

JAERI-M
91-111

高温工学試験研究炉用被覆燃料粒子の
被覆層の照射応力解析

1991年7月

林 君夫・佐藤 貞夫・豊田 純二・塩沢 周策
沢 和弘・鹿志村 悟*・菊池 輝男・福田 幸朔

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

JAERI-M reports are issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

高温工学試験研究炉用被覆燃料粒子の被覆層の照射応力解析

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⁺・佐藤 貞夫・豊田 純二・塩沢 周策
沢 和弘・鹿志村 悟^{*}・菊池 輝男⁺⁺・福田 幸朔⁺

(1991年6月11日受理)

高温工学試験研究炉 (HTTR) の燃料について、HTTR 運転条件下での照射に伴なう被覆燃料粒子の被覆層応力を MICROS-2 コードを用いて解析した。対象としたのは、標準的な炉心燃料 (A 型燃料)、ならびに試験燃料体として装荷する予定の改良型 SiC 被覆粒子燃料 (B-1 型燃料) および ZrC 被覆粒子燃料 (B-2 型燃料) である。

B-1 型燃料では、A 型燃料に比べて第 1 層 (低密度熱分解炭素層) および第 3 層 (SiC 層) を厚くしているため、被覆層の応力は緩和される。そして、A 型燃料に比べて第 4 層を若干薄くしていることは、被覆層の応力には殆ど影響がないことが示された。B-2 型燃料については、解析条件の範囲内では、SiC 層の場合と同様に ZrC 層の照射寸法変化は無視できるとの仮定のもとで、B-1 型燃料の場合と殆ど同一の結果が得られた。

以上の結果は、被覆層の照射応力に対する健全性の点で、B-1 型および B-2 型燃料は A 型燃料に比べてより優れていることを示している。

最後に、燃料挙動解析コードの開発に向けての課題について述べた。

大洗研究所：〒 311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町字新堀 3607

+ 東海研究所燃料・材料工学部

++ 東海研究所ホット試験室

* 核物質管理センター (出向)

Analysis of Irradiation-induced Stresses in Coating Layers of
Coated Fuel Particles for the High Temperature Engineering
Test Reactor (HTTR)

Kimio HAYASHI⁺, Sadao SATO, Junji TOYOTA, Shusaku SHIOZAWA
Kazuhiro SAWA, Satoru KASHIMURA^{*}, Teruo KIKUCHI⁺⁺ and
Kousaku FUKUDA⁺

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

(Received June 11, 1991)

Irradiation-induced stresses in coating layers of coated fuel particles were analyzed by the MICROS-2 code for the fuels of the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) under its operating conditions. The analyses were made on the standard core fuel (A-type) and the test fuels comprising the advanced SiC-coated particle fuel (B-1 type) and the ZrC-coated particle fuel (B-2 type).

For the B-1 type fuel, the stresses were relieved due to the thicker buffer and SiC layers than for the A type fuel. The slightly decreased thickness of the fourth layer for the B-1 type than for the A type fuel had no significant effect on the stresses. As for the B-2 type fuel, almost the same results as for the B-1 type were obtained under an assumption that the ZrC layer as well as the SiC layer undergoes negligible dimension change within the analysis conditions. The obtained results indicated that the B-1 and B-2 type fuels are better

+ Department of Fuels and Materials Research, Tokai Research Establishment

++ Department of Hot Laboratories, Tokai Research Establishment

* Nuclear Material Control Center

than the A type fuel in terms of integrity against the irradiation-induced stresses.

Finally, research subjects for development of the analysis code on the fuel behavior are discussed.

Keywords : Coated Fuel Particle, Irradiation, Stress, Safety Assessment, Dimensional Change, Pyrocarbon, Silicon Carbide, Zirconium Carbide, Failure, HTTR, HTGR

目 次

| | |
|---|----|
| 1. はじめに | 1 |
| 2. 被覆層の機能および被覆層の照射応力の概要 | 2 |
| 3. 被覆層の照射応力解析 | 3 |
| 3.1 炉心燃料 (A型燃料) | 3 |
| 3.2 改良型 SiC 被覆粒子燃料 (B-1 型燃料) | 5 |
| 3.3 ZrC 被覆粒子燃料 (B-2 型燃料) | 6 |
| 4. 検討 | 7 |
| 4.1 内圧の計算値と実測値の比較 | 7 |
| 4.2 本解析における仮定について | 7 |
| 4.3 燃料挙動解析コードの検討 | 9 |
| 4.3.1 解析コードの開発 | 9 |
| 4.3.2 解析コードの検証 | 11 |
| 5. まとめ | 12 |
| 謝辞 | 13 |
| 文献 | 14 |
| 付録 1 MICROS-2 コードの概要 | 22 |
| 付録 2 MICROS-2 コードによる被覆層照射応力解析における 入力データの説明 | 27 |
| 付録 3 X線ラジオグラフィによる照射前後の被覆燃料粒子の寸法変化の測定 | 31 |
| 付録 4 燃料粒子被覆層の破損評価と被覆層応力解析の関連 | 34 |

Contents

| | |
|--|----|
| 1. Introduction | 1 |
| 2. Functions of Coating Layers and Outline of Irradiation-induced Stresses in Coating Layers of Coated Fuel Particles | 2 |
| 3. Analysis of Irradiation-induced Stresses in Coating Layers | 3 |
| 3.1 Core Fuel (A-type Fuel) | 3 |
| 3.2 Advanced SiC-coated Particle Fuel (B-1 Type Fuel) | 5 |
| 3.3 ZrC-coated Particle Fuel (B-2 Type Fuel) | 6 |
| 4. Discussion | 7 |
| 4.1 Comparison between Calculated and Measured Internal Pressures | 7 |
| 4.2 On Assumptions in the Present Analysis | 7 |
| 4.3 Discussion on Fuel Behavior Analysis Code | 9 |
| 4.3.1 Development of Analysis Code | 9 |
| 4.3.2 Validation of Analysis Code | 11 |
| 5. Conclusions | 12 |
| Acknowledgements | 13 |
| References | 13 |
| Appendix 1 Outline of MICROS-2 Code | 22 |
| Appendix 2 Explication of Input Data for MICROS-2 Code Analysis of Irradiation-induced Stresses in Coating layers | 27 |
| Appendix 3 Measurement of Dimensional Change of Coated Fuel Particles by X-ray Radiography before and after Irradiation | 31 |
| Appendix 4 Relationship between Failure Assessment of Coated Fuel Particles and Stress Analyses of Coating Layers | 34 |

1. はじめに

本報告は、現在建設中の高温工学試験研究炉(H T T R)⁽¹⁻³⁾の標準的な炉心燃料であるA型燃料体^(4, 5)、ならびに試験燃料体として装荷を予定している改良型S i C被覆粒子燃料(B-1型燃料)およびZ r C被覆粒子燃料(B-2型燃料)⁽⁶⁾について、被覆燃料粒子の被覆層中の照射応力解析を行った結果について述べたものである。

(1) H T T R燃料の概要

H T T Rで用いる被覆燃料粒子は、燃料核を熱分解炭素等で四重に被覆したものである⁽¹⁻⁶⁾。A型燃料体の被覆層は、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(以下、P y C、第2層)、S i C(第3層)、P y C(第4層)を材料としている。B-1型燃料では、A型燃料体よりも高温、高燃焼度までの使用に耐えるように、被覆燃料粒子の第1層および第3層をA型燃料体の場合に比べて厚くしている。一方、第4層厚さは40 μ mとしており、A型燃料体の場合(45 μ m)より薄くしている。B-2型燃料体では、第3層の材質を炭化ケイ素(S i C)から炭化ジルコニウム(Z r C)に代えていることを除いて、燃料核および被覆層の材質および寸法の仕様は、B-1型燃料体の場合と同一である。各燃料体ごとの被覆層厚さの仕様を以下に示す。

| | A型燃料体 | B-1型燃料体 | B-2型燃料体 |
|------------------------|-------------|-------------|--------------|
| 燃料核(U O ₂) | 600 μ m | 570 μ m | 570 μ m |
| 第1層(低密度熱分解炭素) | 60 μ m | 80 μ m | 80 μ m |
| 第2層(高密度熱分解炭素) | 30 μ m | 30 μ m | 30 μ m |
| 第3層(SiC*またはZrC**) | 25 μ m* | 35 μ m* | 35 μ m** |
| 第4層(高密度熱分解炭素) | 45 μ m | 40 μ m | 40 μ m |
| ----- | | | |
| 被覆燃料粒子直径 | 920 μ m | 940 μ m | 940 μ m |

(2) 本解析の目的

上記のように、A型燃料体の場合と被覆層寸法および材質を変更したB-1型およびB-2型燃料体の被覆燃料粒子について、被覆層の照射応力解析を行い、被覆燃料粒子の健全性について比較検討することが本解析の目的である。また、第4層の厚さの変化に伴う応力状態の変化の傾向を把握することも、本解析の目的としている。なお、本解析では、内圧破損に対する被覆層の健全性の評価を行なうことを主眼としており、そのため、内圧破損に対して保守的な評価となるように解析上の仮定を置いている。

また、照射中の実際の被覆層応力を正確に把握することは極めて困難であるため、本

解析の目標とはしていない。すなわち、本解析の結果を被覆層の破損/非破損の直接的な判定のために用いることは想定していない。破損の判定は、現在のところでは、当該燃料の照射試験によって行わざるを得ないと考えている。

(3) 被覆層応力に関する従来の研究および本解析との比較

被覆燃料粒子の燃焼期間中の被覆層応力の解析としては、ORNLのPradosとGodfray⁽⁷⁾、JulichのBongarz^(8, 9)、GA社のBokrosら⁽¹⁰⁾およびKaae⁽¹¹⁻¹³⁾のものが知られている。日本でも荒井によって上記現象を考慮した解析コードMICROS⁽¹⁴⁾およびMICROS-2⁽¹⁵⁾（付録1参照）が開発されている。

すでに荒井ら⁽¹⁶⁾によって、MICROS-2コードを用いて、多目的高温ガス炉(VHTR、即ち、HTTRへと変更される以前に設計が行われていた高温ガス炉)の被覆燃料粒子の応力解析が行われた。そして、TRISO粒子の各被覆層応力変化の基本的特性が得られるとともに、被覆層破損パターンとして、①低照射量での内側PyC層の引張応力に伴う破損、②高照射量での外側PyC層外表面での引張応力に伴う破損、③高照射量でのSiC層の引張応力による破損、の3種類の存在が明らかにされた。さらに、被覆層の初期材質、照射温度、被覆粒子寸法、現象的不確定さ（初期温度条件、内部気体蓄積率、PyCの照射クリープ現象）、材料物性値等の、被覆層応力への影響が幅広く検討され、上記3種の破損パターンとの係わりが明らかにされた。これらの解析結果は、VHTR燃料仕様の妥当性の検討および健全性評価のバックアップとして活用された。

荒井ら⁽¹⁶⁾の解析では、第2層および第3層として、当時まで用いられていた高温等方性熱分解炭素(HTI-PyC：原料ガスであるメタンの1900℃程度での熱分解による)が採用されている。本報告では、それ以降主流となっている低温熱分解炭素(LTI-PyC：プロピレン等の1400℃程度での熱分解による)を用いる被覆燃料粒子について、解析を行なった。

2. 被覆層の機能および被覆層の照射応力の概要

(1) 被覆層の機能^(3, 4)

各被覆層は以下に示す機能を有し、全体として、燃料核で発生する核分裂生成物(FP)の放出を防止する。

低密度熱分解炭素層(バッファ層、第1層)は、燃料核表面から核分裂により飛び出した核分裂片を受け止め、外側の高密度熱分解炭素層(第2層)の損傷を防ぐとともに、気体状のFPおよび一酸化炭素ガスを閉じ込めるための空間を提供し、燃料核のスウェリングを吸収する機能を有する。

第2層のPyC層は、希ガス(Kr, Xe)およびヨウ素FPを保持する能力を有する。

SiC層およびZrC層(第3層)は、希ガスおよびヨウ素FP、ならびに金属FPに

解析の目標とはしていない。すなわち、本解析の結果を被覆層の破損/非破損の直接的な判定のために用いることは想定していない。破損の判定は、現在のところでは、当該燃料の照射試験によって行わざるを得ないと考えている。

(3) 被覆層応力に関する従来の研究および本解析との比較

被覆燃料粒子の燃焼期間中の被覆層応力の解析としては、ORNLのPradosとGodfray⁽⁷⁾、JulichのBongarz^(8, 9)、GA社のBokrosら⁽¹⁰⁾およびKaae⁽¹¹⁻¹³⁾のものが知られている。日本でも荒井によって上記現象を考慮した解析コードMICROS⁽¹⁴⁾およびMICROS-2⁽¹⁵⁾（付録1参照）が開発されている。

すでに荒井ら⁽¹⁶⁾によって、MICROS-2コードを用いて、多目的高温ガス炉(VHTR、即ち、HTTRへと変更される以前に設計が行われていた高温ガス炉)の被覆燃料粒子の応力解析が行われた。そして、TRISO粒子の各被覆層応力変化の基本的特性が得られるとともに、被覆層破損パターンとして、①低照射量での内側PyC層の引張応力に伴う破損、②高照射量での外側PyC層外表面での引張応力に伴う破損、③高照射量でのSiC層の引張応力による破損、の3種類の存在が明らかにされた。さらに、被覆層の初期材質、照射温度、被覆粒子寸法、現象的不確定さ（初期温度条件、内部気体蓄積率、PyCの照射クリープ現象）、材料物性値等の、被覆層応力への影響が幅広く検討され、上記3種の破損パターンとの係わりが明らかにされた。これらの解析結果は、VHTR燃料仕様の妥当性の検討および健全性評価のバックアップとして活用された。

