd による SiC 層腐食、SiC 層破損等がないことからも分かる。84 F - 11 キャプセルで照射した約 1,200 粒の被覆燃料粒子の X 線ラジオグラフにおいても、被覆層に異常は見られなかった。

酸浸出による照射後燃料破損率測定は 84 F - 11 A キャプセルで照射した 2 個のコンパクトについて行われた。その結果を Table 3.12 に示す。この表に示すように、酸浸出率は TRISO 被覆粒子のみの破損によるものと考えた場合、 $6 \times 10^{-6}$  及び  $3 \times 10^{-5}$  であった。これらの値は、燃料コンパクト中に TRISO 被覆粒子には 1 粒子の破損もないことを示している。

燃料コンパクトの健全性については、84 F - 11 A キャプセルで照射した 4 個及び 86 F - 2 A キャプセルで照射した 2 個の照射コンパクトについて調べられた。照射後の外観検査において、有意な割れ、欠けは観察されず健全であった。また、A 型燃料体の結果との相違は特に見られなかった<sup>(27)</sup>。

なお、西独では (U, Th) O<sub>2</sub>-TRISO 被覆燃料粒子について種々の照射試験が行われ、良好な結果が得られている。照射試験結果の一例を Fig. 3.9 に示す<sup>(36)</sup>。約 300 日の照射期間全体にわたって <sup>85m</sup>Kr の放出率 (R/B) は  $10^{-6}$  以下であり、良好な性能が実証されている。

以上のことから、B - 3 型燃料体の照射条件 (照射温度 1,000°C 以下、燃焼度 22,000 MWd/t 以下) については、燃料の健全性は十分確保されると判断できる。

### 3.5.2 異常高温時の被覆層破損

照射済被覆燃料粒子を、A 型燃料体の場合と同じ方法で定速昇温法により加熱試験を行った。試料は、86 F - 11 A キャプセルで照射した燃料コンパクトの解碎により得た (U, Th) O<sub>2</sub> 核-TRISO 被覆燃料粒子であり、照射温度 (最高) は 1,390°C、燃焼度は 24,000 MWd/t、高速中性子照射量は  $2.1 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ ) (Table 3.11 参照) である。

A 型燃料体の場合と同様に 100 粒の被覆燃料粒子を 1 °C / 分の一定速度で昇温し、放出される希ガス FP (<sup>85</sup>Kr) の放射能測定により破損率を求めるという方法により試験を行った。その結果、温度を 2,300°C まで上昇させても <sup>85</sup>Kr の放出ピークはみられなかった。すなわち、2,300°C まで加熱しても破損粒子数はゼロであった<sup>(24)</sup>。

また、Fig. 3.10 に示すように、西独における (U, Th) O<sub>2</sub> 燃料核を持つ SiC-TRISO 被覆燃料粒子の加熱試験においても同様の結果が得られている<sup>(21, 37)</sup>。

以上の結果から、1,600°C 以上の運転時の異常な過渡変化時における燃料の健全性は十分保たれると判断できる。

### 3.6 B型燃料体の健全性のまとめ

B-1型, B-2型及びB-3型燃料別の健全性についてのまとめをTable 3.13に示す。

以上述べたように, B-1型, B-2型及びB-3型燃料体の健全性は, 基本的には, 各燃料体と同一とみなしうる試験用燃料の照射試験によって実証されている。また, 上述のとおり, A型燃料体による同様な試験の結果の適用, 燃料の物性や破損機構に関する海外データや知見の活用, 解析評価などを通じて, B型燃料体の健全性は保たれると判断できる。

Table 3.1 Results of production and irradiation tests of coated fuel particles with thicker SiC layer than those of the A-type fuel assembly.

キャラセルの種類	キャラセル名	燃料コバクト個数	SiC層厚さ(μm)	照射温度(°C)	実効照射日数	燃焼度(MWd/t)	高速中性子照射量(n/cm², E>0.18MeV)
JMTR密封	82F-1A	3 個	30	1,540	86	24,000	2.4×10²¹
JMTR密封	82F-2A	2 個	30	1,530	64	13,000	7.7×10²⁸
JMTRライ-ジ・カスキャラセル	84F-9A	4 個	30	1,290	62	8,000	6.0×10²⁰
JMTR密封	84F-11A	2 個	30	1,600	86	23,000	2.2×10²¹
JMTR密封	85F-6A	1 個	45	1,390	168	45,000	4.5×10²¹
JMTR密封	86F-2A	4 個	45	800	63	12,000	1.6×10²¹
HTTR照射条件(B-1型燃料体, 燃料体平均)				35	約1,300	660	33,000 約 1.2×10²¹

注) 複数個の燃料コバクトの照射条件(温度、燃焼度、高速中性子照射量)は、それらの最大値を示す。

\* SiC層厚さ以外の燃料粒子被覆層の厚さは、A型燃料体の被覆燃料粒子に同じ。

Table 3.2 Failure fractions of irradiated coated fuel particles with thicker SiC layer than those of the A-type fuel assembly.

キャラセル名	コンパクト名	SiC被覆層厚さ(μm)	最高温度(°C)	燃焼度(MWd/t)	高速中性子照射量(n/cm², E>0.18MeV)	被覆燃料粒子破損率 照射前	被覆燃料粒子破損率 照射後
82F-1A	82TF1A-1 82TF1A-2	30 30	1,430 1,380	22,000 24,000	2.2×10²¹ 2.4×10²¹	<1×10⁻⁴ <1×10⁻⁴	3.1×10⁻⁴ 3.6×10⁻⁴
82F-2A	82TF2A-4	30	1,480	13,000	7.7×10²¹	未測定	1.3×10⁻⁴

Table 3.3 Thinning rate of SiC layer of coated fuel particles due to thermal decomposition at extremely high temperatures<sup>(21)</sup>.

被覆燃料粒子名	SiC被覆条件		SiC層厚さの減少速度(μm/h)		
	温度(℃)	蒸着速度(μm/min)	66h, 2000℃	24h, 2100℃	7h, 2200℃
E0 249-51	1450	0.5	0.13±0.04	0.62±0.12	2.0 ±0.8
E0 403-5	1490	0.62	0.25±0.13	0.67±0.12	1.6 ±0.5
D0 474 k	1600	1.0	0.10±0.02	0.43±0.07	1.4 ±0.6
D0 475 k	1600	1.0	0.24±0.06	0.77±0.07	3.0 ±0.6
D0 576-8	1550	—	0.28±0.04	—	—
E0 740-1	1500	—	0.14±0.02	0.85±0.14	3.3 ±0.7
E0 819-20	1500	—	0.13±0.02	—	—
EC 1338-9	—	—	0.31±0.10	0.72±0.02	3.7 ±0.7
EC0 1541	—	—	0.12±0.05	1.3 ±0.3	2.2 ±1.0
EU0 1551	—	—	0.40±0.10	1.7 ±0.1	4.6 ±0.3
E0 1607	—	—	0.15±0.03	0.62±0.11	1.7 ±0.5
E0 1674	—	—	0.29±0.08	1.2 ±0.2	2.7 ±0.5

Table 3.4 Results of production and irradiation tests of ZrC-TRISO-coated fuel particles.

キヤフ°セルの種類	キヤフ°セル名	燃料コハク°ト の個数	最高照射 温度 (°C)	実効日数	燃焼度 (MWd/t)	高速中性子 照射量 (n/cm <sup>2</sup> , E > 0.18MeV)
JMTR 密封	78F4A	4 個	1,360	81	35,000	2.2 × 10 <sup>21</sup>
JRR-2 密封	1CF26H	2 個	1,500	135	16,000	1 × 10 <sup>21</sup>
JMTR スライドガス キヤフ°セル	80F4A	2 個	1,000	80	14,000	1.2 × 10 <sup>21</sup>
JRR-2 アメーリ 効果 キヤフ°セル (温度勾配)	V0F8H V0F14H V0F20H	ディスク ディスク ディスク	1,360 1,600 1,550	156 139 48	15,000 13,000 5,000	— — —
JMTR 密封 キヤフ°セル	84F11A	粒子(4種)	—	86	9,000	1 × 10 <sup>21</sup>
H T T 照射条件 (B-2型燃料体)	約 1,300	660	33,000	約 1.2 × 10 <sup>21</sup>		

\* ZrC層厚さ 25 μm、その他の燃料粒子被覆層の厚さは A型燃料体の被覆燃料粒子に同じ。

Table 3.5 Failure fractions of ZrC-TRISO-coated fuel particles after irradiation.

キャプセル	試 料	外観検査	X線ラジオグラフ	燃料粒子被覆層 破損率(酸浸出率)
78F-4A	8F2-0138C	0/753*	0/871*	$4 \times 10^{-6}$
	4F2-0204C	0/120*	0/162*	$1 \times 10^{-4}$
ICF-26H	8F2-0610C	0/813*	0/813*	$5 \times 10^{-5}$
80F-4A	9Z1-1226C	0/1127* 0/991*	0/1127* 0/991*	約 $2 \times 10^{-5}**$

\* 破損被覆燃料粒子／被覆燃料粒子検査総数

\*\*  $^{88}\text{Kr}$ 放出率(R/B)から推定

Table 3.6 Fission product release from ZrC-TRISO-coated fuel particles during gas-sweep (80F-4A) capsule irradiation.

短半減期希ガス放出率(R/B)		
$^{88}\text{Kr}$	照射初期	$2 \times 10^{-7}$
	照射末期	$4 \times 10^{-7}$
長半減期核分裂生成物の放出割合		
$^{137}\text{Cs}$		$6 \times 10^{-6}$
$^{144}\text{Ce}$		$1 \times 10^{-5}$

Table 3.7 Irradiation conditions of  $(U, Th)O_2$  kernel - TRISO coated fuel particles used for measurement of kernel migration distance.

チャバセルの種類	燃料形態*1	燃料製造 バッチ名	U:Th 比 (EII %)	U濃縮 度(%)	照射 日数	最高温度*2 (°C)	最大燃焼度 (Mwd/t)	最大高速中性子 照射量(n/cm <sup>2</sup> $E > 0.18\text{MeV}$ )
J MTR 密封 80F-3A	ディスク	79TU1	20:80	20	83	1,340	15,000	$9.1 \times 10^{20}$
J MTR 密封 84F-11A	ディスク	83TU1	6:94	93	86	1,390	24,000	$2.2 \times 10^{21}$

\*1 TRISO被覆燃料粒子の寸法仕様は、燃料核  $500\mu\text{m}$ 、第1層（低密度熱分解炭素） $60\mu\text{m}$ 、第2層（高密度熱分解炭素） $30\mu\text{m}$ 、第3層（SiC） $25\mu\text{m}$ 、第4層（高密度熱分解炭素） $45\mu\text{m}$ である。

\*2 最高温度位置における値。

Table 3.8 Comparison of produced amount of palladium between  
 $(U, Th)O_2$  and  $UO_2$  kernels at the end of life.

		核分裂割合(A) <sup>3</sup>	核分裂収率(B) <sup>4</sup> (%)	$A \times B$
B - 3型燃料体 $(U, Th)O_2$ 燃料核 <sup>1)</sup>	$^{233}U$	0.19	1.0	0.19
	$^{235}U$	0.68	1.6	1.09
	$^{239}Pu$	0.10	15.8	1.58
	$^{241}Pu$	0.02	22.4	0.45
	計	1.00	—	3.31
A型燃料体 $UO_2$ 燃料核 <sup>2)</sup>	$^{233}U$	0	1.0	0
	$^{235}U$	0.72	1.6	1.15
	$^{239}Pu$	0.26	15.8	4.11
	$^{241}Pu$	0.02	22.4	0.04
	計	1.00	—	5.30

- 1) B - 3型燃料体:  $Th/U$  (モル比) = 4、 $^{235}U$ 濃縮度 20wt%、  
燃焼度 33,000 MWd/t
- 2) A型燃料体:  $^{235}U$ 濃縮度 6 wt% (A型燃料体のほぼ平均値)  
燃焼度 33,000 MWd/t
- 3) 燃焼度 0 から 33,000 MWd/t までの核分裂反応積分値 (核計算による値)
- 4) 質量数 105, 106, 107, 108, 110 の Pd 同位体の核分裂収率の和 (蓄積収率)

Table 3.9 Comparison of physical and chemical properties between metallic uranium and thorium,  $\text{UO}_2$  and  $(\text{U,Th})\text{O}_2$  (30-32).

	金屬 U	金屬 Th	$\text{UO}_2$	$\text{ThO}_2$
結晶構造	$\alpha$ : 正斜方晶 ( $< 668^\circ\text{C}$ ) $\beta$ : 正方晶 ( $< 774^\circ\text{C}$ ) $\gamma$ : 体心立方 ( $< 1132^\circ\text{C}$ )	$\alpha$ : 面心立方 ( $< 1360^\circ\text{C}$ ) $\beta$ : 体心立方 ( $< 1750^\circ\text{C}$ )	萤石 ( $\text{CaF}_2$ ) 型	萤石 ( $\text{CaF}_2$ ) 型
格子定数 (A)	$\gamma$ : 3.525 ( $\alpha$ , $\beta$ は省略)	$\alpha$ : 5.0842 ( $25^\circ\text{C}$ ) $\beta$ : 4.11 ( $1450^\circ\text{C}$ )	約 5.47	5.5971 ( $27^\circ\text{C}$ )
密度 ( $\text{g/cm}^3$ )	$\alpha$ : 19.04 $\beta$ : 18.11 $\gamma$ : 18.06	$\alpha$ : 11.72 ( $25^\circ\text{C}$ )	10.95	10.00 ( $27^\circ\text{C}$ )
融点 ( $^\circ\text{C}$ )	1132	1750	2880	3390
熱膨張率 ( $10^{-6}/^\circ\text{C}$ )	18 ( $25 \sim 805^\circ\text{C}$ )	14.9 ( $950^\circ\text{C}$ )	10.4	9.5
生成熱 $\Delta H_f^\circ$ (kcal/mol)	0	0	-259.3 ( $25^\circ\text{C}$ )	-293.2 ( $25^\circ\text{C}$ )

Table 3.10a Results of production and irradiation tests of  $(U, Th)O_2 - TRISO$  coated fuel particles; JRR-2 irradiation.

