



高温工学試験研究炉(HTTR)初装荷燃料の
先行高燃焼度照射試験
(共同研究)

2002年6月

沢 和弘・角田 淳弥・植田 祥平・高橋 昌史・飛田 勉*
林 君夫・斎藤 隆・鈴木 修一*・吉牟田 秀治*・加藤 茂*

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

本レポートは、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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂
郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料セン
ター（〒319-1195 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。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information
Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2002

編集兼発行 日本原子力研究所

高温工学試験研究炉（HTTR）初装荷燃料の先行高燃焼度照射試験
(共同研究)

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

沢 和弘・角田 淳弥・植田 祥平・高橋 昌史・飛田 勉^{*1}

林 君夫⁺¹・斎藤 隆⁺²・鈴木 修一^{*2}・吉牟田 秀治^{*2}・加藤 茂^{*2}

(2002年4月10日受理)

本報告書は、平成7年度から開始した日本原子力研究所（原研）と原子燃料工業株式会社（原燃工）との共同研究「連続被覆法により製造した高温工学試験研究炉用燃料の照射健全性実証試験」の結果を示すものである。原研と原燃工は、これまで共同研究として HTTR 燃料の製造技術の開発を行い、その技術を用いて原燃工にて HTTR 初装荷燃料を製造した。HTTR 初装荷燃料は日本で初めて大量生産を行った高温ガス炉燃料であるため、品質管理を注意深く行った。これらの製造過程における品質管理に加え、照射健全性を確認するための照射試験を行った。照射は JMTR の 94F-9A スイープガスキャップセルで実施した。照射試料は初装荷燃料の製造ラインから抜取った。照射開始時の核分裂生成物ガスの放出率から、照射を行った燃料コンパクトには、製造時の貫通破損粒子が含まれていないことが分かった。また、HTTR の最高燃焼度 3.6%FIMA、最高高速中性子照射量 $1.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) まで燃料は破損することなく、健全であった。さらに、これらの値の約 2 倍である燃焼度 7.0 %FIMA、高速中性子照射量 $3.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ まで照射を継続したが、著しい追加破損は見られなかった。

本報告書は平成7年度～12年度における、原子燃料工業との共同研究の成果である。
大洗研究所：〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀 3607

+1 企画室

+2 材料試験炉部照射第1課

*1 原子力エンジニアリング株式会社

*2 原子燃料工業株式会社

Acceleration Irradiation Test of First-loading Fuel
of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) up to High Burnup
(Joint Research)

Kazuhiro SAWA, Junya SUMITA, Shouhei UETA
Masashi TAKAHASHI, Tsutomu TOBITA^{*1}, Kimio HAYASHI⁺¹, Takashi SAITO⁺²
Shuichi SUZUKI^{*2}, Shigeharu YOSHIMUTA^{*2} and Shigeru KATO^{*2}

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

(Received April 10, 2002)

This report describes result of an irradiation test for integrity confirmation of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR) fuel fabricated by continuous coating method, which was carried out in a framework of a joint research between Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) and Nuclear Fuel Industries Ltd. (NFI), from 1995. JAERI and NFI had developed HTTR fuel fabrication technologies. NFI fabricated the first-loading fuel of the HTTR by the developed technologies. Since the first-loading fuel of the HTTR was the first mass-production HTGR fuel in Japan, its quality was carefully inspected. In addition to the quality control and assurance of the fabrication process, an irradiation test for integrity confirmation was carried out. The irradiation was carried out as 94F-9A sweep gas capsule irradiation test in the JMTR. The irradiation specimens were taken from the fabrication line of the first-loading fuel. In the beginning of irradiation, measured fission gas release fraction showed that there was no as-fabricated through-coatings failed particle in the specimens. The result also proved that there was no failure up to 3.6% FIMA (Fission per Initial Metallic Atom) of burnup and $1.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) of fast neutron fluence, which are the maximum values in the HTTR core. In addition, the irradiation was continued and no significant additional irradiation-induced failure occurred up to 7.0% FIMA and $3.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$, which are about two times higher than the maximum burnup and fast neutron fluence in the HTTR core.

Keywords: Irradiation Test, HTTR, Confirmation, First-loading Fuel,
Fission Gas Release Fraction, Through-coatings Failed Particle,
Burnup, Fast Neutron Fluence

This Report is the result of the joint research with Nuclear Fuel Industries Ltd.

+1 Office of Planning

+2 Department of JMTR

*1 Nuclear Engineering Company, Ltd.

*2 Nuclear Fuel Industries, Ltd.

目 次

1.はじめに	1
2.照射試料の製作	3
2.1 燃料製作方法	3
2.2 検査結果	6
3.照射試験	13
3.1 照射キャプセルの製作	13
3.2 照射条件	13
3.3 希ガス放出率測定	15
4.考察	19
4.1 希ガス放出率評価	19
4.2 被覆層応力評価	23
5.まとめ	29
謝辞	30
参考文献	30
付録 高燃焼度燃料照射試験の結果	32

Contents

1. Introduction	1
2. Fabrication of Specimens	3
2.1 Fuel Fabrication Method	3
2.2 Inspection Result	6
3. Irradiation Test	13
3.1 Preparation of Irradiation Capsule	13
3.2 Irradiation Conditions	13
3.3 Fission Gas Release Measurement	15
4. Discussions	19
4.1 Evaluation of Fission Gas Release Fraction	19
4.2 Evaluation of Coating Layer Stress	23
5. Summaries	29
Acknowledgements	30
References	30
Appendix Results of High Burnup Fuel Irradiation Tests	32

1. はじめに

本報告書では、平成 7 年度から平成 12 年度にわたって実施した、日本原子力研究所（原研）と原子燃料工業株式会社（原燃工）との共同研究「連続被覆法により製造した高温工学試験研究炉用燃料の照射健全性実証試験」の結果を示す。

高温工学試験研究炉（High Temperature Engineering Test Reactor : HTTR）の初装荷燃料（A 型燃料体）は、Fig. 1-1 に示すようなピン・イン・ブロック型であり、燃料棒と六角柱型黒鉛ブロックからなる。燃料棒は、黒鉛スリーブに燃料コンパクトを 14 個封入したものである。燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛マトリックス材でオーバーコートした後、温間プレス、焼成したものである。HTTR の初装荷燃料の被覆燃料粒子は、Fig. 1-2 に示すような二酸化ウランの燃料核を 4 層被覆した TRISO 型である。高温ガス炉燃料では、主として被覆層が燃料からの核分裂生成物（FP）の放出を防ぐ機能を有している^(1,2)。被覆層の内側から第 1 層の低密度熱分解炭素層（バッファ層）は、気体状 FP のプレナム領域であるとともに、第 2 層を反跳核分裂片や燃料核のスウェリングから守る役割を持っている。第 2 層の等方性高密度熱分解炭素層（IPyC 層）は、気体状 FP の拡散障壁であるとともに第 3 層（炭化ケイ素：SiC 層）と FP の反応を抑制する役目を持っている。また第 3 層の蒸着時に被覆ガスと燃料核 (UO_2) の反応を防止する役目も持っている。第 3 層の SiC 層は金属 FP に対する拡散障壁であるとともに、被覆層の主要な強度部材となっている。第 4 層の等方性高密度熱分解炭素層（OPyC 層）は気体状 FP の拡散障壁であるとともに、第 3 層を機械的に保護する役割も有している。初装荷燃料の使用条件は、燃料最高温度約 1320°C（ノミナル値）、最大燃焼度 33GWd/t、高速中性子照射量 $1.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ である^(3,4)。

原研と原燃工は、これまで HTTR 燃料の製造法の開発を行い、その成果を基に初装荷燃料を原燃工の HTR 燃料製造施設で製造した⁽⁵⁻⁷⁾。燃料核は、1995 年 5 月より製造準備及び製造設備の最終確認を行い、6 月より製造を開始した。6 月中旬には被覆燃料粒子、6 月下旬には燃料コンパクトの製造を順次開始した。燃料棒の組立は 1996 年 10 月より開始した。1997 年 9 月から計 4770 本の燃料棒を 3 回に分割して HTTR 原子炉建家に搬入し、150 体の燃料体の組み立てを行った。現在、全燃料体を炉心内に装荷し、出力上昇試験を実施している⁽⁸⁾。

HTTR 初装荷燃料は、これまでの研究開発成果に基づく製造方法により製作し、製造

過程及び最終製品での試験検査を実施して品質を確認している。さらに万全を期すため、HTTR の運転開始に先行して、初装荷用として製造した燃料の一部を JMTR のガススイ-プキャップセル（94F-9A）に封入して、照射試験を実施した。試験中の燃料挙動は、スイープガスをサンプリングし、核分裂生成物希ガス濃度を測定することにより観察した。

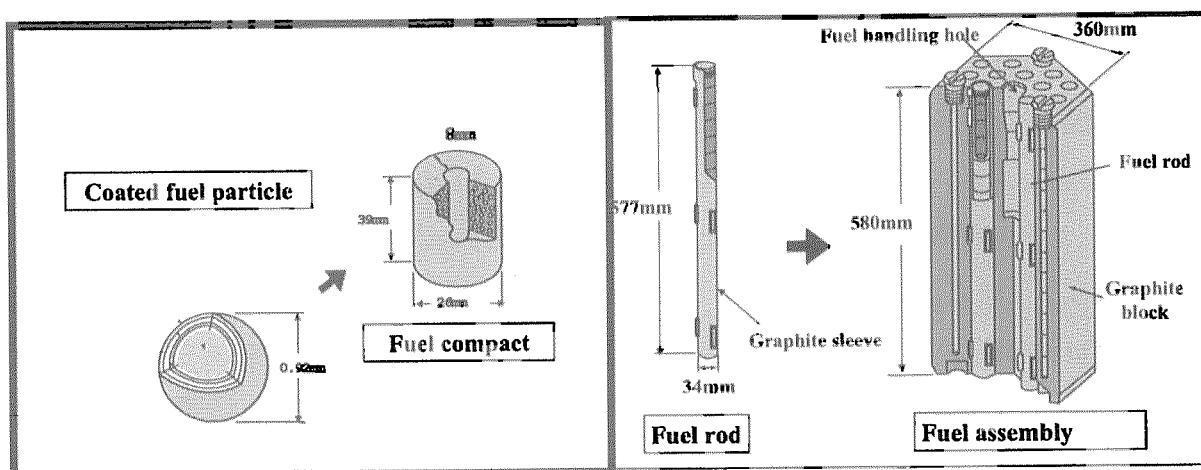


Fig. 1-1 HTTR fuel assembly.

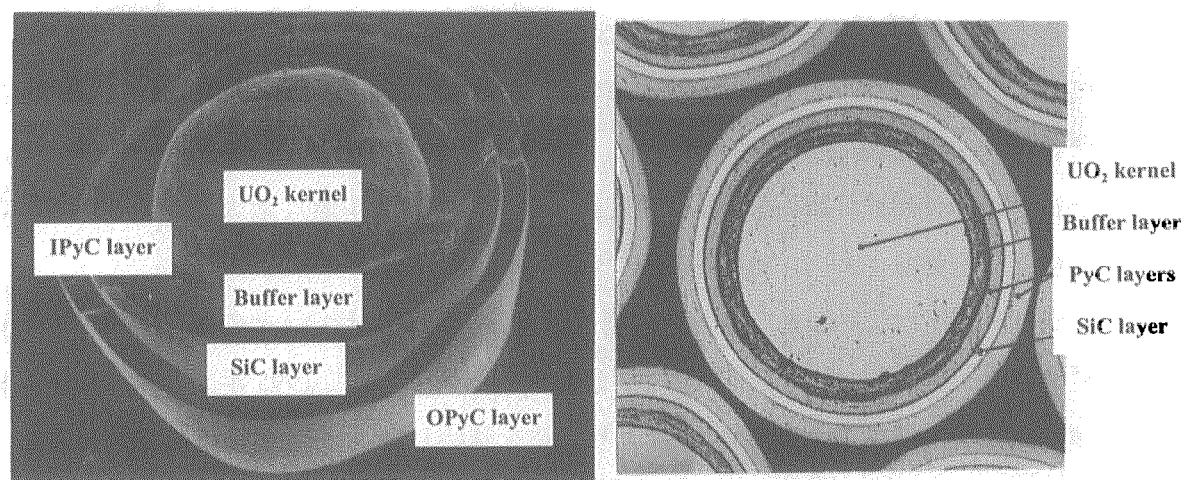


Fig. 1-2 TRISO coated fuel particle.

2. 照射試料の製作

照射試料は、HTTR 初装荷燃料の製造ラインから被覆燃料粒子を抜取り、必要なウラン装荷量となるように SiC 球を核とした希釈粒子を混合して、粒子充填率を合わせて燃料コンパクトを成型した。以下に、主な製造方法及び検査結果を示す。

2.1 燃料製作方法⁽⁷⁾

(1) ^{235}U 濃縮度調整工程

HTTR 初装荷燃料の ^{235}U 濃縮度は出力分布を最適化して燃料最高温度を低減化するために、3.4～9.9 wt% の計 12 種類で構成されている⁽³⁾。このうち 3.4、3.9、9.4、9.9 wt% の 4 濃縮度の U_3O_8 粉末を原料ウランとして調達し、残りの 4.3、4.8、5.2、5.9、6.3、6.7、7.2、7.9 wt% の 8 濃縮度について濃縮度調整を行った。照射試験には、十分余裕を持って HTTR 最高燃焼度を達成するため、濃縮度 7.9% の被覆燃料粒子を用いた。

(2) 燃料核工程

燃料核の製造工程フローを Fig. 2-1 に示す。被覆層の機械的強度は被覆燃料粒子の真球度に依存しているが、粒子の真球度は芯材である UO_2 燃料核の直径分布及び真球度に大きく依存している。製造設備のバッチサイズは 4.3kg-U である。

燃料核の製造方法はいわゆる外部ゲル化法であり、まず硝酸ウラニルと添加剤の調整液（以下、メタル溶液）の液滴を生成し、アンモニア水中でゲル化して ADU 粒子とする。これを空気中で仮焼して UO_3 粒子とし、水素雰囲気中で還元・焼結させて UO_2 燃料核とする。

燃料核の直径分布と真球度はメタル溶液の液滴の直径分布及び真球度に大きく依存するため、滴下方法を改良した。従来は内側ノズルがメタル溶液、外側ノズルが窒素ガスの 2 流体ノズルを使用し各々の流量調節により液滴直径を制御していたが、液滴直径の制御を容易にし、直径分布を向上させるために振動ノズルを用いた。振動ノズルは(2-1) 式に示すようにメタル溶液流量とノズルの振動数のみを変数として一義的に液滴直径を決めることができる。

$$Q = \frac{\pi D^3}{6} \times f \quad (2-1)$$

ここで、
 Q : メタル溶液流量、
 D : 液滴直径、
 f : ノズルの振動数

である。

液滴の真球性を向上させるため、硝酸ウラニルに添加剤を混合してメタル溶液の粘度調整を行った。この結果、液滴は振動ノズルから落下直後に表面張力によって真球となり、アンモニア水中へ着水後も十分に真球を維持する。その後、液滴をアンモニア水中でゲル化させて ADU 粒子とし、550°C の空気中で仮焼して UO₃粒子とした。次いで水素雰囲気中で還元して UO₂粒子とし、最後に 1600°C で焼結して密度約 97% 理論密度(T.D.)の UO₂ 燃料核とした。燃料核は全数を篩により直径選別を行った後、振動テーブルにより真球度選別を行った。