荒井ら⁽¹⁶⁾の解析では、第2層および第3層として、当時まで用いられていた高温等方性熱分解炭素(HTI-PyC：原料ガスであるメタンの1900℃程度での熱分解による)が採用されている。本報告では、それ以降主流となっている低温熱分解炭素(LTI-PyC：プロピレン等の1400℃程度での熱分解による)を用いる被覆燃料粒子について、解析を行なった。

2. 被覆層の機能および被覆層の照射応力の概要

(1) 被覆層の機能^(3, 4)

各被覆層は以下に示す機能を有し、全体として、燃料核で発生する核分裂生成物(FP)の放出を防止する。

低密度熱分解炭素層(バッファ層、第1層)は、燃料核表面から核分裂により飛び出した核分裂片を受け止め、外側の高密度熱分解炭素層(第2層)の損傷を防ぐとともに、気体状のFPおよび一酸化炭素ガスを閉じ込めるための空間を提供し、燃料核のスウェリングを吸収する機能を有する。

第2層のPyC層は、希ガス(Kr, Xe)およびヨウ素FPを保持する能力を有する。

SiC層およびZrC層(第3層)は、希ガスおよびヨウ素FP、ならびに金属FPに

対して優れた保持能力を有する。さらに、最外PyC層(第4層)の照射収縮による締め付け効果とあいまって、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PyC層(第4層)は、

- ①希ガスおよびヨウ素FPを保持する能力を持つ、
- ②高温照射中に収縮することにより外部からSiC層又はZrC層を締め付け、SiC層または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防止する、
- ③燃料取扱い中のSiC層の破損を防ぐ、

という機能を有している。

(2) 被覆層の照射応力の概要

高密度熱分解炭素は、無拘束状態では高速中性子の照射によって、Fig.1⁽¹⁷⁾に示すような寸法変化(HTTR条件下では収縮)を生じる。しかし、Fig.2^(18, 19)に示すように、被覆燃料粒子中ではSiCの照射寸法変化が小さいため、第4層の高密度熱分解炭素はSiC層による拘束を受け、その収縮率は無拘束の場合よりは小さくなる。すなわち、第4層は、SiC層の拘束により、周方向に引張応力を受けることになる。逆に、SiC層は第4層の収縮によって周方向に圧縮応力を受ける。すなわち、第4層に締め付けられることになる。

3. 被覆層の照射応力解析

3.1 炉心燃料(A型燃料)

(1) 解析条件

A型燃料体について、定格運転(冷却材出口温度 850℃)を660日続けた場合の計算を行った。計算条件は以下のとおりである。

- 燃料温度 : 1,340 °C
- 最大燃焼度 : 33,000 MWd/t
- 最大高速中性子照射量 : $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)

温度としては、HTTRの安全評価において工学的安全係数を全て1とした燃料最高温度(ノミナル温度)⁽²⁰⁾を参考として用いた。高速中性子照射量は、燃料体平均の最大値は $1.2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)であるが、燃料体内の分布を考慮して多めに見積もった値である⁽²¹⁾。

本解析に用いた条件をTable 1に示す。本解析に最も大きな影響を及ぼす照射寸法変化の入力データとその設定根拠について、以下に示す。このほかの入力データの設定根拠については、付録2にまとめて示す。

a) PyCの照射寸法変化

Fig.1に示したデータのうち1300℃のものを用い、蒸着面に対して平行方向と垂直方向の平均(算術平均)を求めて入力データとした。これは、被覆燃料粒子の場合、PyC層の結晶配向性は、光学的異方性因子(OPTAF)によって、その仕様が規定され

対して優れた保持能力を有する。さらに、最外PyC層(第4層)の照射収縮による締め付け効果とあいまって、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PyC層(第4層)は、

- ①希ガスおよびヨウ素FPを保持する能力を持つ、
- ②高温照射中に収縮することにより外部からSiC層又はZrC層を締め付け、SiC層または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防止する、
- ③燃料取扱い中のSiC層の破損を防ぐ、

という機能を有している。

(2) 被覆層の照射応力の概要

高密度熱分解炭素は、無拘束状態では高速中性子の照射によって、Fig.1⁽¹⁷⁾に示すような寸法変化(HTTR条件下では収縮)を生じる。しかし、Fig.2^(18, 19)に示すように、被覆燃料粒子中ではSiCの照射寸法変化が小さいため、第4層の高密度熱分解炭素はSiC層による拘束を受け、その収縮率は無拘束の場合よりは小さくなる。すなわち、第4層は、SiC層の拘束により、周方向に引張応力を受けることになる。逆に、SiC層は第4層の収縮によって周方向に圧縮応力を受ける。すなわち、第4層に締め付けられることになる。

3. 被覆層の照射応力解析

3.1 炉心燃料(A型燃料)

(1) 解析条件

A型燃料体について、定格運転(冷却材出口温度 850°C)を660日続けた場合の計算を行った。計算条件は以下のとおりである。

- 燃料温度 : 1,340 °C
- 最大燃焼度 : 33,000 MWd/t
- 最大高速中性子照射量 : $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)

温度としては、HTTRの安全評価において工学的安全係数を全て1とした燃料最高温度(ノミナル温度)⁽²⁰⁾を参考として用いた。高速中性子照射量は、燃料体平均の最大値は $1.2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)であるが、燃料体内の分布を考慮して多めに見積もった値である⁽²¹⁾。

本解析に用いた条件をTable 1に示す。本解析に最も大きな影響を及ぼす照射寸法変化の入力データとその設定根拠について、以下に示す。このほかの入力データの設定根拠については、付録2にまとめて示す。

a) PyCの照射寸法変化

Fig.1に示したデータのうち1300°Cのものを用い、蒸着面に対して平行方向と垂直方向の平均(算術平均)を求めて入力データとした。これは、被覆燃料粒子の場合、PyC層の結晶配向性は、光学的異方性因子(OPTAF)によって、その仕様が規定され

ており、等方性の良いもの ($OPTAF < 1.03$) が用いられるため、寸法変化はほぼ等方的であるとみなしうるからである。ただし、上記のHTTR照射量範囲では、両方向の寸法変化はほぼ一致する (Fig.1参照) ため、実際的には両者の差を考慮する必要はない。

b) SiC層の照射寸法変化

照射寸法変化は無視できると仮定した。Fig.2に示したように、SiC層の照射寸法変化は、HTTR最大高速中性子照射量 (上記の大きめに見積もった値) に対して、上記運転条件の燃料温度 (1340℃) に最も近い1200℃において、0.2%程度と極くわずかであり、PyCの照射寸法変化に比べると殆ど無視できる。また、付録3に示すように、照射前後のX線ラジオグラフィによる寸法測定においても、有意な寸法変化は見られていない。以上のことから、上の仮定は妥当である (4.2節の(3)参照)。

(2) 被覆層応力の解析結果

Fig.3にA型燃料体の被覆燃料粒子についての解析結果を示す。本解析の燃焼度と高速中性子照射量の範囲では、被覆層の最大応力は何れも円周方向の応力である。本図では、最大応力の発生している内表面の応力を示している。

第2層のPyC層の応力は、照射初期には熱応力によって圧縮状態にある (図中P₁点)。これは被覆層の蒸着温度と照射温度の差に起因する熱ひずみ (熱膨張) によるものである。熱ひずみは、PyCのほうがSiCよりも大きいため、PyCのひずみ (熱膨張) がSiCによって拘束されて、PyCには圧縮応力が働く。照射が進むと急激に引張応力状態に変る。この引張応力は、2章の(2)に述べたように無拘束状態の照射寸法変化 (収縮) がPyCで大きく、SiCはほとんど寸法変化しないため、SiCの拘束を受けてPyCの照射収縮が抑制されるために発生するものである。しかし、照射量の増大と共にPyC層の照射クリープの効果が次第に飽和することによって、引張応力は最大値の約2,500kg/cm² (P₂点) に達した後は緩やかに減少する (P₃点)。

第4層のPyC層の発生応力は、主として形状効果により第2層のそれよりもやや小さいが、照射量に伴う変化は第2層のそれとほぼ同じである。

第3層のSiC層の応力は、上述のPyCと反対に、初期にはPyCの熱ひずみに引張られて引張応力状態にある (S₁点) が、PyCの照射収縮により内面に引張圧力、外面に圧縮圧力を受けるために著しい圧縮応力状態となる (S₂点)。しかし、照射が進行するに伴って、照射クリープ効果による外面の接触圧力の減少、ならびに内圧の上昇等による接触圧力の減少によって、圧縮圧力は軽減されてゆく (S₃点)。

以上の解析結果は、荒井らによって高温等方性熱分解炭素 (HTI-PyC) を用いる被覆燃料粒子についての解析結果⁽¹⁶⁾と、傾向的に一致するものである。ただし、本解析は、HTTR燃料条件についてのものであり、荒井らによるVHTR条件下での解析とは、定量的には当然異なっている。

なお、本解析の結果において、被覆層の周方向および径方向の荷重が、第2層および第4層 (引張荷重) と第3層 (圧縮荷重) で釣り合うことは、解析結果を用いて確認 (検算) している。

(3) 第4層厚さの変化の効果

Fig.3に示したように、第4層厚さをパラメータ的に変化させても、第2層および第3層の応力状態は大きくは変化しない。そして、第4層の厚さをゼロとしても、SiC層には圧縮応力が生じている。これは、本解析においては、第2層とSiC層の間に十分大きな結合力が働くと仮定しているためである。この仮定の妥当性については、4.2節で検討する。

(4) 強度データの実験値

P y Cの引張破壊強度データは入手していない。ただし、A型燃料体と同一仕様の被覆燃料粒子の照射試験において、第2層および第4層の引張応力が最大となる燃焼度および高速中性子照射量以上の照射を行った被覆燃料粒子について有意な破損率の増加は観察されていない⁽⁵⁾。このことから、実際に被覆層に発生する応力は、破壊強度には達していないと判断することができる。

一方、蒸着SiCの圧縮破壊強度データも入手してはいないが、4点曲げ破壊強度としては、7,000~10,000kg/cm²というデータが得られている⁽²²⁾。セラミック材料の一般的性質から見て、SiCの場合にも圧縮破壊強度が曲げ破壊強度より高いことは確実であり、図に示した最大圧縮応力は圧縮破壊強度より小さい値であると言える。また、P y Cの場合と同様に、照射試験において有意なSiC層の破損は観察されていないことから、実際の照射中にSiC層に生じる圧縮応力はSiC層の破壊強度に達していないと言える。

(5) 被覆層破損の実測結果との比較

A型燃料については、現在まで、①照射初期における内側P y C層の引張り応力による破損、は見られていない。そのかわりに、2層と3層の剥がれが時折観察されることがある。これは、P y C層の照射に伴う寸法収縮によるものであると思われる。このP y C層とSiC層の間の結合力についての検討が必要である。

これら以外の、②高燃焼度での外側P y C層外面での引張り応力に伴う破損、及び③高燃焼度でのSiC層の引張り応力による破損、については、現在までのA型燃料の照射試験においては観察されていない。

なお、照射後の断面組織観察においては、第4層にクラックが観察されるのに、被覆粒子のX線ラジオグラフィにおいてはクラックが観察されないことがしばしばある。これは、断面組織観察のための研磨に伴って、被覆層の応力状態が研磨前の粒子の場合とは変化するために生じるものであり、照射中に生じたものではないと判断できる。

3.2 改良型SiC被覆粒子燃料(B-1型燃料)

以下の照射条件を設定して解析した。

- 燃料温度 : 1,300 °C
- 最大燃焼度 : 33,000 MWd/t
- 最大高速中性子照射量 : $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)

計算条件としては、被覆層の厚さを変えたが、照射条件はA型燃料体の場合と燃料温度を除いて同一である。燃料温度については、A型燃料体が高温試験運転（原子炉冷却材出口温度950℃の運転）にも用いるのに対して、B-1型燃料体は、高温試験運転には用いず、定格運転（同850の運転）にしか用いないため、燃料最高温度はA型燃料体の場合より低い値である。

B-1型燃料についての同様の計算結果をFig.4に示す。

(1) B-1型燃料の第4層厚さの影響

Fig.4から分かるように、第4層の厚さが厚いほど、SiC層に働く圧縮応力は大きくなる。また、燃焼度の増加に伴って一般に内圧が上昇するが、第4層の厚さが厚いほどSiC層に働く応力が引張応力側に転じにくくなる。SiC層の破損は、引張応力がある限界値に達した時に生じると考えられるので、このことは、第4層が厚いほど被覆層の破損が生じにくくなることを示している。

しかし、第4層の厚さが40 μ mの場合と、例えば45 μ mの場合を比較すると、いずれも、SiC層の応力は燃焼末期(33,000Mwd/t)において引張応力側には転じていない。SiC層に働く応力は殆ど変わらない。このことから見て、B-1型燃料体のHTTR照射条件(660日照射、最大燃焼度約33,000Mwd/t、最大高速中性子照射量約 $1.5 \times 10^{21}n/cm^2$ 、 $E > 0.18MeV$)では、第4層の厚さを45 μ mから40 μ mとしても、被覆層の応力状態は殆ど変わらないと言える。

