

JAERI-M

9052

高温ガス炉用燃料コンパクトの熱膨脹

1980年8月

菊池 輝男・岩本 多実・井川 勝市

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

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

高温ガス炉用燃料コンパクトの熱膨脹

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

菊池輝男・岩本多実・井川勝市

(1980年8月5日受理)

高温ガス炉用燃料コンパクトおよびコンパクト用マトリックス材の熱膨脹を、石英押棒式デラトメータにより、100～700℃の範囲で測定した。測定に供した試料は、針状コークス黒鉛および天然黒鉛-石油コークス黒鉛に、フェノール樹脂を10%あるいは20%添加し、成形および焼成したマトリックス材およびこれらのマトリックス材に、被覆粒子を30、35および40%充填した燃料コンパクトで、熱膨脹係数は、成形圧方向と平行および垂直方向について測定した。その結果、マトリックス材の熱膨脹係数は温度とともに増加し、成形圧に対しては平行方向の方が大きく、針状コークス黒鉛系マトリックスは最も異方質であった。また、バインダー添加率20%のマトリックスよりも10%のそれの方が異方質であり、燃料コンパクトの異方性は、マトリックス単独の場合より小さいことがわかった。さらに、被覆粒子の充填率を、30%から40%に増加させると、熱膨脹係数はごくわずかに減少することがわかった。

Thermal Expansion of Fuel Compacts for HTGR

Teruo KIKUCHI, Kazumi IWAMOTO and Katsuichi IKAWA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment,  
JAERI

(Received August 5, 1980)

Coefficients of thermal expansion of graphite/carbon matrices and fuel compacts for HTGR were measured by a quartz push-rod dilatometer at a temperature range of 100- 700 °C. Graphite/carbon matrices were prepared by such method that needle coke graphite powder or natural graphite-petroleum coke graphite powder was first mixed with 10 or 20 % of phenolic resin and pressed and calcined. Fuel compacts were prepared by the overcoating process, loading coated particles 30, 35 and 40 % in these matrices. The coefficients of thermal expansion were measured in the direction parallel with and perpendicular to the forming pressure. The coefficients of thermal expansion of graphite/carbon matrices increase with temperature and those of parallel direction are larger than that those of perpendicular direction and needle coke graphite/carbon matrices is most isotropic. Matrices become isotropic with increasing binder contents from 10 to 20 % and with coated particle loading. The coefficients of thermal expansion of fuel compacts slightly decrease with increasing coated particle loading from 30 to 40 %.

Keywords: HTGR, Fuel Compact, Coated Particle, Thermal Property,  
Thermal Expansion, Thermal Expansion Coefficient

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験方法 .....	1
2.1 試料の調製 .....	1
2.2 実験装置 .....	2
3. 結果および考察 .....	3
3.1 マトリックス成形体の熱膨脹 .....	3
3.2 燃料コンパクトの熱膨脹 .....	4
4. まとめ .....	6
参考文献 .....	7

Contents

1.	Introduction .....	1
2.	Measurement techniques .....	1
2.1	Specimen description .....	1
2.2	Measuring apparatus .....	2
3.	Results and discussion .....	3
3.1	Thermal expansion of matrices .....	3
3.2	Thermal expansion of fuel compacts .....	4
4.	Concusion .....	6
	References .....	7

## 1. はじめに

日本原子力研究所が開発をすすめている多目的高温ガス炉に使用する燃料は、Pin-in-block型<sup>1)</sup>で、燃料棒内に発生した熱は、燃料棒と燃料ブロックとの間の円環状のすきまを流れるヘリウムによって除かれる。燃料棒は中空円筒型の燃料コンパクトを、黒鉛スリーブ中に封入したものでコンパクトとスリーブの間には若干ギャップが存在し、これは熱移動に対して大きな抵抗となる。このコンパクト-スリーブ間のギャップ間隔は、温度の上昇に対して拡大する場合には、熱移動に対する抵抗が増加するために、燃料コンパクトの温度が上昇し、逆に縮小する場合には、熱移動に対する抵抗が減少するため、燃料コンパクトの温度は下がる。

このように、コンパクト-スリーブ間のギャップ間隔は、高温ガス炉燃料の設計および安全解析上重要な項目であり、これを計算により求めるためには、黒鉛および燃料コンパクトの熱膨張のデータが必要である。(原子炉中では中性子の照射効果による寸法収縮がこれに加わる。)さらに、燃料コンパクトの熱膨張のデータは、燃料コンパクトの熱応力の解析にも必要である。このような現状にあるにもかかわらず、燃料コンパクトの熱膨張に関する報告は少ない。<sup>5), 6)</sup>。燃料コンパクトは、被覆粒子を黒鉛粉末およびフェノール樹脂とともに、金型により円筒形に成形し、これを焼成したものであるから、成形の際の加圧の方向に対し黒鉛粉末の基底面の優先的な配列が異なるために、熱膨張もこれと対応して変わるほか<sup>4)</sup>、原料粉末や製造プロセスのちがひも燃料コンパクトの熱膨張に対して影響を及ぼすものと推定される。本報は、黒鉛粉末、バインダー添加率、被覆粒子充填率を変えた場合、燃料コンパクトの熱膨張に及ぼす影響を調べたものである。

## 2. 実験方法

### 2.1 試料の調製

熱膨張の測定に使用したマトリックス成形体の調製方法は次のとおりである。黒鉛粉末にフェノール樹脂を重量百分率で10%あるいは20%添加し、両者をよく混合する。この混合物を金型中で温間プレス成形(約150℃)したあと、この成形体を金型から抜き取り、電気炉中で800℃までゆっくり昇温して、フェノール樹脂を炭化させ、更に、1800℃、1時間真空に保ち脱ガス処理を行なう。なお、針状コークス黒鉛粉末および天然黒鉛粉末はそれぞれ単独に、石油コークス黒鉛粉末は天然黒鉛粉末と1:4(重量比)に混合して使用した。

燃料コンパクトはマトリックス成形体の場合と同様、黒鉛粉末とフェノール樹脂の混合物を調製し、これを回転ドラムにより被覆粒子にオーバーコートする。このオーバーコート粒子を、金型により温間プレス成形する。これ以後のプロセスは、前述のマトリックス成形体の場合と同様である。ここで、燃料コンパクト中の被覆粒子の充填率の調整は、オーバーコート層の厚さを調

## 1. はじめに

日本原子力研究所が開発をすすめている多目的高温ガス炉に使用する燃料は、Pin-in-block型<sup>1)</sup>で、燃料棒内に発生した熱は、燃料棒と燃料ブロックとの間の円環状のすきまを流れるヘリウムによって除かれる。燃料棒は中空円筒型の燃料コンパクトを、黒鉛スリーブ中に封入したものでコンパクトとスリーブの間には若干ギャップが存在し、これは熱移動に対して大きな抵抗となる。このコンパクト-スリーブ間のギャップ間隔は、温度の上昇に対して拡大する場合には、熱移動に対する抵抗が増加するために、燃料コンパクトの温度が上昇し、逆に縮小する場合には、熱移動に対する抵抗が減少するため、燃料コンパクトの温度は下がる。

このように、コンパクト-スリーブ間のギャップ間隔は、高温ガス炉燃料の設計および安全解析上重要な項目であり、これを計算により求めるためには、黒鉛および燃料コンパクトの熱膨張のデータが必要である。(原子炉中では中性子の照射効果による寸法収縮がこれに加わる。)さらに、燃料コンパクトの熱膨張のデータは、燃料コンパクトの熱応力の解析にも必要である。このような現状にあるにもかかわらず、燃料コンパクトの熱膨張に関する報告は少ない。<sup>5), 6)</sup>。燃料コンパクトは、被覆粒子を黒鉛粉末およびフェノール樹脂とともに、金型により円筒形に成形し、これを焼成したものであるから、成形の際の加圧の方向に対し黒鉛粉末の基底面の優先的な配列が異なるために、熱膨張もこれと対応して変わるほか<sup>4)</sup>、原料粉末や製造プロセスのちがひも燃料コンパクトの熱膨張に対して影響を及ぼすものと推定される。本報は、黒鉛粉末、バインダー添加率、被覆粒子充填率を変えた場合、燃料コンパクトの熱膨張に及ぼす影響を調べたものである。

## 2. 実験方法

### 2.1 試料の調製

熱膨張の測定に使用したマトリックス成形体の調製方法は次のとおりである。黒鉛粉末にフェノール樹脂を重量百分率で10%あるいは20%添加し、両者をよく混合する。この混合物を金型中で温間プレス成形(約150℃)したあと、この成形体を金型から抜き取り、電気炉中で800℃までゆっくり昇温して、フェノール樹脂を炭化させ、更に、1800℃、1時間真空に保ち脱ガス処理を行なう。なお、針状コークス黒鉛粉末および天然黒鉛粉末はそれぞれ単独に、石油コークス黒鉛粉末は天然黒鉛粉末と1:4(重量比)に混合して使用した。

燃料コンパクトはマトリックス成形体の場合と同様、黒鉛粉末とフェノール樹脂の混合物を調製し、これを回転ドラムにより被覆粒子にオーバーコートする。このオーバーコート粒子を、金型により温間プレス成形する。これ以後のプロセスは、前述のマトリックス成形体の場合と同様である。ここで、燃料コンパクト中の被覆粒子の充填率の調整は、オーバーコート層の厚さを調