キャプセルの種類	キャプセルの名称	燃料形態	燃素製造バッチ名	U:Th 比(モル%)	U濃縮度(%)	照射日数	最高温度(°C)	最大燃焼度(MWd/t)	照射後試験状況
JRR-2 密封	VOF-4H	粒子, BISO	78TU3, 4	6:94	93	22	1,200	2,900	終了
	ICF-28H	粒子, TRISO 粒子, BISO	78TU1 78TU2~4	6:94 6:94	93 93	43 43	1,185 1,225	4,300 4,400	終了
JRR-2 密封	ICF-36H	デイカ, TRISO デイカ, TRISO デイカ, TRISO	78TU1 79TU1 79TU2	6:94 20:80 20:80	93 20 93	83 83 83	約 1,140 約 1,140 約 1,140	約 9,000 約 7,000 約 30,000	試験中
	同	デイカ, TRISO	79TU3	20:80	93	83	約 1,140	約 30,000	試験中
	同	デイカ, TRISO	78TU1	6:94	93	108	約 1,100	約 12,000	試験中
JRR-2 アメーバ	ICF-44H	デイカ, TRISO デイカ, TRISO	78TU1 79TU1	20:80 20:80	93 20	108	約 1,100	約 9,000	試験中
	同	デイカ, TRISO	83TU2	6:94	93	108	約 1,100	約 9,000	試験中
	ICF-52H	デイカ, TRISO	83TU1	6:94	93	(143)	(約 1,500)	(約 15,000)	試験中
JRR-2 アメーバ	同	デイカ, TRISO	83TU1	20:80	6	(143)	(約 1,500)	(約 4,000)	照射中
	同	デイカ, TRISO	86TU2	20:80	20	(143)	(約 1,500)	(約 12,000)	照射中
	同	デイカ, TRISO	86TU3	6:94	20	(143)	(約 1,500)	(約 4,000)	照射中
JRR-2 密封	ICF-61H	デイカ, TRISO	87TU3	30:70	4	(143)	(約 1,500)	(約 4,000)	照射中
	同	粒子, TRISO	83TU2	20:80	93	109	約 1,500	約 40,000	試験中
	同	粒子, TRISO	86TU1	20:80	6	109	約 1,500	約 9,000	試験中
JRR-2 密封	ICF-68H	粒子, TRISO コバルト, TRISO	86TU2 87TUC1 87TUC2	20:80 6:94 20:80	20 20 40	(110) (110) (110)	(約 1,400) (約 1,400) (約 1,400)	(約 3,000) (約 3,000) (約 3,000)	照射中
	同	粒子, TRISO コバルト, TRISO	86TU3	20:80	40	(110)	(約 1,400)	(約 20,000)	照射中

注) 照射後試験中のキャプセルに装荷した試料の温度は暫定的評価値、燃焼度は推定値。  
照射中のキャプセルに装荷した試料の温度は推定値、燃焼度は計画値。

Table 3.10b Results of production and irradiation tests of (U,Th)O<sub>2</sub> - TRISO coated fuel particles; JMTR irradiation.

チャバセルの種類	チャバセルの名称	燃料形態	燃料製造 バッチ名	U:Th 比 (モ%	U濃縮度(%)	照射日数	最高温度(°C)	最大燃焼度(MWd/t)	照射後試験状況
JMTR 密封	78F-4A 同上	粒子, TRISO 粒子, BISO	78TU1 78TU2, 3	6:94 6:94	93 93	82 82	1,000 1,000	22,000 22,000	終了
JMTR 密封	80F-3A 同上	デイク, TRISO デイク, TRISO デイク, BISO	79TU1 79TU2 79TU3	20:80 20:80 20:80	20 93 93	83 83 83	1,340 1,340 1,340	15,000 60,000 60,000	終了
JMTR 密封	82F-2A 同上	デイク, TRISO デイク, TRISO デイク, TRISO	79TU1 79TU2, 3 78TU1	20:80 20:80 6:94	20 93 93	64 64 64	約1,200 約1,200 約1,200	約10,000 約40,000 約13,000	試験中
JMTR 密封	84F-1IA 同上	コバルクト, TRISO デイク, TRISO	84TUC1 84TUC2 83TU1 83TU2	6:94 20:80 6:94 20:80	93 93 93 93	86 86 86 86	1,390 1,390 1,390 1,390	24,000 67,000 24,000 67,000	終了
JMTR 密封	85F-6A 同上	デイク, TRISO デイク, TRISO デイク, TRISO デイク, TRISO	78TU1 79TU1 83TU1 83TU2	6:94 20:80 6:94 20:80	93 20 93 93	168 168 168 168	約1,230 約1,230 約1,230 約1,230	約30,000 約25,000 約30,000 約100,000	試験中
JMTR 密封	86F-2A 同上	粒子, TRISO 粒子, TRISO コバルクト, TRISO コバルクト, TRISO	79TU1 83TU2 84TUC1 84TUC2	20:80 20:80 6:94 20:80	20 93 93 93	62 62 62 62	約1,330 約1,330 約1,330 約1,330	約10,000 約51,000 約14,000 約51,000	試験中
HTTR照射条件(B-3型燃料体, 燃料体平均)				コバルクト, TRISO	約20:80	約20	約550	995	22,000
									—

注) 照射後試験中のチャバセルに装荷した試料の温度は暫定的評価値、燃焼度は推定値

Table 3.11 Irradiation condition of  $(U,Th)O_2$  - TRISO coated fuel particles  
whose post-irradiation examinations have been finished.

キャブセルの種類	キャブセルの名称	燃料形態*	燃料製造 バッチ名	U:Th 比 (モル %)	U濃縮 度(%)	照射 日数	最高温度 (°C)	最大燃焼度 (MWh/t)	最大高速中性子 照射量( $n/cm^2$ $E > 0.18MeV$ )
JRR-2 密封	ICF-28H	粒 子	78TU1	6:94	93	43	1,185	4,300	$1.6 \times 10^{20}$
JMTR 密封	78F-4A	粒 子	78TU1	6:94	93	82	1,000	22,000	$2.2 \times 10^{21}$
JMTR 密封	80F-3A	ディスク ディスク	79TU1 79TU2	20:80 20:80	20 93	83 83	1,340 1,340	15,000 60,000	$9.1 \times 10^{21}$
JMTR 密封	84F-11A	コンパクト コンパクト ディスク ディスク	84TUC1 84TUC2 83TU1 83TU2	6:94 20:80 6:94 20:80	93 93 93 93	86 86 86 86	1,390 1,390 1,390 1,390	24,000 67,000 24,000 67,000	$2.2 \times 10^{21}$

\* TRISO被覆燃料粒子の寸法仕様は、燃料核 500  $\mu m$ 、第1層（低密度熱分解炭素）60  $\mu m$ 、  
第2層（高密度熱分解炭素）30  $\mu m$ 、第3層（SiC）25  $\mu m$ 、第4層（高密度熱分解炭素）45  $\mu m$ である。

Table 3.12 Failure fractions of  $(U, Th)O_2 - TRISO$  coated fuel particles  
irradiated in a JMTR closed capsule (80F-11A).

ユンバクト名 (製造バッチ名)	U:Th 比 (E) %	U濃縮度(%)	最高温度 (°C)	燃焼度 (MWd/t)	高速中性子 照射量( $n/cm^2$ ) $E > 0.18\text{MeV}$	1粒子破損に対する破損率 (*)	破損率測定値 (照射後 酸浸出率)
T A 2 (84TUC1)	6:94	93	1,390	24,000	$2.1 \times 10^{21}$	$1.1 \times 10^{-4}$ (*)1	$6 \times 10^{-6}$
T B 2 (84TUC2)	20:80	93	1,390	67,000	$2.1 \times 10^{21}$	$1.2 \times 10^{-4}$ (*)2	$3 \times 10^{-5}$

\* 1 充填粒子数 :  $(U, Th)O_2 - TRISO$ 粒子 約 7,300個、 $ThO_2 - BIS0$ 粒子 約 2,200個、合計約 9,500個。

\* 2 充填粒子数 :  $(U, Th)O_2 - TRISO$ 粒子 約 2,200個、 $ThO_2 - BIS0$ 粒子 約 6,350個、合計約 8,550個。

Table 3.13 Summary of performance tests of fuel elements of B-type fuel assemblies.

評価項目	B-1型(SiC層 35μm)	B-2型(ZrC被覆粒子)	B-3型((U,Th)O <sub>2</sub> 核)
燃料核移動 通常運転時の健全性	A型と本質的に同一 第1層が厚いため健全性向上 温度が低く温度勾配が小さいため 移動距離が小さい Pdによる第3層腐食	移動速度はA型と本質的に同一 第1層が厚いため健全性向上 温度が低く温度勾配が小さいため 移動距離が小さい UO <sub>2</sub> とZrCは反応しない	KMCの実証データは十分小さい 温度が低く(≤1000°C)温度勾配が 小さいため移動距離が小さい
照射健全性実証	A型と本質的に同一 第3層が厚いため健全性向上 温度が低いため腐食距離が小さい	HTR条件下でZrCとPdは反応 しない(Pd以外のFPによる腐食 も見られない)	1000°C、22000Mwd/tで有意な Pd腐食なし
異常高溫時 安全性	SiC厚さ 30μm及び 45μmの被 覆燃料粒子の健全性を実証 燃料コンパクトに有意な割れ、欠 けなし	ZrC被覆燃料粒子の照射健全性を 実証 燃料コンパクトに有意な割れ、欠 けなし	(U,Th)O <sub>2</sub> 核被覆燃料粒子の照射健 全性を実証 燃料コンパクトに有意な割れ、欠 けなし
HTR運転条件 燃料最高温度(°C) 最大燃焼度(Mwd/t)	約1,300 33,000	約1,300 33,000	995 22,000

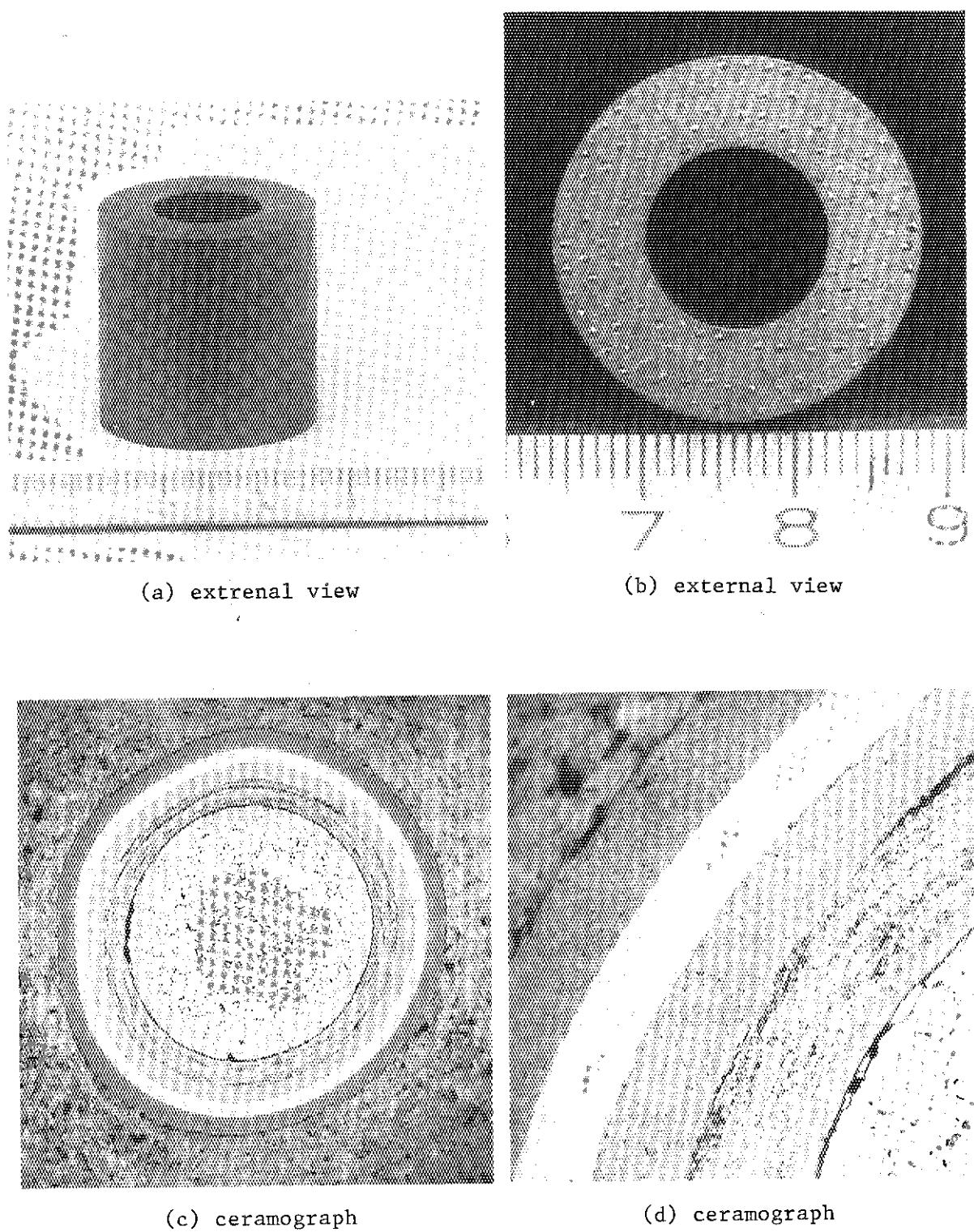
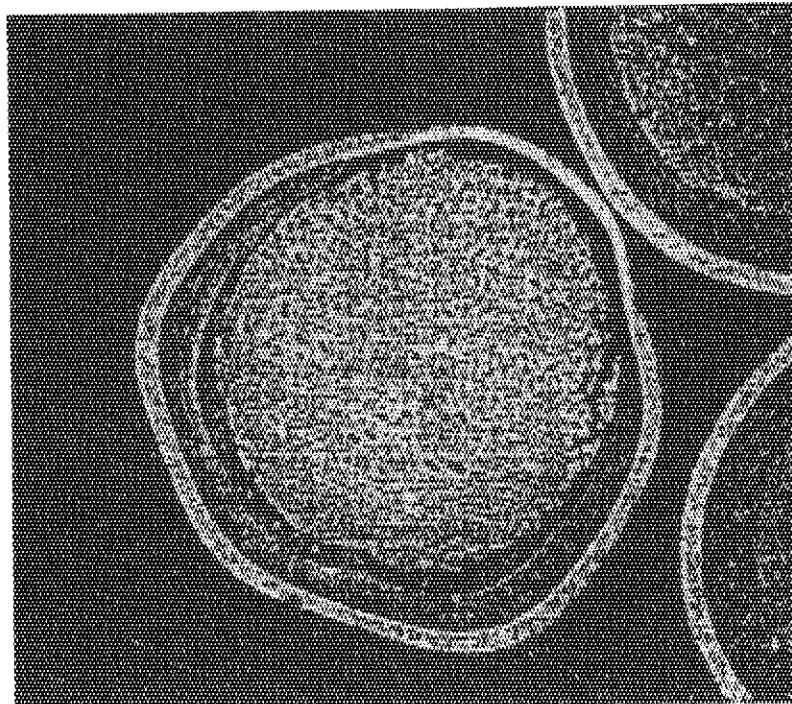


Fig. 3.1 Post-irradiation view of fuel compact containing coated fuel particles with thicker SiC layer than those of the A-type fuel assembly; (a)(b): external view, (c)(d): ceramograph. (82F-1A capsule; compact 82TF1A-3)



燃料核移動をおこした $\text{UO}_2$ 核が $\text{ZrC}$ 被覆層と接触しているが、 $\text{ZrC}$ 被覆層は破損していない。

試作粒子の73F13A-2キャブセル照射  
燃焼度44,000MWh/t,最高温度1,630°C,  
高速中性子照射量 $3.1 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ ( $E > 0.18 \text{MeV}$ ),  
実効照射日数約111日

Fig. 3.2 Ceramography of  $\text{ZrC}$ -coated fuel particles<sup>(23)</sup>.  
irradiated at temperatures above 1600°C.

