

原子炉用燃料コンパクトの破壊力学的性質 特に、耐熱応力性およびその中性子照射効果

佐藤千之助*, 車田 亮*, 川又清弘*,

鈴木信幸**, 金子光信**, 福田幸朔***

(平成3年8月31日受理)

Study on the Fracture Mechanical Properties, Thermal Stress Resistances and
Their Neutron Irradiation Effects of Fuel Compact for Nuclear Reactor

Sennosuke SATO*, Akira KURUMADA*,

Kiyohiro KAWAMATA*, Nobuyuki SUZUKI**,

Mitsunobu KANEKO** and Kosaku FUKUDA***

ABSTRACT—To simulate the nuclear fuel for the High Temperature Engineering Testing Reactor (HTTR), fuel compact models using SiC-kernel coated particles instead of UO₂-kernel coated particles were prepared under the same conditions as those for the real fuel compact. The mechanical and fracture mechanics properties were studied at room temperature. The thermal shock resistance and fracture toughness for thermal stresses of the fuel compact were experimentally assessed by means of arc discharge heating applied at a central area of the disk specimens. These model specimens were then neutron irradiated in the Japan Material Testing Reactor (JMTR) for fluences up to 1.7×10^{25} n/m² (E>29fJ) at 900°C±50°C. The effects of irradiation on a series of fracture mechanical properties were evaluated and compared with the cases of graphite IG-110 used as the core materials in the HTTR.

*茨城大学工学部機械工学科 (日立市中成沢町)

Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Ibaraki University, Hitachi 316, Japan

**原子燃料工業(株) (茨城県那珂郡東海村)

Nuclear Fuel Industries Ltd.,
Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki 319-11, Japan

***日本原子力研究所東海研究所 (茨城県那珂郡東海村)

Tokai Institute, Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki 319-11, Japan

1. 緒 論

日本原子力研究所が開発中の高温ガス冷却型原子炉(高温工学試験研究炉; HTTR)は、燃料コンパクトと呼ぶ被覆燃料粒子を天然黒鉛質マトリックス中に分散焼結した形式の燃料を10数個黒鉛スリーブに封入した燃料棒を使用する。燃料コンパクト内の球状 UO_2 燃料核はCVDによりSiCおよび炭素が数層被覆される。その中のSiC層および高密度炭素層は核分裂反応による放射性物質を閉じこめる強固なバリアーを形成する。また黒鉛マトリックスは耐熱、高熱伝導性を有する第二のバリアーとして機能する。燃料コンパクトについては、材料試験炉(JMTR)で照射などにより多年にわたり研究努力が払われてきた⁽¹⁾。しかし、コンパクト自体の機能的諸物性に関する究明は比較的少ない。

本研究は燃料コンパクトの機械的、破壊力学的諸性質ならびに耐熱応力性を究明することを目的として、 UO_2 を核とする被覆燃料粒子をSiC球を核とする被覆粒子で代替し、同一プロセスで製造した燃料コンパクトの円板状および円柱状モデル試料を試作し、一連の実験的検討を行ったものである。また、これらの試料はJMTRにより高温(900°C±50°C)において 1.7×10^{25} n/m² (E>29fJ)に至る中性子照射を行い、照射によるこれ

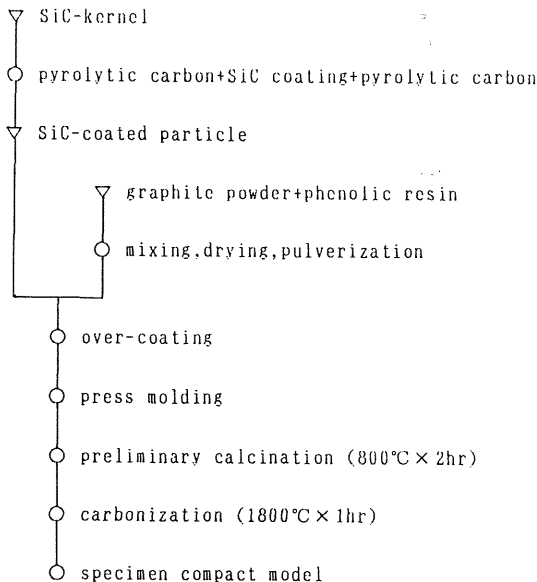


Fig. 1 Manufacturing flow diagram of the specimen of fuel compact model.

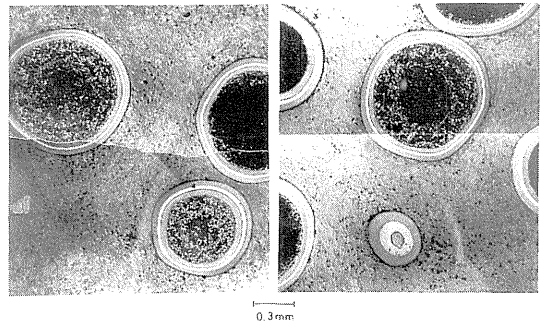


Photo. 1 Microscopic structure of fuel compact model.