(3) 被覆工程

被覆工程は「流動床」と呼ばれる被覆装置を使用して、燃料核の周囲に被覆層を蒸着して被覆燃料粒子を製造する工程である。HTTR 初装荷燃料の製造に先立ち、生産性の向上と高品質化を目指した製造技術の開発を行い、被覆工程のバッチサイズは、従来の 2.0kg-U/バッチから 3.4kg-U/バッチに大型化したもの用いた。

Figure 2-2 に被覆燃料粒子の製造工程を示す。被覆工程の手順は、流動ガスとしてアルゴン(Ar)を供給し、燃料核を黒鉛製反応管内で流動させる。この状態を維持して所定の被覆温度まで昇温した後、被覆ガスを流動ガスと混合して供給する。第 1 層の低密度熱分解炭素の場合は 1400°C で被覆ガスにアセチレン(C₂H₂)、流動ガスにアルゴン(Ar)を使用する。この後、流動ガスを瞬間的に停止して、第 1 層密度測定試料の 1 層被覆粒子をサンプリングする。第 2 層の等方性高密度熱分解炭素の場合は 1400°C で被覆ガスにプロピレン(C₃H₆)、流動ガスに Ar を使用する。この後、第 2 層密度及び第 1、2 層厚さ測定試料の 2 層被覆粒子をサンプリングする。第 3 層の SiC の場合は 1600°C で被覆ガスにメチルトリクロロシラン(MTS : CH₃SiCl₃)、流動ガスに水素(H₂)を使用する。第 4 層の等方性高密度熱分解炭素の場合は 1400°C で被覆ガスに C₃H₆、流動ガスに Ar を使用する。第 4 層被覆終了後、降温して被覆燃料粒子を粒子取出口から回収し、篩による直径選別と振動テーブルによる真球度選別を行う。この被覆燃料粒子から第 3、4 層密度、第 3、4 層厚さ及びその他直径、光学的異方性(OPTAF)等の測定試料をサンプリングす

る。

照射試料、すなわち初装荷燃料の製造のうち、被覆工程では製造時の被覆層破損率の低減を目的とし、被覆燃料粒子の取出回数の低減化及び流動条件の最適化を行った⁽⁶⁾。

(4) 燃料コンパクト工程

燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を黒鉛マトリックス材でオーバーコートし、粒径選別、乾燥した後、温間プレスにより成型、予備焼成、焼成を行い製造する。高温ガス炉燃料の性能上最も重要な製造時の被覆層破損は、現在の技術ではこの燃料コンパクト工程で主に発生すると考えられている。そのため、初装荷燃料の製造に先立って行われた燃料コンパクトの温間プレス条件の最適化の結果⁽⁶⁾を製造に反映した。

検査に合格した被覆燃料粒子（通常は約 3kg-U）を黒鉛粉末及びバインダを一定の割合で混合した黒鉛マトリックス材でオーバーコートし、オーバーコート粒子とする。黒鉛マトリックス材は、燃料コンパクトの物性に直結するため、これまでの照射実績に基づき、石油系黒鉛 2 割+天然黒鉛 8 割(P_2N_8)にフェノール樹脂バインダ 20%を加えたものとしている。篩選別したオーバーコート粒子のオーバーコート層の厚さは 200~300μm である。燃料コンパクト 1 個分のオーバーコート粒子を秤量し、燃料コンパクト成型装置にて温間プレスを行う。この時、プレスまでの予熱条件とプレス時の温度及びパンチ速度を適切に選定しないと、①黒鉛マトリックス材が必要以上に流動化し、被覆燃料粒子同士の接触が生じ被覆層破損に至る、②黒鉛マトリックス材が軟化せず、被覆燃料粒子に過大な外圧が加わり被覆層破損に至ることが分かっている。そこで、燃料コンパクト製造に当たっては、これらの条件を重点的に管理した。

照射用燃料コンパクトには、発熱量を調整するため、SiC 球を核とした模擬燃料粒子を混合した。

その後、黒鉛マトリックス材に含めたバインダを炭化させるために、成型した燃料コンパクト（グリーンコンパクト）の予備焼成を行う。この際、燃料コンパクトの寸法収縮が起こるため、被覆燃料粒子同士が接触していると被覆層の機械的破損が生じるおそれがあるため、加熱条件を管理した。その後脱ガスのために真空中焼成を行った。

2.2 検査結果^(7,9)

照射用燃料の試験検査結果を以下に示す。照射用燃料の被覆燃料粒子は、初装荷燃料のうち、濃縮度 7.9wt%の製品から抜き取ったものである。燃料コンパクトについては、模擬粒子を混合して 2 種類のウラン量に調整した。

(1) 燃料核検査

燃料核検査の結果を Table 2-1 に示す。主な検査は、以下のとおりである。

- ・ 真球度

燃料核の最大直径と最小直径の比が 1.2 を超えない粒子が 95%以上であることを判定基準とした。測定は PSA を用いて行い、1 粒子について直径を 50 回測定し、その最大直径と最小直径の比を真球度と定義した。従来に比べて真球度の良い燃料核を製造できた。

- ・ O/U 比

照射健全性を確認するための試験であり、判定基準は $2.00^{+0.01}_{-0.00}$ である。燃料核試料 4g を約 850°C で焙焼酸化して U_3O_8 とする酸化重量法により測定した。

- ・ 不純物

被覆層に害を与えるような不純物が多く存在しないことを確認し、照射健全性を確保するとともに、核的性能を確認する。Table 2-1 では、ホウ素当量の結果のみを示しているが、その他、発光分光法、吸光光度法等により多くの不純物を測定した。

発光分光法では、試料を酸化し U_3O_8 に変換した後、アーケ発光のスペクトルにより試料に含まれる不純物量を定量した。発光分光分析法による測定対象元素と判定基準は以下のとおりである。

Ag<1, Al<500, B<1, C<300, Ca<200, Cd<1, Cl<25, Cr<30, Cu<10, F<5, Fe<500,
Gd<0.2, Mg<100, Mo<25, Ni<70, Pb<10, Si<200, Sm<0.2, Sn<30 (ppm)

吸光光度法では、試料から対象元素を化学処理により抽出し、元素特有の発色剤を加え着色する。この色と同じ波長の光を透過させ、吸収される光量を測定することにより濃度を定量した。吸光光度法による測定対象元素と判定基準は以下のとおりである。

N<100 (ppm),

Cl<25, F<5 (ppm) : パイロハイドリシス分離 - 吸光光度法

C<300 (ppm) : 高周波加熱一赤外線吸収法

蒸発性不純物については、真空加熱一定容測定法により $80\mu\text{g}\cdot\text{UO}_2$ 以下であることを確認した。

(2) 被覆層検査

被覆層検査の結果を Table 2-2 に示す。主な検査は、以下のとおりである。

- ・ 被覆層厚さ

被覆層厚さは、X 線ラジオグラフによる写真を画像処理し、各被覆層の濃度差からその境界を判定する方法により測定した。4 層被覆粒子で画像処理を行うと、第 1 層と第 2 層の濃度差が明確にならないため、第 1 層及び第 2 層の厚さは被覆途中でサンプリングして取出した 2 層粒子を用いて測定した。第 3 層及び第 4 層の厚さは 4 層被覆粒子を用いて測定した。このうち、SiC 層は被覆燃料粒子全体の強度健全性を保持する機能を有するため、より厚く製造するよう片側公差として製造した。

- ・ 密度

密度検査は広い意味での照射健全性を担保するための検査であり、判定基準はこれまでの照射実績に基づき定めた。第 1 層については、判定基準を $1.10 \pm 0.10 \text{ Mg/m}^3$ とし、水銀置換装置を用いて 1 層被覆粒子及び燃料核の体積、重量の測定値から計算で求めた。第 2 層は第 1 層表面の凹凸部の上に蒸着してあるので剥がれにくいため、第 2 層の一部を研磨によって採取し、N-ジメチルホルムアミド重液を用いて浮遊沈降法で測定した。判定基準としては、目標値として従来の照射試験用試料と同じ $1.85^{+0.10}_{-0.05} \text{ Mg/m}^3$ とした。

第 3 層は、被覆燃料粒子を機械的に破壊、焙焼、硝酸処理し、SiC 試片を採取し、ヨウ化メチレン-ベンゼン重液を用いて浮遊沈降法で測定した。判定基準としては、目標値として従来の照射試験用試料と同じ 3.20 Mg/m^3 以上とした。

第 4 層密度は、液浸置換法で 4 層被覆燃料粒子及び焙焼後の SiC 被覆燃料粒子の体積を、またそれぞれの重量を測定し、その差から計算で求めた。判定基準については、第 2 層と同一である。

(3) 被覆燃料粒子検査

被覆燃料粒子検査の結果を Table 2-3 に示す。主な検査として、直径及び真球度を測定した。

(4) 燃料コンパクト検査

燃料コンパクト検査の結果を Table 2-4 に示す。主な検査は、以下のとおりである。

- ・ 露出ウラン率及び SiC 層破損率

露出ウラン率は、燃料コンパクト中の全ウラン量に対するコンパクト中の全浸出ウラン量として定義されているものであり、燃料コンパクトマトリックス部の汚染ウラン及び貫通破損粒子（高密度熱分解炭素層（第 2、4 層）及び SiC 層（第 3 層）が全て破損している粒子）中のウラン量を測定する。したがって、運転開始後の主たる核分裂生成物放出源を測定する極めて重要な検査項目である⁽⁸⁾。

燃料コンパクトを硝酸水溶液中で電気解碎し、被覆燃料粒子及び黒鉛マトリックス粉末とした後、硝酸水溶液中で煮沸してウランを浸出させる。この際、高密度熱分解炭素層又は SiC 層が健全ならば、被覆燃料粒子中のウランは浸出しない。浸出液と黒鉛マトリックスを濾過分離した後、浸出液を一定量分取、乾固させる。これにアルセナゾ-III を加え、吸光光度法によりウラン量を測定し、露出ウラン率を算出した。判定基準は 1.5×10^{-4} 以下である。

SiC 層破損率は、燃料コンパクト中の全ウラン量に対する SiC 層破損粒子中のウラン量として定義されているものである。実際には、SiC 層破損粒子（SiC 層が破損している粒子）及び燃料コンパクトマトリックス部の汚染ウランを測定する。本測定では、貫通破損粒子も SiC 層破損粒子の一部として計測される。いわゆる SiC 層破損粒子は、被覆燃料粒子の機械的強度を決定している SiC 層に欠陥がある粒子であるため、健全粒子に比べて照射に伴って破損に至る可能性が高い^(2,8)。したがって、本検査項目は運転開始後の燃料挙動を把握する上で極めて重要である。また、製造においては、燃料コンパクトプレス時等において発生しやすい破損形態であり、製造過程の妥当性を把握する上でも重要な検査項目である。

燃料コンパクトを空気中で焙焼し、燃料コンパクトマトリックス及び被覆燃料粒子第 4 層を除去する。SiC 層に破損がある被覆燃料粒子は、外部から酸化し第 2 及び第 1 層の黒鉛被覆層が除去されると同時に、 UO_2 燃料核が酸化により U_3O_8

になる。この際、燃料核の体積膨張が生じるため、SiC層の破損部が拡大する。焙焼後の粒子を硝酸水溶液中で煮沸してウランを浸出させる。その後は露出ウラン率と同じく吸光光度法によりウラン量を測定する。判定基準は 1.5×10^{-3} 以下である。

- ・ 粒子充填率

粒子充填率は燃料コンパクト内の被覆燃料粒子の体積割合を規定するもので、これまでの経験から粒子充填率が高くなりすぎると燃料コンパクトプレス時に粒子同士の接触確率が高くなり製造時破損率が高くなると考えられている。一方、燃料コンパクト中のウラン量を確保するために、粒子充填率の範囲は規定される。判定基準は $30 \pm 3\text{vol\%}$ とした。粒子充填率は、オーバーコートした被覆燃料粒子とオーバーコート層を除去した被覆燃料粒子の重量を測定し、計算により求めた。

- ・ マトリックス密度

本検査項目も照射中の燃料コンパクトマトリックス部の挙動を決定するうえで重要なもので、これまでの照射研究における実績に基づき、判定基準を $1.70 \pm 0.05\text{Mg/m}^3$ とした。マトリックス密度は、オーバーコートした被覆燃料粒子とオーバーコート層を除去した被覆燃料粒子の重量を測定し、計算により求めた。

Table 2-1 Inspection results of fuel kernels.

Item	Criteria	Results
Enrichment (wt%)	7.9±0.1	7.820
Diameter (μm)	600±55 ($\sigma \leq 25$)	615 ($\sigma=8.6$)
Sphericity	95% of kernels should be ≤ 1.2	100% of kernels < 1.2
Density (Mg/m^3)	10.63±0.26	10.85
O/U ratio	2.00 ^{+0.01} _{-0.00}	2.00
Impurity (ppm EBC*)	≤ 3	< 0.92

* EBC: Equivalent Boron Content

Table 2-2 Inspection results of coating layers.

Item	Criteria	Results
Buffer layer thickness (μm)	60±12 ($\sigma \leq 12$)	59.4 ($\sigma=7.3$)
IPyC layer thickness (μm)	30±6 ($\sigma \leq 5$)	30.3 ($\sigma=2.0$)
SiC layer thickness (μm)	25 ⁺¹² ₋₀ ($\sigma \leq 4$)	28.9 ($\sigma=0.7$)
OPyC layer thickness (μm)	45±6 ($\sigma \leq 5$)	47.1 ($\sigma=3.3$)
Buffer layer density (Mg/m^3)	1.10±0.10	1.14
IPyC layer density (Mg/m^3)	1.85 ^{+0.10} _{-0.05}	1.88
SiC layer density (Mg/m^3)	≥ 3.20	3.20
OPyC layer density (Mg/m^3)	1.85 ^{+0.10} _{-0.05}	1.86

Table 2-3 Inspection results of coated fuel particle.

Item	Criteria	Results
Diameter (μm)	920 ⁺⁵⁰ ₋₃₀ ($\sigma \leq 40$)	912 ($\sigma=22$)
Sphericity	95% of kernels should be ≤ 1.2	100% of kernels < 1.2

Table 2-4 Inspection results of fuel compact.

