OUKA
Osaka University Knowledge Archive

Title	二酸化ウランペレットのリロケーションと核燃料挙動に関する研究
Author(s)	小熊, 正臣
Citation	大阪大学, 1984, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/798
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

二酸化ウランペレットのリロケーション と核燃料挙動に関する研究

昭和59年

小　熊　正　臣

二酸化ウランペレットのリロケーション
と核燃料挙動に関する研究

昭和５９年

小　熊　正　臣

目　　次

第1章　序　　論 …… 1

1. 背景および動機 …… 1
2. 研究の目的および構成 …… 7
3. 参考文献 …… 8

第2章　二酸化ウランペレットの熱衝撃破壊 …… 14

1. 緒　　言 …… 14
2. 理　　論 …… 14
3. 実　　験 …… 22
4. 結果および検討 …… 29
5. 結　　言 …… 38
6. 参考文献 …… 39

第3章　二酸化ウランペレットの破壊強度 …… 41

1. 緒　　言 …… 41
2. 実　　験 …… 41
3. 結果および検討 …… 44
4. 結　　言 …… 56
5. 参考文献 …… 57

第4章　出力上昇過程におけるペレットの割れとリロケーション挙動 …… 58

1. 緒　　言 …… 58
2. 燃料棒照射実験 …… 59
3. ペレットの変形解析 …… 63
4. 結果および検討 …… 71
5. 結　　言 …… 95
6. 参考文献 …… 96

第5章　ペレットー被覆管相互作用のもとでの割れたペレットの挙動 …… 99
1. 緒　　言 …… 99
2. 炉外ＰＣＩ模擬実験 …… 101
3. 燃料棒のＰＣＩ変形解析 …… 109
4. 結果および検討 …… 111
5. 結　　言 …… 128
6. 参考文献 …… 129

第6章　ペレットー被覆管相互作用の開始条件 …… 131
1. 緒　　言 …… 131
2. ハードＰＣＩ開始条件の解析的検討 …… 131
3. ハードＰＣＩ開始条件の実験的検討 …… 138
4. 結果および検討 …… 142
5. 結　　言 …… 151
6. 参考文献 …… 152

第7章　結　　論 …… 154

発表論文一覧 …… 158

謝　　辞 …… 160

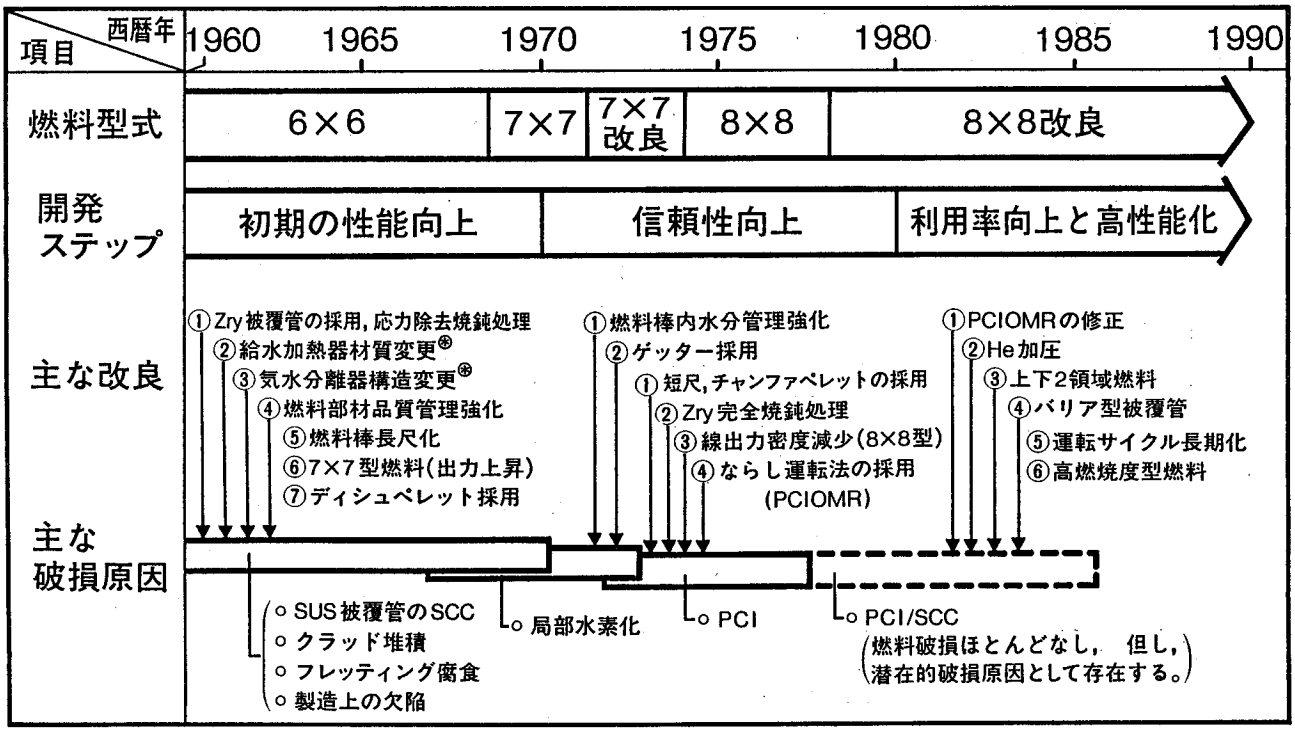
第1章　序　　論

1. 背景および動機

1.1 前　　言

世界最初の商用原子炉であるDresden－1（ＢＷＲ）とYankee Rowe（PWR）が運転を開始して以来，約２４年の歳月が経過した。この間における軽水炉燃料の性能向上と信頼性向上は著しいものがある。信頼性を例に取るならば，燃料棒の破損率は現在ＢＷＲ燃料で10^{-5}～10^{-6}，ＰＷＲ燃料で10^{-4}～10^{-5}にまで減少し[(1)～(3)]，工業製品として信頼性の高い成熟製品の地位を着実に築きつつある。しかし，現在に至る軽水炉燃料の仕様改良の経緯を見ると，燃料の性能や信頼性は順調に向上してきたわけでなく，破損を含む予想外の事例の出現と，その原因究明・対策の反復の歴史であったことを示している。**表1.1**にBWR燃料を例にとって，燃料開発の経緯を主な破損原因と関連づけて示す。このような開発の流れの中で重要な点は，現在の高性能，高信頼性燃料の実現には，新たに経験した事例からの情報と関連研究の成果を総括的にかつ適確に評価し，それを燃料設計仕様面に反映させた解析評価技術たとえば燃料挙動予測コードの進歩が大きく貢献した点である。このような解析評価技術の開発を含めた燃料研究開発のパターンは，より高い性能と信頼性を追求する限り，今後とも継続されるものと思われる。

表1.1　ＢＷＲ燃料開発の推移



⊛燃料改良と直接関係なし

以下，表1.1に示した主な破損原因とその対策の推移を簡単にふり返るとともに，その延長線上としての今日的問題，すなわち軽水炉燃料に課せられている現在の研究開発課題を述べることによって本研究の動機および意義を明らかにしてゆきたい。

1.2 主な燃料破損原因と仕様改良の経緯

商用運転開始から約１０年間は，出力密度の増加など燃料の性能向上が計られる一方で，品質，材質，構造の不良に起因する未成熟製品特有の破損が発生したが，次々に適当な措置が施され順次解決した。[4][5] その後，７×７型燃料設計仕様が定着してきた１９６０年後半から１９７０年始めにかけ，比較的低い燃焼度の燃料被覆管にジルコニウム水素化合物（$ZrH_{1.8}$）が局部的に形成し，破損に至る局部水素化破損が多発した。[2][3][6][7] 水素化物の成因は燃料棒製造工程中にUO_2ペレット中に吸収される水分であると判断され，直ちに製造工程にペレットおよび燃料棒の高真空脱ガス処理工程が組込まれた。１９７２年後半からは，これらに加えて水分ゲッターを入れた燃料棒が採用され，局部水素化破損の問題は完全に解決した。[8] １９７０年始めに新たな破損が発見された。[9] この破損は中高燃焼度の高出力，高出力変動を経験した燃料棒に多くみられること，破損部が軸方向ではペレット端部に位置し，しかも燃料棒断面ではペレットの半径方向の割れと良く対応していたことから，熱変形したペレットと被覆管との機械的相互作用（以下，ＰＣＩ：Pellet-Cladding Interaction）による破損であると判定された。[9] 軽水炉燃料の一般的使用条件では，UO_2ペレットは中心部が１０００℃以上の高温になり，半径方向には１０００～２０００℃／cmの温度勾配が生じる。このためペレットは，図1.1に示すように割れを伴い，割れ片が外側にせり出すように鼓状に変形する。[10] この割れ片のせり出し現象，すなわち割れたペレットのみかけ直径の増加をリロケーション（relocation）と呼んでいる。[11][12] リロケーションはペレット端部で最大となるため，その部分でＰＣＩが発生し被覆管には図1.2に示すようなリッジ（ridge）と呼ばれる隆起が形成する。[13] そして被覆管がペレット端部で内側から支えられた状態で冷却水圧力を受けると，外圧クリープによりリッジ変形は更に加速される。[14][15] これに加えて，リッジ部の横断面では割れたペレットがその割れ目を更に大きくするように変形するため，被覆管内面の割れに近接する位置で局所的な応力，ひずみの集中が起こ

る。[10][16][17] このような被覆管リッジ部の力学的検討から，ＰＣＩ破損は被覆管の照射脆化という材料特性の変化と，リッジ部における局所的な応力，ひずみの集中が直接原因であると判断された。[18]～[20] そこで，ＰＣＩ対策として新しい原子炉運転方式の採用と，燃料設計面での改良が行われた。

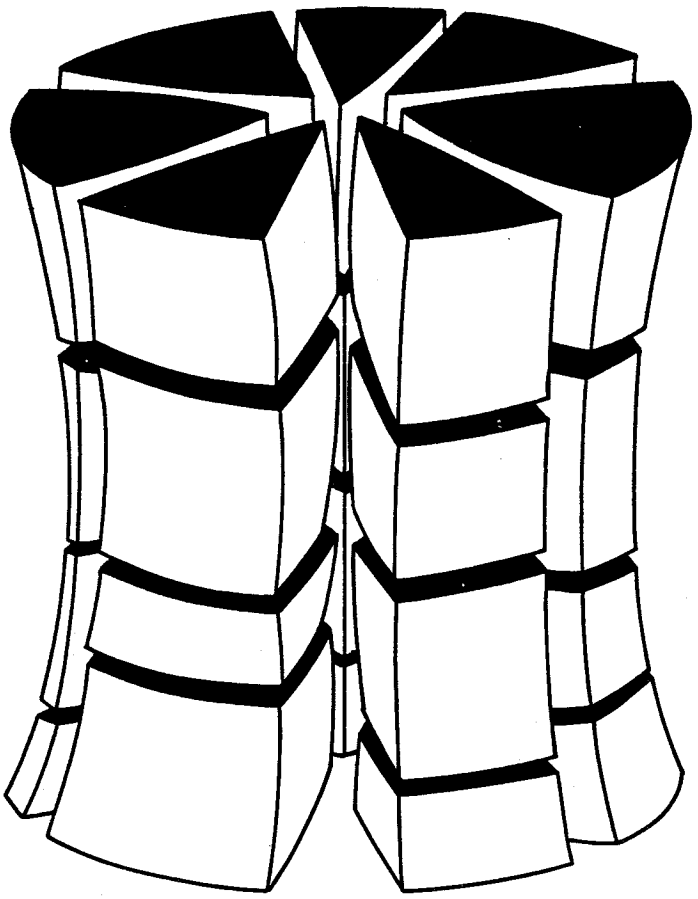


図 1.1　UO_2 ペレットの典型的な熱変形
（割れとそり返り変形）

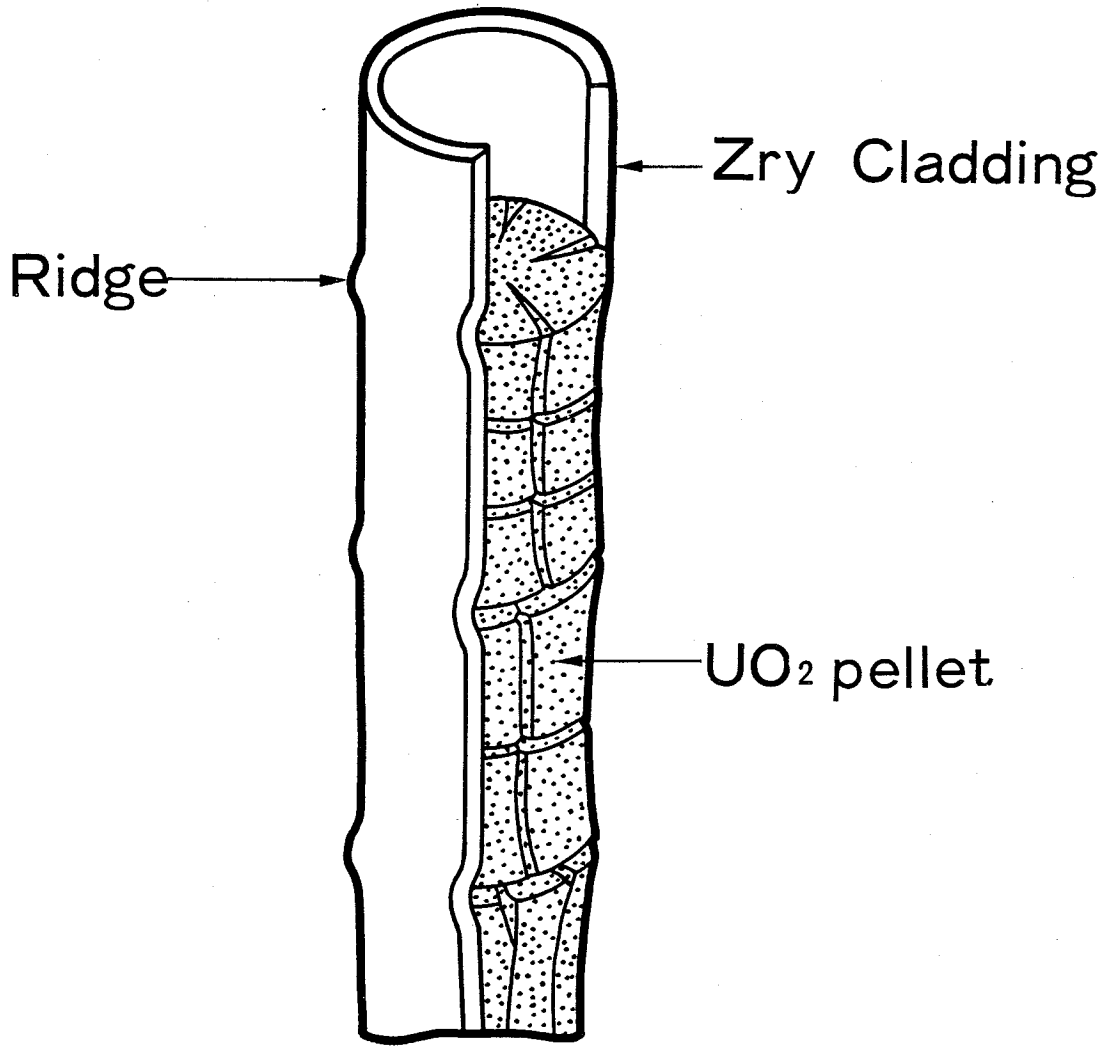


図 1.2　ペレット－被覆管相互作用
（ＰＣＩ）による被覆管のリッジ変形

新しい原子炉運転方式は，PCIOMR（Preconditioning Interim Operation Managemement Recommendation）と呼ばれ，その基本的ねらいはＰＣＩを起した後の出力上昇速度を十分遅くすることにより，徐々にペレットをクリープさせ被覆管に過大な応力，ひずみを与えないようにすることにある。[21]～[23] PCIOMRの採用により，最高出力到達時の燃料棒のリッジ変形量は従来の約½に減少した。[24]

燃料設計面としては，ペレットのそり返り変形を少なくするため，ペレットを短尺化するとともに最大のリロケーションを生じる端部に面取り（チャンファ）を施すなどの改良が行われた。[9] また，被覆管の延性特性を改善するため，従来の応力除去焼鈍処理した被覆管に代えて再結晶焼鈍処理した被覆管が採用されることになった。[11] 更に炉心出力密度を一定に保持したまま，燃料集合体が７×７型配列から８×８型配列に変更され，燃料棒の最高出力は１８.５kW／ｆｔ（６１０W／cm）から１３.４kW／ｆｔ（４４０W／cm）に低減した。[11] このような一連のペレット改良と燃料棒の出力低減の結果，燃料棒のＰＣＩ変形は大幅に減少した。[24] その後間もなくＰＣＩ破損は単なる機械的要因のみで起こるのではなく，応力，ひずみの集中個所に，ペレットから放出されたヨウ素などの腐食性核分裂生成ガスが作用して起るジルカロイ被覆管の応力腐食割れ（ＳＣＣ：Stress Corrosion Cracking）であることが判明し，以来この破損はＰＣＩ／ＳＣＣ破損，あるいはジルカロイのSCC破損と呼ばれるようになった。[25] ジルカロイのＳＣＣに関する研究は，現在も精力的に行われており，発生機構もかなり明らかになってきた。ＳＣＣ発生しきい値についても，応力レベル，[26][27] ひずみ速度，[28] ヨウ素濃度[29]～[31] など個々の因子について定量化されつつある。しかし，それらを系統的にまとめた定量的モデルはまだ完成されていない。ＰＣＩ／ＳＣＣはUO_2ペレット－ジルカロイ被覆管タイプの燃料にとって本質的な破損要因を有しており，その意味では依然として今日的問題として残されている。

1.3 現在の研究課題

PCIOMRの導入（１９７３年）以降の燃料運転実績は，PCIOMRがＰＣＩ／ＳＣＣ破損防止対策として極めて有効であることを示した。しかし，PCIOMRは原子炉の利用率の低下を招くばかりでなく，運転性能を著しく損うという問題を生じた。一方，最近の原子炉の大容量化と原子力発電量の相対的増加は，軽水炉に対

し従来の基底負荷の代わりに負荷追従型発電炉としての役割りを要求するようになってきた。[32][33] 更に，軽水炉の経済性向上の観点から，燃料の燃焼度伸長，すなわち高燃焼度化が強い要求になりつつある。[34] したがって，PCIOMRを必要としない機動性の優れた燃料，更にこれらの性能に加え高燃焼度にも耐える燃料を開発することが，現在軽水炉燃料に課せられた最も大きな技術的課題となっている。その課題を解決する第一ステップとして，PCIOMRの撤廃を目標とした研究開発が，He加圧ーバリア型被覆管から構成される改良燃料を中心に進められている。[25][35][36] 第二ステップである高燃焼度型燃料の開発に関しては，耐腐食性被覆管の開発および低FPガス放出や高クリープ特性など特性改良をねらった改良UO_2ペレットの開発が行われる一方，[37]～[40] 高燃焼度燃料に特有な問題，例えばFPの蓄積によるUO_2ペレットの機械的，熱的特性の変化や熱力学的影響，[41][42] (U, Gd)O_2燃料の特性などについて一連の研究が実施されつつある。[43][44] このような改良燃料，高燃焼度型燃料に代表される燃料構造面の開発の他に，これらを支える基盤技術としての燃料挙動解析技術の開発も重要課題として並行に進められている。PCIOMRの撤廃が目標の改良燃料，あるいは長期間過酷な運転に耐えなければならない高燃焼度型燃料には，不可避的に高出力変動というPCI／SCCの点で厳しい条件が付加される。したがって，これらの燃料棒の健全性評価には，従来にも増して精度の高いPCI挙動解析が必要となってくる。現在高出力変動下でのPCI挙動を解析する燃料挙動予測コードが数多く開発されつつある。[45]～[47] これらのコードは一般に有限要素法などの構造解析手法を取入れており，ペレットと被覆管接触下の力学的問題の精密な取扱いが可能である。しかしながら，PCIを解析する上で最も重要かつ基本的要因であるUO_2ペレットの割れ挙動やリロケーション挙動なとが未だに正確に把握されていないため，この部分については，弾塑性モデルやギャップコンダクタンスモデルなど他のモデルに比べて極めて粗い取扱いとなっている。例えばリロケーション量について，単に経験的な定数を与えるという方式がまだ多くのコードで採用されている。[48]～[50] コード全体の精度はそれを構成する個々の挙動モデルの最も低い精度で決まってしまうため，UO_2ペレットの変形挙動の解明とそのモデル化が強く要望されているのが現状である。

2. 研究の目的および構成

本研究は，燃料棒の力学的ふるまいを評価する上で必要なUO_2 ペレットの変形挙動を解明するために行ったものである。以下，燃料棒の出力上昇時における典型的な伸び挙動とペレットの変形（推定）を対応させた図 **1.3** を用いて本研究の具体的目的を述べる。

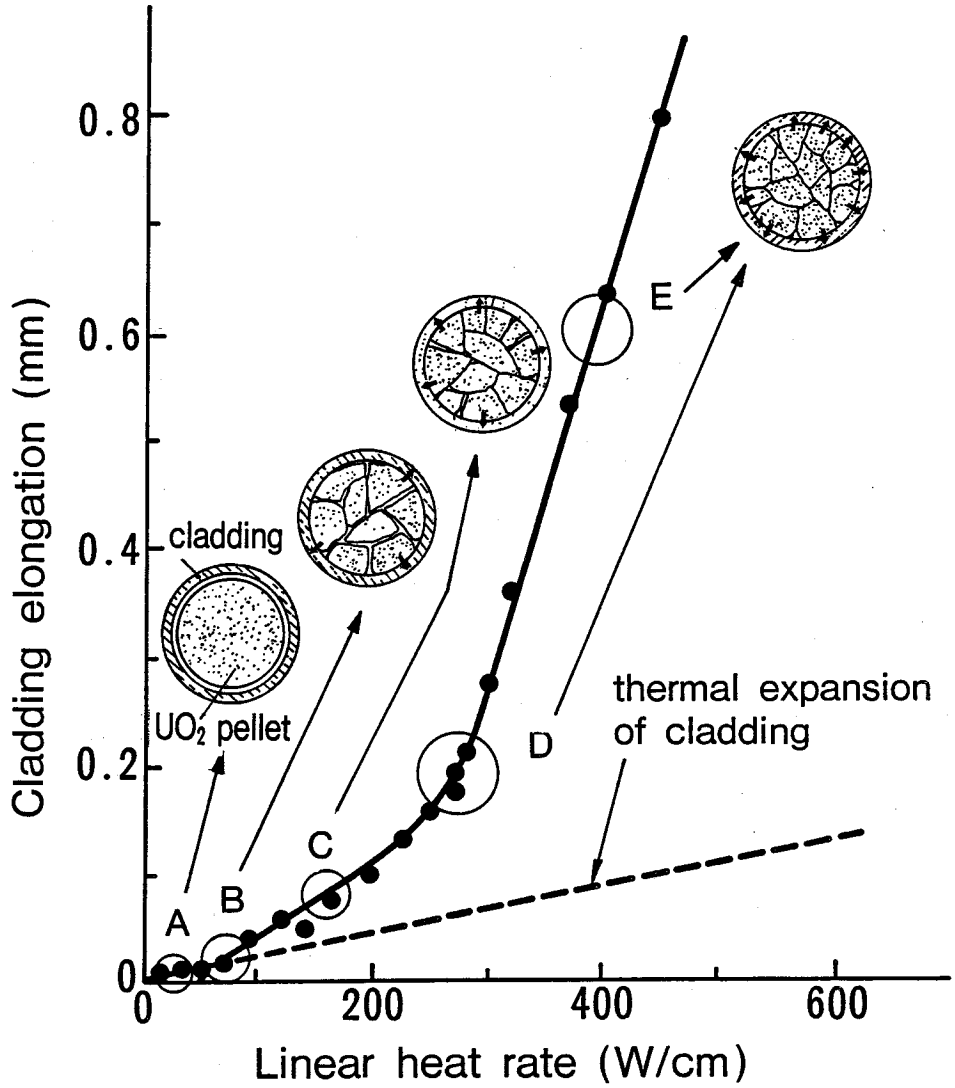


図 **1.3**　出力上昇中の燃料棒伸び挙動

図 **1.3** に示すように，UO_2 ペレットは出力上昇とともに次のような変形を生ずるものと考えられる。最初ペレットは中実円柱体の熱膨張（領域A）の後B点で割れる。割れと同時にリロケーションが生じ，局所的な弱いＰＣＩ（以下，ソフトＰＣＩと言う）を起こしつつ変形する（領域Ｃ）。Ｄ点で割れ片群の自由度が消失し強いＰＣＩ（以下ハードＰＣＩと言う）が発生し，その後は割れ片の集合体として変形する（領域Ｅ）。

本研究の目的は，図 1.3 に示したＡからＥに至る一連のペレット変形挙動を解明すると同時に，得られた知見を燃料挙動解析技術に反映するため，それらの挙動をモデル化することにある。

本論文は７章より構成される。本章の序論に続き，次の第２章，第３章ではUO_2 ペレットの破壊特性を燃料棒の使用面と焼結体としての物性面から明らかにする。ＢＷＲは起動時に制御棒引抜きによって出力上昇するが，UO_2 ペレットはこの過程で熱衝撃的に割れると考えられる。したがって，第２章でUO_2 ペレットの熱衝撃特性を理論と実験から明らかにすることを試みる。このようなUO_2 ペレットの熱衝撃損傷や熱応力破壊を評価する上で，破壊強度は最も基本的な物性値である。セラミックスの破壊強度は一般に気孔率や結晶粒径，それに気孔径などその微細組織に強く影響されることが知られている。そこで第３章でUO_2 ペレットの破壊強度に及ぼす微細組織の影響について述べる。第４章から第６章まではUO_2ペレットの変形挙動解明とモデル化について記述する。まず第４章でソフトＰＣＩ領域でのUO_2 ペレットの変形挙動，すなわち割れとリロケーション，リロケーションによるギャップの変化について解析と燃料棒照射実験の両面から研究を進め，出力上昇開始からハードＰＣＩに至るリロケーションによるギャップの変化を記述するギャップ閉塞モデルを提案する。第５章では，ハードPCI領域のUO_2 ペレットの変形挙動を，炉外ＰＣＩ模擬実験と燃料棒のＰＣＩ変形解析から明らかにする。そして，ハードＰＣＩ領域の燃料棒変形挙動を記述する「割れたペレット」の実効弾性モデルについて述べる。第６章ではハードＰＣＩ開始点が，ペレットの変形との関係においてどのような条件で与えられるかを理論的および実験的方法により調べた結果を述べる。最後に第７章で，第２章から第６章までの研究成果を総括する。

3. 参考文献

(1) F.W. Kramer: PWR fuel performance-The Westinghouse view, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Toronto, Canada, (1975)

(2) T.B. Burley, J. Desterfano, J.B. Melehan: PWR fuel; Experience and current development programs, Trans. Am.

Nucl. Soc., 18, 249 (1974)

(3) H.E. Williamson, R.A. Proebstle: Results with BWR fuel improvements, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Tronto, Canada, (1975)

(4) J.A.L. Robertson: Nuclear fuel failures, their casues and remedies, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Tronto, Canada, (1975)

(5) H.E.Williamson, D.C. Ditmore: Current BWR fuel design and experience, Reactor Technology, 14 (1), 68 (1971)

(6) L. Hoseph: Performance of fuel elements in nuclear power plants, Nucleonics, 21(3), 51(1966)

(7) D.H. Locke: Review of experience with water reactor fuels 1968-1973, Advanced Course on In-reactor Behaviour of Water Reactor fuels and its Influence on Design, Manufacture and Operation, Netherland-Norwegian Reactor School (1974)

(8) R.A. Proebstle, J.H. Davies, T.C. Rowland, D.R. Rutkin, J.S. Armijo,: The mechanism of defection of zircaloy clad fuel rods by internal hydriding, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Tronto, Canada, (1975)

(9) H.H. Klepfer, R.B. Richards, T. Trocki: Fuel Performance in the BWR, Proc. American Power Conference, 34, 169 (1972)

(10) J.H. Gittus: Theoretical analysis of some forces, stresses and strains produced in nuclear fuel element cladding by thermal expansion of cracked fuel deformation, TGR Report 1547(S), (1967)

(11) 原子力安全研究協会：軽水炉燃料のふるまい （昭和５６年）

(12) C.E. Beyer, C.R. Hann, D.D. Lanning, F.E. Panisko and L.J. Perchen ; BNWL-1898 (1975)

(13) M. Ichikawa, K. Yanagisawa and E. Kolstad: Studies on Radial and Axial Deformation of Fuel Rods by Inpile Measurements; International Atomic Energy Agnecy Specialists' Meeting on Pellet-Cladding, (1983)

(14) 久保，小熊，原：ジルカロイ－２被覆管の外圧クリープ，日本原子力学会誌，２３，７ （１９８０）

(15) H. Maki, T. Hara : J.Nucl. Sci, Technol., 12(1) 43(1975)

(16) 細川，他：日本原子力学会 昭和５０年秋の分科会Ｇ１２ （１９７５）

(17) 牧：軽水炉燃料の変形挙動；日本原子力学会誌 １８〔８〕，（１９７６）

(18) E. Rolstad, K.D. Knudsen: Studies of fuel/clad mechanical interaction and the resulting interaction failure mechanism, paper A/CONF. 49/P/295, presented at the 4th International Conference on the Peaseful Use of Atomic Energy, Geneva (1971)

(19) S. Djrle, G. Lysell, H. Mogard: Some irradiation studies of fuel/clad interaction and clad cracking, paper A/CONF. 49/P/315, ibid.

(20) H. Mogard, S. Aas, S. Junkrans: Power increases and fuel difection, paper A/CONF.49/P/314, ibid.

(21) ＧＥ：原子燃料の調整法，特許№５０－１４３９９９ （１９７５）

(22) R.A. Proebstle, et al: Current Trends in BWR Fuel Performance, ANS Topical Meeting on Water Reactor Feul Performance, St. Chrles Illinois May 9-11, (1977)

(23) L.H. Boman, et al: Fuel Operating Experience in Westinghouse PWRs, ANS Topical Meeting on Water Reactor Fuel Performance, St. Charles Illinois, May 9-11, (1977)

㉔ 藤江，小熊，新保，牧，河原：沸騰水型原子炉（ＢＷＲ）燃料に対する信頼性向上の研究現状；日立評論，６０〔２〕，（１９７８）

㉕ J.H. Davies, et al: Power Ramp Tests of Potential PCI Remedies, ANS Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, April 29 to May 3, Portland Oregon, (1979)

㉖ A. Garlick: Fracture of Zircaloy Cladding Under Simulated Power Ramp Conditions, J. Nucl. Mater., 49, 209 (1973/74)

㉗ K. Videm and L. Lunde: Fuel Element Failures Caused by Iodine Stress Corrosion, Proc. ENS/ANS European Nucl. Conf. Energy Maturity, Paris, P.76 (1975)

㉘ K. Une : Effects of Strain Rate, Stress Condition and Environment on Iodine Embrittlement of Zircaloy-2, ANS Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, April 29 to May 3, Portland Oregon, (1979)

㉙ K. Videm and L. Lunde: Cracking of Cladding Tubes Caused by Power Ramping and by Laboratory Stress Corrosion Experiments, J. Nucl. Mater., 87,259 (1979)

㉚ R.L. Jones, et al: Threshold Conditions for Iodine-induced Stress Corrosion Cracking of Unirradiated Zircaloy-4 Tubing under Internal Pressurization, J. Nucl. Mater., 82, 26 (1979)

㉛ C.C. Busby, et al: Halogen Stress Corrosion Cracking of Zircaloy-4 Tubing, J. Nucl. Mater., 55, 64 (1975)

㉜ 日本原子力情報センタ：我国における高性能燃料開発と今後の原子力発電所の運転のあり方－長期連続運転及び負荷追従運転を中心として－ （昭和５８年）

㉝ 近藤：高性能ＰＷＲ燃料開発の現状，日本原子力学会 昭和５８年年会 （１９８３）

㉞ 日本原子力情報センタ：ウラン資源，濃縮，燃料開発及び経済性論議を中心とした核燃料サイクル主要課題の展望；（昭和５８年）

㉟ S. Junkans, et al : ASEA-ATOM Results on PCI Experiments on Fuel Rods. A Review, KTG/ENS/JRC Meeting on Ramping

and Load Following Behavior of Reactor Fuel, Nov. 30 to Dec. 1, Petten The Netherlands, (1978)

㊱ T.C. Rowland, J.H. Davies, J.R. Thompson and H.S. Rosenbaum: Statiatical Analysis of Power Ramp Test Data, International Atomic Energy Agency Specialists' Meeting on Pellet-Cladding Interaction in Water Reactor Fuel,(1983)

㊲ 小熊：金属酸化物を微量添加したUO_2ペレットの結晶組織；日本原子力学会昭和５６年分科会 （昭和５６年）

㊳ 平山，小熊：金属酸化物を微量添加したUO_2ペレットのクリープ特性；日本原子力学会 昭和５７年年会 （昭和５７年）

㊴ 岩崎，小熊：金属酸化物を微量添加したUO_2ペレットの融点；日本原子力学会昭和５７年分科会 （昭和５７年）

㊵ P.T. Sawbridge, G.L. Reynolds and B. Burton: The Creep of UO_2 Fuel Doped with NO_2O ; Journal of Nuclear Materials 97 (1981)

㊶ K. Une, M. Oguma : Oxygen Potentials of UO_2 Fuel Simulating High Burnup; J. Nucl. Sci. Technol., 20 (10), (1983)

㊷ K. Une, and M. Oguma : Oxygen Potentials of (U, Nd) $O_{2\pm x}$ Sold Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500°C; J. Nucl. Mater, 188 (2 & 3), (1983)

㊸ K. Une, and M. Oguma : Thermodynamic properties of Nonstoichiometric Urania-Gadolinia Solid Solutions in the Temperature Range 700 - 1100°C, J. Nucl. Mater., 110, (2&3) (1982)

㊹ K. Une, and M. Oguma : Oxygen Potentials of (U, Gd) $O_{2\pm x}$ Solid Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500°C, J. Nucl. Mater., 115, (1), (1983)

㊺ T. Okubo et al., : Vertication of the FEMAXI-III Code; IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Element

Performance Computer Modeling, Preston, UK (1982)

(46) J. Vliet and Hope, N. : Oxide Behavior Modelling Progress in COMETHE, idid.

(47) E. Rolstad, and S.E. Wennemo : Status of POSHO-THERMAL Fuel Performance Model. ibid

(48) M. P. Bohm. NUREG-1028 (1977)

(49) Entropy Limited : EPRI NP-229,1 (1982)

(50) K. Ito et al. : and Mechanics, 2, p109(pass)

第2章　二酸化ウランペレットの熱衝撃破壊

1. 緒　　言

燃料棒の照射後試験や挙動解析によって，UO_2ペレットは使用中に熱応力により破壊することが知られている[1][2]。　UO_2ペレットの破壊はリロケーションを引起こし，ＰＣＩやジルカロイ被覆管のＳＣＣの原因となるばかりでなく，ＦＰガス放出の増加，ひいては燃料温度を増加させるなど燃料棒の機械的，熱的性能に大きな影響を与える重要な燃料挙動の一つである[4]～[6]。　ＢＷＲでは，起動時に全出力レベルの約６０％（約260 W／cm）まで制御棒の引抜きによって出力上昇する。この際，燃料棒の出力上昇速度は約1×10^5 W／cm ／hという急激なものとなる。一方，出力上昇時にペレットに発生する熱応力は出力レベルが約２０％に達するとUO_2の破壊強度を越えてしまうから，UO_2ペレットは最初の出力上昇時に熱衝撃的に破壊すると考えられる。したがって，このような熱衝撃条件下でのUO_2ペレットの損傷挙動を把握することが燃料性能を評価する上で重要となってくる。しかし，これに関しては現在までのところ制御棒に用いられるB_4Cペレットの熱衝撃に関する研究[7]～[9]および過渡時の燃料棒の熱衝撃解析[10]など少数の関連研究例がみられるものの，UO_2ペレットの熱衝撃挙動を直接対象とした研究例はほとんどみられない。

本章の研究は，UO_2ペレットの出力上昇時における熱衝撃損傷と微細組織との関係，特に気孔率との関係を明らかにするため行ったものである[11]。そして，UO_2ペレットの熱衝撃損傷挙動を理論的に検討し，熱衝撃損傷を気孔率および気孔径や結晶粒径などの微細組織パラメータの関数として表わす理論式を導出した。また，気孔率の異なるUO_2ペレットを試料とし炉外実験を行い，上記理論式による計算値と実験値との比較を試みた。

2. 理　　論

UO_2ペレットは，気孔や結晶粒界などの潜在的欠陥（以下，これを潜在クラックという）を含む物質である。このような物質が熱衝撃を受けたときの熱衝撃損傷について先ず理論的検討を行った。

2.1　熱衝撃を受けた物体の自由エネルギー

いま半径ℓの球状潜在クラックを単位体積あたりN個含む物体を温度差ΔTで熱衝撃的に冷却または加熱する場合を考える。この物体の単位体積あたりの全自由エネルギーWは，熱応力σによって蓄積された弾性ひずみエネルギーW_pと破壊表面エネルギーW_gの和として与えられる。

$$W = W_p + W_g \qquad \cdots\cdots (2-1)$$

上式の破壊表面エネルギーW_gおよび弾性ひずみエネルギーW_pはそれぞれ次のように表わされる。

$$W_g = 2\pi G N \ell^2 \qquad \cdots\cdots (2-2)$$

$$W_p = \frac{1}{2}\beta \sigma^2 \qquad \cdots\cdots (2-3)$$

ここで，G：単位表面を形成するに要するエネルギー

β：クラックを含む物体の実効圧縮係数

である。

平面ひずみ条件ではEをクラックを含む物体のヤング率とすれば，$\beta = 3(1-2\nu)/E$ である。一方，弾性ひずみエネルギーW_pはクラックの拡張によるひずみエネルギーW_cとクラックの無いマトリックス部分のひずみエネルギーW_sとの和である。

$$W_p = W_c + W_s \qquad \cdots\cdots (2-4)$$

クラックによるひずみエネルギーW_cは，気孔（半径：ℓ）を含む岩石の圧縮性に関するWalshの理論的研究から次式のように与えられる。[12]

$$W_c = \frac{1}{2}\beta_0 \sigma^2 \left(\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)} N \ell^3\right) \qquad \cdots\cdots (2-5)$$

ここで，ν　：ポアソン比

β_0：クラックの無い圧縮係数

である。

平面ひずみ条件ではクラックの無い物体のヤング率をE_0 とすれば，$\beta_0 = 3(1-2\nu)/E_0$である。マトリックス部分のひずみエネルギーW_s は，この β_0 を用いて次のように表わせる。[14][15]

$$W_s = \frac{1}{2}\beta_0 \sigma^2 \qquad \cdots\cdots (2-6)$$

一方，物体にΔTの温度差が熱衝撃的に生じた場合の熱応力σは，次式で与えられる。[13]

$$\sigma = \sigma^* \frac{E\alpha}{(1-2\nu)} \Delta T \qquad \cdots\cdots (2-7)$$

ここで，σ^*：熱衝撃の激しさを表わす無次元応力

α ：熱膨張率

である。

UO_2 ペレットのような円柱体の熱衝撃の場合，σ^* はBをビオ数（Biot Number）とすれば次のように表わせる。[16]

$$\sigma^* = (1+4/B)^{-1} \qquad \cdots\cdots (2-8)$$

そして，hを物体と冷却媒体との間の熱伝達係数，Kを物体の熱伝導率，r_0 を物体の半径とする時，$B = h r_0 / K$ で与えられる。

以上の（2－5），（2－6），（2－7），（2－8）式から弾性ひずみエネルギーW_p は次式のようになる。

$$W_p = \frac{3(\alpha \cdot \Delta T)^2}{2(1-2\nu)} \left(1+\frac{4}{B}\right)^{-2} \left(1+\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)} N\ell^3\right) E_0 \left(\frac{E}{E_0}\right)^2 \qquad \cdots\cdots (2-9)$$

一方，（2－3），（2－5），（2－6）式から次の関係が得られる。

$$\frac{\beta_0}{\beta} = \left(1+\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)} N\ell^3\right)^{-1} = \frac{E}{E_0} \qquad \cdots\cdots (2-10)$$

物体の全自由エネルギーWは，このE／E_0 を（２－９）式に代入して得たW_pと（２－２）式のW_g とからℓの関数として次式で表わされる。

$$W(\ell)=\frac{3(\alpha\cdot\Delta T)^2}{2(1-2\nu)}\left(1+\frac{4}{B}\right)^{-2}E_0\left(1+\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)}N\ell^3\right)^{-1}$$

$$+2\pi GN\ell^2 \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-11)$$

2.2 臨界温度差

温度差の増加により物体に蓄積される自由エネルギーが臨界値を越えると，クラックの進展が開始する。以下，このクラックの進展が起こり始まる温度差を臨界温度差ΔT_cと呼ぶことにする。臨界温度差ΔT_cは，クラックの進展により系全体のエネルギーが変化しないとのクラック進展条件$\left(dW(\ell)/d\ell\right)_{\ell=\ell_0}=0$を（２－１１）式に適用することによって求められる。[13][27] ただし，ℓ_0は初期の潜在クラック半径である。

$$\Delta T_c=\left(\frac{\pi G(1-2\nu)^2}{2E_0\alpha^2(1-\nu^2)}\right)^{\frac{1}{2}}\left(1+\frac{4}{B}\right)(\ell_0)^{-\frac{1}{2}}\left(1+\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)}N\ell_0^3\right)$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-12)$$

潜在クラックの形状を球形と仮定しているので，（２－１２）式右辺の$N\ell_0^3$は，単位体積あたりのクラック体積，すなわち気孔率を表わしている。気孔率をPとすれば，$N\ell_0^3=3P/4\pi$で近似される。よって（２－１２）式は次のように表わせる。

$$\Delta T_c=\left(\frac{\pi G(1-2\nu)^2}{2E_0\alpha^2(1-\nu^2)}\right)^{\frac{1}{2}}\left(1+\frac{4}{B}\right)(\ell_0)^{-\frac{1}{2}}\left(1+\frac{4(1-\nu^2)}{3\pi(1-2\nu)}P\right)$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-12)'$$