ら諸物性の変化も検討した。しかし、本研究における破壊はすべてマトリックス部またはその粒子界面に生じ、SiC被覆粒子自体の破壊は全く見られなかった。それゆえ、本研究は結果的に燃料コンパクトのマトリックスとその粒子界面の性状評価を意味するものと考えられる。これらの諸物性のデータはHTTR用炉心黒鉛IG-110の場合⁽²⁾と比較される。

2. 燃料コンパクトモデルの作製

2.1 燃料コンパクトモデル

試料作製の全体的流れをFig. 1に示す。この試料は燃料コンパクトを模擬するため、 UO_2 核被覆燃料粒子の代りにSiC球を核とした被覆粒子を使用した。SiC球は、SiC粉末、バインダーおよび溶剤を混ぜ合わせ造粒焼結した粒子で、このSiC核に高密度熱分解炭素層、SiC層、ついで高密度熱分解炭素層の順に被覆し、実際の燃料粒子と同様な被覆粒子とした。その被覆粒子の直径は約900 μ m、密度は2.1g/cm³であった。それ以降の製法はウラン入りの燃料コンパクトの製法⁽³⁾と全く同じである。Photo. 1は試作した燃料コンパクトモデルの断面組織を示す。SiC核の直径は約700 μ mで、 UO_2 核の場合の約600 μ mよりも若干直径が大きい、被覆後の直径はほぼ同じに調整し、SiCおよび炭素の被覆層の状況は緩衝層がない点を除いて実際の被覆層とよく類似している。また、黒鉛マトリックス部分も実際の燃料コンパクトとよく類似している⁽⁴⁾。

被覆粒子の体積充填率およびマトリックス密度は、それぞれHTTR燃料の仕様の30%および1.70g/cm³に近くなるよう調整した。そして被覆粒子はその表面を溶剤で湿らせながら、調整黒鉛粉末(西独Kropfmühl社

製天然黒鉛粉末64%, 西独 Ringsdorf 社製人造黒鉛粉末16%, 熱硬化性フェノール樹脂20%を混練, 乾燥ついで微粉砕した粉末)でオーバーコートした。このオーバーコート粒子を秤量し, 所定の直径および高さになるよう金型で温間プレス成型した。成型体は, フェノール樹脂を炭化させるため800°Cの窒素ガス雰囲気中で2時間予備焼成し, その後1800°Cの真空中で1時間焼成して, そのまま機械加工せずに試料とした。試料表面は後述の写真(Photo. 2および3)に示すように被覆粒子の部分にいくらかふくらみがみられる。この様子は実物の燃料コンパクトと同様で, 焼成によるマトリックスとの相対的な収縮差によるものと考えられる。

作製した試料の寸法, マトリックス密度, SiC球被覆粒子の体積充填率の測定結果をTable 1に示す。

Table 1 Specimen characteristics (mean value).

specimen	size (mm)	density of matrix (g/cm ³)	volume fraction of SiC-kernel coated particle (%)
(I)	φ 20.09 × 2.05	1.67	30.2
(II)	φ 20.03 × 4.94	1.73	29.1
(III)	φ 6.00 × 60.13	1.70	28.0
(IV)	φ 6.01 × 14.90	1.68	28.5

2.2 燃料コンパクトマトリックス

燃料マトリックスの物性を究明のため, 燃料粒子を含まない試験片の製作も行った。これは前項と全く同一組成の原料を用い円板(φ30×3mm)にモールドし同一熱処理を行ったものである。このマトリックス材の見掛け密度は1.71 g/cm³であった。

3. 実験の方法

燃料コンパクトのモデルとしてTable 1に示した形状寸法の試験片を用い, 一連の機械的, 破壊力学的ならびに耐熱応力性の実験を行った。

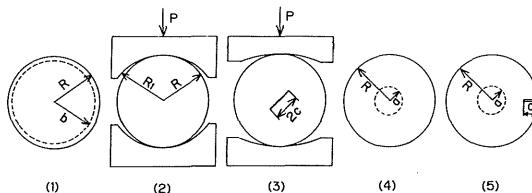


Fig. 2 Measuring methods for disk specimens.

3.1 機械的および破壊力学的性質

Fig. 2は円板を用いた試験法の要領を示したもので, (1)は試料円板(半径R, 厚さh)の中心部のボール圧子による円板曲げ強度 σ_{b1} ⁽⁵⁾, (2)は試料円板の直径方向の円弧形圧子による圧裂引張強度 σ_{H1} ⁽⁶⁾, (3)は試料円板に中心スリットを加工し, 直径方向の圧縮によるモードIおよびIIの破壊靱性値 K_{Ic} および K_{IIc} ^(7, 8)の試験要領を示す。また, 中性子照射前後における寸法変化 δ , 超音波伝播速度による縦弾性係数E⁽⁹⁾, 電気比抵抗 ρ , 3点曲げ強度 σ_{b2} , シャルピー衝撃試験による衝撃破壊エネルギー E_c , 試料円板中心のジュール加熱による熱拡散率 κ ⁽¹⁰⁾, 圧縮強度 σ_c , 1/4インチ鋼球を用いたロックウェル硬さ H_{R15X} などの測定を行った。

3.2 耐熱応力性

Fig. 2中の(4)および(5)は半径aなる中心領域を急加熱するときのき裂を生ずる限界の電力Wの測定による耐熱応力性を表す熱衝撃抵抗のパラメータ Δ ($=\sigma_t k/E\alpha$, σ_t は引張強度, kは熱伝導率, Eは縦弾性係数, α は熱膨張係数)⁽¹⁰⁾および予め深さcの緑き裂をつけた円板に対する同様な加熱によるき裂伝播の限界の電力Wの測定による熱衝撃破壊靱性のパラメータ ∇ ($=K_{Ic} k/E\alpha$)⁽¹¹⁾の測定要領を示す。 Δ および ∇ は次式で表される。

$$\Delta = \sigma_t k / E \alpha = \sigma_{\theta\theta} \beta W / \pi h (a/R)^2 \quad (1)$$

$$\nabla = K_{Ic} k / E \alpha = F_1 \sqrt{\pi c} \beta W / \pi h (a/R)^2 \quad (2)$$

ここに $\sigma_{\theta\theta}$ は加熱半径比 a/R のとき無次元加熱時間 $\tau = 0.25$ に対する円板の外周縁に生ずる最大の円周方向の無次元熱応力, F_1 は同じく緑き裂深さ比 c/R に対するき裂先端の無次元応力拡大係数である。 β はアーク放電加熱における加熱効率である⁽¹⁵⁾。

Table 2 Neutron irradiation conditions in JMTR.