整することにより行なった。なお、マトリックス成形体および燃料コンパクトの寸法は、外径 36 mm、内径 18 mm、長さ 36 mm である。

調製した試料の種類を、Table 1 に示す。マトリックス成形体については、針状コークス黒鉛のみのもの (NCG)、石油コークス黒鉛と天然黒鉛のみのもの (NAT)、石油コークス黒鉛と天然黒鉛を 1 : 4 に混合したもの (P2N8) の 3 種について、バインダーをそれぞれ 10% あるいは 20% 添加したものを計 6 種調製した。燃料コンパクトについては、針状コークス黒鉛および天然黒鉛 - 石油コークス黒鉛混合物に、それぞれバインダーを 10% あるいは 20% 添加したマトリックスに対し、被覆粒子を 30% 充填したものの、バインダー添加率を 20% に固定した天然黒鉛 - 石油コークス黒鉛混合物に、被覆粒子を 30, 35, 40% 充填したものを調製した。さらに、直径を 920  $\mu\text{m}$  から 1120  $\mu\text{m}$  に拡大した被覆粒子を、30% 充填した燃料コンパクトを 1 種調製した。使用した黒鉛粉末の特性および形状を、それぞれ Table 2 および Fig. 1 に、調製した燃料コンパクトは Fig. 2 に、コンパクトの断面写真を Fig. 3 に示す。

熱膨張の測定試料の採取方法を Fig. 4 に示す。ここで、成形圧と平行方向( $\parallel$ )の試料については、成形体の側面近くから、垂直方向( $\perp$ )の試料は、成形体の端面近くから採取した。なお、試料の寸法は、 $\perp$  方向の試料では約  $4 \times 4 \times 30$  (mm)、 $\parallel$  方向の試料は約  $4 \times 4 \times 36$  (mm) である。被覆粒子の熱膨張は、被覆粒子の直径よりわずかに太い内径の石英管中に被覆粒子を一列に並べ、石英管の全長より被覆粒子の列の全長をわずかに長くした試料を作成し、これにより測定した。

## 2.2 実験装置

熱膨張の測定は、ライツ製石英押棒式デラトメータを用いた。一端を封じた石英管の中に試料を入れ、さらにこの試料を石英棒で押え、試料の熱膨張をこの石英棒に伝達し、他端に取り付けられている光テコを作動させることにより、微少な熱膨張を拡大し印画紙上に投影し露光する。露光済印画紙は現像し、この印画紙上に投影された変位量を測定し、あらかじめ求めておいた計算式を用いて、試料の熱膨張に換算する。なお、試料ホルダーには石英管を用いているため、石英管の熱膨張の補正を行なう必要があるが、これは文献値<sup>3)</sup>を利用して行なった。また、ライツ製押棒式デラトメータの校正は、IG-11 黒鉛で製作した標準試料の熱膨張を、理学電機製熱機械分析装置により測定し、両者の測定結果を比較することにより行なった。なお、ライツ製デラトメータによる測定結果と、理学電機製装置による結果とは、全く同じ値であった。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 マトリックス成形体の熱膨脹

マトリックス成形体の//方向および⊥方向の熱膨脹の測定結果を、それぞれFig. 5およびFig. 6に、これから求めた//方向および⊥方向の熱膨脹係数を、それぞれFig. 7およびFig. 8に示す。これらの結果からマトリックス成形体の//方向の熱膨脹係数は、⊥方向のそれにくらべてかなり大きく、きわめて異方質であることがわかる。特に針状コークス黒鉛系マトリックス (NCG) でバインダー添加率 10% の場合、それがいちじるしい。//方向におけるバインダー添加率 10% の場合と 20% の場合を比較すると、3種のマトリックス(NCG, NAT, P2N8)とも前者が後者にくらべて大きい、⊥方向では針状コークス黒鉛系 (NCG)においてその順序が逆になっている以外、バインダーの添加率の増加に対して小さな熱膨脹を示すようになる。

次に熱膨脹の大きさの順序を、マトリックス用黒鉛粉末について比較すると、//方向ではバインダー添加率 10% の場合、針状コークス黒鉛系マトリックスが最も大きく、これよりはるかにいかなれて、天然黒鉛 (NAT) および天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系 (P2N8) がほぼ同じ位置にあり、バインダー添加率 20% の場合には、針状コークス黒鉛系マトリックス、天然黒鉛系マトリックス、天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系マトリックスの順でつづいている。⊥方向では、バインダー添加率 10% の場合も 20% の場合もともに天然黒鉛系マトリックスの方が、天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系マトリックスよりも大きい、その差はわずかである。

以上の実験から、バインダーの添加率の増加に対して、マトリックス成形体の熱膨脹は//方向⊥方向ともに小さくなる傾向にあることがわかる。マトリックス成形体は、黒鉛粒子とバインダー炭素から構成されているが、単結晶黒鉛粒子の場合、a軸方向とc軸方向とでは、熱膨脹に対する異方性がきわめて大きく、c軸方向では400℃以上で $28 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 程度の大きな熱膨脹係数を示すのに対し、a軸方向では400℃付近を境にして、これより低い場合には負の熱膨脹係数を取り、これより高い場合には正の熱膨脹係数をとる。なお、400℃以上ではa軸方向の熱膨脹係数は温度とともに増加し、1000~1500℃では $1 \sim 1.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ という値を示す<sup>2)</sup>フェノール樹脂は、その焼成過程でクラックが入りやすく、大きな寸法の成形体を製造することはきわめて困難なために、バインダー炭素単独の熱膨脹は測定していないが、代表的な無定形炭素であるガラスカーボンの熱膨脹係数は、500℃ではほぼ $3.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ である。<sup>3)</sup> バインダー炭素の熱膨脹もほぼこれに近い値をとるであろう。これとマトリックス成形体の熱膨脹を比較すると、⊥方向の熱膨脹より若干大きい。

マトリックス成形体の走査型電子顕微鏡写真 (SEM) をFig. 9~Fig. 11に示す。これはマトリックス成形体を成形圧方向と平行に切断し、この面を研磨しプラズマエッチングにより処理した面の写真である。この写真での成形圧方向は、Fig. 9とFig. 11の場合、左上から右下に向う対角線の方向であり、Fig. 10では右上から左下に向う対角線の方向である。これらの写真から、いずれのマトリックスにおいても程度の差はあれ、黒鉛粒子の基底面の配列は、成形圧方向に対し

て垂直に配位していることがわかる。特に、バインダー添加率 10%の場合と 20%の場合では、前者の方が垂直に配向している割合が多く、後者では垂直方向以外の配向が多くなっている。このことは、マトリックスの成形に際して、バインダーの量を多くすると、黒鉛粒子の基底面の配列がランダムになりやすいことを意味している。このように、バインダーの増加により、黒鉛粒子の a 軸方向の配列が、成形圧方向と平行になる割合が大きくなるために、マトリックス成形体の成形圧方向の熱膨張は小さくなると考えられる。

針状コークス黒鉛系マトリックスにおいては、バインダー添加率 10%の場合、 $\parallel$ 方向の熱膨張はきわめて大きいですが、これは規定の密度を確保するために、他のマトリックスの場合に比較して 2 倍以上の成形圧を必要としたため、黒鉛粒子の基底面の配列が、他のマトリックス成形体の場合よりも一層規則的に配列している結果と推定され、また、このような優先的な配列の結果、成形圧に垂直方向の熱膨張は逆に小さくなり、同じ黒鉛粉末によるバインダー添加率 20% の場合の  $\perp$  方向よりも小さくなったものと推定される。

天然黒鉛粒子の場合、Fig. 1 および Table 1 から推定されるかぎりでは、層状構造が最も発達しており、粒子の熱膨張も単結晶黒鉛に最も近い挙動を示すものと考えられるが、そのマトリックス成形体の熱膨張は、針状コークス黒鉛系マトリックスの方がはるかに異方質である。(Table 3) また、天然黒鉛粉末に石油コークス黒鉛粉末を添加したマトリックス成形体の熱膨張も天然黒鉛粉末単独の場合と比較し、その差はわずかである。Fig. 9 ~ Fig. 11 の走査型電子顕微鏡写真の比較においても、黒鉛粒子の配列において特に目立ったちがいはみとめられない。

### 3.2 燃料コンパクトの熱膨張

マトリックス用黒鉛粉末に、針状コークス黒鉛系および天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系を用い、被覆粒子の充填率を 30% に固定し、バインダー添加率を 10% および 20% とした場合の燃料コンパクトの熱膨張を Fig. 12 に、熱膨張係数を Fig. 13 に示す。燃料コンパクトの場合も  $\parallel$  方向に関しては、マトリックス成形体の場合同様、針状コークス黒鉛系でバインダー添加率 10% の場合が最も大きく、これにつづいて同じく針状コークス黒鉛系でバインダー添加率 20% の燃料コンパクト、天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系でバインダー添加率 10% の燃料コンパクト、同じ黒鉛粉末でバインダー 20% の燃料コンパクトの順となっている。黒鉛粉末およびバインダー添加率が同じもの同士について、燃料コンパクトの熱膨張とマトリックス成形体のそれとを比較すると、被覆粒子を充填することにより熱膨張は小さくなっている。一方、上記 4 種の燃料コンパクトの  $\perp$  方向の熱膨張については、黒鉛粉末のちがいによる差が、マトリックス成形体の場合よりも一層小さくなり、4 種ともすべてほぼ同じレベルにある。しかし、被覆粒子添加の影響は針状コークス黒鉛系マトリックスでは  $\parallel$  方向の場合と同じであるが、天然黒鉛石油コークス黒鉛系マトリックスで、バインダー添加率 10% では被覆粒子を充填しても熱膨張は全く変わらないが、バインダー添加率 20% の場合は逆に大きくなっている。オーバーコート法による燃料コンパクトの文献値については、Everett ら<sup>5)</sup> の報告があるが、彼らの結果は筆者らの結果に近い。しかし、製造条件は若干異なっている。