（２－１２）′式から気孔率が大きいほど，また潜在クラック長さが短いほど臨界温度差は増加することがわかる。

2.3 臨界温度差におけるクラック長さ

臨界温度差ΔT_cまでに蓄積されたポテンシャルエネルギーの一部が運動エネル

ギーとなってクラックが進展させるが，これは弾性ひずみエネルギーの減少割合が破壊表面エネルギーの増分より大きい間は継続する。そして，放出された全ポテンシャルエネルギーが全破壊表面エネルギーに等しくなったとき停止する。すなわち，ΔT_c におけるクラック半径 ℓ_1 は，$W(\ell_0)=W(\ell_1)$ の条件を（２－１１）式に適用することによって求められる。

$$\frac{3(\alpha\cdot\Delta T_c)^2 E_0}{2(1-2\nu)}\left(1+\frac{4}{B}\right)^{-2}\left(1+\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)}N\ell_0^3\right)^{-1}+2\pi GN\ell_0^2$$

$$=\frac{3(\alpha\cdot\Delta T_c)^2 E_0}{2(1-2\nu)}\left(1+\frac{4}{B}\right)^{-2}\left(1+\frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)}N\ell_1^3\right)^{-1}$$

$$+2\pi GN\ell_1^2 \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-13)$$

初期の潜在クラックが短い場合には（$\ell_0 \ll \ell_1$），（２－１３）式の左辺の $N\ell_0^2$ および右辺第１項の $(1+16(1-\nu^2)N\ell_1^3/9(1-2\nu))^{-1}$ は無視できる。そして，$N\ell_0^3=3P/4\pi$ の関係を代入し整理すれば臨界温度差におけるクラック長さ ℓ_1 は次のように表わせる。

$$\ell_1=\left(\frac{3(\alpha\cdot\Delta T_c)^2 E_0}{4\pi GN(1-2\nu)}\right)^{\frac{1}{2}}\left(1+\frac{4}{B}\right)^{-1}\left(1+\frac{4(1-\nu^2)}{3\pi(1-2\nu)}P\right)^{-\frac{1}{2}}$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-14)$$

（２－１４）式から ΔT_c によって生ずるクラック長さは気孔率が増加すると減少することがわかる。

以上の物体のエネルギーと気孔率およびクラック進展長さとの関係は次のように考えることができる。

Griffithは半径 ℓ のクラックを含む物体の破壊条件を次のように与えている。[17]

$$\sigma=\left(\frac{2EG}{\pi(1-\nu^2)}\right)^{\frac{1}{2}}(\ell)^{-\frac{1}{2}} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-15)$$

また，（２－１０）式よりヤング率Ｅは次のように表わせる。

$$E = E_0 \left(1 + \frac{16(1-\nu^2)}{9(1-2\nu)} N\ell^3\right)^{-1} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-16)$$

（２－１５），（２－１６）式のℓを消去し物体の応力（σ）－ひずみ（ε）関係を求めると次のようになる。

$$\varepsilon = \frac{\sigma}{E} = \frac{\sigma}{E_0} + \frac{128NE^3G^3}{9\pi^3 E_0 (1-2\nu)(1-\nu^2)^2 \sigma^5} \cdots\cdots\cdots \quad (2-17)$$

（２－１７）式の$\sigma - \varepsilon$の関係を示したものが図 **2.1** の実線である。図において一点鎖線で示した$\sigma - \varepsilon$関係は，$\sigma = E_0 (1+4(1-\nu^2)P/3\pi(1-2\nu))^{-1}\varepsilon$を表わしている。したがって，気孔率Ｐが大きくなるほど一点鎖線の勾配はなだらかになる。ここで，クラック密度Ｎがクラック長さℓに依らず一定と仮定すれば気孔率Ｐはℓと比例関係が成り立つので，各々の気孔率に対応した一点鎖線はそれぞれ一定のクラック長さℓに対応する。なお，（２－１７）式を表わす曲線の上側の漸近線であるＯＫはクラックの無い物体の$\sigma - \varepsilon$の関係を示している。

いま直線ＯＡで示されるような気孔率が小さい場合を考える。この時の初期潜在クラック長さを ℓ_0 とする。熱応力σがＯＡに沿って上昇し破壊の臨界点Ａに到達すると破壊が開始される。破壊がひずみ一定のもとに進行すると仮定すれば，Ａ点で発生した破壊はＢ点に進みここで非破壊領域に入る。しかし，破壊はＢ点で停止しない。それは物体が破壊表面を生ずるに必要なエネルギーより面積ＡＪＢに等しい過剰なエネルギーを持つためである。この過剰なエネルギーはクラックの運動エネルギーとなって破壊を更に進行させる。そして，面積ＡＪＢとＢＣＤが等しくなる点Ｃで破壊は停止する。この時のクラック長さは ℓ_1 である。エネルギーの点から破壊過程をみると，最初に蓄積された面積ＯＡＥに相当する全エネルギーが，面積ＡＪＢの運動エネルギーとＯＡＪＣの破壊表面エネルギーそれにＯＣＥの弾性ひずみエネルギーに変換されたことになる。なお，クラック長さ ℓ_1 から更に拡張するためには熱応力が再び破壊の臨界条件を満足するＤ点まで増加しなければならない。言い換えれば弾性ひずみエネルギーが面積ＯＤＦに相当するまで増大しなければならない。したがって，そのような条件を満足するまでΔＴの増加に対してクラック長さは変化しないことになる。熱応力がＤ点に到達した後は，破壊はΔＴの増

加，すなわち弾性ひずみエネルギーの増分に対し連続的にDからHへ進行する。

次に直線ODで示されるような気孔率が大きい場合（初期潜在クラック長さがℓ_1）は，熱応力がD点以上になると破壊が開始されるが気孔率の小さい場合と異なり動的破壊は起こらない。そして，上述したように破壊はΔTの増加とともにDからHへと連続的に進行する。図から明らかなように，この時のクラック長さの変化は$\ell_1 \rightarrow \ell_2$であるから気孔率の小さい場合の変化$\ell_0 \rightarrow \ell_1$に比べて小さい。

以上のように，物体の気孔率が増加すれば熱衝撃によるクラックの進展長さは減少することがわかる。

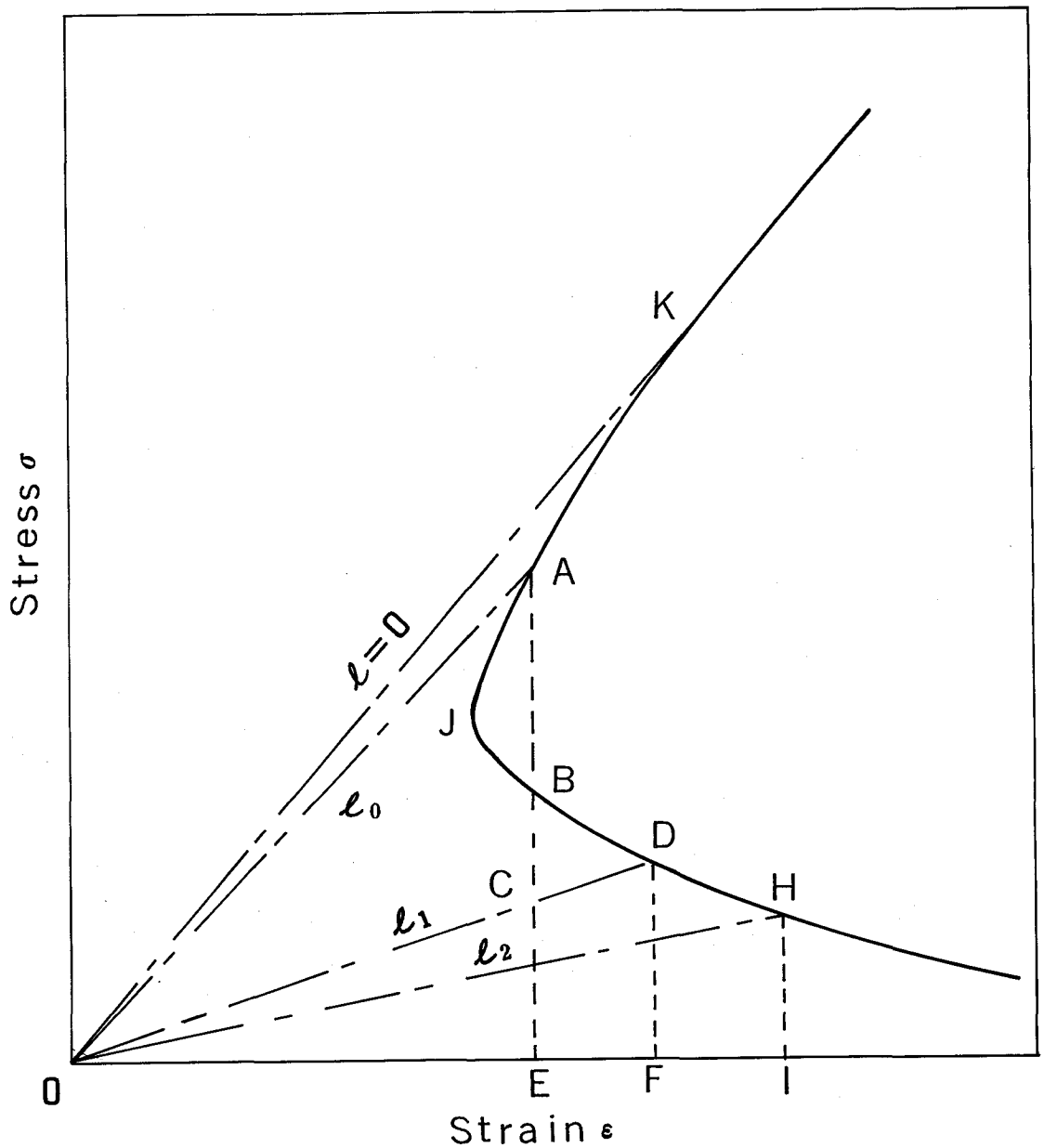


図 2.1　潜在クラックを有する物体の破壊条件

2.4 臨界残留強度

臨界温度差 ΔT_c によって，初期半径 ℓ_0 から開始したクラックは半径 ℓ_1 に到達して停止する。この時物体の破壊強度 S_a を臨界残留強度と呼ぶことにする。

Griffithの式（（２－１５）式）に，（２－１４）式で求めた ℓ_1 を代入することにより，臨界残留強度 S_a は次のように求められる。

$$S_a = \left(\frac{16(1-2\nu)NE^2G^3}{3\pi(1-\nu^2)^2(\alpha \cdot \Delta T_c)^2 E_0} \right)^{\frac{1}{4}} \left(1+\frac{4}{B}\right)^{\frac{1}{2}} \left(1+\frac{4(1-\nu^2)}{3\pi(1-2\nu)}P\right)^{\frac{1}{4}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-18)$$

（２－１８）式は，気孔率が増大するにつれ臨界残留強度 S_a は漸増し，次第に初期強度との差が小さくなることを示唆している。

2.5 初期破壊強度

UO_2 ペレットの初期破壊強度は，Griffithの式（（２－１５）式）に気孔率の影響を考慮した補正を加えることによって次のように求められる。

$$S_0 = C \cdot \left(\frac{2EG}{\pi(1-\nu^2)}\right)^{\frac{1}{2}} (\ell_0)^{-\frac{1}{2}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-19)$$

ここで，Cは気孔率の破壊強度に対する補正係数であり，その物理的意味は次のように考えられる。いま，寸法が等しく気孔率が異なる二つの物体に同一大きさの外荷重（例えば引張荷重）が加わる場合を考える。荷重方向に垂直な断面では，気孔率の大きい方が荷重を支えるマトリックス部分の総面積は相対的に小さいことから，その分マトリックス部の応力は増加し，物体は見掛け上低い外力で破壊することになる。すなわち補正係数Cは，荷重を支えるマトリックス部の実効的断面積と気孔率との関係を表わす定数である。Knudsenはセラミックスの結晶粒子の幾何学的配列を理論的に解析し，マトリックス部分の実効的断面積が気孔率に対して指数関数の関係にあることを導いている。[18] すなわち $C = \exp(C_1 \cdot P)$。したがって（２－１９）式は次のような形で表わされる。

$$S_0 = \left(\frac{2EG}{\pi(1-\nu^2)}\right)^{\frac{1}{2}} (\ell_0)^{-\frac{1}{2}} \exp(C_1 \cdot P) \quad \cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-20)$$

なお，上式の定数C_1，および初期クラック長さℓ_0は，次章の（３－１２）式で示す如くそれぞれ次のように与えられる。[11]

$$\left.\begin{aligned} C_1 &= -5.7 \\ \ell_0 &= \frac{1}{2}\left(PS + \frac{1}{2}GS\right) \end{aligned}\right\} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-21)$$

ただし，ＰＳ：最大気孔径

ＧＳ：平均結晶粒径

である。

（２－２１）式を（２－２０）式に代入することにより，初期破壊強度は次のように求められる。

$$S_0 = \left(\frac{2EG}{\pi(1-\nu^2)}\right)^{\frac{1}{2}}\left(\frac{1}{2}\left(PS + \frac{1}{2}GS\right)\right)^{-\frac{1}{2}} \exp(-5.7 \cdot P)$$

$$\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-22)$$

3. 実　験

3.1 試　料

本実験に用いた試料は，気孔率が0.０５，0.１０，0.１５の３種類のUO_2ペレットである。ペレットの製造方法は次のとおりである。まず天然UO_2粉末に所定の気孔率を得るに必要なポアフォーマと潤滑剤を加え，Ｖ型ブレンダーで良く攪拌，混合した後１００～３００ＭＰａで混合粉末を冷間プレスし，グリーンペレット（一次圧粉成形体）を製作した。使用した天然UO_2粉末は全て同一ロットのものである。この粉末の特性および不純物分析結果を表**2.1**に示す。

表 2.1　UO_2 粉末特性および不純物分析結果

BET specific surface area	3.1 (m^2/g)
Fisher subsieve size	4.1 (μm)
Tap density	3.2 (g/cm^3)
Pour density	2.5 (g/cm^3)

Impurity	Amount (ppm)	Impurity	Amount (ppm)
Ag	<0.2	Mg	<1
Aℓ	5	Mn	<1
B	<0.1	Mo	2
C	61	N	<3
Ca	<2	Na	<39
Cd	<0.5	Ni	<4
Cℓ	<2	Pb	<2
Co	<3	Si	<6
Cr	2	Sn	<2
Cu	<1	V	<5
F	5	Zn	<20
Fe	<13	W	<2

気孔率が0.10，および0.15のUO_2ペレットを得る場合には，ポアフォーマとして潤滑剤を兼ねるラウリン酸亜鉛（$Zn(CH_3(CH_2)_{10}COO)_2$）をそれぞれ1.3wt%，3wt%用いた。また，気孔率が0.05のペレットを得る場合には，パラフィン，ポリエチレングリコール，ステアリン酸を四塩化炭素に溶解した液を約2wt%秤量し，これを天然UO_2粉末に加えた。次に，このグリーンペレットを92%N_2－8%H_2の還元雰囲気中で1700℃，2時間焼結し直径約15mm，高さ約8mmのUO_2ペレットを製作した。

製作したUO_2ペレットの気孔率を，試料の密度から次のように求めた。

$$P = 1 - \frac{\rho}{\rho_0} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-23)$$

ただし，P ： 気孔率

ρ ： 試料の密度（g／cm³）

σ_0： UO_2の理論密度（10.96g／cm³）

である。試料の密度は，メタキシレン液を用いた液浸法で測定した。これらのうちから気孔率が，0.005±0.0005または0.10±0.0005，あるいは0.15±0.0005の範囲にあるようなUO_2ペレットをそれぞれ15～20個づつ採取し，各々の気孔率ごとに分類した。次に，各気孔率ごとにUO_2ペレットを4～5個取り出し，ペレット両端部から厚さ約1mmの円板状試料を切り出した。これらの円板状試料を樹脂に埋込み鏡面研摩の後，200～400倍の顕微鏡写真を1試料断面あたり5～6枚づつ撮影し，それらの断面金相写真からインターセプト法で平均結晶粒径を測定した。また，同じ断面金相写真を用いて，試料の最大気孔径，気孔密度をイメージアナライザ（ミリポア社製，πMC粒体計測システム）で測定した。表**2.2**に，試料の最大気孔径，気孔密度，平均結晶粒径を各気孔率グループの内で平均した値を示す。気孔率の増加にともなって，気孔密度も増加するが最大気孔径や平均結晶粒径は逆に減少する傾向がみられる。

表**2.2** 供試UO_2ペレットの微細組織データ

Avg. porosity	0.05	0.10	0.15
Avg. largest pore size (μm)	50	42	37
Avg. pore density (Pore/m^2)	2×10^8	3×10^8	4×10^8
Avg. grain size (μm)	13	12	10

3.2 熱衝撃実験

燃料棒が出力上昇する際，燃料ペレットには熱衝撃的に外周部から中心部にかけ立上りの急な放物線状の温度分布が生じ，その結果ペレットの外周方向に最大引張応力が発生する。[10] 本熱衝撃実験では，このような燃料棒出力上昇時における燃料ペレットの温度分布および応力分布に近い状態を再現できる加熱－急冷方式を採用した。図**2.2**は熱衝撃実験装置の模式図である。試料をモリブデン製の皿に置き，こ

れを縦型電気炉の石英ガラス製炉心管の内部に吊り下げ，種々の温度で２０分間加熱した後水槽中に落下させた。加熱中の試料の酸化などによる組成の変化を防止するため，水分，酸素を除去した高純度アルゴンガスを流通させた。ガスの流量は５ℓ／ｍｉｎ とした。なお，本実験に先立ち，この雰囲気で加熱したUO_2 ペレットのO／Uを分光光度法で測定し，試料の組成に異常を生じさせない雰囲気であることを確認した。電気炉の昇温速度は５０℃／ｍｉｎ とした。これは，試料が昇温中にクラックを発生しないような十分緩やかな温度上昇速度として設定したものである。試料は図**2.2**に示すように，UO_2 ペレットの上下端にUO_2 ペレットと同一寸法のアルミナダミーペレットをアルミナセメントで接着した構造とした。これは，熱衝撃時に試料UO_2 ペレットに発生する温度分布が，実際の燃料ペレットの場合と同じように半径方向のみの分布となり，軸方向には温度分布が生じないようにするためのものである。

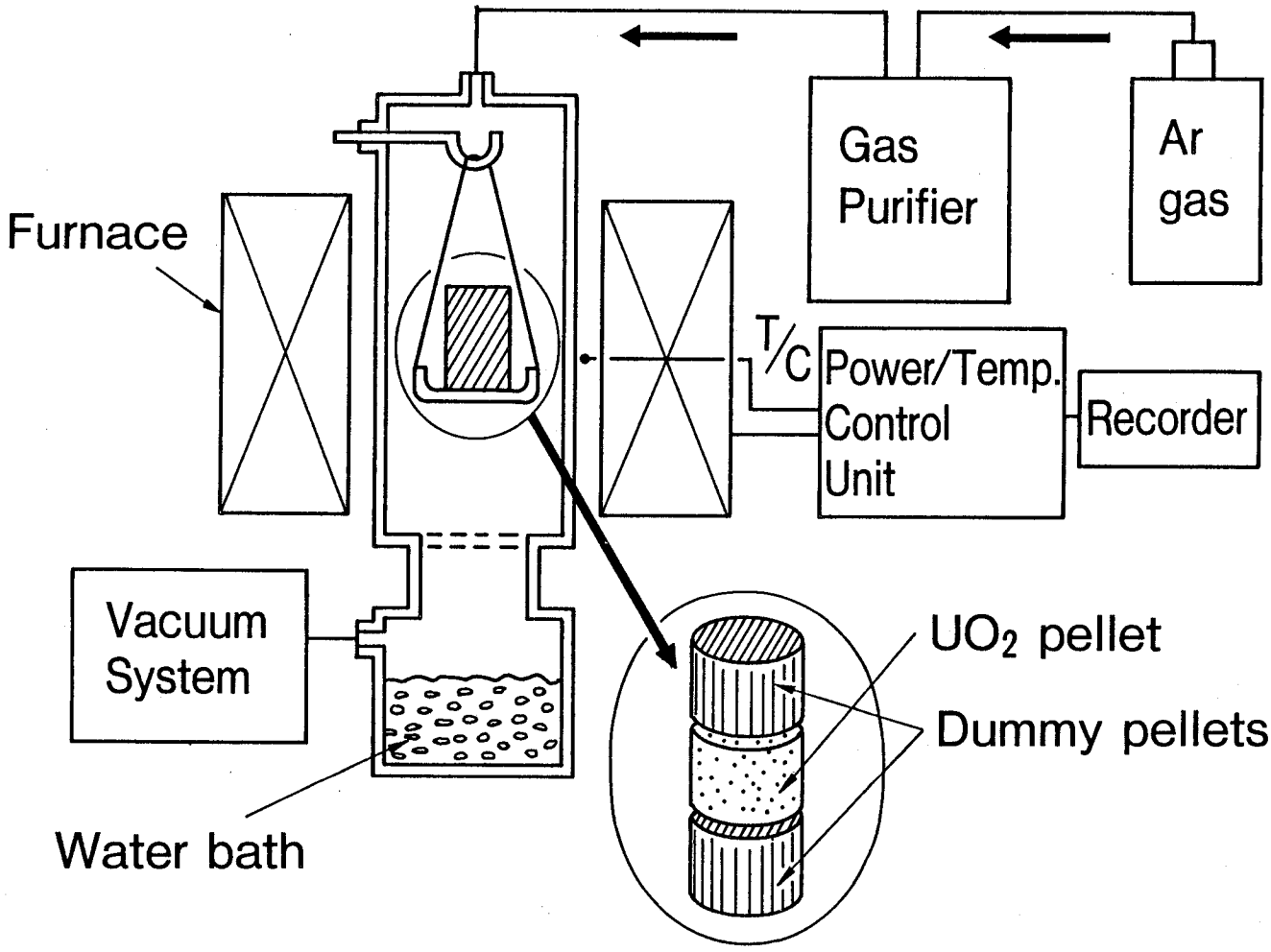


図 **2.2**　熱衝撃実験装置の模式図

図2.3は，水槽中に落下したダミーペレット付UO_2ペレットの温度分布を有限要素法を適用した二次元過渡解析コードで計算した一例を示したものである。加熱温度の高低によって多少の差はあるもの，水槽中に落下後，およそ1秒でペレットに最大温度差，最大引張応力が発生する。図2.3は，その最大温度差を生じたときの半径方向温度分布である。図からわかるように，外周近くでは温度分布は中心に向って放物線状に降下する。このような温度分布は，燃料棒の出力上昇時にUO_2ペレットに発生する温度分布と良く類似している。

熱衝撃を加えた後の試料の熱衝撃損傷は，以下に述べるように試料の破壊強度の低下から評価した。熱衝撃試験後，ダミーペレットを取除きUO_2ペレットから厚さ約2㎜の円板状試料を精密切断機を用いて切り出した。この円板状試料の下面外周部を支持し，上面中央部に円環荷重を加え2軸応力下で破壊させることにより試料の破壊強度を測定した。ここで用いた破壊試験の方法，破壊強度の算出などについては，次章でより詳しく述べる。なお，破壊試験は室温で行った。

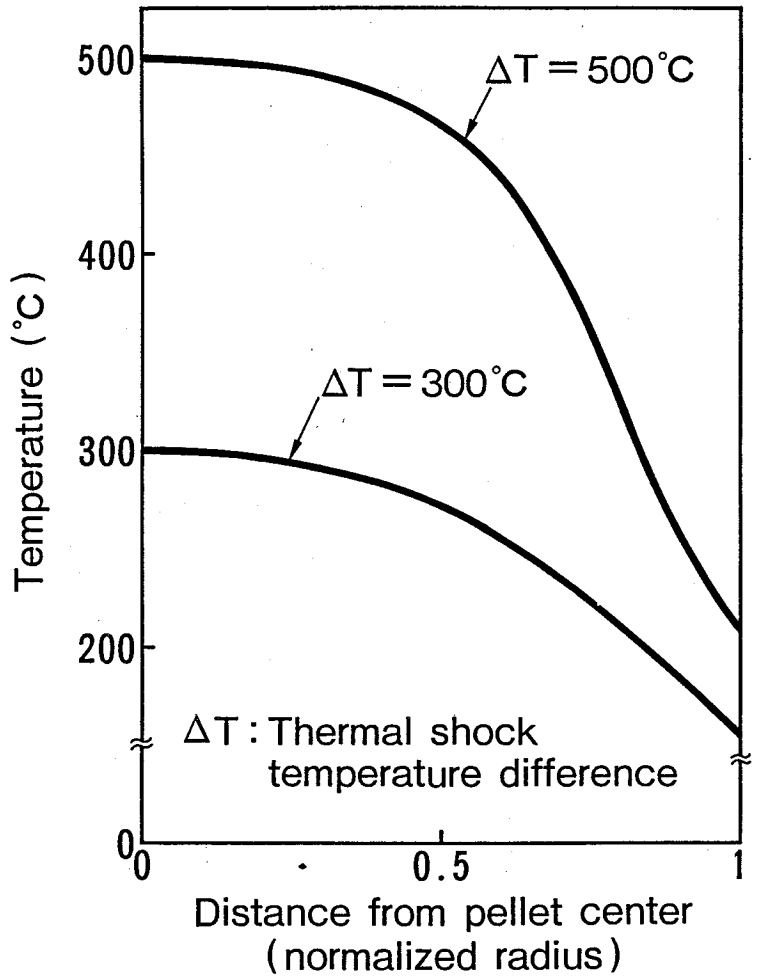


図2.3　熱衝撃実験におけるUO_2ペレットの温度分布（水槽落下後約1秒）

3.3　試料の物性測定

UO_2 ペレットの機械的，熱的諸性質は，ペレットの微細組織に強く依存する。[11][19] そこで，第2節で述べたような熱衝撃損傷挙動に関与する物性値を供試ペレットの一部を使って実際に測定した。以下，それらの物性測定について簡単に述べる。

(1)　破壊表面エネルギー（G）

UO_2 の破壊表面エネルギーは，測定技術上の難しさもあって公開データは極めて少ない。[20]～[22] そこで，同一UO_2 ペレットについて2種類の異なる方法で測定し，それらを比較検討することにより信頼性の高いデータを得るようにした。

(A)　三点曲げ方法

ペレットから長さ約15㎜，幅約8㎜，厚さ約4.5㎜の板状試料を切出し，長手方向中央部に極薄のダイアモンドカッタで幅約150 μmの鋭いノッチを設けた。このノッチ付試料を三点曲げにより破壊し，次式から臨界応力拡大係数K_{IC}を求めた。[23][24]

$$K_{IC} = Y \frac{2FL}{2bW^2} \sqrt{w} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-24)$$

ここで，　F：破壊荷重

w：ノッチ深さ

L：支持間隔

b：試料幅

W：試料厚さ

Y：ノッチの形状係数

である。この内，Yは次式で与えられる。

$$Y = 1.93 - 3.07\left(\frac{w}{W}\right) + 14.53\left(\frac{w}{W}\right)^2 - 25.11\left(\frac{w}{W}\right)^3$$

$$+ 25.80\left(\frac{w}{W}\right)^4$$

ノッチの相対深さ（w／W）は，予備実験から0.2と設定した。また試験温度は室温，試料中央部の変位速度は５０μm／ｍｉｎと一定条件で試験を行った。

(B) 圧痕法[24][25]

ペレットから一辺が約２５㎜の立方体試料を切出し，一つの面を鏡面研磨の後，この面に四角錐のサファイア圧子を圧入し表面に生じた圧痕とクラック長さからK_{IC}を次式により求めた。

$$K_{IC} = H\sqrt{a}\left(\frac{E}{H}\right)^{0.4} \exp(2.303 \cdot Y) \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-25)$$

ここで，　a：四角錐圧痕の対角線長さの半分

E：ヤング率

H：ビッカース硬度（$H = F/2a^2$）

Y：クラックの形状係数

である。そしてYはｅをクラック長さ，Ｘ＝ｌｏｇ（ｅ／ａ）とすれば次式で与えられる。

$$Y = -1.59 - 0.34X - 2.02X^2 + 11.23X^3 - 24.97X^4 + 16.32X^5$$

サファイア圧子の荷重は，0.5kgとした。この値は測定に適した圧痕の大きさ，クラック長さが得られるよう設定したものである。なお，圧痕やクラック長さは試料表面を撮影した１００～２００倍の顕微鏡写真から測定した。試験温度は，室温から１０００℃までとした。雰囲気は0.1Ｐａ以下の真空雰囲気である。

破壊表面エネルギーGは，（２－２４）式および（２－２５）式で得られたK_{IC}を次式に代入して求めた。

$$G = \frac{(1-\nu^2)}{2E} K_{IC}^2 \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (2-26)$$

(2) 熱膨張率（α）

UO_2の熱膨張率は，試料の熱膨張を直接高温顕微鏡を用いて測定する方法で求めた。高温顕微鏡の試料ステージには，デジタルダイヤルゲージが取付けられており，顕微鏡の基線に合わせて試料の端面から端面まで試料ステージを移動させることにより，その温度における試料の全長を１／１０００mmの精度で読み取ることができる。この高温顕微鏡に，ペレットから切り出した，長さ約８mm，幅約4.5mm，厚さ約0.9mmの板状試料をセットし，0.1Pa以下の真空雰囲気下で室温から１０００℃までの熱膨張量を測定した。

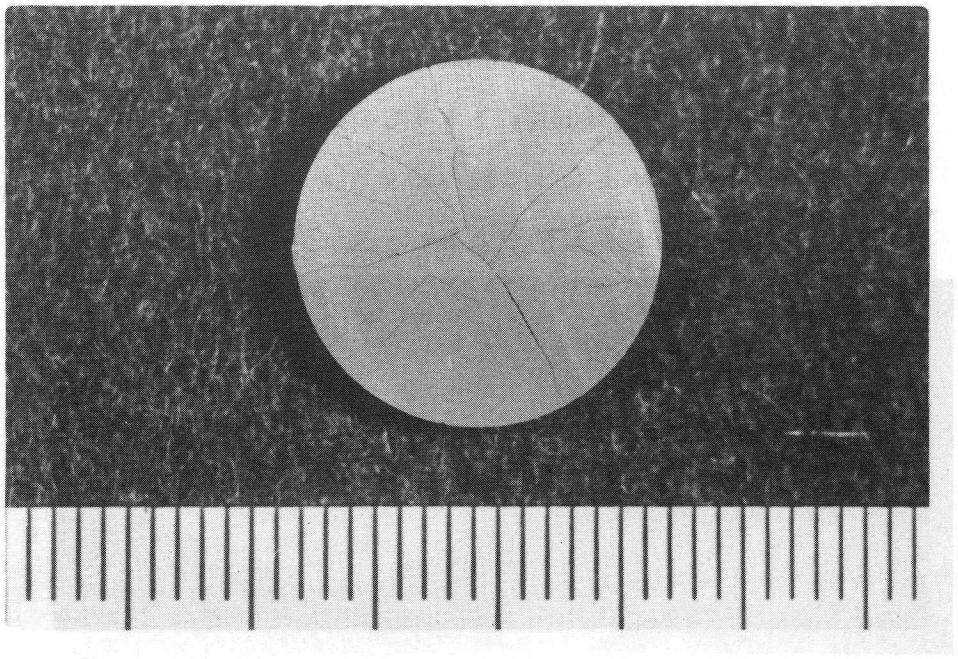
(3) 熱伝導率（K）

試料UO_2の熱伝導率は，レザーフラッシュ法で熱拡散率Hを測定し，$K=C\cdot H\cdot C_p\cdot\rho$として求めた。ここで，C：定数，$C_p$：定圧比熱，$\rho$：試料密度である。$C_p$の値は，MATPRO−VO9[29]で提案されている値を採用した。測定温度範囲は，室温から１０００℃，雰囲気は1.3×10^{-3}Paの真空雰囲気である。

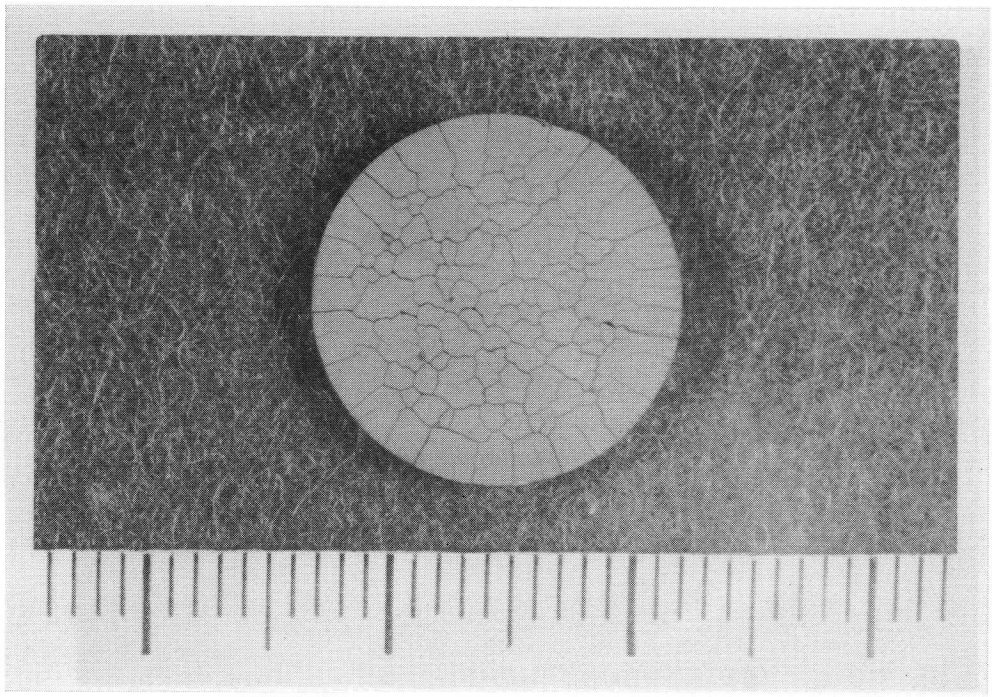
4. 結果および検討

4.1 熱衝撃損傷の様相

図2.4(a)および(b)は，熱衝撃によって気孔率0.05の試料に発生した典型的な割れパターンを熱衝撃温度差と関連して示したものである。熱衝撃温度が低い場合には，ペレットの外周部から中心方向に向う直線的なクラックが少数発生するが，熱衝撃温度差が高くなると外周からかなり内側まで屈曲して入ったクラックが多数みられるようになる。このような割れパターンの相違は次のように考えられる。熱衝撃温度差が低い場合には，熱応力がUO_2の破壊応力を越える領域はペレットの外周部のごく狭い領域に限られるから，この領域に存在する気孔などを潜在クラックとしてこれを核に破壊が発生する。これに対し，熱衝撃温度差が高い場合には，ペレットの外周部から中央部までの広範囲にわたり，ほぼ同時に熱応力が破壊応力を越えるから，単に気孔のみでなく破壊表面エネルギーの低い結晶粒界もクラックの発生核となり多数の核から同時発生的に多くの破壊が発生する。



(a)



(b)

図 **2.4**　UO_2 ペレット割れパターンに及ぼす熱衝撃温度差（ΔT）の影響

(a)　$\Delta T = 200℃$ ，(b)　$\Delta T = 800℃$

図2.5(a)および(b)に，熱衝撃実験で破壊した気孔率0.10の試料の外周部近傍で観察された典型的な破面の電子顕微鏡（ＳＥＭ）写真を示す。図2.5(a)は，熱衝撃温度差が約１３０℃，同図(b)は約５５０℃の場合である。これらの破面から，熱衝撃温度差が低い場合（同図(a)）は粒内破壊であり，熱衝撃温度差が高い場合（同図(b)）には粒界破壊が支配的であることがわかる。

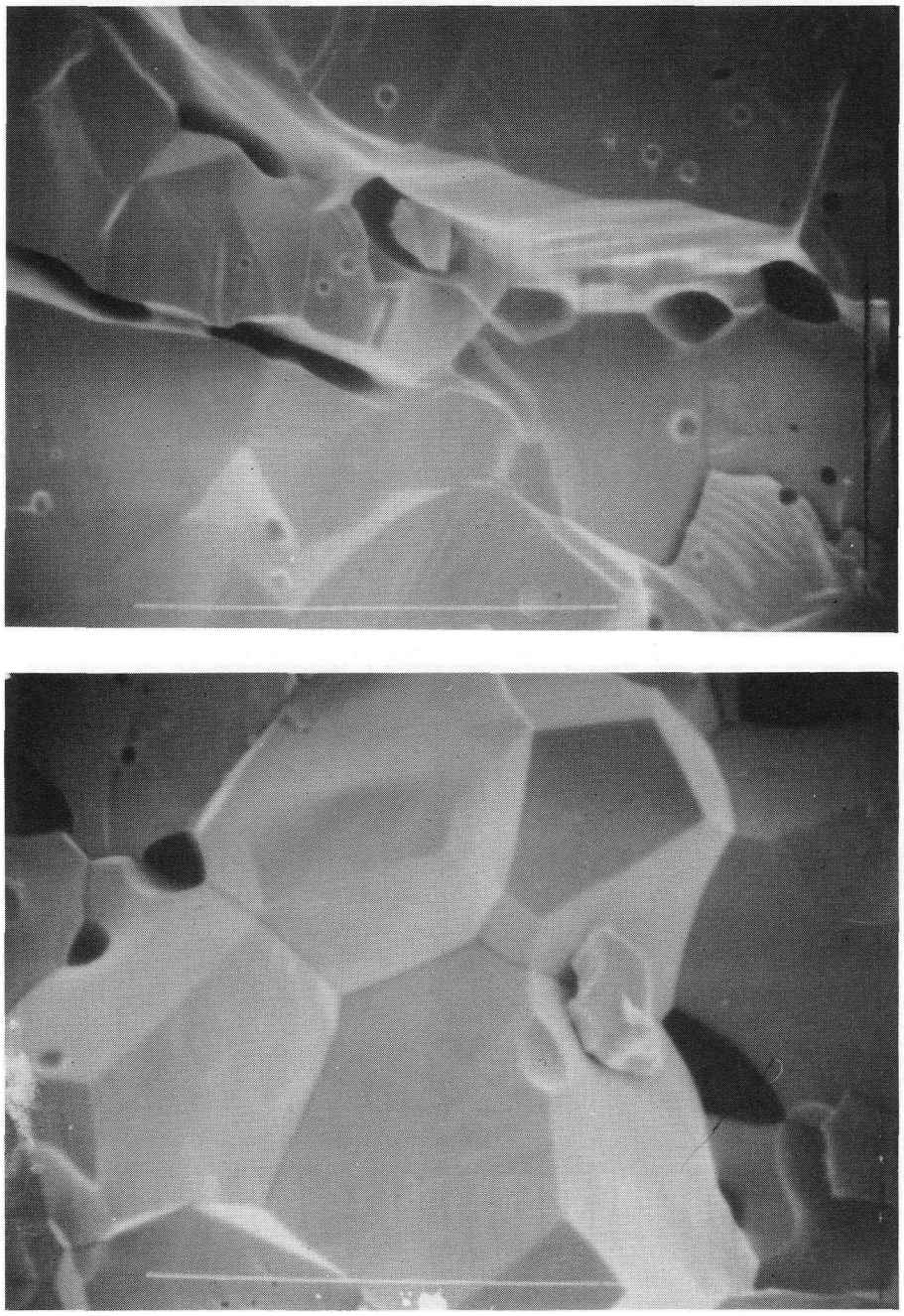
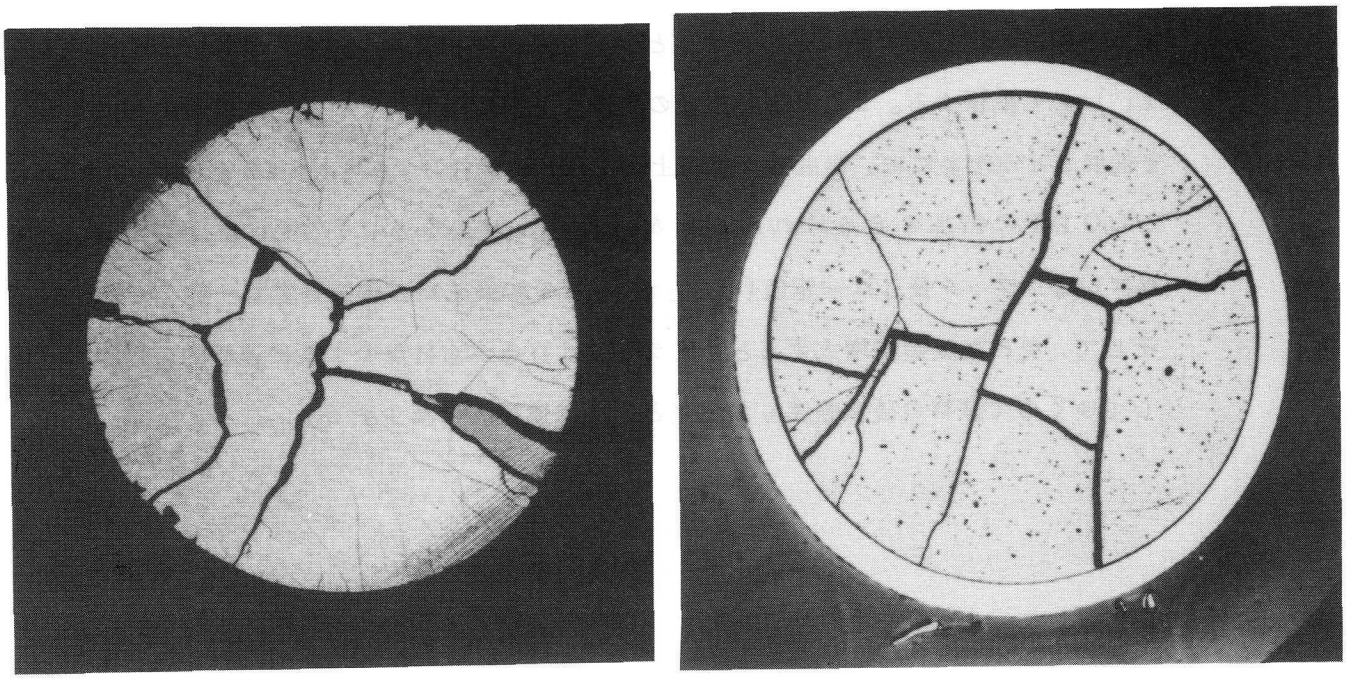