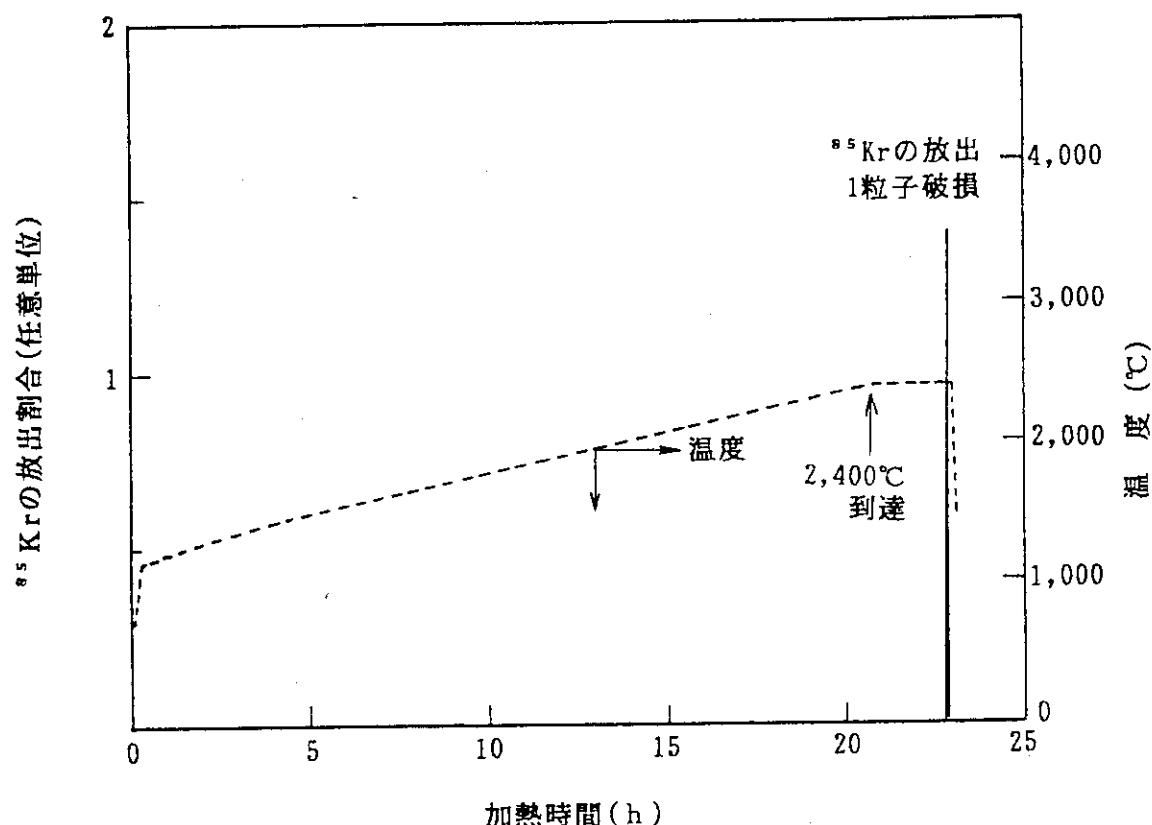
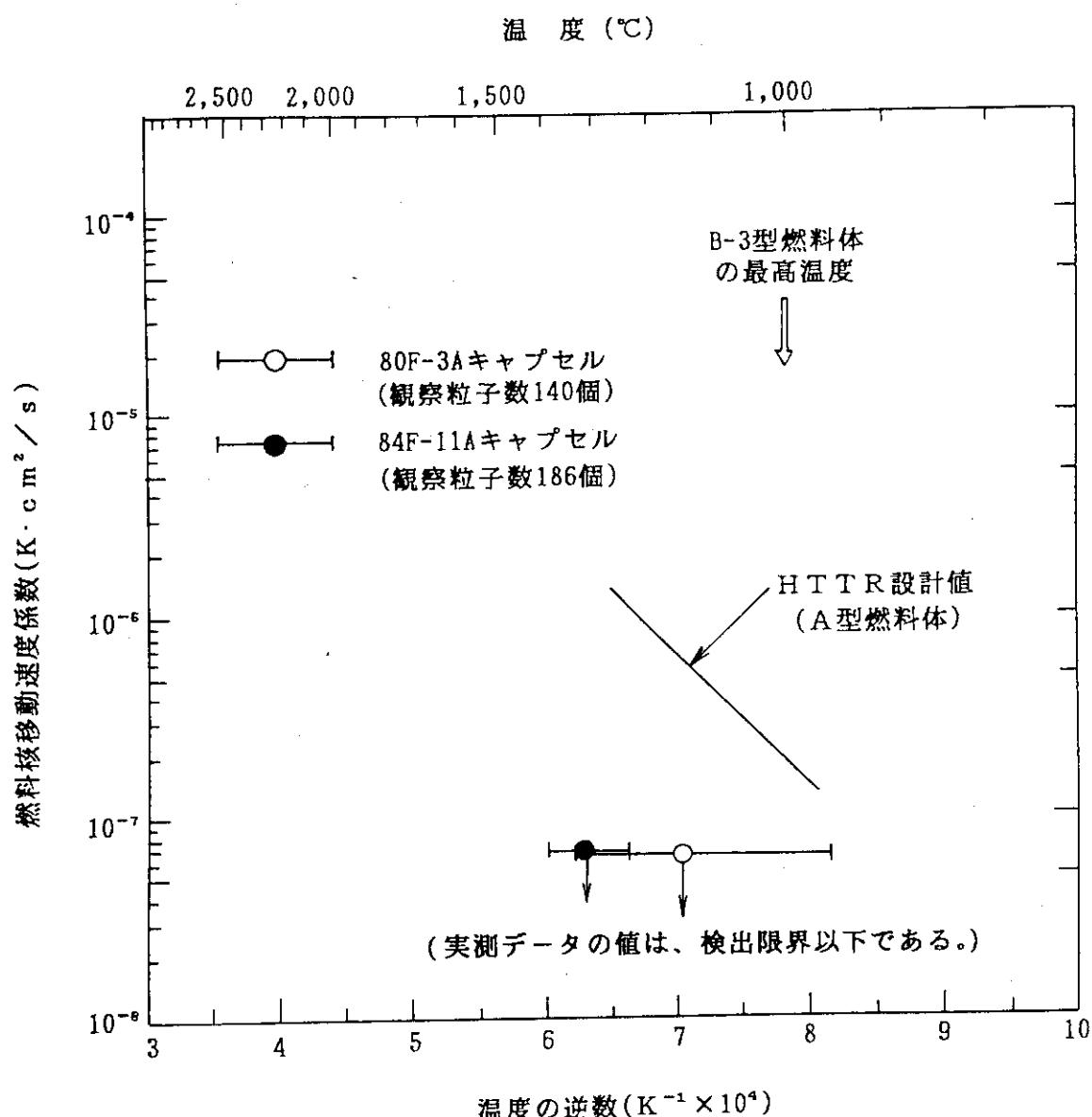
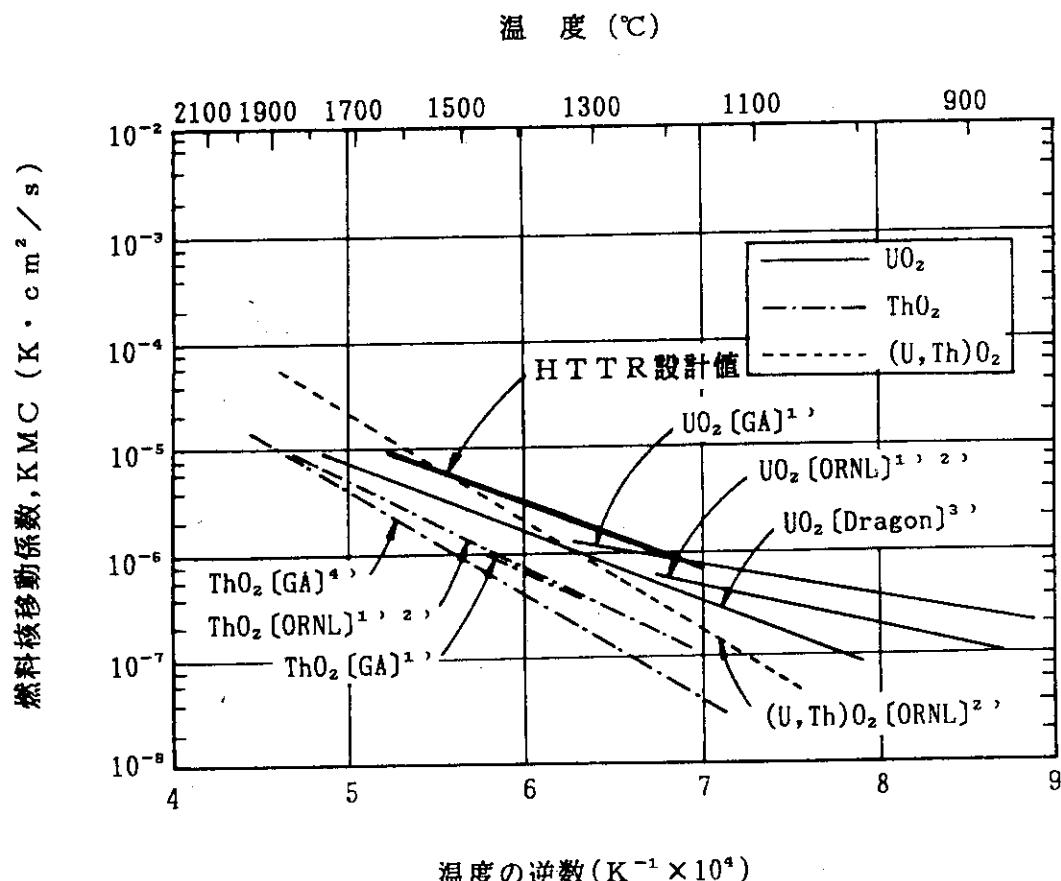


Fig. 3.3 Results of out-of-pile heating experiment of ZrC-coated fuel particles at extremely high temperatures; 101 particles with burnup of 35000 MWd/t.



実測データは、照射温度の範囲〔最高照射温度(ディスクの中心孔)位置における温度の時間変動範囲〕及び最高温度位置における温度の時間に対する平均値(黒丸及び白丸)を示す。

Fig. 3.4 Experimental data on kernel migration coefficients for coated fuel particles with  $(U, Th)O_2$  kernel and the HTTR design curve for A-type fuel assembly.

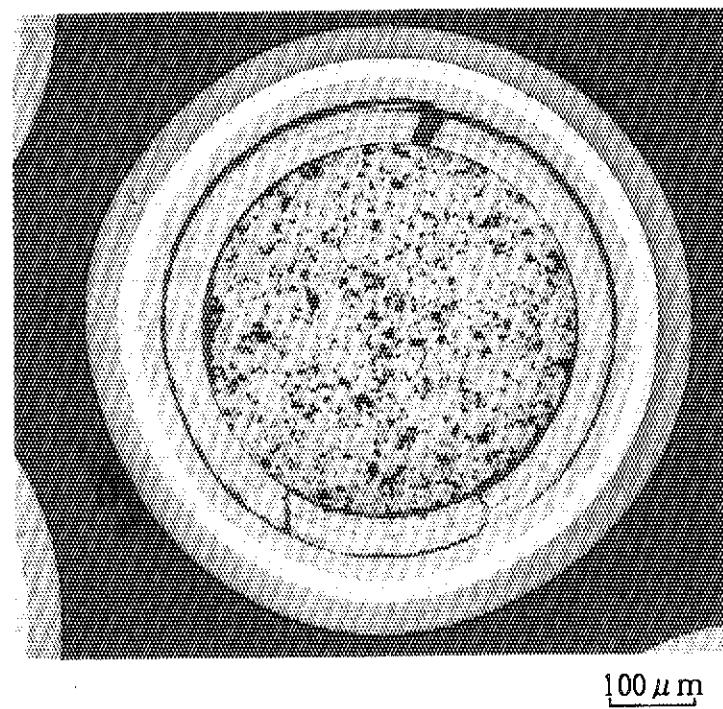


- 1) GULDEN, T.D., et al.: CONF-740501, p.176(1974);  
GA-A 12877, (1974).
- 2) LINDEMAYER, T.B., OLSTAD, R.A.: ORNL-TM-4493, (1974).
- 3) WAGNER-LÖEFFLER, M.: Reaktortagung, p.378(1975).
- 4) SMITH, C.L.: GA-A 12971, (1974).