次に、マトリックス用黒鉛粉末およびバインダー添加率を同じにし、被覆粒子の充填率を変え

た場合の熱膨脹を Fig. 14 に、熱膨脹係数を Fig. 15 に示す。この場合マトリックス用黒鉛粉末は天然黒鉛および石油コークス黒鉛粉末を 1 : 4 に混合したものをを用い、バインダー添加率は 20 % である。なお、この図には被覆粒子充填率 30 % の燃料コンパクトの熱膨脹の結果が、○と△により示されているが、○は直径 920  $\mu\text{m}$  の被覆粒子を充填した燃料コンパクトのそれであり、△は 1120  $\mu\text{m}$  の被覆粒子を充填した燃料コンパクトのそれである。また、Fig. 14 に示されている被覆粒子充填率 30 % の燃料コンパクトの製造ロットと、Fig. 12 に示されている被覆粒子充填率 30 % の燃料コンパクトの製造ロットとは異なるものがある。両者、マトリックス用黒鉛粉末、バインダー添加率、被覆粒子充填率が、全く同じであるにもかかわらず若干異なる熱膨脹を示している。この原因については製造条件のバラツキのためと推定される。被覆粒子の充填率は 30 %、35 %、40 % と 3 段階に変えた燃料コンパクトの熱膨脹は、 $\nearrow$  方向、 $\uparrow$  方向ともに被覆粒子の充填率の増加に対して、わずかではあるが減少している。粒子充填率の増加とともに熱膨脹係数が増加するという報告<sup>6)</sup>もあるが、製造方法、製造条件および充填粒子が異なっているから、直接比較はできない。

燃料コンパクトの熱膨脹は、マトリックス成形体に比較し、 $\nearrow$  方向では熱膨脹が小さくなるために、 $\uparrow$  方向との差が小さくなり等方質に近くなるが、(Table 3) これは燃料コンパクトの製造にオーバーコートコンパクションプロセスを使用しているためで、黒鉛粒子の基底面が被覆粒子表面と平行に円周状に配列するためにおこる結果である。黒鉛粒子の配列を示したのが Fig. 16 および Fig. 17 である。Fig. 16 の上の写真は、燃料コンパクトのマトリックスから被覆粒子を抜きだしたあとの底の面を示したもので、薄片状黒鉛粒子の基底面が、被覆粒子の表面と平行に配列しているのがわかる。なお、同図の下の写真は、燃料コンパクトの破面を示したもので、左端にみられる被覆粒子の表面と黒鉛粒子の基底面が平行に配列しているのがわかる。Fig. 17 は天然黒鉛 - 石油コークス黒鉛系燃料コンパクトの断面の走査型電子顕微鏡写真で、上がバインダー 10 % の場合、下がバインダー 20 % の場合である。これらの写真で右下にみえるのは被覆粒子の第 4 層である。バインダー 10 % の場合、同じく 20 % の場合よりも黒鉛粒子の基底面の配列がより規則的である。

次に、被覆粒子単独の熱膨脹測定データを Fig. 18 に、熱膨脹係数を Fig. 19 に示す。これから被覆粒子の熱膨脹は、200  $^{\circ}\text{C}$  以上ではほぼ直線的である。被覆粒子の熱膨脹と燃料コンパクトの熱膨脹を比較すると、針状コークス黒鉛系で $\nearrow$  方向の場合、バインダー添加率 10 % の場合も 20 % の場合もともに被覆粒子の熱膨脹より大きい。天然黒鉛 - 石油コークス黒鉛混合系で $\nearrow$  方向では、バインダー添加率 10 % の場合のみ大きく、バインダー添加率 20 % の場合は逆に小さくなる。一方 $\uparrow$  方向においては、針状コークス黒鉛系でも天然黒鉛 - 石油コークス黒鉛混合系でも、バインダー添加率に関係なく、被覆粒子の熱膨脹より小さい。以上の比較から、燃料コンパクトの熱膨脹は、バインダーの添加率次第で、被覆粒子の熱膨脹よりも小さい値をとり得ることがわかる。このことは逆にいえば、燃料コンパクトの熱膨脹を支配しているのは、被覆粒子ではなく黒鉛粉末の基底面の配列であると考えられる。

燃料コンパクトの場合、黒鉛粒子の基底面は被覆粒子の表面と平行に配列する比率が多くなるために、マトリックス成形体の場合にみられたような異方的な熱膨脹が消失することがわかったが基底面と垂直方向の大きな熱膨脹が拘束される結果、燃料コンパクト内に応力が発生し、場合に

よって燃料コンパクトの破壊に発展するのではないかという問題がおこるが、これは多結晶黒鉛の場合と同じ理由によりそのようなことはおこらないものと推定される。多結晶黒鉛の場合、黒鉛化処理後の冷却に際して、熱膨張の異方性から多結晶黒鉛内部に応力が発生し、基底面と平行に微細なクラックを生成し、応力が緩和される。逆に、多結晶黒鉛の加熱に際しては、これらのクラックがc軸方向の熱膨張を吸収する<sup>4)</sup>。これが、多結晶黒鉛が熱ショックに対してきわめて安定である理由である。燃料コンパクトの製造に用いた黒鉛粒子は、前の走査型電子顕微鏡写真からもわかるとおり、その基底面と平行に多くのマイクロクラックを含んでいる。これらのクラックが、c軸方向の熱膨張を吸収するために破壊にまで至るほどの大きな熱応力は生成しないものと考えられる。

#### 4. ま と め

1. マトリックス材の熱膨張係数は、成形加圧方向に対して//方向、⊥方向とも、温度とともに増加するが、//方向の場合400℃以上ではほぼ一定値を示す。また、//方向の熱膨張係数は、⊥方向のそれに比較して特に大きく、異方的な挙動を示す。これは、針状コークス黒鉛系マトリックスにおいて、特に顕著である。
2. バインダー添加率を10%から20%に増加すると、いずれのマトリックスにおいても異方性は減少する。これは、バインダー添加率10%の場合には、黒鉛粒子の基底面が、成形圧方向に対して垂直に配列する比率が多いのに対し、バインダー添加率20%の場合には、このように配列する比率が少なくなるためである。
3. 針状コークス黒鉛粉末および天然黒鉛-石油コークス黒鉛粉末を用いて、オーバーコートプロセスにより調製した燃料コンパクトの熱膨張係数は一般に小さく、より等方質に近づく。燃料コンパクトもマトリックス同様、針状黒鉛粉末を用いたその異方性が大きい。
4. 黒鉛粉末に、天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合粉末を用い、バインダー添加率を20%に固定し、被覆粒子の充填率を20%に固定し、被覆粒子の充填率を30%から40%に増加させると、熱膨張係数はごくわずかに減少する。

#### 謝 辞

本報をまとめるにあたり、種々の有益な助言を賜った燃料工学部 下川部長に感謝する。  
また、黒鉛標準試料の熱膨張を測定していただいた、燃料工学部黒鉛材料研究室 松尾秀人氏に感謝する。

よっては燃料コンパクトの破壊に発展するのではないかという問題がおこるが、これは多結晶黒鉛の場合と同じ理由によりそのようなことはおこらないものと推定される。多結晶黒鉛の場合、黒鉛化処理後の冷却に際して、熱膨張の異方性から多結晶黒鉛内部に応力が発生し、基底面と平行に微細なクラックを生成し、応力が緩和される。逆に、多結晶黒鉛の加熱に際しては、これらのクラックがc軸方向の熱膨張を吸収する<sup>4)</sup>。これが、多結晶黒鉛が熱ショックに対してきわめて安定である理由である。燃料コンパクトの製造に用いた黒鉛粒子は、前の走査型電子顕微鏡写真からもわかるとおり、その基底面と平行に多くのマイクロクラックを含んでいる。これらのクラックが、c軸方向の熱膨張を吸収するために破壊にまで至るほどの大きな熱応力は生成しないものと考えられる。

#### 4. ま と め

1. マトリックス材の熱膨張係数は、成形加圧方向に対して//方向、⊥方向とも、温度とともに増加するが、//方向の場合 400℃以上ではほぼ一定値を示す。また、//方向の熱膨張係数は、⊥方向のそれに比較して特に大きく、異方的な挙動を示す。これは、針状コークス黒鉛系マトリックスにおいて、特に顕著である。
2. バインダー添加率を 10%から 20%に増加すると、いずれのマトリックスにおいても異方性は減少する。これは、バインダー添加率 10%の場合には、黒鉛粒子の基底面が、成形圧方向に対して垂直に配列する比率が多いのに対し、バインダー添加率 20%の場合には、このように配列する比率が少なくなるためである。
3. 針状コークス黒鉛粉末および天然黒鉛-石油コークス黒鉛粉末を用いて、オーバーコートプロセスにより調製した燃料コンパクトの熱膨張係数は一般に小さく、より等方質に近づく。燃料コンパクトもマトリックス同様、針状黒鉛粉末を用いたその異方性が大きい。
4. 黒鉛粉末に、天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合粉末を用い、バインダー添加率を 20%に固定し、被覆粒子の充填率を 20%に固定し、被覆粒子の充填率を 30%から 40%に増加させると、熱膨張係数はごくわずかに減少する。