(2) A型燃料体の結果との比較

また、A型燃料体およびB-1型燃料体の計算結果を比較したものをFig.5に示す。この図において、A型燃料体の場合の結果と比べると、第2層および第4層の引張応力はほぼ同様であるが、第3層の圧縮応力はB-1型の方が小さくなっている。これは、第2層および第4層の厚さはA型とB-1型でほぼ同じであり、これら第2層および第4層は、A型およびB-1型燃料体のいずれの場合も殆ど寸法変化しないSiC層の拘束を受け、両燃料体で同様な引張応力が生じる。一方、SiC層の応力については、第2層および第4層の照射収縮によりSiC層に働く圧縮荷重は両燃料体でほぼ同じとなるが、SiC層の厚さがB-1型で35 μ m、A型で25 μ mとB-1型の方が厚いため、圧縮荷重を断面積で除した応力としてはB-1型の方が小さくなるためである。

3.3 ZrC被覆粒子燃料(B-2型燃料)

B-2型燃料体の仕様のZrC被覆燃料粒子について、同様の計算を行った。計算条件はZrCの物性データ(付録2参照)を除いて、B-1型と同一である。

計算結果をFig.6に示す。B-1型燃料体の場合とほぼ同一の応力状態である。その理由は、

- ① B-1型とB-2型の被覆燃料粒子の寸法仕様が同一である、
 - ② SiC、ZrCともに照射寸法変化が生じないものとして取り扱っている、
- このためである。②の仮定の妥当性については、4.2節に述べる。

4. 検討

4.1 内圧の計算値と実測値の比較

(1) 内圧の測定データ

被覆燃料粒子中の気体FPおよびCOガスの圧力は、菊池ら^(23, 24)およびHorsleyら^(25, 26)が測定している。

菊池らの測定に用いられた被覆燃料粒子は、HTTR用A型燃料の被覆燃料粒子である。A型燃料の最大燃焼度に近い燃焼度(約3%FI MA)まで照射された燃料(5次OGL-1燃料体、燃料コンパクト名790P-52)を含めて、得られた内圧測定結果は室温においていずれも4 kg/cm²以下であった^(23, 24)。

(2) 解析値と実測値の比較

3.1節に示したA型燃料についての解析においては、気体FPが燃料核中から全て放出されると保守的に仮定した時の被覆燃料粒子の内圧解析値は温度1,400℃、燃焼度33,000MWd/tにおいて約200kg/cm²であった。この解析値と上記の菊池らの内圧実測値との差の理由は、実験データが室温での圧力であることのほかに、生成した気体FPの大部分が燃料核中に保持され、内圧に寄与する割合が小さいことによると考えられる。

(3) 内圧上昇に伴う破損について

一般に、被覆層が内圧破損する恐れがあるのは、燃焼度の増加に伴うFPの蓄積により内圧が高くなった場合である。3.1節の解析の場合(内圧約200kg/cm²)でも、SiC層に作用する応力は圧縮応力である。このため、SiC層の機械的破損は生じず、従って内圧による燃料粒子被覆層の破損は生じないと判断できる。

HTTRに使用する燃料の照射試験においては、燃焼度43,000MWd/tの密封キャプセル照射についても照射後の破損率は 6.6×10^{-4} であり、内圧破損によるものを含めて有意な破損率の増加は見られていない(文献(5)の第3.3.3項参照)。また、これまでの通常運転時を模擬したHTTR燃料に関する実験において、燃料コンパクトの断面組織などで健全粒子が内圧によって破損したと思われる例は見い出されていない。

4.2 本解析における仮定について

本解析では、被覆層の内圧破損の観点からは保守的になるように仮定を設けている。

(1) FPガス放出率

燃料核中で生じる希ガスFP(Kr, Xe等)は燃料核にまったく保持されず、第1層の空隙(開気孔)中に移行して被覆層に対する内圧として働くと仮定している。

(2) バッファ層の取り扱い

被覆燃料粒子の第1層は緩衝層(バッファ層)であり、本解析では機械的強度を持たな

いものと仮定している。

燃料核のスエリングによって、被覆層が内側から応力を受けると考える場合には、この仮定は、被覆層周方向の引張り応力を過小評価することになる。しかし、実際には、

- ①照射に伴って、燃料核は初期には焼きしまり(densification)をおこして収縮し、燃焼が進んで初めてスエリングに転じることと、バッファ層自体が照射寸法収縮をおこすことから、燃料核とバッファ層の機械的相互作用自体が極めて高燃焼度の際にのみ生じると考えられる、
- ②バッファ層は、(SiC層、ZrC層は勿論)PyC層に比べて強度が小さいうえに多孔質であるため、仮にバッファ層に荷重が加わったとしても、PyC層が破損する前に、バッファ層が破損し、かつ、亀裂はバッファ層内にとどまることが期待できる、

という理由から、バッファ層が機械的強度を持たないとする仮定は、HTTR燃料の運転条件、すなわち、1300℃程度の温度と33,000 MWd/tという比較的低い燃焼度では、十分妥当なものである。

(3) SiC層およびZrC層の照射寸法変化

A型燃料の被覆燃料粒子の照射前後の寸法変化をX線ラジオグラフィで調べた結果を付録3に示す。推定燃焼度約7%FIMA、高速中性子照射量 $2.2 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)まで照射された被覆燃料粒子について、照射前後のSiC層外径の寸法変化は、全て±0.5%以内であり、殆どが±0.25%以内であった。この結果は、SiC層には有意な寸法変化が生じていないことを示している。

本解析においては、SiC層の寸法変化は生じないと仮定しているが、上記の測定結果は、この仮定が妥当であることを示している。なお、この仮定は、SiC層に対する内圧による引張効果を大きめに見積もることになる。

ZrC層についての照射寸法変化についての実測データは入手していない。しかし、ZrCの照射寸法変化はわずかに膨張側であると予想され、熱分解炭素のような大きな照射収縮を示すことは考え難い。従って、上記のSiC層の場合と同様に、寸法変化を無視することは内圧による被覆層の破損の観点からは保守的な仮定である。

(4) 第2層と第3層間の結合力

本解析においては、第2層とSiC層の間に十分大きな結合力が働くと仮定している。

被覆燃料粒子の製造過程では、第2層まで蒸着した粒子に第3層のSiCを蒸着する際に、熱分解炭素層の炭素とSiC層のSiの間に化学結合が生じ、その界面に結合力が発生する。そして、照射によって第2層が収縮すると、両層間の結合力によりSiC層の周方向に圧縮応力が生じる。

HTTRのA型燃料体の運転条件を満たす照射試験において、照射後燃料断面組織観察の際に、第2層と第3層間に剝離が生じることは、通常、観察されてない⁽⁵⁾。このことから、両層の結合力は実際の照射応力条件では剝離をおこさない程度に十分大きいものと考えられることができる。

なお、両層間の結合力は実測しにくいものである。結合力の推定には、例えば、第3

層まで被覆した粒子の照射や、薄層（平板状）に被覆した被覆層の高温照射後の測定等が有効であると思われる。

(5) 被覆燃料粒子の外圧

燃料コンパクトの黒鉛マトリックスによる被覆燃料粒子への荷重は働かないとしている。すなわち、被覆燃料粒子の外圧はゼロとしている。このことは、被覆層の内圧破損の観点からは保守的な仮定である。

一方、被覆燃料粒子全体の寸法収縮を考える場合には、上の仮定はP y C層の周方向の引張り応力を過小評価することになる。しかし、実際には、S i C、Z r CとP y Cの寸法変化、強度の関係から、被覆燃料粒子全体が有意な照射寸法収縮をおこすことは考えられない。従って、結局、外圧ゼロの仮定は、内圧破損の可能性を大きめに評価する効果のみを持つ。

4.3 燃料挙動解析コードの検討

4.3.1 解析コードの開発

今後の課題として、本解析に用いたMICROS-2コードをもとにして、過渡運転時及び事故時の被覆燃料粒子破損を予測する燃料挙動解析コードを開発することが考えられる。以下に、燃料挙動解析コードの開発にあたって、現在のMICROS-2コードの機能に加えて新たに考慮すべき項目について述べる。

[A] 通常運転時の挙動

1) 照射に伴う劣化の効果

- a) S i C / F P (特にパラジウム) 反応による劣化^(27, 28)
- b) 燃料核移動によるバッファ層およびI - P y C層の浸食⁽²⁹⁾
- c) C Oガスによる被覆層腐食効果^(30, 31)

(燃料核移動等によりI - P y CのC Oガス保持性能が失われた場合)

- d) F P、C Oガス圧のより精度の良い評価

高温照射下クリープの評価

2) 製造時の品質のバラツキ

バッファ層厚さおよび密度のバラツキ (内圧のバラツキの原因となる)

P y CおよびS i C被覆層強度特性 (ヤング率、破壊強度等) のバラツキ

(厚さおよび密度のバラツキに起因する)

真球度のバラツキ

(被覆層応力分布の非対称性のモデル化が必要)

3) 被覆層の強度に関する破壊力学的考察

[B] 異常時挙動

[A] に示した通常運転による劣化の効果に加えて、考慮すべき項目

1) 運転時の異常な過渡変化に伴う燃料物性の変化

許容設計限界 (現在は1600℃) 以下の温度での強度特性の劣化

2) 異常高温時の燃料挙動

UO₂の熱解離

COガスおよびFP内圧の精度の良い評価

SiCの高温強度特性（熱分解および熱サイクルの効果）

PyCの高温強度特性およびクリープ特性

3) 空気、水侵入事故時の燃料挙動

SiC層の酸化挙動および強度特性

4) 反応度投入時の燃料挙動

燃料温度変化（燃料核および被覆層内分布）

UO₂の熱解離、融解、蒸発挙動

COガスおよびFP内圧の評価

炉心全体についての燃料挙動を扱う場合には、諸特性および解析条件の空間的、時間的変化を考慮する必要がある。既に、上記の項目のうち、通常運転時のSiC/パラジウム反応による劣化および燃料核移動によるバッファ層およびI-PyC層の侵食については、それぞれパラジウム腐食モデルおよび燃料核移動速度係数に基づいて、炉心全体について計算を行なうコードCOPEDE⁽³²⁾が開発されている。COPEDEでは、腐食距離、移動距離等に大きな影響を及ぼす燃料温度、被覆層厚さ等を統計的に扱っている。

今後開発する燃料挙動解析コードでは、COPEDEおよびMICROS-2コードで取り扱える破損機構（パラジウム腐食、燃料核移動、被覆層応力による機械的破損）に加えて、上記[A][B]に示した破損機構を取り扱えるようにする必要がある。

また、高温ガス炉の炉心は、極めて多数の被覆燃料粒子から構成されるため、コードの開発においては、以下に示すような統計的手法を適切に取り込むことが重要である。

- 1) 燃料体中の被覆燃料粒子が膨大であることによる製造時の品質のバラツキ
 - バッファ層厚さおよび密度のバラツキ（内圧のバラツキの原因となる）
 - PyCおよびSiC被覆層強度特性（ヤング率、破壊強度等）のバラツキ（厚さおよび密度のバラツキ）

以上の特性の同一製造ロット内での分布および製造ロット間の分布

2) 使用条件（出力、燃料温度等）が空間的、時間的に統計的な変動を持つ要因

①空間的分布の変動要因

燃料コンパクト中のウラン量の統計的変動

黒鉛中の不純物濃度の製造時分布

反応度調整材中の¹⁰B濃度の製造時分布

異常事象（運転時の異常な過渡変化および事故）の発生頻度および継続時間（の空間的分布）

②時間的分布の変動要因

異常事象（運転時の異常な過渡変化および事故）の発生頻度および継続時間（の時間的分布）

4.3.2 解析コードの検証

荒井らは、MICROS-2コードを用いたTRISO被覆粒子の被覆層応力解析の結果をふまえ、被覆燃料粒子の破損挙動を明らかにすることを目的として、被覆層に異なった応力変化を実現させるため、次のような照射実験の提言を行なった〔文献(16)の5.2節参照〕。

- i) 燃焼度と高速中性子照射量の比を種々設定する
 - 具体的には、濃縮度、照射場（照射中の照射孔等）を変える
- ii) 被覆層の材質、寸法を変化させる
 - a) 高密度PyC層の密度（材質）
 - 高温熱分解炭素（メタンの熱分解）と低温熱分解炭素（プロピレンの熱分解）の2種類の製造法によって、密度、等方性、結晶子径が異なり、従って、機械的特性が異なる。
 - b) 燃料核直径、被覆層厚さ
 - これらは、被覆層の機械的特性に影響するとともに内圧にも関係する
 - c) 内圧上昇率
 - 濃縮度、中性子束、燃料核の直径および密度、バッファ層の厚さおよび密度を変化させることによる
- iii) 被覆層材料の単体としての特性の把握
 - a) PyC層
 - 照射寸法変化、破壊強度、照射クリープ
 - b) SiC、ZrC層
 - 照射寸法変化率、破壊強度

被覆燃料粒子の破損挙動は重要な問題であり注目はしてきたが、現在までに進めてきた照射後試験は、比較的、短期間（実効照射日数<200日）、低燃焼度（<5%FIMA）のものが殆どである。そのため、HTTR用A型燃料についても、HTTR条件下での健全性実証という目標は果せたものの、燃料破損挙動を調べるには至っていない。

しかし、最近、A型燃料の性能を超える高性能燃料の開発のための、高燃焼度、長期照射をめざす照射試験が進行している。そして、今後、照射下のFPガス放出量測定、照射後試験による燃料破損率測定を通じて、破損挙動データを取得できることが期待できる。とりわけ、高性能燃料の候補燃料として、A型燃料に比べて燃料核を小さくし逆に被覆層を厚くした燃料（改良型SiC被覆粒子燃料）の照射試験が進行中である。これは、上記ii)のb)およびc)に対応しており、また、i)の条件も限られた範囲ではあるが変化させることができる。また、ii)のc)については、内圧の実測、及び気体組成（COガス、FP希ガス同位体）の測定が重要になる。一方、iii)のa), b)については、