#### 燃料核移動係数(KMC)の比較

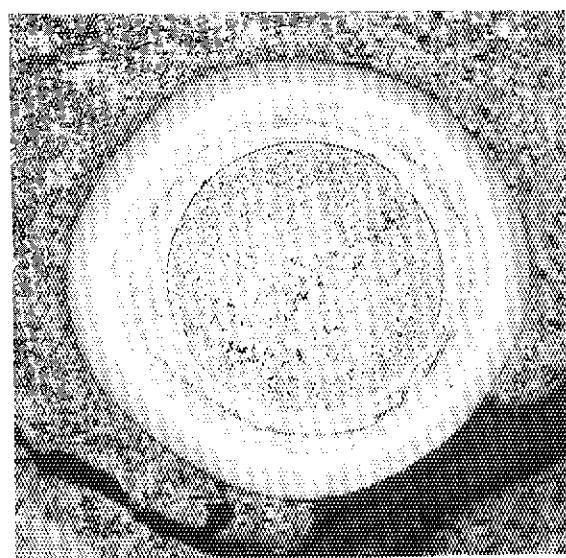
$(U, Th)O_2$  燃料核の組成比は、B-3 型燃料体の場合  
とほぼ同じ( $Th/U = 4$ )ものが主である。

Fig. 3.5 Comparison of kernel migration coefficients (KMC) for coated fuel particles with  $UO_2$ ,  $ThO_2$  and  $(U, Th)O_2$  kernels<sup>(15)</sup>.

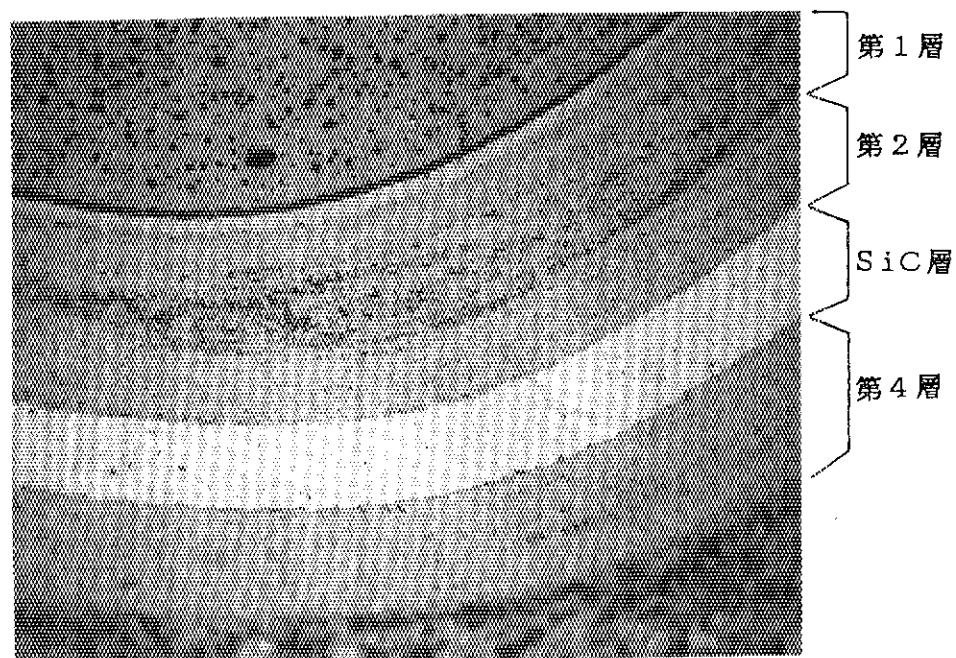


第3層(SiC層)、第2層及び第4層(PyC層)は健全である。  
第1層(バッファ-層)に亀裂が見られるが、これは照射寸法  
収縮によるものであり、有害な影響は与えない。

Fig. 3.6 Ceramograph of a coated fuel particle  
with  $(U, Th)O_2$  kernel after irradiated  
in a JMTR closed capsule (78F-4A) at  
1000°C up to 22,000 MWd/t<sup>(28)</sup>.



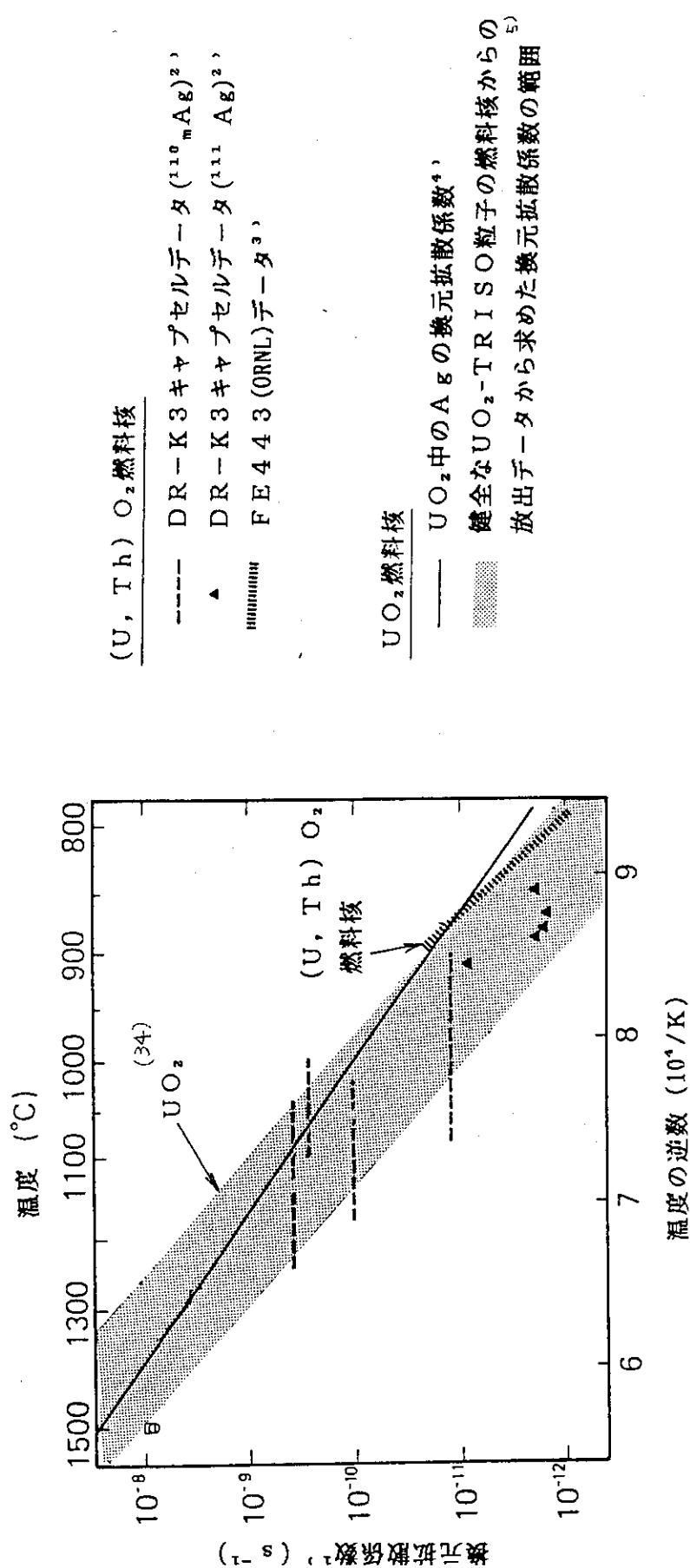
(a) 被覆燃料粒子の断面組織写真



(b) 被覆層の拡大写真

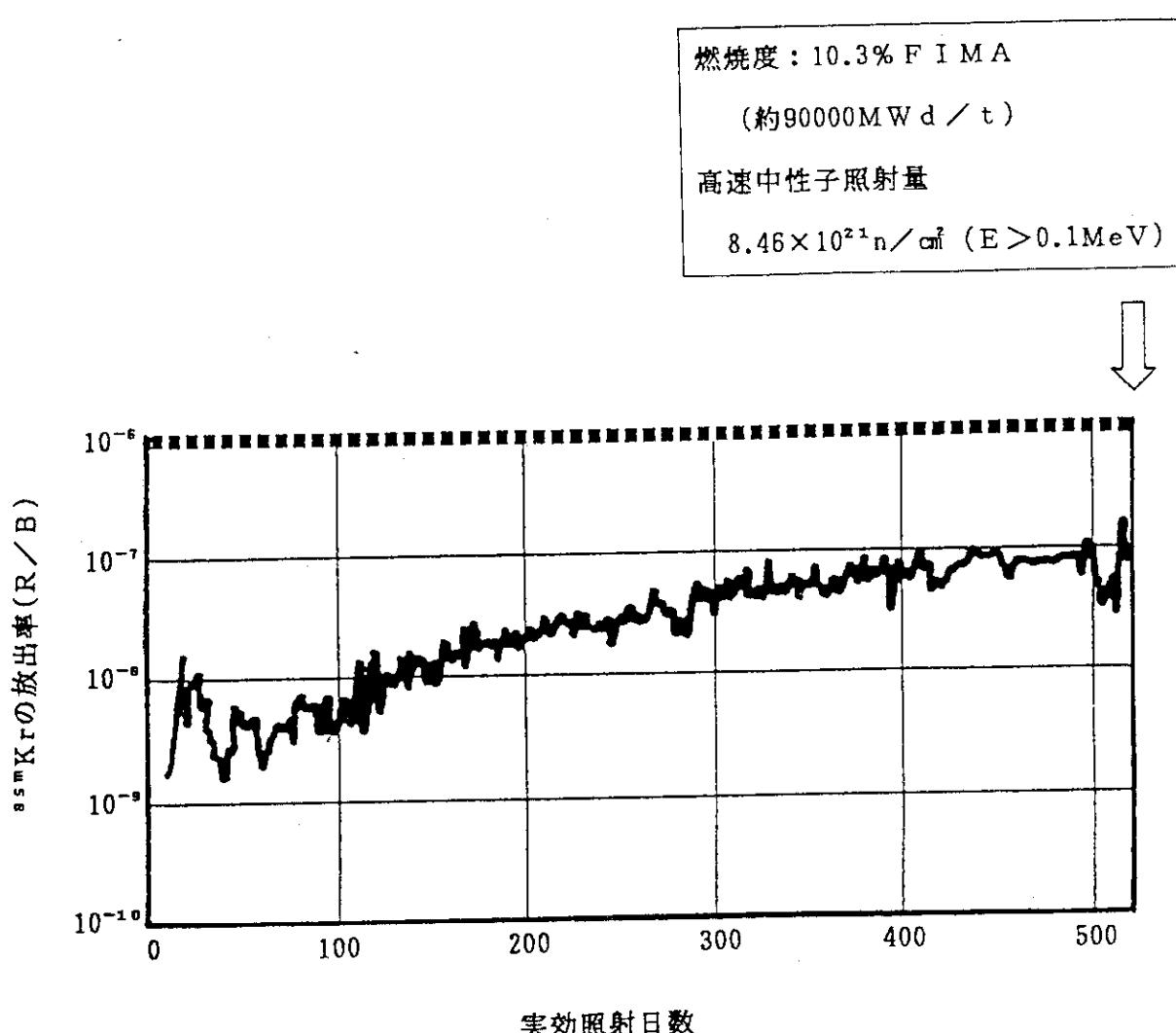
有害な燃料核移動[写真(a)]及びPdによるSiC層の腐食[写真(b)]は見られない。

Fig. 3.7 Ceramograph of coated fuel particles with  $(U, Th)O_2$  kernel after irradiated in a JMTR closed capsule (80F-3A) at a maximum temperature of 1,340°C up to 60,000 MWd/t<sup>(27)</sup>.



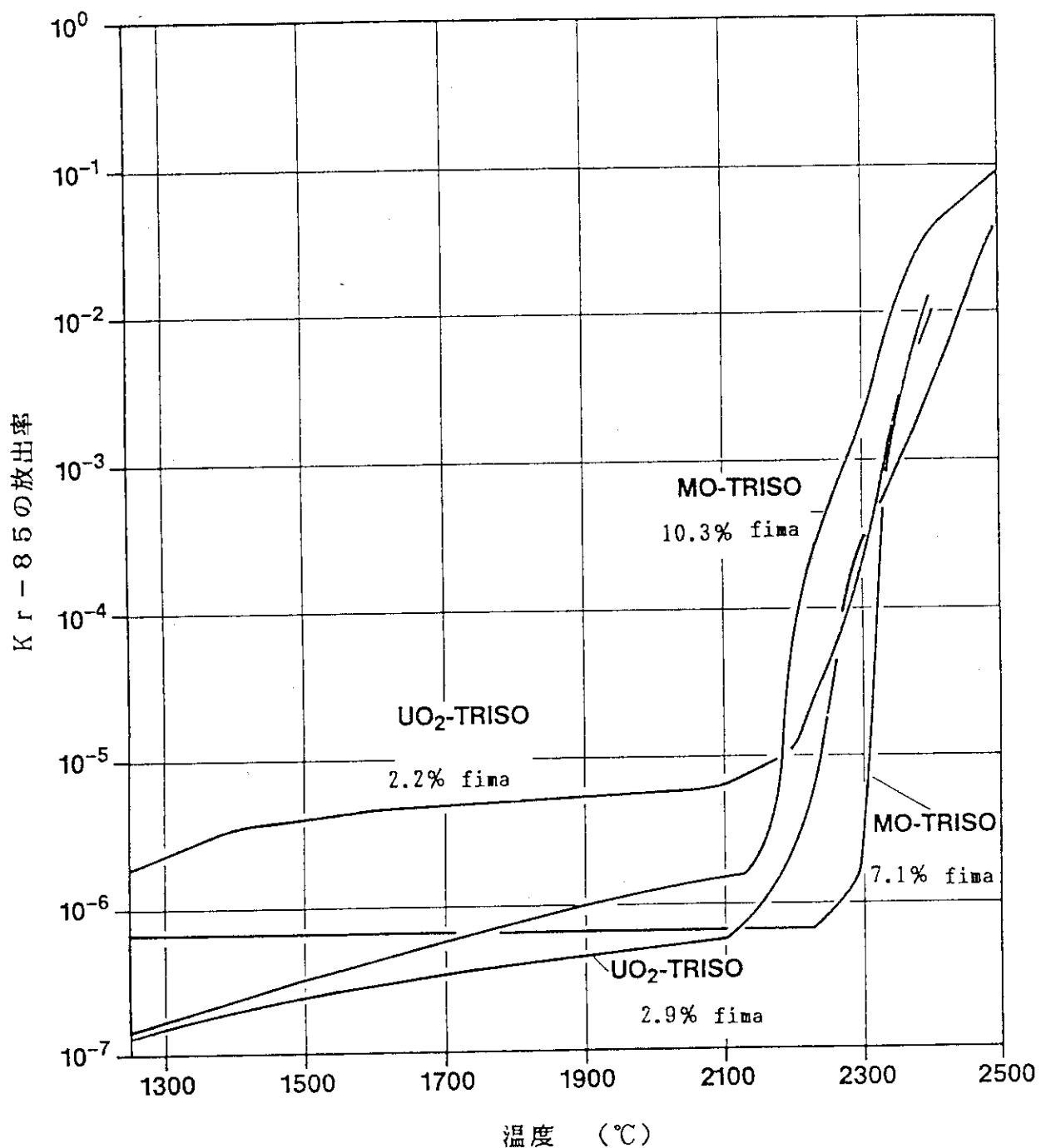
- 1) 換元拡散係数：多結晶としての燃料核からの放出を、等価な半径を持つ球からの放出と考えて換算した時の拡散係数。燃料核の大きさに依存せず、温度のみに依存する定数となる。
- 2)  $(U, Th)O_2$ ,  $Th/U=4.16$ , (燃料核直径 =  $400 \mu m$ ), 热分解炭素 =  $127 \mu m$ , 12%FIMA
- 3)  $(U, Th)O_2$ ,  $Th/U=4.8$ , 热分解炭素 =  $127 \mu m$ , 557日照射, 11.2%FIMA
- 4)  $UO_2$ , 燃料核直径 =  $700 \sim 800 \mu m$ , 热分解炭素 =  $150 \sim 190 \mu m$ , SiC-33~46  $\mu m$
- 5)  $UO_2$ , 燃料核直径 =  $800 \mu m$

Fig. 3.8 Reduced diffusion coefficients of silver in  $UO_2$  and  $(U, Th)O_2$  as a function of temperature ( $_{33}, _{34}$ ).