#### 謝 辞

本報をまとめるにあたり、種々の有益な助言を賜った燃料工学部 下川部長に感謝する。また、黒鉛標準試料の熱膨張を測定していただいた、燃料工学部黒鉛材料研究室 松尾秀人氏に感謝する。

References

1. SHIMOKAWA, J., et al., Fundamental conceptual design of the experimental multi-purpose high temperature gas-cooled reactor, JAERI-M 6141, (1975)
2. Kelly, B.T., Taylor, R., Chemistry and physics of carbon, vol.10, Marcel Decker, N.Y., (1973)
3. Touloukian, Y.S., Kirby, R.K., Taylor, R.E., Lee, T.Y.R., Thermophysical properties of matter, The TPRC data series, vol.13, Thermal expansion of nonmetallic solids, (1977)
4. Sutton, A.L., Howard, V.C., J.Nucl.Mater., 7, 58 (1962)
5. Everett, M.R., Manzel, R., Barr, P., Mayr, K., D.P. Report 686
6. Moore, J.P., Godfrey, T.G., Graves, R.S., Weaver, F.J., Eatherly, W.P., J.Nucl.Mater., 78, 131 - 142 (1978)

Table 1 Graphite/carbon matrices and fuel compacts

Filler	Binder content ( % )	Coated particle content ( % )
NCG <sup>a)</sup>	10	-
NCG	20	-
P2N8 <sup>b)</sup>	10	-
P2N8	20	-
NAT <sup>c)</sup>	10	-
NAT	20	-
NCG	10	30 <sup>*</sup>
NCG	20	30 <sup>*</sup>
P2N8	10	30 <sup>*</sup>
P2N8	20	30 <sup>*</sup>
P2N8	20	30 <sup>**</sup>
P2N8	20	35 <sup>*</sup>
P2N8	20	40 <sup>*</sup>

a) Needle coke graphite

b) Petroleum coke graphite/Natural graphite = 1/4

c) Natural graphite

\* Standard size coated particle; diameter 920  $\mu\text{m}$

\*\* Large size coated particle ; diameter 1120



Table 2 Characteristics of graphite powder

Graphite		Needle coke graphite	Petroleum coke graphite	Natural graphite
Crystallite size Lc Å		420	620	1500
Crystallite size La Å		1300	1700	3900
002 d spacing Å		3.37	3.37	3.36
Median particle size µm		< 20	< 20	< 20
Density g/cm <sup>3</sup>	Real	2.20	2.15	2.25
	Bulk	0.70	0.69	0.66
Specific surface area m <sup>2</sup> /g		7.9	1.2	7.1

Table 3 Anisotropy of graphite/carbon matrices

Graphite	Binder content wt. %	Coated particle loading v. %	anisotropy
Needle coke graphite	10	0	4.16
	10	30	1.73
	20	0	2.20
	20	30	1.72
Natural graphite and petroleum coke graphite	10	0	3.07
	10	30	1.27
	20	0	2.26
	20	30	1.25

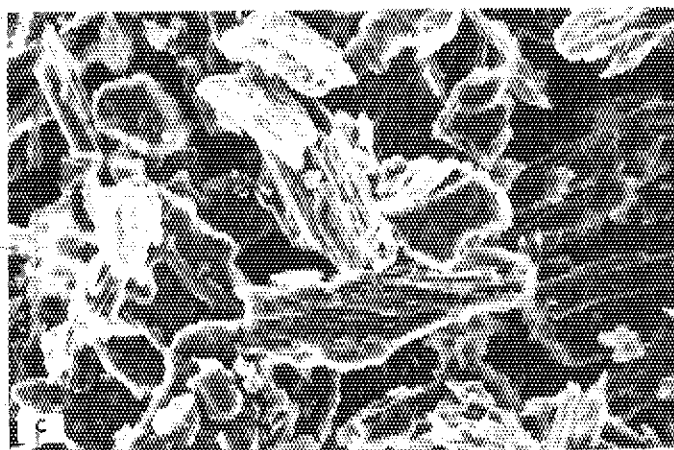
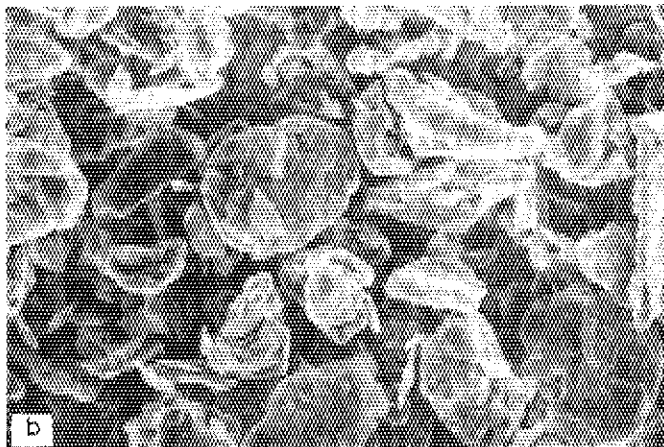
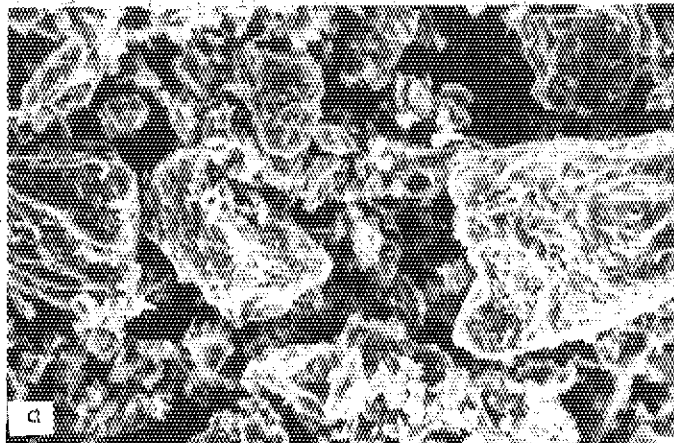


Fig. 1 Typical appearance of graphite fillers  
a. petroleum coke graphite  
b. natural graphite  
c. needle coke graphite