- ①高温ガス炉分野以外からのデータを含めて若干のデータベースがあるが、被覆燃料粒子への適用性について検討する必要がある

②クリープデータは殆ど得られていない

ということに注意する必要がある。

燃料挙動解析コードの検証のためには、FPガス放出測定による破損挙動の把握、SiC層破損率測定、被覆層内圧測定、2層/3層間の剝離、BISOおよびTRISO粒子の照射寸法変化の比較、X線ラジオグラフィによる被覆層破損検査、PyCの密度・光学的異方性・結晶子径測定など、燃料破損につながる諸特性の変化を実測することが有効であると考えられる。

これらの諸特性の燃料破損に至るまでの変化を実測し、解析と比較することを通して、破損挙動をより正確かつ詳細に把握できるようになると期待できる。

5. まとめ

HTTRの標準的な炉心燃料（A型燃料）および試験燃料体用燃料（B-1型およびB-2型燃料）について、HTTR条件下での照射に伴う被覆層応力の解析を、MICROSコードを用いて行なった。

- (1) A型燃料についての解析においては、荒井らによるHTI-PyCを用いる被覆燃料粒子の解析結果と同様の結果が得られた。また、第4層の厚さをパラメータ的に変化させても被覆層の応力状態は大きくは変化しなかった。
- (2) B-1型燃料では、A型燃料に比べて燃料核を小さくし逆に第3層（SiC層）を厚くしているため、被覆層の照射応力は緩和される。そして、A型燃料に比べて第4層を若干薄くしていることは、被覆層の応力には殆ど影響がないことが示された。
- (3) B-2型燃料については、B-1型燃料のSiC層の場合と同様に、解析条件の範囲内でZrC層の照射寸法変化がないとの仮定のもとで、B-1型燃料の場合と実質的に同一の結果が得られた。

以上の結果は、被覆層の照射応力による破損に対して、B-1型およびB-2型燃料が、A型燃料に比べて、健全性の点でより優れていることを示している。

最後に、燃料破損挙動解析コードの開発に向けての課題、今後の照射後試験の進め方およびデータベース整備について検討した。

②クリープデータは殆ど得られていない

ということに注意する必要がある。

燃料挙動解析コードの検証のためには、FPガス放出測定による破損挙動の把握、SiC層破損率測定、被覆層内圧測定、2層/3層間の剝離、BISOおよびTRISO粒子の照射寸法変化の比較、X線ラジオグラフィによる被覆層破損検査、PyCの密度・光学的異方性・結晶子径測定など、燃料破損につながる諸特性の変化を実測することが有効であると考えられる。

これらの諸特性の燃料破損に至るまでの変化を実測し、解析と比較することを通して、破損挙動をより正確かつ詳細に把握できるようになると期待できる。

5. まとめ

HTTRの標準的な炉心燃料（A型燃料）および試験燃料体用燃料（B-1型およびB-2型燃料）について、HTTR条件下での照射に伴う被覆層応力の解析を、MICROSコードを用いて行なった。

- (1) A型燃料についての解析においては、荒井らによるHTI-PyCを用いる被覆燃料粒子の解析結果と同様の結果が得られた。また、第4層の厚さをパラメータ的に変化させても被覆層の応力状態は大きくは変化しなかった。
- (2) B-1型燃料では、A型燃料に比べて燃料核を小さくし逆に第3層（SiC層）を厚くしているため、被覆層の照射応力は緩和される。そして、A型燃料に比べて第4層を若干薄くしていることは、被覆層の応力には殆ど影響がないことが示された。
- (3) B-2型燃料については、B-1型燃料のSiC層の場合と同様に、解析条件の範囲内でZrC層の照射寸法変化がないとの仮定のもとで、B-1型燃料の場合と実質的に同一の結果が得られた。

以上の結果は、被覆層の照射応力による破損に対して、B-1型およびB-2型燃料が、A型燃料に比べて、健全性の点でより優れていることを示している。

最後に、燃料破損挙動解析コードの開発に向けての課題、今後の照射後試験の進め方およびデータベース整備について検討した。

謝 辞

本報告は、原研高温工学試験研究炉開発部において、設計研究を通じて定めた仕様に基づく被覆燃料粒子（A型、B-1型およびB-2型燃料）について応力解析を行った結果をまとめたものである。

本研究を進めるにあたり、東海研究所高温工学部高温材料強度研究室の荒井長利氏には、同氏開発のMICROS-2コードを使用させて頂くと共に、解析結果の照射試験による検証について貴重な助言を頂いた。また、燃料・材料工学部燃料照射研究室の小川徹氏には、ZrC被覆燃料粒子の解析用物性データについて教示頂いた。

本報告書の4.1節に記述した照射済被覆燃料粒子の内圧測定、および付録3に記述した被覆燃料粒子の照射後X線ラジオグラフ撮影にあたっては、関野甫氏、沼田正美氏（現在、WASTE F課）をはじめとするホット試験室ホットラボ課の方々に協力を頂いた。

本報告書の内容は、HTTRの安全審査において活用された。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HTTR計画室の数土幸夫室長に助言を頂くとともに、竹口省三氏および瀬谷東光氏に協力を頂いた。

本報告書の作成にあたっては、HTTR原子炉開発室の新藤隆一氏に閲読後、貴重な助言を頂いた。

本研究を進めるにあたっては、高温工学試験研究炉開発部斎藤伸三次長、田中利幸HTTR原子炉開発室長、および馬場治HTTRプラント開発室長に激励を頂いた。

以上の方々に深く感謝いたします。

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 H T T R (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) 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).
- (5) 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).
- (6) 林 君夫, 他, “高温工学試験研究炉用試験燃料体の健全性評価”, JAERI-M 90-115 (1990).
- (7) J. W. Prados and T. G. Godfrey, “STRETCH, a computer program for predicting coated-particle irradiation behavior; modification IV, December 1967”, ORNL-TM-2127 (1968).
- (8) K. Bongartz, “Improvement of a method for predicting failure rates of coated particles during irradiation”, Nucl. Technol. 35 (1977) p.379.
- (9) K. Bongartz, “A universal model for coated particle failure”, SMiRT paper C4/2 (1981).
- (10) J. C. Bokros, G. L. Guthrie, R. W. Dunlap and A. S. Schwartz, “Radiation-induced dimensional changes and creep in carbonaceous materials”, J. Nucl. Mater. 31 (1969) pp.25-47.
- (11) J. L. Kaae, “A mathematical model for calculating stresses in a pyrocarbon- and silicon carbide-coated fuel particle”, J. Nucl. Mater. 29 (1969) pp.249-266.
- (12) J. L. Kaae, “A mathematical model for calculating stresses in a four-layer carbon-silicon-carbide-coated fuel particle”, J. Nucl. Mater. 32 (1969) pp.322-329.
- (13) J. L. Kaae, “Irradiation-induced microstructural changes in isotropic pyrolytic carbons”, J. Nucl. Mater. 57 (1974) pp.82-92.
- (14) 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).
- (15) T. Arai, “MICROS-2 : A computer program for predicting the mechanical behaviors of coated fuel particles during irradiation (revised)”, JAERI-M 5843 (1974).

- (16) 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 (1972).
- (17) 日本原子力研究所原子炉研修所、原子炉研修所講義テキスト燃料編、第II分冊 (1984) p.313.
- (18) R. Blackstone and E. H. Voice, “The expansion of silicon carbide by neutron irradiation at high temperature”, J. Nucl. Mater. 39 (1971) pp.319-322.
- (19) R. J. Price, “Neutron-induced voids in β -silicon carbide”, J. Nucl. Mater. 48 (1973) pp.47-57.
- (20) 丸山創, 藤本望, 山下清信, 村田勲, 新藤隆一, 数土幸夫, “高温工学試験研究炉用炉心熱流設計”, JAERI-M 88-255 (1988).
- (21) 山下清信, 私信.
- (22) T. D. Gulden : “Mechanical Properties of Polycrystalline β -SiC”, J. Am. Ceram. Soc. 52 (1969) pp.585-590.
- (23) 菊池輝男, 他, “照射済被覆燃料粒子の内蔵ガス圧測定試験”, 日本原子力学会昭和63年年会, 1985年5月, 東京, K42.
- (24) 福田幸朔、他、 “OGL-1第3次、第4次および第5次燃料体の照射試験”, JAERI-M 86-092 (1986) p.100.
- (25) G. W. Horsley, G. J. Weldrick, J. A. Turnbull and R. Shipp, “Influence of temperature, burnup, and fuel composition on gas pressure (Xe, Kr, CO, CO₂) in coated particle fuels”, J. Am. Ceram. Soc. 59 (1976) p.1.
- (25) G. W. Horsley, B. E. Sheldon and K. S. R. Rose, “A technique for measuring gas pressure inside coated particle fuels”, J. Nucl. Mater. 34 (1970) pp.345-347.
- (27) 福田幸朔, 他, “高温ガス炉用燃料に関する試験研究”, JAERI-M 89-007 (1989) p.196.
- (28) K. Minato, T. Ogawa, S. Kashimura, K. Fukuda, M. Shimizu, Y. Tayama and I. Takahashi, “Fission product palladium-silicon carbide interaction in HTGR fuel particles”, J. Nucl. Mater. 172 (1990) pp.184-196.
- (29) 文献(27), p.253.
- (30) K. Minato, T. Ogawa, S. Kashimura, K. Fukuda, M. Shimizu, Y. Tayama and I. Takahashi, “Carbon monoxide-SiC interaction in HTGR fuel particles”, J. Mater. Sci. 26 (1991) pp.2379-2388.
- (31) R. H. Flowers and G. W. Horsley, “The influence of oxide kernels on the manufacture and performance of coated particle fuel”, AERE-R 5949 (1968).
- (32) 沢 和弘, 他, “高温工学試験研究炉における被覆燃料粒子の破損及びFP放出率の評価方法”, JAERI-M 88-258 (1988).

Table 1 Major input data used in analysis of irradiation-induced stresses in coating layers of coated fuel particles of A type fuel assembly.

| | |
|-------------------|--|
| 燃料核 | |
| 密度 | 10.41 g/cm ³ |
| 気孔率 | 0.05 |
| ガス生成速度 | 希ガス 0.3 atom/fission |
| | その他 0.1 atom/fission |
| ガス放出率 | 100% |
| 低密度熱分解炭素 (第1層) | |
| 密度 | 1.1 g/cm ³ |
| 気孔率 | 0.5 |
| 高密度熱分解炭素 (第2, 4層) | |
| 密度 | 1.85 g/cm ³ |
| 熱伝導率 | 0.04 W/cm °C |
| 熱膨張係数 | $6.0 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ |
| ヤング率 | $5.6 \times 10^5 \text{ kg/cm}^2$ |
| ポアソン比 | 0.2 |
| 照射寸法変化率 | Fig.1 |
| 定常クリープ定数 | $2 \times 10^{-6} (\text{kg/cm}^2)^{-1} (10^{20} \text{ n/cm}^2)^{-1}$ |
| 遷移クリープ定数 | $4 \times 10^{-6} (\text{kg/cm}^2)^{-1} (10^{20} \text{ n/cm}^2)^{-1}$ |
| クリープポアソン比 | 0.4 |
| 炭化けい素層 (第3層) | |
| 密度 | 3.20 g/cm ³ |
| 熱伝導率 | 0.10 W/cm °C |
| 熱膨張係数 | $4.5 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ |
| ヤング率 | $4.2 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$ |
| ポアソン比 | 0.2 |
| 照射寸法変化率 | 無視できるとする |
| 照射条件 | |
| 照射温度 | 1340 °C |
| 外部圧力 | 0 kg/cm ² |
| 燃焼速度 | 5 GWd/t / 100 日 |
| 高速中性子照射速度 | $2 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2 (E > 29 \text{ fJ}) / 100 \text{ 日}$ |

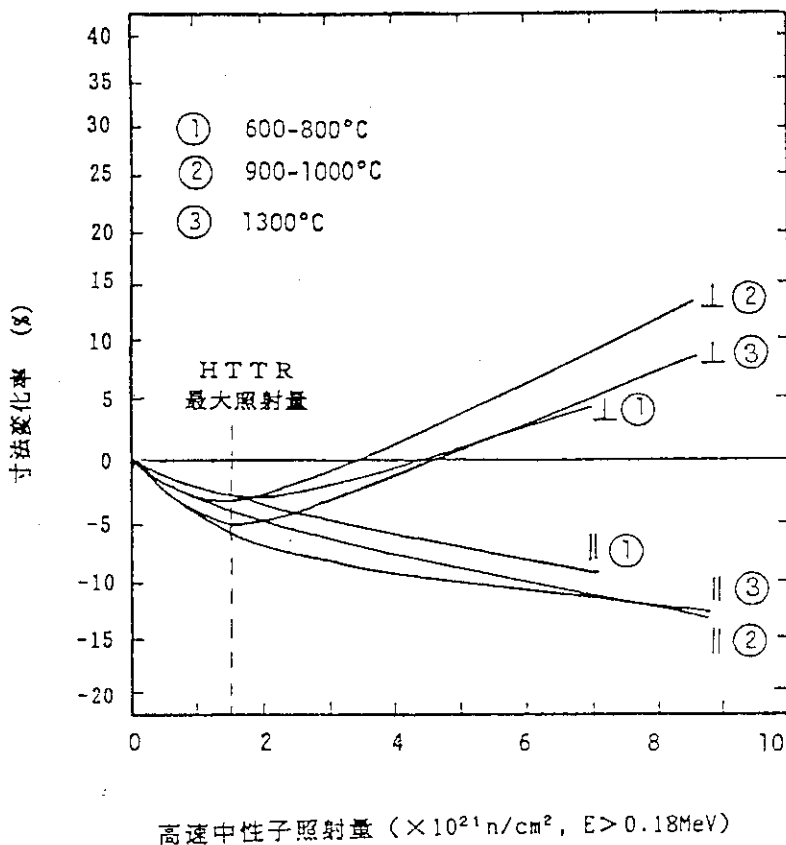


Fig. 1 Dimensional change of high-density pyrocarbon induced by fast-neutron irradiation under no restriction⁽¹⁷⁾.