	$^{235}\text{U}$ 濃縮度 (%)	燃料核 ( $\mu\text{m}$ )	第1層 ( $\mu\text{m}$ )	第2層 ( $\mu\text{m}$ )	第3層 ( $\mu\text{m}$ )	第4層 ( $\mu\text{m}$ )
西独(U,Th)O <sub>2</sub> TRISO粒子	93	500	90	40	35	35
B-3型燃料体被覆燃料粒子	20	500	60	30	30	45

Fig. 3.9 Release (R/B) of  $^{85}\text{mKr}$  from  $(\text{U},\text{Th})\text{O}_2$  - TRISO-coated fuel particles in irradiation test (R2-K13 capsule)<sup>(36)</sup>.



〔UO<sub>2</sub>燃料核及び(U,T h)O<sub>2</sub>燃料核(MO)の  
TRISO型燃料粒子；西独Jülich研究所での結果〕

fima: fission per initial metal atom  
1% fimaは約9,000MWd/tである。〕

Fig. 3.10 Release of  $^{85}\text{Kr}$  during ramp heating (ca. 50°C/h) of spherical fuel elements containing TRISO-coated fuel particles; 1%fima = ca. 9,000 MWd/t<sup>(21,37)</sup>.

## 4. 結 論

高温工学試験研究炉(HTTR)の試験燃料体として装荷を予定しているB型燃料体のHTTR使用条件下における健全性の評価を行った。B型燃料体の仕様は、黒鉛ブロック及び黒鉛スリーブについてはA型燃料体の場合と全く同一であり、燃料コンパクトについても被覆燃料粒子充填率が若干異なる以外は全く同一であることから、主に被覆燃料粒子について健全性評価を行った。評価にあたっては、A型燃料体と同様な評価項目について、可能な場合はA型燃料体と共通の手法で評価を行い、それが不可能な場合には、独自の試験、解析等によって健全性を評価することとした。

- (1) B-1型燃料体の仕様は、燃料核直径、被覆層の厚さ及び粒子充填率を除いて、A型燃料体の仕様と全く同一である。B-1型燃料体では、A型燃料体に比べて、燃料核を小さく第1層及び第3層厚さを厚くしている。このため、燃料核移動、PdによるSiC層腐食及び異常高温時の被覆層破損に対して、少なくともA型燃料体と同程度の健全性が保たれると判断することができる。さらに、A型燃料体に比較して健全性の向上が期待できる。照射健全性試験においても、B-1型燃料体の健全性は確認されている。異常高温時の被覆層破損については、A型燃料体の場合と同様であると判断できる。
- (2) B-2型燃料体の被覆燃料粒子は、B-1型燃料体の被覆燃料粒子とほぼ同様な仕様を持ち、第3層としてSiCの代りにZrCを用いるものである。ZrCは、SiCに比べて、炭素との共融点が高く高温化学安定性が高いため、燃料核移動により燃料核とZrC層が接触しても反応が生じず、また、Pdを含むFPによる腐食は見られていない。照射健全試験及び異常高温加熱試験においてもA型燃料体と同程度の健全性、または健全性の向上が見られている。異常高温時の被覆層破損については、1°C/分の昇温速度で2400°Cまで加熱しても貫通破損粒子数はゼロであった。
- (3) B-3型燃料体は、燃料核としてUO<sub>2</sub>の代りに(U, Th)O<sub>2</sub>を用いるものであり、A型燃料体のデータが直接適用できない燃料核移動、Pd腐食、照射健全試験については、独自のデータを取得した。これらのデータに基づくと、最高温度1000°C、最大燃焼度22,000 Mwd/tというA型燃料体の場合に比べて緩やかなB-3型燃料体の使用条件のもとでは、B-3型燃料体の健全性は十分保たれると判断できる。異常高温時の被覆層破損については、照射後加熱試験において1°C/分の昇温速度で2300°Cまで加熱しても被覆層破損は生じなかつた。

以上、B型燃料体の各々について、実証試験データを用いて健全性評価を行った。B型燃料体の実証試験データは、A型燃料体に比べると量的に必ずしも多くはないが、A型燃料体と共に試験データ、B型燃料体についての解析結果等をあわせて考慮すれば、B型燃料体の通常運転時の健全性は保たれると判断することができる。また、異常高温時の燃料粒子被覆層の破損の試験結果及び評価から、燃料許容計限界として、十分な余裕をもって、「運転時の異常な過渡変化時に燃料最高温度が1,600°Cを超えないこと」とすることは妥当である。

## 謝 辞

本研究は、原研、旧動力炉開発・安全性研究管理部高温工学試験研究炉設計室（現在の原子炉建設室）における燃料設計研究を通じて定められた仕様に基づく燃料の健全性を評価したものである。本研究を進めるにあたり、同設計室の荒井長利氏（現在、東海研究所高温工学部高温材料強度研究室）には、試験燃料体の健全性評価の方法について貴重な助言を頂くと共に、同氏開発のMICROS-2コードを使用させて頂いた。また、東海研究所燃料・材料工学部燃料照射研究室の小川徹氏には、ZrC被覆燃料粒子の製造・検査、特性データ及び照射データについて教示頂くと共に、異常高温時のSiC及びZrC被覆燃料粒子の破損挙動について教示頂いた。また、同研究室の湊和生氏には、トリウム燃料のPd生成量の評価のための文献を紹介して頂いた。

本報告書に述べた燃料の製造及び照射研究は、燃料・材料工学部燃料照射研究室及び燃料開発研究室（旧トリウム燃料研究室）、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、ホットラボ課、東海研究炉管理部ホットラボ管理室、技術部工作課をはじめとする多くの方々によって進められてきたものである。特に、HTTRの安全審査に伴い、試験燃料体の健全性評価を進める過程で、照射後試験の効果的な実施が必要となったが、その際には、ホットラボ管理室の足立守前室長、園部清美氏、糸永文雄氏、松島秀夫氏、高橋五志生氏、飯田省三氏、斎藤光男氏をはじめとする多くの方々に協力を頂いた。また、燃料の研究開発にあたっては、燃料・材料工学部の近藤達男部長及び柴是行前次長（現在、燃料安全工学部長）に支持・激励を頂いた。

また、本報告書の内容は、HTTRの安全審査において活用されたが、その資料作成にあたっては、大洗研究所高温工学試験研究炉開発部原子炉建設室の稻垣嘉之氏、HTTR計画室の竹口省三氏、瀬谷東光氏をはじめ多くの方々に援助・協力をして頂き、さらに、数土幸夫HTTR計画室長には貴重な助言を頂いた。本研究を進めるにあたっては、高温工学試験研究室炉開発部斎藤伸三次長及び田中利幸原子炉建設室長に激励を頂いた。

以上の方々に深く感謝いたします。

## 参 考 文 献

- (1) 日本原子力研究所, “高温ガス炉研究開発の現状”, 1989.
- (2) Japan Atomic Energy Research Institute, “Present status of HTGR research and development”, March 1990.
- (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許可申請書 HTTR (高温工学試験研究炉) 原子炉施設の設置”, 平成元年2月 (平成元年11月一部補正).
- (4) 青地哲男, 他, “多目的高温ガス実験炉第1次概念設計”, JAERI-M 6845 (1977).
- (5) 青地哲男, 他, “多目的高温ガス実験炉の炉心参考設計 Mark-III”, JAERI-M 6895 (1987).
- (6) 荒井長利, 他, “多目的高温ガス実験 Mark-III 炉心の燃料特性”, JAERI-M 6945 (1987).
- (7) 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).
- (8) 林 君夫, 塩沢周策, 沢 和弘, 佐藤貞夫, 丸山 創, 小林紀昭, 福田幸朔, “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).
- (9) 林君夫, 沢 和弘, 塩沢周策, 福田幸朔, “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”, JAERI-M 89-162 (1989).
- (10) 小川 徹, 他, “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 1989年年会 (1989年4月, 大阪大学工学部) H 15.
- (11) T.B. Massalski, ed., “Binary alloy phase diagrams”, Am. Soc. Metals, Metals Park, Ohio, USA, 1986.
- (12) 大洗研究所高温工学試験研究炉設計室, 他, “高温工学試験研究炉の黒鉛構造設計方針”, JAERI-M 89-006 (1989).
- (13) T. Ogawa and K. Ikawa, “Reactions of Pd with SiC and ZrC”, High Temp. Sci. 22 (1986) pp. 179-193.
- (14) M. Wagner-Loeffler, “Amoeba behavior of UO<sub>2</sub> coated particle fuel”, Nucl. Technol. 35 (1977) p. 392.
- (15) 鈴木弘茂, 孫鳳根, 岩本多實, “被覆粒子燃料のアーベー効果”, 日本原子力学会誌 18 (1976) [No. 5] pp. 277-285.
- (16) 燃料照射研究室, 被覆粒子燃料研究状況報告・第35号, 原研未公開所内報, (1988); 同上・第39号, (1990).
- (17) 荒井長利, “被覆燃料粒子の応力解析 (計算コード MICROS)”, JAERI-M 4718 (1972).
- (18) 荒井長利, 佐藤貞夫, “TRISO-2型被覆燃料粒子の機械的照射挙動の解析及び検討”, JAERI-M 5008 (1975).
- (19) T. Arai, “MICROS-2: A computer program for predicting the mechanical behavior of coated fuel particles during irradiation (revised)”, JAERI-M 5843 (1974).
- (20) R.J. Price, “Properties of silicon carbide for nuclear fuel particle coatings”, Nucl. Technol. 35 (1977) pp. 320-336.

- ① H. Nabielek et al., "The performance of high-temperature reactor fuel particles at extreme temperatures", Nucl. Technol. 84 (1989) pp. 62 - 81.
- ② Y. Kurata, K. Ikawa and K. Iwamoto, "The effect of heat treatment on density and structure of SiC", J. Nucl. Mater. 92 (1980) pp. 351 - 353.
- ③ T. Ogawa et al., "Research and development of ZrC-coated UO<sub>2</sub> particle fuel at the Japan Atomic Energy Research Institute", Nuclear Fuel Performance, Proc. BNES Conf. London (1985), pp. 163 - 169.
- ④ T. Ogawa, K. Ikawa and K. Iwamoto, "A study of the reactions between ZrC and some metal oxides", J. Nucl. Mater. 87 (1979) pp. 40 - 48.
- ⑤ 小川 徹, 福田幸朔, 足立 守, "ZrC-Triso 粒子燃料の照射試験", 日本原子力学会昭和 63 年年会 (1988 年 4 月, 東工大) K 27.
- ⑥ 小川 徹, 他, "高温工学試験研究炉用被覆粒子燃料の研究開発 (IV) 燃料の異常時挙動", 日本原子力学会 1989 年秋の大会 (1989 年 10 月, 原研東海) K 4.
- ⑦ 白鳥徹雄, 赤堀光雄, 伊藤昭憲, 小川 徹, 伊藤忠春, 高橋五志生, "酸化トリウム系被覆燃料粒子の高燃焼照射挙動", 日本原子力学会 1990 年年会 (1990 年 4 月, 東大工) G 24; 白鳥徹雄, 他, "酸化トリウム系被覆粒子燃料の高燃焼度における照射挙動と健全性", JAERI-M 投稿予定 (1990).
- ⑧ 白鳥徹雄, 伊藤昭憲, 赤堀光雄, 柴是行, 足立 守, "酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動", JAERI-M 88-220 (1988).
- ⑨ R.F. Rider, NEDO-12154-3(B) (1980).
- ⑩ 菅野昌義, "原子炉燃料", 東京大学出版会, 1976, p. 85.
- ⑪ 三島良績 (編), "核燃料工学", 同文書院, 1972, p. 165.
- ⑫ 日本原子力学会「トリウムサイクル調査」研究専門委員会, "トリウムサイクル研究開発の現状と発展の道", 1980, p. 96.
- ⑬ H. Nabielek; P.E. Brown and P. Offermann: "Silver release from coated particle fuel", Nucl. Technol. 35 (1977) p. 483.
- ⑭ P.E. Brown and R.L. Faircloth: "Metal fission product behaviour in high temperature reactors-UO<sub>2</sub> coated particle fuel", J. Nucl. Mater. 59 (1976) p. 29.
- ⑮ H. Nabielek et al., "Fuel for pebble-bed HTRs", Nucl. Eng. Des. 78 (1984) pp. 155 - 166.
- ⑯ W. Burck et al., "HTR coated particle fuel: irradiation behavior and performance prediction", Proc. IAEA Specialists' Meeting on Gas-cooled Reactor Fuel Development and Spent Fuel Treatment, IWGGCR/8, Moscow, USSR, 18 - 21 Oct. 1983, pp. 176 - 188.
- ⑰ W. Schenk, "Fission product release profiles from spherical HTR fuel elements at accident temperatures", Juel-2091 (1986) pp. 99.