Specimen	Capsule number	Neutron flux (n/cm ² s, E>29fJ)	Temperature (°C)	Neutron fluence (n/m ² , E>29fJ)
Fuel compact	87H-33u	3.28×10^{14}	900 (850~950)	1.7×10^{25}
Graphite IG-110	80H-31u	1.10×10^{14}	925 (850~1000)	$(1.1-1.5) \times 10^{25}$

3.3 中性子照射試験

Table 2は燃料コンパクト試験片のJMTRにおける照射条件を示す。また、HTTR炉心用黒鉛IG-110の場合⁽²⁾も同表に示す。これらの照射条件はHTTRの実用状況に近く、両者の条件ともほぼ同程度とみなせるので、照射効果の比較ができる。

Table 3 Mean values of experimental results of the fuel compact model before and after neutron irradiations and their comparisons with graphite IG-110

Material	Irradiation	N*	Fuel compact model		graphitic IG-110	
			before	after	before	after
Bulk density		4	1.82	1.84	1.75	1.75
γ (g/cm ³)				(1.01)**		(1.00)**
Dimensional change (%)		4	-	-	-	-
				(-0.58)		(-0.04)
Young's modulus E (GPa)		4	6.89	9.97	7.80	11.8
				(1.45)		(1.51)
Compressive strength σ_c (MPa)		4	25.7	35.9	70.5	89.2
				(1.40)		(1.27)
Bending strength σ_b (MPa)		4	12.6	17.6	38.7	47.6
				(1.40)		(1.23)
Diametral compression σ_{Ht} (MPa)		2	6.43	9.10	15.3	18.5
				(1.42)		(1.21)
Electric resistance ρ ($\mu\Omega$ cm)		4	2097	4241	1150	1927
				(2.02)		(1.68)
Rockwell hardness H _{k15N}		7	49.3	63.4	71.0	78.0
				(1.29)		(1.10)
Impact fracture energy E _o (J/cm ²)		2	0.12	0.09	0.41	0.42
				(0.75)		(1.02)
Mode I fracture toughness K _{IC} (MPa ^{1/2})		4	0.62	0.90	0.70	1.01
				(1.45)		(1.29)
Mode II fracture toughness K _{IIc} (MPa ^{1/2})		4	0.66	0.83	0.96	1.24
				(1.26)		(1.29)
K _{IIc} /K _{IC}			1.06	0.92	1.23	1.23
Thermal diffusivity κ (mm ² /s)		2	34.3	21.9	48.5	26.0
				(0.64)		(0.54)
Thermal shock resistance Δ (W/mm)		7	9.65	4.18	31.9	21.7
				(0.43)		(0.68)
Thermal shock fracture toughness ∇ (W/mm ^{1/2})		7	25.8	14.0	34.4	26.8
				(0.54)		(0.78)
Equivalent crack size $Ce_1=(K_{IIc}/\sigma_c)^2/\pi$ (mm)			3.47	3.36	0.13	0.14
				(0.97)		(1.08)
$Ce_2=(\nabla/\Delta)^2/\pi$ (mm)			2.28	3.57	0.37	0.49
				(1.57)		(1.32)

* Number of specimens after neutron irradiation.

** Values inside the parentheses show the ratio of "after irradiation" and "before irradiation values"

4. 実験結果および考察

Table 3は燃料コンパクトモデルおよび黒鉛IG-

110の照射前後の実験結果の平均値を一括して示す。表中の()の数値は照射による変化比を(照射後/照射前)で示した。以下、主として燃料コンパクトモデルの実験結果について説明する。

4.1 機械的性質

燃料コンパクトの照射前後の寸法は平均約0.58%の収縮を示した。この値はIG-110の場合の0.04%よりも大きい。しかし、IG-110の他の実験⁽²⁾ではほぼ類似な照射条件で0.2~0.5%の範囲にあり、ほぼ同程度かいくぶん大きめの収縮を示すものと考えられる。このような照射によるコンパクトの収縮量はSchulze⁽¹³⁾らによる黒鉛マトリックスの場合に近い。

燃料コンパクトの縦弾性係数E、圧縮強度 σ_c 、曲げ強度 σ_b 、圧裂引張強度 σ_{Ht} は黒鉛IG-110の場合に比較し小さい。このうち σ_c と σ_{Ht} の値が特に著しく小さい。 σ_c と σ_{Ht} は圧縮応力が支配的な応力場におけるせん断破壊に関する強度であり、被覆粒子とその界面上の欠陥がせん断に対し敏感であると考えられる。

燃料コンパクトのロックウェル硬さH_{R15X}はIG-110の約70~80%で、機械的強度に比較しその差が小さい。しかし、衝撃破壊エネルギーE_cは約20~30%に過ぎず、動的応力に対して弱い傾向を示した。

中性子照射による燃料コンパクトのヤング率は1.45倍増大した。このような照射によるヤング率の変化はDelle⁽¹⁴⁾の黒鉛マトリックスの場合とよく類似する。また、その機能的諸性質は総じて1.3~1.4倍増大した。ただし、燃料コンパクトの衝撃破壊エネルギーE_cは逆に減少した。照射による機械的諸性質の増大は黒鉛IG-110⁽²⁾およびその他の原子炉用黒鉛の場合^(15,16)と同様の傾向である。これはよく知られた一般的傾向に一致し、

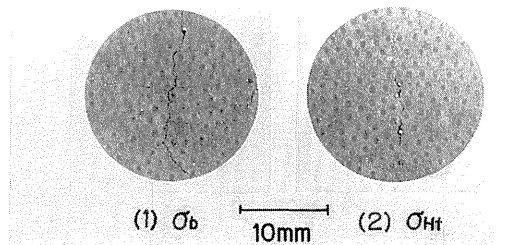


Photo. 2 Typical fractures after (1) the bending test and (2) the diametral compression test of the fuel compact disk specimens.