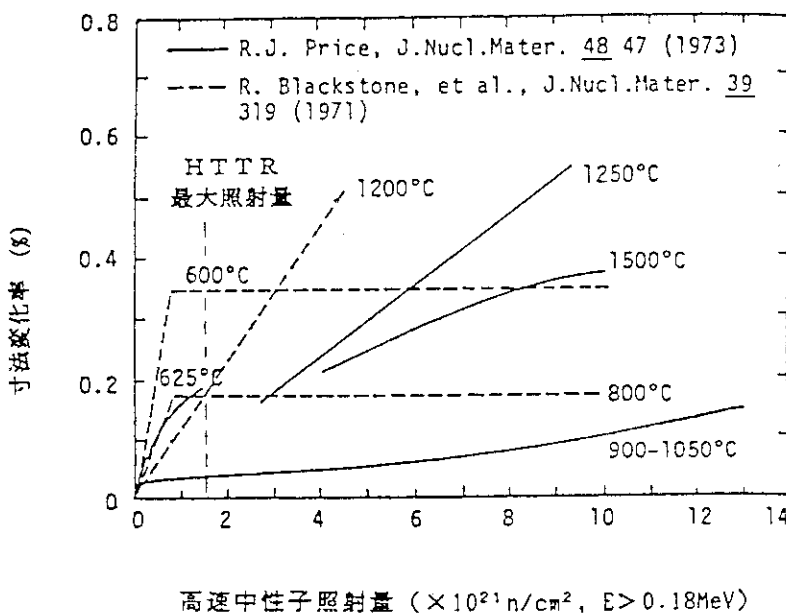


Fig. 2 Dimensional change of silicon carbide induced by fast-neutron irradiation under no restriction^(18, 19).

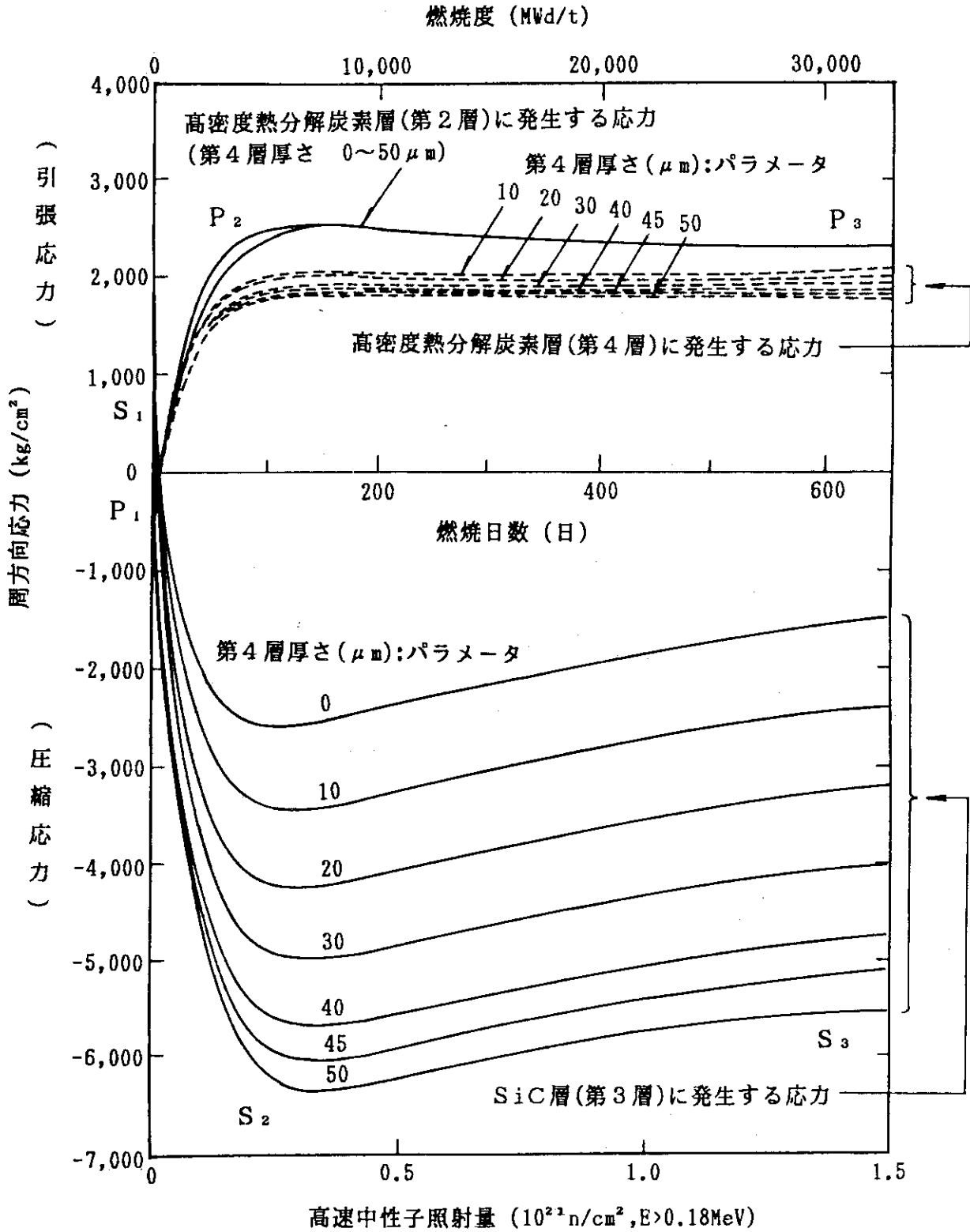


Fig. 3 Results of coating stress calculation for A-type fuel particle under operating condition of HTTR.

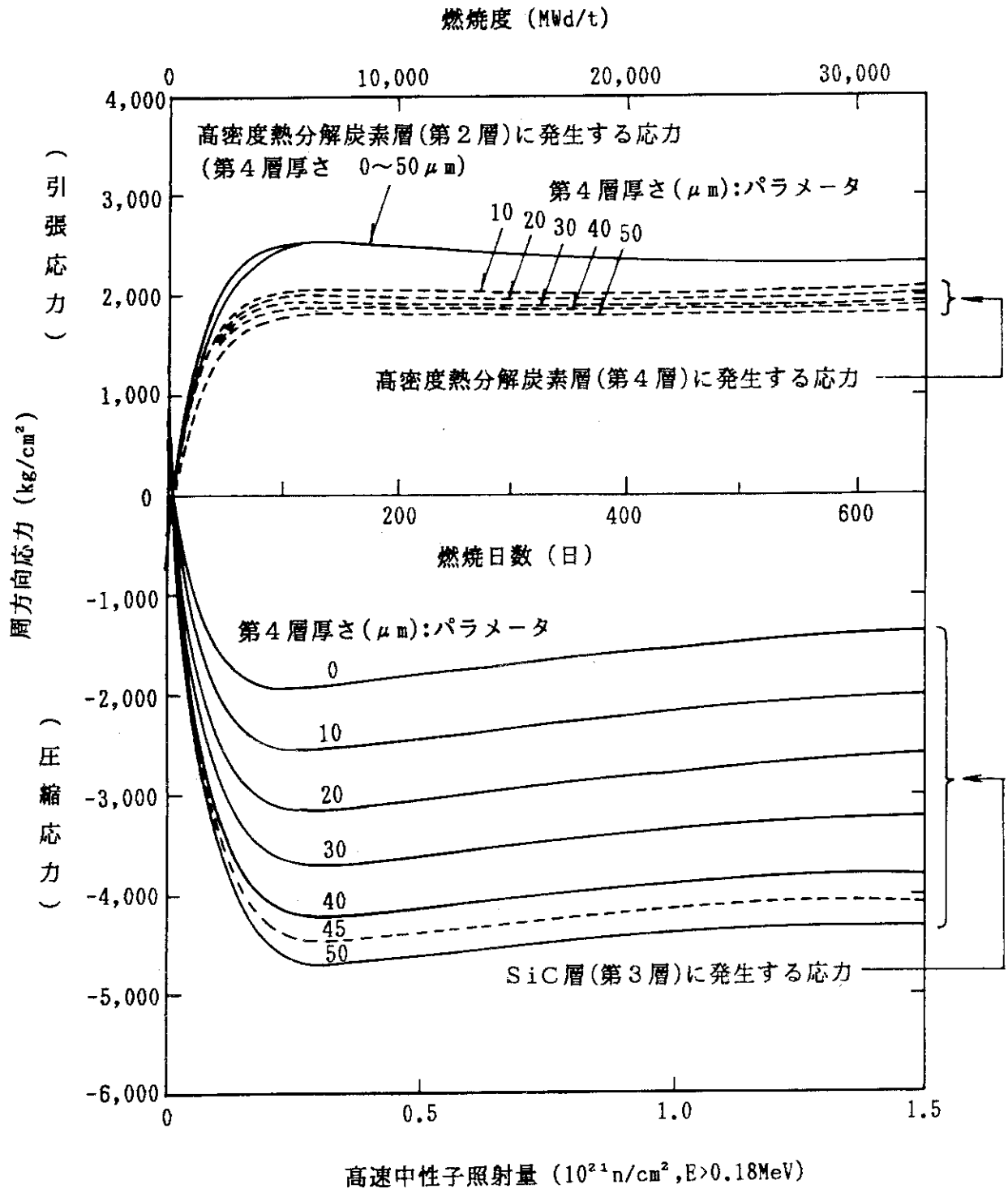


Fig. 4 Results of coating stress calculation for B-1 type fuel particle under operating condition of HTTR.

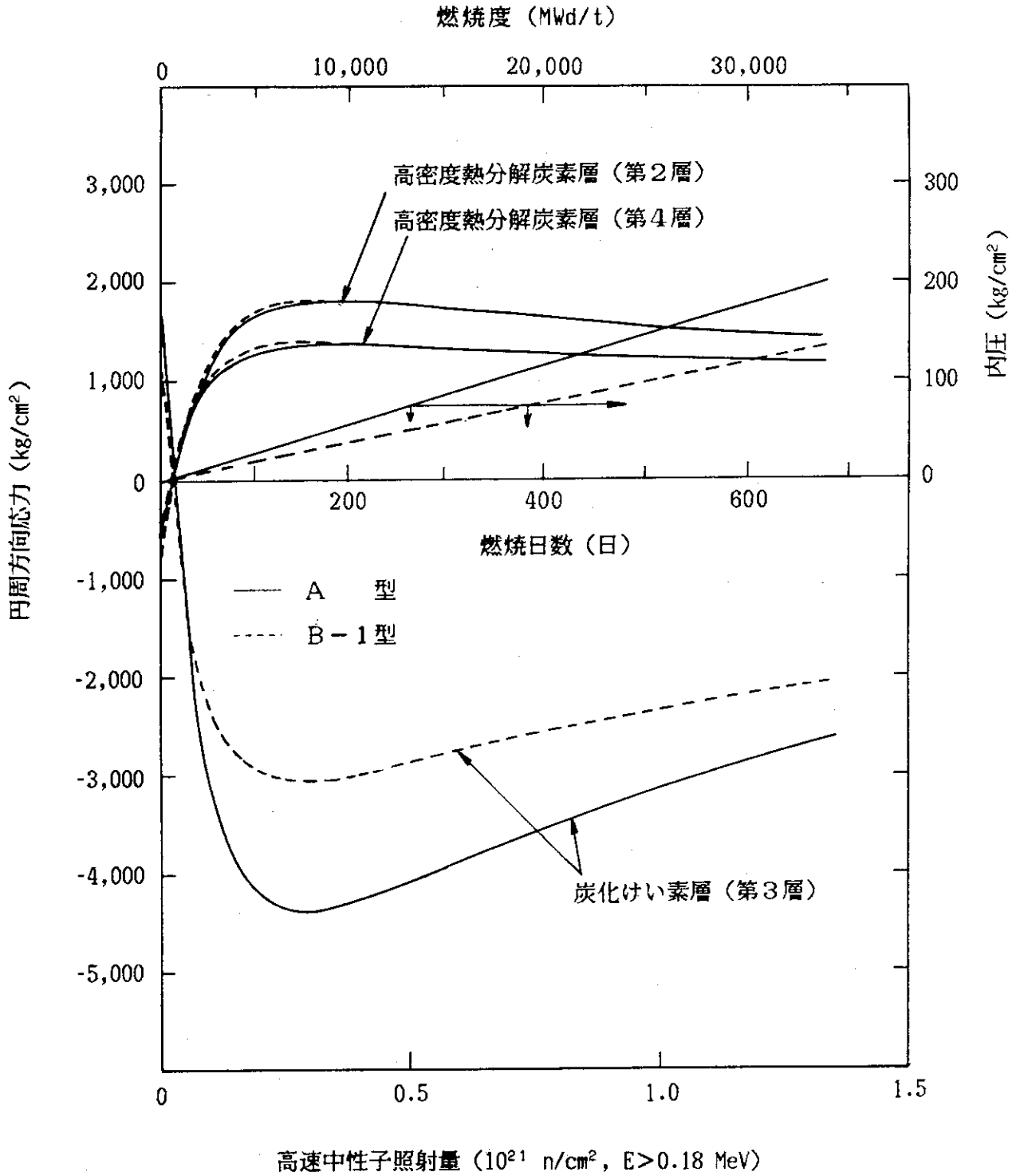


Fig. 5 Comparison of results of coating stress calculations for A and B-1 type fuel particles under operating condition of HTTR.