## 付録 1 B 型燃料体の HTTR 照射試験の位置付け

HTTR では、原子力委員会の高温ガス炉研究開発計画専門部会の報告書（別添参照）に基づき、将来の高性能高温ガス炉をめざした燃料技術の高度化を図る計画である。

B 型燃料体の仕様の特徴（A 型燃料体との主な相違）とそれらの開発の目的は、本文第 1 章の Table 1.1 にまとめた。以下に、HTTR における B 型燃料体の照射試験の位置付けについて述べる。

### 1. 高性能燃料の開発

A 型燃料と同じ  $\text{UO}_2$  燃料を用い、ピン・イン・ブロック型燃料体の高性能化を図るために、B-1 型及び B-2 型燃料体の実寸大の照射試験を行う。その目的、意義は以下のとおりである。

#### 1) 将来炉の実用化に備えて燃料健全性の実証

HTTR 燃料（A 型燃料体）の健全性評価に際しては、燃料核移動及び Pd による SiC 層の腐食による燃料被覆層の破損、FP ガスの放出等について、保守的な評価を行っている。しかし、実際には、この評価により得られた値より十分安全側であることが期待でき、B-1 型及び B-2 型燃料体ではさらに安全側である。このことを、HTTR による照射試験結果により実証し、将来の高温ガス炉の開発及び実用化に資する。

#### 2) 将来炉の合理的な評価基準の策定

B-1 型及び B-2 型燃料体は、燃料粒子被覆層破損率、FP 保持等の点で A 型燃料体以上の性能を有することを、実炉の運転を通じて実証したうえで、その試験結果を将来炉に対する基準の検討のために用い、将来的には A 型燃料体より厳しい評価基準を設定することを検討する。

具体的には、照射中の FP ガス放出データ、燃料粒子被覆層の照射後破損率等が、評価値として比較して十分安全側であることを示すことによって燃料の健全性を実証し、それとともに、評価値の裕度を調べる。このためには、HTTR で計画している実寸法の燃料体の照射試験によって、多数のデータを得ることが必要になる。

上記 1), 2) の開発目標を達成するために、HTTR における B-1 型及び B-2 型燃料体の照射試験により、燃料核移動、Pd による被覆層腐食、FP ガスの放出率、照射後燃料粒子被覆層破損率等に関するデータを蓄積する。これらの基本データは、これまでキャップセル照射試験によって取得してきたが、HTTR による照射開始後は、将来の実用炉の開発に資する観点から、実寸大の試験体を用いた実証試験を中心に行う。

なお、燃料開発に必要な極限状態での性能の確認は、キャップセル照射試験、燃料限界照射試験等により調べることとする。一方、HTTR での燃料照射試験は、多量の燃料試料の照射を行うことができる特徴を生かして、高性能燃料の照射ベッドとして利用することが可能である。具体的には、例えば HTTR の通常運転条件で照射し、燃焼度の増大に応じて HTTR の燃料限界照射試

験やキャプセル照射試験用の試料とすることにより、異常高温時の燃料破損挙動に関するデータを燃焼度ごとに取得することができる。

B型燃料体のHTTR試験燃料体としての照射試験においては、極限状態の試験は行わないが、他炉での照射試験の実績とともにHTTRでの実証データを蓄積し、HTTR試験燃料体としての照射条件を段階的に厳しくしていくことを予定している。

## 2. トリウム燃料開発

A型燃料体に使用している $\text{UO}_2$ 燃料核とは異なる( $\text{U}, \text{Th}$ ) $\text{O}_2$ 燃料核を有する燃料体の照射実積を蓄積し、将来のトリウム燃料利用に備える。B-3型燃料体については、キャプセル等を用いた基礎的な照射試験は相当実施してきたので、HTTRでは実寸大の多量の燃料試料を長期にわたって照射し、将来炉におけるトリウム燃料利用に備える。トリウム燃料の基本的な燃料ふるまいに関しては、西独における研究により究明されている。従って、HTTRの照射試験では、総合的な燃料健全性の実証、例えば、燃料からのFP放出率が設計での評価基準をはるかに下回ることの実証等を主目的とする。

## 別添 高性能燃料の開発計画

原子力委員会の高温ガス炉研究開発計画専門部会（部会長、三島良績東大名誉教授）は、昭和61年12月に「高温ガス炉研究開発計画専門部会報告書」を提出した。この報告書は、「これまでに蓄積されている研究開発の成果を基に試験研究炉（現在の HTTR）を建設し、高温ガス炉技術の基盤の確立及び高度化を図るため研究開発を進める」ことを提言するとともに、高性能高温ガス炉をめざした技術の高度化を図る必要があるとして、燃料技術の高度化について次のように述べている。

被覆燃料粒子については、出力密度、燃焼度等の性能の高度化のため高温、長時間使用におけるFP保持能力の向上を図ることが重要である。このため、ZrC被覆粒子の開発、FPゲッタ入り燃料核、UCO燃料核等の試作試験を行い、OGL-1等を用いた照射試験により、高照射下での各被覆層の高温（約1400°C）における強度、化学的安定性を解明する。

また、燃料体については、燃料表面伝達促進リブ付き燃料棒、燃料体内部熱抵抗の低下を図った一体成型ブロック燃料体、中空型ペブル燃料等について開発試験を行う。このため、試験研究炉を用いた各種実寸大燃料体の照射試験、燃料破損限界を明らかにする試験等を行い、総合特性（強度、FP保持特性等）を把握し高性能化を図る。

更に、同報告書では、試験研究炉を利用し、各種の高温に関する先端的基礎研究を行うこととし、高温に関する先端的基礎研究の一項目として、

トリウム燃料照射試験等により、トリウム高転換技術に関する基礎研究を行う。

としている。

## 付録 2 B 型燃料体の製作性

### 1. B-1 渡燃料体の健全性

B-1 渡燃料体の燃料要素は、A型燃料体と全く同じ方法により、同じ装置を用いて製造することができる。また、本文 3.3.1 項に示した照射試験用燃料試料を試作した実績を有している。B-1 型燃料体の燃料粒子被覆層の寸法諸元は、A型燃料体及び本文 3.3.1 項に示した燃料試料の場合と多少異なっているが、被覆層の寸法の変更は、A型燃料体の製造に用いる装置をそのまま用い、被覆蒸着工程において流動ガスの流量及び蒸着時間を調節することにより容易に行うことができる。従って、製作上の問題は特に生じない。

### 2. B-2 型燃料体

B-2 型燃料体の製造方法は、ZrC 被覆層を除けば A型燃料体と同じである。

ZrC 被覆法の技術開発は 1960 年代から英国及び米国において行われてきたが、原研では、製造工程の安定性及び安全性を考慮して、臭化物法と呼ばれる製造方法を開発した<sup>(A2-1, A2-2)</sup>。これは臭素蒸気アルゴンガスをキャリアとして送ることによりジルコニウム・スポンジと反応させ、その結果生じる臭化ジルニウム ( $ZrBr_4$ ) をメタン ( $CH_4$ ) と共に流動床に導き高温反応により Zr 蒸着被覆層を得るものである。この製造装置の概要を Fig. A 2.1 に示す<sup>(A2-2)</sup>。

この方法により、本文の 3.4.1 項に示した照射試験用燃料試料を実験室規模で製造した実績を有しており、製作上の問題は基本的にはないと考えることができる。ただし、具体的な製造にあたっては、量産装置の製作と燃料試作試験が必要であり、そのための期間、人員、費用等が必要である。

### 3. B-3 型燃料体

トリウム燃料の製造技術開発は原研において 10 年以上にわたって行われてきた。その結果、ゾルゲル法によって、真球度（長径と短径の比）の良い、 $ThO_2$  及び  $(U, Th)O_2$  燃料核を作ることができるようにになり、また、焼結密度、粒径など基本的パラメータを制御できるようになっている<sup>(A2-3)</sup>。その一例を、Fig. A 2.2 に示す。ゾル滴を形成するための有機溶媒をヘキサンから四塩化炭素に変えることによって、真球度が 1.0 に近い良好な燃料核を作ることができるようになっている<sup>(A2-3, A2-4)</sup>。

$(U, Th)O_2$  燃料核への被覆の蒸着及び燃料コンパクトの製造の方法は、 $UO_2$  燃料核の場合と同様である。本文の 3.5.1 項に示した照射試験用燃料等の実験室規模の製造経験（製造粒子総数 11 バッチ、約  $2 \times 10^6$  個、製造コンパクト総数 3 バッチ、15 個）からみて、製作上の問題は技術的には特にない。ただし、燃料体 1 体分の製造を行うためには、B-2 型燃料体の場合と同様、量産

規模の製造装置のための期間、人員、費用等が必要である。

### 参考文献

- (A 2 - 1) K. Ikawa, "Co-deposition of zirconium with carbon by the bromide process", J. Less-Common Metals 44 (1976) pp. 207 - 213.
- (A 2 - 2) T. Ogawa, K. Ikawa and K. Iwamoto, "Chemical vapor deposition of spouted bed by bromide process", J. Nucl. Mater. 97 (1981) pp. 104 - 112.
- (A 2 - 3) 日本原子力研究所, "高温ガス炉研究開発の現状", 1976, pp. 37 - 39.
- (A 2 - 4) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Sol-gel method using carbon tetrachloride as drop-fomation medium for producing large  $\text{ThO}_2$ -base microspheres", J. Nucl. Sci. Technol. 22 (1985) pp. 995 - 1000.

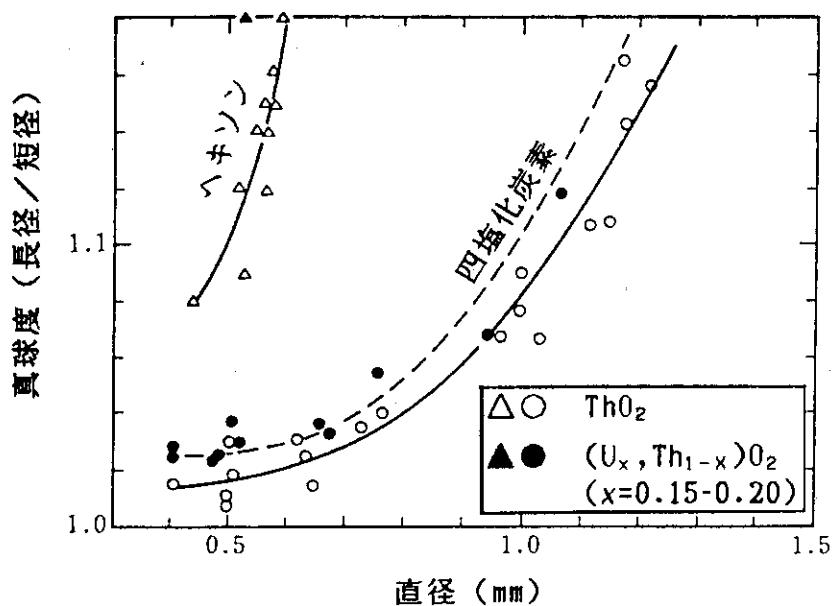
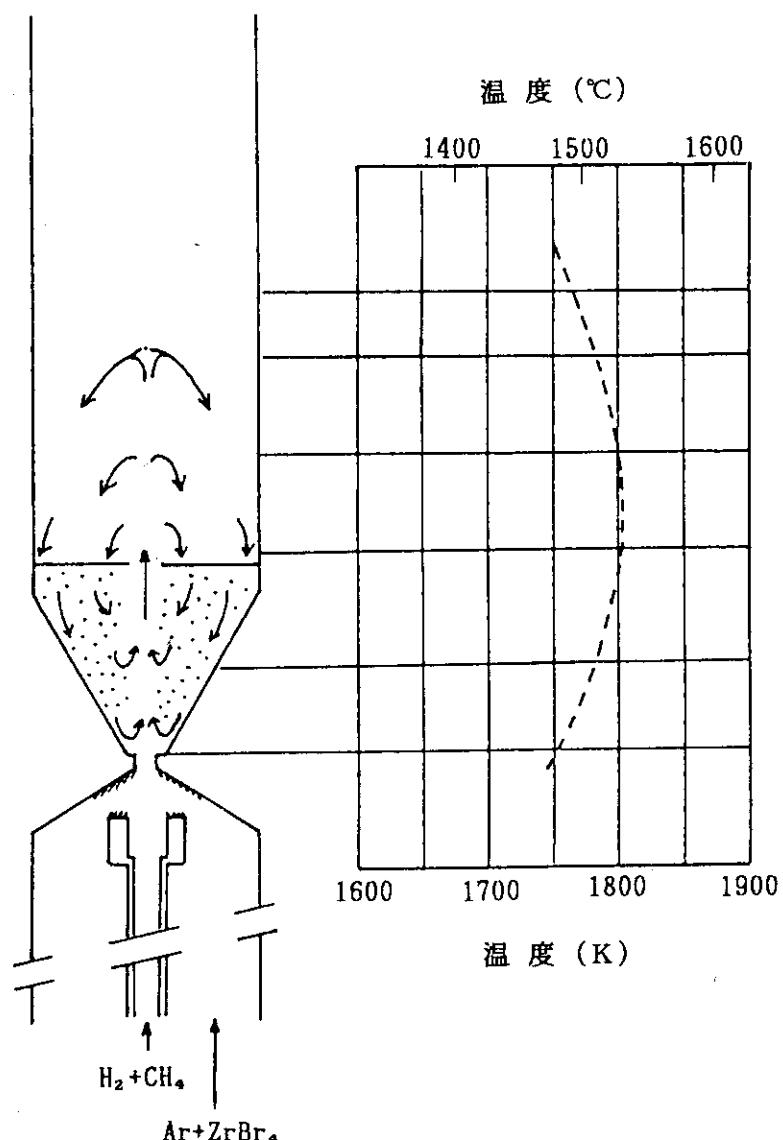


Fig. A2.2 Sphericity of  $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$  kernels gelled by hexane and carbon tetrachloride (A2-3).



臭化ジルコニウム( $ZrBr_4$ )とメタン( $CH_4$ )の高温反応により、炭化ジルコニウム( $ZrC$ )が生じる。水素ガス( $H_2$ )は、この反応が生じる以前にメタンが熱分解しなため(熱力学的平衡を考慮)に用いる。

Fig. A2.1 Apparatus for ZrC coating and temperature distribution in the fluidizing bed (A2-2).