図2.5　熱衝撃により破壊したUO_2ペレットの破面
(a)　熱衝撃温度差（ΔT）＝１３０℃
(b)　ΔT＝５５０℃

BWR燃料棒のUO_2ペレットは，出力上昇時において1秒以内に最高４００～５００℃の熱衝撃温度差を受けると考えられる。

図2.6は，典型的な出力上昇を経験した燃料棒のUO_2ペレットの割れパターン（同図(b)）を，炉外熱衝撃実験で約４５０℃の熱衝撃温度差を加えたUO_2ペレットの割れパターン（同図(a)）と比較したものである。熱衝撃実験のペレットのクラックはやや屈曲し，かつ幅も一様でないが，これは実験後破壊した試料の取扱いの際破面の一部に局所的な欠落が生じたものである。これらの点を考慮すれば，中心部に向う少数の太い貫通クラックと，外周部にある多数の細いクラックなど全体的な熱衝撃損傷の様相は，実機UO_2ペレットのそれと良く類似している。なお，この熱衝撃温度差では，破面は外周部で粒界破壊が支配的であるが内部に行くにつれ粒内破壊が支配的になってくる。



(a)　熱衝撃後の試料　　(b)　照射済燃料棒のUO_2ペレット

図2.6　炉外熱衝撃実験のUO_2ペレットの割れパターンと実機燃料ペレットで観察される割れパターンの比較（$\Delta T \fallingdotseq 450$℃）

4. 2　熱衝撃温度差と破壊強度

図**2.7**に，気孔率の最も小さいUO_2ペレット（P＝0.005）の，熱衝撃温度差と破壊強度の関係を示す。この図から次のようなことがわかる。まず，試料の破壊強度は，熱衝撃温度差が約１００℃に達すると初期破壊強度の約½まで急激に低下する。この急激な強度減少は，熱応力による弾性ひずみエネルギーが破壊に必要な表面エネルギーを越え，クラックの進展が開始したためと考えられるから，そのときの熱衝撃温度差は臨界温度差（ΔT_c）に相当する。熱衝撃温度差が臨界温度差より更に高くなると，試料の破壊強度は臨界残留強度（S_a）をしばらく保持した後，熱衝撃温度差の増加とともに連続的に減少してゆく。そして，約４００℃の熱衝撃温度差で破壊強度はほぼ完全に喪失する。これは，この時点でUO_2ペレットがばらばらに破砕してしまうことを意味している。以上のような熱衝撃温度差と破壊強度の関係は，図**2.1**から定性的に説明できる。図**2.1**に示すように，気孔率が小さい場合には，臨界温度差に達するとクラックは瞬間的にA点からC点（$\ell_0 \rightarrow \ell_1$）まで拡張する。これが破壊強度の急激な減少に対応している。更にクラックを進展させるためには，温度差を更に上昇し試料の弾性ひずみエネルギーを面積OCEからＯＤＦに増加させなければならない。言いかえると，この間は温度差の上昇に対しクラック長さは一定値（ℓ_1）となり，その結果試料の破壊強度も一定となる。そして，更に温度差が増大すると，クラックはD点からH点のように連続的に増加してゆくので試料の破壊強度も温度差とともに連続的に減少する。

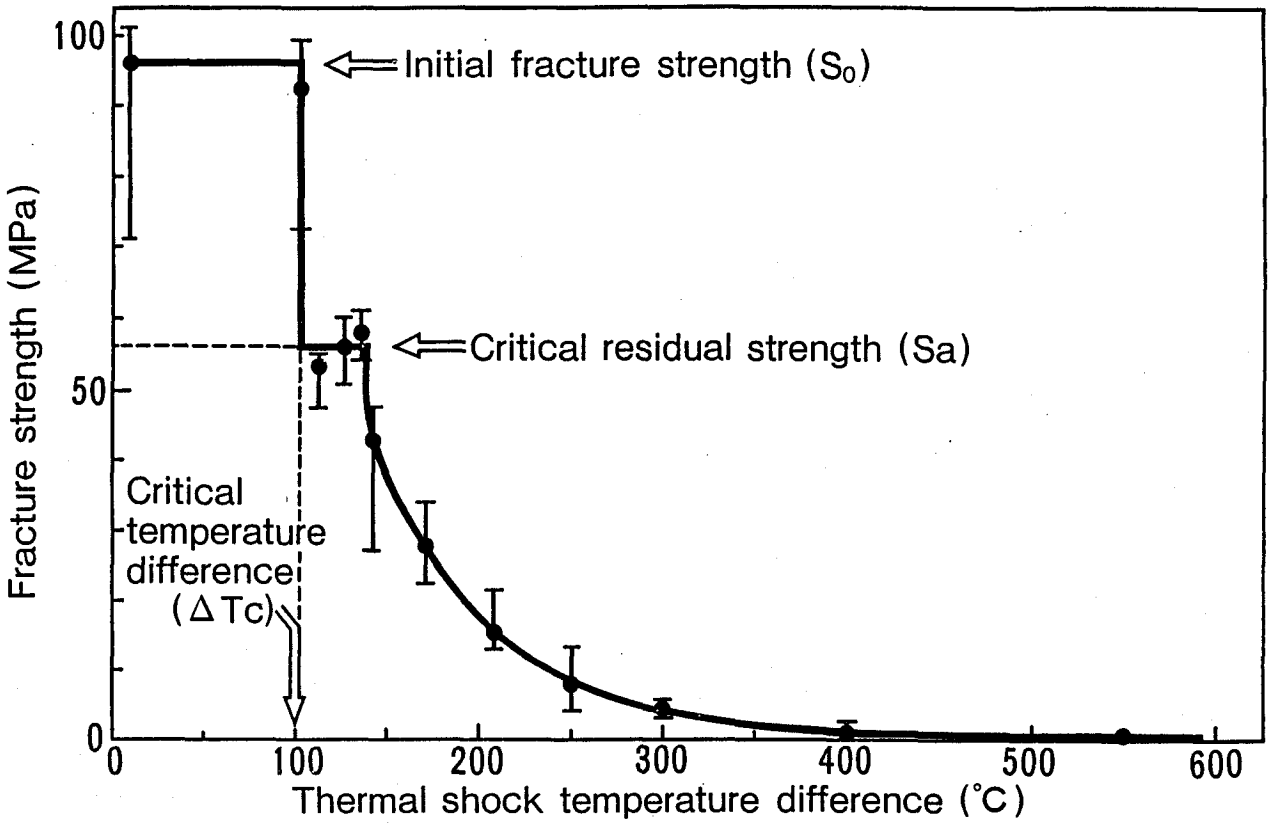


図 2.7　熱衝撃を受けたUO_2ペレットの破壊強度（気孔率：0.05）

図 2.8 は，気孔率が中間の大きさのUO_2ペレット（P＝0.10）の熱衝撃温度差と破壊強度の関係である。前述の気孔率が最小（P＝0.05）の場合に比べ，気孔率が増加すると試料の熱衝撃損傷挙動に次のような違いがみられる。

① 初期破壊強度は気孔率の影響を受け減少する。

② 臨界温度差は高温側にシフトする。

③ 臨界温度差における破壊強度の低下は小さくなる。

④ 破壊強度が完全に喪失する熱衝撃温度差は増加する。

これらの傾向は，図 2.9 に示すように，気孔率が最大（P＝0.15）のUO_2ペレットの場合において更に顕著になる。すなわち，気孔率が 0.15 になると 0.05 の場合に比べて初期破壊強度は約半分になるが，臨界温度差における破壊強度の低下は減少し，図 2.9 のように，初期破壊強度と臨界残留強度との差はほとんどみられなくなる。そして，約１００℃であった臨界温度差は１３０℃まで増加する。気孔率 0.05 の場合は，約４００℃の熱衝撃温度差でペレットの破壊強度が喪失し

ていたが，気孔率0.15では600℃においてもまだ破砕せず，ある程度の強度を維持していることがわかる。

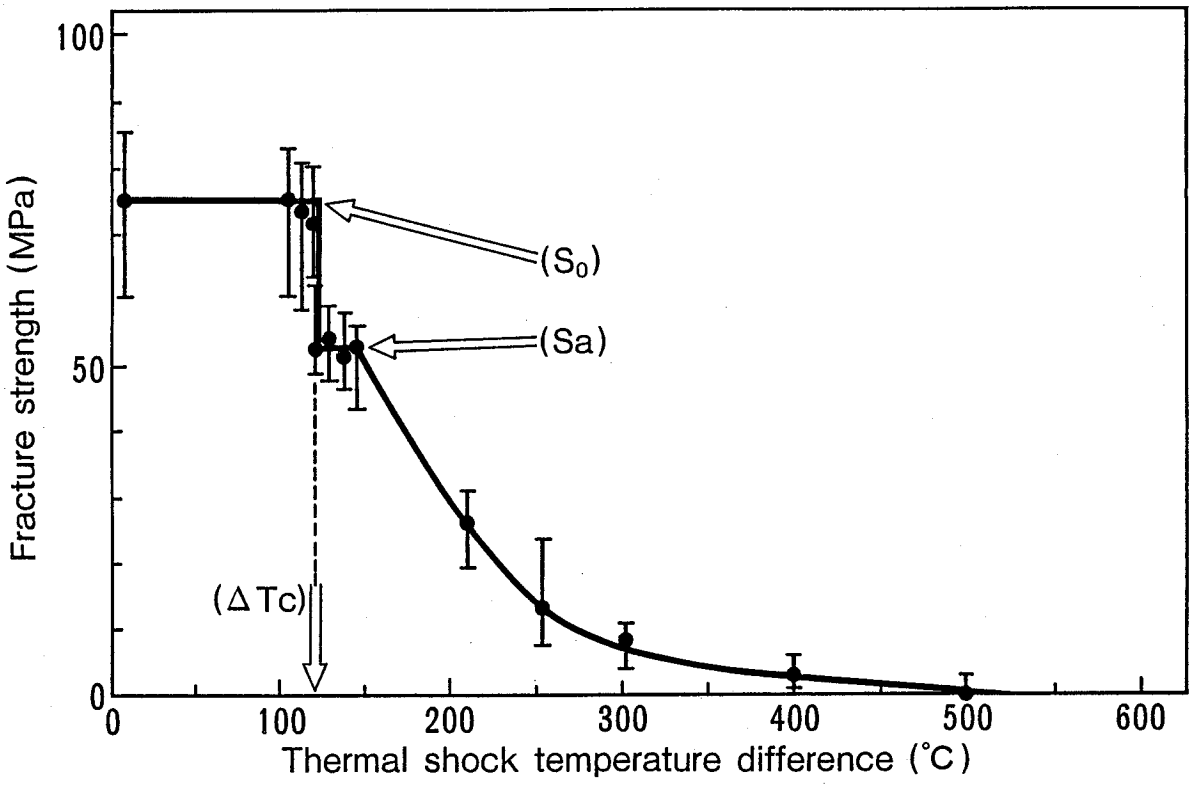


図2.8　熱衝撃を受けたUO_2ペレットの破壊強度（気孔率：0.10）

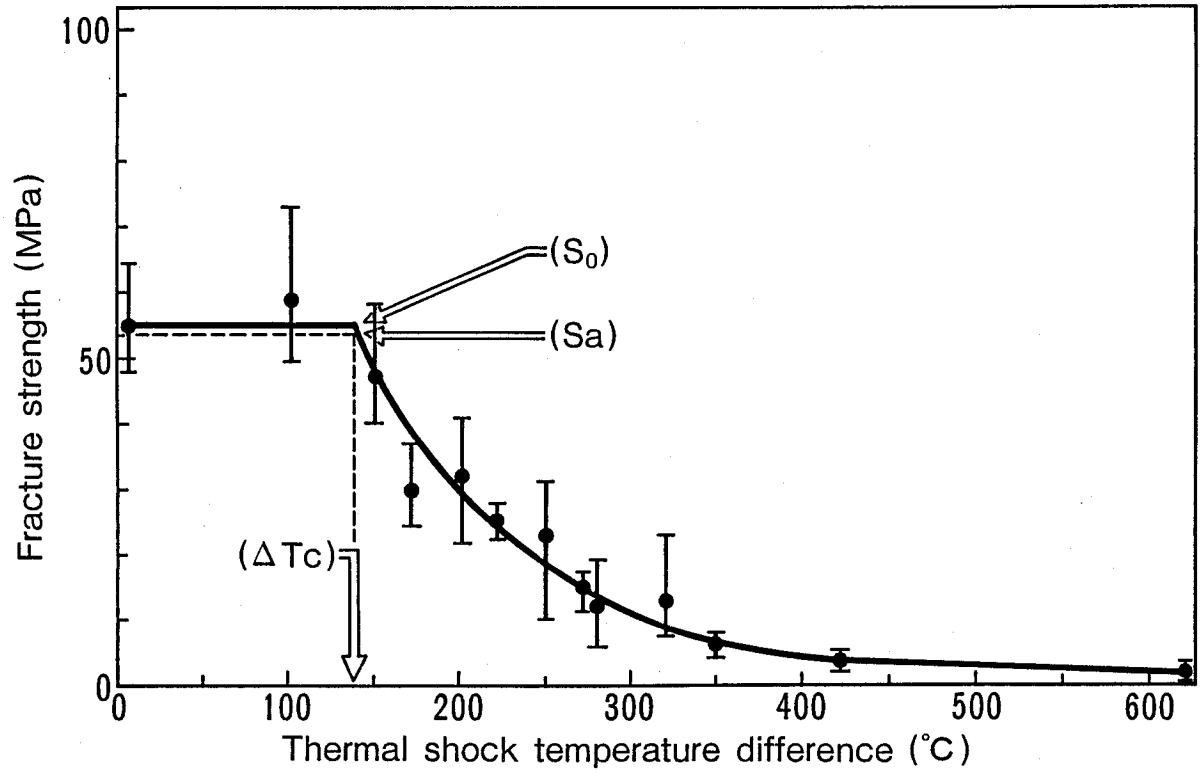


図2.9　熱衝撃を受けたUO_2ペレットの破壊強度（気孔率：0.15）

4.3　実験値と計算値の比較

表2.3にUO_2ペレットの熱衝撃特性に関与する物性値を示す。表において，破壊表面エネルギー，熱伝導率，熱膨張率などの測定結果は平均値である。これらの物性値を用いて，UO_2ペレットの熱衝撃損傷挙動を特徴づける初期破壊強度，臨界温度差，臨界残留強度を第2節で導いた理論式から求め，それらの計算値と図2.7～図2.9から得られた実験値とを比較した。

表2.3　供試UO_2ペレットの物性値

Fracture surface energy	(J/m^2)	: $G=4$	(*1)
Thermal conductivity	($W/m°C$)	: $K=(0.117+2.65\times10^{-4}T)^{-1}+2.14\times10^{-11}(T+273)^3$	(*1)
Thermal expansion	($1/°C$)	: $\alpha=8.37\times10^{-6}+4.06\times10^{-9}T$	(*1)
Young's modulus	(Pa)	: $E=2.26\times10^{11}(1-1.131\times10^{-4}T)(1-2.62P)$	(*2)
Poisson's ratio		: $\nu=0.316$	(*2)
Surface heat transfer coeff.	($W/m^2°C$)	: $h=4.187\times10^3$	(*3)

(*1) Measured value　　T : Temperature (°C)
(*2) Reference No. 28　　P : Porosity
(*3) Reference No. 18

表2.4にその結果を示す。この表から，計算値は気孔率の増加とともに初期破壊強度は減少すること，また臨界温度差は逆に増加すること，そして臨界残留強度は気孔率とともに漸増し初期破壊強度に近づいてゆくことなど実験結果で得られたそれらの傾向をよく表現していることがわかる。また，同一気孔率で初期破壊強度，臨界温度差，臨界残留強度など各項目別に計算値と実験値を比較してみると，それぞれ絶対値には多少の違いがみられるものの，測定誤差などを考慮すれば計算値と実験値は比較的良く一致していると思われる。なお，これらの差が生じた最大の原因は，実際には試料表面に確率的に存在する粗大気孔，傷，マイクロクラックなどが破壊特性や臨界温度差を決める初期クラックとして重要な役割りをしているのに対して，[11][27][28]計算値は試料の金相断面から測定した平均的な初期クラック長さを用いて求めていることに起因すると考えられる。

表 2.4　熱衝撃損傷の計算値と実測値の比較

Porosity P	Initial crack radius* l_0 (μm)	Initial fracture strength S_0(MPa)		Critical temperature difference ΔT_C (°C)		Critical residual strength S_a (MPa)	
		Observed	Calculated	Observed	Calculated	Observed	Calculated
0.05	28	95	106	100	108	55	52
0.10	24	75	79	118	123	53	55
0.15	21	55	58	130	138	54	57

$$*\text{Initial crack radius} = \frac{1}{2}[\text{Largest pore size} + \frac{1}{2}(\text{Avg. grain size})]$$

図 2.10 は，初期破壊強度に対する臨界残留強度の比 S_a/S_0 と気孔率の関係を示したものである。気孔率の小さい領域で計算値は実験値に対しやや低目になる傾向がみられるものの，両者は比較的良く一致している。S_a/S_0 は UO_2 ペレットが熱衝撃を受けたとき，どの程度クラックが進展するかを表わす一つの指標となるものである。言いかえれば，この値は UO_2 ペレットの熱衝撃損傷抵抗を表わしている。UO_2 ペレットのクラックの増加は，FP ガス放出を増大させる。また，それらのクラックが貫通しペレットが破砕するようになれば，第 4 章～第 6 章に述べるようにペレットのリロケーションが増大し，燃料棒の PCI に影響を与えることになる。したがって，UO_2 ペレットは熱衝撃損傷抵抗が大きい方が，すなわち S_a/S_0 が大きいことが望まれる。この意味からは，UO_2 ペレットを低密度化させる方が好ましいことになる。しかし，UO_2 ペレットをあまり低密度化すると熱伝導率の減少，破壊強度の低下を招き，別の面で燃料性能に悪影響を及ぼすようになるから，これらを総合的に評価した上で UO_2 ペレットの最適な密度，すなわち気孔率を決定してゆく必要がある。

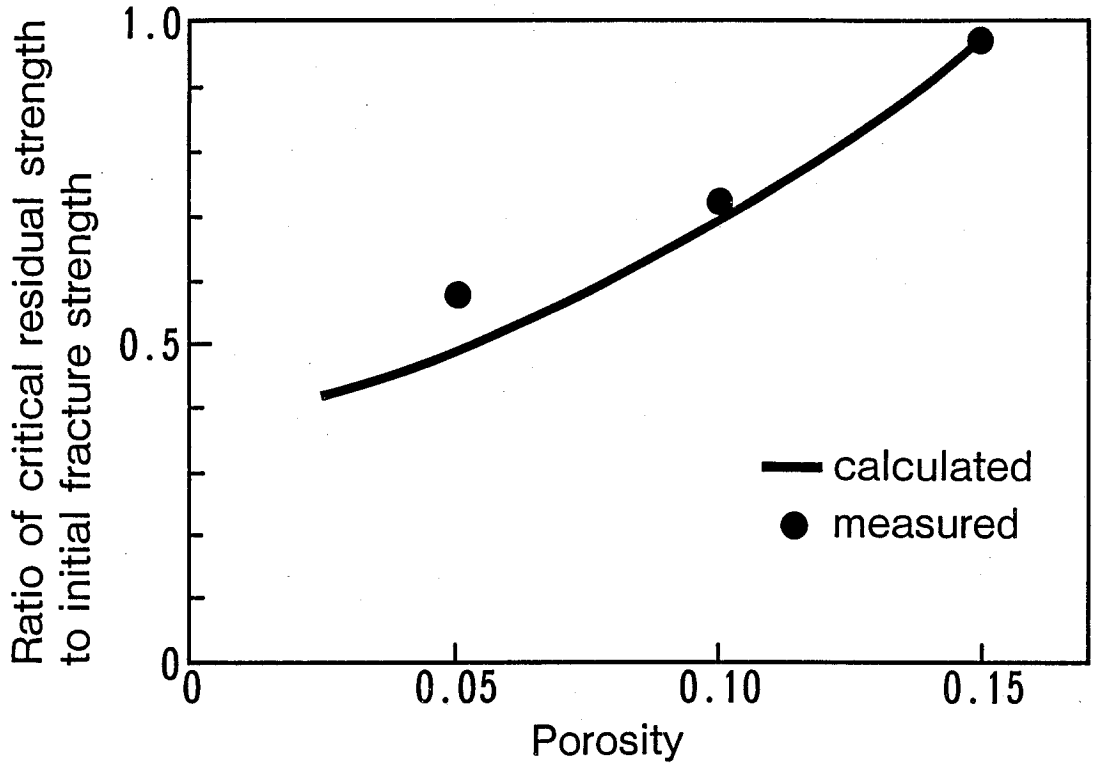


図2.10　UO_2 ペレットの熱衝撃損傷と気孔率の関係

5. 結　言

UO_2 ペレットの出力上昇時における熱衝撃損傷と微細組織，特にペレットの破壊強度に強く関与する気孔率との関係を明らかにするため理論解析と炉外熱衝撃試験を行った。熱衝撃試験では，実際のペレットが出力上昇時に経験する温度，熱応力分布に近い状態を模擬できる加熱－急冷方式を採用した。供試 UO_2 ペレットの気孔率は，0.05，0.10，0.15の3種類とした。熱衝撃試験前後で試料の破壊強度を測定し，破壊強度の減少から熱衝撃損傷の程度を評価した。結果を要約すると以下のようになる。

(1) 気孔率が大きいペレットは，小さいものに比べ以下のような点が顕著に現われた。

① ペレットの内部に新しいクラックを生ずる熱衝撃温度差，すなわちペレットが最初に損傷を受ける熱衝撃温度差（臨界温度差）は高い。

② 熱衝撃を受けたときの，クラックの進展の度合，すなわちペレットの熱衝撃損傷の程度は小さい。

③ ペレットが完全に破砕する熱衝撃温度差は高い。

(2) UO_2 ペレットの熱衝撃損傷挙動を理論的に検討し，気孔率，潜在クラック長さと熱衝撃損傷との関係を表わす理論式を導出した。

(3) 上記理論式を用いた臨界温度差，損傷の程度（熱衝撃による強度の減少），などの計算値はいずれも実測値と良い一致をみた。

(4) この理論式から，同一気孔率であれば潜在クラック長さが短い程，臨界温度が高くなることが予想された。

(5) 以上の実験と理論的解析から，気孔率の大きいUO_2ペレット，あるいは気孔率が熱伝導率など他の理由で一定に押えられる場合には，短い潜在クラック（例えば，気孔）を多数含有するようなUO_2ペレットを用いることにより，出力上昇時の熱衝撃損傷を低減できると考えられる。

6. 参考文献

(1) Y. Mishima et al.: Trans. Amer. Nuc. Soc., 20, P222 (1975)

(2) K. Ito et al.: Res Mechanics, 2, P109 (1981)

(3) M. Oguma: Nucl. Eng. Des. to be published in 1983

(4) B. Brozoska et al.: Trans. 5th SMIRT, D2/1 (1979)

(5) D.. Lannings: Nucl. Technol., 56, P565 (1982)

(6) A.D. Appelhans et al.: NUREG/CR-1425 (1980)

(7) S. Sato et al.: Carbon, 13, P309, (1975)

(8) G.W. Hollenberg: Am. Ceram. Soc. Bull., 59, 5, P538 (1980)

(9) G.W. Hollenberg and J.A. Basmajian: J. Am. Ceram. Soc., 65, 4 (1982)

(10) A. Carpinteri and E. Lorenzimi: Nucl. Engrg. Des. 61, P1 (1980)

(11) M. Oguma: J. Nucl. Sci. Technol., 19, P1005 (1982)

(12) J.B. Walsh: J. Geophys. Res., 70, 2, P381 (1965)

(13) D.P.H. Jasselman: J. Am. Ceram. Soc., 52, 11, P600 (1969)

(14) J.P. berry: J. Mech. Phys. Solids, 8, P194 (1960)

(15) D.P.H. Hasselman: J. Am. Ceram. Soc., 53, 9, P490 (1970)

(16) W.D. Kingrey: J. Am. Ceram. Soc., 38, 1, P3 (1955)

(17) A.A. Griffith: Phil. Trans. Roy. Soc., A221 (1920)

(18) F.P. Knudsen: J. Am. Ceram. Soc., 42, 8, P376 (1959)

(19) K.C. Radford: J. Nucl. Mater., 84, P222 (1979)

(20) I. Inoue and H. Matzke: J. Nucl. Sci. Technol., 17, 12 (1980)

(21) P.S. Maiya: J. Nucl. Mater. 40, P57 (1971)

(22) H. Matzke and T. Inoue: idid 91, P205 (1980)

(23) L.A. Simpson: J. Am. Ceram. Soc., 56, 1, P7 (1973)

(24) M. Srinivasan and S.G. Seshadri: Fracture Mechanics for Ceramics, Rocks, and Concrete, ASTM-STP 745, P46 (1980)

(25) S.S. Smith et al.: idid, P33 (1980)

(26) R.D. Smith et al.: Ceramic Bulletin, 55, 11, P979 (1976)

(27) J.A. Coppola et al.: J. Am. Ceram. Soc., 55, 9, P481 (1972)

(28) T.K. Gupta: idid 55, 5, P249 (1972)

(29) MATPRO-V09 : TREE-NUREG-1005 (1976)

第3章　二酸化ウランペレットの破壊強度

1. 緒　　言

UO_2 ペレットの破壊強度は，前章で述べた出力上昇時のペレットの熱衝撃破壊，あるいは次章以下で述べるペレットのリロケーション挙動を理解する上で最も基本的な物性である。UO_2 ペレットの破壊強度に影響を与える主な因子としては，(1)ペレットの結晶粒径，気孔径，気孔率などの微細組織，[1]～[6] (2)不純物や添加物などの異物，[5][7] それに(3)原料である UO_2 粉末の特性，などがあるが商用炉燃料の製造のように UO_2 ペレットが一定の原料と工程のもとに製作される場合には(1)のペレットの微細組織の影響が最重要因子となる。これまでに，破壊強度に及ぼす気孔率の影響[1]や結晶粒径の影響，[2]～[5] そして気孔径の影響[6]に関しては数多く報告されている。しかし，結晶粒径，気孔径，気孔率の影響を総括的に評価し，微細組織と破壊強度の関係を調べた例は少なく，筆者の知る限りにおいてはRadford の報告[6]だけである。Radford は，破壊強度を平均結晶粒径，気孔率，それに中間（madian）気孔径の関数として表わしているが，Evans[4]らの実験結果や本研究の予備実験結果は，破壊強度に影響を及ぼす気孔径として中間気孔径を指標とすることが必ずしも妥当でないことを示唆している。本章における研究は UO_2 ペレットの破壊強度に及ぼす結晶粒径，気孔径，気孔率などの影響を明らかにするとともに，このうちいずれが破壊強度に最も強く関与する微細組織であるかを見出すことを目的に行ったものである。破壊強度の測定は，UO_2 ペレットから切り出した円板状試料を外周部分で支持し中央部にリング荷重を加える方法で行った。セラミックスの破壊強度の測定方法としては，従来から3点または4点曲げなどの単軸曲げ試験が広く採用されてきた。しかし，これらの方法には試料のエッジ（edge）の加工状態や表面の研削傷が破壊強度の測定に影響を与えるという欠点があった。本研究で採用したリング荷重方法によれば，試料に加わる応力は2軸応力状態となり上記の欠点が低減できる。

2. 実　　験

2.1　試料の製作

UO_2 ペレットは，全て前章で用いたものと同じバッチの天然 UO_2 粉末から製作した。ペレットの製造方法も基本的には前章で述べた方法と同じであるが，本実

験では特に微細組織の異なるペレットを得るため，1次成形圧力や焼結温度，焼結時間などの焼結条件を変えてペレットを製作した。以下，ペレットの製造方法を簡単に述べる。UO_2粉末を所定分秤量した後，これにパラフィン，ポリエチレングリコール，ステアリン酸を混合した成形・潤滑剤を重量比で約2％添加し，良く攪拌した。この粉末を種々の成形圧力（1.5～7.0 t／cm^2）で冷間プレスしグリーンペレットを製作した。グリーンペレットの密度は，4.0～5.7 g／cm^3の範囲に分散していた。これらのグリーンペレットを還元雰囲気（92％N_2－8％H_2）で焼結した。焼結温度は1700℃および1750℃，焼結時間は2，3，8 hとし，焼結温度，焼結時間を適宜組み合わせた。ペレットのO／Uは2.00±0.001でほぼ定比性が保たれていた。ペレットの焼上り寸法は，直径約15㎜，高さ約8㎜であった。ペレットの上下両端部には焼結収縮による凹凸があるためそれぞれの端部を厚さ0.2～0.5㎜で切断除去した。精密切断器（スライシングマシン）で残りの部分から厚さ1.5～2.0㎜の円板上UO_2を切り出し，破壊強度測定用の試料とした。スライシングマシンによる試料の切断面はそれ自体平滑であるが，切断で生じた傷など異常が認められたときには切断面を600～1000＃のエメリー紙で軽く粗研磨した。試料の厚さのバラツキ，すなわち平行度を調べるため精度1／1000のマイクロメータで，試料の周方向0°，45°，90°間隔で直径方向に各々5点づつ厚さを測定した。厚さのばらつきは±20 μm以下と試料の平行度は良好であった。

微細組織は各円板状試料を樹脂に埋込み鏡面研磨した後200～400倍の顕微鏡写真を1試料あたり4～5枚撮影し，それらの写真から測定した。測定方法は前章の場合と同じである。すなわち，平均結晶粒径はインターセプト法で，気孔率は液浸法で，気孔径はイメージアナライザによりそれぞれ測定した。

2.2 破壊強度試験

試料の破壊強度は室温で測定した。用いた試験機は電気油圧式材料試験機（MTS社製モデル810－11全自動システム）である。図**3.1**に破壊強度試験測定治具の構造を示す。下側の治具で円板状試料の外周部を支持し，上側の治具で中央部にリング荷重を加え試料を破壊させる。破壊時の最大荷重から試料の破壊応力は下式

から求められる。

$$\sigma_f = \frac{3W}{2\pi h^2}\left\{(1-\nu)\frac{b^2-a^2}{2b^2}\cdot\frac{b^2}{d^2}+(1+\nu)\ell_n\frac{b}{a}\right\} \cdots\cdots (3-2)$$

ここで，σ_f ： 破壊応力（ＭＰａ）

W ： 破壊荷重（Ｎ）

ν ： ポアソン比

a ： 上部治具のリング直径（㎜）

b ： 下部治具の試料支持直径（㎜）

d ： 試料の直径（㎜）

h ： 試料の高さ（㎜）

である。

試料に加わる応力状態は，半径方向および周方向の２軸状態となる。そして，大きさの等しい最大応力が中央リング荷重の加わる試料の裏面に発生する。なお，試験機の荷重軸の駆動速度は１００μm／ｍｉｎである。

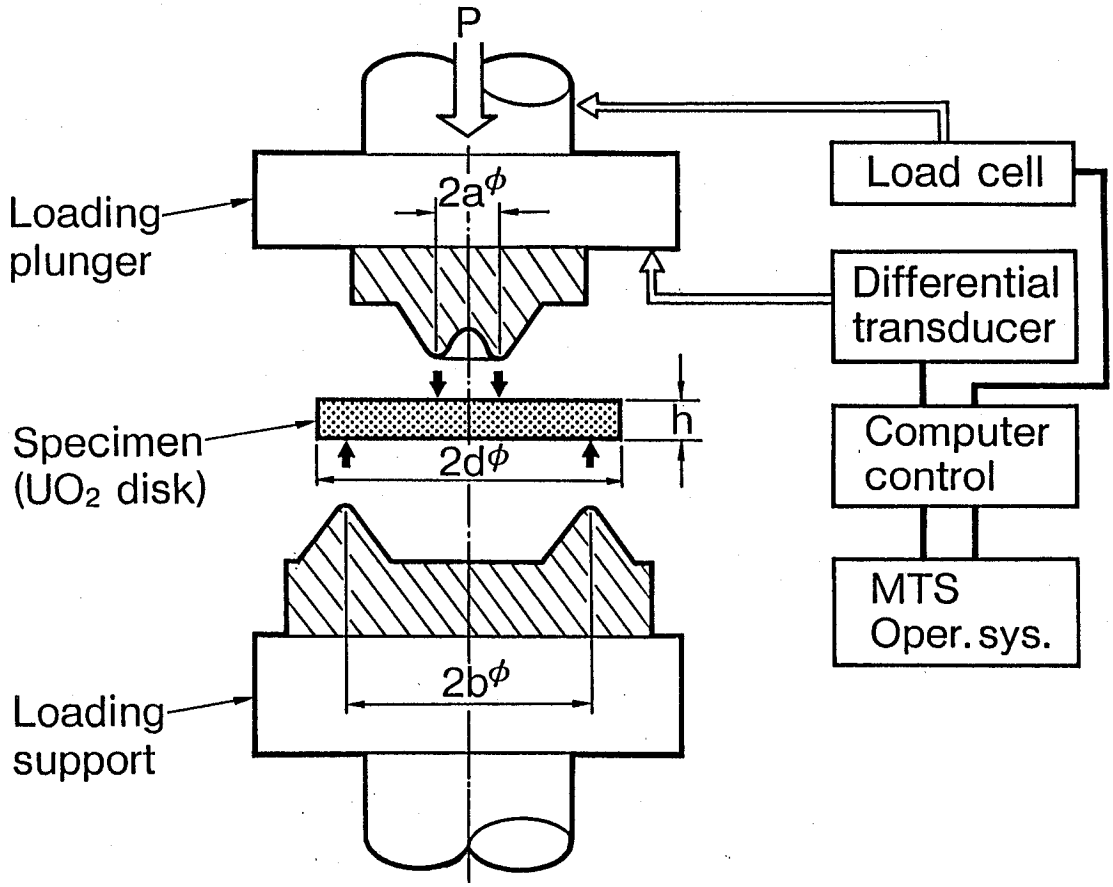


図 3.1　円板状ＵＯ₂ 試料の破壊強度測定治具

3. 結果および検討

3.1 試料の微細組織

合計２０個のUO_2ペレットの気孔率，および平均結晶粒径の範囲は，それぞれ3.6～8.8％，7～90μmであった。ペレットの焼結条件と得られた微細組織との関係では，グリーンペレットの密度と焼結温度が高くかつ焼結時間が長いものほど，ペレットの気孔率は小さくまた平均結晶粒径が大きいという定性的関係がみられた。平均結晶粒径について整理すると，試料は7～30μmの比較的細い結晶粒を持つものと，60～90μmの粗大結晶粒を持つものとの2群に分かれた。表3.1に各々の平均結晶粒径の範囲に含まれる試料の気孔径，気孔率の範囲を示す。気孔径は結晶粒径が粗大化するとともに大きくなる。中間気孔径よりも最大気孔径の方がその傾向は顕著に現われている。また，気孔率は結晶粒の成長によって僅かに減少する傾向がみられる。

表3.1　UO_2ペレットの微細組織

	Grain size (μm)	
	7 ～30	60～90
Pore size (μm) largest	12～36	53～78
median	2～5	3～14
porosity (%)	4.8～8.8	3.6～4.3

図3.2に微細結晶組織を持つ試料と粗大結晶組織を持つ試料の断面金相写真の一例を示す。結晶粒が小さい試料では球状の小気孔が試料断面の全域にわたってほぼ均一に分布しているのに対し，結晶粒が粗大化した試料の場合は結晶粒内の気孔

はほとんど消滅し，代りに結晶粒界に粗大気孔が数多く見られた。気孔率が５％の標準的微細組織を持つ試料で観察された最大気孔は，その試料の平均結晶粒径の約２倍の大きさを有していた。また，図 3.3 に示すように最大気孔は複数の結晶粒によって囲まれており，これらの隣り合う結晶粒が互いに接触する部分に鋭い角度を持つ溝が形成していた。

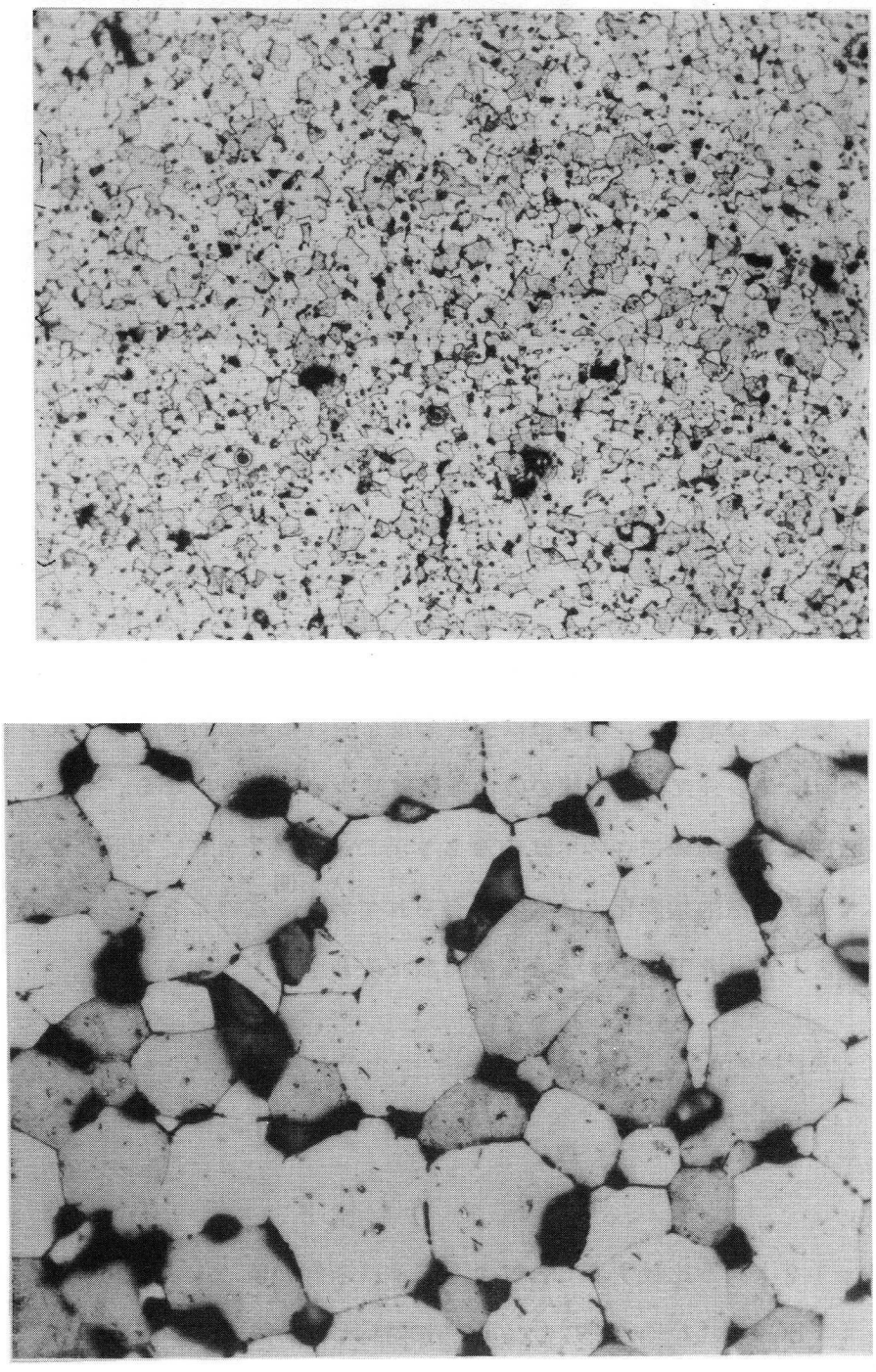


図 3.2　UO_2 ペレットの断面金相
(a)微細結晶粒を有する試料　(b)粗大結晶粒を有する試料

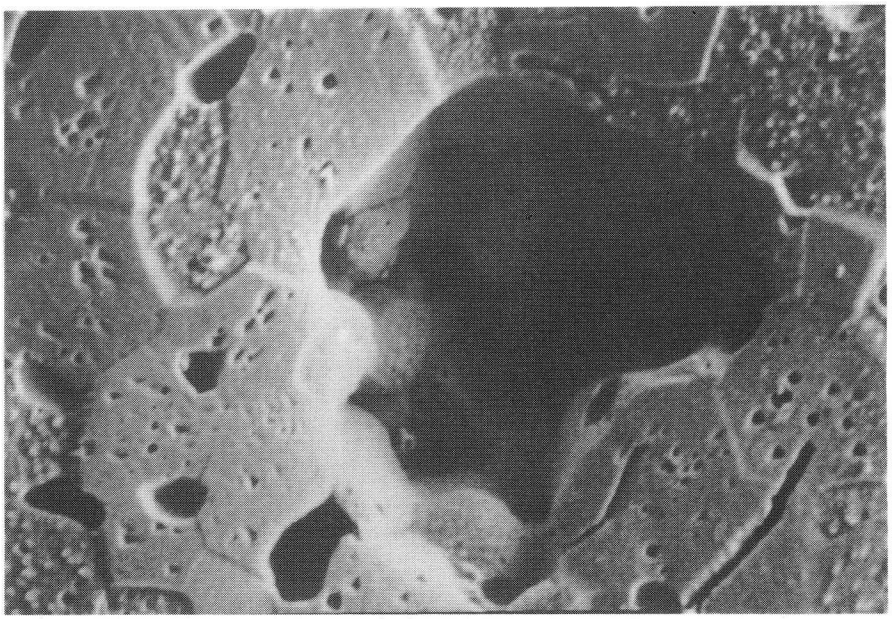


図 3.3　粗大気孔の内側（ＳＥＭ）

（結晶粒が互いに接する部分に鋭い切欠き状のくぼみが見られる）

3.2　気孔率の影響

セラミックスの破壊強度が気孔率と強い相関を持つことは良く知られている。[9] すなわち，気孔率の増加は，単純には引張荷重を受ける実効的断面積の減少となるから，その面積減少分だけ焼結体の破壊強度は減少することになる。そして，気孔率と実効断面積との関係については前章 2.5 項で述べたように，実効断面積が気孔率に対して指数関数的に変化する関係が得られている。[9] このことから，破壊強度は気孔率をＰとしたとき下式のような指数関数で表わすことができる。

$$\sigma_f = \sigma \exp(C_1 \cdot P) \qquad \cdots\cdots (3-3)$$

ただし，σ，C_1 ：定　　数

である。

（２－１９）式と比較することにより，σは未知の値 ℓ_0（潜在クラック長さ）を含む $(2EG/\pi(1-\nu^2))^{\frac{1}{2}}(\ell_0)^{-\frac{1}{2}}$ に対応していることがわかる。