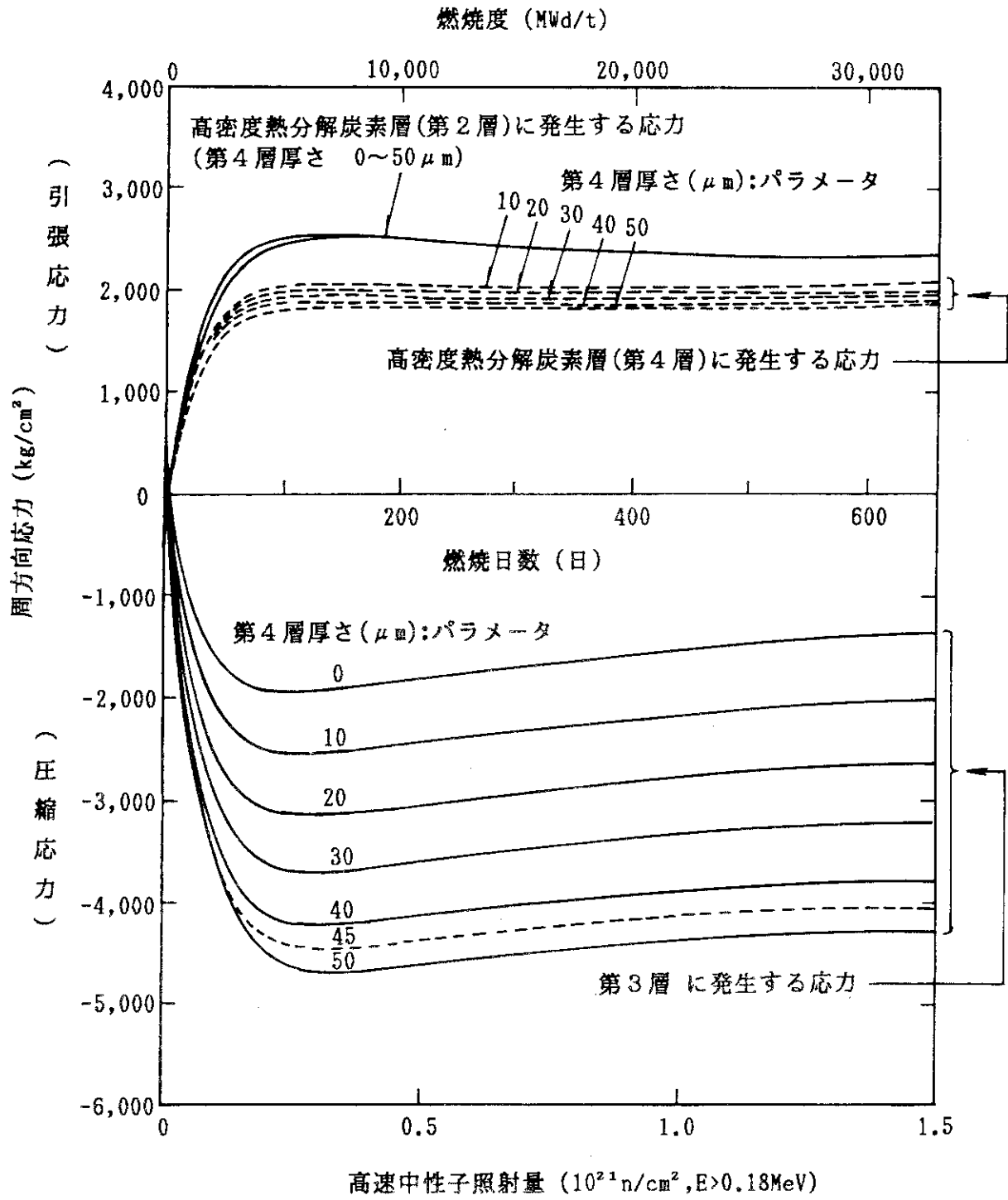


Fig. 6 Results of coating stress calculation for B-2 type (ZrC-coated) fuel particle under operating condition of HTTR.

付録1 MICROS-2コードの概要

1. 概要

MICROS-2コードは、燃料粒子被覆層の照射応力解析を行うコードであり、解析に当たっては、第1章に述べたように以下の現象を考慮している^(A1-1, A1-2)。

- ① 燃料の燃焼に伴う希ガスFPなどの発生による粒子内部の圧力上昇
- ② 高速中性子照射による高密度熱分解炭素(PyC)の寸法変化(収縮及び膨張)
- ③ 高速中性子照射によるSiCの寸法変化
- ④ 高速中性子照射による照射クリープ現象の誘起
- ⑤ 製造条件(被覆層の蒸着温度)と照射温度との差による被覆層の熱変形

MICROS-2コードでは、被覆層の物性値(PyC、SiCの照射寸法変化率等)及び燃料照射条件を入力データとしているため、解析者が解析条件を自由に設定することができる。また、このコードの解析式及び解析方法自体は、理論式および理論解であり、近似式や近似解は用いていない。従って、MICROS-2コードによる解析結果は、解析条件を設定すれば、一意的に定まるものである。

2. 解析モデル

MICROS-2コードの解析モデルにおいては、被覆燃料粒子の形状は完全球形であると仮定し、被覆燃料粒子は自由状態にあるものとしている。即ち、被覆燃料粒子の外圧はゼロとする。この仮定は、内圧による被覆層の破損の点から見て安全側の仮定である。

被覆層として的高密度熱分解炭素の異方性を考慮すると、球座標系における応力-ひずみ関係式として、次式が成立する。応力-ひずみ関係をFig.A1.1^(A1-1)に示す。

$$e_{\theta} = \frac{1 - \nu_1}{E_1} \sigma_{\theta} - \frac{\nu_2}{E_2} \sigma_r \quad (1)$$

$$e_r = -\frac{2\nu_3}{E_1} \sigma_{\theta} + \frac{1}{E_2} \sigma_r \quad (2)$$

ここで、 σ_{θ} 、 σ_r : 被覆層の周方向及び径方向の応力

e_{θ} 、 e_r : 被覆層の周方向及び径方向の弾性ひずみ

E_1 、 E_2 : 蒸着面に平行な方向(被覆層の周方向)及び蒸着面に垂直な

方向（被覆層の径方向）のヤング率

ν_1, ν_3 : 被覆層の周方向の力によって生じる周方向及び径方向の横ひずみを与えるポアソン比

ν_2 : 被覆層の径方向の力によって生じる、周方向の横ひずみを与えるポアソン比

(1)式は、円周方向の1方向の応力-ひずみ関係($e = \sigma / E_1$)に対して、これと直角な θ 方向及び径方向の横ひずみ(ポアソン比で表現)の寄与を表現したものである。逆に、(2)式は、径方向の応力-ひずみ関係($e = \sigma / E_2$)に対して、これと直角な周方向の2方向からの横ひずみの寄与を示したものである。

実際の計算においては、HTTR用の被覆燃料粒子の高密度熱分解炭素層及びSiC層はほぼ等方性であることから、

$$E_1 = E_2 \quad (3)$$

$$\nu_1 = \nu_2 = \nu_3 \quad (4)$$

と置いている。

次に、Fig.A1.2^(A1-1)に示す球殻を考慮して、被覆層の応力計算式を導出する。即ち、内半径 a 、外半径 b なる異方性のある球殻に内圧 P 、外圧 P が作用しており、更に、温度分布 $T(r)$ 、半径方向及び円周方向の照射寸法変化、クリープによる変形が発生しているものとする。これらの弾性変形以外の変形をまとめて g_r 、 g_θ と記せば、次のように表わすことができる。

$$g_r(r) = \alpha_r [T(r) - T_c] + \eta_r(\phi) + \int_0^\phi d\varepsilon/dt_r^c(\phi) d\phi \quad (5)$$

$$g_\theta(r) = \alpha_\theta [T(r) - T_c] + \eta_\theta(\phi) + \int_0^\phi d\varepsilon/dt_\theta^c(\phi) d\phi \quad (6)$$

ただし、 r : 球殻の中心（燃料核の中心）からの距離

T_c : 被覆層の蒸着温度

α_r, α_θ : 径方向及び周方向の熱膨張率

$d\varepsilon/dt_r^c(\phi)$: 径方向の単位高速中性子照射量あたりのクリープひずみ速度

$d\varepsilon/dt_\theta^c(\phi)$: 周方向の単位高速中性子照射量あたりのクリープひずみ速度

$\eta_r(\phi), \eta_\theta(\phi)$: 径方向及び周方向の照射寸法変化割合
 ϕ : 高速中性子照射量

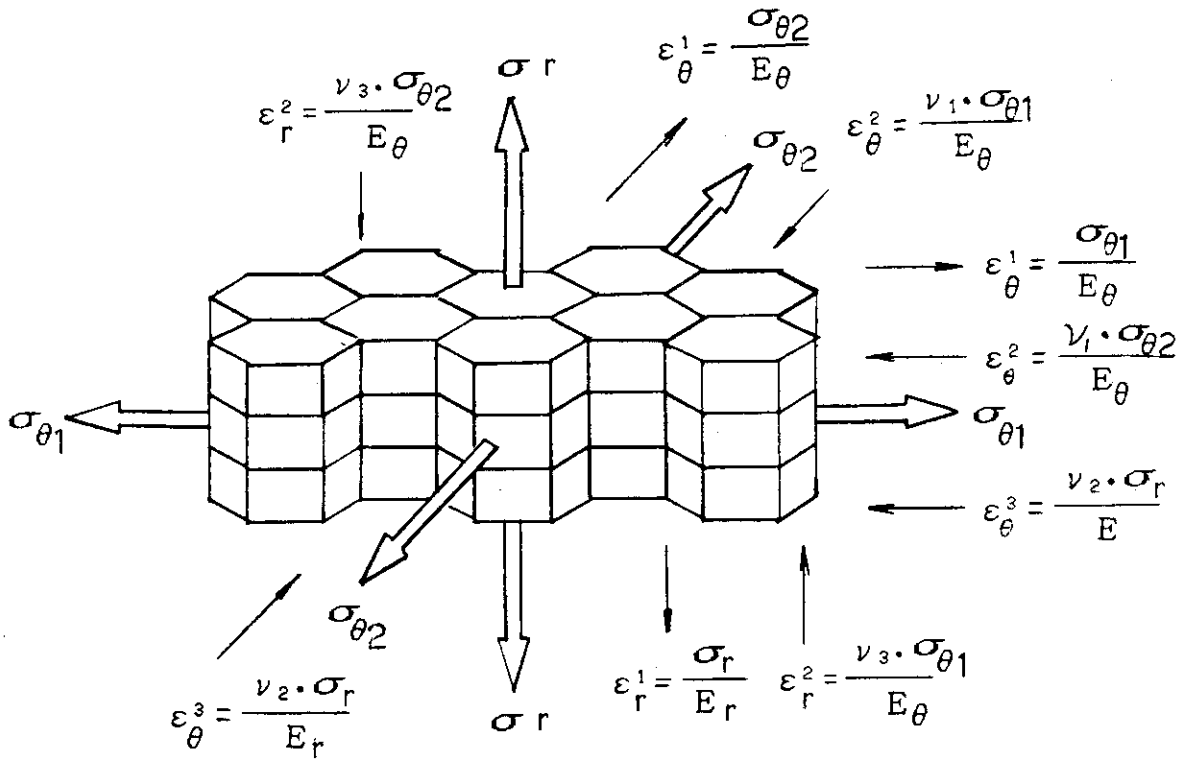
である。

ここで(5)式及び(6)式の右辺第一項は蒸着温度と運転温度との差による熱的ひずみ、第二項は照射寸法変化、第三項は照射クリープによるひずみをそれぞれ意味している。ただし、被覆層内外面での温度差及び高速中性子照射量の差は無視できるので、照射寸法変化割合は厚さ方向には依存せず、全体的な照射温度及び高速中性子照射量のみで与えられるものとしている。

MICROS-2コードでは、以上述べたように、被覆燃料粒子を多重被覆層球殻体系に置きかえることにより、被覆層の応力を求めている。

文献

- (A1-1) 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).
- (A1-2) T. Arai, “MICROS-2 : A computer program for predicting the mechanical behaviors of coated fuel particles during irradiation (revised)”, JAERI-M 5843 (1974).



$\sigma_{\theta 1}, \sigma_{\theta 2}$; 蒸着面に対して平行方向に作用する応力 ($\sigma_{\theta 1} = \sigma_{\theta 2}$)

σ_r ; 蒸着面に対して垂直方向に作用する応力

E_{θ} ; 蒸着面に対して平行方向のヤング率

E_r ; 蒸着面に対して垂直方向のヤング率

ν_1, ν_2, ν_3 ; ポアソン比

$\epsilon_{\theta}^1, \epsilon_{\theta}^2, \epsilon_{\theta}^3$; 蒸着面に対して平行方向のひずみ

$\epsilon_r^1, \epsilon_r^2$; 蒸着面に対して垂直方向のひずみ

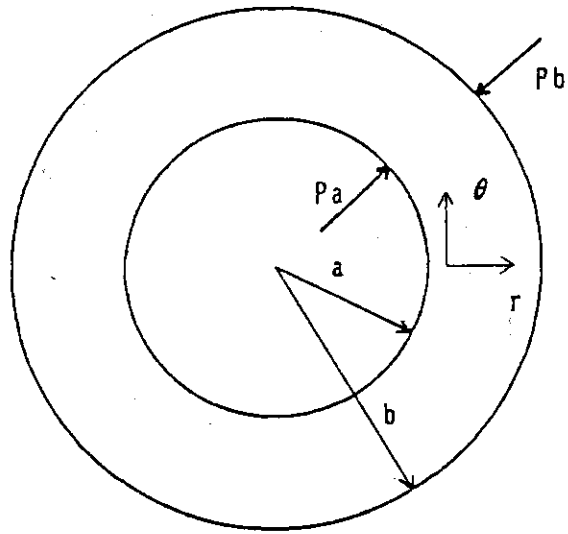
蒸着面に対して平行方向の全ひずみ

$$e_{\theta} = \epsilon_{\theta}^1 + \epsilon_{\theta}^2 + \epsilon_{\theta}^3$$

蒸着面に対して垂直方向の全ひずみ

$$e_r = \epsilon_r^1 + 2 \times \epsilon_r^2$$

Fig. A1.1 Basic relationship between stresses and strains for high-density pyrocarbon crystal (A1-1).