中性子照射による層間原子が転位の移動を拘束し、幾分硬化をもたらすためと考えられる。

Photo. 2 は (1) 曲げ強度 σ_b および (2) 圧裂引張強度 σ_{II} 試験における典型的な破壊の状況を示す。き裂は被覆粒子の間のマトリックス部を縫うように進行し、被覆粒子が破面から剥落することもある。なお、破面は後述のSEMによる熱応力破壊の場合と特徴的な差異は認められなかった。

4.2 破壊力学的性質

燃料コンパクトのモード I の破壊靱性値 K_{IC} は IG-110 に比較し、照射前後とも約 80 ないし 90% であるが、モード II の破壊靱性値 K_{IIc} は IG-110 の約 70% 以下でその差がやや大きい。 K_{IC} および K_{IIc} は照射によりそれぞれ 1.45 および 1.26 倍に増大し、IG-110 の場合の 1.29 倍と同じ傾向を示した。しかし、破壊靱性値の比 (K_{IIc}/K_{IC}) は燃料コンパクトの場合、照射前後でそれぞれ 1.06 および 0.92 で、IG-110 の場合の 1.23 よりも小さい。 (K_{IIc}/K_{IC}) は純せん断強度と単軸引張強度の比を意味するもので、試料数が十分とは言えないが燃料コンパクトのせん断強度が引張強度よりも僅かに大きく、照射により逆転し小さくなることが注目される。これは一般の脆性材料の傾向とは異なるところで、照射により被覆粒子とマトリックスまたはその界面のせん断強度またはモード II の破壊靱性値が比較的大きく劣化する傾向があると考えられる。

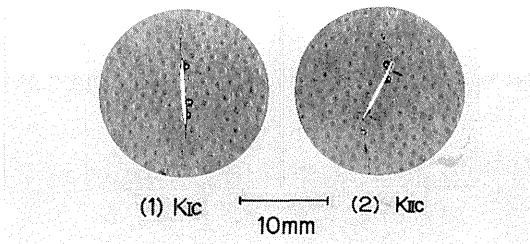


Photo. 3 Typical fractures after (1) the mode I and (2) mode II fracture toughness tests of the fuel compact disk specimens.

Photo. 3 は (1) モード I および (2) モード II の破壊靱性試験における典型的な破壊の状況を示す。中心スリット上にはスリット加工中に生じた被覆粒子の剥離痕が見られる。き裂は (1) では被覆粒子の間を縫うようにマト

リックス中をモード I 型に進行し、(2) ではスリット先端から最初にモード II 型に進行するが、次第にその方向をモード I 型に変えて進行する。

4.3 熱拡散率および電気比抵抗

照射前の燃料コンパクトの熱拡散率 κ は黒鉛 IG-110 の約 70%、照射後は約 84% であり、その照射後の照射前との比は 0.64 であった。黒鉛では熱が格子振動によって伝播されることが知られているが、燃料コンパクトではその内在する SiC 被覆粒子が一つの障壁となり黒鉛よりも熱伝導が低いものと考えられる。また、照射により黒鉛結晶の主として基底面の欠陥生成が熱の伝導性を低下させたものと考えられる。

また、照射前の燃料コンパクトの電気比抵抗 ρ は IG-

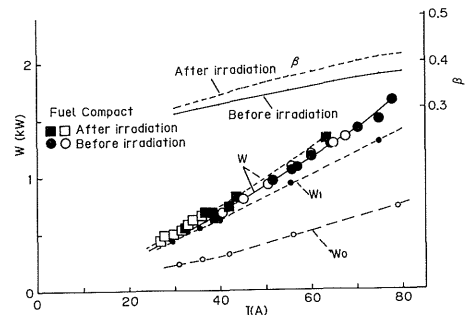


Fig. 3 Relations between electric current and power in the thermal shock resistance testings and the calibrations of heating efficiency β .

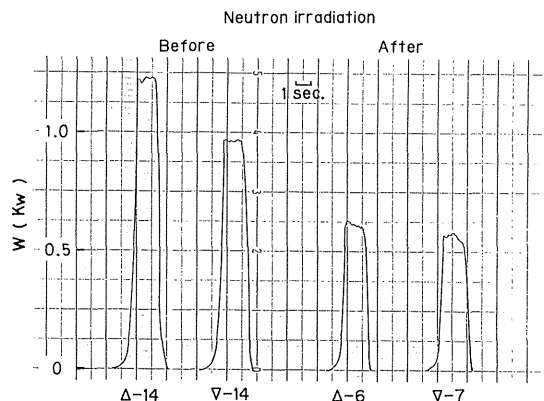


Fig. 4 Recorder chats of electric powers in the thermal shock resistance Δ and the fracture toughness ∇ tests for fuel compact model.

110の約1.8倍、照射後は約2.2倍であった。その照射後の照射前との比は2.02倍で、IG-110の1.68倍よりも大きい。黒鉛の電気比抵抗の照射による増大はキャリアに対する散乱中心の増加による電子の移動度の大きな減少によるものとされている。

なお、MasonとKnibbsの黒鉛についての電気比抵抗 ρ と熱伝導率 k の近似関係⁽⁴⁶⁾ を用いて照射前の k を算出すると、燃料コンパクトで約 $0.64\text{W}/\text{cm}^{\circ}\text{C}$ 、IG-110で約 $1.12\text{W}/\text{cm}^{\circ}\text{C}$ になる。また、燃料コンパクトの比熱 C_p の値はいま不明であるが、黒鉛 IG-110と同程度の $1.00\text{Ws}/\text{g}^{\circ}\text{C}$ (125°C) とし、熱拡散率 κ の測定値からその熱伝導率 k を求めると次のように計算される。

$$k = C_p \gamma \kappa = 1.00 \times 1.82 \times 34.3 / 100 = 0.62\text{W}/\text{cm}^{\circ}\text{C} \quad (3)$$