図 3.4 に破壊強度と気孔率の関係を示す。

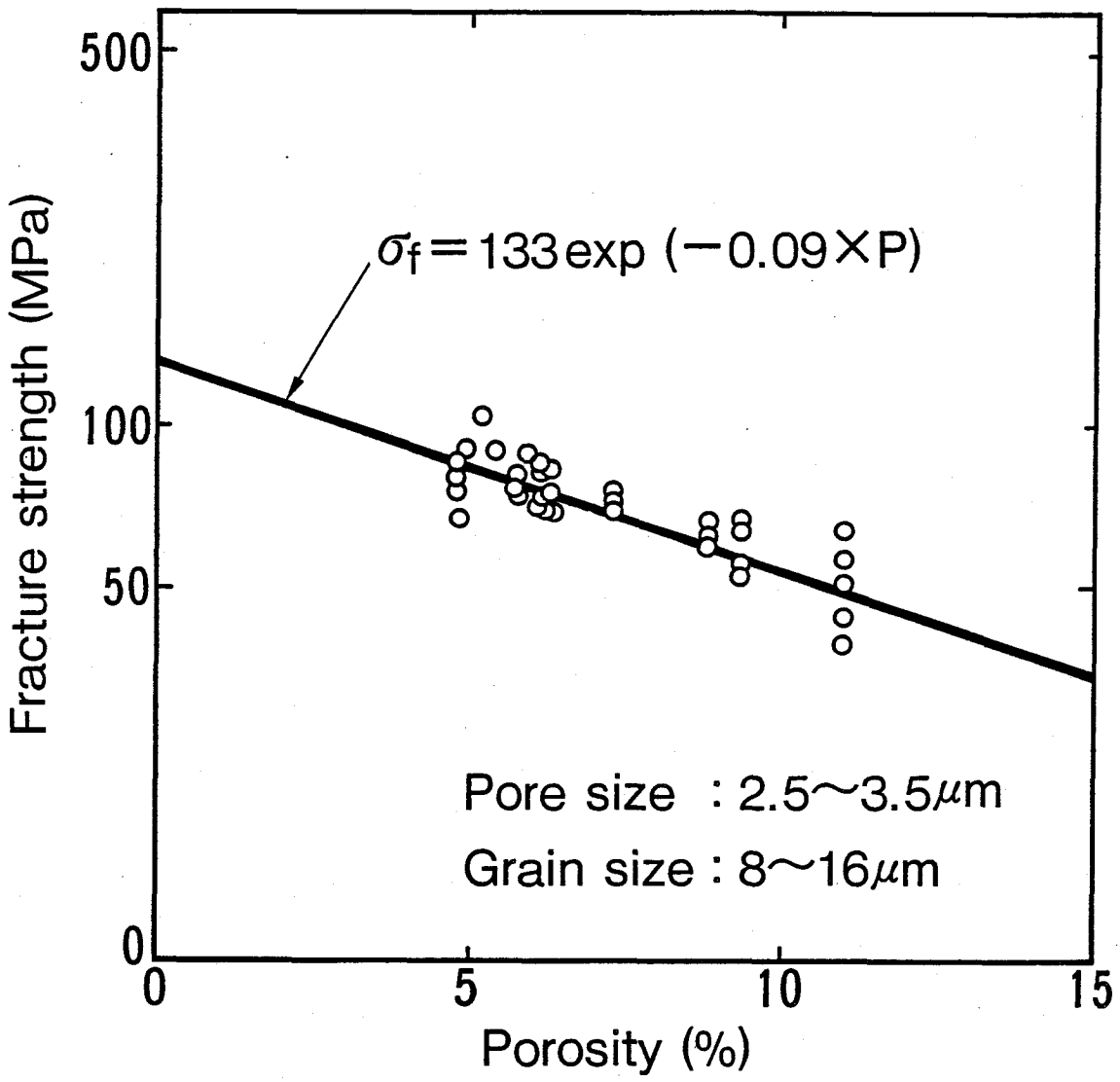


図 3.4　UO_2 の強度に及ぼす気孔率の影響

図 3.4 は，平均結晶粒径や平均気孔径がそれぞれ 8 ～ 16 μm，2.5 ～ 3.5 μm と狭い範囲にある試料を選択し整理したものである。この理由は，破壊強度に対する気孔率の効果が結晶や気孔など他の微細組織の違いによって不明瞭になるのを防ぐためである。図 3.4 から，気孔率の増加とともに破壊強度が指数関数的に減少していることがわかる。データを最小自乗法でフィッティングした直線は下式で与えられる。

$$\sigma_f = 133 \exp(-0.09 \cdot P) \quad \cdots\cdots (3-4)$$

3.3 結晶粒径の影響

多結晶体の平均結晶粒径（GS）と破壊強度の関係は，破壊理論から導かれた Orowan - Petch の式（（3－5）式），あるいは実験的に導出された Knudsen の式（（3－6）式）のいずれかによって表わすことができる。[6]

$$\sigma_f = \sigma_0 + K(GS)^{-\frac{1}{2}} \quad \cdots\cdots (3-5)$$

$$\sigma_f = C(GS)^n \quad \cdots\cdots (3-6)$$

ここで，σ_0 ：転位の動きに対する抵抗力

K ：initiation に必要なエネルギーとすべり帯の幅に依存する項

C，n ：実験定数

である。

（3－5）式は一般に，金属材料の破壊強度を良く近似するが，セラミックスのような脆性材料では必ずしも指数項が $-\frac{1}{2}$ にならないことが多く，むしろ（3－6）式の方が良い近似を与える場合が多い。[9] この理由は，内部に多数の気孔を含むセラミックスではこれらの気孔が支配的な破壊源となり，粒径の効果が十分現われないためと説明されている。[10] このように，UO_2 ペレットの結晶粒径と破壊強度の関係を調べるにあたっては，特に気孔の影響について注意を払う必要がある。そこで，まず平均気孔径が 2.3 ～ 3.0 μm とほぼ一定とみなせる試料群を選択した。次に，これら試料間の気孔率の違いによる破壊強度への影響を除くため（3－3）式を用いて気孔率を全て 5 % に補正し気孔率効果を一定にした。図 3.5 にその結果を示す。両対数グラフ上のデータを最小自乗法でフィッティングした直線は下式で表わせる。

$$\sigma_f = 128(GS)^{-0.126} \quad \cdots\cdots (3-7)$$

ここで，ＧＳ：平均結晶粒径（μｍ）

である。

（３－７）式の相関係数Ｒの値は－0.６３９で，結晶粒径と破壊強度との間の相関性が弱いことを示している。Radford[6]は，気孔率が約２％の高密度UO_2ペレットについて平均結晶粒径（ＧＳ）と破壊強度の関係を求め，（３－８）式を得ている。

$$\sigma_f = 200.5\,(GS)^{-0.13} \qquad \cdots\cdots (3-8)$$

（３－７）式，（３－８）式から明らかなように，平均結晶粒径の破壊強度に対する寄与度を表わす指数の値は，Radford の結果と本実験のそれとは良く一致している。なお両式に見られる破壊強度の絶対値の違いは，試料の気孔率や気孔径の違いによるものと考えられる。

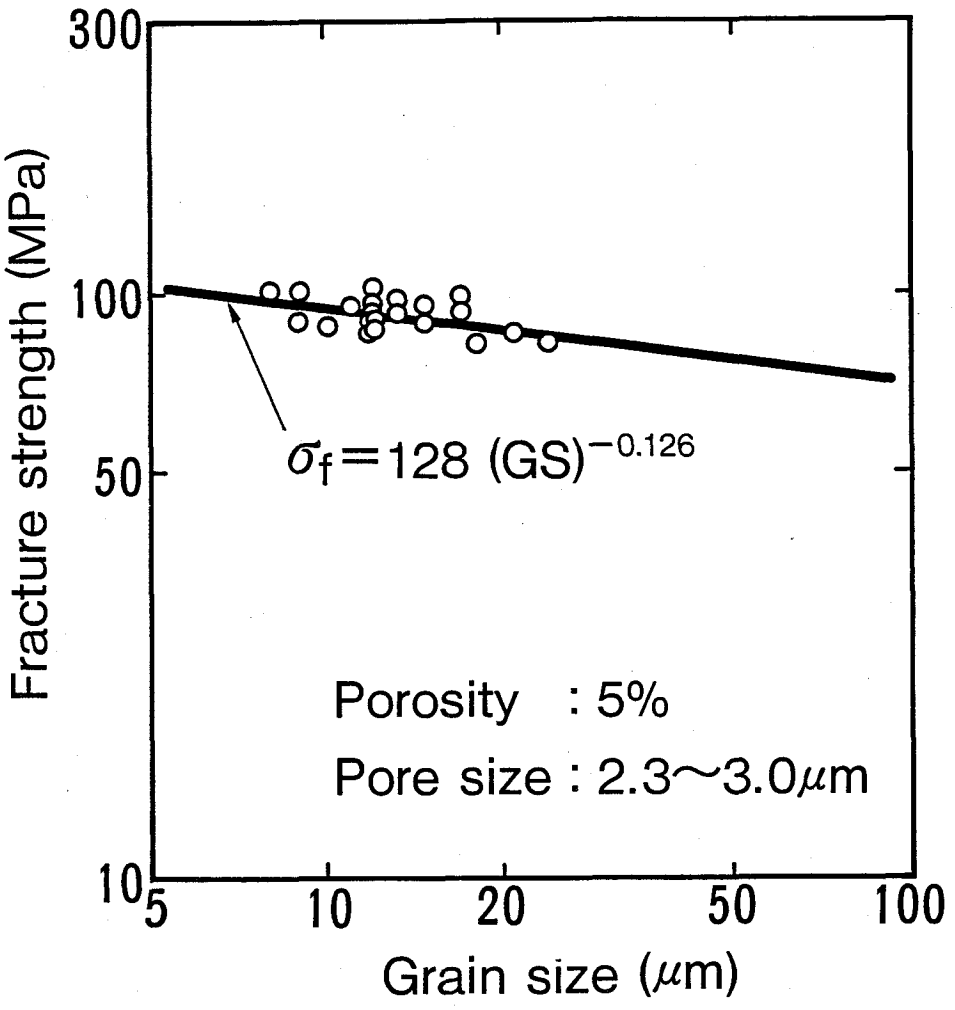


図 3.5　UO_2 の強度に及ぼす結晶粒径の影響

3.4 気孔径の影響

セラミックスの内部に存在する気孔は，破壊強度を考える上で最も重要な潜在的欠陥（き裂）であると考えられている。UO_2 ペレットの気孔は結晶粒径に比べると広い径分布を持っているため，どの径をもって試料の気孔径を代表させるかが問題となる。前節と同じように，気孔以外の微細組織の効果を打消すため，実験で得られた破壊強度の値から（3－4）式および（3－7）式を用いて試料の気孔率，平均結晶粒径をそれぞれ5％，12 μmに規格化したときの破壊強度を求めた。Radford が検討したように[6] 破壊強度と中間気孔径との関係を調べた結果が図3.6である。

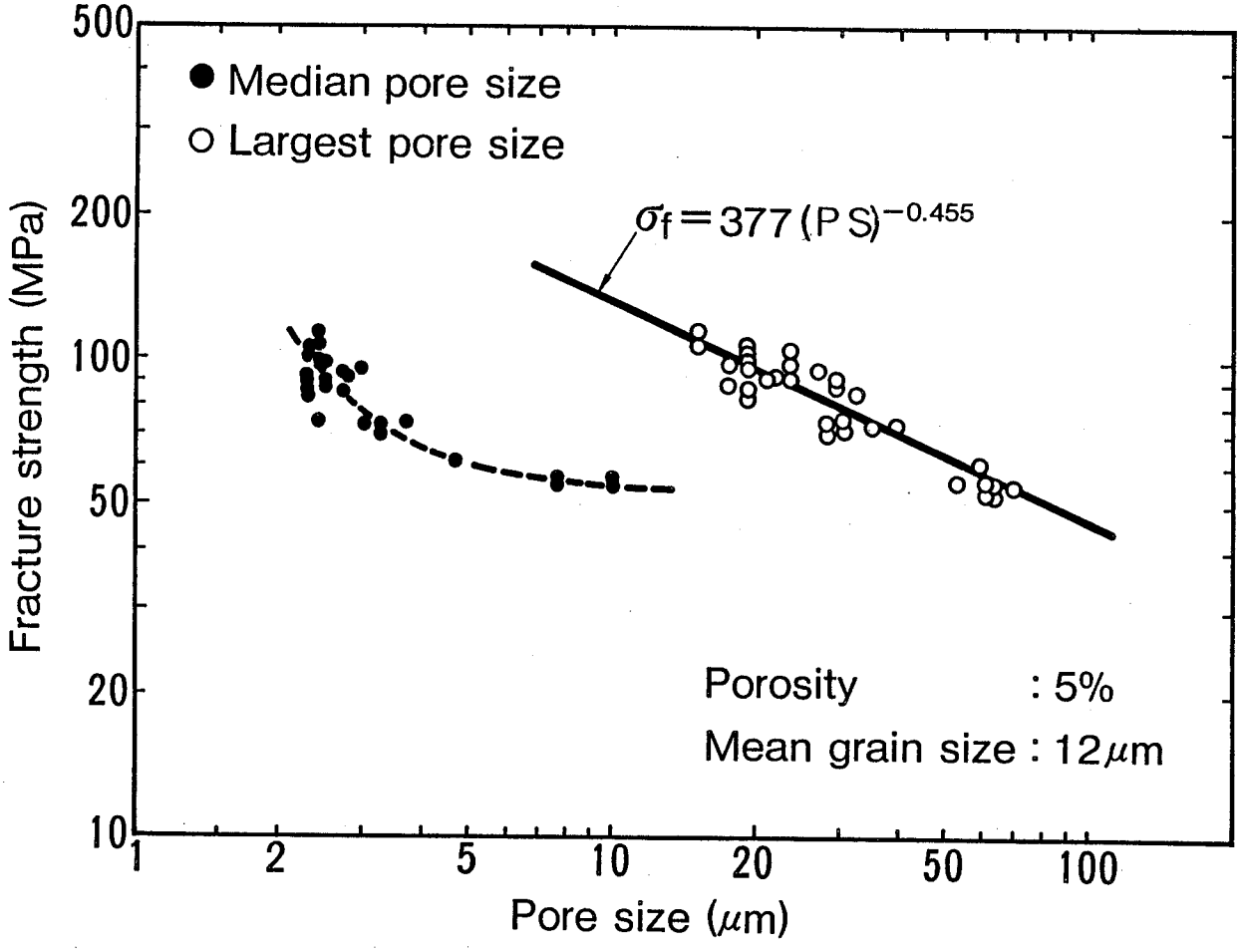


図3.6　UO_2 の強度と中間気孔径および最大気孔径の関係

図3.6から明らかなように，中間気孔径－破壊強度の関係では全体的に気孔径の増加とともに破壊強度が減少する傾向が見られるが，中間気孔径との間に明確な相関は得られていない。特に中間気孔径が小さい領域（2～5 μm）に大きなばらつきがあること，それより大きい領域（5～10 μm）において破壊強度の気孔径依存

性が失われている点などは，破壊強度を支配する気孔が中間径を持つ気孔ではないことを示唆している。一方，最大気孔径で整理した場合には，図3.6に示したように破壊強度との間に良い直線関係が得られた。一般に，中間径を持つ気孔はマトリックス中にほぼ均一に分散している気孔であるのに対し，最大径の気孔は粒内の小気孔が焼結過程で粒界に掃き出され，そこで合体し成長した気孔である。これらの気孔が同一の引張荷重を受けるときは，粒内にある小気孔より粒界に存在する粗大気孔の方が優先的に拡張し，き裂を発生すると推測できる。最大気孔径と破壊強度との間の良い相関関係は，これを裏付けている。これらの結果から，破壊強度を支配する気孔は最大径を持つ気孔であると考えられる。図3.6に示した最大気孔径－破壊強度の関係は，最大気孔径をＰＳ（μｍ）とするとき次式で表わされる。

$$\sigma_f = 377\,(PS)^{-0.455} \qquad \cdots\cdots (3-9)$$

なお，（３－９）式で表わされる直線の相関係数Ｒの値は，－0.９２２である。

破壊強度に及ぼす気孔の影響については，気孔の大きさだけでなくその形状をも考慮しなければならない。球形気孔と偏平気孔とでは，それぞれ直径，長径が等しくとも一般的には切欠き効果の大きい偏平気孔の方が破壊強度に強い影響を及ぼす。しかし，UO_2 ペレットの気孔径の指標として最大気孔を考える限りにおいては，これらは複数個の結晶粒で形成される鋭い切欠きを有し，その形状は径に依らずほぼ一定とみなすことができるので，形状については特に考える必要はない。

3.5　臨界き裂（欠陥）寸法

UO_2 ペレットの潜在欠陥である気孔や結晶粒界などのうち，ペレットの破壊強度を支配する破壊源がどのような潜在欠陥であるかを知ることは，ペレットの強度特性を理解する上で重要となる。

潜在欠陥を含む物体が脆性破壊を起こす場合の破壊強度は，Griffithの理論[11]から下式のように表わせる。

$$\sigma_f = \left(\frac{2\gamma E}{\pi a_0}\right)^{\frac{1}{2}} \qquad \cdots\cdots (3-10)$$

ここで，γ：破壊の表面エネルギー

E ：ヤング率

a_0：臨界き裂寸法

である。

ここでは，上式に実測値である破壊強度，およびヤング率，破壊の表面エネルギーを代入し，試料の臨界き裂寸法a_0を求め，これと気孔径や結晶粒径との関係を調べた。γの値には，Matzkeらがindentation法で求めた値1.79J／m^2を用いた[12]。また，Eの値はMATPRO−VO9[13]で採用されている次式に試料の気孔率を代入して算出した。

$$E = 2.256\times10^5\ (1-2.62\times P) \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \qquad (3-11)$$

ここで，E：室温におけるヤング率（MPa）

P：気孔率（%）

である。

図**3.7**は臨界き裂寸法a_0に対し，試料の最大気孔径および平均結晶粒径を比較したものである。平均結晶粒径はa_0に比べてかなり小さい。一方，最大気孔径はa_0に対して僅かに小さいものの全般的には良く対応している。この結果は，最大気孔径が単独ではないにせよ破壊強度を支配する潜在欠陥（き裂）として重要な役割を持っていることを示唆している。図**3.3**に示したように，最大気孔は複数の結晶粒によって形成されており，結晶粒が接触する部分は鋭い切欠き形状を呈している。また，実際の燃料棒に用いられる気孔率が5%，平均結晶粒径が10～20μmの標準的なUO_2ペレットについて金相観察を行った結果，それらペレットの最大気孔径はいずれも平均結晶粒径のほぼ2倍であることがわかった。一方，気孔がある方向に引張応力を受けると，応力方向と垂直な面にある結晶粒界は大きな切欠きによって容易に剥離すると考えられる。したがって，この結晶粒界の部分も気孔と同様潜在き裂（欠陥）とみなすことができる。いま結晶粒界の長さを結晶粒径の半分と仮定すると潜在き裂の寸法aは，最大気孔径をPS，平均結晶粒径をGSとして，$a = PS + \frac{1}{2}GS$となる。

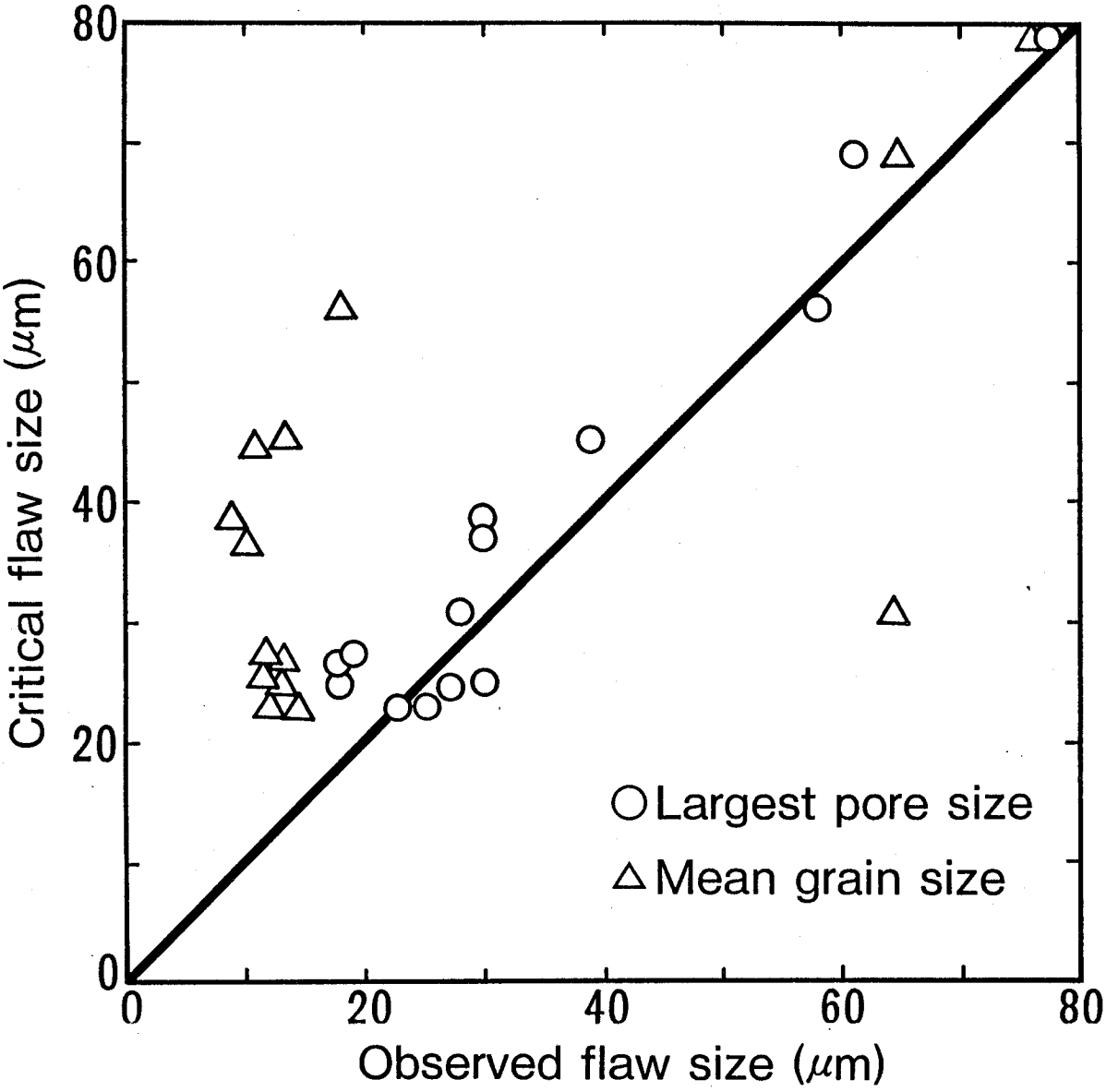


図 3.7　臨界き裂寸法と試料の先在き裂（欠陥）寸法の比較

図 3.8は臨界き裂寸法 a_0 と潜在き裂寸法 a を比較したものである。最大気孔とそれに隣接する結晶粒界を潜在き裂とみなしたき裂寸法 a は，臨界き裂寸法 a_0 と良く一致している。

前章の結論の一つは，「UO_2 ペレットの熱衝撃による損傷を小さくするには，気孔率を増加し潜在クラックの長さを短くすること」であった。これと本章の結果から次のような結論が導びかれる。

ペレット表面で熱応力が最大となるから，ペレット表面の粗大気孔が小さく，しかも気孔率の大きい UO_2 ペレットを使用することにより出力上昇時の熱衝撃損傷を低減できる。

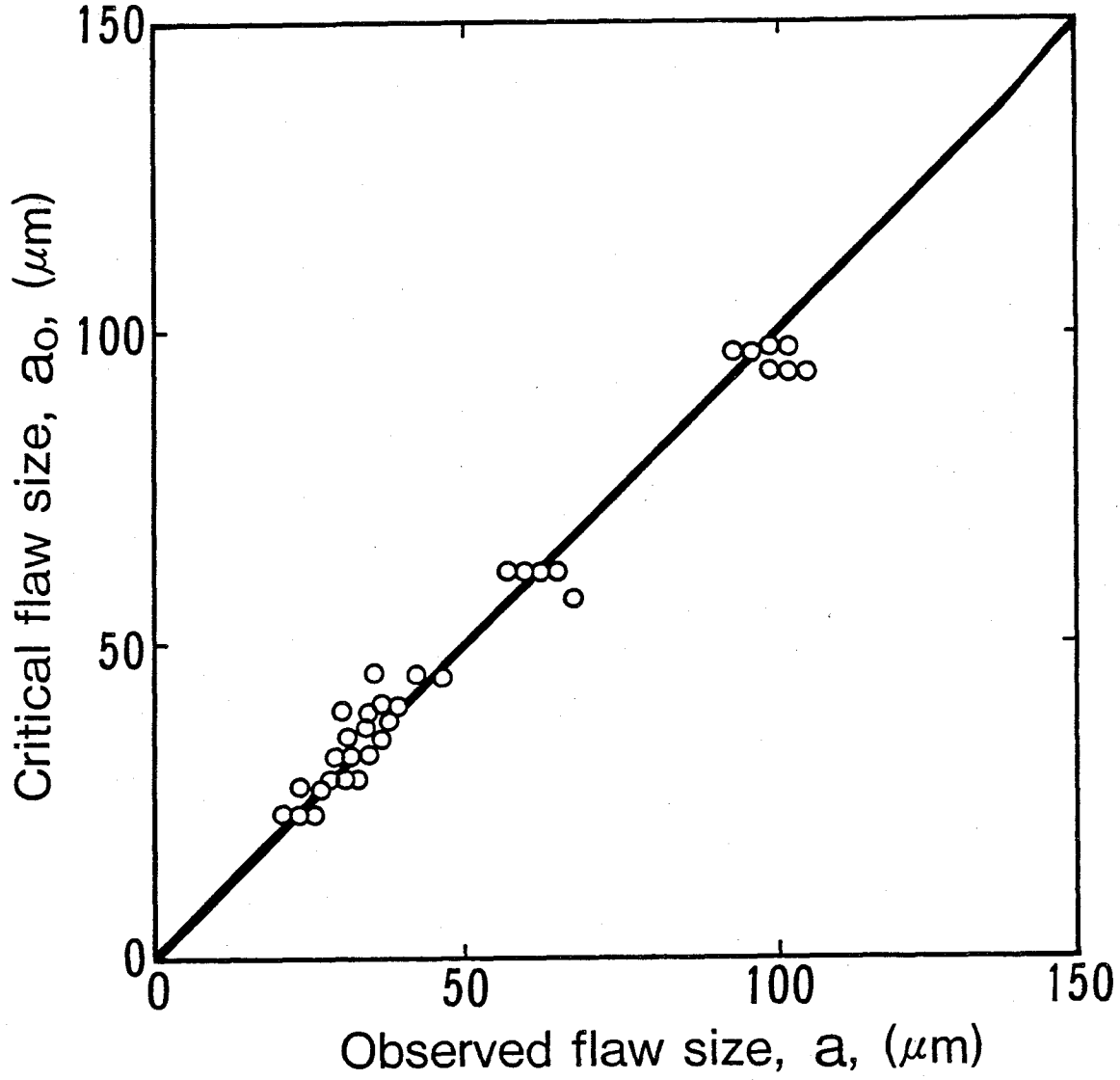


図 3.8　臨界き裂寸法 a_o と試料の潜在き裂（欠陥）寸法 a との比較
（a＝（最大気孔径）＋½（平均結晶粒径）

3.6　破壊強度と微細組織の関係式

UO_2 ペレットの破壊強度は，最大応力を受ける面に存在する大きな気孔と，その気孔が形成する鋭い切欠き先端延長上にある結晶粒界とを潜在き裂とみなすことにより良く説明できることがわかった。そして，気孔率はこれらの潜在き裂周辺の応力状態を決める因子であり，気孔径や結晶粒径と独立に破壊強度に寄与する役割をもつと考えられた。ところで，破壊強度と気孔率，平均結晶粒径，最大気孔径との関係を表わす（3－4），（3－7），（3－9）式は，それぞれ対象とする微細組織パラメータ以外の微細組織パラメータの範囲を限定している。例えば気孔率と破壊強度の関係を与える（3－4）式では，この式が成り立つ気孔径（2.5～3.5 μm），結晶粒径（8～16 μm）の範囲に限定されている。そこで，これらの制

限を取除いた一般式を求めるため（３－４），（３－７），（３－９）式を用いて更にデータを規格化し整理した。その結果導出したものが次式である。

$$\sigma_f = 626 \times \left(PS + \frac{1}{2} GS\right)^{-\frac{1}{2}} \exp(-0.057 \times P) \quad \cdots\cdots\cdots \quad (3-12)$$

（３－１２）式の適用性を調べるため，約７０個のUO_2試料について実測値と計算値の比較を行った。これら試料の気孔率，結晶粒径，気孔径の範囲はそれぞれ気孔率：３～１０％，最大気孔径１２～１００μm，平均結晶粒径：６～９０μmであった。結果を図**3.9**に示す。図中の点線は，実測値に対する±１０％の幅を示したものである。計算値は全て２本の点線で囲まれる領域に入っている。この結果から，UO_2ペレットの破壊強度は（３－１２）式によりほぼ±１０％の精度で予測できることがわかった。

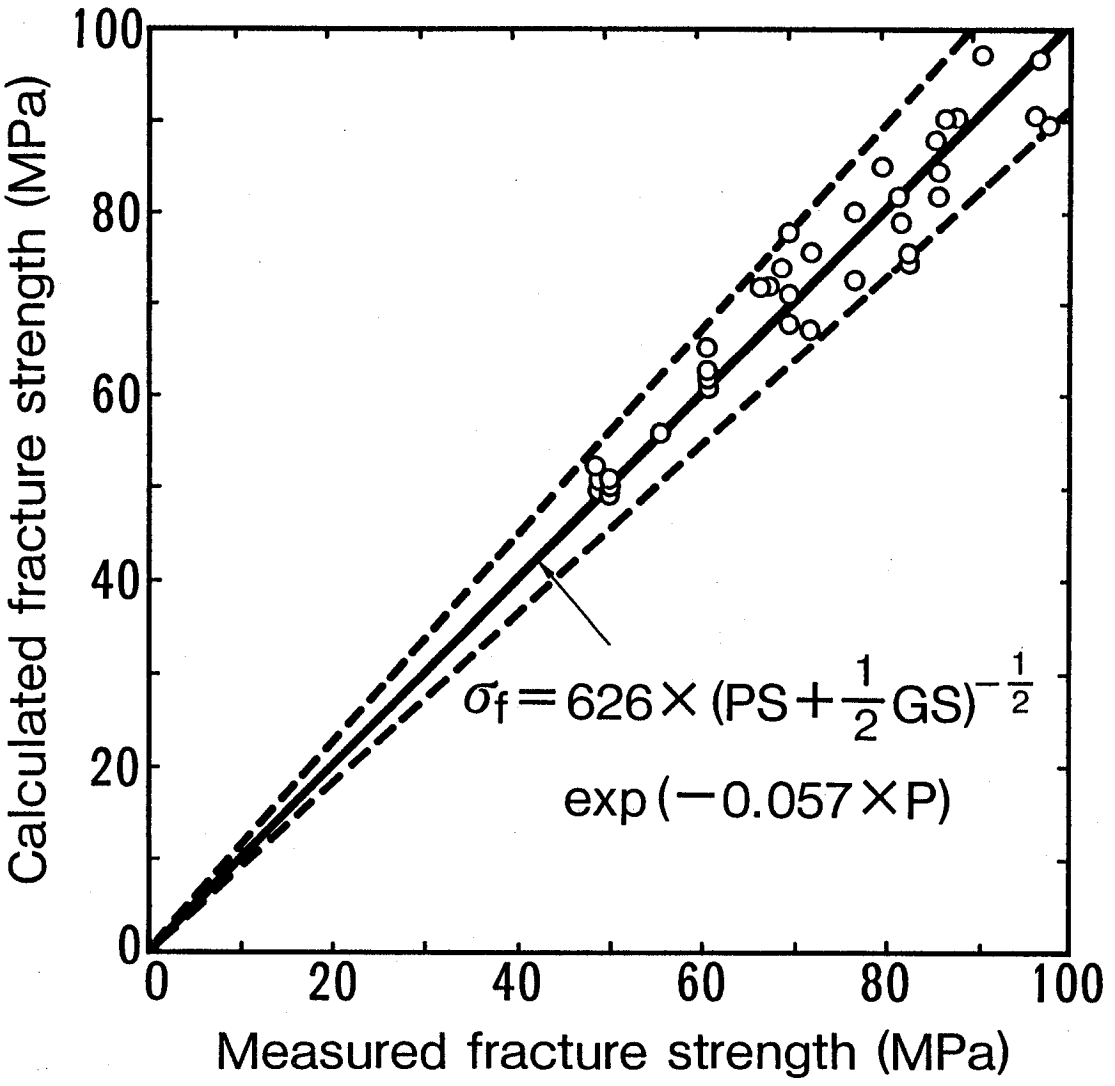


図**3.9**　UO_2ペレットの強度の計算値と実測値の比較

4. 結　言

UO_2 ペレットの破壊強度に及ぼす微細組織の影響を調べた。破壊強度はUO_2 ペレットから切り出した薄い円板状試料を外周で支持し，中央部にリング荷重を加え破壊させる方法で測定した。この場合，試料には最大等価2軸応力が試料裏面のリング荷重に対応した位置に発生する。試料の微細組織パラメータは，気孔率3.6～8.8％，平均結晶粒径7～90 μm，平均気孔径2～14 μm，最大気孔径12～78 μmである。

(1) 気孔率，結晶粒径，気孔径の増加はいずれもUO_2 ペレットの破壊強度を減少させる。破壊強度は気孔率，気孔径に強く影響される。しかし，結晶粒径の影響は小さい。

(2) Griffithの式から求めた臨界き裂寸法（a_0）を，試料の気孔径や結晶粒径と比較した結果，最大気孔径がa_0に最も近いことがわかった。このことから，粗大気孔はペレットの潜在欠陥（き裂）としてUO_2 ペレットの破壊強度を支配するものと考えられる。

(3) 最大気孔は複数の結晶粒に囲まれており，気孔の内側には結晶粒が合体した所で鋭い切欠き状の凹部が形成されていた。ペレットに十分な大きさの引張応力を加えると，これらの切欠き効果により気孔を囲む結晶粒の粒界は容易に分離され，気孔の拡張が生ずるので，最大気孔径にその部分の結晶粒界の長さ（平均結晶粒径の½）を加えたものaを潜在き裂寸法と仮定した。これは実験データをGriffithの理論式で整理して得た臨界き裂寸法a_0と良く一致した。

(4) UO_2 ペレットの破壊強度は，次式で与えられる。

$$\sigma_f = 626\left(PS + \frac{1}{2}GS\right)^{-\frac{1}{2}} \exp\left(-0.057\times P\right)$$

ここで，σ_f は破壊強度（MPa），PSは最大気孔径（μm），GSは平均結晶粒径（μm），Pは気孔率（％）である。

(5) 上式により，気孔率が3～10％，平均結晶粒径が6～90 μm，最大気孔径が12～100 μmの範囲にあるUO_2 ペレットの破壊強度を±10％の精度で予測することができる。

(6) 粗大気孔を減らすことはUO_2ペレットの破壊強度を高くし，また，特にペレット表面の粗大気孔の減少は熱衝撃損傷を低減するものと考えられる。

5. 参考文献

(1) J. T. A., Roberts, Y.Ueda ; J. Amer. Ceram. Soc., 55 [3], 117 (1972)

(2) R. F. Canon,et al.: ibid 54 [2], 105(1971)

(3) N. Igata, K. Domoto, : J. Nucl. Mater., 45, 317(1972/73)

(4) A.G. Evans, R.W. Cavidge, : ibid 33, 249 (1969)

(5) F.P. Knudsen, et al.: J. Amer. Ceram. Soc., 43 [12], 641 (1960)

(6) K.C. Radford, :J. Nucl. Mater., 84, 222 (1979)

(7) A.A. Solomon, : J. Amer. Ceram. Soc., 55 [12], 622 (1972)

(8) M.D. Burdick, H.S. Parker : J. Amer. Ceram. Soc., 39 [5], 181, (1956)

(9) F.P. Knudsen : ibid 42 [8], 376 (1959)

(10) A.G. Evans : "Fractune Mechanics of Ceramics", Vol.6, Heidelberg, 323 (1958)

(11) A.A. Griffith, : Phil. Trans. Roy. Soc., A221 (1920)

(12) H., Matzke. and T. Inoue : J. Nucl. Mater. 91, 205 (1980)

(13) CSNRC : TREE-NUREG-1005, (1976)

(14) S.C. Carniglia : J. Amer. Ceram. Soc. 48, 580 (1965)

第4章　出力上昇過程におけるペレットの割れとリロケーション挙動

1. 緒　　言

本章および第5章，第6章では，UO_2 ペレットの出力上昇に伴う変形挙動の解明とモデル化に関する研究について述べる。

燃料棒のペレットと被覆管との間には，製造時に一定のギャップ(gap)が設けられており，照射中に生じるペレットの半径方向熱膨張やスエリングを吸収する空間を提供している。ペレットは出力上昇の初期段階で熱衝撃的に割れ[(1)]，ペレット内に割れ空間が形成される。このペレット内の新しい空間は，ギャップの減少によって相殺される。出力が更に上昇するとペレットの割れと熱膨張とが共に増加するからギャップはますます減少し，遂にはハードＰＣＩを起こすようになる[(2)]。このようなペレットの割れや，割れたペレットのみかけ直径の増加，すなわちリロケーションに起因する照射中のギャップの変化は，燃料温度，ＦＰガス放出，ＰＣＩなどに大きな影響を与える因子である[(3)〜(5)]。したがって，割れやリロケーション挙動を正確に把握することが燃料棒の正しい性能予測あるいは寿命評価の上で必要になってくる。しかし，照射中のペレットの割れやリロケーション（またはギャップ）は直接測定できないので燃料棒の温度や内圧データ[(6)(7)]，あるいは照射後試験の金相観察データ[(11)(12)]などから間接的に算出せざるを得ないこと，それに割れ挙動は確率的で定量化しにくい現象であることなどもあってリロケーション挙動はまだ十分に解明されていない。例えば，燃料挙動解析コードに組込まれているリロケーションモデル，あるいはギャップモデルの多くは，出力上昇と同時に初期ギャップの一定量が減少するという単純な仮定から作られている[(8)〜(10)]。そして，このギャップ減少量，言いかえればリロケーション量には，照射済燃料棒の残存ギャップの測定データなどから経験的な定数が与えられているだけで，出力上昇時のペレットの挙動についてはほとんど考慮されていない[(11)(12)]。割れたペレットの挙動に言及したリロケーションモデルは，筆者の知る限りでは割れ幅とペレット内の応力とを関連づけたWilliford らの crack compliance モデル以外例をみない[(13)〜(15)]。しかし彼等のモデルも，照射後試験で得られたペレットの横断面金相データに基づき代表的な割れパターンをあらかじめ仮定しているだけで，出力とリロケーションとの関係を厳密に取扱っているわけではない。このように，出力上昇時の割れやリロケーション挙動（あるいはギャップ挙動）は燃料挙動予測の最も不明瞭なものの一つとなっている。

本章での研究は，出力上昇過程におけるUO_2ペレットの割れ挙動とリロケーション挙動を明らかにすることを目的とし，燃料棒の照射実験とペレットの熱変形解析とを行ったものである。照射実験では，照射中のギャップを解析し，これから間接的に出力上昇時のリロケーション挙動に関する情報を得た。ペレットの熱変形解析では出力と割れパターン，割れパターンと見掛直径の増加，などを解析的に調べ，リロケーションをより定量的に把握しようと努めた。これらの知見に基づいて，リロケーションに起因したソフト領域のギャップ変化を記述するギャップ閉塞モデルを作成した。

2. 燃料棒照射実験

出力上昇中の燃料棒ギャップがどのように変化するかについての情報が得られれば，間接的にソフトＰＣＩ領域におけるペレットの割れとリロケーション挙動を知ることができる。このようなことからノールウェー国のハルデン炉（ＨＢＷＲ）において計装付燃料棒の照射実験を行った。