Item	Criteria	Results
Enrichment (wt%)	7.9±0.1	7.833
O/U ratio	2.00 ^{+0.01} _{-0.00}	2.000
Impurity (ppm EBC*)	≤ 5	≤ 0.89
Exposed uranium fraction	$\leq 1.5 \times 10^{-4}$	$\leq 3.2 \times 10^{-6}$
SiC-failure fraction	$\leq 1.5 \times 10^{-3}$	$\leq 3.2 \times 10^{-6}$
Uranium content ($\text{g} \cdot ^{235}\text{U}/\text{cm}^3$)	0.188±0.009 0.167±0.008	0.189 0.168
Outer diameter (mm)	26.0±0.1	26.05
Inner diameter (mm)	10.0±0.1	10.03
Height (mm)	39.0±0.5	39.03
Coated fuel particles packing fraction (vol%)	30±3	28
Matrix density (Mg/m^3)	1.70±0.05	1.68
Heterogeneity of uranium (%)	≤ 10	5.0

* EBC: Equivalent Boron Content

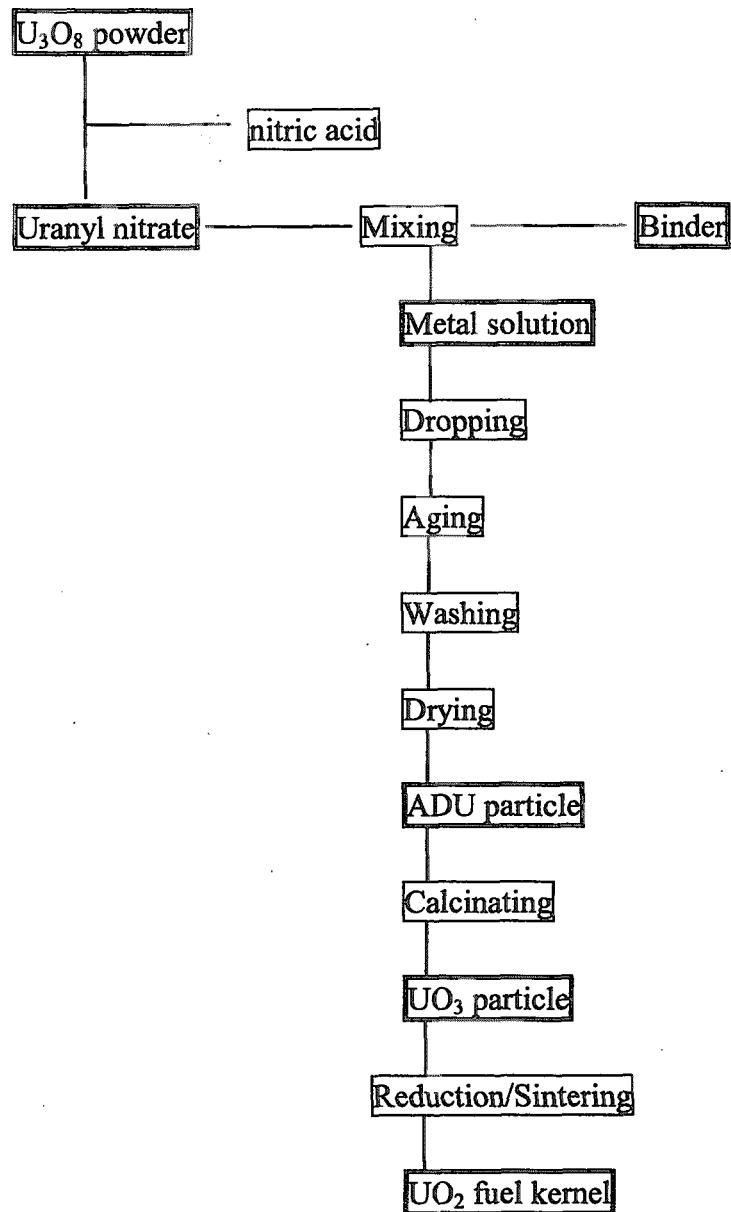


Fig.2-1 Production flow of fuel kernel.

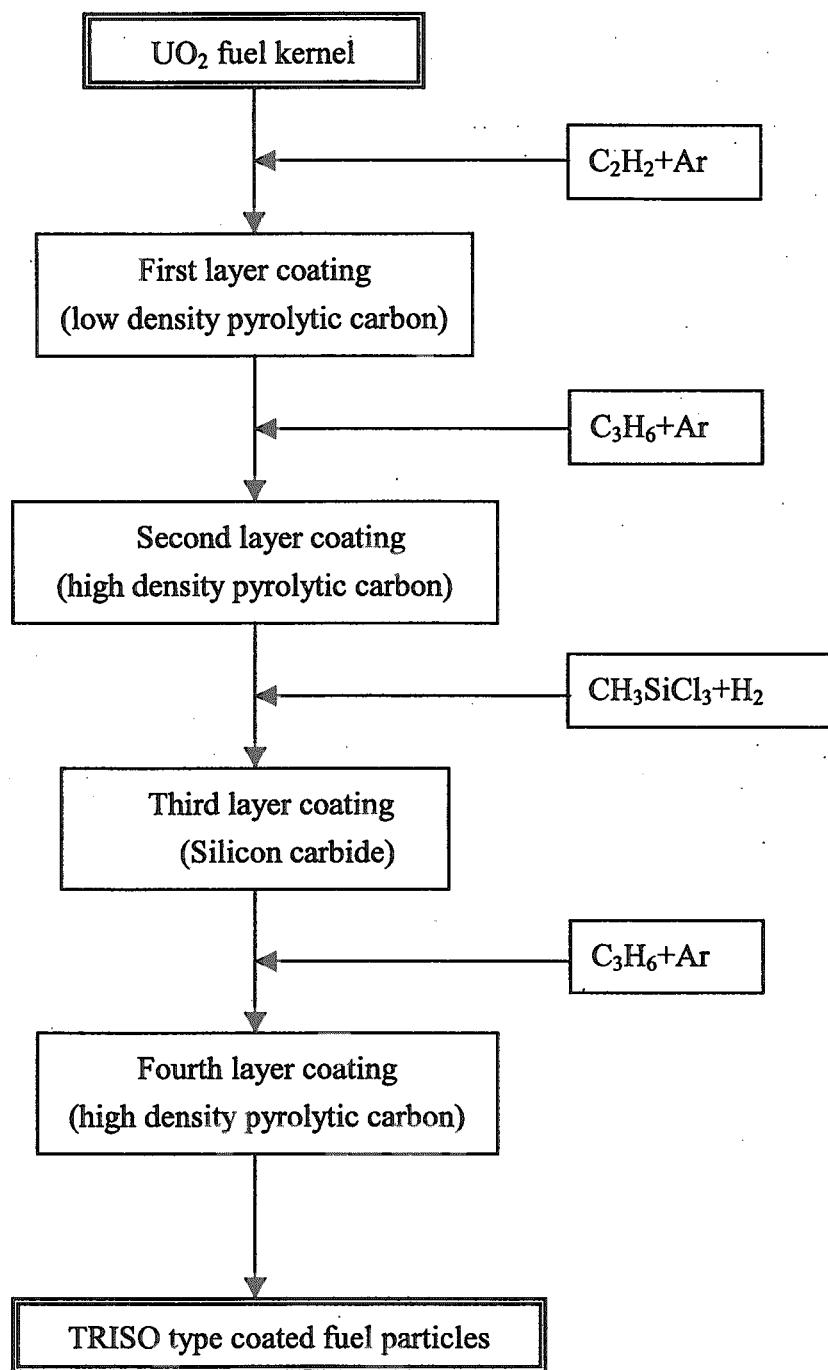


Fig.2-2 Fabrication process of coated fuel particle.

3. 照射試験

3.1 照射キャップセルの製作

第2章で示した照射試験用燃料は、平成7年にHTTR初装荷燃料用として製造した被覆燃料粒子（ ^{235}U 濃縮度7.9%）をコンパクトに加工したものである。キャップセルは、平成7~8年度にかけて設計、部品製作、組立検査等を行った。94F-9Aガススイープキャップセルの構造は、製作および照射とともにこれまでに実施した粒子燃料の試験研究で実績のある、上／下2段式とし、内筒はNb-1%Zr製で燃料に対して2重に密封した構造とした。94F-9Aガススイープキャップセルの構造図をFig. 3-1に示す。照射開始時の燃料温度計測及び制御はコンパクトの中心に配したW/Re熱電対で行うが、照射の進行とともに起電力低下が生じるため、温度制御は途中からキャップセル内筒に挿入したN型熱電対（Nicrosil-Nisil）で行った。キャップセルの製作は原研工作課で行い、部品の準備は平成8年3月から開始し、8月に完了し、その後、部品の組立を行った。

3.2 照射条件

Table 3-1に94F-9Aキャップセルの照射条件を示す。照射試験は燃料温度1300°Cとし、燃焼度についてはHTTR初装荷燃料の設計燃焼度3.6%FIMAを目標に4%FIMAと設定した。燃焼度目標値を達成し、その時点で燃料破損が生じていないことを確認した後、燃料の使用限界を知る目的でさらに8~9%FIMAの燃焼度を目標にして照射試験を継続した。照射試料はJMTR照射孔の中性子束、燃焼度、照射時間等を考慮して ^{235}U 濃縮度7.9%とした。また、JMTRの照射孔は中性子束が高く、HTTR仕様の燃料コンパクトではウラン装荷量が多くなり、キャップセルの発熱量が過大となるため、キャップセル試料は充填する燃料粒子の一部を模擬の被覆粒子（SiC核粒子）としてウラン量を調節した。これは、コンパクト型燃料の照射中の健全性は、プレス時の被覆層の損傷に関連しており、プレス時の被覆層の損傷は粒子充填率と相関がある可能性が高いため、模擬粒子を含めた粒子充填率をHTTR燃料と同一とするためである。また、炉心では照射位置によっても中性子束が変化するため、照射試料はキャップセルの上側部（上段）と下側部（下段）で被覆燃料粒子（またはSiC核粒子）の割合を変えることによりウラン装荷量を変え、発熱が均一になるように調節した。

照射はJMTRのM-10照射孔で平成9年11月の第120運転サイクルから開始し、平

成12年10月の第135運転サイクルまで行った。この間の照射時間は8733時間である。照射中の燃焼度及び高速中性子照射量の変化(計算値)をFigs.3-2及び3-3に示す。照射末期の燃焼度及び高速中性子照射量の最高値は、それぞれ $3.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ (E>0.18MeV)、7.0%FIMAと評価されている。最終的には平成13年度から実施する予定の照射後試験により燃焼度及び高速中性子照射量を確認する。

高温で行う燃料の照射試験は試料の燃焼が進むにつれて発熱量も小さくなるので、照射温度を一定に保って試験を続けるためにはキャプセルの温度制御を行う必要がある。特に被覆燃料粒子のように高温で長時間の照射試験を行う場合、その温度を一定に持続して制御することは非常に難しい。このため、被覆燃料粒子を照射するキャプセルでは試料を封入した試料筒とキャプセル外筒の間にHeガスを満たし、このガス濃度を調節(真空度の調節)することによって照射試料の温度調節(温度制御範囲:300~400°C)を行った。

照射中の試料温度は、燃料コンパクト中心の10μの孔の箇所にW/Reの熱電対を挿入して直接測定した。このため、照射開始初期の試料温度は正しく計測できるが、試験が進むにつれてW/Re熱電対の起電力低下(熱中性子照射により組成変化を生じ、熱起電力が減少する)が生じ、指示温度に誤差が生じる。従って、試料温度は照射試験が進むにつれて計測温度の補正が必要となる。94F-9Aキャプセルではこの計測による温度誤差を小さくするため、照射開始から3サイクル照射(約70EFPD)までをW/Reの熱電対で計測・制御し、4サイクル目以降は燃料試料部から離れた低温部に配した、中性子照射による熱起電力変化が小さいニクロシル・ニシル熱電対(N型熱電対)で制御を行って、中性子照射による熱電対の起電力低下により試料温度が正しく制御できなくなることを避けた。

照射中の燃料コンパクト内面温度(中心部=最高温度)の評価値をFig.3-4に示す。照射開始から約70EFPD(Effective Full Power Days)の燃料温度は1300~1350°Cであり、その後1200°C程度で推移した。336EFPDから照射終了までは、スイープガス配管にクラックが生じたことが、供給ヘリウムガス中の水分を高くする可能性があるため、真空制御により昇温せず、ヘリウムを充填し断熱状態を解除することにより、燃料温度を下げた状態(ヘリウムダンプ状態)で照射を行った。この時の燃料温度は700~800°C程度であった。

3.3 希ガス放出率測定

照射中の燃料挙動は、スイープガス中の核分裂生成物ガス濃度の測定に基づき、放出率（R/B）値を算出して監視を行った。本試験では、HTTR の出力上昇試験時に 1 次冷却材のヘリウムガス中に放出される核分裂生成物ガス濃度の予測に用いるデータを取得するために、燃料温度が低い JMTR の出力上昇の中間時にもサンプリングを行った。

全照射期間中の定常状態における⁸⁸Kr の（R/B）を Fig. 3-5 に示す。照射下における被覆燃料粒子の（R/B）は、粒子被覆層の破損率等の予測を行う上で有用な因子である^(10,11)。照射中に燃料から放出される FP ガスについては、Kr について 4 核種、Xe について 5 核種を測定、解析を行ったが、そのうち⁸⁸Kr 核種は生成及び壊変を含めて解析誤差を最も小さくできるため、代表核種として取り扱い、他の核種については解析の補足とした。

Table 3-1 Irradiation conditions of 94F-9A capsule.

Irradiation cycles	JMTR No.120～135
Irradiation time	8733 hours
Irradiation temperature	1300°C
Fast neutron fluence ($E > 0.18\text{MeV}$)	$2.3 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ (upper) $3.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ (lower)
Burnup	5.5 %FIMA (upper) 7.0 %FIMA (lower)

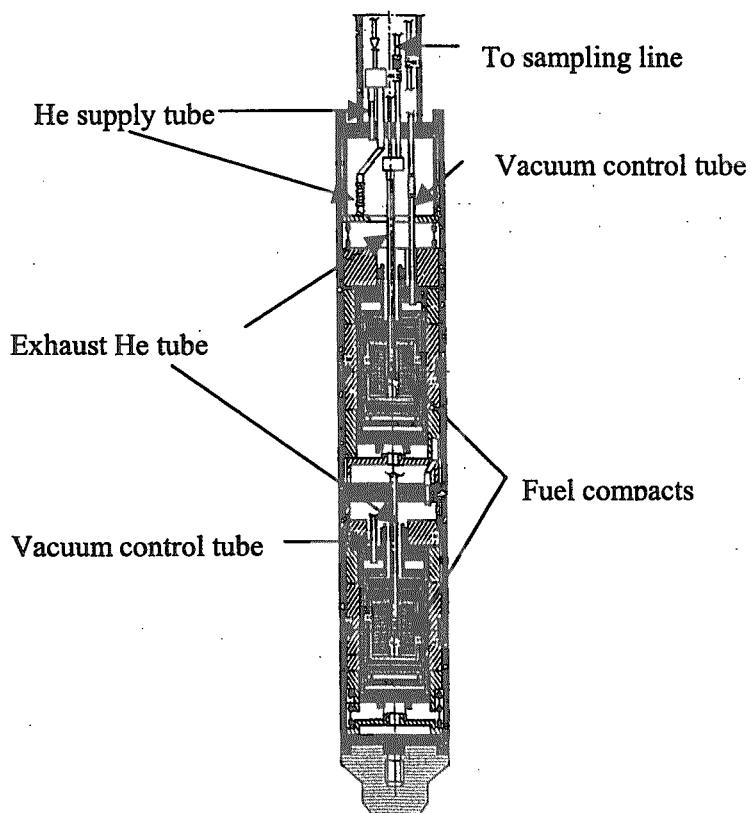


Fig. 3-1 Structure of 94F-9A capsule.