## 付録3 燃料核移動及びPdによるSiC層の腐食の評価方法

### 1. 燃料核移動

#### 1.1 燃料核移動の機構及び理論式

燃料核移動速度 KMR (m/s) は、これまでの海外での試験研究<sup>(A3-1, A3-2)</sup>及び原研での試験研究<sup>(A3-3)</sup>に基づき、燃料内の温度勾配  $dT/dr$  (K/m) 及び温度 T (K) と

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

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

なる関係を有すると仮定する。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 : 気体数 (8.314 J/mol・K)

Q : 定数 (J/mol)

である。

#### 1.2 評価方法

文献 (A3-3) (A3-4) に示したデータに基づき、燃料核移動速度の設計値を次の式のように定めた。

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

この設計値は、数多いデータ点を統計処理し片側約 95% の信頼度 (2σ レベル相当) となるように定めたものである。

HTTR の設計評価においては、(3)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、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た場合、SiC 層が燃料核と反応して SiC が分解し被覆層が破損することによって、貫通破損に至る可能性が高くなるためである。

### 2. Pd による SiC 層の腐食

#### 2.1 Pd 放出量の計算

燃料核から放出された Pd 量を、SiC 層内表面積で除したものを X (atoms/m<sup>2</sup>) とする。燃料核で生成する Pd は、拡散及び反跳により燃料核から放出されると仮定する。拡散に関しては、球状の燃料核中で Pd が一様に生成し拡散によって燃料核の表面から放出される (Booth モデ

ル) <sup>(A3-5)</sup> と仮定し、球座標系における 1 次元拡散方程式を解いて放出量を求める <sup>(A3-3, A3-4, A3-6)</sup>。

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

$$Fr = \frac{3R}{4a} - \frac{1}{16} \left( \frac{R}{a} \right)^3 \quad (5)$$

$$Fd = \frac{4\pi a^2}{B} \int_0^T J(a, t) dt \quad (6)$$

$$J(r, t) = -D \frac{\partial c}{\partial r} \quad (7)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = b + D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c}{\partial r} \right) \quad (8)$$

ここで、

B : Pb の生成量 (atoms)

r : 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 : 構散による Pd 流束 (atoms/m<sup>2</sup>・s)

D : 燃料核中の Pd の拡散係数 (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 : 評価期間 (運転期間) (s)

である。なお、Pd 放出量を SiC 層内表面積当りとしたのは、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にするためである。

## 2.2 SiC 腐食距離の評価方法 <sup>(A3-3)</sup>

Pd による SiC 層の腐食は、局所的であることが観察されている <sup>(A3-7)</sup>。このことから、腐食箇所 (ノジュール) が形成されると、そこが優先的に腐食されることが考えられる。

従って、HTTR における設計評価においては、燃料核から放出されて SiC 層内面に達した Pd が優先的に腐食箇所に移動して腐食が進むと仮定している。更に、腐食箇所 (ノジュール) が 3 次元に SiC 層中に広がると、腐食距離 Y (m) と Pd 放出量 X (atoms/m<sup>2</sup>) の間には次の関係が成立する。

$$Y \propto X^{1/3} \quad (9)$$

そこで、文献 (A 3 - 3) (A 3 - 4) に示す実験データより、Pd 量と腐食距離の関係を

$$Y = 1.15 \times 10^{-12} X^{1/3} \quad (10)$$

と定めて SiC 層腐食距離を評価する。

### 参考文献

- (A 3 - 1) T.D. Gulden, "Carbon thermal diffusion in the UC<sub>2</sub>-C system", J. Am. Ceram. Soc. 55 (1972) p. 14.
- (A 3 - 2) M. Wagner-Loeffler, "Amoeba behavior of UO<sub>2</sub> coated particle fuel", Nucl. Technol. 35 (1977) p. 392.
- (A 3 - 3) 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).
- (A 3 - 4) 林 君夫, 沢 和弘, 塩沢周策, 福田幸朔, "高温工学試験研究用燃料の健全性の評価と許容設計限界", JAERI-M 89-162 (1989).
- (A 3 - 5) 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, CRDC-720 (1958).
- (A 3 - 6) 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).
- (A 3 - 7) K. Minato, et al., "Electron probe micro-analysis of irradiated TRISO-coated UO<sub>2</sub> particles (II)", JAERI-M 84-002 (1984).

#### 付録 4 B型燃料体の健全性データのまとめ（表）

HTTR の試験燃料体として装荷することを予定している B-1 型、B-2 型及び B-3 型燃料体に関する実証試験データの取得範囲を、各々、Table A 4.1, A 4.2 及び A 4.3 に示す。各燃料体の健全性評価の結果については、本文 3 章に記述した。

Table A4.1 Summary of production and integrity data of B-1 type fuel assembly.

評価項目 諸元	燃料体 A型 B-1型	被覆燃料粒子			燃料コンパクト			黒鉛 スリーブ		
		235U濃縮度 3~10wt%	燃料核 UO <sub>2</sub> 600μm	第1層 buffer PyC 30μm	第2層 UO <sub>2</sub> 570μm	第3層 buffer PyC 80μm	第4層 SiC 45μm	寸法 26 <sup>0.0</sup> ×10 <sup>10</sup> x39 <sup>+</sup>	充填率 30vol% (厚さ4mm)	34 <sup>0.0</sup> ×580 <sup>+</sup>
製作性	A· 5wt%	A·	A·	A· (A') 8	A· (A') 8	A· (A') 8	A· (B)	A	SiC層厚さ30μm及び45μmの製造経験有り	注
粒子 燃料核移動		A·	A·					A		
破損 Pd吸食		A·	A·					A		
燃料部 割れ欠け		—	—	—	—	—	A· (B)	—	—	—
燃料部／被覆部 相互作用		—	—	—	—	—	A·	—	—	—
被覆部破損 健全性		—	—	—	—	—	—	A	—	—
被覆部剥離 健全性		—	—	—	—	—	—	A	—	—
放射性ガス放出							A·		破損粒子及び汚染からの放出のためA型と同様	
照射 各成分 健全性 健全性 異常時安全性 (1600°C)	各成分 全体	A· (B)	A· (B)	A· (B)	A· (B)	A· (B)	A	A	SiC層が厚いため熱的劣化に対する性能向上	

A : A型と同一。(A' : A型と同一とみなしうる)。

A' : A型の結果から類推できる。  
B : 類似の試験により実証している。buffer: 低密度熱分解炭素  
PyC : 高密度熱分解炭素  
( ) : 健全性実証の補強

B' : 類似の試験から類推できる。

Table A4.2 Summary of production and integrity data of B-2 type fuel assembly.

評価項目	燃料体 諸元	被覆燃料核			燃料粒子			燃料コンバクト			黒鉛 スリーブ
		235U濃縮度	燃料核	第1層 buffer	第2層 PyC	第3層 SiC	第4層 PyC	寸法 $26^{+0}_{-0} \times 10^{+0}_{-0}$ $\times 39^{\circ}$	充填率 30vol%		
A型	3~10wt%	UO <sub>2</sub>	600μm	60μm	30μm	25μm	45μm				$34^{+0}_{-0} \times 580^{\circ}$ (厚さ4mm)
B-2型	5wt%	UO <sub>2</sub>	570μm	80μm	30μm	35μm	40μm				
製作性	A·	A·	A·	B	A·	A·	(B)	A	ZrC層被覆法開発；燃料コンバクト製造		
粒子 破損 燃料移動 Pd餌食		A· B	(B)				-	-	ZrC層被覆粒子の照射試験 ；炉外Pd餌食試験		
燃料 割れ欠け	-	-	-	-	-	-	(B)	-	同上		
燃料部／被覆部 相互作用(剝離)	-	-	-	-	-	-	A·				
被覆部破損 健全性	-	-	-	-	-	-	-	-	A·		
被覆部餌食	-	-	-	-	-	-	-	-	A		
放射性ガス放出 照射	各成分	B		(A)	B						破損粒子及び汚染からの放出のためA型と同様
健全性 異常時安全性 (1600°C)	全体	B									ZrC層被覆粒子及び燃料コンバクトの照射試験
		B									ZrC層被覆粒子の照射後炉外加熱試験

A : A型と同一。(A· : A型と同一とみなしうる)。

A' : A型の結果から類推できる。

B : 類似の試験により実証している。

B' : 類似の試験から類推できる。

buffer : 低密度熱分解炭素

PyC : 高密度熱分解炭素

( ) : 健全性実証の補強

Table A4.3 Summary of production and integrity data of B-3 type fuel assembly.

評価項目 諸元	燃料体 A型 B-3型	被覆燃料核			第1層			第2層			第3層			第4層			燃料コンバクト		
		235U濃縮度 3~10wt%	UO <sub>2</sub> 600μm	buffer (U,Th)O <sub>2</sub> 500μm	PyC 30μm	SiC 25μm	PyC 45μm	PyC x39L	PyC 同上	PyC 30μm	PyC 30μm	PyC 30μm	PyC 40μm	PyC 同上	寸法 35vo1%	充填率 (厚さ4mm)	3400x580L	注	
製作性	B (B')	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	A'	(U, Th) O <sub>2</sub> 燃料核-コンバクト製造経験有り	A			
粒子破損 燃料部 割れ欠け		B	B												-	-	国内照射試験		
燃料部 相互作用	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	国内照射試験		
被覆部破損 健全性	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	国内照射試験		
被覆部腐食	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	国内照射試験		
放射性ガス放出														B'					
照射 各成分 健全性 異常安全性 (1600°C)														B	A' (B)	A	国内照射試験		
														B			同上		
														B	A'	A	炉外加熱試験		

A : A型と同一。(A' : A型と同一とみなしうる)。

buffer : 低密度熱分解炭素

A' : A型の結果から類似できる。

PyC : 高密度熱分解炭素

B : 類似の試験により実証している。

( ) : 健全性実証の補強

B' : 類似の試験から類似できる。

## 付録5 B型燃料体関連文献リスト

### ZrC被覆燃料粒子関連文献

#### 〈製造法（国内研究）〉

- (1) K. Ikawa, "Vapor deposition of zirconium carbide-carbon composites by the iodide process", *J. Less-Common Metals* 27 (1972) pp. 325 - 332.
- (2) K. Ikawa and K. Iwamoto, "Coating microspheres with zirconium carbide", *J. Nucl. Mater.* 45 (1972 / 73) pp. 67 - 68.
- (3) K. Ikawa, "Vapor deposition of zirconium carbide-carbon composites by the chloride process", *J. Less-Common Metals* 19 (1972) pp. 233 - 239.
- (4) K. Ikawa and K. Iwamoto, "Coating microspheres with zirconium carbide-carbon compositb by the methylene dichloride process", *Yogyo-Kyokai-Shi* 81 (1973) pp. 403 - 406.
- (5) K. Ikawa and K. Iwamoto, "Coaing microspheres with zirconium carbide-carbon alloy", *J. Nucl. Mater.* 52 (1974) pp. 128 - 130.
- (6) K. Ikawa and K. Iwamoto, "Coating microspheres with zironium carbide-carbon alloy by iodide process", *J. Nucl. Sci. Technol.* 11 (1974) pp. 263 - 267.
- (7) K. Ikawa, "Co-deposition of zirconium with carbon by the bromide process",
- (8) T. Ogawa, K. Ikawa and K. Iwamoto, "Effect of gas composition on the deposition of ZrC-C mixtures: the bromide process", *J. Mater. Sci.* 14 (1979) pp. 125 - 132.
- (9) T. Ogawa, K. Ikawa and K. Iwamoto, "Chemical vapor deposition of ZrC within a spouted bed by bromide process", *J. Nucl. Mater.* 97 (1981) pp. 104 - 112.

#### 〈特性（国内研究）〉

- (1) K. Fukuda, K. Ikawa, F. Kobayashi and K. Iwamoto, "Microstructure of vapor-deposited ZrC-C alloy", *J. Nucl. Mater.* 56 (1975) pp. 243 - 245.
- (2) T. Ogawa, K. Ikawa and K. Iwamoto, "Microhardness and microstrure of chemically vapor deposited ZrC-C alloy", 62 (1976) pp. 322 - 324.
- (3) T. Ogawa, K. Ikawa and K. Iwamoto, "A study of the reactions between ZrC and some metal oxides", *J. Nucl. Mater.* 87 (1979) pp. 40 - 48.
- (4) K. Fukuda, K. Ikawa and K. Iwamoto, "Fission product diffusion in ZrC coated fuel particles", *J. Nucl. Mater.* 87 (9179) pp. 367 - 374.
- (5) T. Ogawa and K. Ikawa, "High-temperature heating experiments of un-irradiated ZrC-coated fuel particles", *J. Nucl. Mater.* 99 (1981) pp. 85 - 93.
- (6) T. Ogawa and K. Ikawa, "Crushing strength of SiC-TRISO and ZrC-TRISO coated fuel particles", *J. Nucl. Mater.* 98 (1981) pp. 18 - 26.

- (7) T. Ogawa, "Method to assess the equilibrium  $\text{MO}_x\text{--MC}_y\text{--C--CO}$ . The system  $\text{ZrO}_2\text{--ZrC}\text{--C--CO}$ ", J. Chem. Eng. Data 27 (1982) pp. 186 - 188.
- (8) T. Ogawa and K. Ikawa, "Diffusion of metal fission products in  $\text{ZrC}_{1.0}$ ", J. Nucl. Mater. 105 (1982) pp. 331 - 334.
- (9) T. Ogawa and K. Ikawa, "Microstructures of CVD  $\text{ZrC}_{1.0}$ ", J. Nucl. Mater. 107 (1982) pp. 337 - 342.
- (10) T. Ogawa and K. Ikawa, "Reactions of Pd with SiC and ZrC", High Temp. Sci. 22 (1986) pp. 179 - 193.
- (11) T. Ogawa et al., "Research and development of ZrC-coated  $\text{UO}_2$  particle fuel at the Japan Atomic Energy Research Institute", Nuclear Fuel Performance, Proc. BNES Conf. London (1985), pp. 163 - 169.

#### 〈海外文献〉

- (1) W.J.K. Davies, A.M. Thomas, J.B. Huffadine and N.C. Moore, "Zirconium-carbide-coated uranium oxide fuel particles", Trans. Brit. Ceram. Soc. 62 (1963) pp. 269 - 279.
- (2) Gulf General Atomic Report, "HTGR base program quarterly progress report for the period ending February 29, 1968", GA- 8530 (1968) pp. 102 - 103.
- (3) Gulf General Atomic Report, "HTGR base program quarterly progress report for the period ending May 31, 1968", GA- 8862 (1968) pp. 110 - 114.
- (4) G.H. Reynolds, J.C. Janvier, J.L. Kaae and J.P. Morlevat, "Irradiation behavior of experimental fuel particles containing chemically vapor deposited zirconium carbide coatings", J. Nucl. Mater. 62 (1976) pp. 9 - 16.
- (5) A. Auskern, "Rare gas diffusion in nonstoichiometric zirconium carbide", J. Nucl. Mater. 22 (1967) pp. 257 - 268.
- (6) W.A. Stark, Jr., "Cesium solubility, diffusion and permeation in zirconium carbide", J. Nucl. Mater. 73 (1978) pp. 169 - 179.
- (7) C.M. Hollabaugh, L.A. Wahman, R.D. Reiswig, R.W. White and P. Water, "Chemical vapor deposition of ZrC made by reactions of  $\text{ZrCl}_4$  with  $\text{CH}_4$  and with  $\text{C}_3\text{H}_6$ ", Nucl. Technol. 35 (1977) pp. 527 - 535.