2.1 供試燃料棒および照射実験

供試燃料棒は，密度９５％ＴＤ（理論密度比）７％濃縮UO_2ペレットを内径約１２.４㎜の応力除去焼鈍したジルカロイ－２被覆管に装塡した，長さ約７００㎜の短尺燃料棒３本（Ａ１，Ａ２，Ａ３）である。表**4.1**にＡ１，Ａ２，Ａ３燃料棒の主な設計仕様を示す。燃料棒の基本的な設計仕様はＢＷＲ７×７改良型燃料仕様と同じであるが，ペレットの直径を増減しギャップをそれぞれ２００，３００，４００μｍとしている。燃料棒内には常温で１気圧のＨｅガスが封入されている。これらの燃料棒を他の同一寸法の短尺燃料棒５本とともに１体の集合体に組み，これをＨＢＷＲ（ハルデン重水沸騰型原子炉）に装荷し照射した。図**4.1**に燃料集合体の構造を示す。本実験に用いたＡ１，Ａ２，Ａ３燃料棒は上部クラスタに位置しており，各々には燃料棒伸び検出器の他に燃料中心温度測定用の熱電対が組込まれている。燃料集合体には燃料棒の出力と冷却水温度計測のため，２個のタービン流量計，２組の熱電対，径方向，軸方向に各々４本の中性子束検出器が装備されている。１個の軸方向中性子束検出器取付位置は，Ａ１～Ａ３燃料棒の熱電対先端位置に対応している。これは，ギャップ解析を行う軸方向位置が燃料中心温度測定位置（熱電対先端）であることから，その位置での出力を正確に得るためである。

表4.1　HBWR照射燃料棒の主な設計仕様

Item ＼ Rod	A1	A2	A3
Initial gap (μm)	400	300	200
UO_2 pellet			
Diameter (mm)	12.02	12.12	12.22
Length (mm)		12.70	
Density (%TD)		95	
Pellet Form		Chamfered	
Enrichment (%)		7.0	
Zr-2 Cladding			
Outer dia. (mm)		14.30	
Thickness (mm)		0.98	
Heat Treatment		Full Anneal	
Fuel rod			
Filler gas		He (1atm)	
Fuel length (mm)		474	
Rod length (mm)		500	
Instrumentation			
Fuel centerline (T/C)		Yes	
Elongation detector		Yes	

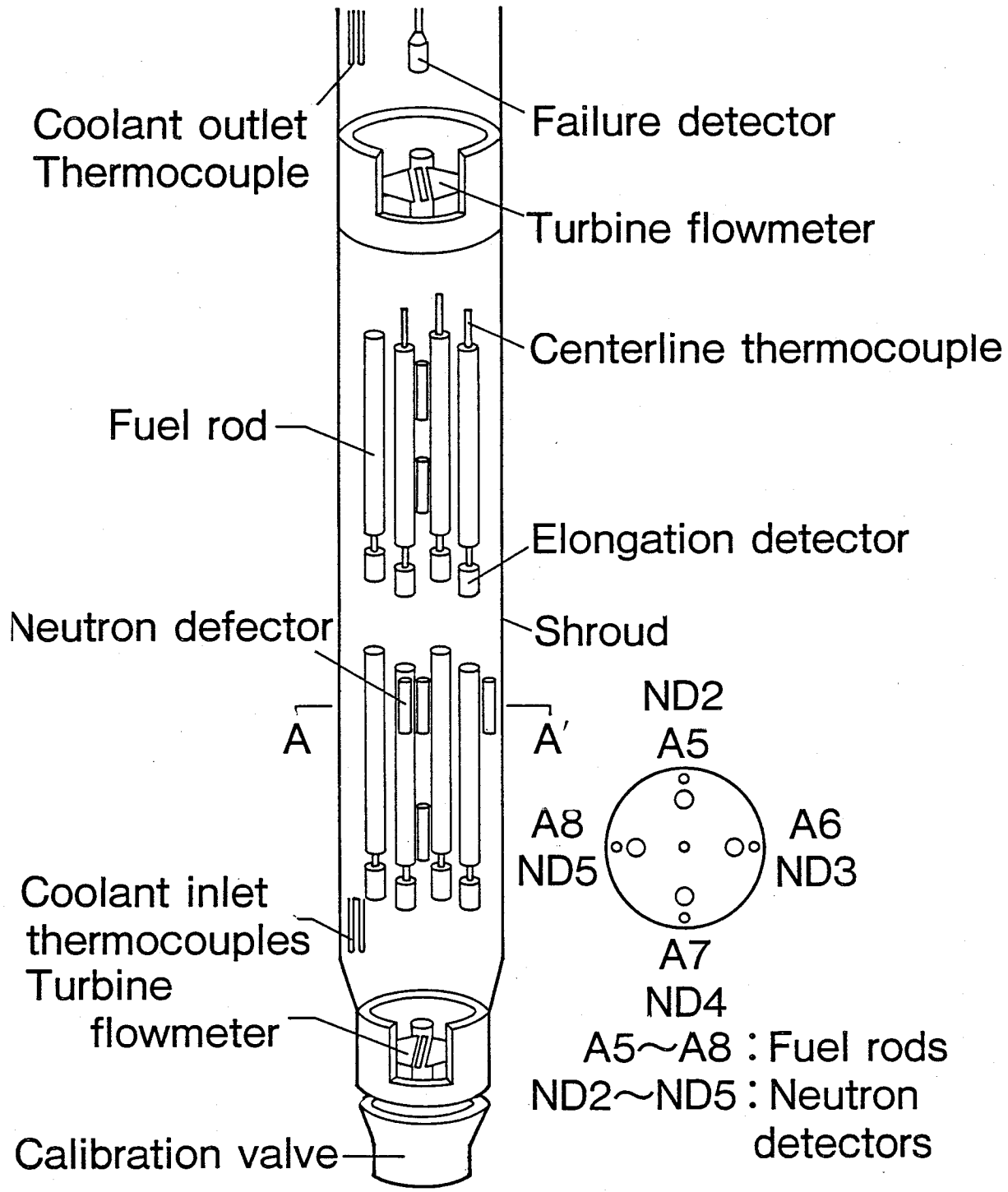


図 4.1　ＨＢＷＲ照射実験用計装付燃料集合体

なお，燃料棒の軸方向出力は次のように求める。まず，軸方向の中性子束分布を次式で近似する。

$$FZ(z)=\sum_{n=1}^{4} Cn \sin\left(\frac{nz}{L}\pi\right) \qquad \cdots\cdots (4-1)$$

ここで，FZ(z)： 高さzでの中性子束

L ： 燃料棒全長

n ： 中性子検出器の番号

C_n ： 定　数

である。

軸方向4ケ所に配置された中性子検出器の位置zとFZ(z)の値から定数C_nが得られる。このようにして求めた軸方向中性子束分布が出力分布に等しいと仮定すると，熱電対位置での燃料棒4本の合計出力Q_Tが次式で与えられる。

$$Q_T = Q_0 \cdot \frac{FZ(T)}{\int_0^L FZ(z)\,dz} \qquad \cdots\cdots (4-2)$$

ここで，Q_0 ：燃料集合体全出力

FZ(T) ：熱電対位置での中性子束

である。

次に4個の径方向中性子束検出器から得られる中性子束分布が燃料集合体内の径方向出力分布を現わしていると仮定することにより，燃料棒の熱電対位置の出力Qは次式から得られる。

$$Q = Q_T \cdot \frac{FX_i}{\sum_{i=1}^{4} FX_i} \qquad \cdots\cdots (4-3)$$

ここで，FX_i：半径方向位置iの中性子束

である。

燃料集合体は，ＨＢＷＲの通常の出力履歴に沿って約3年間照射された。その期間の燃料棒の平均出力上昇速度は，約2Ｗ／㎝／ｍｉｎ であった。また，最高出力

および最大到達燃焼度はそれぞれ，約３５０Ｗ／cm，および約１７,０００MWD／Tであった。照射終了後，供試燃料棒はノールウェー国のシェラー研究所においてＦＰガス測定，金相試験など一連の照射後試験が実施された。

2.2　照射中ギャップの解析方法

照射中の燃料棒のギャップは，ペレットの割れやリロケーションと同様に直接測定できないが，燃料棒の出力，中心温度，冷却水温度などの炉内計測データが得られれば以下のような方法で間接的にギャップを知ることができる。燃料中心温度，冷却水温度，燃料棒出力からペレット表面温度（T_1），被覆管内面温度（T_2），表面熱流束（Q）を算出すれば，ペレット－被覆管間隙の熱伝達係数（h，以下，ギャップコンダクタンスと言う）は，$h=Q/(T_1-T_2)$で与えられる。一方，hはギャップの関数であるから，ギャップコンダクタンスモデルを設定すれば，既知であるhの値から逆にギャップを求めることができる。[16][17] ここでは，燃料設計などで広く用いられているRoss and Staute のギャップコンダクタンスモデル[18]を採用した。すなわち，照射中のギャップ（G）は，次式で与えられる。

$$G=\frac{K}{h}-\{2.75(R_1+R_2)+(g_1+g_2)\} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-4)$$

ここで，K　　：ギャップに存在する気体の熱伝導率（W／cm℃）

R_1，R_2　：ペレットおよび被覆管の表面粗さ（cm）

(g_1+g_2)：ガス層による温度ジャンプ距離（cm）

である。ここでKの値としては，燃焼のごく初期では燃料棒製造時に充塡されるヘリウム（H_e）ガスの熱伝導率をそのまま用いることができるが，燃焼が進行した後の解析ではＦＰガスの影響を考慮する必要がある。本解析では，照射後試験で測定されたＦＰガス量を基に，ＦＰガスが燃焼度に対して直線的に増加したと仮定してH_eの熱伝導率を修正した。また，ペレットの焼しまりによるギャップへの影響をMarlowe の焼しまりモデル[19][20]で修正した。

3.　ペレットの変形解析

燃料挙動解析コード“ＦＥＡＳＴ”を用いてUO_2ペレットの変形解析を行い，以下の

関係を調べた。

(1) 出力上昇に伴ってペレットがどのように割れるか，すなわち出力と割れパターンとの関係，

(2) 割れによってペレットのみかけの直径がどの程度増大するか，すなわち割れパターンとリロケーションとの関係。

本節では解析方法と解析条件について述べる。

3.1 解析方法

FEASTコードは，複数個の連続体の接触問題と非接触問題を取扱う二次元有限要素法（3接点要素）プログラムに，ペレットおよび被覆管の物性値とそれらの特性を記述する半経験的モデルとを結合したものである。[21] 解析コードの特徴を表4.2に示す。上記(1)に関する出力と割れパターン解析は，ペレット軸方向中央部の横断面で行った。

表4.2 プログラムの主な特徴

解析対象	燃料棒の変形挙動
解析手法	軸対象有限要素法
規模	三角形要素で800要素
取扱える現象	接触問題，熱弾塑性クリープ変形 ペレット割れ，ホットプレス
内蔵する物性値	弾性定数，線膨張係数，クリープ速度 応力ーひずみ曲線，照射成長速度

割れパターン解析に用いた有限要素モデルの一例を図4.2に示す。割れパターン解析モデルは，基本的にはCYGROコード[22]で採用されているモデルと同様である。本来ペレットの割れは三次元的に発生するものであるが，このモデルでは要素内の引張応力がUO_2ペレットの破壊強度を越えると割れが発生し，応力が圧縮側に変わると直ちに割れがゆ着すると仮定している。割れた部分の要素は下記のように応

力－ひずみマトリックスを変換することによって行う。

割れのない要素の応力－ひずみマトリックス；

$$\{\varepsilon\}=\frac{1}{E}\begin{bmatrix} 1 & -\nu & -\nu & 0 \\ -\nu & 1 & -\nu & 0 \\ -\nu & -\nu & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2(1+\nu) \end{bmatrix}\{\sigma\} \quad \cdots\cdots \quad (4-5)$$

割れを生じた要素の応力－ひずみマトリックス；

$$\{\varepsilon\}=\frac{1}{E}\begin{bmatrix} C_r & -\nu & -\nu & 0 \\ -\nu & C_\theta & -\nu & 0 \\ -\nu & -\nu & C_z & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2C_{rz}(1+z) \end{bmatrix}\{\sigma\} \quad \cdots\cdots \quad (4-6)$$

ここで，C_r，C_θ，C_z，C_{rz}：任意に指定された定数

である。

（４－５），（４－６）式からわかるように，この割れモデルはある部分の応力σがUO_2の破壊応力σ_fに対して$\sigma \geq \sigma_f$になると，その部分のひずみεを$\varepsilon = C\cdot(\sigma/E)$のように上述の定数Cを用いて大幅に増大させることによって割れを表現するものである。なお割れた後のその部分の応力は，$\sigma=\sigma_f$としている。

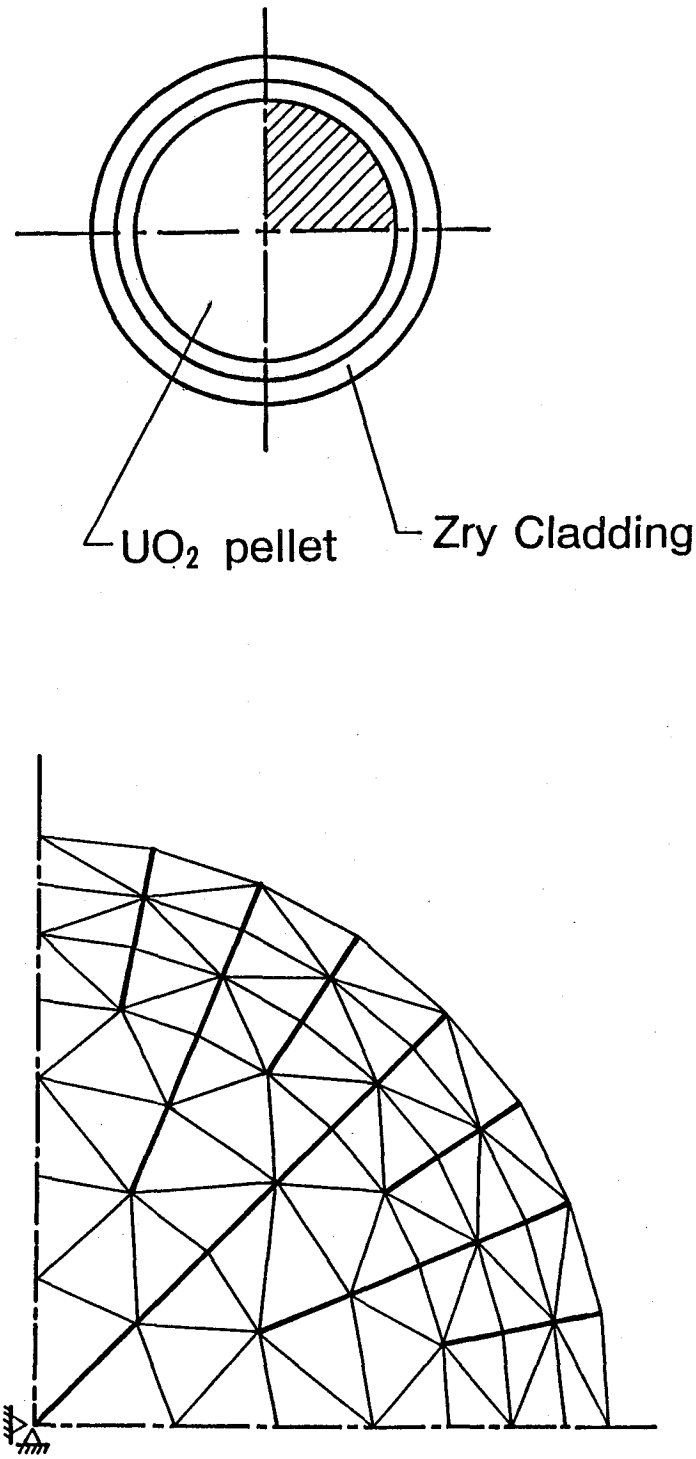


図 4.2　割れパターン解析有限要素モデルの一例

上記(2)に関する割れによるペレットの直径増加，すなわちリロケーションの量はペレットの中央部横断面解析で得られた割れ片の半径方向せり出し量に，軸方向のそり返り変形解析で得られた割れペレットの端面部での変形量を加えることによって求めた。すなわち，この量は割れたペレットの解析上の最大直径を与えることになる。割れたペレットの軸方向そり返り変形は，ペレット片を1個の梁とみなす梁モデル[23]によって求めた。すなわち，座標を図4.3のように設定することにより半径方向温度分布に起因する割れたペレットのそり返り変形量は次式で与えられる。

$$R(Z)=R_0+\frac{1}{2}\frac{Z^2}{R_0}\left[\frac{1+\frac{1}{2}\sigma(T_c+T_s)}{\frac{1}{10}\alpha(T_c-T_s)}\left\{\frac{3(\sin\theta+\theta)}{16\sin\frac{\theta}{2}}-\frac{4}{3}\frac{\sin\frac{\theta}{2}}{\theta}\right\}\right]^{-1}+\frac{4}{3}\frac{\sin\frac{\theta}{2}}{\theta}-1 \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-7)$$

但し，T_c，T_s：ペレットの中心，表面温度

である。

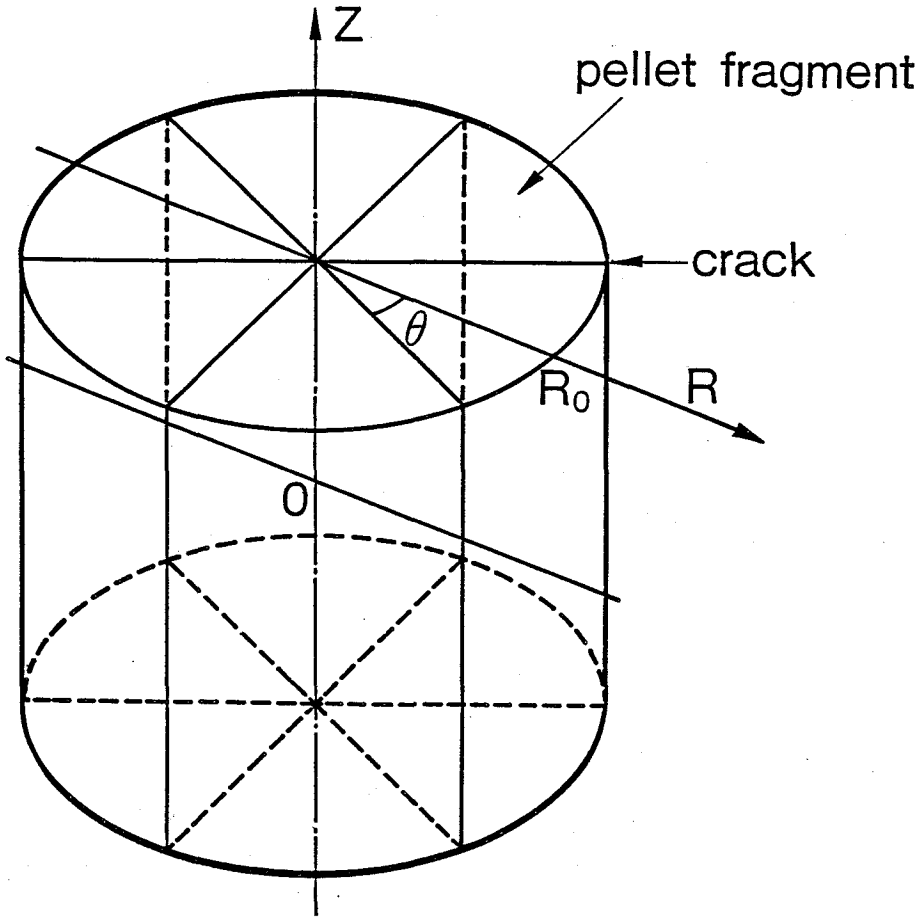


図4.3　割れたペレット片の熱変形計算モデル

4.3　解析条件

解析はＢＷＲ７×７型燃料棒のUO_2ペレットを対象とした。出力をステップ状に少しづつ上昇させ，ペレットの割れが発生するごとにペレットの有限要素モデルを新しい割れパターンどおりに組替えた後，次の出力ステップへ解析を進めた。図**4.4**および図**4.5**に，それぞれ８片，１２片に割れた場合のペレット有限要素モデルを示す。このような方法で最高４００Ｗ／cmの出力まで解析した。なお，同一出力レベルで２種類以上の割れパターンが取り得る場合には代表的なパターンを適宜選択した。

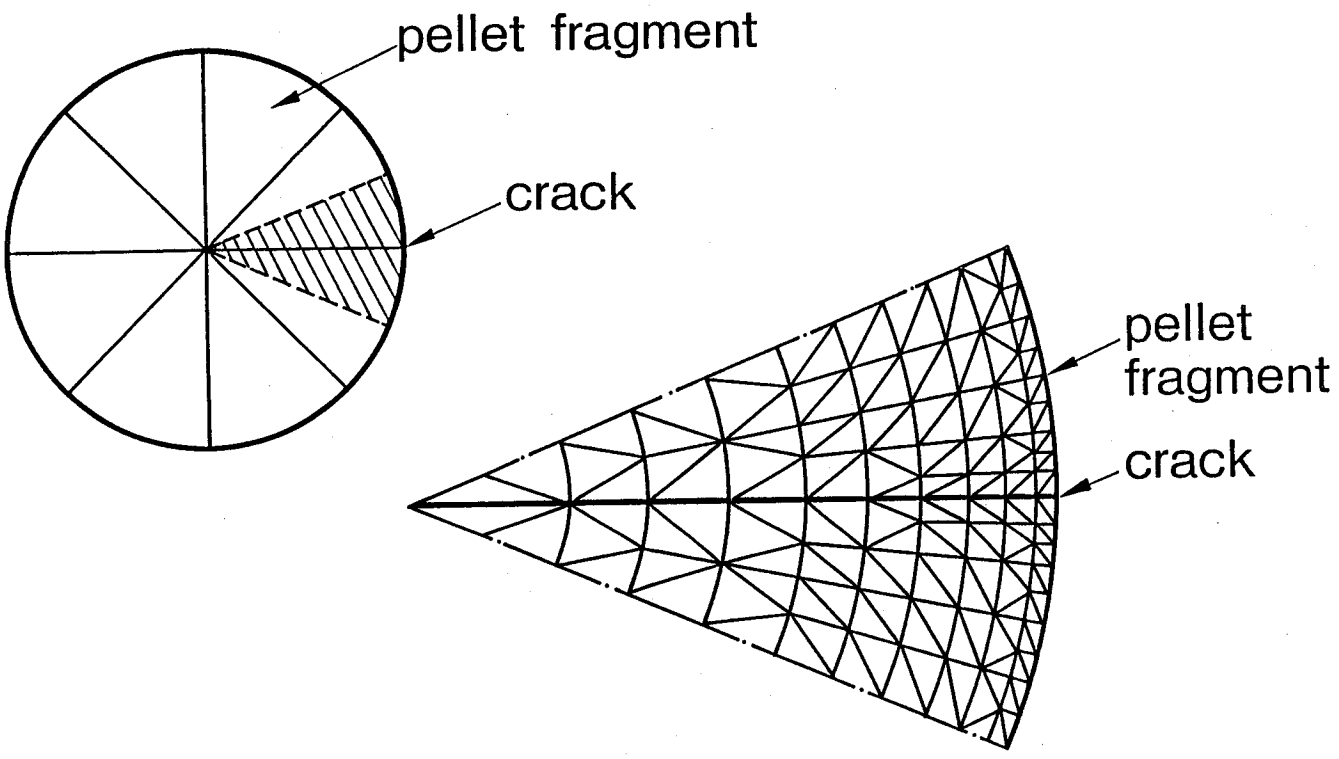


図 **4.4**　割れパターン解析の有限要素モデル
（８片に割れたペレットの場合）

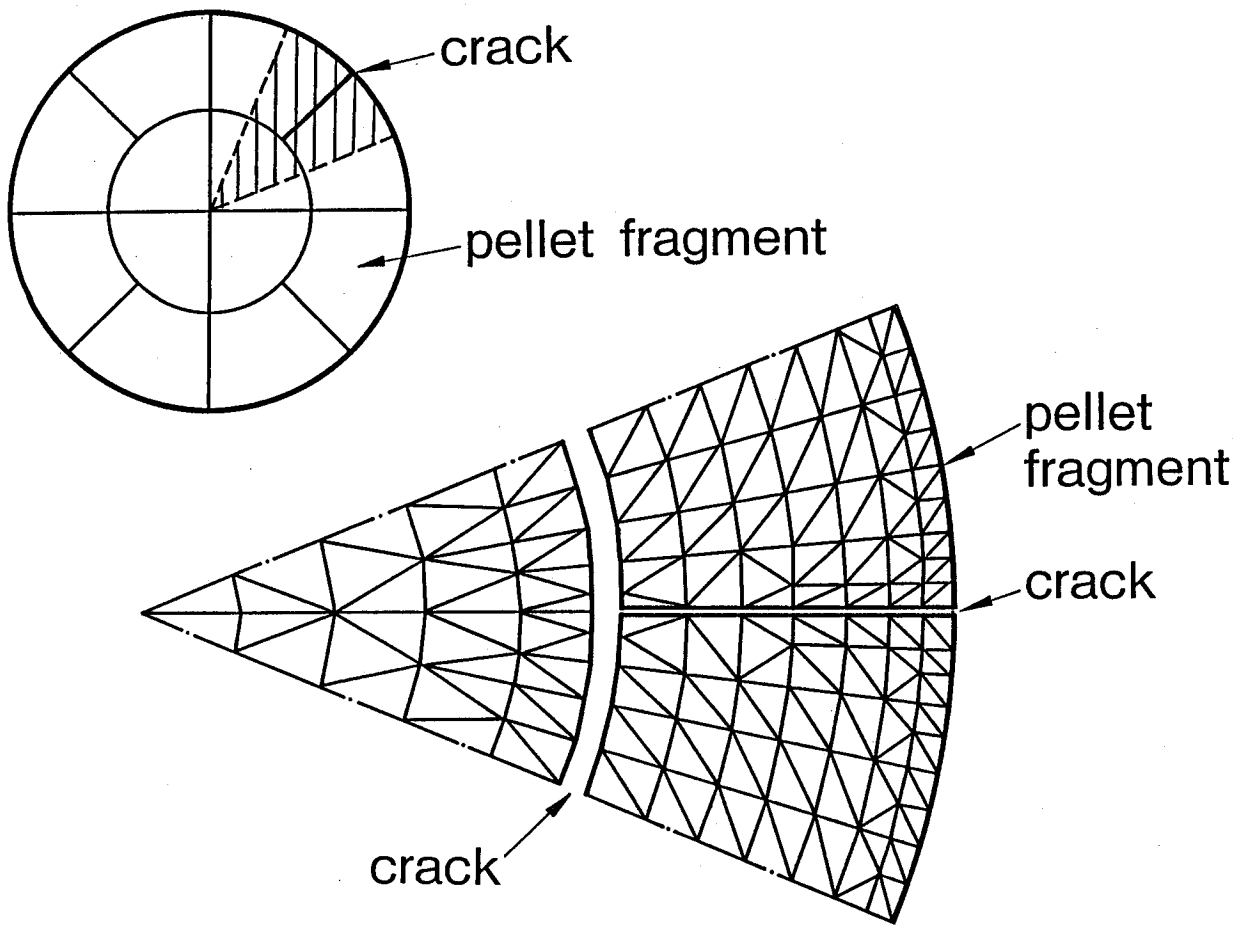


図 4.5　割れパターン解析の有限要素モデル
（１２片に割れたペレットの場合）

UO_2 焼結体の破壊強度は，脆性－延性遷移温度以下では温度に対してほぼ一定である。[24] この遷移温度は１２００～１４００℃の範囲にある。一方，本解析のペレット最高温度は約１２００℃である。したがって，クリープを無視すれば弾性解析でペレット割れをかなり正確に予測できると考えられる。UO_2 の脆性領域の破壊強度は，微細組織に影響されるが大体８０～１５０ＭＰａである。[24～26] 一般に二次元平面解析で得られる応力は三次元解析に比べ低くなる。そこで，破壊強度の値として，低めの値（８０ＭＰａ）を採用した。また，上記の破壊強度は単軸引張強さであるから，二軸応力下での破壊条件を設定する必要がある。鋭いき裂を内在する脆性材が二軸応力下で破壊する場合の破壊条件は，Griffithの理論から次のように与えられる。[27]

$$
\left.
\begin{array}{l}
-3 \leq \sigma_2 \leq 1 \text{ のとき} \\
\qquad \sigma_1 = \sigma_2 \\
\sigma_2 / \sigma_2 < -3 \text{ のとき} \\
\qquad (\sigma_1 - \sigma_2)^2 + 8\sigma_f(\sigma_1 + \sigma_2) = 0
\end{array}
\right\} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-8)
$$

ここで，σ_f　　：破壊強度

σ_1，σ_2：主応力（$\sigma_1 \geq \sigma_2$）

である。

図**4.6**に，（４－８）式の破壊条件を示す。また，解析対象としたUO_2ペレットの仕様出力，温度条件および主な物性値を表**4.3**に示す。

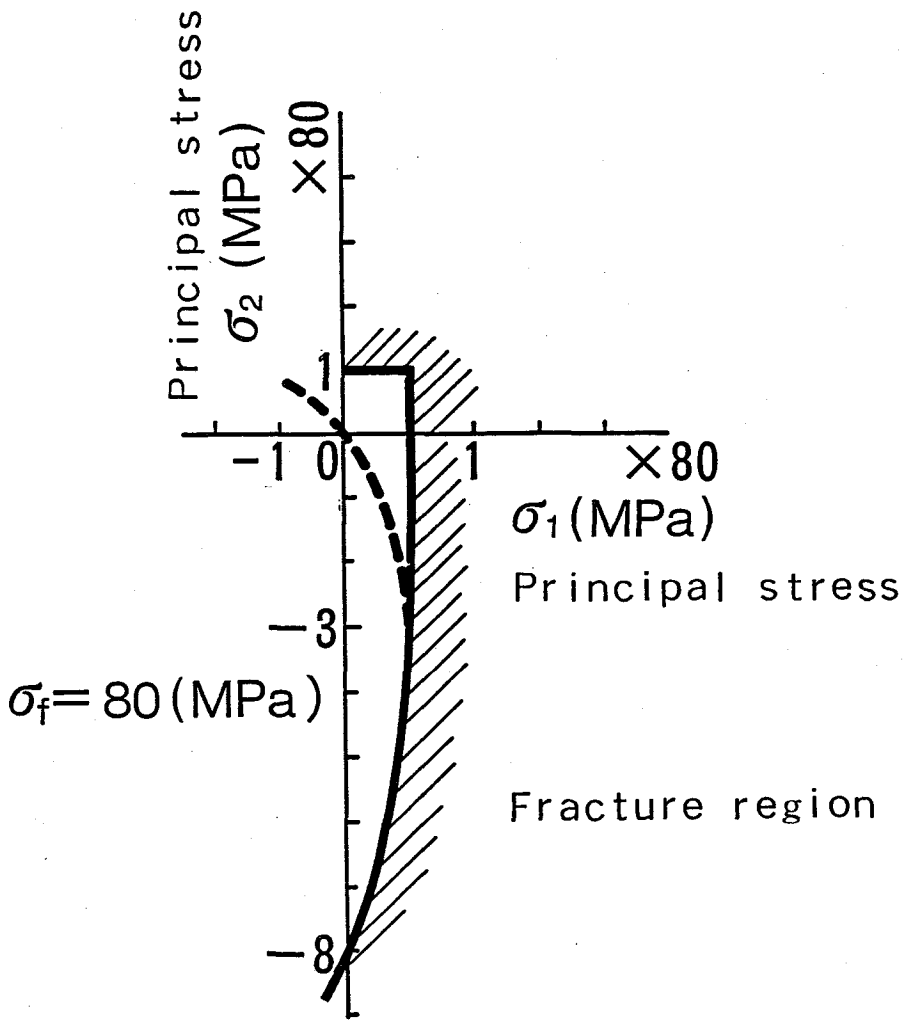


図**4.6**　２軸応力下のUO_2破壊条件

表4.3　ペレット変形解析条件

Pellet spec.		
Diameter	(mm)	12.4
Length	(mm)	21.0
Density	(%TD)	95
End form		
Power & temp. cond.		
Max. power	(W/cm)	400
Max. center temp.	(℃)	1250
UO_2 properties		
Fracture strength	(MPa)	80
Poisson's ratio		0.32
Young's modulus	(MPa)	$E = 2.26\times10^{5}(1-1.131\times10^{-4}T)(1-2.62P)$
Thermal expansion	($℃^{-1}$)	$\alpha = -4.972\times10^{-4}+7.107\times10^{-6}T+2.581\times10^{-9}T^{2}+1.140\times10^{-13}T^{3}$

(但し，P：Fractional porosity，T：Temperature (℃))

4. 結果および検討

4.1 出力上昇時のギャップ変化

ＨＢＷＲで照射した燃料棒，Ａ１（初期ギャップ；４００μｍ），Ａ２（同；３００μｍ），Ａ３（同；２００μｍ）の第１回出力上昇時におけるギャップの変化を，それぞれ図**4.7**，図**4.8**，図**4.9**に示す。出力に対するギャップの変化は，いずれの燃料棒においても類似した傾向を示している。すなわち，ギャップの変化は３段階の減少に特徴づけられる。第１段階の緩い減少，第２段階の急激な減少，第３段階の指数関数的減少である。第１段階の減少は，中実円柱ペレットと被覆管の熱膨張差から計算される減少率と一致することから，この部分はペレットが中実円柱形状を保ったまま熱膨張する領域である。第２段階の急激な減少が起こる出力は，初期ギャップの大きさに依らずいずれも約６０Ｗ／cmである。この出力は，図**1.3**で示したソフトＰＣＩ開始点，Ｂに良く対応している。このことから２００～４００μｍのギャップ範囲では，ペレットはギャップに依存せず約６０Ｗ／cmで割れ，同時に急激なリロケーションが起こり，その結果ペレット片の一部が局所的に被覆管とソフトＰＣＩを起こし始めるものと推定される。以下，この割れと同時

に発生するリロケーションをペレットジャンプ（pellet jump）と呼ぶことにする。ペレットジャンプによるギャップの減少量，すなわちペレットジャンプ量は，図 **4.7**～図 **4.9** から，ギャップにほとんど依存せず約５０μｍであることがわかる。第３段階のソフトＰＣＩ領域におけるギャップの指数関数的減少挙動については 4.4 項で詳しく検討する。

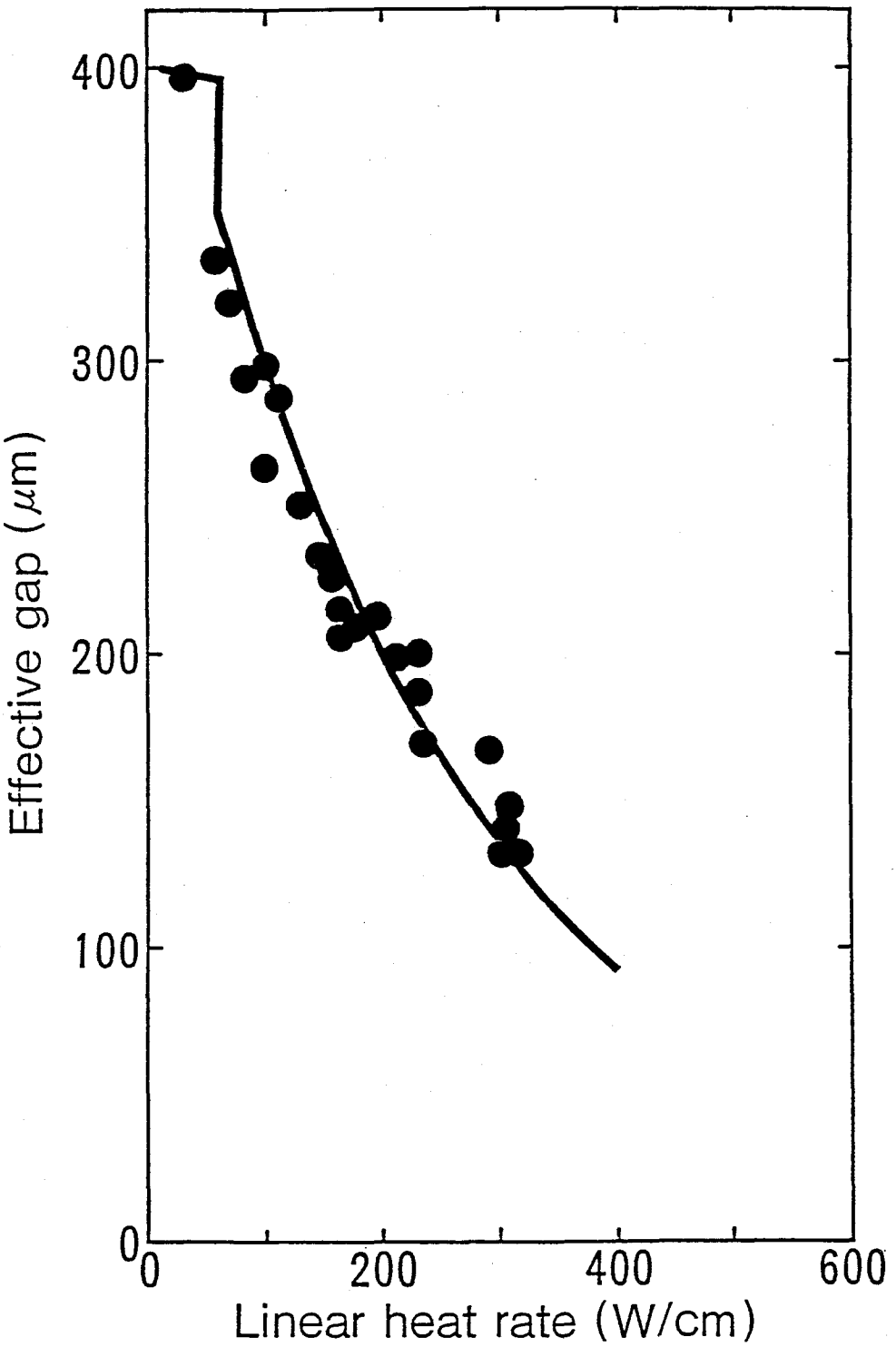


図 **4.7**　出力上昇時のギャップ変化（Ａ１燃料棒，初期ギャップ：４００μｍ）

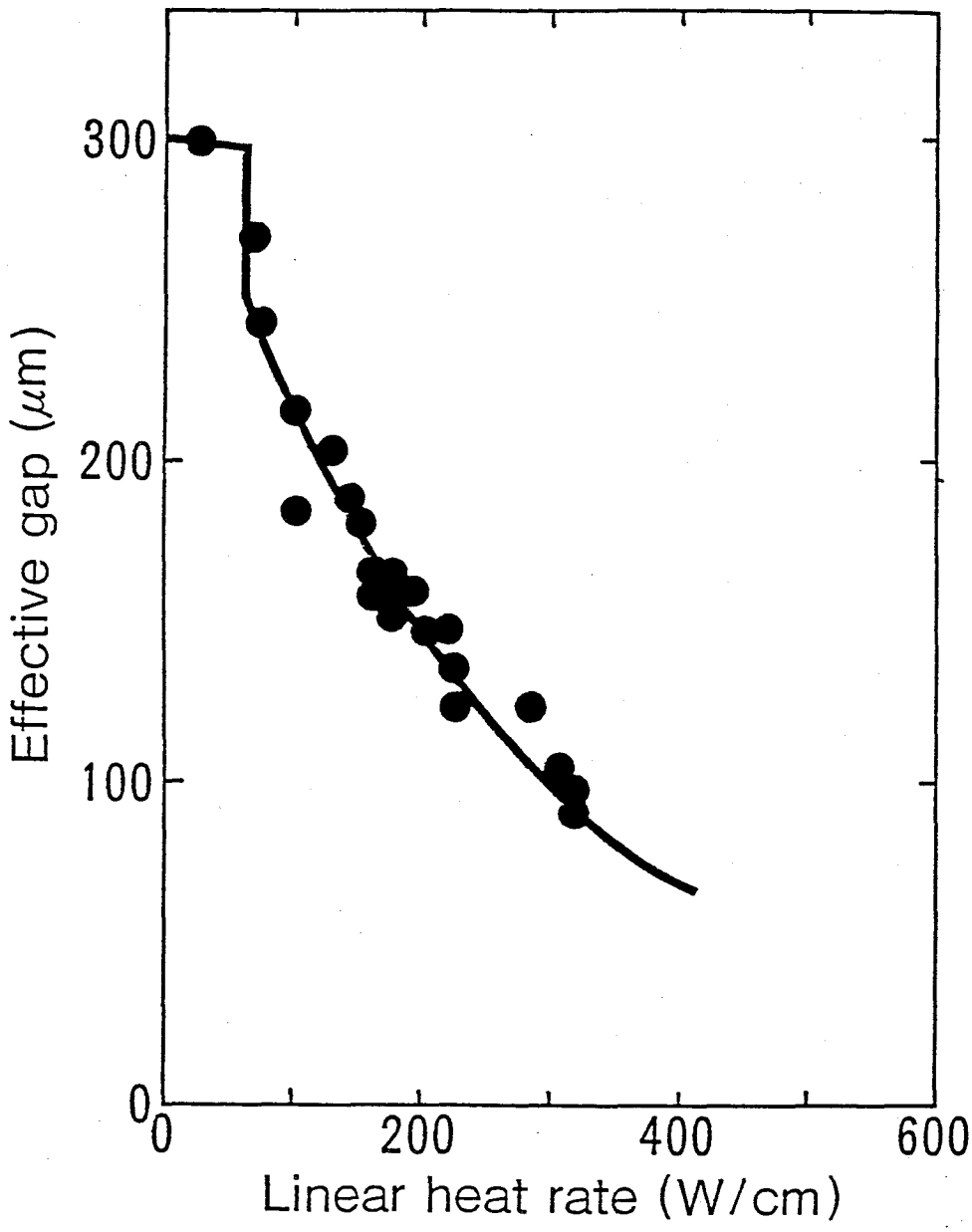


図 4.8　出力上昇時のギャップ変化（Ａ２燃料棒，初期ギャップ：３００μm）

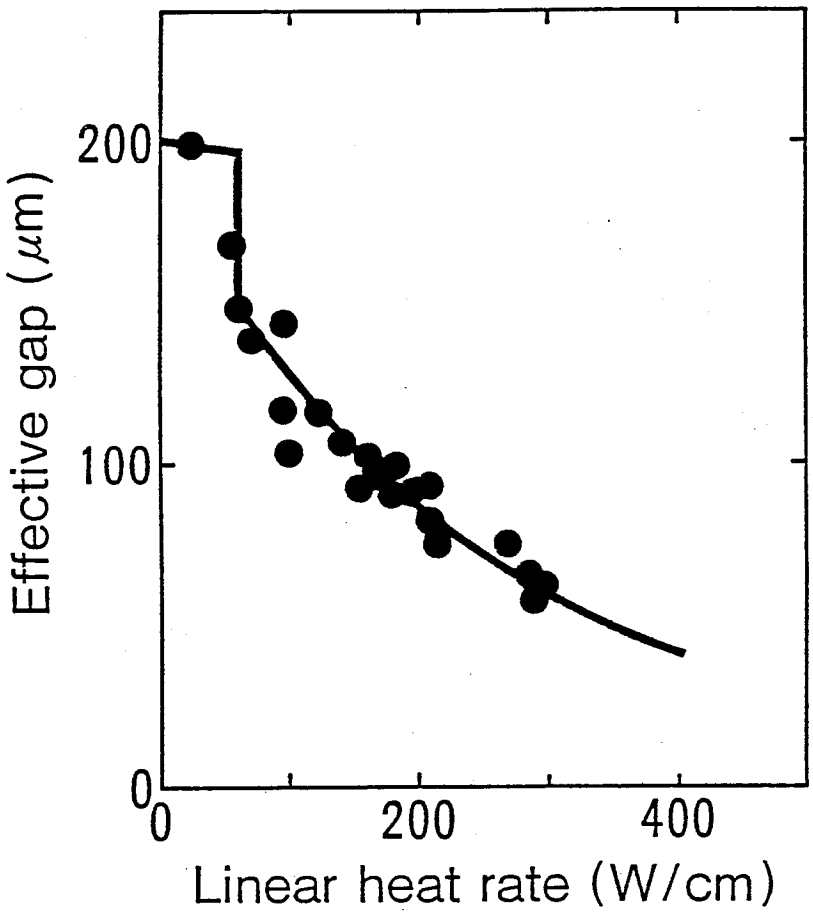


図 4.9　出力上昇時のギャップ変化
（Ａ３燃料棒，初期ギャップ：２００μｍ）

4.2　ペレットの割れパターン

図4.10は，出力上昇に伴うペレット内の周方向応力（σ_θ）の半径方向分布の変化を，ＦＥＡＳＴコードによって解析した結果の一例である。対象とした燃料棒は，前項の照射燃料棒と同じ７×７型燃料棒である。出力５０Ｗ／cmにおけるσ_θの半径方向分布は，中心部（圧縮応力）から外周部（引張応力）かけてなだらかな連続分布である。しかし，１００Ｗ／cm以上の出力では中心から約¾～⅓のところで分布曲線に屈曲点が認められ，その点より外周領域でσ_θが一定になる。これは3.1項で述べたように，この領域で割れが発生するので，$\sigma_\theta = \sigma_f$（破壊応力）としているためである。この割れ発生出力は，ＨＢＷＲ照射燃料棒で観察されたペレットの割れ発生出力と大体一致している。図中の点線は，割れが発生しないと仮定した場合の４００Ｗ／cmにおけるσ_θの分布を示したものであるが外周部でσ_fをはるかに超える周方向応力になってしまうことがわかる。図4.11，図4.12に，割れパターン解析の一例としてペレット横断面の応力分布を示す。実線が引張応力，破線が圧縮応力である。