これらの燃料コンパクトの熱伝導率の値は日本原子力研究所の燃料コンパクトのデータ⁽⁴⁷⁾の室温の値に近い。

4.4 耐熱応力性

Fig. 3は一例として燃料コンパクトのアーク放電加熱による熱衝撃抵抗 Δ 試験における電流と電力の関係を示す。図中の○および●は照射前試験の破壊しなかった場合および破壊を生じた場合を示し、□および■は照射後試験の破壊しなかった場合および破壊を生じた場合を示す。また、図中の W および W_1 の曲線はそれぞれ試料円板の上・下面の状況に対応するような上・下の電極間の電力の関係を示す。これらの曲線から加熱効率 β が算出される⁽⁴⁵⁾。 β は上下の黒鉛電極間のアーク放電加熱装置について検定され 0.35 程度であった。Fig. 4は照射前および後の Δ および ∇ の実験におけるき裂を生じる限界の電力付近の記録チャートの例を示す。これらの

チャートにはアーク放電中の電力に変動が認められるが、その平均値を測定した。

Fig. 5は燃料コンパクトモデル円板の照射前後における Δ と ∇ の熱衝撃試験における加熱電力の値を示す。照射後試験に用いた試験片数が少ないが、限界電力の範囲は破壊を生じた最小の電力と破壊を生じなかった最大の電力の範囲から決定した。

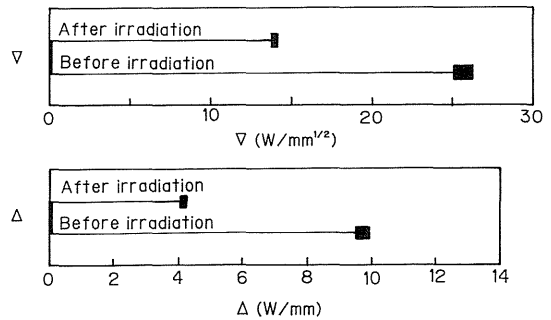


Fig. 6 Thermal shock resistance (Δ) and thermal shock fracture toughness (∇) for fuel compact.

Fig. 6は前述の熱衝撃試験における限界に電力値を用い (1) および (2) 式により β を補正して得られた Δ および ∇ の範囲を示す。これらの範囲の平均値はTable 3に Δ および ∇ の値として表示した。

燃料コンパクトの熱衝撃抵抗 Δ は黒鉛 IG-110の場合と比較し約 $1/3$ 、熱衝撃破壊靱性 ∇ は約 $1/2$ である。また、照射後の Δ および ∇ はともに照射前の値より約 50% に減少し、IG-110の場合より幾分その劣化が

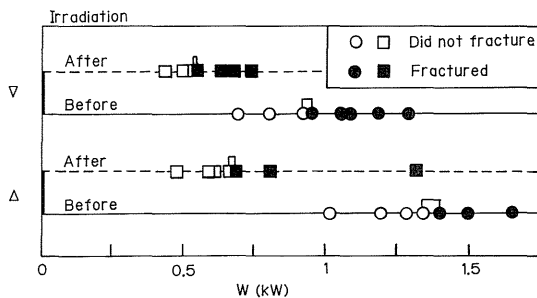


Fig. 5 Electric powers in the thermal shock resistance (Δ) and thermal shock fracture toughness (∇) tests for fuel compact.

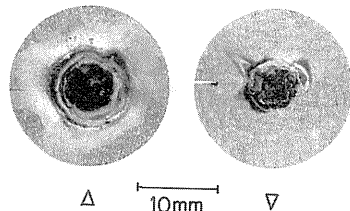


Photo. 4 Typical fractures after the thermal shock resistance (left) and fracture toughness tests (right) of the fuel compact disk specimens.

大きい。

Photo. 4 は燃料コンパクトの熱衝撃抵抗および熱衝撃破壊靱性試験における典型的な破壊の状況を示す。き裂は熱衝撃抵抗試験においては外周縁から中心に向かって進行し、熱衝撃破壊靱性試験においては緑スリットの先端から中心に向かってモード I 型に進行する。

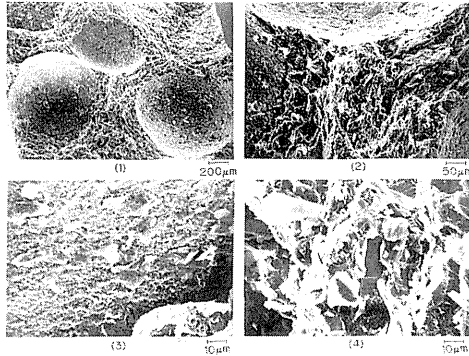


Photo. 5 Typical fractographs of fuel compact.
(1), (2) general view, (3) fuel (4) matrix.