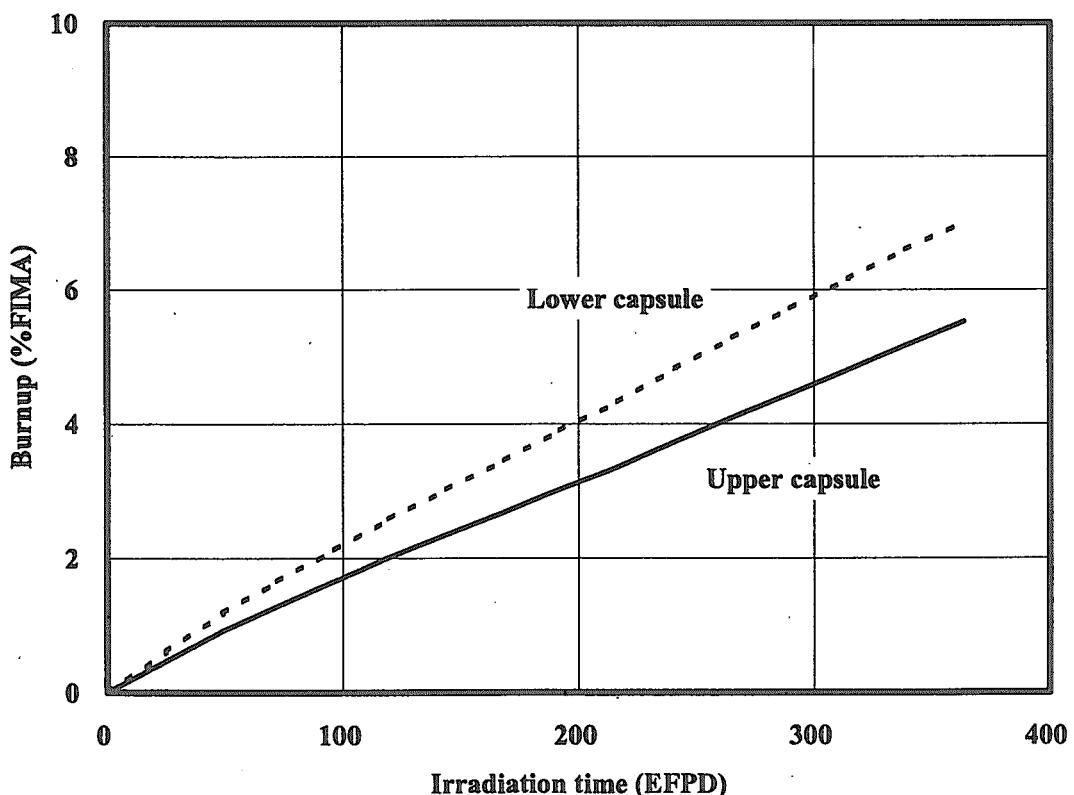


Fig. 3-2 Burnup during 94F-9A capsule irradiation test.

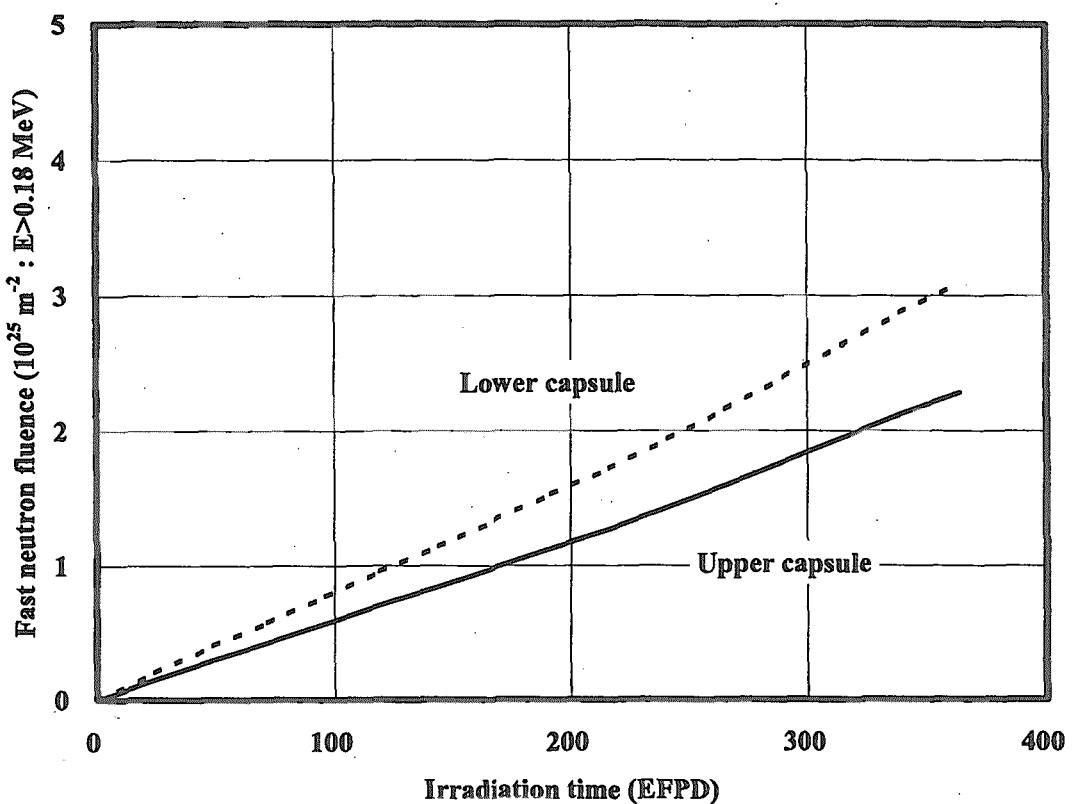


Fig. 3-3 Fast neutron fluence during 94F-9A capsule irradiation test.

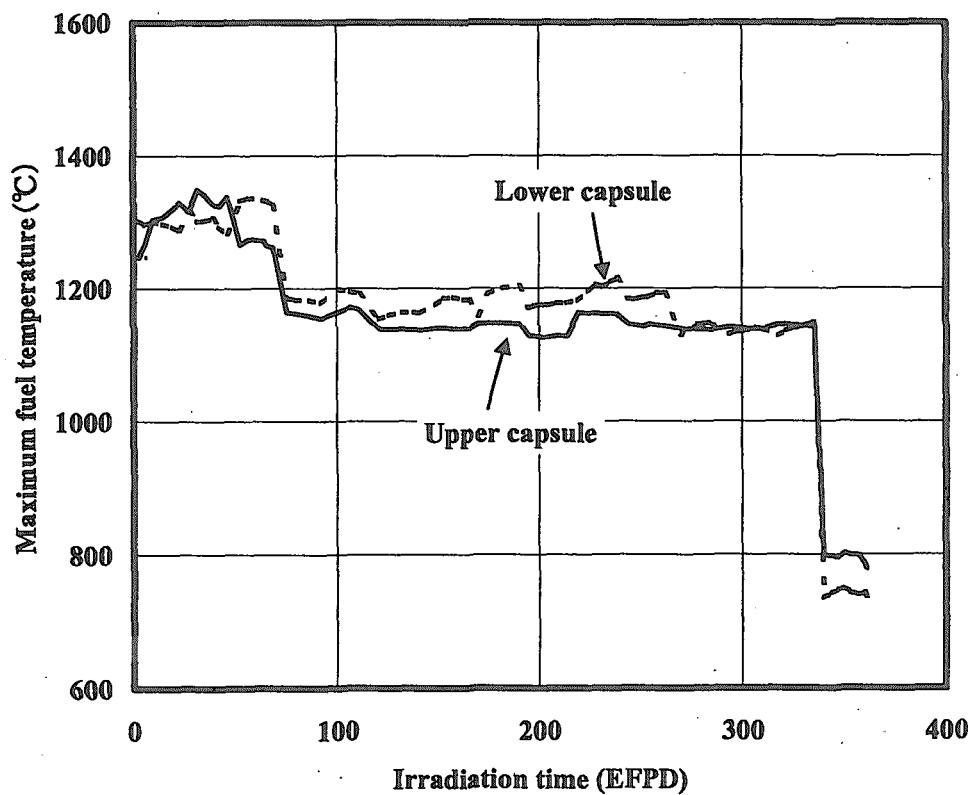


Fig. 3-4 Fuel temperature during 94F-9A capsule irradiation test.

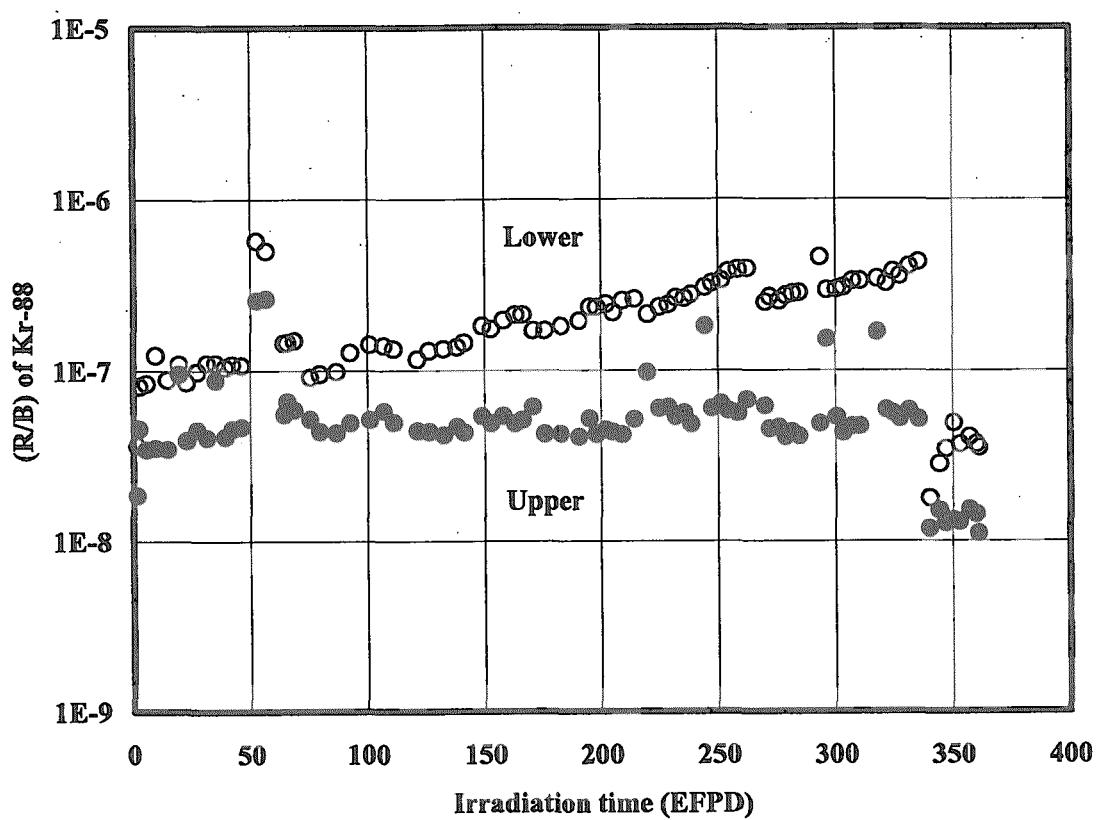


Fig. 3-5 (R/B) of ^{88}Kr during 94F-9A capsule irradiation test.

4. 考察

4.1 希ガス放出率評価

(1) 解析モデル

燃料粒子の被覆層は短半減期の希ガスをほぼ完全に閉込めることができるために、短半減期希ガスは、主に被覆層（PyC層及びSiC層）が全て破損した燃料粒子（貫通破損粒子）及び燃料コンパクトの黒鉛素地部（マトリックス部）の汚染ウランから放出される。希ガスには短半減期のものが多く、放射平衡が成立するため、通常時の放出割合は放出速度と生成速度の比である（R/B）値で表すことができる。希ガス放出率評価モデルは、

（1）貫通破損粒子からの放出とマトリックス部の汚染ウランからの放出を分離して取扱うこと、及び（2）燃料核からの放出率に燃焼依存性を、燃料コンパクトマトリックス部における放出率に高速中性子照射依存性を考慮することに特徴がある。具体的には、以下のような放出経路をモデル化している^(4,11)。

- ① 貫通破損粒子内で発生した核分裂生成物のうち、反跳放出されたものは、黒鉛粒及び黒鉛粒界（総称してマトリックス部）に打ち込まれ、それぞれの部分を拡散した後、燃料コンパクトから1次冷却材中へ放出される。
- ② 貫通破損粒子内で発生し、燃料核から拡散により放出された核分裂生成物は、黒鉛粒界を経由して燃料コンパクトから放出される。
- ③ 汚染ウランから発生する核分裂生成物のうち、燃料コンパクト表面近傍で発生したものは、反跳により直接放出される。
- ④ マトリックス部の汚染ウランから発生した核分裂生成物は、マトリックス部を拡散した後、燃料コンパクトから1次冷却材中へ放出される。

この過程を式で表すと、以下のようになる。

$$(R/B) = ((f_{k,r} \times f_{m,d}) + (f_{k,d} \times f_{m,ad})) \times \phi_k + (f_{m,r} + f_{m,d}) \times \phi_c \quad (4-1)$$

ここで、 $f_{k,r}$: 燃料核からの反跳放出率、

$f_{k,d}$: 燃料核からの拡散放出率、

$f_{m,ad}$: 燃料コンパクトマトリックス部の黒鉛粒界部における拡散放出率、

$f_{m,r}$: 燃料コンパクトマトリックスからの反跳拡散放出率、

$f_{m,d}$: 燃料コンパクトマトリックスからの拡散放出率、

ϕ_k : 貫通破損率、
 ϕ_c : 燃料コンパクトの汚染ウラン率

である。

燃料核からの拡散放出率は、先行核の効果を考慮した以下の式で計算する⁽¹²⁾。

$$f_{k,d} = 3 \left[\frac{1}{\Gamma_1} \left(\frac{\coth \sqrt{\mu_1}}{\sqrt{\mu_1}} - \frac{1}{\mu_1} \right) + \frac{1}{\Gamma_2} \left(\frac{\coth \sqrt{\mu_2}}{\sqrt{\mu_2}} - \frac{1}{\mu_2} \right) \right] \times f_{BU} \quad (4-2)$$

$$\Gamma_1 = 1 - \frac{\mu_1}{\mu_2} \quad (4-3)$$

$$\Gamma_2 = 1 - \frac{\mu_2}{\mu_1} \quad (4-3)$$

$$\mu_i = \frac{\lambda_i}{D'_i}$$

ここで、 f_{BU}

: 燃焼による補正因子、

λ_i : 崩壊定数 (s^{-1}) (i=1:先行核種、 i=2:当該核種)、

D'_i : 燃料核中の換元拡散係数 (s^{-1}) (i=1:先行核種、 i=2:当該核種)