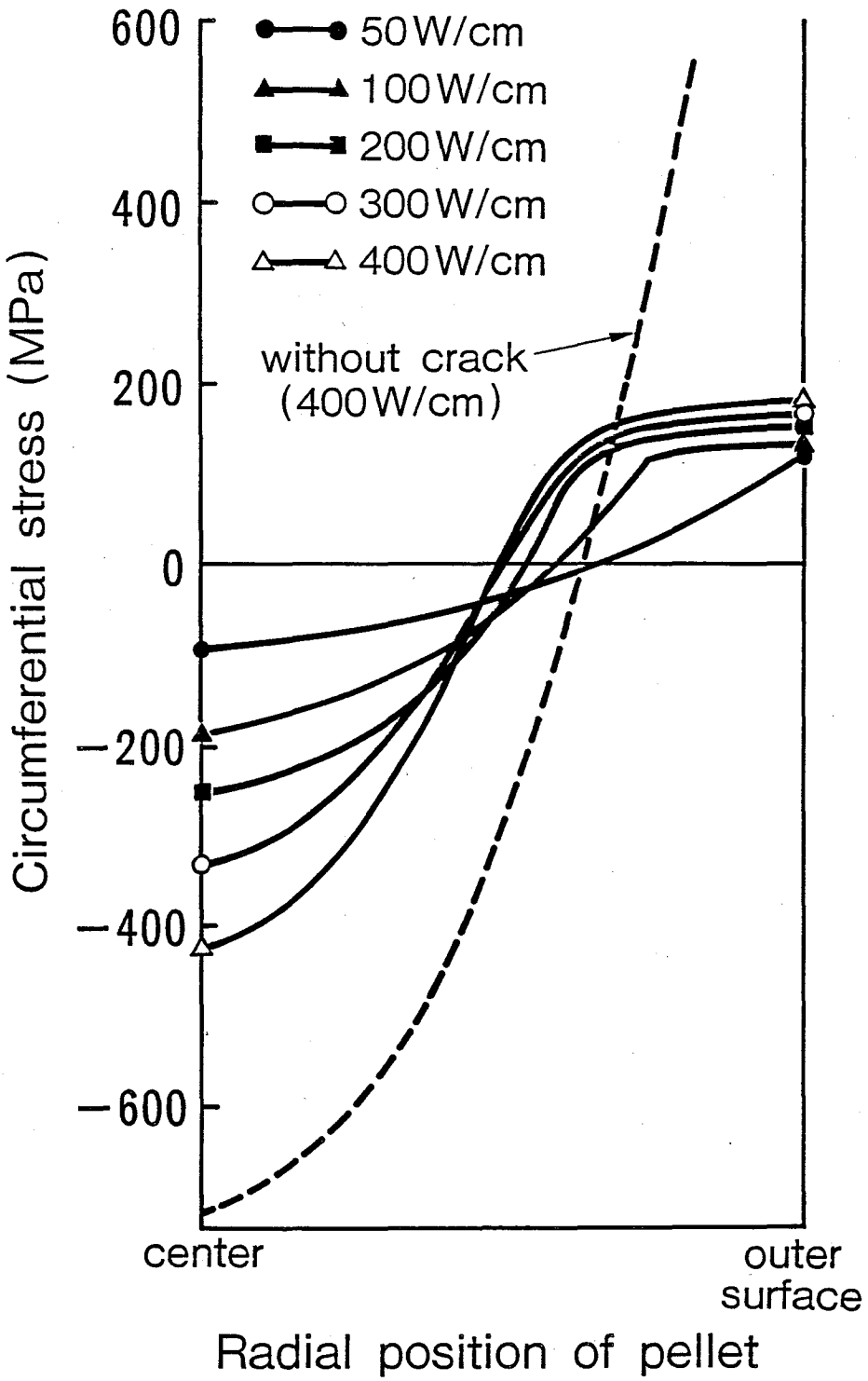


図 4.1 0　ペレットの周方向応力分布

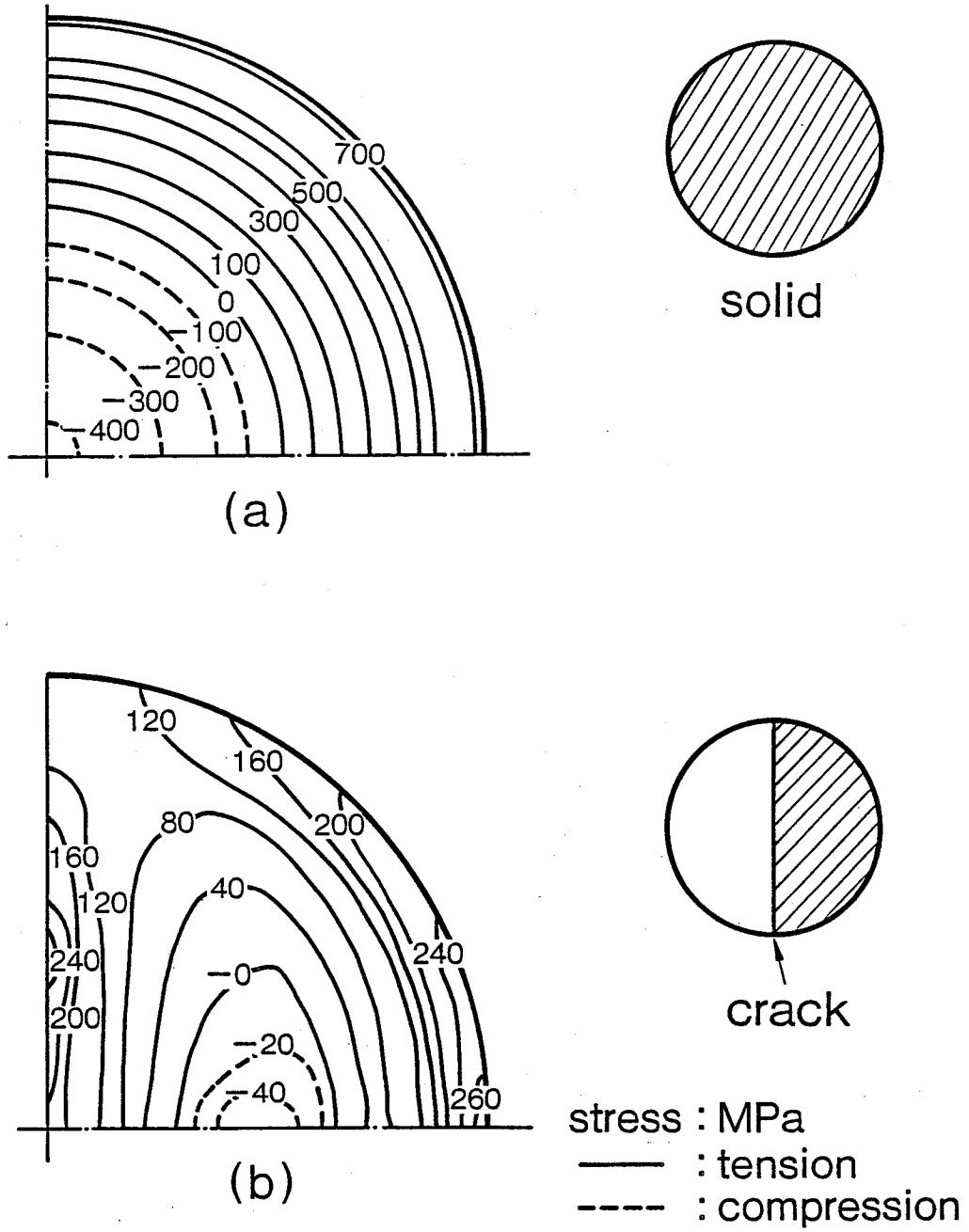


図 4.1 1　ペレット横断面内の応力分布(1)

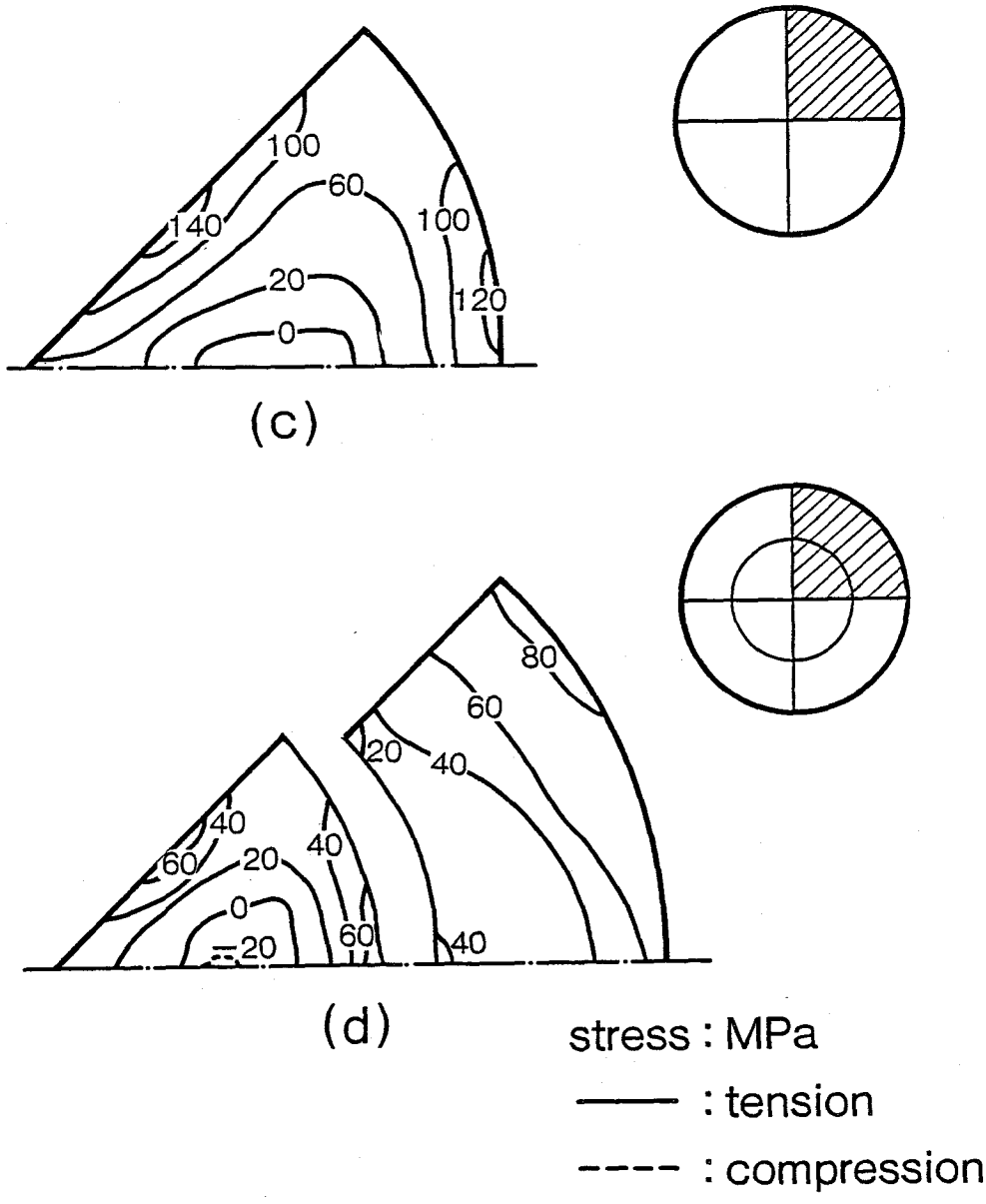


図 4.1 2　ペレット横断面内の応力分布(2)

実際の解析は第2節で述べたように，割れが発生するごとに割れパターンを組替えて順次出力上昇させる方式で行ったが，ここでは割れパターンの変化を簡単に説明するため，全ての割れパターンについて４００W／cmにおける応力分布を示した。これらの図によれば割れの進展は次のようになる。前述したようにペレットが中実円柱体（剛体）のままではペレット外周部の引張応力（σ）は，UO_2 破壊強度（σ_f）の１０倍以上になる（図**4.11**(a)）。したがって，まずペレット側面に存在した気孔や微小クラックを初期クラックとして破壊が開始されペレットは２分割される（同，(b)）。しかし，この状態でもペレット外周部のσはσ_fに比べまだ3倍以上高いため，ペレットは更に半分に割れて4分割となる（図**4.12**(c)）。4分割されたペレット片では，破面側中間部と外周部でいずれも$\sigma > \sigma_f$となっている。したがって，割れがこれらの一方から，または同時に発生する可能性がある。どちらになるかは初期クラックに関連した表面状態に依存するが，破面側中間部のσが外周部に比べてやや高いこと，破面側の方が割れを誘起しやすい表面状態であることを考慮して，まず中間部から割れが発生するとした（同，(d)）。このように8分割されたペレット片の中で，外側の破片の外周部では依然として$\sigma > \sigma_f$となっているためこの部分に割れが発生する。また内側の破片の外周部には，σ_f以下であるがかなり高いσとなる領域があり，前述と同様な理由で最終的にはこの部分からも割れが発生すると予想される。以上のような出力と割れパターンの関係をまとめて図**4.13**に示す。

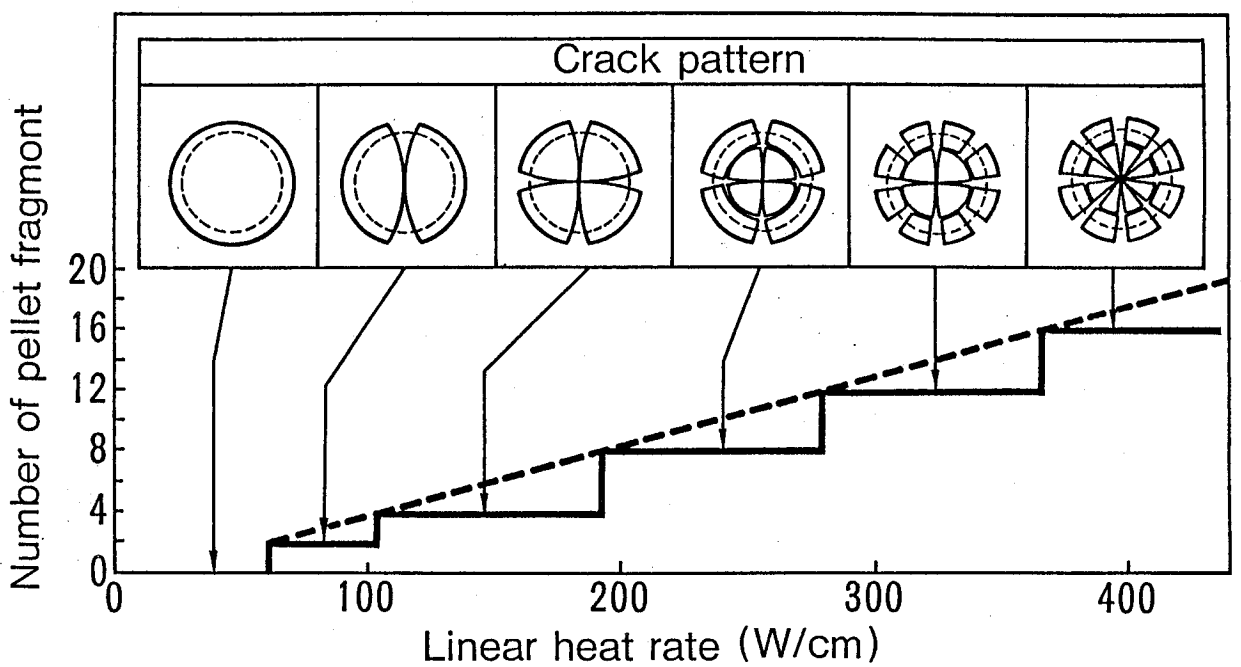


図**4.13**　出力上昇に伴うペレットの割れパターンの変化

この図から次の２点がわかる。

(1)　出力が約６０Ｗ／cmに達するとペレットに割れが発生する

(2)　ペレットの割れ数（割れ片の数）は出力に対しほぼ直線的に増加する（同図点線）

なお，本解析では出力上昇時の熱衝撃の影響を考慮していない。熱衝撃条件下では割れ発生出力が低下する可能性がある。また，解析上の最大割れ数は４００Ｗ／cmにおいて１６個であるが，実際の燃料棒では熱衝撃効果，ＰＣＩによる拘束力，ペレットの表面状態など種々の要因により増加すると考えられる。図**4.1 4**は，炉外ＰＣＩ模擬実験（第６章詳述）で得られた出力とペレットの割れ数の関係である。

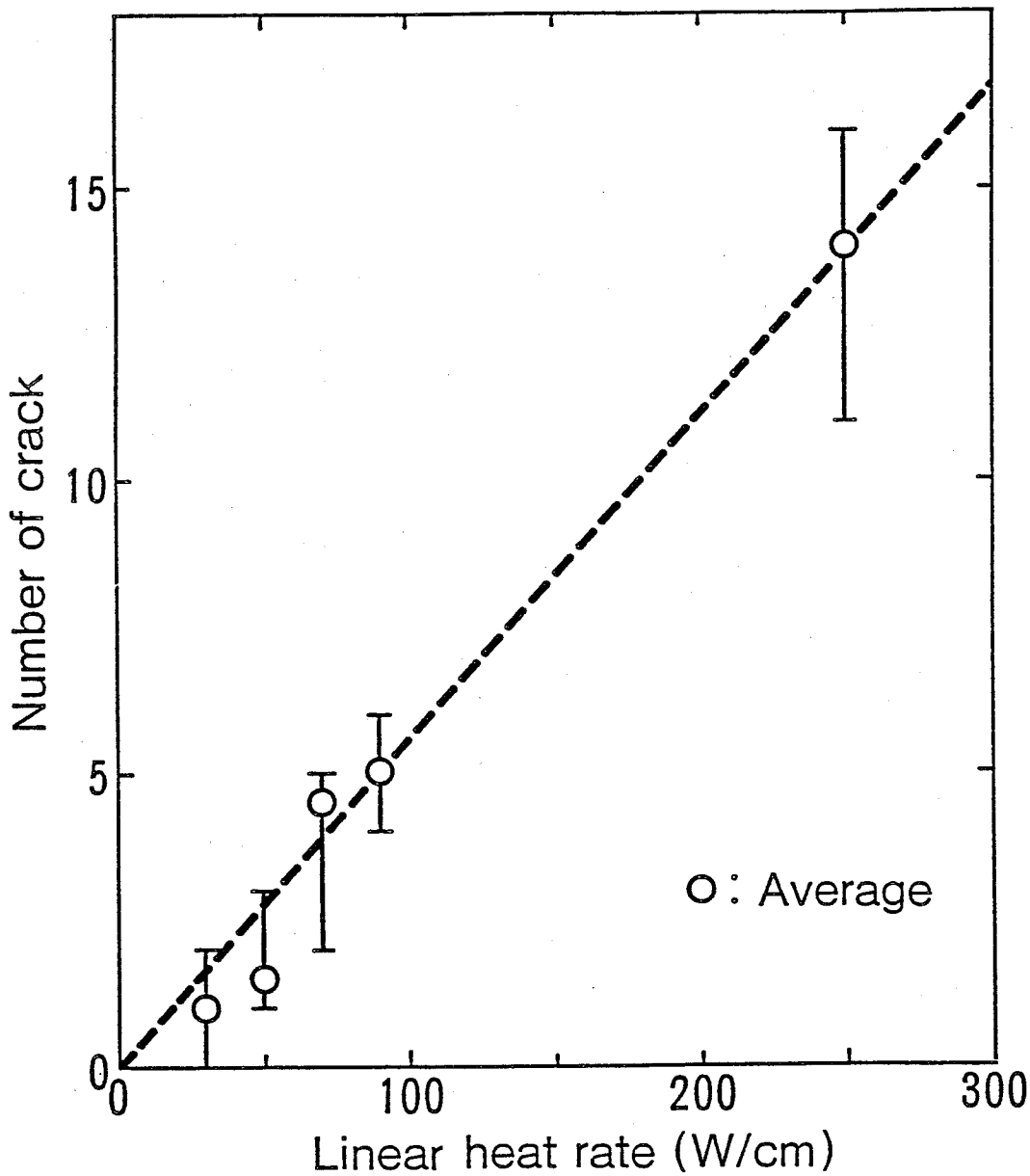
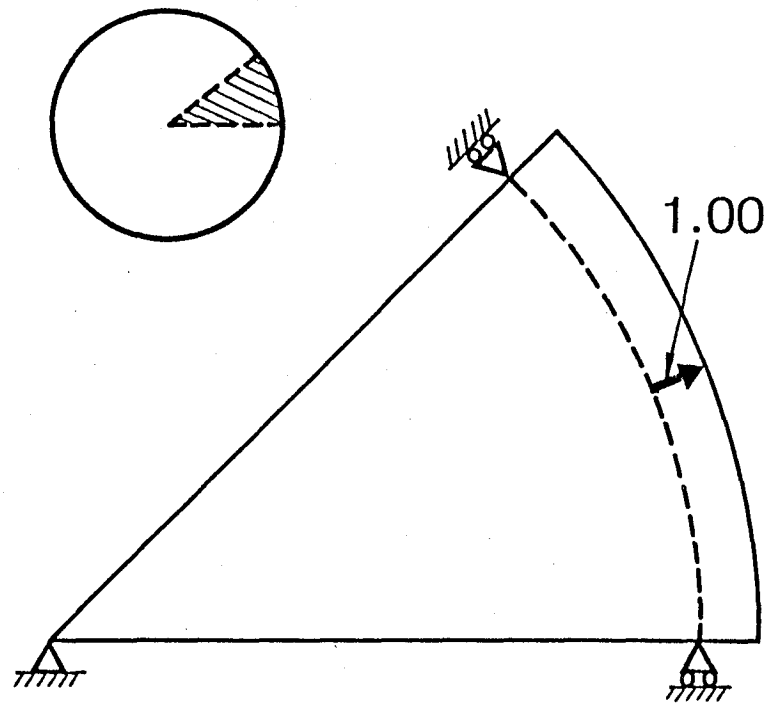


図**4.1 4**　燃料棒の線出力密度とペレットの割れ数
（炉外ＰＣＩ模擬実験による）

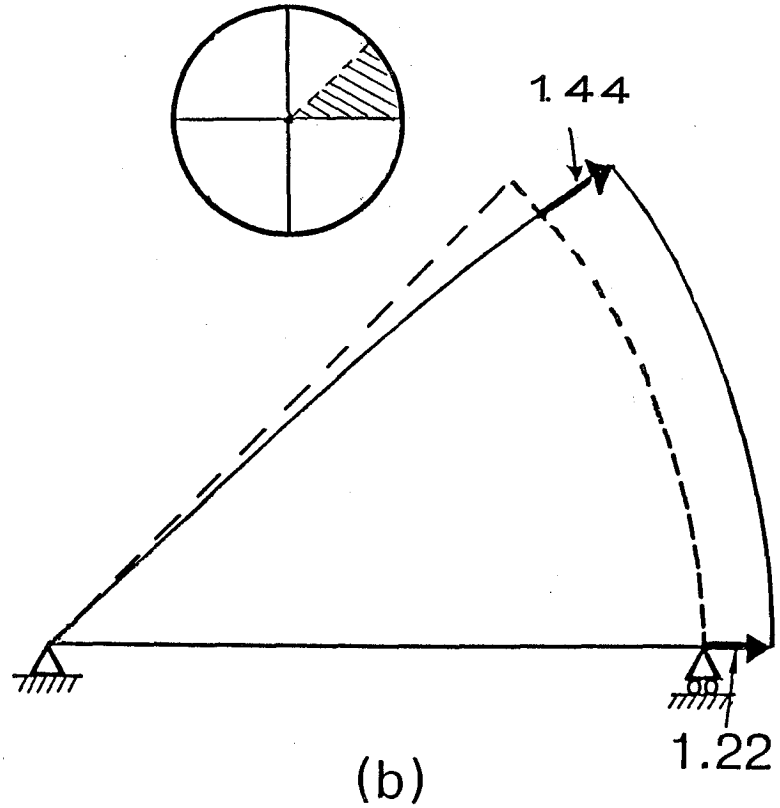
ペレットの割れ数は出力に対してほぼ直線的に増加する傾向がみられ，前述の解析結果を裏付けている。なお，同一出力レベルでの割れ数は，図4.13に示した解析結果より炉外実験の方が多くなっている。この主原因は，図5.6に示すように同一出力でも中心部のみ加熱される炉外実験のペレットの方が，全体で発熱する通常ペレットに比べ中心部と外周部との温度差は大きく，それだけ熱応力的に厳しくなるためである。

4.3 リロケーション挙動

図4.15，図4.16は，割れによってペレットのみかけの直径がどの程度大きくなるか，すなわちリロケーションの大きさを解析した結果の一例である。前の4.2項と同様に説明を簡単にするため，ここでも出力一定（４００W／cm）条件の下で割れパターンとリロケーションとの関係を示した。点線が出力零におけるペレットまたはペレット片の形状，実線が４００W／cmにおける形状で，代表的割れパターンごとに図4.15(b)から図4.16(d)まで示してある。割れによる半径方向せり出し量は，図4.15(a)のように中実円柱体のまま４００W／cmまで熱膨張するとした時の熱膨張量を1とし，これに対する相対値で示している。図4.15(b)は，中心を通るクラックによって4個の破片に割れた場合である。(a)に示した割れの無い場合に比べ，ペレット片の外径のせり出し量はクラック－クラック中間部で1.22，クラック開口部で1.44となっている。(c)は中心を通る2本のクラックとペレット中間部の周方向クラックにより8個の破片に割れた場合である。この場合ペレット片の外径は，クラック－クラック中間部で1.24，クラック開口部で1.50増大する。(d)は合計１２個の割れ片に破砕した場合を示している。この割れパターンになると，外径は中心を通るクラック－クラック中間部で1.39，クラック開口部で1.57倍まで大きくなる。

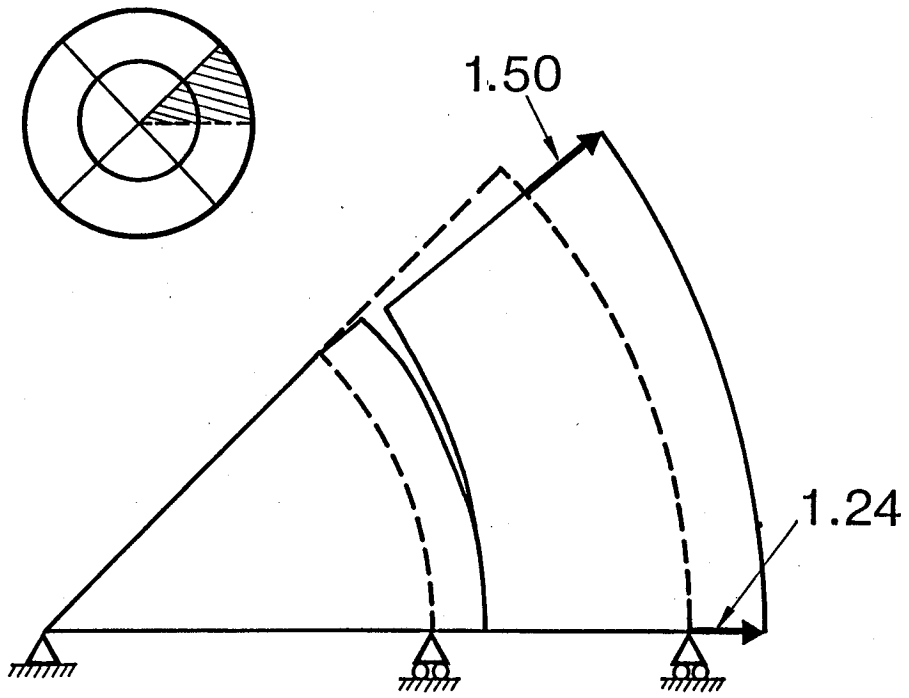


(a)

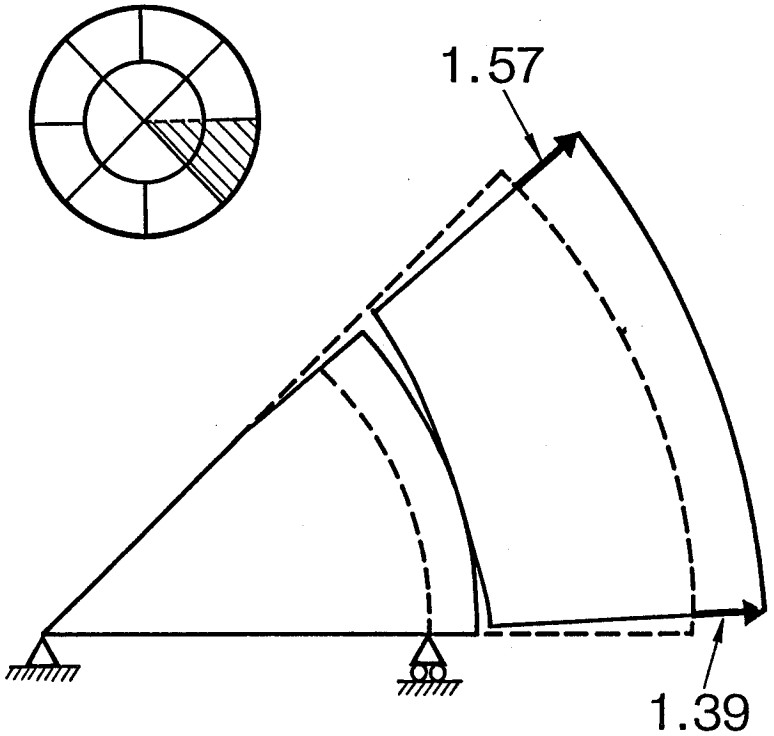


(b)

図 4.1 5　ペレットの割れによる直径増加(1)



(c)



(d)

図4.16　ペレット割れによる直径増加(2)

以上述べた，ペレットの割れ数とみかけ半径との関係をまとめたものが図4.17である。図に示すように，7×7型燃料ペレットの400W／cmにおける半径方向熱膨張量は約45μmである。割れが発生すると，ペレット外周部の曲率半径がもとの半径より大きくなり，ペレットのみかけ直径が増加する。例えばペレットが半分に割れると，ペレット半径は最大63μmになる。図4.17から，割れによるペレットのみかけ直径は，割れ数に対してほぼ直線的に増加することがわかる。一方ペレットの割れ数は，図4.13，図4.14で示したように，出力に対して直線的に増加する。したがって，ペレットの直径は出力とほぼ直線関係に増加するはずであるが実際にはこれに熱膨張が重畳するため，結局ペレットの直径は出力に対して指数関数的に増加することになる。一方，ペレットは図1.1に示したように鼓状にそり返り変形する。このそり返り変形は，ペレット温度すなわち出力に比例して増大する。ペレット端部ではこのそり返り変形と前述の割れによる直径増加が重畳するから，この部分で最大の直径増加が生ずる。出力上昇に伴うペレット端部の直径増加，すなわち最大リロケーションを解析した結果が図4.18である。図において，点線はペレットが割れないと仮定したときの直径増加である。一点鎖線は，図4.15～図4.17の割れによるペレットの直径増加（$2\times\Delta R_c$）を示している。また$2\times\Delta R_c$は，そり返り変形によるペレット端部のせり出し量である。

図から約60W／cmの出力でペレットに割れが発生すること，割れと同時に急激なリロケーションが起こること，その後は出力の上昇とともにペレット直径が指数関数的に増加することがわかる。割れ発生と同時に起こる急激なリロケーションがHBWR照射燃料棒で観察されたペレットジャンプの正体と考えられる。本解析によればペレットジャンプの大きさは，図に示すように約40μmである。この値および割れ発生出力（約60W／cm）は，ともにHBWR照射実験で得られたペレットの割れ出力およびペレットジャンプの大きさと良く一致している。本来，ペレットジャンプの大きさは，出力上昇速度（熱衝撃の厳しさ）やペレットの寸法に依存すると考えられる。しかし解析によると，出力上昇速度が約3W／cm／min，ペレットの直径Dと長さLが，D＝10～13mm，L／D＝0.7～2.0の範囲にある一般的なBWR燃料条件では，ペレットジャンプの大きさΔD_j（μm）は近似的に下式で表わされる。

$$\Delta D_j(\mu m) = 3.6D(mm) \quad \cdots\cdots (4-9)$$

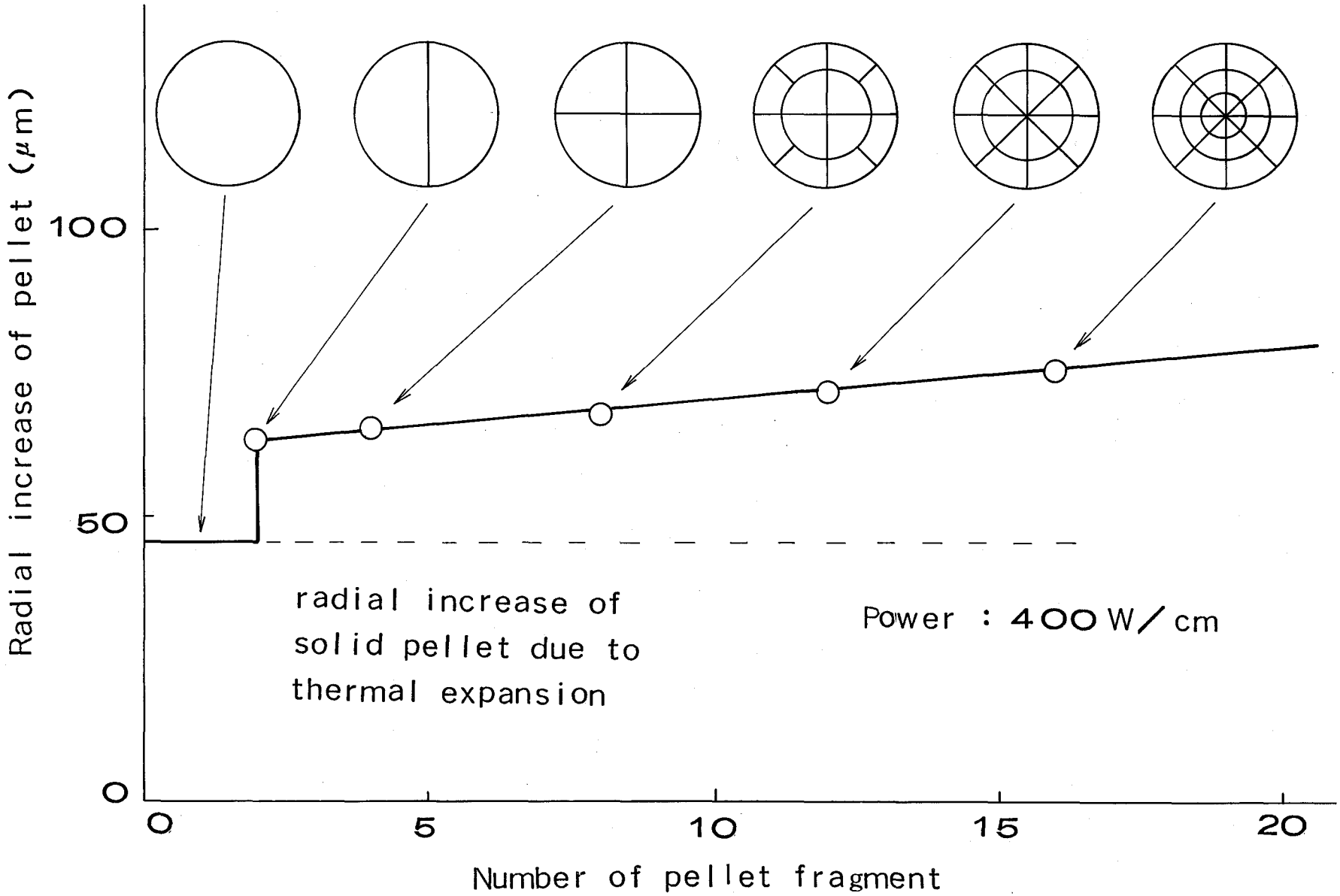


図 4.17　ペレットの割れ数と半径増加の関係

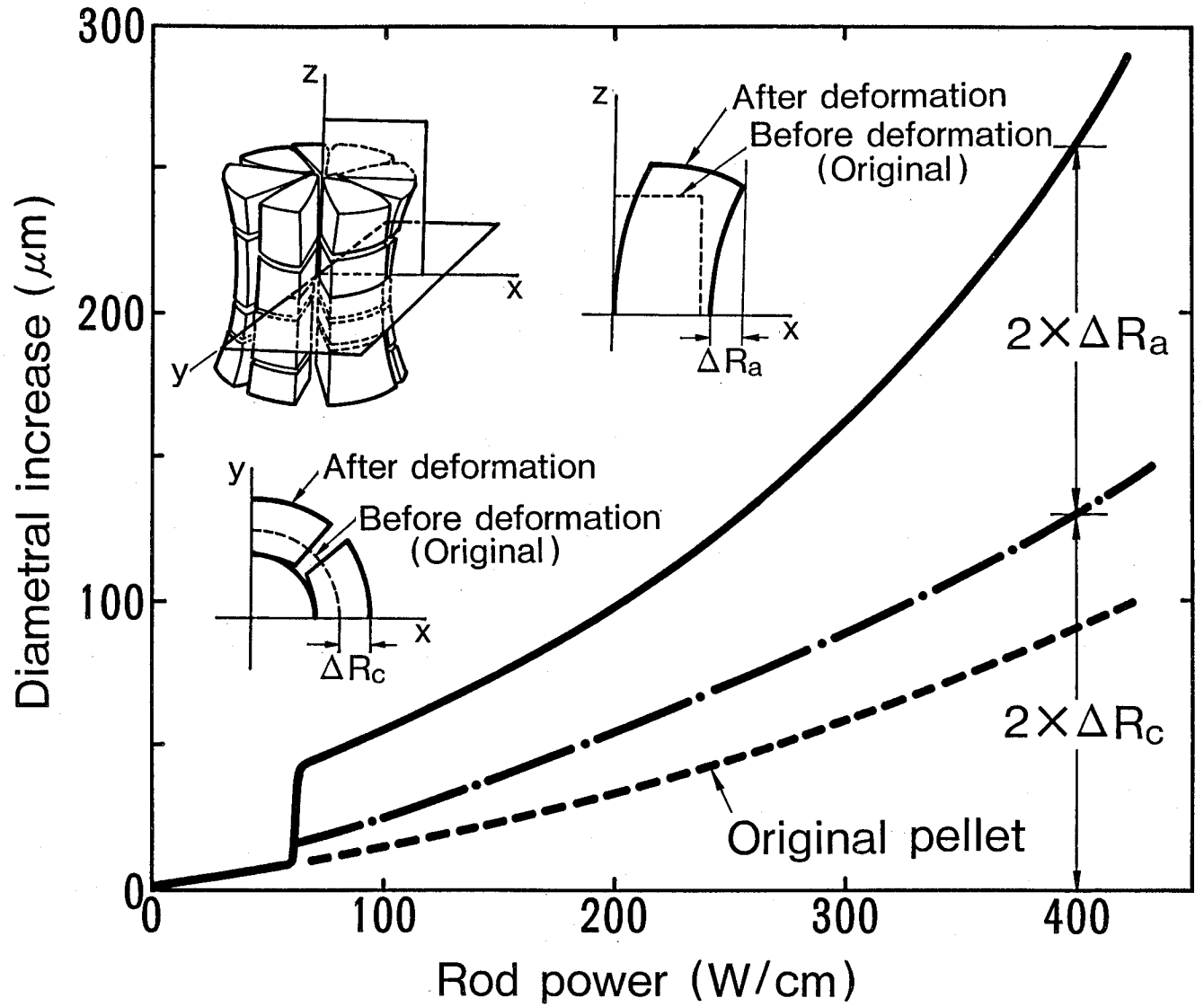


図 4.1 8　出力上昇に伴う割れたペレットの直径増加

本解析で得られたペレットジャンプ後の指数関数的なペレット直径の増加は，一見ＨＢＷＲ照射燃料棒で観測されたペレットジャンプ後のギャップの減少を説明しているように思われる。しかし，実際の燃料ペレットの割れは，本解析のような理想的な幾何学形態とかなり異なる場合が多い。したがって，このような理想的割れモデルをそのまま導入するのは危険性がある。そこでこの部分の変形挙動については，次項で述べるように別の観点から検討を行うことにする。