Photo. 5 は燃料コンパクトの熱応力破面のフラクトグラフィの例を示した。写真 (1) は破面上の被覆粒子とマトリックスの全体を示し、写真 (2) はその一部の拡大を示す。これらの写真からき裂は被覆粒子と粒子の間または被覆粒子とマトリックスの界面に沿って進行することがわかる。マトリックスの破面上には天然黒鉛の組織と見られるよく発達した層面がフレーク状に見え、その長辺は被覆粒子まわりでは球面に沿うような繊維状組織 (テクスチャー) が見られる。写真 (3) は被覆粒子の上に数 μm 以下の小粒と十数 μm の長さのフレーク片が付着し、写真 (4) はマトリックスの破面上のよく発達したフレーク状組織が見られる。

4.5 等価き裂寸法

燃料コンパクトのフラクトグラフィを見ると、破壊はマトリックス中を被覆粒子の界面に沿うように進展する。被覆粒子は高剛性の介在物であり、その周りは欠陥が多数干渉する複雑な応力集中点である。マトリックスは被覆粒子を包むように幾分繊維状組織を有し、微視的に非常に不均質である。それゆえ、燃料コンパクト内の応力は微視的に非常に複雑に分布するものと考えられる。

前述の熱応力に対する Δ および ∇ はもちろん巨視的な

評価を与えるものであるが、燃料コンパクト内の微視的構造を反映した特性も示している。いま、多数の介在物や欠陥などが存在する材料が一様引張応力をうける平板の中央にその応力と直角に長さ $2C$ なる 1 個のき裂状欠陥に相当させるものとする、その応力が引張強度 σ_t に達するとき欠陥まわりの応力拡大係数が破壊靱性値 K_{Ic} に達する。このようなき裂を等価き裂と定義すると、その寸法 C_e は次式で表される。

$$C_{e1} = (K_{Ic} / \sigma_t)^2 / \pi \quad (4)$$

また、等価き裂寸法は熱応力に対する Δ と ∇ のデータからも次式で表される。

$$C_{e2} = (\nabla / \Delta)^2 / \pi \quad (5)$$

本研究においては直接、引張強度の実験をしていない。しかし、Table 3 に示した円柱状試験片に対する三点曲げ強度 σ_b の試験によると、照射前および後のそれぞれ 4 個の試験片に対する標準偏差 S_d はそれぞれ 2.02 MPa および 3.17 MPa である。これから Weibull の破壊の確率論に縦って均一性係数 m を導入し、引張強度を推定すれば次式で表される⁽⁸⁾。

$$\sigma_t = \sigma_b / \left\{ \frac{V_t}{V_b} \pi (m+1) \frac{\Gamma((m+4)/2)}{\Gamma((m+1)/2) \Gamma(3/2)} \right\}^{1/m} \quad (6)$$

ここで、引張および曲げ強度試験片の体積 V_t および V_b は同じとし、 m は均一性係数で、曲げ強度 σ_b の変動係数 C_v (標準偏差と平均曲げ強度の比) から燃料コンパクトの照射前後の m はそれぞれ 7.5 および 6.5 である。この m を (11) 式に代入して計算すれば照射前後の推定引張強度は次のようになる。

$$\text{照射前: } \sigma_t = \sigma_b / 2.12 = 12.6 / 2.12 = 5.94 \text{ MPa}$$

$$\text{照射後: } \sigma_t = \sigma_b / 2.01 = 17.6 / 2.01 = 8.79 \text{ MPa} \quad (7)$$

それゆえ、等価き裂寸法は次のようになる。

$$(4) \text{ 式から照射前: } C_{e1} = (0.62 / 5.94)^2 / \pi = 3.47 \text{ mm}$$

$$\text{照射後: } C_{e1} = (0.90 / 8.76)^2 / \pi = 3.36 \text{ mm} \quad (8)$$

$$(5) \text{式から照射前: } C_{e2} = (25.8/9.65)^2 / \pi = 2.28 \text{mm}$$

$$\text{照射後: } C_{e2} = (14.0/4.18)^2 / \pi = 3.57 \text{mm} \quad (9)$$

C_{e1} と C_{e2} は全く別々の実験値から計算されたものであるが、この種の計算値としてはよく合う。等価き裂寸法は引張応力下で一つの欠陥が成長し最終破壊時の限界の寸法を示すもので、見かけの欠陥寸法よりも著しく大きい。黒鉛IG-110の(5)式による C_{e2} は0.37～0.49mmと計算され、これはIG-110の最大コークス粒子の数倍に相当する。燃料コンパクトの場合は内在する被覆粒子が異質な介在欠陥として作用するので、欠陥が成長し得る余裕が著しく大きいと考えられる。このことは燃料コンパクトの直径20mmの円板に3mmの深さの緑き裂を付けた熱衝撃破壊靱性試験における限界電力値が緑き裂のない熱衝撃抵抗試験の限界の電力値との差が意外に少ないことと対応するように思われる。

5. 燃料コンパクトの定格運転時および異常時における熱応力の評価

5.1 定格運転時における熱応力

日本原子力研究所のHTTR炉心熱流設計⁽¹⁹⁾によると、原子炉出口の冷却材温度が950°Cでの運転時、基準炉心(燃焼330日)で燃料最高温度は1495°C、燃料コンパクト外面で1417°Cである。いま内・外半径をa、bとし、内外面の温度差 T_d から円筒としての円周方向の最大引張熱応力 $\sigma_{\theta \max}$ は次式から計算される⁽²⁰⁾。

$$\sigma_{\theta \max} / E \alpha_{(r=b)} = \frac{T_d}{2(1-\nu)} \left\{ \frac{\xi^2 + 1}{\beta^2 - 1} - \frac{1 - \ln \xi}{\ln \beta} \right\} \quad (10)$$

上式に $T_d = 1495^\circ\text{C} - 1417^\circ\text{C} = 78^\circ\text{C}$ 、 $\xi = b/r = 1$ 、 $\beta = b/a = 1.3/0.5 = 2.6$ 、ポアソン比 $\nu = 0.2$ を代入すると次のようになる。

$$\sigma_{\theta \max} / E \alpha_{(r=b)} = 34.2^\circ\text{C} \quad (11)$$

いま、燃料コンパクトの熱伝導率kとして前項4.3の0.62W/cm°Cを導入し、熱衝撃抵抗 Δ と比較すれば次のようになる。

$$\sigma_{\theta \max} k / E \alpha_{(r=b)} = 2.1 \text{W/mm} \ll \Delta \quad (12)$$