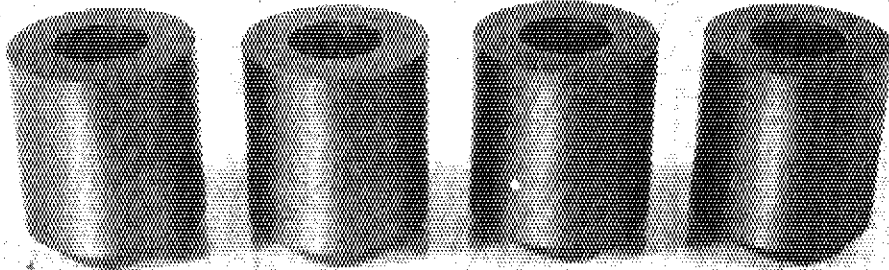


Fig. 2 Fuel compacts

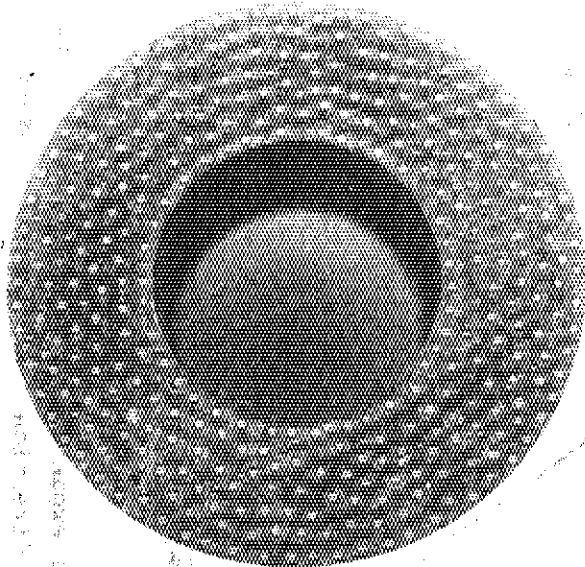


Fig. 3 Cross section of fuel compact

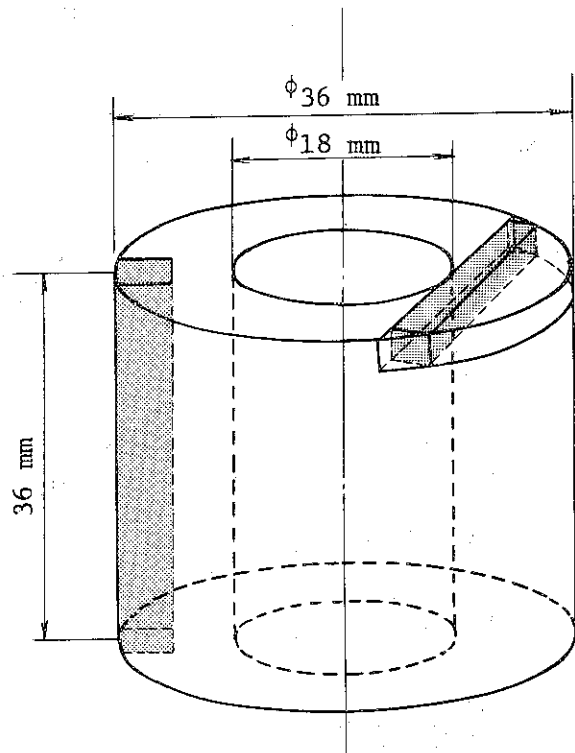


Fig. 4 Sampling schedule of fuel compact

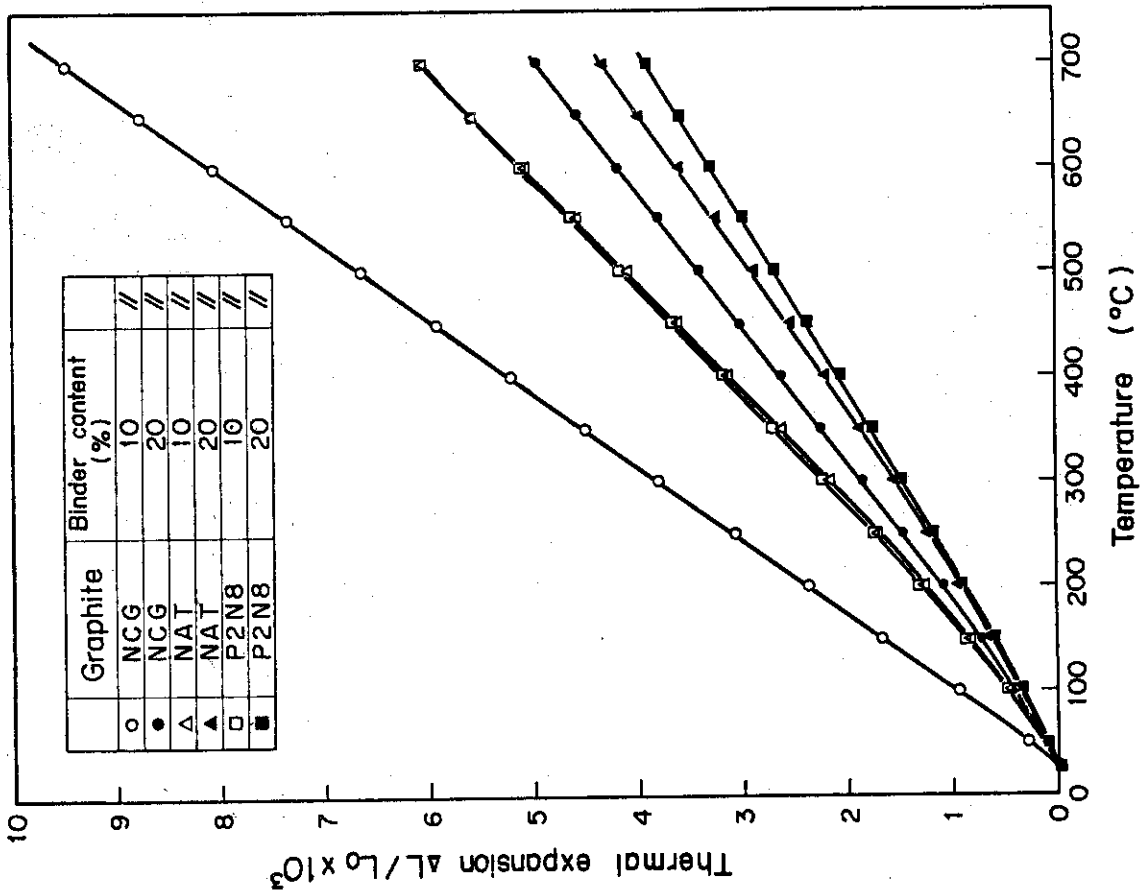


Fig. 5 Thermal expansion of graphite/carbon matrices in parallel direction with forming pressure

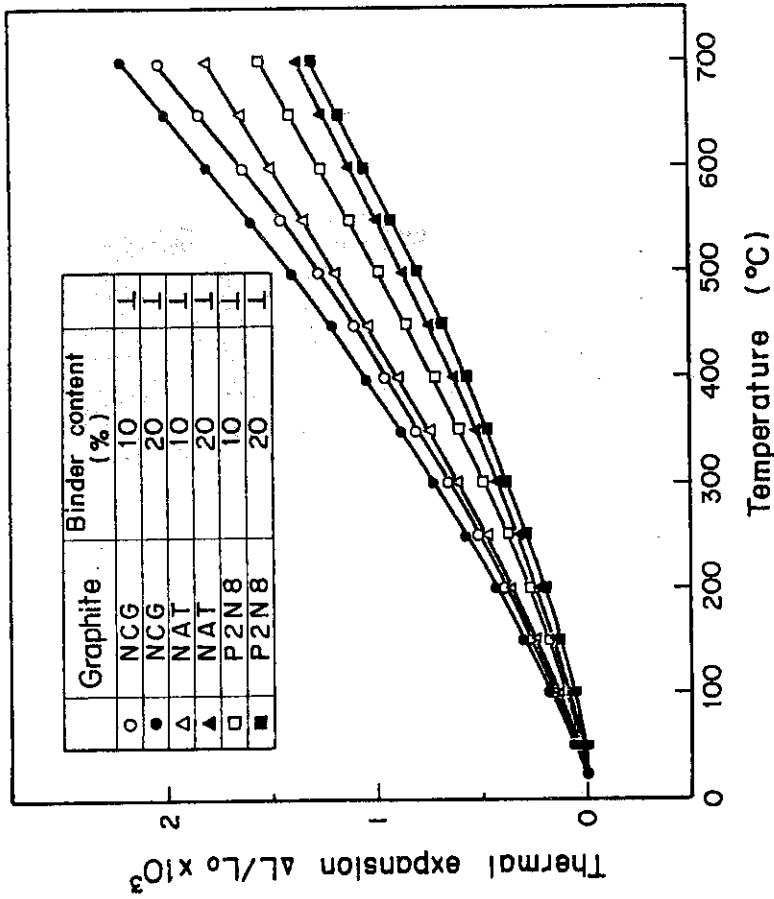


Fig. 6 Thermal expansion of graphite/carbon matrices in perpendicular direction to forming pressure

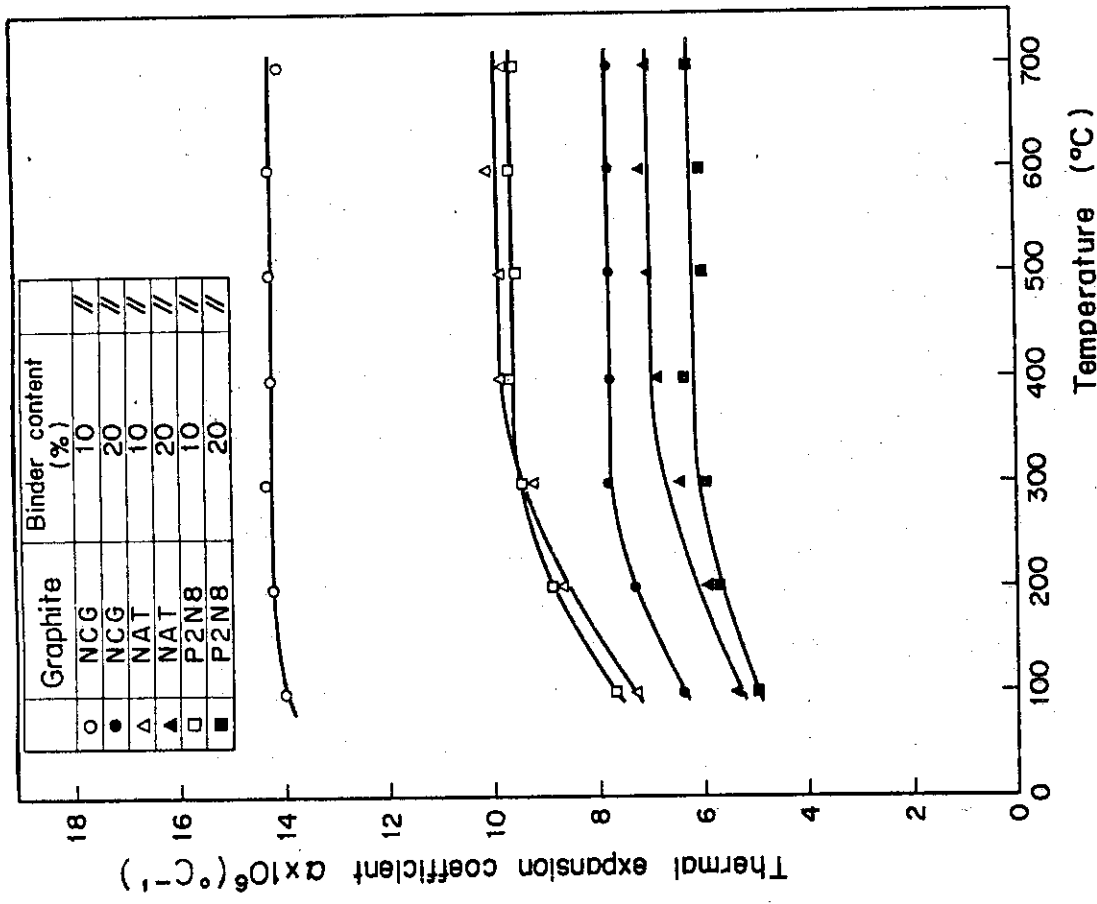


Fig. 7 Thermal expansion coefficient of graphite/carbon matrices in parallel direction with forming pressure