である。

Kr 及び Xe とその先行核種の換元拡散係数の関係は、キャップセル照射試験結果⁽¹³⁾に基づき定めたもので、

$$D' = 55 \exp(-38000/T) \quad (4-4)$$

により求める。また、燃料核中の換元拡散係数は、キャップセル照射試験で得られた拡散放出率に基づき定める。燃焼度補正因子は、照射による格子欠陥の増加に伴う照射促進拡散による効果を考慮したものであるが、日本では、これまでこの種のデータは得られていないため、Myers 等による米国の設計式⁽¹⁴⁾を参考に以下の式を仮定する。

$$f_{BU} = 0.2Bu + 1 \quad (4-5)$$

ここで、 Bu は燃焼度 (%FIMA) である。

燃料核からの反跳放出率は、以下の式で計算できる。

$$f_{k,r} = 0.75 \left(\frac{R}{a} \right) - \frac{1}{16} \left(\frac{R}{a} \right)^3 \quad (4-6)$$

ここで、
R : 反跳距離 ($10\mu\text{m}$)、
a : 燃料核半径

である。

燃料コンパクトマトリックス部からの放出経路としては、黒鉛粒内及び黒鉛粒界の拡散放出を仮定する。

$$f_{m,d} = \alpha \times f_{m,gd} + (1 - \alpha) \times f_{m,ad} \quad (4-7)$$

ここで、
 $f_{m,gd}$: 黒鉛粒内拡散による放出率、
 $f_{m,ad}$: 黒鉛粒界拡散による放出率、
 α : マトリックス部に占める黒鉛粒の体積割合

である。

拡散放出率は、以下に示す拡散方程式の解を用いて計算する⁽¹⁵⁾。

$$f_{m,d} = 3\sqrt{\frac{D'}{\lambda}} \left[\coth\left(\sqrt{\frac{\lambda}{D'}}\right) - \sqrt{\frac{D'}{\lambda}} \right] \quad (4-8)$$

ここで、 D' は換元拡散係数 (s^{-1}) である。

黒鉛粒内の換元拡散係数は、PyC 内の拡散係数に等しいと仮定し、以下の値を用いる⁽¹⁸⁾。

$$D'_{gd} = 7.32 \times 10^{-10} \exp\left(-\frac{3.63 \times 10^5}{T}\right) \quad (4-9)$$

黒鉛粒内の拡散放出率は、結果として粒界拡散に比べて極めて小さい放出率となるので、この拡散係数がマトリックス部からの放出率の結果に与える影響はほとんど無い。黒鉛粒界の拡散係数は未知であるが、粒界拡散の温度依存性は小さいと考えられることから活性化エネルギーを黒鉛粒内の活性化エネルギーよりも 1 術程度小さく仮定し、以下の式を用いる。

$$D'_{ad} = 0.6 \exp\left(-\frac{2 \times 10^4}{T}\right) \quad (4-10)$$

マトリックス部に占める黒鉛粒の体積割合は、高速中性子照射による燃料コンパクトマトリックス部の収縮データに基づき定める。すなわち、高速中性子照射により黒鉛粒の間隔が小さくなることにより黒鉛粒界部の体積割合が小さくなると考えた。初期の黒

鉛粒界部（空隙率）は、以下のように表すことができる。

$$1 - \alpha = 1 - \frac{\rho_0}{\rho_g} = 1 - \frac{m}{\rho_g V_0} \quad (4-11)$$

ここで、
 ρ_0 : 未照射時のマトリックス密度 (Mg/m^3)、
 ρ_g : 黒鉛粒の密度 (Mg/m^3)、
 m : マトリックス部重量 (g)、
 V_0 : 未照射時の燃料コンパクト体積 (m^3)

である。

照射に伴う体積変化は、寸法収縮の実験式を用いると以下のようになる⁽¹⁶⁾。

$$V(\Phi) = V_0 \left(1 + \frac{1.006\Phi - 0.174\Phi^2}{100}\right) \quad (4-12)$$

ここで、 Φ は高速中性子照射量 ($10^{25} m^{-2}$) である。

(4-11) 式に (4-12) 式を代入することにより、照射量に対する空隙率、すなわちマトリックス部に占める黒鉛粒の体積割合を求めることができる。

燃料コンパクトのマトリックス部の汚染ウランの反跳放出割合は、無限長さの中空円筒の燃料コンパクトの形状から、以下の式で計算する。

$$f_{m,r} = \frac{R(3(r_i + r_o) - 2R)}{6(r_o^2 - r_i^2)} \quad (4-13)$$

ここで、
 r_o : 燃料コンパクトの外径、

r_i : 燃料コンパクトの内径

である。

(2) 計算結果

前項で述べた希ガス放出モデルにより、照射中の Kr-88 の (R/B) 値を解析した結果を Fig. 4-1 に示す。上段の汚染ウラン率は約 6×10^{-7} 、下段は 1.5×10^{-6} で計算値と測定値と比較的良い一致を示す。製造時の露出ウラン率の測定下限値は 2×10^{-6} 以下であり、照射を行った燃料コンパクトには、貫通破損粒子が含まれていないこと、汚染ウラン率は測定下限値以下であることが分かった。

Figure 4-2 に 1 粒子の貫通破損を仮定した場合の計算値を示す。本図から、上段については、照射末期まで燃料破損は生じていないことが分かる。一方、下段については、照射末期に 1 粒子の破損が生じている可能性があることが分かる。今後原研にて実施する照射後試験で破損の有無を確認する予定である。

(3) 低温状態の測定値との比較

本試験では、HTTR の出力上昇試験時のデータベースとするために、低温状態（ヘリウムをダンプした状態）における希ガス放出率測定も行った。測定結果の例を Fig. 4-3 に示す。ヘリウムダンプにより燃料温度は 600°C 程度まで低下し、放出率も低下する。

計算との比較を Fig. 4-4 に示す。図では比較のため、計算値の絶対値は高温時の値に合うように任意単位としている。温度の低下に伴い、放出率の計算値も低下している。放出率計算モデルは、これまでに各種照射試験を通して検証してきたが、燃料温度の低い領域での比較は今回が初めてである。燃料温度が低い領域における希ガスの放出機構は、燃料コンパクトマトリックス部の汚染ウランからの拡散放出が主であると考えられる。すなわち、放出機構のうち反跳放出は温度依存性がないため、(4-7) 式より温度依存性のある放出機構は、黒鉛粒内及び黒鉛粒界の拡散である。黒鉛粒内の拡散は拡散係数が小さく結果にはほとんど関係しないので、黒鉛粒界の拡散係数の温度依存性、すなわち活性化エネルギーの妥当性を検討していることに相当する。Figure 4-4 に示した結果から、(4-10) 式で仮定した黒鉛粒界の拡散係数 ($2 \times 10^4 \text{ K}^{-1}$) は、ほぼ妥当であると考えられる。

4.2 被覆層応力評価

(1) 解析モデル

運転中の破損挙動を予測するために、破損機構について多くの研究が行われてきた。その結果、比較的高温で照射される場合には、被覆層はいわゆるアメーバ効果といわれる燃料核の移動及びパラジウムによる SiC 層の腐食が重要となる^(1,15,17,18)。しかしながら、高燃焼度下においては、気体状核分裂生成物、遊離酸素との反応により生成する CO ガス等による内圧上昇のため被覆層に高い応力が作用し、これにより破損が生じるいわゆる圧力容器破損が重要な破損機構となる。

圧力容器破損モデルは以下の特徴を有する⁽¹⁹⁾。

(1) 破損粒子として貫通破損粒子と SiC 破損粒子を考慮する。貫通破損粒子は、内

側 PyC (IPyC)、SiC、外側 PyC (OPyC) 層全てが破損している粒子として定義する。SiC 破損粒子は SiC 層が破損しているが OPyC 層は健全な粒子と定義する。短半減期希ガスは貫通破損粒子からは放出されるが、OPyC 層はこれに對して閉込め能力を有するため、SiC 破損粒子からは放出されない。

- (2) 各被覆層の破損確率をワイブル分布で表す。各被覆層の破損条件は、これまでの照射試験における観察結果等に基づき定めている。
- (3) 被覆層に加わる応力は、核分裂により発生する希ガス及び遊離酸素による CO ガス内圧及び高速中性子による PyC 層の照射収縮によるものと仮定する。応力の最大値は、簡単な「rigid SiC model」で計算する。

被覆層の破損確率は、表面の微小欠陥が破損の発生原因となるという考え方に基づき、ワイブル分布で表す。本モデルでは、各被覆層の破損確率を以下の式で表す。

$$f_i(t) = 1 - \exp(-\ln 2 \times \left(\frac{\sigma_i(t)}{\sigma_{0,i}} \right)^{m_i}) \quad (4-14)$$

ここで、
 f_i : 照射時刻 t における被覆層 i の破損確率、
 σ_i : 照射時刻 t に被覆層 i に加わる応力 (MPa)、
 $\sigma_{0,i}$: 被覆層 i の強度 (MPa)、
 m_i : 被覆層 i のワイブル係数

である。

詳細な解析方法は、参考文献 (12) 及び (19) に述べてあるので、ここでは述べない。

(2) 健全粒子の応力

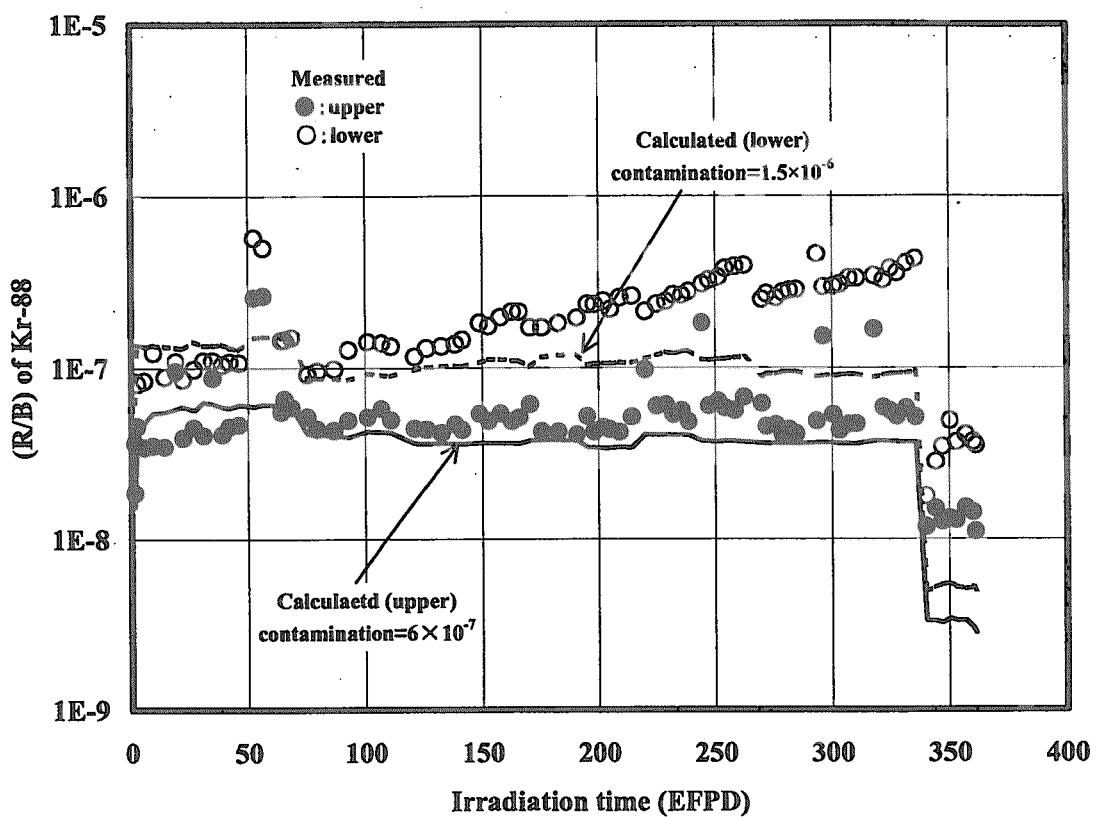
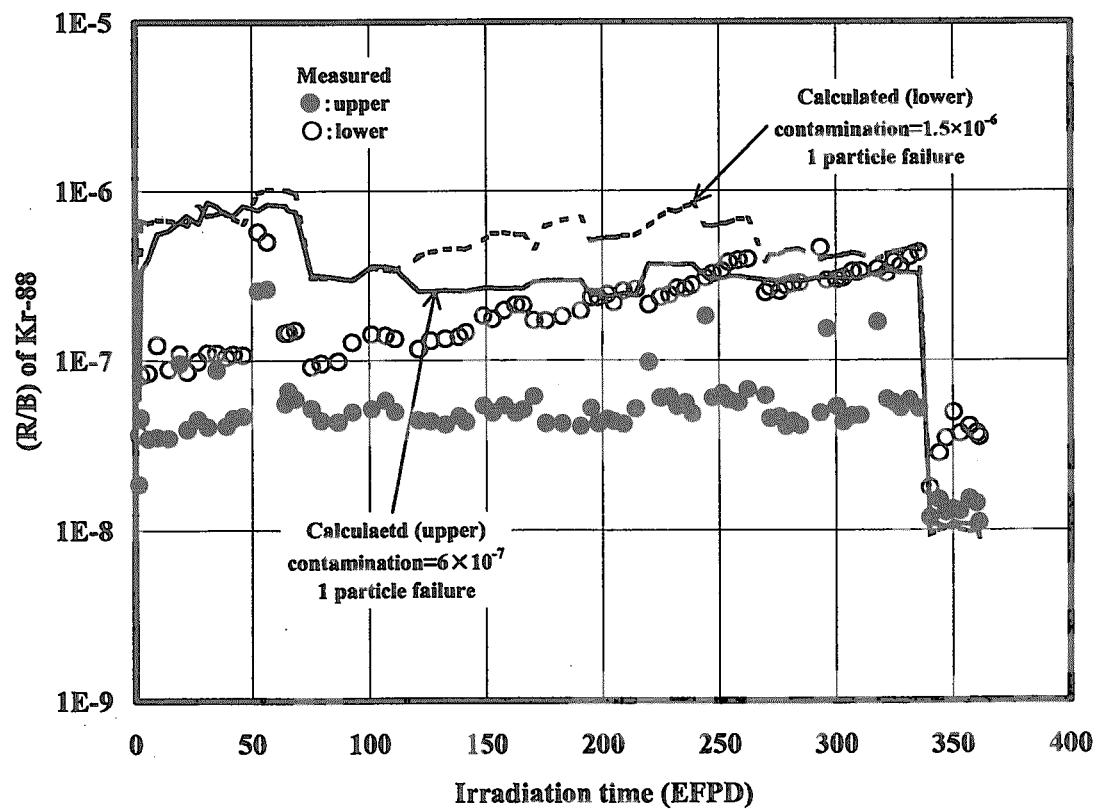
本モデルを用いて、照射中の SiC 層応力を解析した結果を Fig. 4-5 に示す。本照射条件下では照射末期において、100 MPa 以下の引張応力が加わることが分かる。SiC 層の強度は 800 MPa 程度（中心値）である⁽¹⁾ので、統計的なばらつきを考慮しても内圧による破損が生じることはないと考えられる。

(3) SiC 層破損粒子の応力

一方、製造時に脆性材料である SiC 層が破損している燃料が混在することが分かって

の PyC 層が健全であるために短半減期希ガスの閉じ込め能力は有している。しかしながら、機械的に強度が最も大きい SiC 層が破損しているため、照射中に PyC 層の破損が生じれば貫通破損に至ることとなる。内圧に対する PyC 層の破壊強度は一般に SiC 層よりも小さいため、SiC 層破損粒子は健全粒子よりも貫通破損に至りやすい。

応力計算モデルを用いて、SiC 層破損粒子の外側 PyC 層に加わる応力を計算した結果を Fig. 4-6 に示す。上段で約 190 MPa、下段で約 270 MPa の引張応力が PyC 層に加わる。PyC 層強度は 160MPa（中心値）である⁽¹⁾ので、SiC 層破損粒子が貫通破損に至る可能性があることが分かる。

Fig. 4-1 Measured and calculated (R/B) of ^{88}Kr (no failure).Fig. 4-2 Measured and calculated (R/B) of ^{88}Kr (1 particle failure).