5.2 異常時実験における熱応力

燃料コンパクトについての異常時燃料安全性実験として、日本原子力研究所のNSRR (Nuclear Safty Research Reactor) による最大2300J/gUO₂のエネルギーをパルス状に投入する照射試験を行っている。その結果は全被覆粒子が破損し、燃料コンパクトの表面にはき裂が網目状に入ったことが報告されている⁽²¹⁾。

実際の燃料コンパクト(外径26mm, 内径10mm, 長さ39mm)は一個重量が45g, UO₂の量が15.3gである。いま、上記の最大エネルギーを15msの間にパルス状に投入されるものとすれば、燃料コンパクトの単位体積当たりの発熱量Hは次式のように計算される。

$$H = 2300 \text{J} / 15.3 \text{gUO}_2 \cdot 15 \text{ms} = 2300 \text{J} / 1.472 \text{cm}^3 \text{UO}_2 \cdot 15 \text{ms} = 1.042 \times 10^5 \text{W} / \text{cm}^3 \text{UO}_2 \quad (13)$$

この異常時実験中の温度のデータはないが、パルス状の短時間の一樣発熱Hの内および外半径がaおよびbの円筒燃料要素とし、燃料コンパクトにき裂が入った瞬間の温度は一応定格運転時の内・外面の温度が等しく室温と仮定する。このときの半径方向及び円周方向の熱応力はそれぞれ次式で計算される⁽²²⁾。

$$\sigma_r = \frac{E \alpha}{1-\nu} \left\{ \frac{(r^2 - a^2) \{ \zeta(b) - \zeta(a) \}}{(b^2 - a^2) r^2} - \frac{|\zeta(r) - \zeta(a)|}{r^2} \right\} \quad (14)$$

$$\sigma_{\theta} = \frac{E \alpha}{1-\nu} \left\{ \frac{(r^2 - a^2) \{ \zeta(b) - \zeta(a) \}}{(b^2 - a^2) r^2} + \frac{|\zeta(r) - \zeta(a)|}{r^2} - m \ln r + n r^2 - f \right\} \quad (15)$$

$$\text{ここで, } m = \frac{1}{\ln(b/a)} \{ n(b^2 - a^2) - (T_1 - T_2) \}$$

$$n = H / 4k$$

$$f = \frac{1}{\ln(b/a)} \{ n(a^2 \ln b - b^2 \ln a) + (T_1 \ln b - T_2 \ln a) \}$$

$$\zeta(r) = \frac{1}{4} r^2 \{21nr-1\} m - nr^2 + 2f \quad (16)$$

σ_r は燃料コンパクトの内外面でゼロであるから、中央面 $r = (a+b)/2$ で計算し、 σ_θ は外面で計算すると次のようになる。

$$\begin{aligned} -\sigma_r / E \alpha_{(r=(a+b)/2)} &= 604^\circ\text{C} \\ \sigma_\theta / E \alpha_{(r=b)} &= 2059^\circ\text{C} \end{aligned} \quad (17)$$

ここで、熱衝撃抵抗 Δ と比較するため上式に $k (=0.62 \text{ W/cm}^\circ\text{C})$ を導入すれば次式のようになる。

$$\begin{aligned} -\sigma_r k / E \alpha_{(r=(a+b)/2)} &= 374 \text{ W/cm} \gg \Delta \\ \sigma_\theta k / E \alpha_{(r=b)} &= 1277 \text{ W/cm} \gg \Delta \end{aligned} \quad (18)$$

また、燃料コンパクトの軸方向の拘束がないと仮定すれば軸方向応力 σ_z は同様な計算から次のようになる。

$$\sigma_z k / E \alpha_{(r=b)} = 1622 \text{ W/cm} \gg \Delta \quad (19)$$

以上、前項の5.1および5.2の計算から燃料コンパクトの定格運転中の熱応力は熱応力抵抗 Δ を十分下回り十分安全である。しかし、NSRRによる異常時燃料安全性実験例における熱衝撃応力は各方向とも Δ をはるかに上回り、燃料コンパクトにき裂が発生したことを裏付ける。なお、このき裂は網目状とされ、 σ_θ 、 σ_z とも限界熱応力抵抗を大幅に上回ったことを示した。また、燃料コンパクトの等価き裂寸法は前項4.5で推論したように3mm

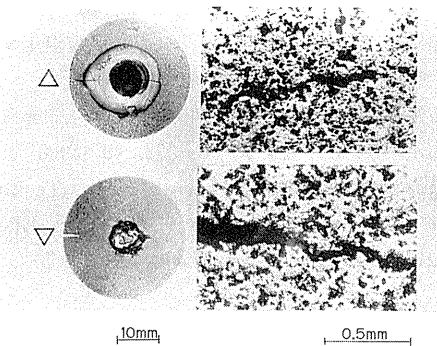


Photo. 6 Typical fractures after the thermal shock testings of graphite matrix (NF)

程度と著しく大きい。それゆえ、き裂が発生してもなかなか最終破壊に至らない状況をよく説明するようにもわれる。

6. 燃料コンパクトマトリックスの耐熱応力性試験

燃料粒子を含まないマトリックスのみで作った円板について同様な熱衝撃抵抗 Δ および熱衝撃破壊靱性 ∇ の実験を行った。Photo. 6はその典型的な破壊の状況を示す。破面のSEM観察の結果はPhoto. 5のマトリックス部と類似なものであった。

実験結果の平均値は次の通りであった。

$$\Delta = 18.4 \text{ W/mm}, \quad \nabla = 49.8 \text{ W/mm}^{1/2}$$

したがって等価き裂寸法 C_{e2} は

$$C_{e2} = 2.33 \text{ mm}$$

またモード I およびモード II の破壊靱性値は

$$K_{Ic} = 0.93 \text{ MPam}^{1/2}, \quad K_{IIc} = 1.08 \text{ MPam}^{1/2}$$

これらの結果はTable 3の被覆燃料粒子を含むコンパクトモデルのデータと比較し、 Δ および ∇ はともに約2倍の値を示す。またマトリックスの破壊靱性値はモード I で1.5倍、モード II でおよそ1.6倍大であった。 C_{e2} はこれらの比率の通り、燃料コンパクトモデルとほぼ同程度であった。これから、被覆燃料粒子の存在は熱応力に対する抵抗 Δ および破壊靱性 ∇ ともおよそ1/2に低下されることがわかる。