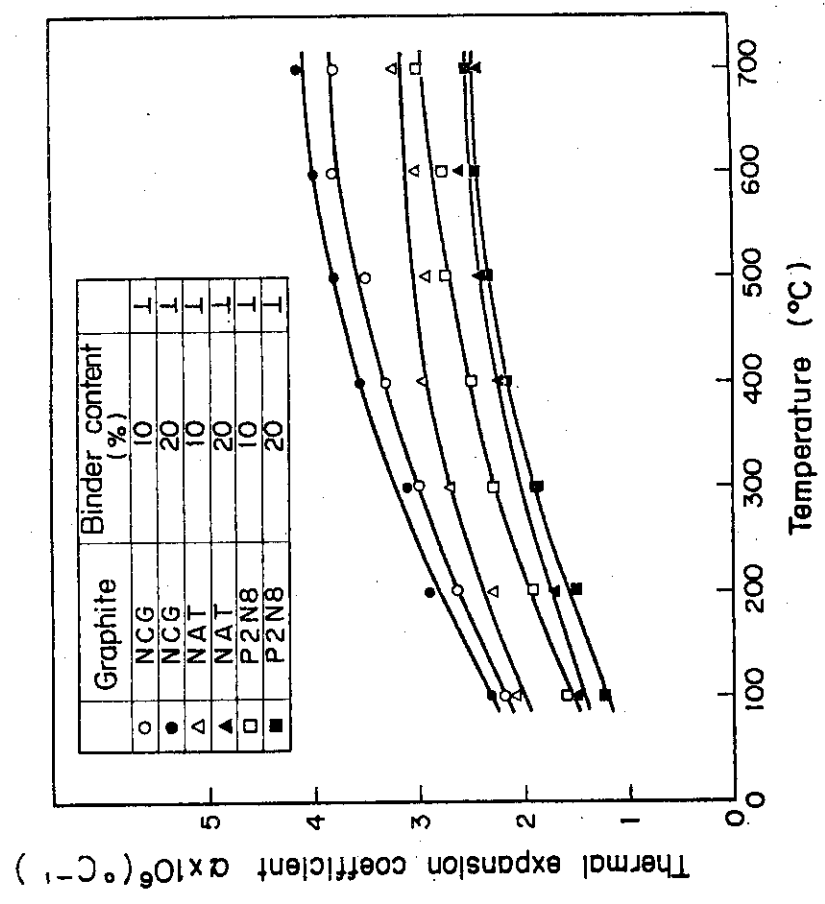


Fig. 8 Thermal expansion coefficient of graphite/carbon matrices in perpendicular direction to forming pressure

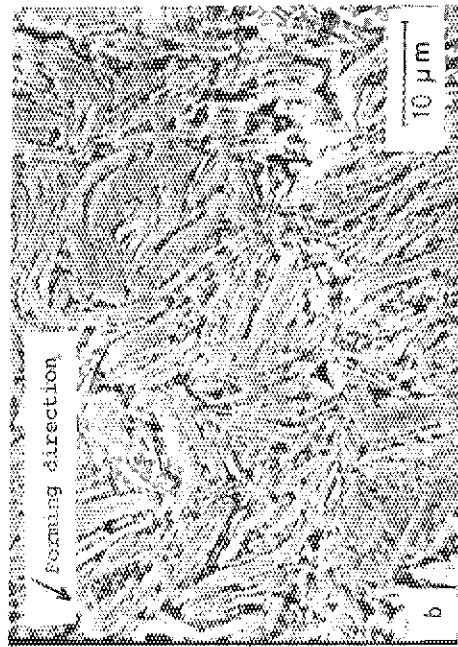
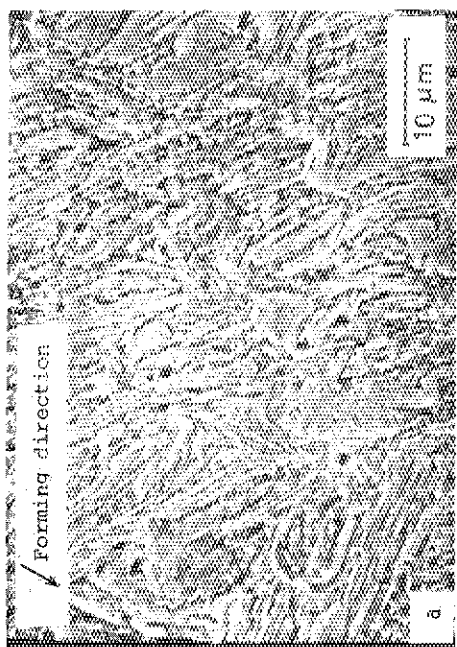


Fig. 10 Scanning electron micrograph of natural graphite/carbon matrices (NAT)  
a) binder 10% b) binder 20%

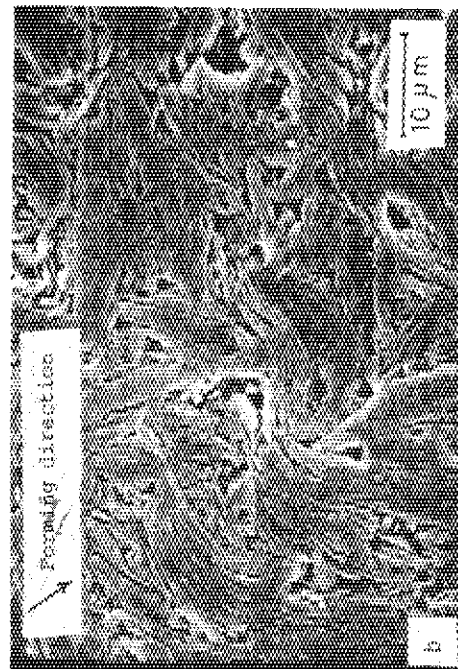
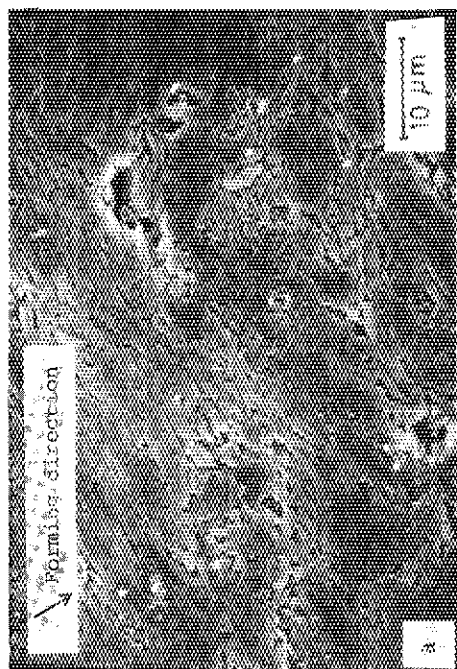


Fig. 9 Scanning electron micrograph of needle coke graphite/carbon matrices (NCG)  
a) binder 10% b) binder 20%

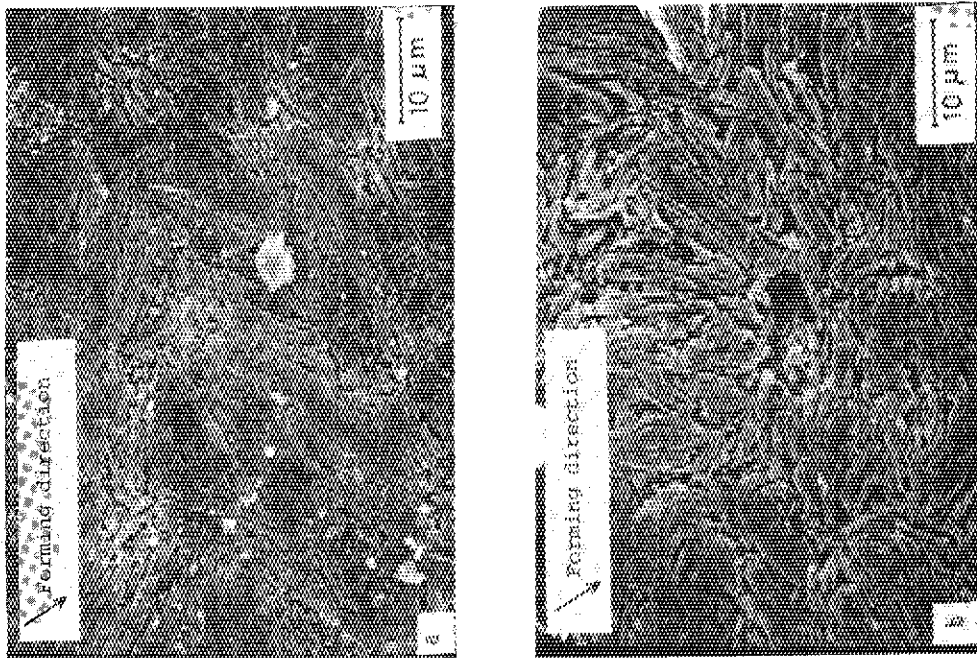


Fig. 11 Scanning electron micrograph of natural graphite-petroleum coke graphite/carbon matrices (P2N8)  
a) binder 10% b) binder 20%