4.4　ギャップ閉塞モデルとその検証

前節の燃料棒照射実験およびペレットの変形解析から出力上昇時のリロケーション挙動が明らかになった。これらの知見に基づきギャップ閉塞モデルを作成した。**図4.19**にギャップ閉塞モデルの概念を示す。ギャップは領域Ⅰ～Ⅳで表わされる特徴的な4種類のペレット熱変形を経て減少する。

（領域Ⅰ）

ペレットと被覆管の熱膨張差によってギャップが減少してゆく区間で，ペレットは中実円柱体形状を保ったまま変形する。

（領域Ⅱ）

ペレットの割れと，ペレットジャンプによる急激なギャップの減少が起こる領域である。

図4.20は，燃料棒の初期ギャップを２００～４００μｍの範囲でパラメータとし，ペレットに生ずる最大引張応力を燃料挙動解析コード（ＦＥＡＳＴ）[21]で求めたものである。UO_2ペレットのσ_fを８０～１５０ＭＰａの範囲にとると，[24]～[26]ペレットの最大引張応力σ_{max}が$\sigma_{max} > \sigma_f$となる最小出力は初期ギャップにほとんど影響されずに約６０～９０Ｗ／cmである。特にＢＷＲ燃料棒のUO_2ペレットは密度が９５％ＴＤで，σ_fが８０～１００ＭＰａであることから，[26]一般的なＢＷＲ燃料では出力が６０Ｗ／cm付近でペレット割れが発生すると考えられる。割れと同時にペレットジャンプが起こりギャップが減少する。一般的な軽水炉燃料の設計仕様の場合，このギャップ減少量は（４－９）式から大体４０～６０μｍである。割れたペレット片群が被覆管内で自立しているとは考えられず，実際には変形の大きいペレット端面部の一部がペレットジャンプの時点で被覆管と接触し，ソフトＰＣＩが発生するであろう。しかし，部分的に弱いＰＣＩは燃料棒のＰＣＩ／ＳＣＣの点ではほとん

ど問題にならない。むしろ実効的なギャップ減少は，ギャップコンダクタンスなど燃料棒の熱的性能に強い影響を与える。したがって，燃料性能の点からは，この領域で重要なのは局部的なペレット片の挙動ではなく，ペレットの平均的リロケーション挙動である。そしてこのリロケーションの大きさは（４－９）式に示したペレットジャンプから求めることができる。

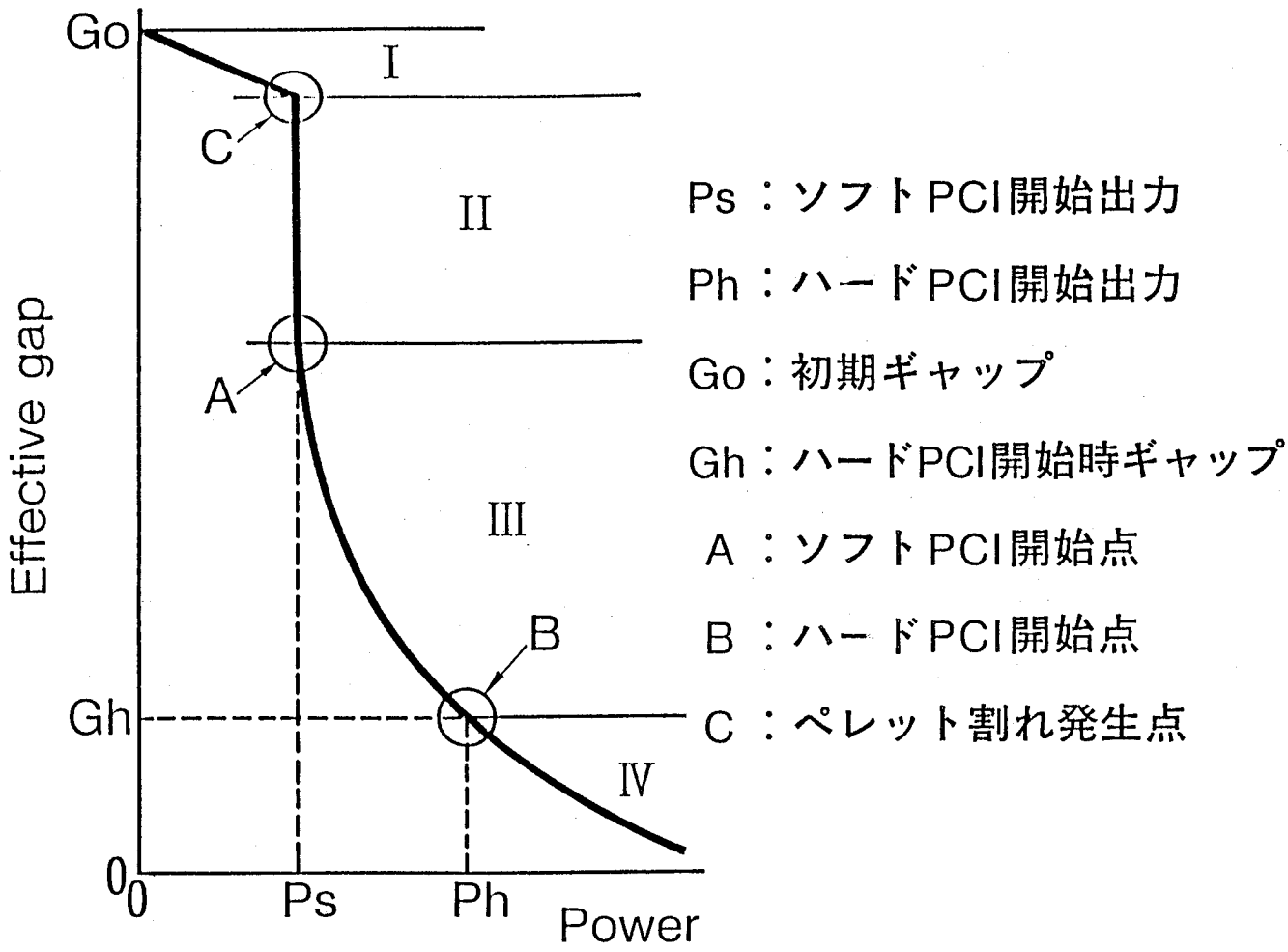


図 4.19　出力上昇時のギャップ閉塞モデル（概念図）

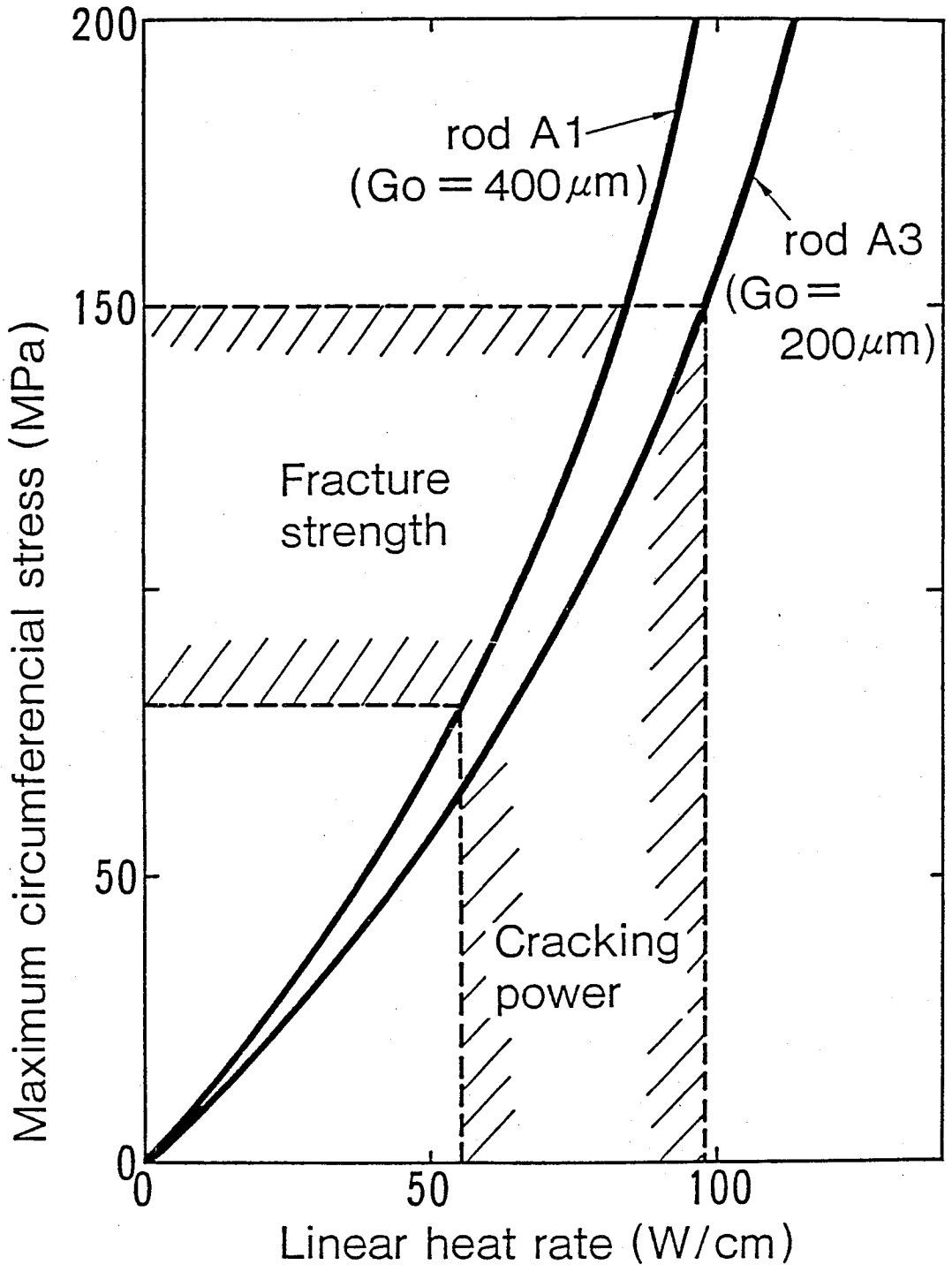


図4.20　ペレットに生じる最大応力

（領域Ⅲ）

この領域は，ハードＰＣＩ開始点に至るまでのソフトＰＣＩ領域である。この領域は出力とともにペレットの割れが進行し，割れと熱膨張によってペレットのみかけ直径が指数関数的に増加するが，被覆管の内側で割れたペレットの破片が相互に動き得る空隙をまだ有している領域，と特徴づけられる。言いかえれば，不規則に割れたペレットの小片群が被覆管からの反作用により相互に滑りつつ位置を変え，次第に被覆管内部の空隙を埋め，やがて固着してゆく過程である。このようなペレット片群の挙動は，容器内で圧縮される粒状物質の充塡挙動に良く類似していると考えられる。粒状物質が圧縮される場合の圧縮荷重Ｗと充塡率ρとの関係は，充塡理論から次式で与えられる。[28][29]

$$\ell_n\left(\frac{1}{1-\rho}\right) = A + BW \qquad \cdots\cdots (4-10)$$

ここで，Ａ，Ｂ　：定　　数

$1-\rho=\beta$：圧縮体の空隙率

である。

ペレット－被覆管体系では，βは被覆管横断面内のペレットに占有されていない空間の割合であるから，

$$\beta = (2GD_c - G^2) / D_c^2 \qquad \cdots\cdots (4-11)$$

で与えられる。

ここで，D_c：被覆管の内径

Ｇ　：実効ギャップ

である。

一般的に，$G \ll D_c$だから（４－１１）式は近似的に

$$\beta = 2G / D_c \qquad \cdots\cdots (4-12)$$

となる。すなわち，（４－１０）式の左辺分母は実効ギャップ（Ｇ）によって置きかえられることになる。出力上昇中にペレット片群に発生する圧縮荷重は，ペレッ

ト片各々の熱膨張に起因するものである。ペレットの熱膨張は温度に対して，またペレット温度は燃料棒出力に対して，それぞれ直線関係がある。[30][31] このことから，（４－１０）式の荷重Wは，燃料棒の出力によって代表させることができる。すなわち，ソフトＰＣＩ領域のギャップ減少挙動は次式で与えられる。

$$\ell_n\left(\frac{1}{G}\right) = m + n \cdot P \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-13)$$

ここで，m，n：定　　数

P　：燃料棒の出力（W／cm）

である。

図4.7～**図4.9**に示したＨＢＷＲ照射燃料棒のギャップデータから，ソフトPCI領域でデータを最小二乗法でフィッティングし，（４－１３）式の定数m，nを求めた。その結果，これらの定数は次のように表わされることがわかった。

$$\left.\begin{aligned} m &= -\ell_n\,(G_0 - 3.6\,D) \\ n &= 0.0039 \end{aligned}\right\} \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-14)$$

ただし，G_0：初期ギャップ（μm）

D　：ペレット直径（mm）

である。

したがって，（４－１３），（４－１４）式から，ソフトＰＣＩ領域におけるギャップは次式のように与えられる。

$$G(\mu m) = (G_0 - \Delta D_j)\exp\{-0.0039\,(P-60)\} \cdots\cdots\cdots (4-15)$$

図4.7～**図4.9**のソフトＰＣＩ領域の実線は，（４－１５）式による計算値を示したものである。また，**図4.21**は，第６章で述べる他のＨＢＷＲ照射燃料棒（基本仕様；ＢＷＲ８×８型燃料棒）の出力上昇時のギャップデータと（４－１５）式による計算値を比較したものである。これらの結果から，（４－１５）式はソフトＰＣＩ領域のギャップ挙動をよく表わしていることがわかる。

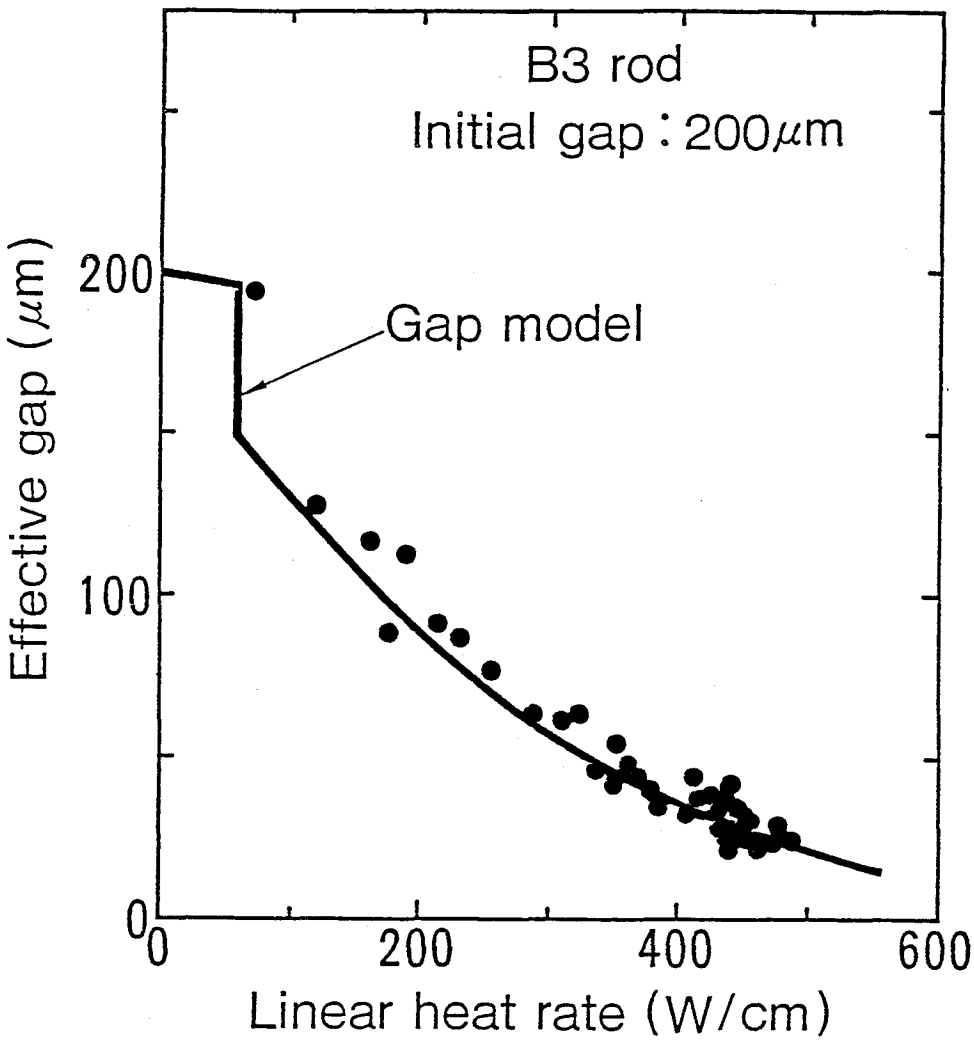


図 4.2.1　出力上昇時のギャップ変化
計算値と実験値との比較

4.5 ギャップに及ぼす燃焼度の影響

前項まで照射初期の出力上昇時におけるギャップ挙動を検討したが，この場合は，ギャップはペレットリロケーションに依存していた。燃焼が進むと，ペレットにはこの他に焼しまり（densification），スエリング，クリープが，また被覆管にはスエリング，外圧クリープなどが起こるから，ギャップはこれらの影響を直接，あるいは間接に受けることになる。以下，ギャップに及ぼす燃焼度の影響を検討する。

ある燃焼度の燃料棒が低出力から高出力へ出力上昇する場合を考える。この場合，燃焼度の影響はペレットの割れに関するものと，そうでないものとの2つに分類できる。被覆管およびペレットのクリープやスエリング，それにペレットの焼しまりなどの現象は，ペレットの割れに直接関与しないので，ペレットジャンプやソフトPCI領域のペレット片の挙動には影響を与えないと考えられる。しかし，これらの現象はペレット直径と被覆管内径に直接影響を与えるから，これらは出力上昇直前の燃料棒のギャップ，すなわち初期ギャップに関与する因子となる。したがって，（4－13）式の定数mを次のように修正した。

$$m' = -\ell_n(G_0 - (\Delta D_j + K)) = -\ell_n(C_1 - K) \quad \cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-16)$$

ここで，Kはスエリング（ΔD_s），焼しまり（ΔD_d）などペレットの割れに直接関与しない現象によるペレット直径または被覆管内径変位量の合計（$K = \Delta D_s + \Delta D_d + \cdots\cdots$）である。

燃焼度の増加とともに，ペレットの割れが増加するという定性的な関係は，燃料棒の照射後試験データなどから知られている。これは，(1)FPの蓄積や照射による結晶組織的欠陥の増大，(2)出力サイクル運転時の熱衝撃によるき裂の発生と進展，に起因すると考えられる。したがって，ペレットの割れに及ぼす燃焼度の影響は，厳密にはペレットの微細組織や燃料棒の出力履歴に依存するので単純な数式では表わせない。しかし，前述の照射後試験データによれば，ペレットの割れは燃焼度に対し，定性的には初期に急増しやがて飽和する傾向がある。ペレットのリロケーションは，割れ数に比例するので燃焼度の進行にともなうリロケーションの変化は次のような指数関数で表わせると考えられる。

$$f = R_E - (R_E - 1)\exp(-R_B \cdot B) \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (4-17)$$

ここで，f　　：燃焼度によるリロケーションによる加速係数

B　　：燃焼度（GWD／T）

R_B，R_E：定　　数

である。

図4.22はHBWR照射燃料棒，A1，A2，A3の直径増加量（リロケーションの大きさ）を2.2項で述べた解析方法で求め，これを燃焼度に対してプロットしたものである。ペレットのリロケーションは燃焼度に対し初期に急増し，やがて飽和する傾向が認められ（4－17）式の妥当性を裏付けている。（4－17）式の定数R_Eは，直径増加の飽和値，すなわちリロケーションが最終的にどの程度まで増加するかを示す値である。図4.22のように燃焼度Bが$B = 0$ GWD／T時の直径増加量をa，直径増加が飽和する$B \geq 10$ GWD／Tのときの直径増加量をbとすれば，R_Eは$R_E = b/a$で与えられる。表4.4は，A1，A2，A3の各燃料棒についてb／aを整理したものである。この表からR_Eは燃料棒の初期ギャップに依らず，$R_E = 1.41$で与えられることがわかる。また，定数R_Bはリロケーションが飽和する前の燃焼度効果を表わす定数である。図4.22の低い燃焼度領域におけるデータのフィッティングによってR_Bを求めたところ，これもR_Eと同様に初期ギャップに依存せず$R_B = 0.95$で与えられることがわかった。以上から，燃焼度を考慮したソフトPCI領域のギャップ変化G（B）（μm）は次式で表わされる。

$$G(B) = \{G_0 - (\Delta D_j + K)\}\{0.59\exp(-0.0039(P-60)) + 0.41\exp(0.0039(P-60)+0.95B)\} \quad \cdots\cdots \quad (4-19)$$

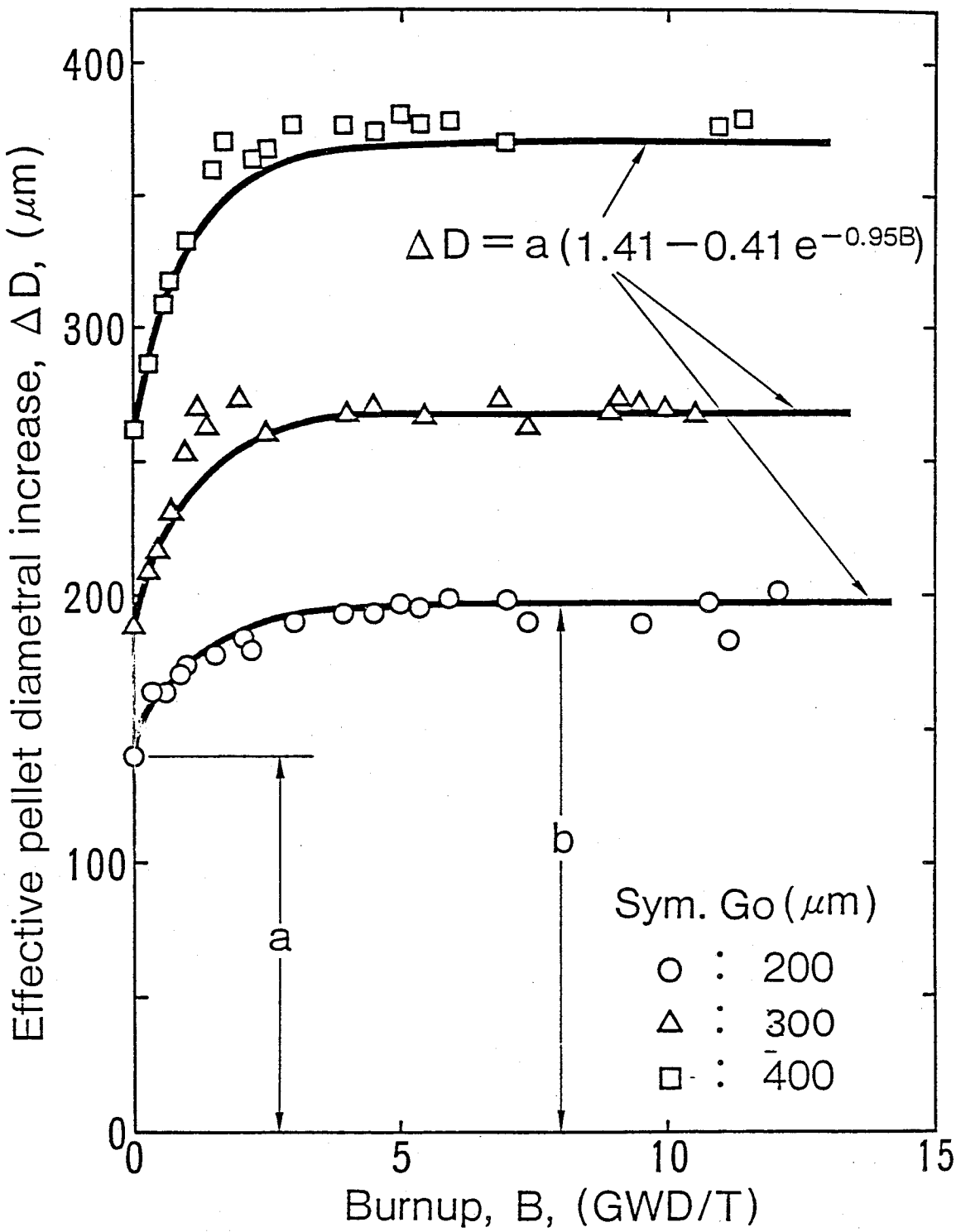


図4.2.2　割れたペレットの直径増加（リロケーション）と
燃焼度（燃料棒の線出力密度：３００W／cm）

表 4.4　割れたペレットの直径増加（リロケーション）に及ぼす燃焼度の影響

Rod No.	Initial gap Go (μm)	Pellet diametral increase (relocation) at 0 GWD/T a(μm)	Pellet diametral increase (relocation) in ≧10 GWD/T b (μm)⊛	b/a
A1	400	263	375	1.43
D7	280	190	270	1.42
A3	200	140	194	1.39
⊛ Linear heat rate : 300 W/cm			Avg.	1.41

5. 結　言

燃料棒の出力上昇開始からハードＰＣＩ開始直前までの，ペレットの変形挙動を燃料挙動予測コードを用いたペレットの熱変形解析と，計装付燃料棒のＨＢＷＲ照射実験により明らかにした。そしてこれらの知見に基づき出力上昇時のギャップ変化を記述するギャップ閉塞モデルを作成した。

典型的なＢＷＲ燃料棒の設計仕様と出力条件の範囲内のペレット変形挙動に関連して以下のことがわかった。

(1)　出力上昇開始からハードＰＣＩ開始に至るペレット変形挙動は，次のような連続した3領域に分類できる。

第1領域：熱膨張による直径増加

第2領域：割れの発生と，急激なリロケーション（ペレットジャンプ）

第3領域：被覆管と部分的に弱く接触した状態での，ペレット破片の熱膨張，すべり，割れに起因するリロケーション

(2)　第2領域のペレットの割れは，ギャップに依らず約６０Ｗ／cmの出力で発生する。ペレットジャンプ量 ΔD_j（μm）は，ペレットの直径をＤ（mm）とすれば，$\Delta D_j = 3.6D$ で与えられる。

(3) 第3領域のリロケーションによるギャップの変化は，実効ギャップをG（μm），出力をP（W／cm），初期ギャップをG_0（μm）とすれば下式で与えられる。

$$G = (G_0 - \Delta D_j) \exp(-0.0039(P-60))$$

(4) 燃焼度の影響を考慮した実効ギャップG（B）（μm）は次式で表わせる。

$$G(B) = \{G_0 - (\Delta D_j + K)\}\{0.59 \exp(-0.0039(P-60)) + 0.41 \exp(0.0039(P-60) + 0.95B)\}$$

ここで，Bは燃焼度（GWD／T），Kはクリープやスエリングのようにペレットの割れに直接関与しない現象によるギャップの増加量または減少量である。

(5) 上記，ギャップ閉塞モデルは照射中の燃料棒のギャップ挙動を良く記述するものであることがわかった。

6. 参考文献

(1) M. Oguma ,: Integrirty Degradation of UO_2 Pellets Subjected to Thermal Shock; J. Nucl. Mater., to be published.

(2) Y. Mishima et al.: Trans. Amer. Nuc. Soc., 20, p222(1975)

(3) B.Brzoska et al.: Trans. 5th SMIRT, D2/1 (1979)

(4) D.D. Lanning : Nucl. Technol., 56 1565 (1982)

(5) H.Hlbel and J.L.Jimenez: Trans. 4th SMIRT. D1/6 (1977)

(6) A.D. Appelhans et al.: NUREG/CR-1425 (1980)

(7) A.D. Appelhans and S.J. Dagbjartsson: Trans. 6th SMIRT, C1/5 (1981)

(8) M. P. Bohm: NUREG-1028 (1977)

(9) Entropy Limited: EPRI NP-2291, 1 (1982)

(10) K. Ito et al.: Res Mechanics, 2, p109 (1981)

(11) D.S. Dutt et al.:Trans. Amer. Nuc. Soc., 17, p175 (1973)

(12) L.A. Walton and D.L. Husser: IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling, Preston, UK (1982)

(13) R.E.Williford and D.D.Lanning: ibib, Preston, UK (1982)

(14) R.E.Williford et al.: Nucl. Technol., 56, p340 (1982)

(15) R.E.Williford et al.: Trans. 6th SMIRT, C1/4 (1981)

(16) M. Oguma and T.Hosokawa: Enlarged Halden Program Group Meeting Leon, Norway (1978)

(17) S.Shimada, and M. Oguma: Enlarged Halden Program Group Meeting, Hnako, Norway (1979)

(18) A.M. Ross and R.L. Staute: CRFD-1075/AECL-1552 (1962)

(19) M.O. Marlowe: NEDO-12440 (1973)

(20) M.O. Marlowe: Trans. Amer. Soc., 17, p166 (1973)

(21) K.Ito, M.Ishida and M.Oguma : "FEAST", a Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-Mechanical Fuel Rod Behavior ; Paper presented EHPG Meeting, Loen, 4th-9th June, 1978

(22) E.Dumecombe et al.: CYGRO-3.A computer programme to determine temperature, stress and deformation in oxide fuel rods, WAPD-TM-961 (1970)

(23) 岩野：クラック入り燃料ペレットの熱変形：昭和４９年日本原子力学会　H３１（昭４９－３）

(24) R.F. Canon et al.: J.Amer, Ceram. Soc., 54, p105 (1971)

(25) K.C. Radford: J. Nucl. Mater. 84, p222 (1979)

(26) M. Oguma: J. Nucl. Sci., Technol., 19 p1005 (1982)

(27) R.W. Davidze: Cambridge University Press. (1979)

(28) K. Chino et al.: Powder and Powder Metallurgy 29, p195 (1982)

(29) H.F. Fishmeister et al.: Powder Metallurgy 4, p179 (1978)

㉚ D.L. Hagrman and G.A. Reyman: NUREG/CR-0497 (1979)

㉛ M. Uchida and M. Ichikawa: Nucl. Technol. 51, p33 (1980)

㉜ 小熊，細川：燃料棒照射初期のギャップ解析とリロケーションモデル；日本原子力学会分科会（昭和５３年）

第5章　ペレット－被覆管相互作用のもとでの割れたペレットの挙動

1. 緒　言

燃料棒の出力上昇中に起こるUO_2ペレットの割れは，三次元的な不規則で複雑な現象であるからこれを解析的に取扱うことは難しい。このため現在開発されている大部分の燃料挙動解析コードでは，ペレットの割れを無視するかあるいは前章の図**4.13**で示したような幾何学的に単純化したモデルで代表している[(1)～(4)]。割れを考慮した後者のペレットモデルの場合でも，出力上昇に伴い幾何学的に単純なクラックは互いに不整合を生じることなく再びもとの位置で閉じ合わされるから，ハードＰＣＩ発生時のペレットの力学的取扱いは，結局割れのない中実円柱ペレットと同じ機械的性質を持つとすることが多い[(5)(6)]。

図**5.1**は狭ギャップ燃料棒のＨＢＷＲ照射実験で測定された出力上昇に伴う燃料棒の直径変化と，前述のペレットモデルを持つ燃料挙動解析コードで同じ燃料棒の直径変化を解析した結果とを比較したものである。解析コードで計算されたハードＰＣＩ開始後の燃料棒直径増加率（出力に対する直径増加の割合）は，実際の燃料棒が緩やかであるのに対しかなり急な立上りをみせている。このような実測値と解析値との差異は，単純な割れパターンに基づくUO_2ペレットの力学的取扱い，すなわちハードＰＣＩ発生後のペレットは割れのないペレットと同じ機械的性質を持つとするモデルが妥当でないことを示唆している。第2，第4章で述べたように，ペレットは出力上昇の初期の段階で割れ，ハードＰＣＩ開始前に既に多数の複雑な割れが生じている[(7)(8)]。更にこれらの破面は平滑ではないのでハードＰＣＩ開始時のペレットは，割れ片の不整合な噛み合とそれによる局所的な空隙を数多く有した状態になっている。このようなペレットは割れのないペレットに比べると圧縮性に富み，変形に対する剛性が低いと推定される。そこで，このようなペレットを割れ片群から構成される1個の集合体とみなし，この集合体に固有な機械的性質を付与することによってハードＰＣＩ領域の割れたペレットの力学的ふるまいを表現しようと試みた。

本章の研究は，このような仮説に基づき図**1.3**“Ｅ”で示した，ハードＰＣＩ領域のペレットのふるまいを表現する，“割れたペレットの機械的性質”を見い出すことを目的に，燃料挙動解析コード（ＦＥＡＳＴ）によるハードＰＣＩ領域の燃料棒変形解析と模

擬燃料棒の中心加熱による炉外ＰＣＩ模擬実験を行ったものである。

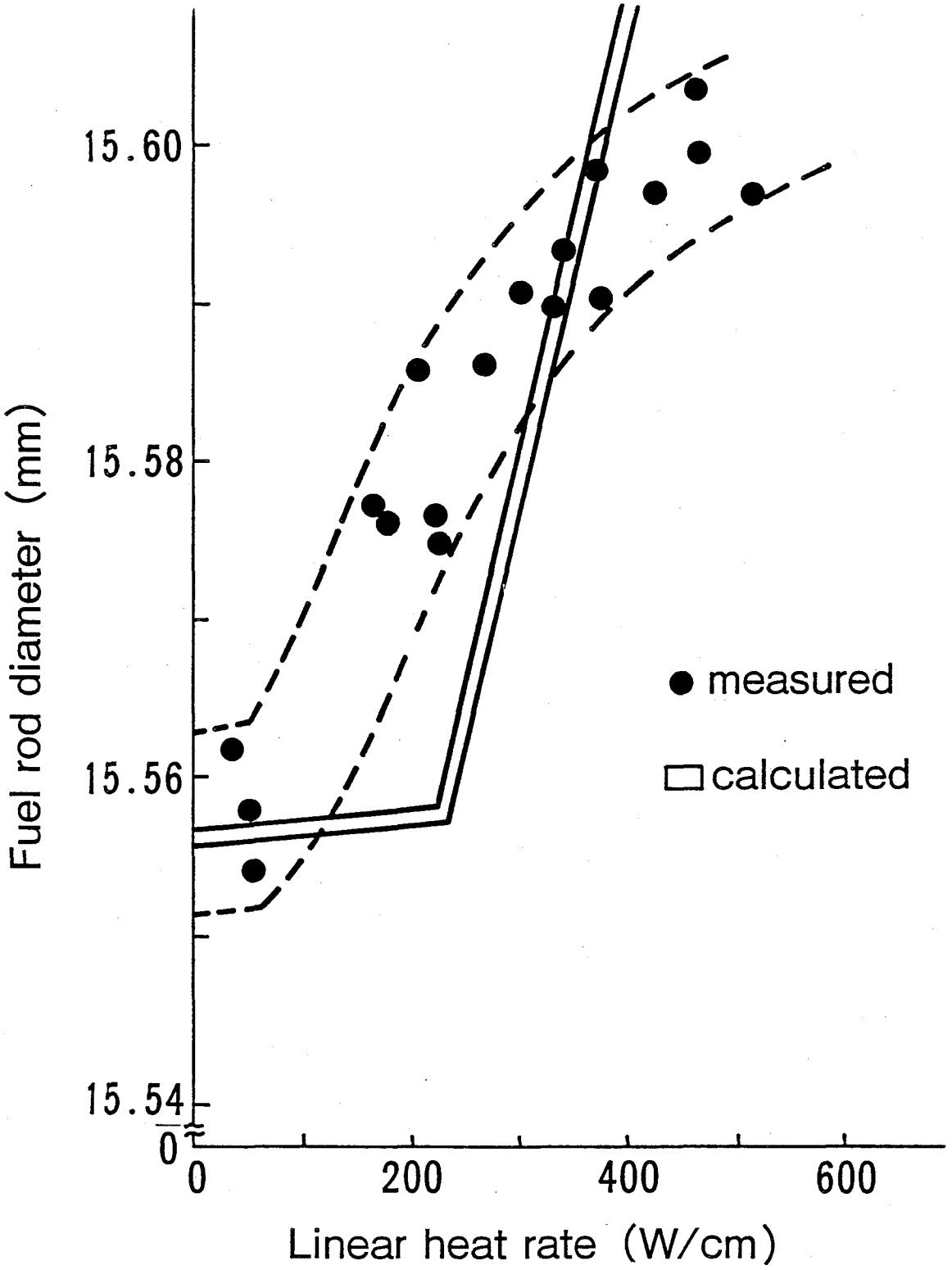


図 5.1　出力上昇時における燃料棒直径増加の実測値と計算値の比較（データ：ＨＢＷＲで照射された狭ギャップ（７０μｍ）燃料棒）

2. 炉外ＰＣＩ模擬実験

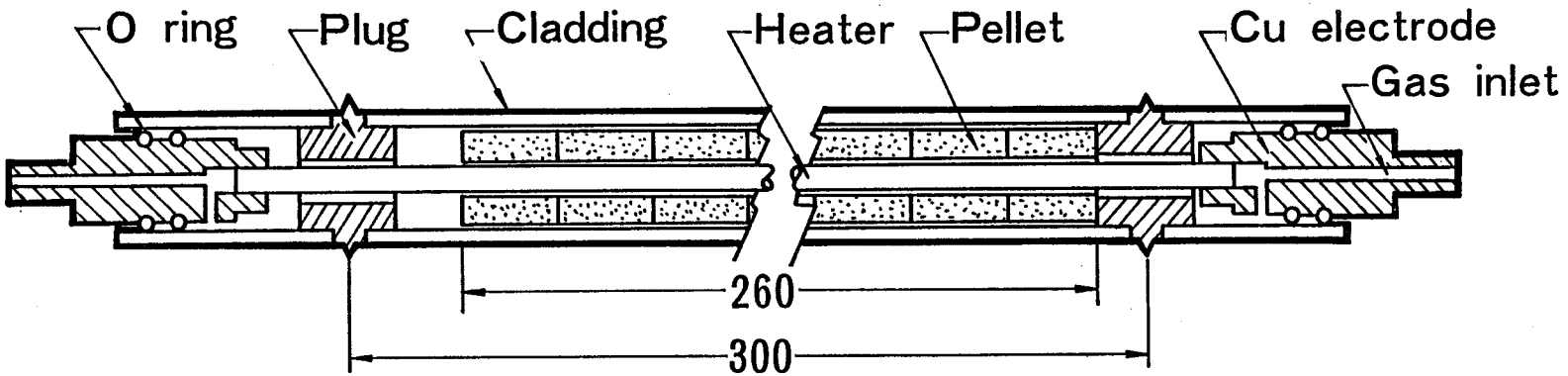
割れ片の集合体とみなした割れペレットの力学的ふるまいは，拘束力や自由空間の大小によって影響されると考えられる。そこで被覆管肉厚やギャップなど燃料棒の設計仕様とＰＣＩ挙動との関係を炉外ＰＣＩ模擬実験で調べた。

ＰＣＩ模擬実験は，短尺被覆管に中空ペレットを充填し，ペレット中空部に挿入したタングステンヒータを通電加熱することによりペレットを熱変形させ，ＰＣＩを再現し被覆管の変形（直径増加，リッジ変形）を測定するものである。[8][9]

2.1 供試燃料棒

実験に用いた供試燃料棒の基本構造を図**5.2**に示す。燃料棒は外径約１４.５㎜のジルカロイ－２被覆管に内径 5.5㎜の中空UO_2ペレットを装填し，その中心に直径約５㎜のタングステンヒータを挿入した構造である。

被覆管の基本仕様は，ＢＷＲ７×７型燃料被覆管と同一（応力除去焼鈍処理材，肉厚約 0.９５㎜）である。[9] 被覆管の両端には伸び検出器を固定するためのコネクターを設け，更に銅電極を通すカラーをＴＩＧ溶接してある。中空UO_2ペレットは，天然UO_2粉末を圧粉成形し，理論密度比９３±１％に焼結したフラットペレットである。ペレットスタック長は約２６０㎜，燃料棒全長は約４５０㎜である。実験中のタングステンヒータの酸化を防止するため，１気圧の２％H_2－９８％H_e混合ガスを流通できるように銅電極部にはガス導入孔を設けている。両端の２段Ｏリングシールは，燃料棒の気密維持と同時に絶縁体としての役割りとヒータの熱膨張を吸収する機能を持っている。