5. 結 論

本研究は UO_2 核の代りに球状 SiC 核を用い、同様のプロセスで製作した被覆粒子を黒鉛質マトリックスに分散したHTTR用燃料コンパクトモデルを試作し、一連の機械的、破壊力学的諸性質ならびに耐熱応力性の検討を行った。これら諸性質の実験結果はHTTR用微粒等方性黒鉛IG-110の場合と比較された。また、JMTRによる照射効果についても比較された。試験片の数量が照射後の場合特に不十分であったが、実験結果の平均値を総合してTable 3に表示した。ここに得られた結果を要約すると次のようになる。

(1) 機械的性質：燃料コンパクトの機械的強度はIG-

110黒鉛のおよそ1/3程度である。縦弾性係数の差が比較的少ないことから判断して内在する被覆粒子が構造敏感性の一つの応力集中源となっているものと考えられる。

(2) 破壊力学的性質：燃料コンパクトの破壊靱性値はIG-110のそれのおよそ70~80%で、機械的強度の場合に比較しその差が少ない。これは内在する被覆粒子が分散した介在物または欠陥となり、き裂先端の応力の特異性を幾分緩和する傾向があるためと考えられる。

(3) 熱的性質ならびに電気比抵抗：燃料コンパクトの熱拡散率は照射前でIG-110の約70%、照射後で約84%である。これは比熱を一定とすれば、比重量の差から考えて熱伝導率はIG-110と比較しその差が少ない傾向にある。電気比抵抗はIG-110よりもおよそ2倍近く大きい。

(4) 耐熱応力性：燃料コンパクトの熱衝撃抵抗はIG-110と比較し照射前で約1/3、照射後で約1/5と小さい。また、熱衝撃抵抗の照射抵抗の照射後の劣化は43%で、熱衝撃破壊靱性は照射後で54%であった。この状況は燃料コンパクトとIG-110の機械的強度と破壊靱性の差異の特徴と類似する。これは等価き裂寸法が著しく大きく、最終破壊に至るまでに欠陥が大きく成長する余裕を有することに対応する。すなわち、熱衝撃試験から計算された等価き裂寸法は燃料コンパクトで照射前約2.3mm、照射後約3.6mmであり、黒鉛IG-110の場合の約0.4ないし0.5mmと比較し著しく大きい。このような燃料コンパクトの大きな等価き裂寸法はNSSRによる異常時燃料安全性実験におけるき裂の発生が最終破壊に至らないことの一つの裏付けを与える。

(5) 被覆燃料粒子を含まないマトリックスのみの耐熱応力性試験を実施し、熱衝撃抵抗、熱衝撃破壊靱性とも燃料粒子を含む場合と比較し、約2倍の値を有することを示し、燃料粒子が存在することの影響を明らかにした。

参 考 文 献

- (1) 日本原子力研究所：多目的高温ガス炉開発の現状，(1981)。
- (2) Sato S., Kawamata K., Kurumada A., Ugachi H., Awaji H. and Ishida R. : J. Nucl. Sci. and Tech., 24, 547 (1987)。
- (3) 福田幸朔，他：JAERI-M, 89-007, (1989)。
- (4) 日本原子力研究所：高温工学研究炉開発の現状，33 (1987)。
- (5) 佐藤千之助，車田亮，宇賀地弘和，佐藤正彦，袖原俊一，池永慶章：茨城大学部研究集報，33, 31 (1985)。
- (6) Awaji H. and Sato S.: J. Eng. Mater. and Tech., ASME-H, 100, 175 (1978)。
- (7) Awaji H. and Sato S. : J. Eng. Mater. and Tech., ASME-H, 101, 139 (1979)。
- (8) Sato S., Kawamata K. and Awaji H. : High Temp. High Press., 12, 23 (1980)。
- (9) Sato S. and Miyazono S. : Carbon, 2, 103 (1964)。
- (10) Sato S., Sato K., Imamura Y. and Kon J. : Carbon, 13, 309 (1975)。
- (11) Sato S., Awaji H. and Akuzawa H. : Carbon, 16, 103 (1978)。
- (12) 日本原子力研究所：高温ガス炉研究開発の現状，126 (1986)。
- (13) Schulze R. E., Schulze H. A. and Delle W. W. : 5th Inter. Conf. on Carbon and Graphite, London, 142 (1978)。
- (14) Delle W. W., Schulze H. A. and Schulze R. E. : 12th Biennial Conf. on Carbon, Pittsburgh, 127 (1975)。
- (15) Sato S., Kurumada A., Kawamata K., Takizawa T., and Teruyama K., : Carbon, 27, 507 (1989)。
- (16) Kelly B. T. : Physics of Graphite, Applied Science Publishers, London, 231 (1981)。
- (17) 福田幸朔，私信。
- (18) Sato S. : Symposium on Carbon, Tokyo, V-3 (1964)。または炭素，No. 38, 20 (1964)。
- (19) 丸山創，他：JAERI-M 88-255, 高温工学試験研究炉炉心熱流体力設計 (1988)。
- (20) 強度設計データブック (修正版)，裳華房，996 (1971)。
- (21) 福田幸朔：JAERI-M 90-078, 40 (1990)。
- (22) Zudans Z., et al. : Thermal Stress Technique in the Nuclear Industry, American Elsevier Publishing Co., New York, 492 (1965)。