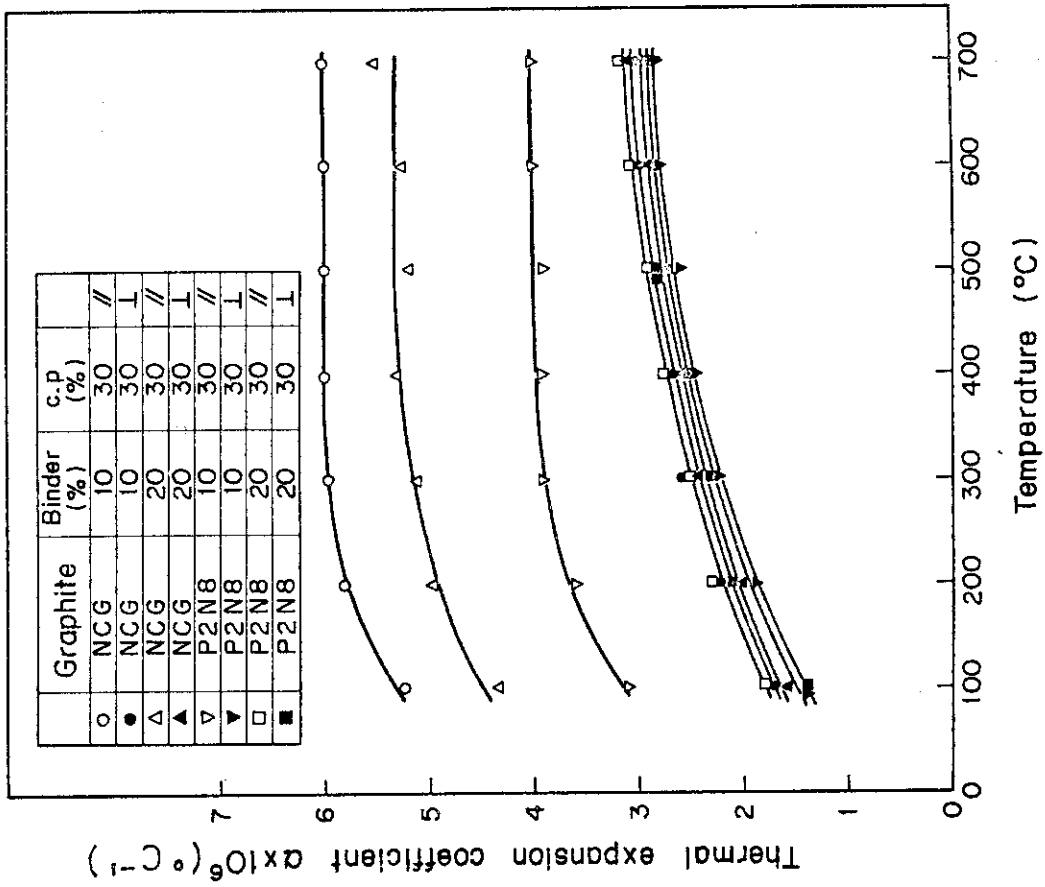


Fig. 13 Thermal expansion coefficient of fuel compacts

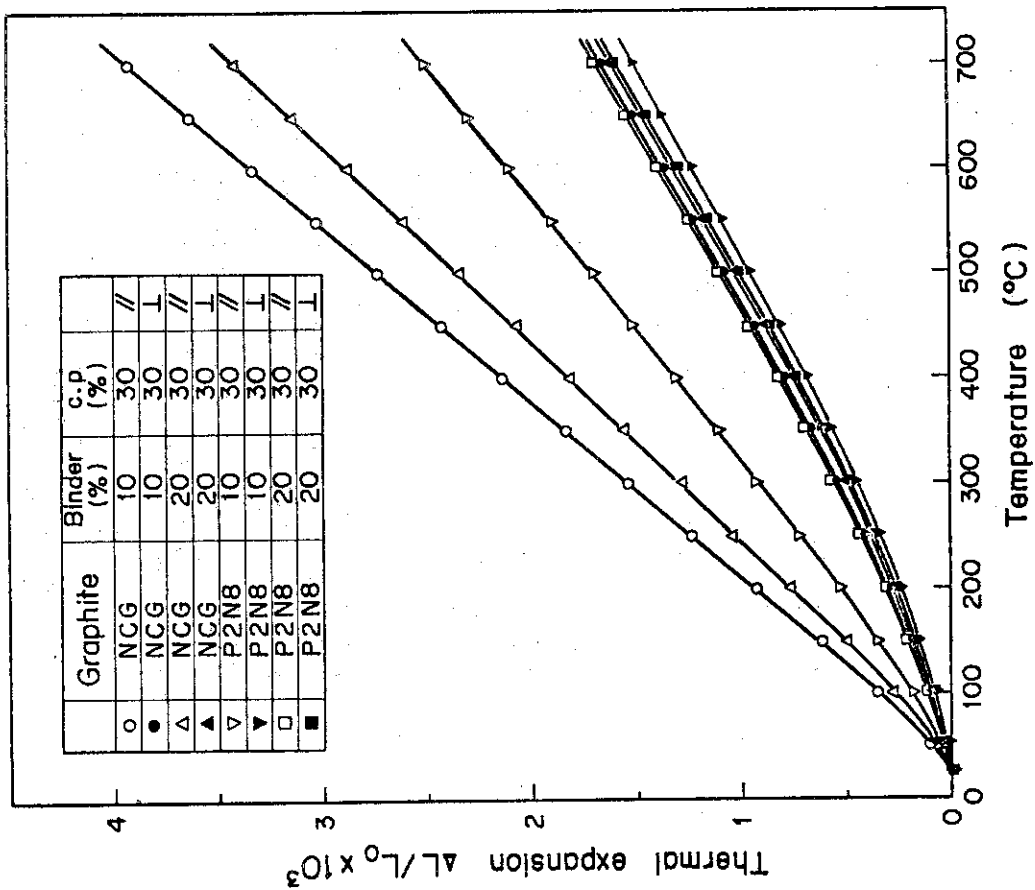


Fig. 12 Thermal expansion of fuel compacts



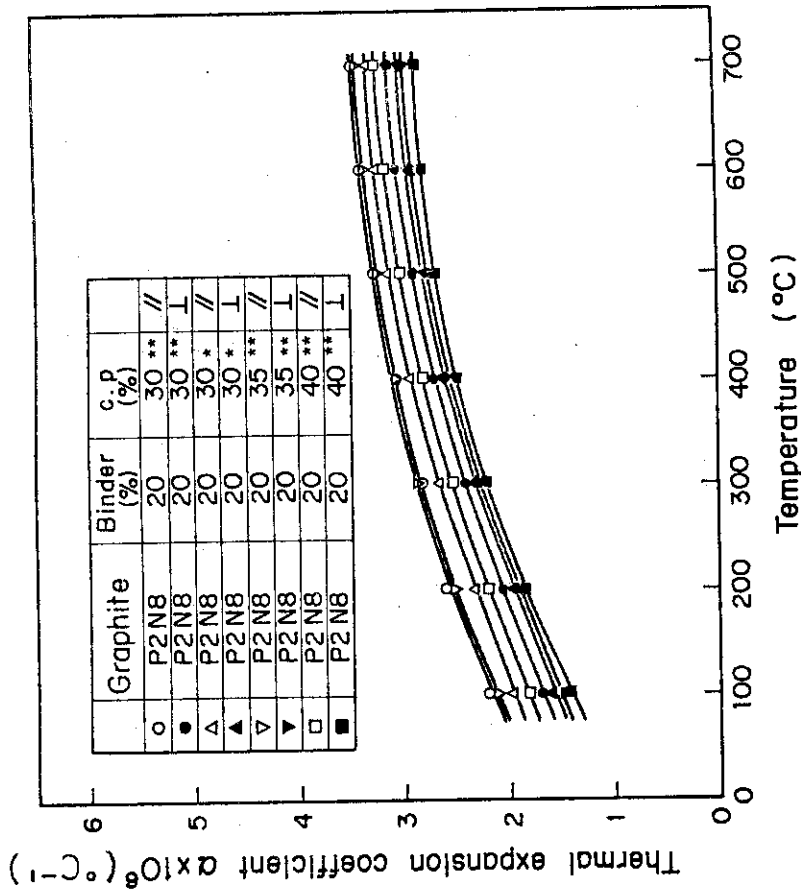


Fig. 15 Thermal expansion coefficient of fuel compacts  
 \* ) coated particle diameter 1120 um  
 \*\* ) coated particle diameter 920 um