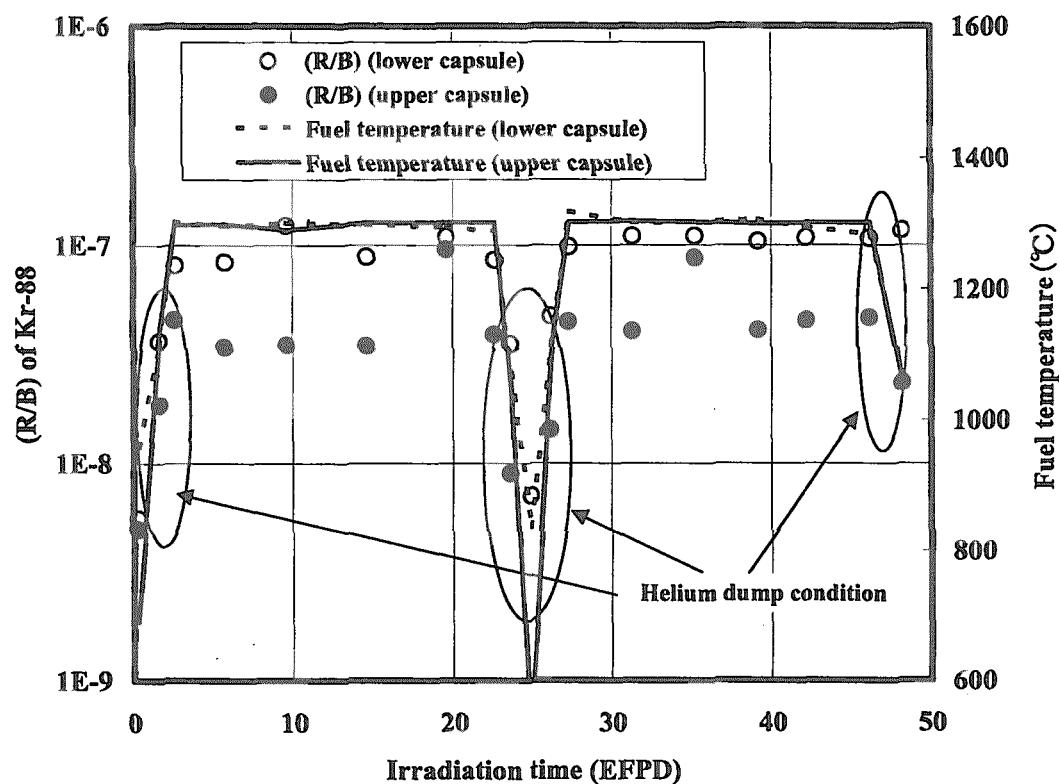


Fig. 4-3 Measured (R/B) of ^{88}Kr and fuel temperature including helium dump condition.

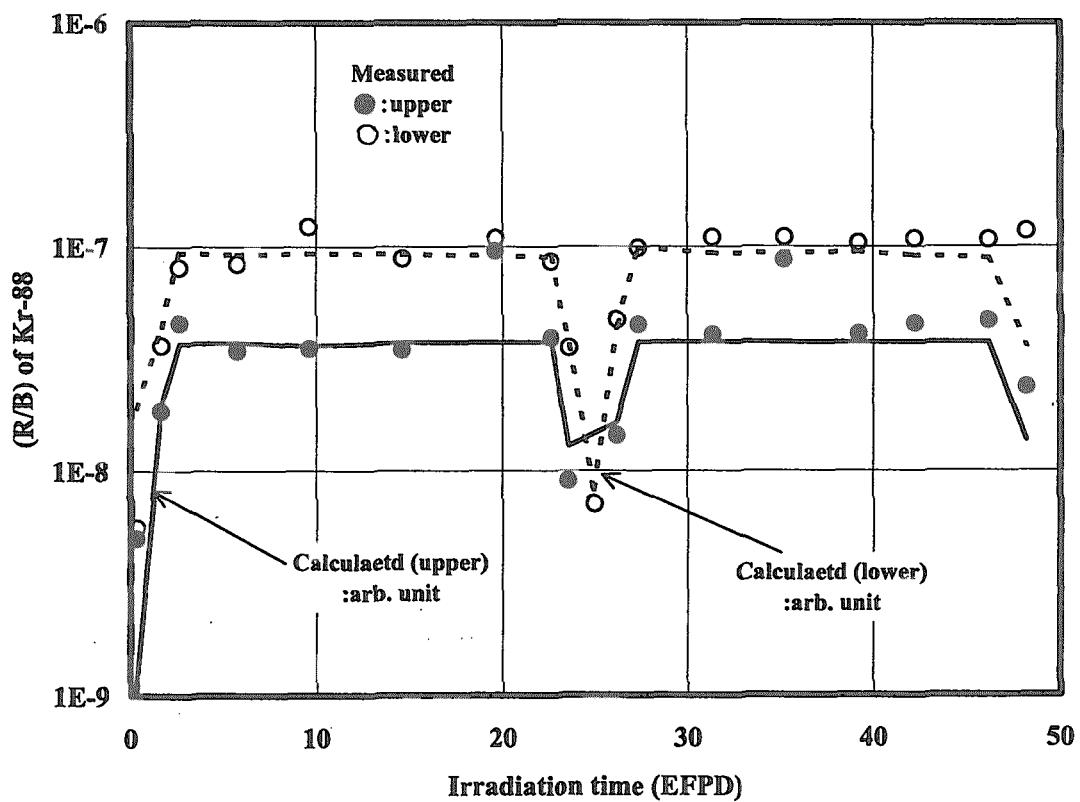


Fig. 4-4 Comparison of measured and calculated (R/B) of ^{88}Kr Including helium dump condition.

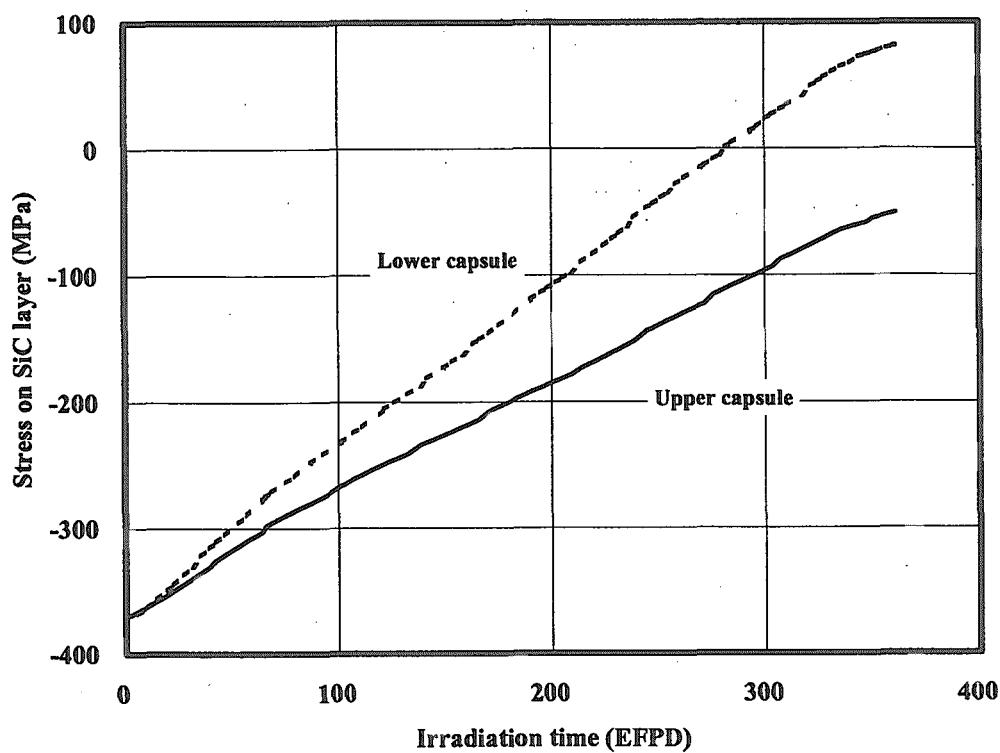


Fig. 4-5 Calculated stress on the SiC layer during irradiation.

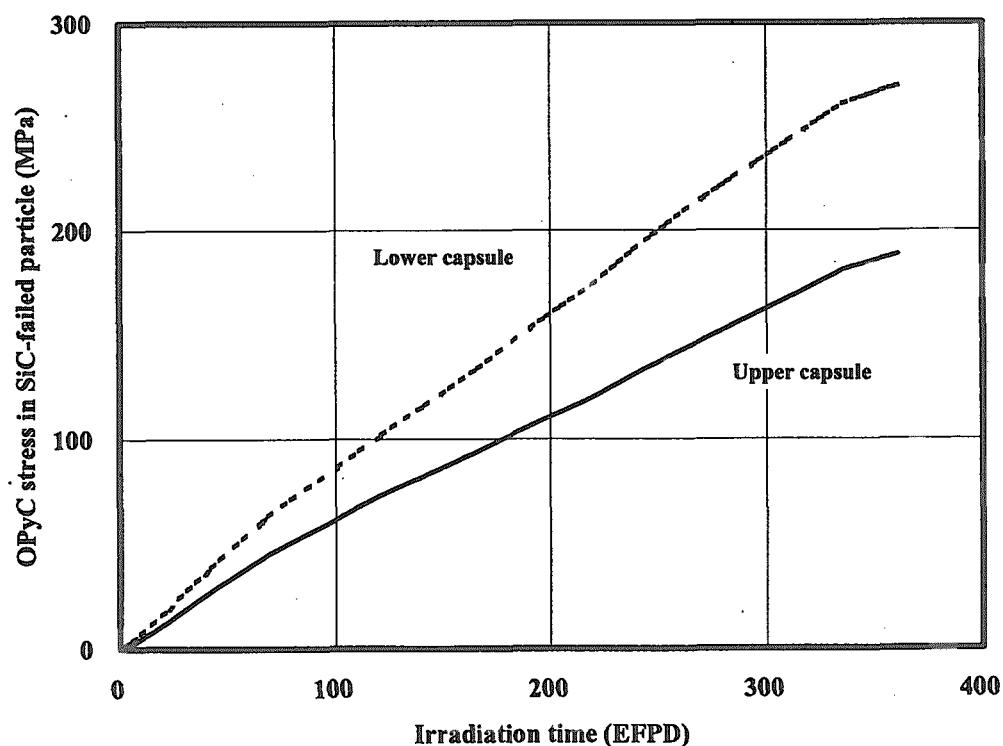


Fig. 4-6 Calculated stress on the OPyC layer in the SiC-failed particle during irradiation.

5. まとめ

平成 7 年度から平成 12 年度にわたって実施した、日本原子力研究所（原研）と原子燃料工業株式会社（原燃工）との共同研究「連続被覆法により製造した高温工学試験研究炉用燃料の照射健全性実証試験」の結果を示した。

万全の体制で HTTR の運転に臨むために、初装荷燃料の照射健全性を照射試験により確認することを目的とし、初装荷用として製造した燃料の一部を JMTR のガススイープキャップセル (94F-9A) に封入して、HTTR の運転に先行して照射試験を実施した。試験中の燃料挙動は、スイープガスをサンプリングし、核分裂生成物希ガス濃度を測定することにより観察した。

主な結果は以下のとおりである。

- ① HTTR の最高燃焼度 3.6%FIMA、最高高速中性子照射量 $1.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) まで燃料は破損することなく、健全であった。
- ② さらに、これらの値の約 2 倍の $3.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)、7.0 %FIMA まで照射を継続した。
- ③ ^{88}Kr の R/B は照射開始時には 4×10^{-8} (上段試料) 及び 1×10^{-7} (下段試料) であった。このことから、照射を行った燃料コンパクトには、貫通破損粒子が含まれていないことが分かった。
- ④ 上段については、照射末期まで明らかに燃料破損は生じていないが、下段については、照射末期に 1 粒子の破損が生じている可能性があることが分かった。これについては、今後原研にて実施する照射後試験で確認する予定である。
- ⑤ 本試験では、HTTR の出力上昇試験時のデータベースとするために、低温状態 (ヘリウムをダンプした状態) における ^{88}Kr の R/B 測定を行った。この測定値と計算値の比較から、放出率の計算モデルは、温度変化による放出率挙動をほぼ再現できていることがわかった。

謝辞

本検討を行うに当たり、御指導、御助言頂いた馬場治大洗研究所所長、及び伊与久達夫 HTTR 技術開発室長をはじめとする同部の皆様方に感謝いたします。また、貴重なコメントを頂いた、荒井康夫新型燃料燃焼研究グループリーダーに感謝いたします。本照射試験は、旧燃料照射研究室にて開始した。旧燃料照射研究室の各位に感謝いたします。

参考文献

1. K. VERFONDERN (Ed.) : Fuel Performance and Fission Product Behaviour in Gas-cooled Reactor、IAEA-TECDOC-978 (1997) .
2. 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設計方針、製作性及び総合的健全性評価、JAERI-M 89-161 (1989) .
3. S.SAITO, T.TANAKA, Y.SUDO, O.BABA, et al. : Design of High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR)、JAERI-1332 (1994) .
4. 沢和弘、吉牟田秀治、佐藤政四、斎藤賢司、他：高温工学試験研究炉運転中における燃料挙動評価方法と予測結果、JAERI-Research 98-016 (1998) .
5. K.MINATO, H.KIKUCHI, K.FUKUDA, N.SUZUKI, et al. : Internal Flaws in the Silicon Carbide Coating of Fuel Particles for High-temperature Gas-cooled Reactors、Nucl. Technol., 106, 342 (1994) .
6. K.MINATO, H.KIKUCHI, T.TOBITA, K.FUKUDA, et al. : Improvements in Quality of As-Manufactured Fuels for High-Temperature Gas-Cooled Reactors、J. Nucl. Sci. Technol., 34, 325 (1997) .
7. K.SAWA, T.TOBITA, H.MOGI, S.SHIOZAWA, et al. : Fabrication of the First-Loading Fuel of the High Temperature Engineering Test Reactor、J. Nucl. Sci. Technol., 36, 683 (1999) .
8. 沢和弘、飛田勉、植田祥平、鈴木修一、他：HTTR 出力上昇試験における燃料及び核分裂生成物挙動の検討（その 1：15MWまでの結果）、JAERI-Research 2001-002

(2001) .