- r ; 球殻径方向 (球殻中心からの距離)
- θ ; 球殻周方向
- a ; 球殻 (被覆層) 内半径
- b ; 球殻 (被覆層) 外半径
- P_a ; 内圧
- P_b ; 外圧

Fig. A1.2 Spherical shell model in MICROS-2 code for analysis of stresses in coating layer of coated fuel particle^(A1-1).

付録2 MICROS-2コードによる被覆層照射応力解析における入力データの説明

本文3章のMICROS-2コードによる被覆層の照射応力解析における主要入力データは、本文のTable 1に示した。入力データは文献(A2-1)を主に参考としたものである。ただし、高密度熱分解炭素（第2層および第4層）については、文献(A2-1)では、高温熱分解炭素（HTI-PyC：1900℃程度でのプロパンの熱分解による）の値を用いているが、本報告では、HTTRの仕様に従って、低温熱分解炭素（LTI-PyC：1400℃程度でのプロピレン等の熱分解による）の値を用いた。

以下に、入力データの設定期理理由についての説明を与える。

1. 燃料核

- 密度 (10.41g/cm³)

HTTR用燃料における仕様（予定）の規定値（95%TD, TDは理論密度で10.96g/cm³）である。

- 気孔率 (0.05)

燃料核密度95%TDに対応し、気孔率は $1 - 0.95 = 0.05$ 。

- ガス生成速度

希ガス (0.3 atom/fission)

その他 (0.1 atom/fission)

希ガスの生成速度は、文献(A2-1)、p.22の考察を参考とした。

- ガス放出率 (100%)

内圧を大きめに評価するために、100%放出を仮定した。

2. 低密度熱分解炭素(第1層)

- 密度 (1.1 g/cm³)

HTTR用燃料における仕様（予定）の規定値である。

- 気孔率 (0.5)

黒鉛の理論密度(2.22 g/cm³)に対して、密度の仕様の規定値が1.1 g/cm³であることに対応する。

3. 高密度熱分解炭素(第2層、第4層)

- 密度 (1.85 g/cm³)

HTTR用燃料における仕様（予定）の規定値である。

- 熱伝導率 (0.04 W/cm°C)

文献(A2-2)の値(10^{-2} cal/cm \cdot s \cdot °C)を用いた。温度分布の計算にのみ必要である。被覆層は薄いので被覆層径方向の温度差は数°C以内であり、入力データの設定には実際上は殆ど依存しない。

- 熱膨張係数 ($6.0 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)

文献(A2-2)の値を用いた。付録1の(5)式及び(6)式の第1項(熱応力)に関係する。ただし、被覆層蒸着後に燃料コンパクトを焼成しているが(1800°C、1時間)、これによる熱応力焼鈍効果は無視した。

- ヤング率 (5.6×10^5 kg/cm 2)

文献(A2-2)の値(未照射値： 5×10^6 psi= 3.5×10^5 kg/cm 2)に対して、照射によってヤング率が増加する効果を考慮して係数1.6を乗じた。ヤング率が高いほど被覆層の最大応力は大きくなる[文献(A2-1)、p.24]ことから、保守的な応力評価となるように設定した。

- ポアソン比 (0.2)

標準的な値として、0.2を用いた[文献(A2-3)、(A2-4)参照]。ただし、0.2~0.4の範囲で変化させても、被覆層応力は殆ど変化しないことが分かっている。

- 照射寸法変化率 (本文 Fig.1参照)

- 定常クリープ定数 [$2 \times 10^{-6}/(\text{kg}/\text{cm}^2)/(\text{10}^{20}\text{n}/\text{cm}^2)$]

文献(A2-2)の値 [$<10^{-27}(\text{psi} \cdot \text{nvt})^{-1} = 1.4 \times 10^{-26} (\text{kg}/\text{cm}^2)^{-1}(\text{n}/\text{cm}^2)^{-1}$ 、1000°C]を参考とした。文献(A2-1)のp.9では標準値として、1200°Cで $4.2 \times 10^{-6}/(\text{kg}/\text{cm}^2)/(\text{10}^{20}\text{n}/\text{cm}^2)$ としているが、クリープ定数が小さいほど被覆層応力の最大値は大きくなることから、保守的に評価するため、これよりは小さめの値を用いた。

- 遷移クリープ定数 [$4 \times 10^{-6}/(\text{kg}/\text{cm}^2)/(\text{10}^{20}\text{n}/\text{cm}^2)$]

$10^{20}\text{n}/\text{cm}^2$ ($E > 0.18\text{MeV}$)までの低照射量領域での過渡(1次)クリープを記述するものである。過渡クリープを考慮しても、被覆層の応力変化には有意な差が現れないことが分かっている[文献(A2-1)、p.23]。

- クリープポアソン比 (0.4)

文献(A2-1)のp.9(fig.2.5)、p.51および文献(A2-4)参照。

4. SiC層(A型及びB-1型燃料の第3層)

- 密度 (3.20 g/cm 3)

HTR用燃料における仕様(予定)の下限值である。

- 熱伝導率 (0.10 W/cm°C)

文献(A2-2)(未照射値： 0.1 cal/cm \cdot s \cdot °C= 0.42 W/cm°C)および文献(A2-5)(A2-6)を参考にして、熱分解SiCについて低めに評価した。ただし、被覆層は薄いので、燃料温度の計算値への影響は小さい。

- 熱膨張係数 ($4.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$)
文献(A2-2)の値を用いた。
- ヤング率 ($4.2 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$)
文献(A2-2)の値を用いた [$60 \times 10^6 \text{ psi} = 4.2 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$: $\sim 2.5 \times 10^{21} \text{ nvt}$, 1000 $^\circ\text{C}$]。同文献では、照射による変化は見られない。
- ポアソン比 (0.2)
高密度熱分解炭素層と同じ値を用いた。文献(A2-1)のp.6参照。
- 照射寸法変化率
無視しようと仮定 (本文4.2節参照)。

5. Z r C層(B-2型燃料の第3層)

- 密度 (6.59 g/cm^3)^(A2-7)
Z r C_{0.97}(想定されるZ r Cの組成)の値。
- 熱伝導率 ($0.45 \text{ W/cm}^\circ\text{C}$)^(A2-8)
- 熱膨張係数 ($6.8 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$)^(A2-9)
- ヤング率 ($4.8 \times 10^6 \text{ kg/cm}^2$)^(A2-8)
- ポアソン比 (0.26)^(A2-9)
- 照射寸法変化率
無視しようと仮定 (本文4.2節参照)。

文献

- (A2-1) 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 (1972).
- (A2-2) “Summary report on the use of TRISO-coated particles in the PSC reactor plant”, GA-8467 (1968), p.8 (Table 2.1).
- (A2-3) 宮本, 荒井他, “高温ガス炉用炉心熱・構造設計データ”, 原研未公開所内報 第1分冊 (1974) P.62.
- (A2-4) R. J. Price, “Poisson's ratio of pyrolytic carbon”, carbon 7 (1969) p.706.
- (A2-5) R. J. Price, “Properties of silicon carbide for nuclear fuel particle coatings”, Nucl. Technol. 35 (1977) p.320.

- (A2-6) R. J. Price, "Thermal conductivity of neutron-irradiated pyrolytic β -silicon carbide", J. Nucl. Mater. 46 (1973) pp.268-272.
- (A2-7) E. K. Storms and J. Griffin, "The vaporization behavior of the defect carbids. IV. The zirconium-carbon system", High Temp. Sci. 5 (1973) pp.291-310.
- (A2-8) E. K. Storms and P. Wagner, "Thermal conductivity of sub-stoichiometric ZrC and NbC", High Temp. Sci. 5 (1973) pp.454-462.
- (A2-9) P. T. B. Shaffer, "Plenum Press Handbooks of High-temperature Materials, No.1, Materials Index", Plenum Press, New York, 1964, pp.142-146.

付録3 X線ラジオグラフィによる照射前後の被覆燃料粒子の寸法変化の測定

1. はじめに

照射による被覆燃料粒子の寸法変化を調べるため、X線ラジオグラフィによって照射前後のSiC層の外径を測定した。

ディスク試料では、照射前にX線ラジオグラフの撮影を行い、照射後に同じ粒子を特定したうえでX線ラジオグラフの撮影を行うことができる。このことによって照射前後の寸法変化を精度良く測定することができる。また、寸法測定用にSiC層の外径を用いたのは、X線ラジオグラフ上で他の被覆層と区別しやすく、高い測定精度が得られるためである。

2. 試料及び照射条件

測定を行った被覆燃料粒子は、78F-4Aキャプセルでディスク試料として照射したものである。これは、厚さ約1mmの黒鉛製の円盤に約50個の貫通孔（直径2mm）をあけて、その中に黒鉛マトリックスでオーバーコートした被覆燃料粒子を一個ずつ装填し、ディスク全体を焼成したものである。被覆燃料粒子は、黒鉛マトリックスによって黒鉛ディスクに固定されている。

ディスク試料は、粒子製造バッチ名77MC5(試料A)及び790PC1(試料B)の被覆燃料粒子を装填した2種類から成る。いずれも標準のTRISO被覆粒子(A型燃料)であり、濃縮度は約20wt%である。

ディスク試料の照射条件は、高速中性子照射量が $2.24 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)、熱中性子照射量が $1.58 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ 、そして、熱中性子照射量から推定された燃焼度は約7% FIMA(約80,000 MWd/t)であった。照射温度は、ディスク試料部の熱電対が照射初期に断線したため測定していないが、他の熱電対の測定値から1,100~1,200℃と推定される。

3. 測定結果

SiC層外径の測定結果をTable A3.1に示す。この表に示した寸法測定値は、被覆燃料粒子のSiC層外面の直交する2箇所の直径の平均値である。また、照射後の測定においてはX線ラジオグラフ像が実際より若干拡大して撮影されるので、照射後の値は拡大率の補正を行なっている。

Table A3.1において、試料A(77MC5)では48粒子中で変化量がゼロのものが16粒子であり、全粒子について変化量は $\pm 2 \mu\text{m}$ (変化率0.25%)以内であった。

一方、試料B(790PC1)は、47粒子中で36粒子が変化量 $\pm 2 \mu\text{m}$ (変化率0.25%)以

内であるが、変化量が3～4 μm のものもあり、試料Aに比べて若干大きな変化量を示している。しかし、この違いは、試料Bでは試料Aに比べて真球度が悪く(最大直径/最小直径の比が大きい)、そのために測定誤差が大きかったことによるものと判断することができる。したがって、両試料について、寸法変化量の有意な差はないと判断できる。また、この程度の小さな変化量は、照射後X線ラジオグラフィの分解能(約2 μm)を考慮すると、有意な変化量とは認められない。

4. まとめ

以上より、測定粒子全体について、有意な寸法変化は生じていないと判断することができる。

Table A3.1 Dimensional change of SiC layer of coated fuel particles irradiated in 78F-4A capsule.