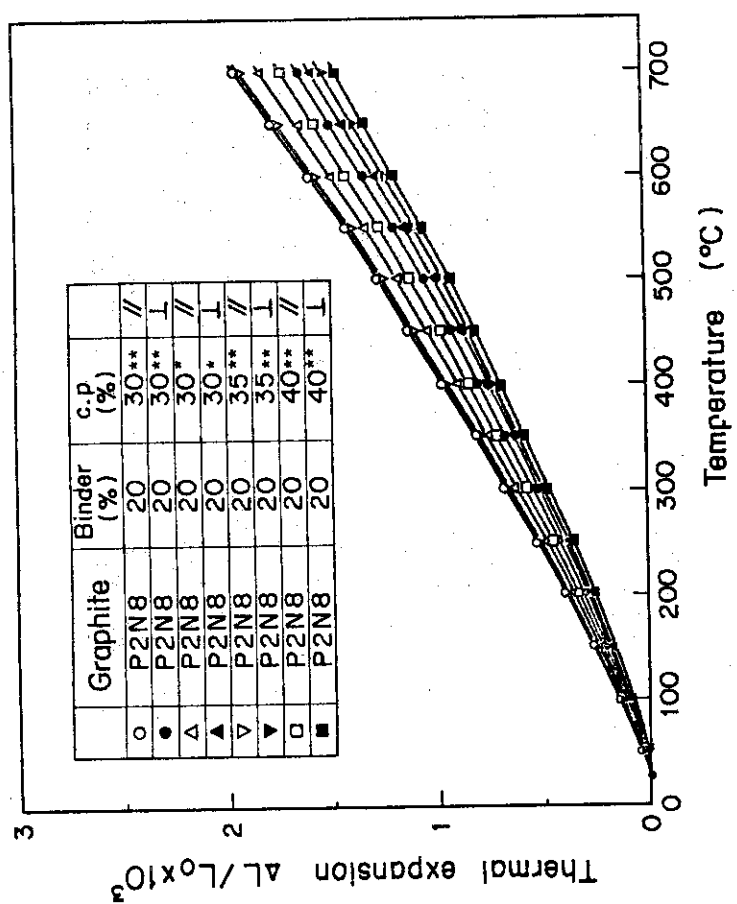


Fig. 14 Thermal expansion of fuel compacts  
 \* ) coated particle diameter 1120 um  
 \*\* ) coated particle diameter 920 um

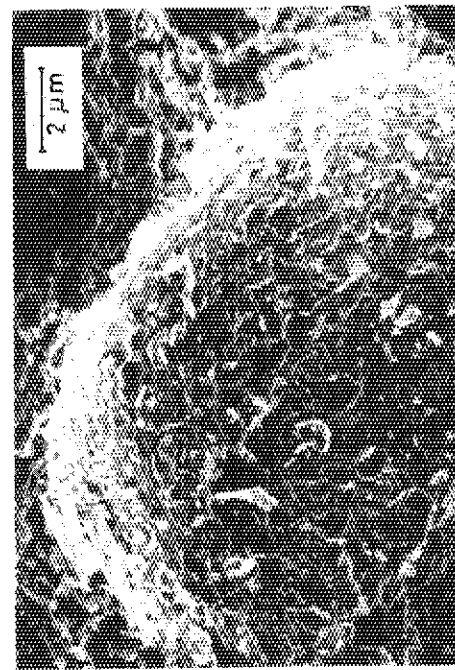


Fig. 16 Scanning electron micrograph of cracked surface of fuel compact of natural and petroleum coke graphite/carbon matrices

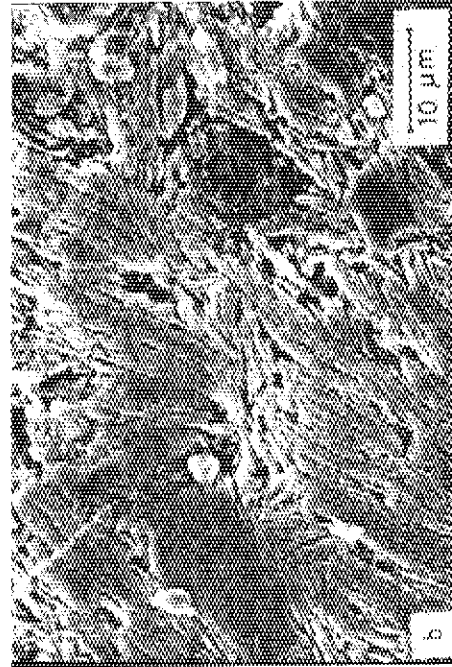
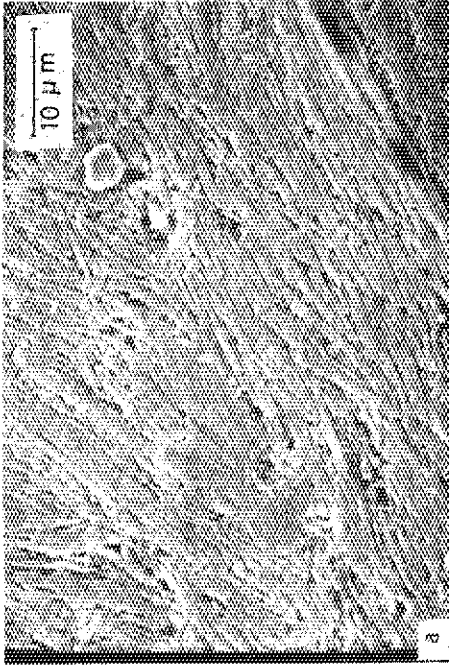


Fig. 17 Scanning electron micrographs of petroleum coke graphite-natural graphite/carbon matrices in fuel compact  
a) binder 10% b) binder 20%

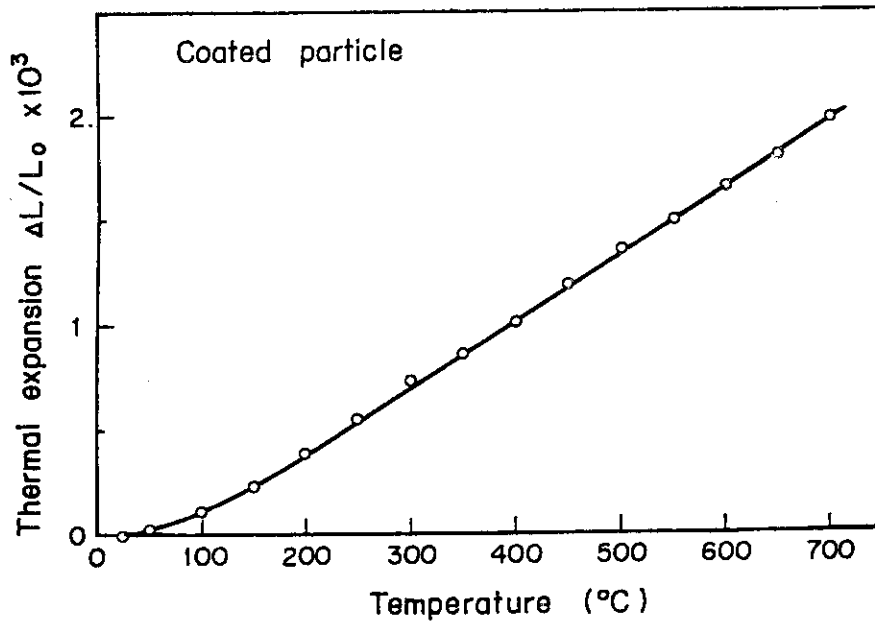


Fig. 18 Thermal expansion of coated particle

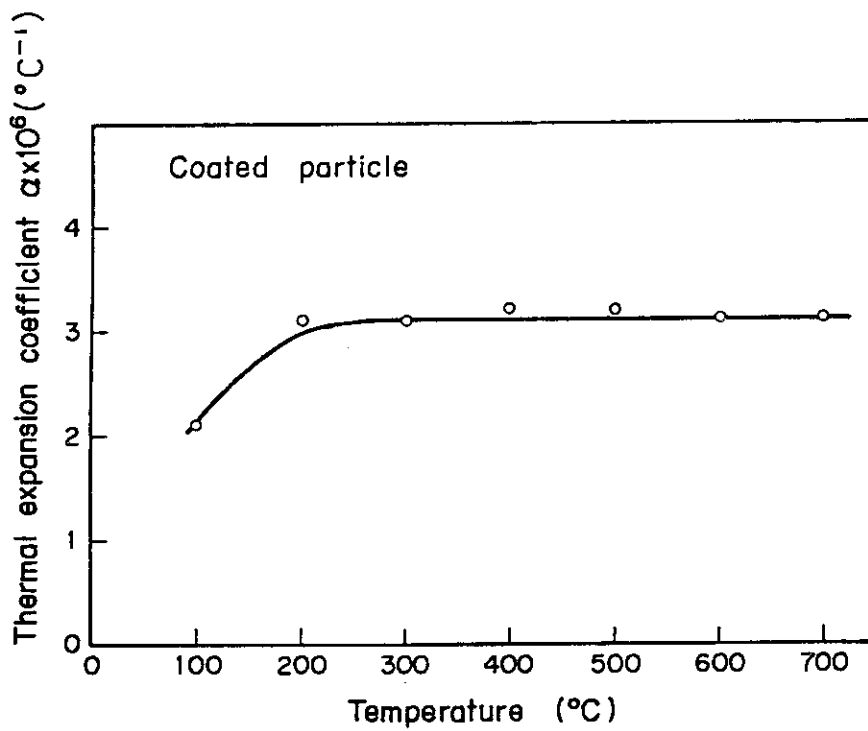


Fig. 19 Thermal expansion coefficient of coated particle