9. K.SAWA, S.SUZUKI, S.SHIOZAWA : Safety Criteria and Quality Control of the High Temperature Engineering Test Reactor Fuel、Nucl. Eng. Des., to be published (2001) .
10. 沢和弘、角田淳弥、渡部隆：高温ガス炉運転中の被覆燃料粒子挙動及び核分裂生成物ガス挙動解析コード、JAERI-Data/Code 99-034 (1999) .
11. K.SAWA, S.UETA, J.SUMITA, K.VERFONDERN : Prediction of Fuel and Fission Gas Release Behavior during the High Temperature Engineering Test Reactor Operation by JAERI and FZJ Modeling Approach、J. Nucl. Sci. Technol., 38, 411 (2001) .
12. C.A.FRISKNEY, M.V.SPEIGHT : A Calculation on the In-pile Diffusional Release of Fission Products Forming a General Decay Chain、J. Nucl. Mater., 62 (1976) .
13. 小川徹、福田幸朔、小林紀昭、菊池輝男、他：貫通破損粒子を含む燃料コンパクトからの短半減期希ガス・ヨウ素の放出率、JAERI-M 86-146 (1986) .
14. B.F.MYERS : The Fuel Design Data Manual、GA-901866/F (1987) .
15. S.D.BECK : The Diffusion of Radioactive Fission Products from Porous Fuel Elements、BMI-1433 (1960) .
16. 福田幸朔、小川徹、鹿志村悟、林君夫、他：高温ガス炉燃料に関する試験研究、JAERI-M 89-007 (1989) .
17. W.WAGNER-KOEFFLER : Amoeba Behavior of UO₂ Coated Particle Fuel、Nucl. Technol., 35, 392 (1977) .
18. K.MINATO, T.OGAWA, S.KASHIMURA, K.FUKUDA : Fission Product Palladium-Silicon Carbide Interaction in HTGR Fuel Particles、J. Nucl. Mater., 172, 184 (1990) .
19. K.SAWA, S.SHIOZAWA, K.MINATO, K.FUKUDA : Development of a Coated Fuel Particle Failure Model under High Burnup Irradiation、J. Nucl. Technol., 33, 712 (1996) .
20. K.SAWA and K.MINATO : An Investigation of Irradiation Performance of High Burnup HTGR Fuel、J. Nucl. Sci. Technol., 36, 781 (1999) .

付録 高燃焼度燃料照射試験の結果

高温ガス炉の燃料の燃焼度を大きくすると、被覆層内圧の上昇により破損に至る可能性があるため、プレナム領域に相当するバッファ層の体積を大きくするとともに、被覆層の強度部材である SiC 層を厚くするなどの対策により、内圧破損を防止する必要がある。このように改良設計し、製作した被覆燃料粒子を約 10%FIMA の高燃焼度まで照射した経験がある^(A-1,A-2)。

高燃焼度燃料の照射は、先行照射と同じく JMTR で 91F-1A スイープガスキャップセルを用いて行い、照射試験中の燃料挙動はガスサンプリングにより観察した。ガスサンプリングに基づく希ガス放出率から、照射中に追加破損が生じており、照射後試験においては、破損した被覆燃料粒子を選別・観察し、破損機構の解明を試みた。

キャップセルに封入した燃料試料の製造仕様は、燃料核直径約 550μm、被覆層第 1 層厚さ約 90μm、SiC 層厚さ約 35μm、粒子直径約 940μm である。この被覆燃料粒子を燃料コンパクトに加工したものを照射試験に供した。この燃料粒子は HTTR 初装荷燃料と比較すると、燃料核直径が小さく、バッファー層、SiC 層が厚くなっている、高燃焼度時に粒子被覆層の受ける応力の低減化、Pd 等金属核分裂生成物に対する耐食性の改良を考慮している。

照射を行った燃料コンパクトは上段 2 個、下段 2 個とした。照射は JMTR の M-7 照射孔で 8825 時間行った。燃焼度は約 10%FIMA、高速中性子照射量 ($E>0.18\text{MeV}$) は $4 \sim 6 \times 10^{25}\text{m}^{-2}$ であった。上段、下段の平均燃焼度及び高速中性子照射量をそれぞれ Figs. A-1 及び A-2 に示す。照射中の燃料コンパクト内面（中心部=最高温度）の評価値を Fig. A-3 に示す。照射開始時の燃料温度は約 1300°C であり、その後約 50EFPD まで最高約 1450°C に上昇した。その後、上段は最高温度 1300~1350°C で照射終了まで推移したが、下段については約 200EFPD までは最高温度約 1250°C に制御し、その後熱電対が切れたためにヘリウムダンプ状態で照射を継続した。そのため、Fig. A-3 に示したように、下段の燃料最高温度は約 200EFPD 以降は 800~1000°C と低い温度で推移した。

照射中の核分裂生成物ガス放出率は、スイープガスを間欠的にサンプリングし核種毎の濃度を測定した結果に基づき算出した。代表的な核種として、Kr-88 の放出率 (R/B) 値を Fig. A-4 に示す。

希ガス放出モデルを用いて、照射中の Kr-88 の (R/B) 値を解析した。結果を Figs. A-5 (上段) 及び A-6 (下段) に示す。図中の点線は、破損粒子がない場合の計算結果であ

り、燃料コンパクトの汚染ウラン率は 2×10^{-6} とした。実線は、照射末期に放出率の測定値とほぼ一致するように各段中の貫通破損粒子を仮定した結果である。上、下段ともに、照射初期は測定値は、汚染ウランからの放出率と良く一致しており、初めに貫通破損がなかったと判断できる。

上段については、300 EFPD 以降の照射末期に (R/B) 値が 10^{-6} 程度に上がっており、この値は汚染ウランからの放出に加えて貫通破損粒子1個からの放出があることにはほぼ対応している。すなわち、照射中に貫通破損粒子が発生したと考えられる。また、90 ~ 130 EFPD にも放出率が上昇しているが、その後元のレベルに戻っており、この時点で貫通破損が発生したとは言い切れない。この時期における放出率上昇の原因については分かっていない。

下段については、放出率の解析結果から、照射末期の (R/B) 値は汚染ウランからの寄与のみでは小さすぎるため、照射中に2個の貫通破損が生じたと推定できる。しかし、下段は照射後半に燃料温度が低下しているため、解析モデルの精度を考慮すると、破損粒子数については明確には判断できない。

以上の検討から、上段、下段ともに照射中に追加の貫通破損が発生したと考えられる。破損機構として、Pd による SiC 層腐食、燃料核移動等が考えられるが、照射後試験からはこれらの機構による破損の明白な証拠は得られなかった。一方、回収した破損粒子の破面からは、粒子が引張状態で割れていると考えられることから、内圧による破損が生じた可能性が考えられる。

モデルによる計算を行った結果、この照射条件下では健全粒子の SiC 層には内圧による引張応力は加わらず、照射末期においても 250~300 MPa の圧縮応力が加わり、破損は生じないことが分かった。従って、仮に強度が著しく弱い SiC 層があったとしても、引張応力は加わらないため、内圧による破損が生じることはない。

一方、製造時に脆性材料である SiC 層が破損している燃料が混在することが分かっている。このような粒子は、機械的に強度が最も大きい SiC 層が破損しているため、照射中に PyC 層の破損が生じれば貫通破損に至ることとなる。内圧に対する PyC 層の破壊強度は一般に SiC 層よりも小さいため、SiC 層破損粒子は健全粒子よりも貫通破損に至りやすい。

上記のように、91F-1A 照射試験における追加の被覆層破損は、製造時の SiC 層破損粒子の挙動に関係している可能性が高い。HTTR 初装荷燃料の製造経験から、製造時の

SiC層破損の主たる原因是、燃料コンパクトのプレス工程において隣接粒子同士が接触するためと考えられている^(A-1,A-3)。91F-1A照射試験用試料のような高燃焼度用燃料では、ウラン量を規定値以上にするため、燃料コンパクト内の粒子充填率を35vol%と高くしている（初装荷燃料では30vol%）。そのため、燃料コンパクトプレス工程において、隣接粒子と接触する確率は高くなると考えられる。粒子の接触によるSiC層破損率(f_{contact})を定量的に検討するため、以下の式を用いる。

$$f_{\text{contact}}(P_{\text{ex}}) = 1 - \exp(-\ln 2 \times \left(\frac{P_{\text{ex}}}{P_0} \right)^{\frac{m_p}{2}}) \quad (\text{A-1})$$

ここで、
 P_{ex} : プレス時に粒子に加わる外力 (N) 、
 P_0 : 外力に対するSiC層の平均強度 (N) 、
 m_p : 外力に対するSiC層強度のワイブル係数

である。

粒子の直径dが全ての粒子で等しいとすると、外力は以下のようになる^(A-4)。

$$P_{\text{ex}} = \left(\frac{1}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \times \left(\frac{\delta}{1.54} \right)^{\frac{2}{3}} \times E \times d^{\frac{1}{2}} \quad (\text{A-2})$$

ここで、
 δ : 粒子間距離 (m) 、
 d : 粒子直径 (m) 、
 E : SiC層の縦弾性係数 (Pa)

である。

外力と製造時SiC層破損確率の関係を粒子間距離の関数としてFig. A-7に示す。評価に当たっては、SiC層強度の中心値は20N、ワイブル係数は8^(A-5)、SiC層の縦弾性係数は300GPa^(A-6)、粒子直径は900μmを用いた。図に示したように、粒子間の接触距離が僅か1~2μmになると、コンパクトのプレス工程でSiC層の破損が生じる。従って、高燃焼度燃料では粒子充填率が高いために、粒子間の距離が短くなり、製造時のSiC層破損率が高くなり易いことが分かる。

参考文献

- A-1 K.SAWA and K.MINATO : An Investigation of Irradiation Performance of High Burnup HTGR Fuel、J. Nucl. Sci. Technol., 36, 781 (1999) .
- A-2 D.G.MARTIN, K.SAWA, S.UETA, J.SUMITA : A Study of Failure Behavior in High Burnup HTGR Fuel -Analysis by STRESS3 and STAPLE Codes-、JAERI-Research 2001-033 (2001) .
- A-3 K.MINATO, H.KIKUCHI, T.TOBITA, K.FUKUDA, et al. : Improvements in Quality of As-Manufactured Fuels for High-Temperature Gas-Cooled Reactors、J. Nucl. Sci. Technol., 34, 325 (1997) .
- A-4 鵜戸口 (編) : 材料力学、裳華房 (1982) .
- A-5 K.SAWA, S.SHIOZAWA, K.MINATO, K.FUKUDA : Development of a Coated Fuel Particle Failure Model under High Burnup Irradiation, J. Nucl. Technol., 33, 712 (1996) .
- A-6 K. VERFONDERN (Ed.) : Fuel Performance and Fission Product Behaviour in Gas-cooled Reactor、IAEA-TECDOC-978 (1997) .

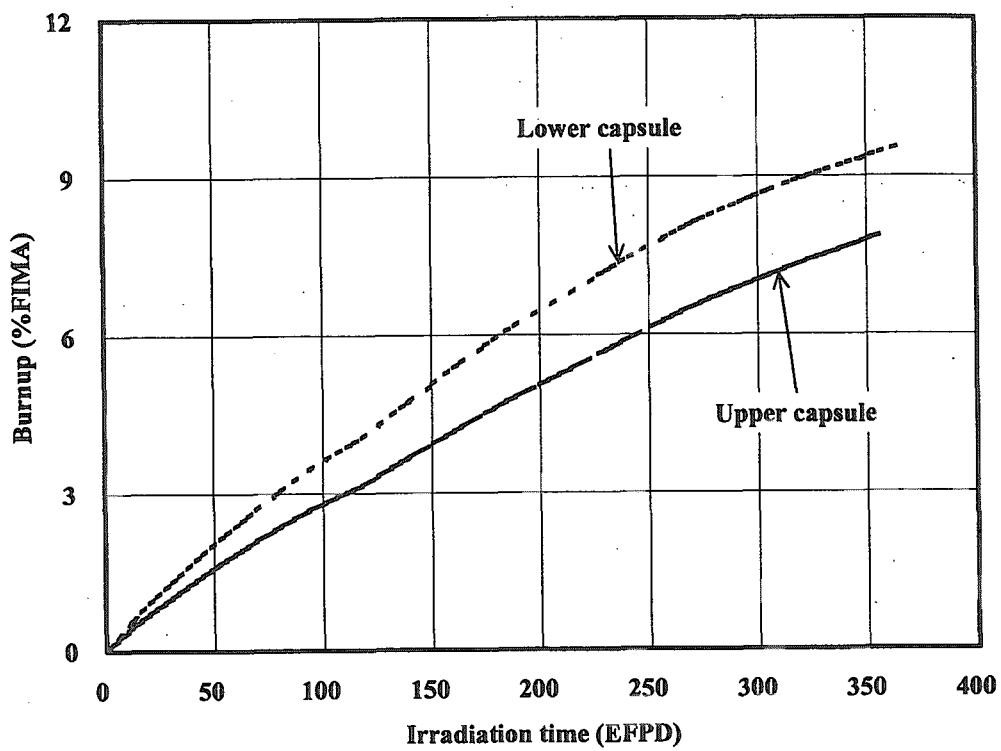


Fig. A-1 Burnup during 91F-1A capsule irradiation test.