#### 〈被覆粒子燃料研究状況報告〉

- (1) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第8号", (1974), pp. 21 - 22.
- (2) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第9号", (1975), pp. 20 - 21.
- (3) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第10号", (1975), pp. 11 - 15.
- (4) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第11号", (1976), pp. 17 - 21.
- (5) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第12号", (1976), pp. 2 - 29.
- (6) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第13号", (1977), pp. 14 - 16.
- (7) 燃料照射研究室, "被覆粒子燃料研究状況報告・第14号", (1977), pp. 12 - 13.

- (8) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 15 号”, (1978), pp. 9-12, 42-68.
- (9) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 16 号”, (1978), pp. 9-17, 39-50.
- (10) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 17 号”, (1979), pp. 11-18.
- (11) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 18 号”, (1980), pp. 6-11.
- (12) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 19 号”, (1980), pp. 8-13.
- (13) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 20 号”, (1980), pp. 16-35.
- (14) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 21 号”, (1981), pp. 83-100.
- (15) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 22 号”, (1981), pp. 122-130.
- (16) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 23 号”, (1982), pp. 101-111.
- (17) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 28 号”, (1984), pp. 88-107.
- (18) 燃料照射研究室, “被覆粒子燃料研究状況報告・第 29 号”, (1985), pp. 81-99.

### トリウム系被覆燃料粒子関連文献

#### 〈国内文献（引用分）〉

- (1) 日本原子力学会「トリウムサイクル調査」研究専門委員会, “トリウムサイクル研究開発の現状と発展の道一”, 1980, p. 96.
- (2) 日本原子力研究所, “高温ガス炉研究開発の現状”, 1986, pp. 37-39.
- (3) 鈴木弘茂, 孫鳳根, 岩本多實, “被覆粒子燃料のアーベバ効果”, 日本原子力学会誌 18 (1976) [No. 5] pp. 277-285.
- (4) S. Yamagishi and Y. Takahashi, “Sol-gel using carbon tetrachloride as drop-formation medium for producing large ThO<sub>2</sub>-base microspheres”, J. Nucl. Sci. Technol. (Tokyo) 22 (1985) pp. 995-1000.
- (5) 白鳥徹雄, 赤堀光雄, 伊藤昭憲, 小川 徹, 伊藤忠春, 高橋五志生, “酸化トリウム系被覆燃料粒子の高燃焼照射挙動”, 日本原子力学会 (1990 年 4 月, 東大工) G 24.
- (6) 白鳥徹雄, 伊藤昭憲, 赤堀光雄, 柴是行, 足立 守, “酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動”, JAERI-M 88-220 (1988).

#### 〈製造法〉

- (1) 山岸滋, 高橋良寿, 白鳥徹雄, 柴是行, “ゾルゲル法による ThO<sub>2</sub> 燃料核の製造”, JAERI-1271 (1981).
- (2) 山岸滋, 高橋良寿, 柴是行, “ThO<sub>2</sub> 燃料核の密度の浮力法による高精度測定”, JAERI-M 9302 (1981).
- (3) 山岸滋, 高橋良寿, 柴是行, “pH 制御型ゾル製造装置”, JAERI-M 9477 (1981).
- (4) 山岸滋, 高橋良寿, 柴是行, “水銀ピクノメトリーによる ThO<sub>2</sub> および (Th, U) O<sub>2</sub> 微小球のかさ密度の高精度測定”, JAERI-M 83-168 (1983).

- (5) S. Yamagishi, Y. Takahashi and K. Shiba, "An accurate method for determining the small volumes of granular solids by mercury pycnometry", J. Phys. E: Sci. Instrum. 10 (1984) 339 - 341.
- (6) S. Yamagishi, Y. Takahashi and K. Shiba, "Preparation of ThO<sub>2</sub> sols having colloid-size distributions suitable for gelation into microspheres", J. Nucl. Sci. Technol. 21 (1984) 528 - 537.
- (7) 山岸滋, 高橋良寿, “グルゲル法による (Th, U) O<sub>2</sub>燃料核の製造”, JAERI-M 85-127 (1985).
- (8) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Preparation of ThO<sub>2</sub> sols suitable for gelation into microspheres in CCl<sub>4</sub>-ammonia media", J. Nucl. Sci. Technol. 22 (1985) 915 - 921.
- (9) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Sol-gel method using carbon tetrachloride as drop formation media for producing large ThO<sub>2</sub>-base microspheres", J. Nucl. Sci. Technol. 22 (1985) 995 - 1000.
- (10) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Preparation of ThO<sub>2</sub>-UO<sub>3</sub> sols with uranium contents of 0 - 35% for gelation into microspheres in CCl<sub>4</sub>-ammonia media", J. Nucl. Sci. Technol. 23 (1986) 711 - 721.
- (11) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Production of (Th, U)O<sub>2</sub> microspheres with uranium contents of 0 - 35% by sol-gel process using CCl<sub>4</sub> as gelation media", J. Nucl. Sci. Technol. 23 (1986) 794 - 801.
- (12) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Sintering behavior of sol-gel ThO<sub>2</sub> microspheres", J. Nucl. Mater. 144 (1987) 244 - 251.
- (13) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Effect of thorium concentration on ThO<sub>2</sub> sol preparation under pH control by gaseous ammonia addition method", J. Nucl. Sci. Technol. 24 (1987) 748 - 758.
- (14) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Preparation conditions and gelation behaviors of ThO<sub>2</sub>-UO<sub>3</sub> sols for (Th, U)O<sub>2</sub> microsphere fabrication", J. Nucl. Sci. Technol. 25 (1988) 848 - 856.
- (15) S. Yamagishi and Y. Takahashi, "Behavior and removal of impurity sulphate in sol-gel process for ThO<sub>2</sub> and (Th, U)O<sub>2</sub> microsphere fabrication", J. Nucl. Sci. Technol. 26 (1989) 939 - 947.
- (16) M. Akabori and K. Ikawa, "Preparation of high density (Th, U)O<sub>2</sub> pellets", JAREI-M 86-100 (1986).

#### 〈特 性〉

- (1) 柴是行, 伊藤昭憲, 宇賀神光弘, "Th<sub>1-y</sub>U<sub>y</sub>O<sub>2</sub>粉末固溶体 (y < 0.2) からのキセノンの放出", 日本原子力学会秋の分科会 (1977), G 47.
- (2) 宇賀神光弘, 荒井長利, 柴是行, "高温ガス炉燃料 Th-U-C-O 系の熱力学的考察", 日本原子力学会 52 年秋の分科会 (1977), G 1.
- (3) M. Ugajin, "Thermodynamic assessment of HTGR fuel system Th-U-C-O", J. Nucl.

- Mater. 74 (1978) 354.
- (4) 柴是行, “トリウム固体燃料の動力炉での利用”, 日本原子力学会誌 20 (1978).
- (5) M. Ugajin and K. Shiba, “The chemical state of burnup-simulated  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  at high oxygen potential”, J. Nucl. Mater. 91 (1980) 227.
- (6) 赤堀光雄, 柴是行, “ $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  混合核の照射による格子定数変化”, 日本原子力学会 55 年年会 (1980), G 15.
- (7) K. Shiba, A. Itoh and M. Ugajin, “Fission xenon release from lightly irradiated  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  powder”, J. Nucl. Mater. 96 (1981) 255.
- (8) M. Akabori and K. Shiba, “Lattice parameter change in irradiated  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ”, J. Nucl. Mater. 101 (1981) 184.
- (9) 宇賀神光弘, 白鳥徹雄, 柴是行, “ $\text{ThO}_2-\text{UO}_2$  系燃料の O/M 比と酸素ポテンシャルの測定”, 日本原子力学会 56 年年会 (1981), J 32.
- (10) 赤堀光雄, 柴是行, “照射  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  燃料核における格子定数の回復挙動”, 日本原子力学会 56 年年会 (1981), J 36.
- (11) M. Ugajin and K. Shiba, “Stability of the simulated fission product phase in  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ”, J. Nucl. Mater. (1981), submitted.
- (12) 白鳥徹雄, 伊藤昭憲, 柴是行, 宮内武次郎, 石本清, “酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動(I), JRR-2 キャブセル照射試験結果”, 日本原子力学会 56 年秋の分科会, 九大 (1981), J 63.
- (13) 伊藤昭憲, 白鳥徹雄, 柴是行, “酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動(II), 照射試験結果と炉外加熱試験結果の比較”, 日本原子力学会 56 年秋の分科会, 九大 (1981), J 64.
- (14) 鈴木健次, 赤堀光雄, 柴是行, “核分裂片照射による酸化トリウム燃料核の格子定数変化”, 日本原子力学会, 九大 (1981), J 62.
- (15) M. Ugajin, “Oxygen potentials of  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_{2+x}$  solid solutions”, J. Nucl. Mater. 110 (1982) 140.
- (16) 赤堀光雄, 柴是行, “ $\text{ThO}_2$  の照射効果に及ぼす添加物 ( $\text{CaO}$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ) の影響”, 日本原子力学会 58 年秋の分科会, 北大 (1983), H 28.
- (17) M. Ugajin, “Measurement of O/U ratio and oxygen potential of  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_{2+x}$ ”, J. Nucl. Sci. Technol. 20 (1983) 228.
- (18) M. Ugajin, T. Shiratori and K. Shiba, “Thermodynamic properties of  $\text{Th}_{0.80}\text{U}_{0.20}\text{O}_{2+x}$  solid solutions”, J. Nucl. Mater. 116 (1983) 172.
- (19) 赤堀光雄, 伊藤昭憲, 柴是行, “照射  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  の格子定数変化と FP ガス放出”, 日本原子力学会 59 年年会, 近大 (1981), H 34.
- (20) K. Ando, Y. Oishi T. Tseiji, Y. Hidaka and K. Shiba, “Grain-boundary depressed diffusion of oxygen ion in  $\text{ThO}_2$ ”, J. Nucl. Mater. 120 (1984) 99.
- (21) M. Akabori and K. Shiba, “Crushing strength of fuel kernels for high temperature gas-cooled reactors”, J. Nucl. Sci. Technol. 21 (1984) 466.
- (22) 伊藤昭憲, 柴是行, 白鳥徹雄, “ $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  燃料核からのキセノンの放出”, 日本原子力学会 59 年秋の分科会, 原研東海 (1984), E 30.

- ② K. Shiba, A. Itoh and M. Akabori, "The mechanisms of fission gas release from (Th, U)O<sub>2</sub>", J. Nucl. Mater. 126 (1984) 18.
- ④ K. Ando, Y. Ikeda, S. Morita, R. Watanabe, K. Shiba and M. Handa, "Preferential vaporization of uranium oxide in the polycrystalline thoria-urania solid solution", J. Nucl. Mater. 136 (1985) 186.
- ⑤ 安藤, 柴是行, 半田, 他, "(Th, U) O<sub>2-x</sub> 焼結体の蒸発と微細構造の変化", 日本原子力学会 59 年秋の分科会, 原研東海 (1984).
- ⑥ 白鳥徹雄, 井川勝市, "酸化トリウムの塩素化", 日本原子力学会61年年会, 京大(1985), F27.
- ⑦ M. Akabori, K. Shiba, "Dimensional changes in irradiated (Th, U)O<sub>2</sub>", J. Nucl. Sci. Technol. 23 (1986) 594.
- ⑧ 赤堀光雄, 伊藤昭憲, 柴是行, "(Th, U) O<sub>2</sub> における Cs 放出挙動", 日本原子力学会 61 年秋の分科会, 九大 (1986), K 59.
- ⑨ 井川勝市, "高温ガス炉トリウム燃料", 日本原子力学会誌 28 (1986) 599.
- ⑩ 赤堀光雄, 伊藤昭憲, 白鳥徹雄, 井川勝市, 柴是行, "ThO<sub>2</sub> 系燃料の照射による格子定数変化に及ぼす照射温度の影響", JAERI-M 87-016 (1987).

#### 〈海外文献〉

- (1) H. Nickel and E. Balthessen, "Status of HTR fuel element development in the FRG and its potential for nuclear process heat reactors", Kerntechnik 17 (1975) pp. 205 - 214.
- (2) T.B. Lindemer, "Measurement and interpretation of CO and Kr + Xe in irradiated ThO<sub>2</sub>-containing HTGR fuel particles", J. Am. Ceram. Soc. 60 (1977) pp. 409 - 416.
- (3) O.M. Stansfield, C.B. Sott and J. Chin, "Kernel migration in coated carbide fuel particles", Nucl. Technol. 25 (1975) pp. 510 - 530.
- (4) W. Bremen, A. Naoumidis and H. Nickel, "Silicon carbide as a protective coat on graphitic materials for the HTR, -Mechanism and kinetics of corrosion, -Preparation of SiC-coating", Juel- 1422 (1977).
- (5) H. Gruebmeiner, A. Naoumidis and B.A. Thiele, "Silicon carbide corrosion in high-temperature gas-cooled reactor fuel particles", Nucl. Technol. 35 (1977) pp. 413 - 427.
- (6) K. Bongartz and H. Nabielek, "A universal model for coated particle failure", Trans. on 6 th Intern. Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMiRT- 6 ), Paris, 17 - 21 Aug. 1981, C 4 / 2 .
- (7) L. Wolf, G. Ballensiefen and W. Froehling, "Fuel elements of the high temperature pebble bed reactor", J. Nucl. Mater. 34 (1975) pp. 93 - 108.
- (8) D. Thiele, B. -G. Brodda, E. Mainka, T. Goergenyi, E. Kuhn and H. Aigner, "International comparison of the chemical assay of uranium and thorium in THTR fuel for safeguards purposes", J. Nucl. Mater. 113 (1983) pp. 142 - 148.
- (9) W. Burck, E. Groos, H. Nabielek, W. Schenk and M. Wimmers, "Fuel for pebble bed high-temperature reactors", Trans. Am. Nucl. Soc. 33 (1979) pp. 310 - 311.