| 77MC 5 (Disk No M-20) | | | | | 79OPC 1 (Disk No F-19) | | | | |
|-----------------------|----------------------------|-----|---|----------------------------------|------------------------|----------------------------|-----|---|----------------------------------|
| No. | Diameter (μm) | | Change (μm) (c)=(b)-(a) | ($\%$) (c)/(a) \times 100 | No. | Diameter (μm) | | Change (μm) (c)=(b)-(a) | ($\%$) (c)/(a) \times 100 |
| | (a) | (b) | | | | (a) | (b) | | |
| 1 | 803 | 804 | 1 | 0.12 | 1 | 808 | 809 | 1 | 0.12 |
| 2 | 827 | 829 | 2 | 0.24 | 2 | 869 | 866 | -3 | -0.35 |
| 3 | 790 | 790 | 0 | 0 | 3 | 811 | 813 | 2 | 0.25 |
| 4 | 835 | 835 | 0 | 0 | 4 | 765 | 765 | 0 | 0 |
| 5 | 887 | 886 | 1 | 0.11 | 5 | 838 | 836 | -2 | -0.24 |
| 6 | 844 | 846 | 2 | 0.24 | 6 | 823 | 824 | 1 | 0.12 |
| 7 | 830 | 831 | 1 | 0.12 | 7 | 808 | 807 | -1 | -0.12 |
| 8 | 810 | 812 | 2 | 0.25 | 8 | 824 | 824 | 0 | 0 |
| 9 | 817 | 818 | 1 | 0.12 | 9 | 827 | 828 | 1 | 0.12 |
| 10 | 840 | 840 | 0 | 0 | 10 | 812 | 812 | 0 | 0 |
| 11 | 819 | 818 | -1 | -0.12 | 11 | 811 | 809 | -2 | -0.25 |
| 12 | 819 | 820 | 1 | 0.12 | 12 | 809 | 808 | -1 | -0.12 |
| 13 | 799 | 797 | -2 | -0.25 | 13 | 809 | 811 | 2 | 0.25 |
| 14 | 825 | 826 | 1 | 0.12 | 14 | 830 | 832 | 2 | 0.24 |
| 15 | 802 | 801 | -1 | -0.12 | 15 | 809 | 806 | -3 | -0.37 |
| 16 | 789 | 788 | -1 | -0.13 | 16 | 818 | 814 | -4 | -0.49 |
| 17 | 839 | 839 | 0 | 0 | 17 | 754 | 752 | -2 | -0.27 |
| 18 | 832 | 833 | 1 | 0.12 | 18 | 806 | 805 | -1 | -0.12 |
| 19 | 841 | 843 | 2 | 0.24 | 19 | 860 | 858 | -2 | -0.23 |
| 20 | 828 | 828 | 0 | 0 | 20 | 831 | 830 | -1 | -0.12 |
| 21 | 799 | 799 | 0 | 0 | 21 | 803 | 803 | 0 | 0 |
| 22 | 833 | 831 | -2 | -0.24 | 22 | 779 | 781 | 2 | 0.26 |
| 23 | 845 | 845 | 0 | 0 | 23 | 762 | 759 | -3 | -0.39 |
| 24 | 859 | 861 | 2 | 0.23 | 24 | 792 | 794 | 2 | 0.25 |
| 25 | 819 | 820 | 1 | 0.12 | 25 | 824 | 823 | -1 | -0.12 |
| 26 | 827 | 828 | 1 | 0.12 | 26 | 816 | 813 | -3 | -0.37 |
| 27 | 838 | 837 | -1 | -0.12 | 27 | 808 | 807 | -1 | -0.12 |
| 28 | 832 | 832 | 0 | 0 | 28 | 863 | 861 | -2 | -0.23 |
| 29 | 834 | 834 | 0 | 0 | 29 | 809 | 805 | -4 | -0.49 |
| 30 | 819 | 819 | 0 | 0 | 30 | 792 | 794 | 2 | 0.25 |
| 31 | 857 | 858 | 1 | 0.12 | 31 | 817 | 816 | -1 | -0.12 |
| 32 | 802 | 803 | 1 | 0.12 | 32 | 839 | 836 | -3 | -0.36 |
| 33 | 834 | 832 | -2 | -0.24 | 33 | 795 | 793 | -2 | -0.25 |
| 34 | 828 | 829 | 1 | 0.12 | 34 | 780 | 780 | 0 | 0 |
| 35 | 833 | 832 | -1 | -0.12 | 35 | 821 | 819 | -2 | -0.24 |
| 36 | 820 | 820 | 0 | 0 | 36 | 839 | 828 | -11 | -0.12 |
| 37 | 805 | 806 | 1 | 0.12 | 37 | 810 | 811 | 1 | 0.12 |
| 38 | 809 | 809 | 0 | 0 | 38 | 805 | 803 | -2 | -0.25 |
| 39 | 813 | 813 | 0 | 0 | 39 | 829 | 826 | -3 | -0.36 |
| 40 | 857 | 859 | 2 | 0.23 | 40 | 824 | 823 | -1 | -0.12 |
| 41 | 812 | 814 | 2 | 0.25 | 41 | 828 | 826 | -2 | -0.24 |
| 42 | 830 | 830 | 0 | 0 | 42 | 809 | 807 | -2 | -0.25 |
| 43 | 815 | 815 | 0 | 0 | 43 | 779 | 776 | -3 | -0.39 |
| 44 | 842 | 841 | -1 | -0.12 | 44 | 807 | 804 | -3 | -0.37 |
| 45 | 840 | 840 | 0 | 0 | 45 | 801 | 799 | -2 | -0.25 |
| 46 | 852 | 854 | 2 | 0.23 | 46 | 811 | 811 | 0 | 0 |
| 47 | 833 | 832 | -1 | -0.12 | 47 | 791 | 793 | 2 | 0.25 |
| 48 | 838 | 840 | 2 | 0.24 | | | | | |

(a): Before irradiation.

(b): After irradiation.

付録 4 燃料粒子被覆層の破損評価と 被覆層応力解析の関連

1. はじめに

H T T R用燃料の健全性評価においては、被覆燃料粒子の被覆層(燃料粒子被覆層)の破損評価として、①燃料核移動(アメーバ効果)、②パラジウム(Pd)によるSiC層の腐食、の問題を取り上げ、破損評価を行っている^(A4-1)。そして、その評価結果及び照射健全性実証試験の結果から、燃料温度と燃焼度を制限することによって、燃料粒子被覆層の破損を十分許容しうる小さい値に制限できると評価している^(A4-1)。

一方、軽水炉燃料の健全性評価においては、被覆管の健全性を保つため、次に示す各項目について健全性評価が行われている。

- 1) 被覆管の応力解析
- 2) 被覆管の円周方向の引張り歪の増加
- 3) 被覆管の累積疲労損傷評価
- 4) 被覆材機械特性の照射による変化(スエリングを含む)
- 5) 内圧増加による被覆管の外向きクリープ変形
- 6) ペレット・被覆管相互作用による破損(P C I破損)

また、異常な過渡変化時及び事故時における燃料破損を防止するため、燃料エンタルピーの制限を設けている。

以下に、これらの各項目について、H T T R用燃料では検討が必ずしも必要ではないことを示す。

2. 総論

一般に、種々の異なった型式の原子炉の燃料の健全性を評価する場合、各々の燃料型式に応じて想定される燃料破損モードは異なっており、各々の想定される破損モードについて健全性を評価することが必要となる。その破損モードは、当該原子炉の開発試験や運転経験を通して明らかになってきているものである。

軽水炉においては、燃料ペレット内で生じる核分裂生成物(F P)による燃料ペレット

のスエリングが起こり、スエリング及び熱膨張に起因するペレット・被覆管機械的相互作用(PCM I)等による金属被覆管の機械的破損が主に問題となる。そのため、軽水炉では燃料の機械的破損を防止する観点から、以下に示す各項目について被覆管の応力解析による健全性評価を行っている。

また、高速増殖炉では、燃料温度が高いため、希ガスFP(Kr、Xe)の大部分が燃料ペレットから放出される結果、燃料ペレットのスウェリングは問題にならず、腐食性FPによるステンレス鋼製被覆管の腐食(燃料・被覆管化学的相互作用、FCCI)がむしろ問題となる。

一方、高温ガス炉用被覆燃料粒子については、文献(A4-1)の第2章に述べたように、燃料核(UO_2)のスエリングは、多孔質でかつ強度の小さい低密度熱分解炭素(第1層)によって吸収される構造である。また、燃料核から放出される気体FP、及び核分裂によって UO_2 から遊離した酸素が被覆層の炭素と反応して生じるCOガスは第1層の気孔中に蓄積される構造としているため、気体FP及びCOガスの内圧による被覆層の応力はHTTR燃料の温度及び燃焼度条件程度では、著しく上昇することはない。従って、被覆層の応力による被覆層破損の問題は、軽水炉燃料の場合とは異なって重要な問題とはならず、HTTR燃料の破損評価において、被覆層の応力評価を行う必要はないと考える。また、海外における燃料の照射試験や高温ガス炉の運転経験においても、被覆層の応力は燃料破損モードとして重要な問題とはなっていない。

3. 被覆層の応力解析

以下に、軽水炉燃料の破損評価において必要となる事項の各々について、HTTR燃料の燃料粒子被覆層の破損評価においては問題とならないことを示す。

3.1 被覆層応力解析(多層間の相互作用を含む)

文献(A4-1)の第2章に述べたように、燃料粒子被覆層に加わる応力としては、①燃料核から放出された気体FP及び核分裂によって UO_2 から遊離した酸素が被覆層の炭素と反応して生じたCOガスによる内圧、②第2層及び第4層の熱分解炭素(PyC)の高速中性子照射による収縮のためにSiC層(第3層)に加わる圧縮応力(締付け力)、及び、③逆に照射寸法変化が殆ど生じないSiC層による拘束のため、第2層及び第4層のP

y Cに加わる引張応力がある。

これらのうち、内圧による応力については、下の3.5に示す。

②、③の応力については、本文4.1節に示した。

保守的な解析において、S i C層に加わる圧縮応力は約6,000kg/cm²であった。この値はS i Cの圧縮破壊強度〔直接的なデータは得られていないが、4点曲げ強度(7,000~10,000kg/cm²)^(A4-2)より大きいことは確実である〕に比べて十分小さい値である。一方、第2層及び第4層に加わる引張応力に関して、実測値及び解析値は得られていないが、照射後被覆燃料粒子のX線ラジオグラフ等において、P y Cの引張応力による被覆層の破損は観察されていないことから、実際に第2層及び第4層に加わる引張応力は、P y Cの引張破壊応力よりは低い値であると判断できる。

また、文献(A4-1)の3.2.5項に示したように、HTTR燃料の温度及び燃焼度の範囲を超える照射試験において、照射後の被覆燃料粒子破損率は、 4×10^{-3} (0.4%)以下であり、十分許容しうる小さい値であった。また、照射後の被覆燃料粒子のX線ラジオグラフ等において、照射応力のために照射中に破損したと思われる例は観察されていない。

以上のことから見て、被覆層の応力によるものを含めて、HTTR条件下で燃料粒子被覆層の有意な破損は生じないと判断することができる。

3.2 被覆の引張歪の増加

被覆燃料粒子の被覆層のなかでは、S i C層の強度が最も大きく、また照射寸法変化は最も小さい。このために被覆燃料粒子全体の寸法安定性が保たれ、照射を受けても被覆層に生じる歪は極くわずかであることは、付録3に示したX線ラジオグラフィによるS i C層外径の照射前後の測定結果からも確認されている。上の3.1に示したように、照射後の被覆燃料粒子破損率は十分小さく、被覆層の歪による破損は仮に生じるとしても有意なものではないと判断することができる。

3.3 被覆累積疲労損傷

HTTR燃料の照射健全性試験においては、照射炉の起動・停止サイクルに伴って、被覆燃料粒子は熱サイクルを受ける。しかし、現在までの照射試験において、照射サイクルと被覆燃料粒子破損率との間に相関関係は見られておらず、破損率は十分低い値で

ある。なお、HTTR用燃料についての照射実績(20サイクル以上の実績有り)は、想定される熱サイクル数を満たすものである。以上のことから、被覆層の疲労が被覆層破損に及ぼす影響は、仮に存在したとしても有意なものではないと判断できる。

また、海外における高温ガス炉の運転経験においても、燃料粒子被覆層の疲労が原因で破損が生じた例は見られていない。

3.4 被覆材機械特性の照射による変化(スエリングを含む)

被覆材機械特性の照射による変化としては、上の3.1に述べたPyC層及びSiC層の照射寸法変化が挙げられる。これは、被覆材のスエリング効果を含む寸法変化であり、照射寸法変化に起因する応力または歪による被覆層の有意な破損が生じないことは、上の3.1及び3.2に述べた。

一方、燃料核のUO₂のスエリングは、軽水炉燃料ペレットのスエリングと同程度であると考えられる。しかし、燃料核(UO₂)のスエリングは、多孔質でかつ強度の小さい低密度熱分解炭素(第1層)によって吸収される構造であるため、スエリングによって、第2層、第3層及び第4層の破損を引き起こすほどの応力は生じないと考えることができる。

実際、照射後試験におけるX線ラジオグラフや断面組織観察において、燃料核のスエリングによると思われる被覆層破損は観察されていない。

3.5 内圧増加による被覆の外向きクリープ変形

上の3.2に述べたとおり、HTTRの条件下では、第2層及び第4層PyCの照射応力による締付け力が働くため、(照射開始直後の極く限られた期間に引張り側の応力が働く可能性はあるものの)、照射が少し進んだ後は、内圧を考慮しても、SiC層に引張り側の応力が働くことはない(本文4.1節参照)。従って、被覆層に外向きクリープ変形は生じない。

また、本報告書の本文4.1節に述べたとおり、被覆燃料粒子の内圧の実測値(室温で4kg/cm²以下)^(A4-3)は、保守的な解析評価値(約200kg/cm²)よりも十分低い値であった。更に、照射済被覆燃料粒子のX線ラジオグラフや断面組織観察において、被覆のクリープ変形を含めて内圧によって被覆層が破損したと思われる例は観察されていない。

3.6 燃料・被覆相互作用による破損(PCI破損)

燃料粒子被覆層にとって重要な破損モードとしては、①燃料核移動、及び②PdによるSiC層の腐食の問題が挙げられる。①は、 UO_2 の燃焼に伴う余剰酸素と被覆層の炭素の反応が原因となって生じるCOの、温度勾配下での移動及び炭素と酸素への解離によって生じると考えられている。また、②は、FPの1つであるPdとSiC層の化学反応によるものである。従って、両者は、広い意味では燃料と被覆の相互作用(化学的相互作用)に相当するものである。

燃料核移動及びPdによるSiC層の腐食に対して、燃料粒子被覆層の健全性が保たれることは、照射試験データに基づく評価(燃料核移動速度)及び照射済の被覆燃料粒子断面組織観察結果(PdによるSiC層の腐食距離)によって示しており、その結果は既に文献(A4-1)の第3章に記述している。

文献

- (A4-1) 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).
- (A4-2) T. D. Gulden, “Mechanical properties of polycrystalline β -SiC”, J. Am. Ceram. Soc. 52 (1969) pp.585-590.
- (A4-3) 福田幸朔, 他, “OGL-1第3次、第4次及び第5次燃料体の照射試験”, JAERI-M 86-092 (1986) p.100.