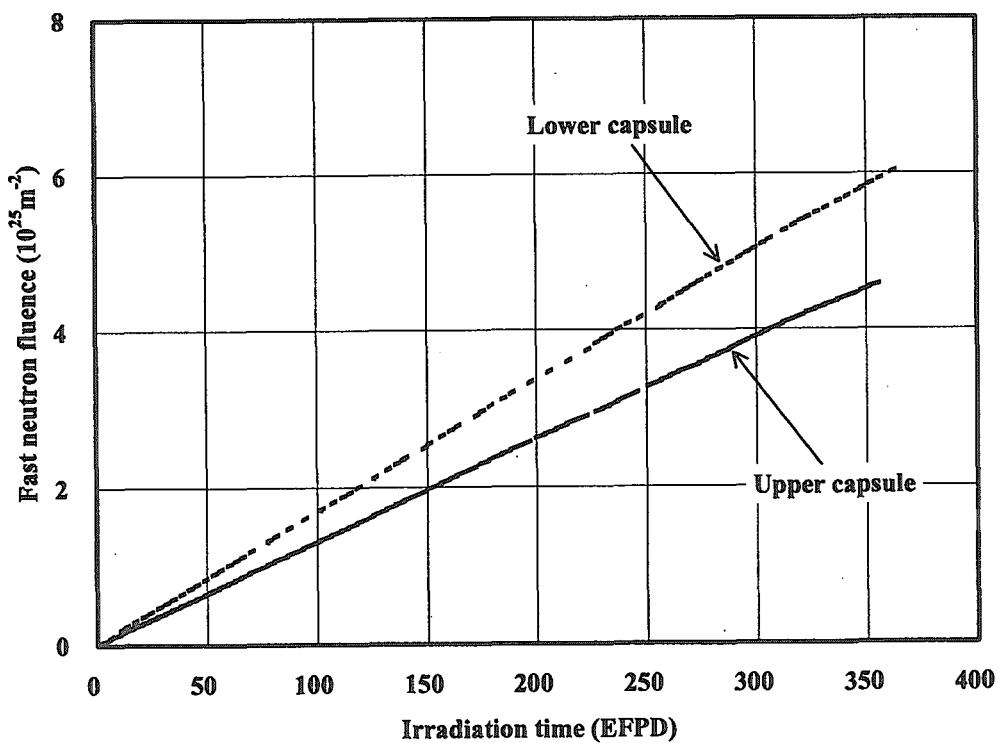


Fig. A-2 Fast neutron fluence during 91F-1A capsule irradiation test.

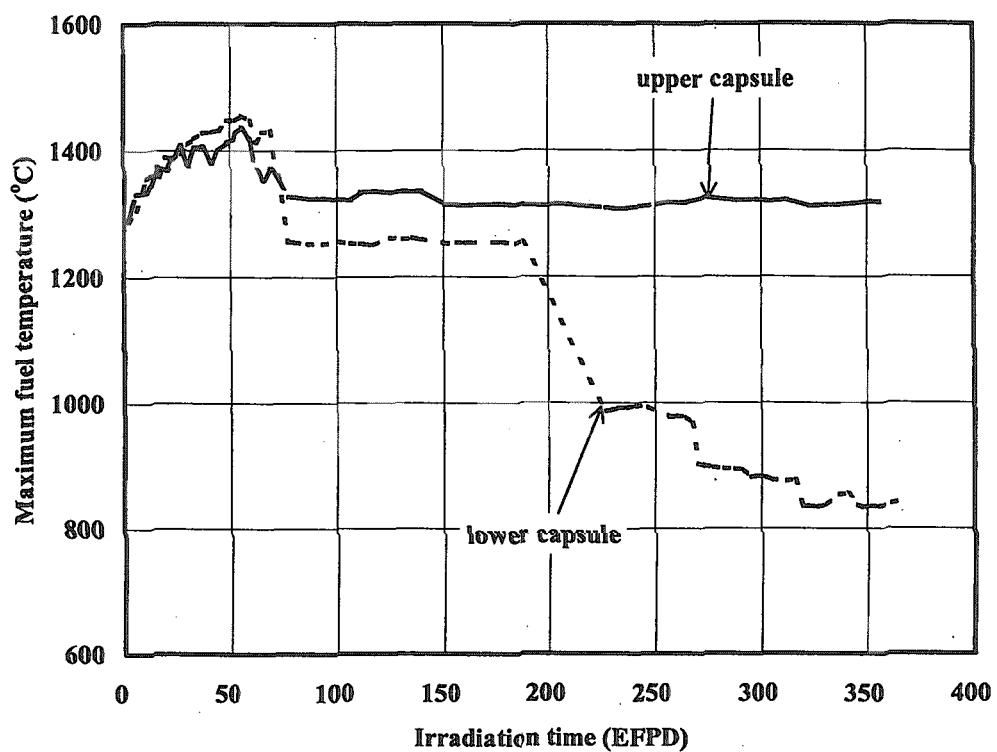


Fig. A-3 Fuel temperature during 91F-1A capsule irradiation test.

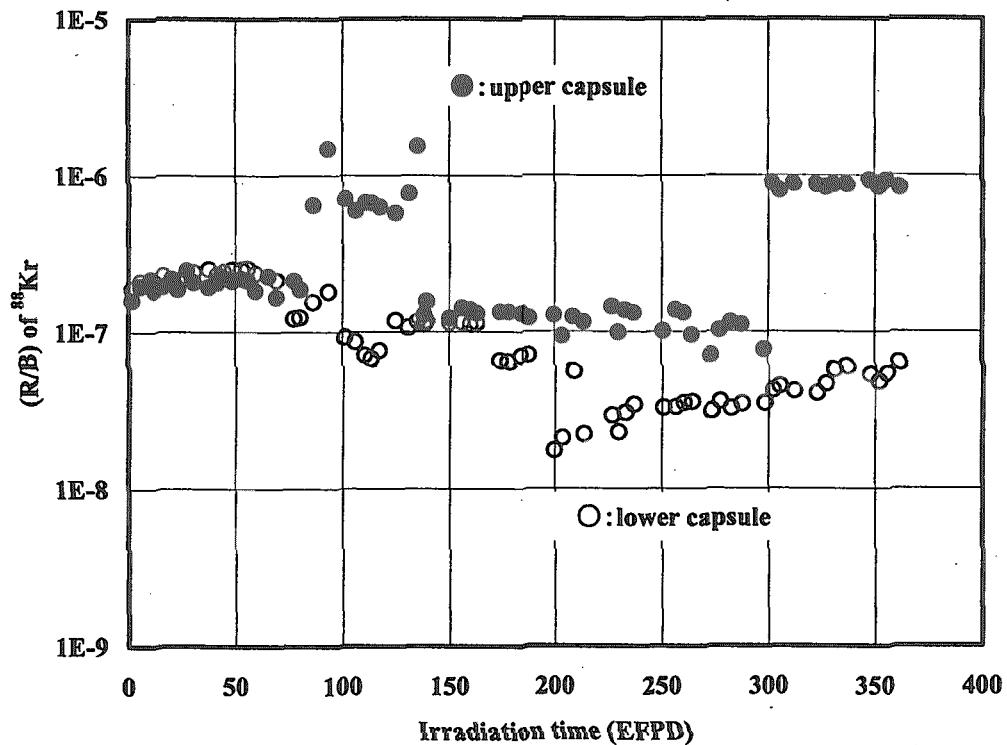


Fig. A-4 Measured (R/B) of ^{88}Kr during 91F-1A capsule irradiation test.

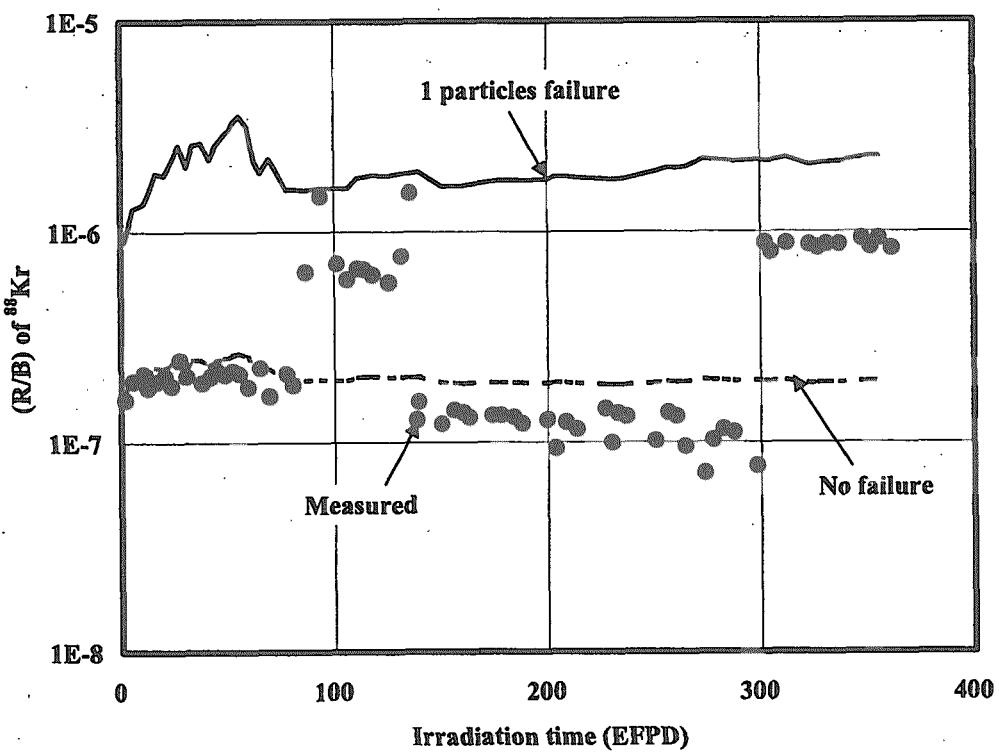


Fig. A-5 Comparison of measured and calculated ^{88}Kr in 91F-1A upper capsule.

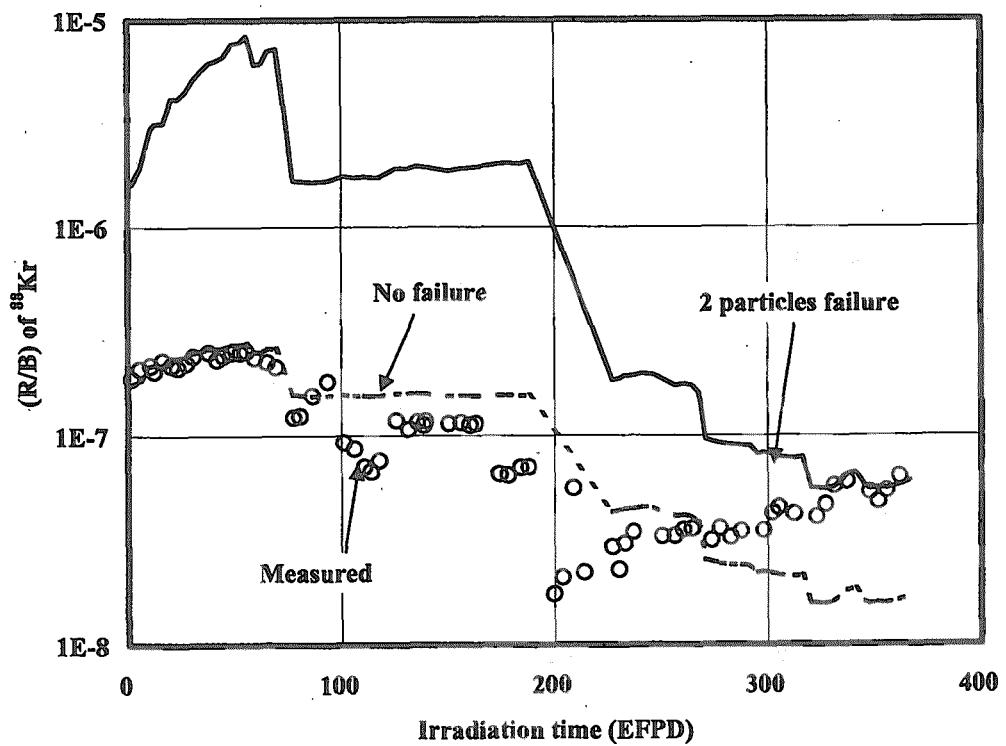


Fig. A-6 Comparison of measured and calculated ^{88}Kr in 91F-1A lower capsule.

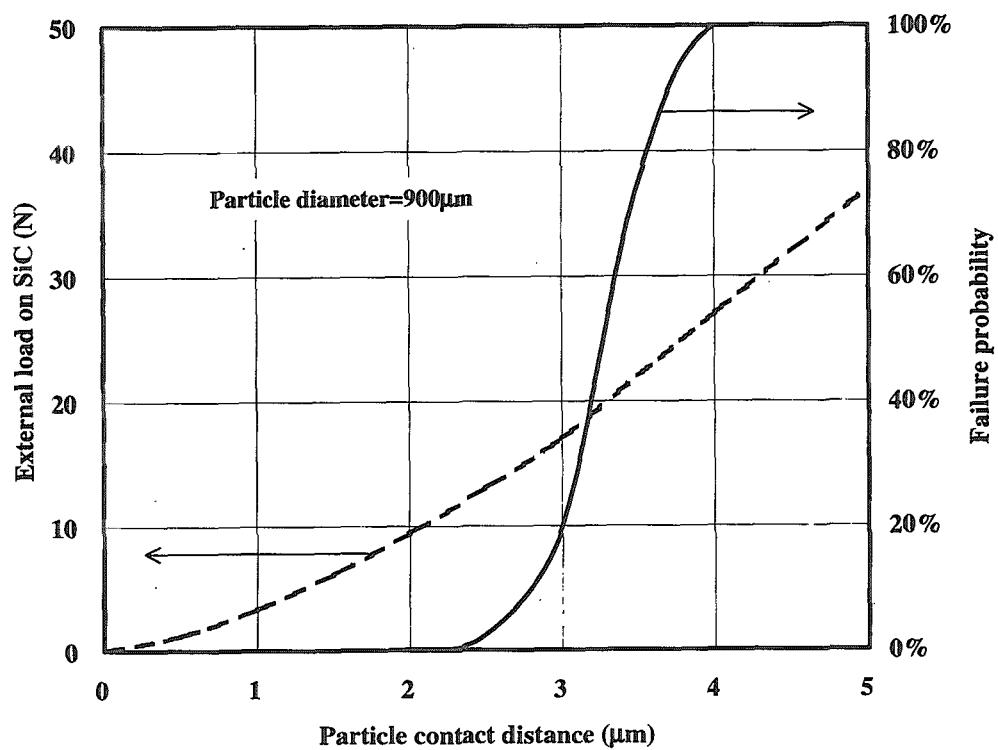


Fig. A-7 SiC layer failure probability as a function of particle contact distance in fuel compact pressing process.

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg/s^2$
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	$A \cdot s$
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	フアラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照度	ルクス	lx	lm/m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名 称	記 号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \cdot u = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換 算 表

力	N($=10^5$ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (\text{N} \cdot \text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)} (\text{g}/(\text{cm} \cdot \text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa($=10$ bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー	J($=10^7$ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605J (計量法)
1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}	$= 4.184J$ (熱化学)	
9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{19}	$= 4.1855J$ (15°C)	
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}	$= 4.1868J$ (国際蒸気表)	
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}	仕事率 1 PS(仏馬力)	
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}	$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$	
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}	$= 735.499W$	
1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
1	2.70270×10^{-11}	1	1	100	
3.7×10^{10}	1		0.01	1	

照射線量	C/kg	R
1	3876	
2.58×10^{-4}	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

高温工学試験研究炉(HHT-R)初装荷燃料の先行高燃焼度照射試験(共同研究)

R100
古紙配合率100%
白色度70%再生紙を使用しています