Pellet	Cladding	Heater
Mat. : UO_2 O.D. : 12mm ※ I.D. : 5.5mm Length : 13 mm Dens. : 95%TD	Mat. : Zircaloy-2 O.D. : 14mm ※ I.D. : 12 mm Heat Treat. : S.R.	Mat. : Tungsten O.D. : 5.0mm

※Experimental parameter

図5.2　ＰＣＩ模擬実験用燃料棒

実験パラメータは，表5.1に示すようにギャップおよび被覆管肉厚である。ギャップはペレットの外径を調整して変化させた。また薄肉被覆管は，外面を沸硝酸混合液中で化学研磨して製作した。肉厚の精度は標準管とほぼ同程度の約±0.01㎜であった。

表5.1　供試燃料棒のギャップと被覆管肉厚

Clad. thickness(mm) \ gap (μm)	55	100	150
0.5	○	○	○
0.76	○	—	—
0.95	○	—	—

2.2　ＰＣＩ模擬実験装置

ＰＣＩ模擬実験装置の全体構成を図5.3に示す。装置は供試燃料棒，直径測定器，伸び検出器から成る測定系，出力制御系，冷却系，データ表示記録系から構成されている。

図5.4に燃料棒および直径測定器の模式図を示す。この測定器は，円筒形のベースに6個の梃子式の渦電流式変位計を取付け１２０°の方位間隔で3方向から直径を測定する構造で，その測定精度は±２μｍである。実験中はこの直径測定器が燃料棒に沿って上下に移動し，燃料棒の直径とプロファイルを測定する。軸方向1㎜間隔で測定された直径データは，紙テープに穿孔され，軸方向プロファイルは連続的にアナログ記録される。直径測定器の駆動距離は約１８０㎜，駆動速度は約６０㎜／minであるので一方走査に約3分間を要する。タングステンヒータの出力は，あらかじめ設定された出力パターンプログラムに沿って自動制御される。

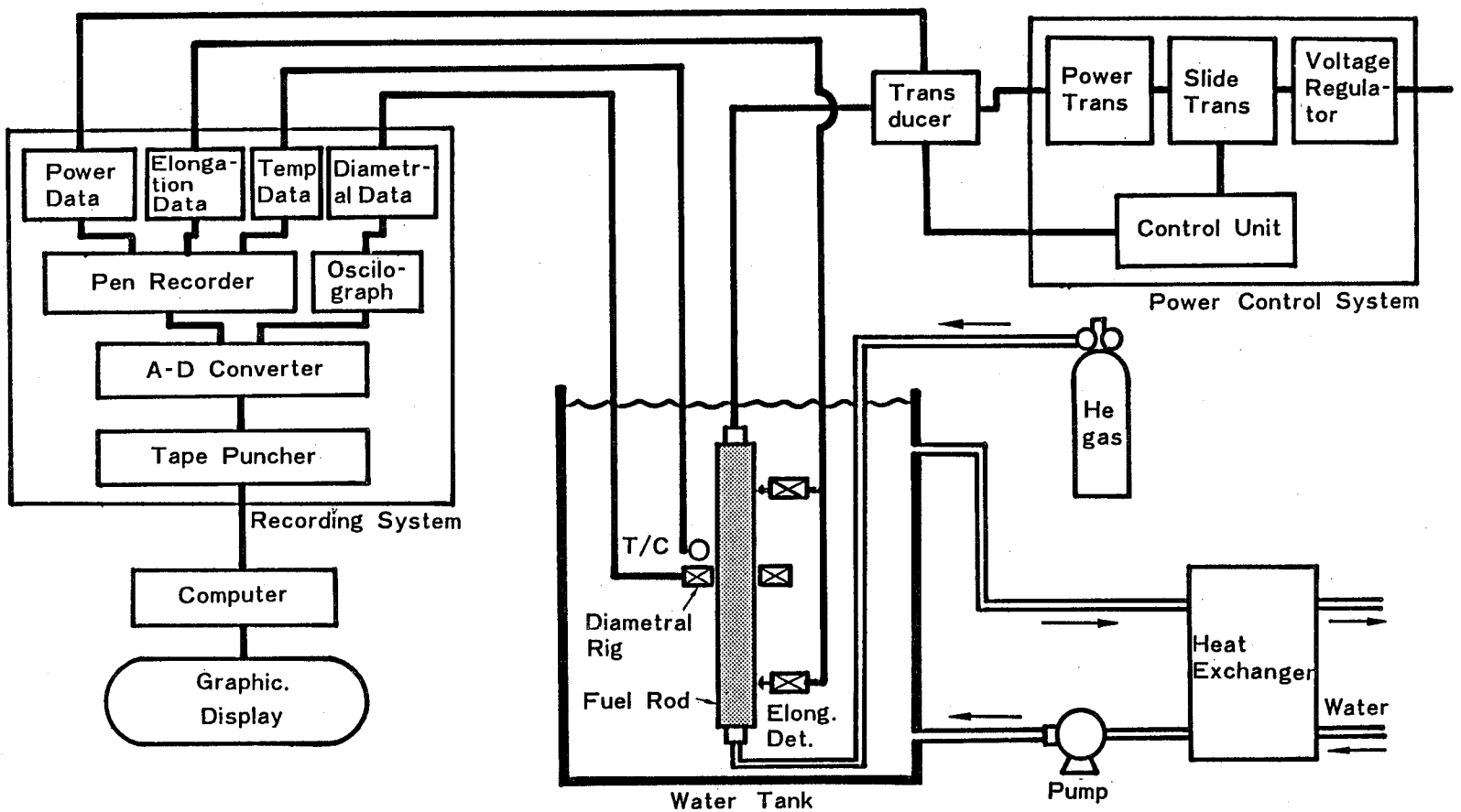


図 5.3　炉外ＰＣＩ模擬実験装置（構成図）

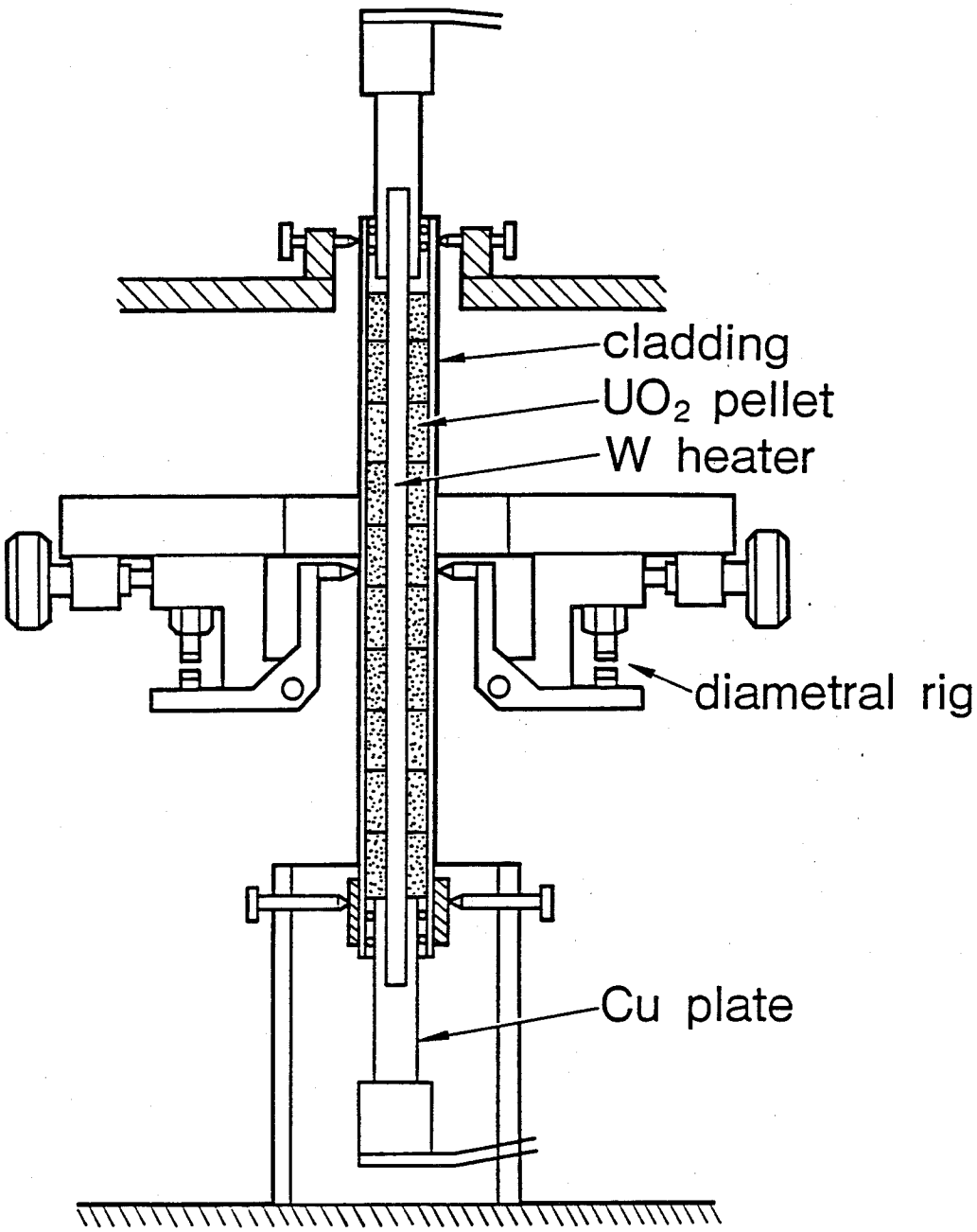


図 5.4　供試燃料棒および直径測定器の模式図

図5.5に代表的な出力パターンを示す。直径測定器が約3分間の走査時間を要するため，出力パターンは125W／cm上昇の後，測定のため5分間保持するというステップ状パターンとした。最高到達出力300W／cmで30分間保持した後，出力を25W／cm下げ5分間保持するというステップで下降させた。

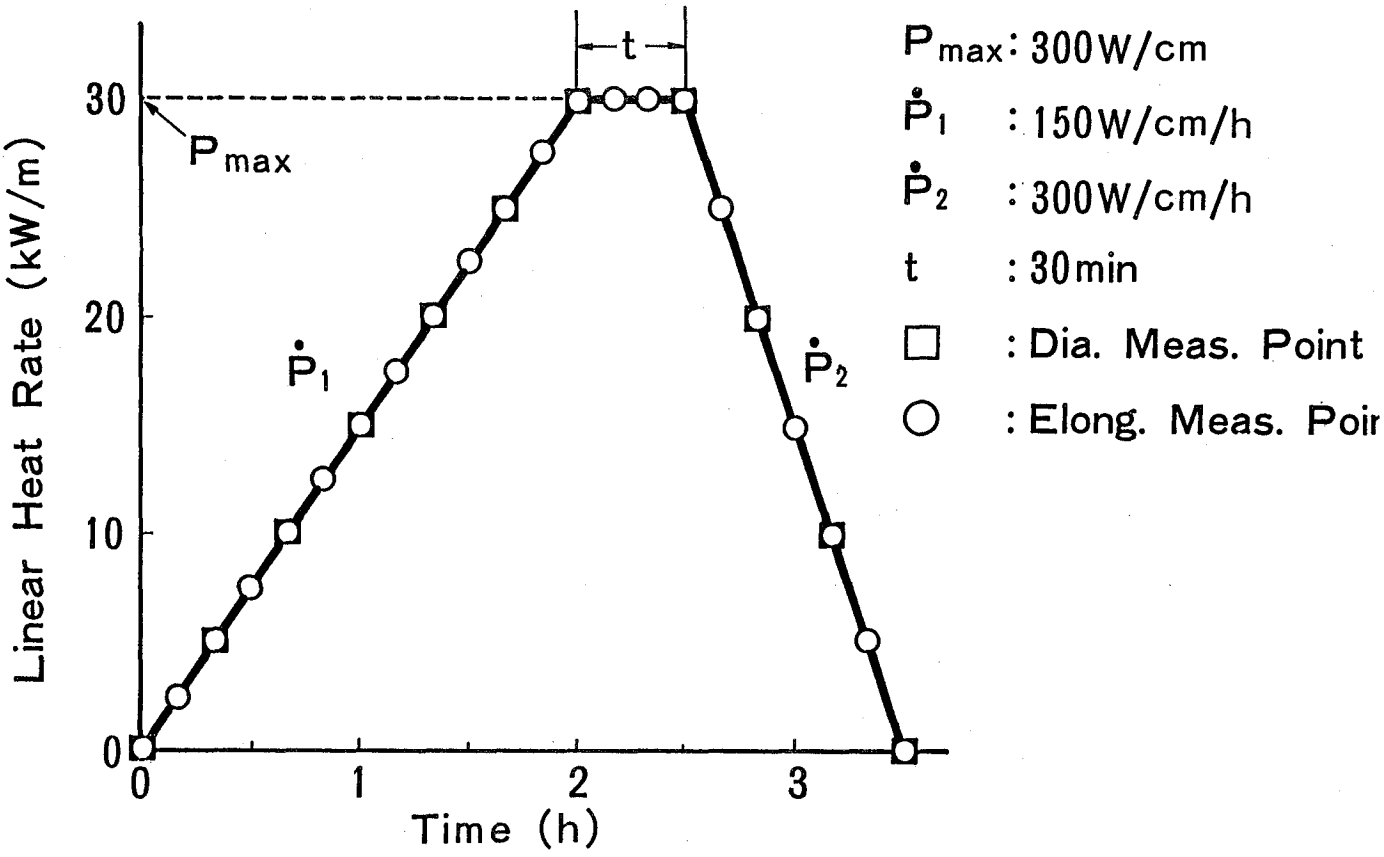


図5.5　出力モードと変形測定点

2.3　燃料棒の温度分布

中心加熱中の燃料棒の半径方向温度分布は，タングステンヒータの出力と冷却水温度から求めた。100W／cm以上では被覆管外表面で沸騰が起こるので被覆管外表面温度は，垂直円管の沸騰熱伝達を与えるJakobの式[10]を用いて計算した。すなわち，

$$\Delta T = 0.25\, a^{-0.68}\, b \cdot q^{0.32} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (5-1)$$

ここで，ΔT　：被覆管表面と冷却水との温度差（℃）

q　　：熱流束（kcal／m^2h）

a，b　：液体の蒸発潜熱，仕事当量などから決まる定数

である。

計算結果を表5.2に示す。

表5.2　供試燃料棒の出力と被覆管表面温度

Linear heat rate (W/cm)	100	150	200	250	300
Cladding surface temperature (℃)	113	115	116	117	118

ペレット表面と被覆管内面の温度差は，Ross and Stouteのギャップコンダクタンスモデル[11]で算出した。ペレットの半径方向温度分布は次式で与えられる。

$$\int_{T_o}^{T} K \cdot dT = -\frac{Q}{2\pi} \ell_n (r/r_0) \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (5-2)$$

ここで，r　：ペレット中心からの距離（cm）

r_0：ペレット外径（cm）

T　：r点における温度（℃）

T_0：ペレット表面温度（℃）

Q　：燃料棒出力（W／cm）

K　：UO_2 ペレットの熱伝導率（W／℃cm）

である。

このようにして求めた出力200W／cmと300W／cmにおけるペレット半径方向温度分布を，同一出力の実機燃料ペレットの半径方向温度分布と対比させて図5.6に示す。実際の燃料ペレットの場合は，一定の発熱分布で自己発熱するため半径方向温度分布は中心をピークとする放物線状となるのに対し，中心加熱ペレットでは中心から外面への指数関数的分布となる。[18]

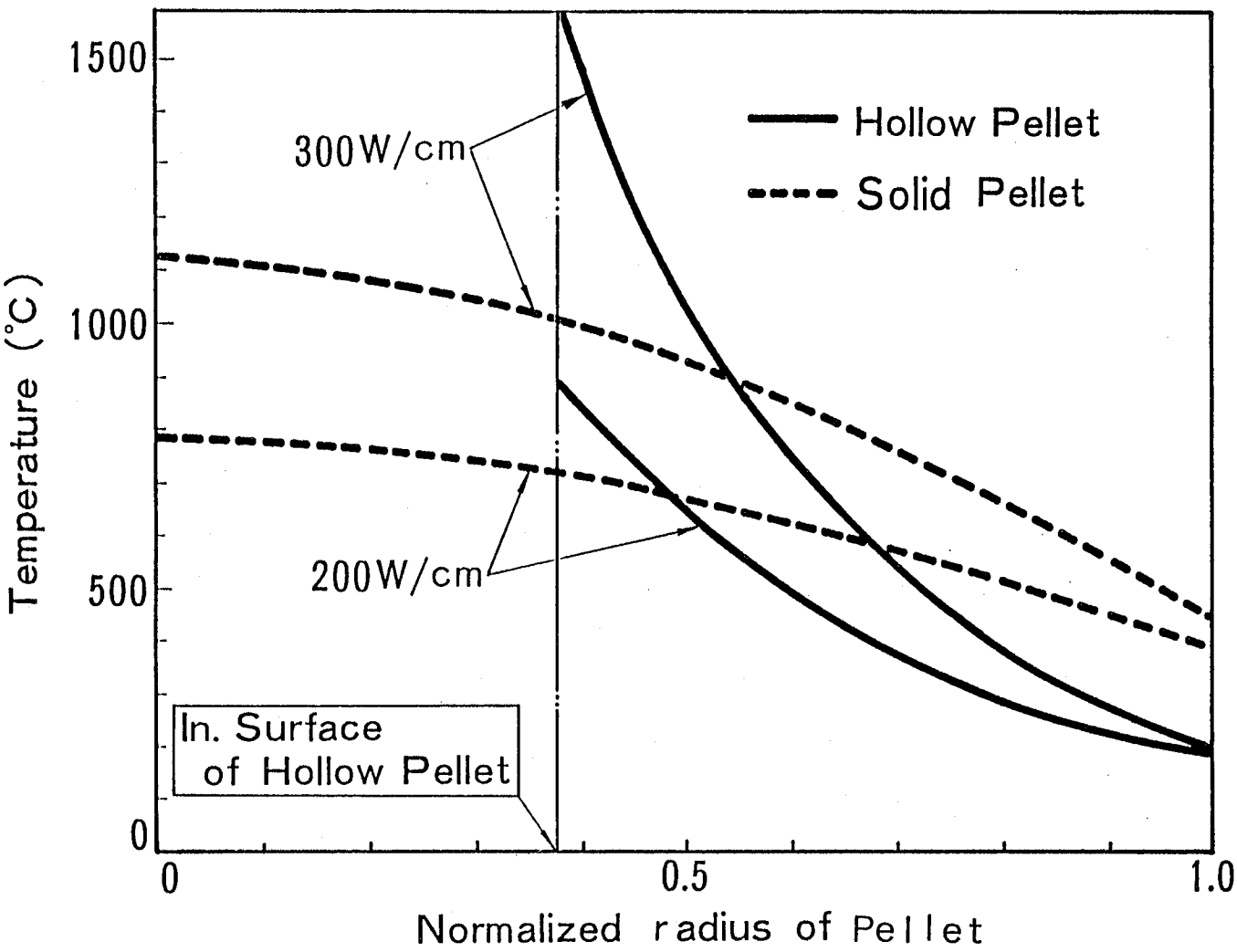


図5.6　ＰＣＩ模擬実験の中空ペレット温度分布と
実機燃料ペレット温度分布の比較

3. 燃料棒のＰＣＩ解析

ハードＰＣＩ領域の割れたペレット，すなわち割れ片の集合体，がどのような機械的性質を持つのかをモデル解析により検討した。しかし割れたペレットの機械的性質を理論的に導出するのは困難なため，ここでは以下のような方法を用いた。

ペレット破片同志の不整合な噛み合いによって生ずるペレット内部の空隙の増加は，気孔率の増加とみなせるから[12]，ヤング率，ポアソン比などペレットの弾性定数は減少すると考えられる[13]。また，割れたペレットではペレット片の熱膨張が内部の空隙によって吸収されるから，割れたペレットの実効的熱膨張率も割れのないペレットに比べ低くなると考えられる[9]。そこで，ペレットのヤング率，ポアソン比，熱膨張率をパラメータとして，前節の炉外ＰＣＩ模擬実験の燃料棒直径増加やリッジ形状，高さを求め，これらの値を実験データと比較することにより，燃料棒のハードＰＣＩ挙動を良く表現する実効的物性値を見い出した。

解析に用いた燃料挙動解析コードは前章と同じコード（ＦＥＡＳＴ）である。割れのないUO_2ペレットの“標準”物性値として，表 2.2 に示したヤング率，ポアソン比，熱膨張率の値を用いた。解析対象とした燃料棒は，図 5.2 および表 5.1 に示した炉外PCI模擬実験用燃料棒である。出力条件は図 5.5 の出力パターンに基づいて設定した。冷却水圧力は１気圧一定としたが，冷却水温度は零出力１８℃（室温）から１００Ｗ／cmの１００℃まで直線的に上昇し，１００Ｗ／cm以上では１００℃一定とした。この温度条件は，１００Ｗ／cm以上で沸騰を生じたという観察結果に基づいている。図 5.7 に解析に用いた有限要素モデルを示す。

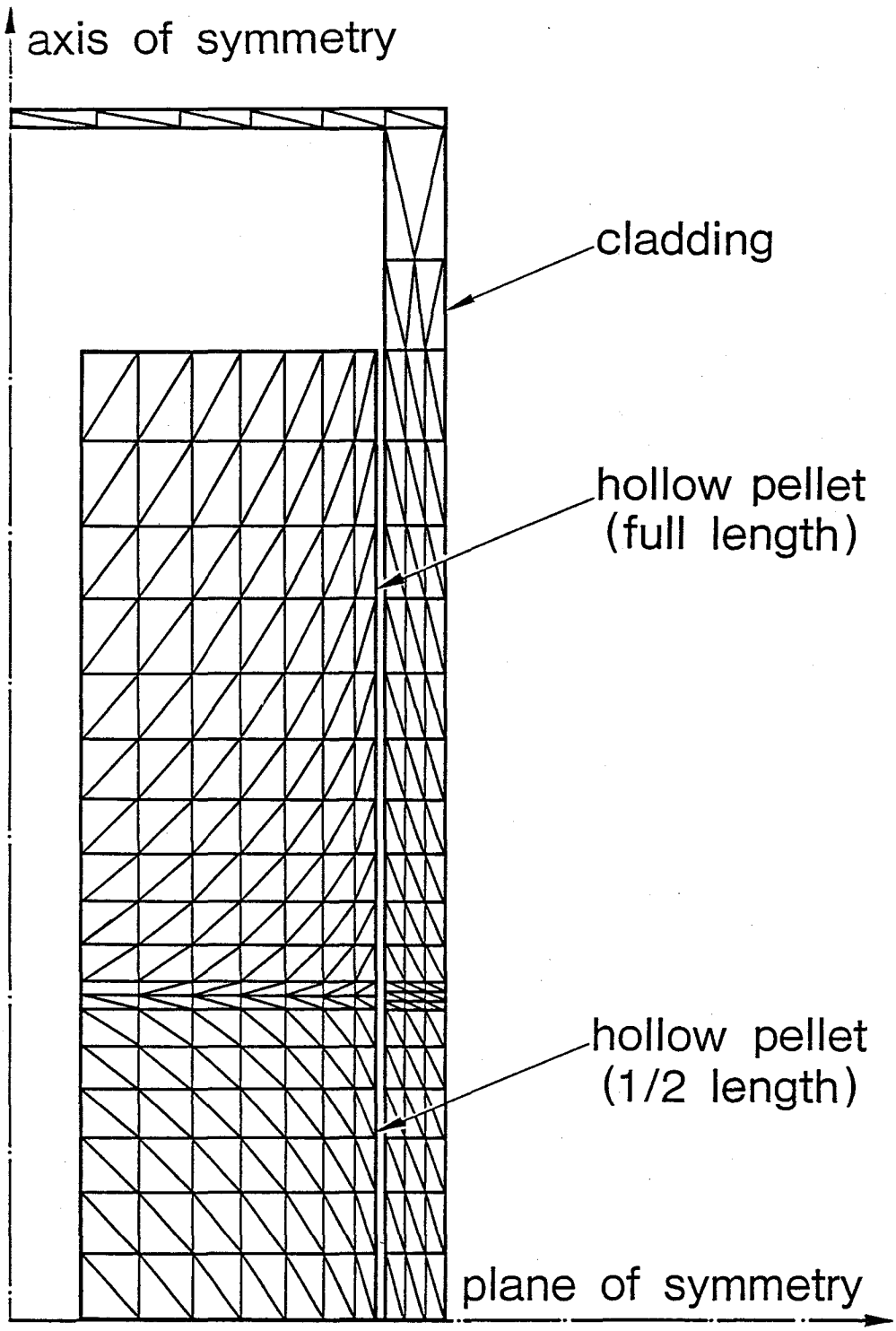


図 5.7　炉外ＰＣＩ模擬実験，燃料棒変形解析の有限要素モデル

4. 結果および検討

4.1 燃料棒のハードＰＣＩ挙動

図5.8は，炉外ＰＣＩ実験で得られた，出力２５０Ｗ／cmにおける燃料棒の軸方向直径プロファイルを，試験前後のプロファイルと比較して示したものである。なお，この燃料棒のギャップは５５μm，被覆管肉厚は0.９５mmである。試験前の燃料棒には僅かな変形が見られる。これは，被覆管製造時の曲り，偏平などによるものである。２５０Ｗ／cmで加熱中の燃料棒には，ペレットのそり返り変形に起因する明瞭なリッジがペレット端面に対応した位置に観察される。そして，これらのリッジは，試験終了後の燃料棒にも不明瞭ながら塑性変形として残されている。また，燃料棒の直径に関しても試験前に比べ試験後は僅かに増加しており，試験中ペレットが被覆管と全面的ＰＣＩを起こしていたことを示している。炉外実験の燃料棒と実際の燃料棒とでは，図5.6に示したようにそれぞれペレットの温度分布が異なるから，同一出力に対するＰＣＩ変形の絶対値は一致しないが，炉外実験で得られた出力上昇に伴うリッジ変形挙動は，照射実験などで観察される実際の燃料棒のそれと良く一致している。[15][16] このことから，中心加熱法による炉外ＰＣＩ実験は，実際の燃料棒のＰＣＩ挙動をかなり良く模擬していると言えよう。

図5.9は，被覆管の肉厚が一定（0.９５mm）で，ギャップが各々５５，１００，１５０μmと異なる燃料棒の出力３００Ｗ／cmにおける軸方向の直径増加量を，軸方向プロファイルとして示したものである。縦軸の直径増加量は，被覆管の熱膨張を含む値である。被覆管の熱膨張は，３００Ｗ／cmで約１１μmであるから，これを差し引いたものがＰＣＩによる変位となる。狭ギャップ（５０μm）燃料棒では，図5.8の加熱データと同様，ペレット端面部に対応した位置で明瞭なリッジが認められる。しかし，ギャップが増大するに伴いリッジは次第に不明瞭になってくる。ギャップが１５０μmになると，リッジの形成は不規則となり，燃料棒の直径も被覆管の熱膨張から予測される直径と差異が少なくなる。部分的に直径測定値が大きく落込む個所がみられるが，これは試験前の燃料棒取扱い時に，ペレット－ペレット間に空隙ができていたためと考えられる。

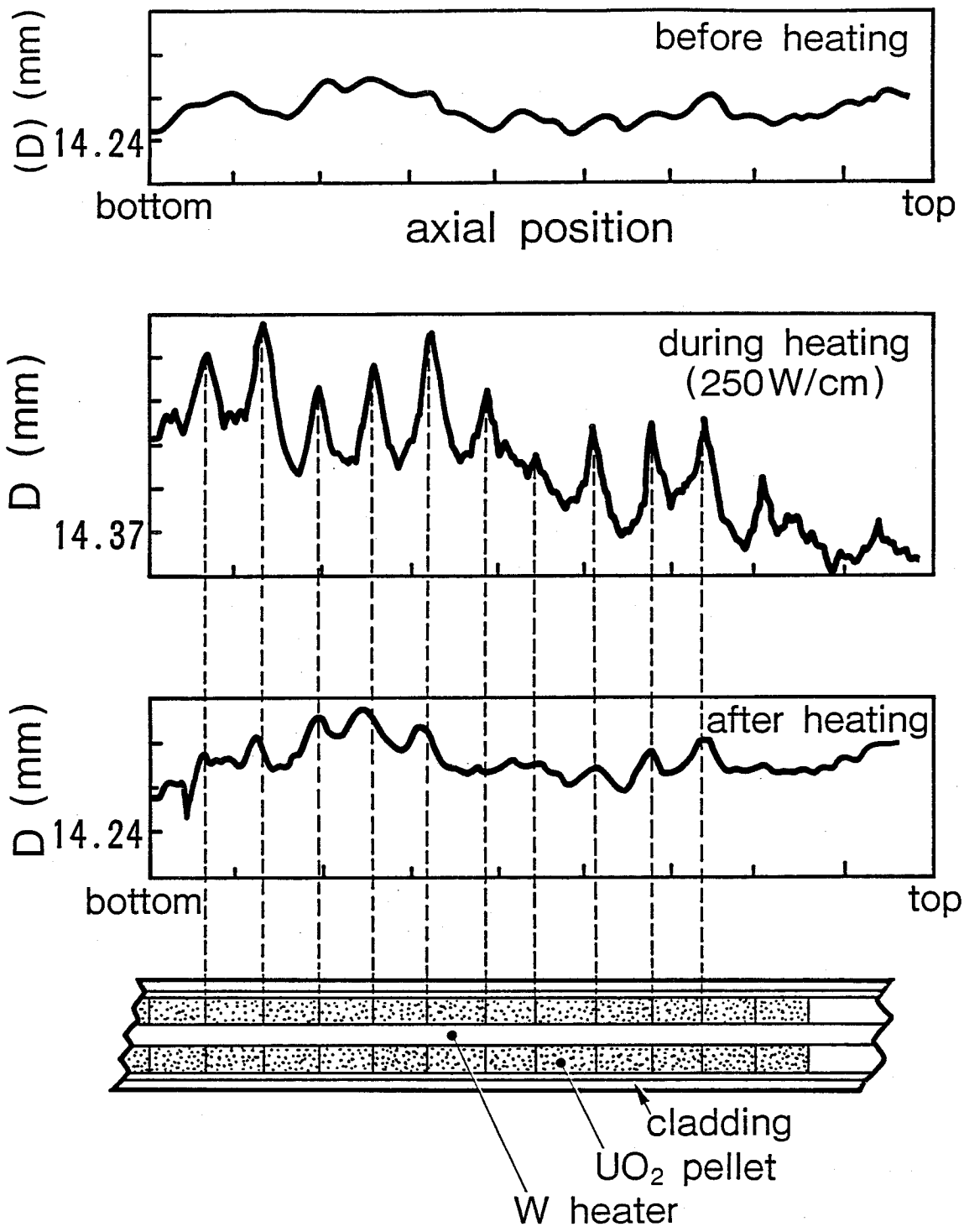


図 5.8　燃料棒の軸方向プロファイル

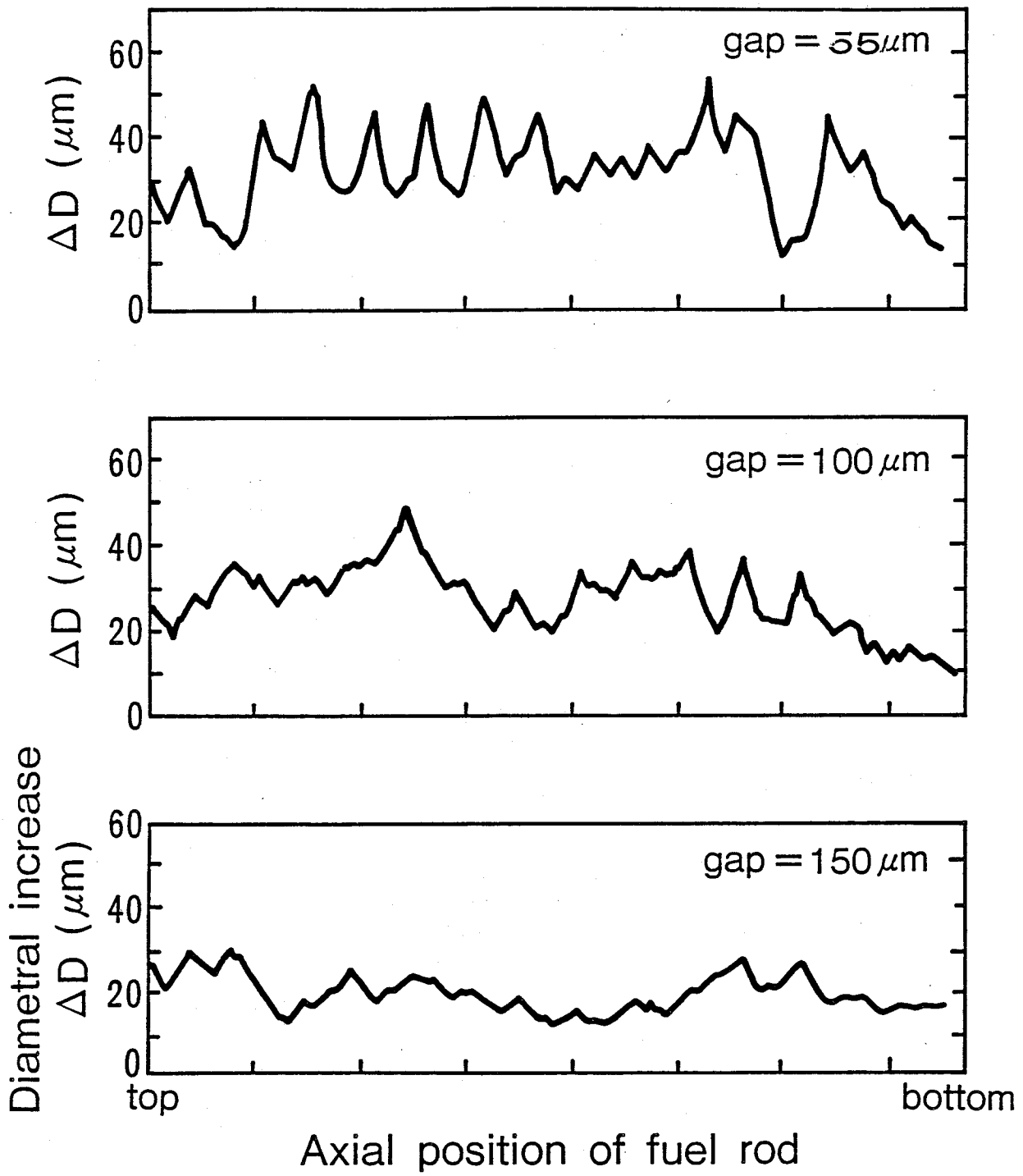


図 5.9　燃料棒のプロファイル（出力：３００W／cm）

図5.10は，これら燃料棒の出力上昇中における直径変化を示したものである。なお，縦軸の値は燃料棒の軸方向約１００㎜の区間（ペレット約５個分）測定値を平均したものである。**図5.10**から次のようなことがわかる。

(1) ギャップに無関係に，出力が約３０W／cm付近（図中，A点）で燃料棒の外径が被覆管の熱膨張より大きくなる。

(2) ギャップに無関係に，燃料棒の外径がほぼ一定の値（図中，点線）に達するとハードＰＣＩが発生する（同，B点）。

(3) ハードＰＣＩ領域の燃料棒外径変化率はギャップが増大すると減少する。

上記(1)の現象は明らかにＰＣＩによるものである。３０W／cmという出力レベルは，**図4.14**に示したように，炉外ＰＣＩ模擬実験燃料棒のペレット割れ出力に対応している。このことから，第４章で述べたように，ペレットは割れと同時にリロケーション（ペレットジャンプ）し，被覆管とソフトＰＣＩを開始することを示している。なお，本実験のペレット割れ出力，３０W／cmは実際のUO_2ペレットの割れ出力，約６０W／cm，（第４章参照）に比べると低い。これは，**図5.6**に示したように中心加熱ペレットの温度分布は，自己発熱ペレットに比べ同一出力でも，最高温度，中心－表面温度差とも高いためである。(2)の現象は，用いた被覆管の材質，寸法が全て同一であるから，一定のひずみに達するとハードＰＣＩが発生すること，言換えれば割れたペレットは一定の拘束力を受けると，見掛け上剛体のようになって被覆管に強い反作用を及ぼすようになることを示唆している。これについては次章で詳しく検討する。(3)の現象は，破片の集合体である割れペレットの機械的性質は自由空間（ギャップ）の大小に依存するであろうとの最初の仮定を裏付けている。

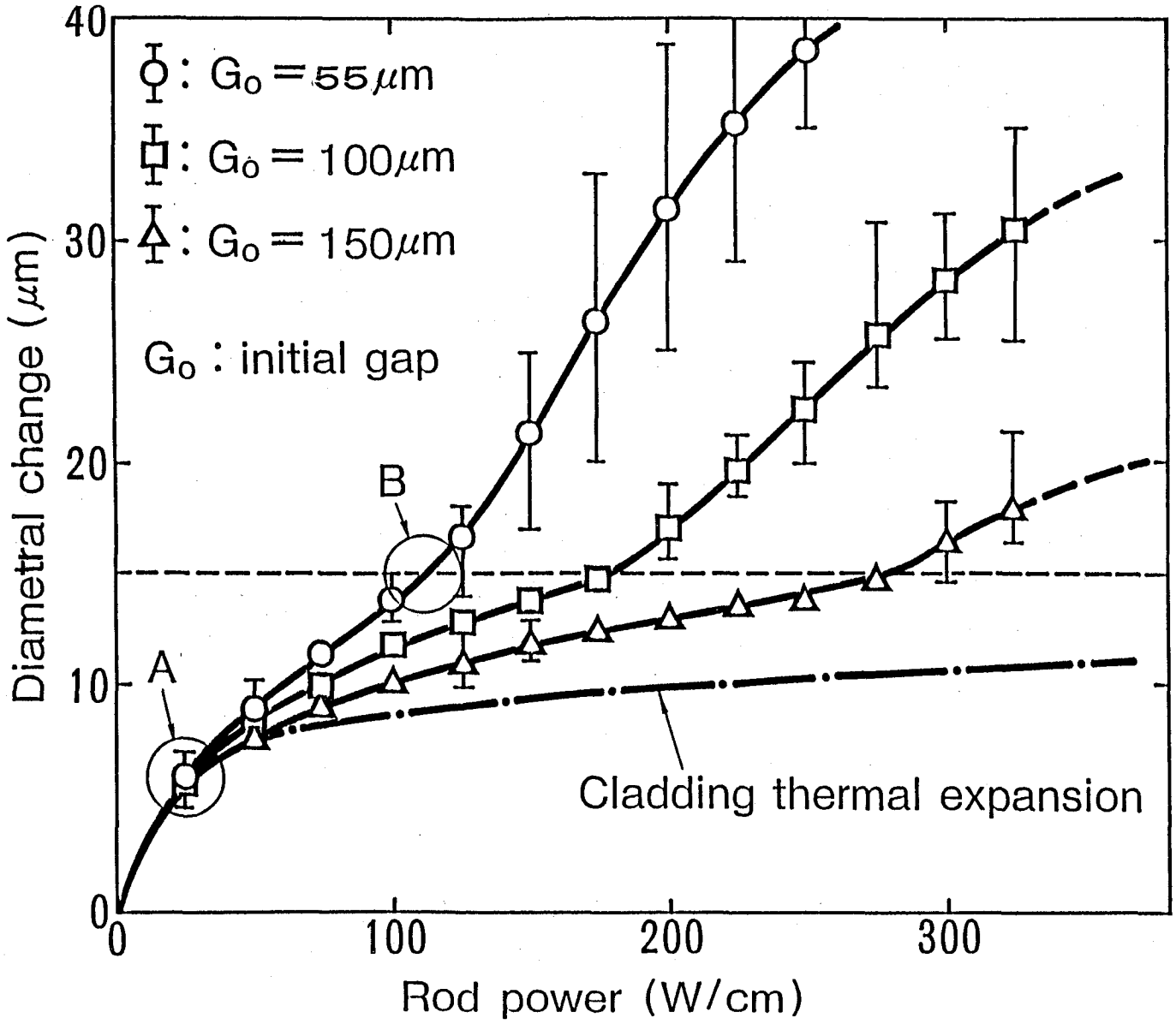


図5.10　燃料棒の外径変化（中心加熱実験）

図5.11に被覆管の肉厚がそれぞれ0.5，0.76，0.95㎜の燃料棒の出力上昇時における直径変化を示す。図から被覆管の肉厚が増加するにともない，ハードＰＣＩ領域の燃料棒直径変形が減少することがわかる。ハードＰＣＩを起こしているペレットが被覆管から受ける拘束力は，およそ45～55ＭＰａと推定される。[14] 本炉外実験のペレットは約950℃の最高体積平均温度を短時間経験するだけなので，ペレットのクリープは無視できる。したがって，もしペレットが割れていなければペレットの熱変形が被覆管の拘束力の大小によって影響を受けることはなく燃料棒のＰＣＩ変形も影響は受けないはずである。本実験でＰＣＩ変形が被覆管肉厚によって影響を受けたことは，ハードＰＣＩ領域の割れたペレットの剛性が低いことを示唆している。

図5.12は，ハードＰＣＩを経験したＰＣＩ模擬実験燃料棒の試験後の横断面と縦断面である。ペレットの横断面には太い半径方向クラックと細い不規則なクラックが多数観察される。また，縦断面も同様に縦方向，横方向に数多くのクラックが見られる。このように，ペレットは多数の破片に割れた状態でハードＰＣＩを起こすものと考えられる。

4.2　ハードＰＣＩ挙動と割れたペレットの実効弾性モデル

図5.13は，UO_2 ペレットのヤング率（Ｅ），およびポアソン比（ν）を，それぞれ$E'=E\sim E/50$，$\nu'=\nu\sim\nu/10$の範囲でパラメータとし，ＦＥＡＳＴコードにより燃料棒の直径増加とリッジ変形を解析した結果の一例である。この結果から，Ｅあるいはνのいずれを減少させても燃料棒の直径増加量が減少するから，図5.1に示したハードＰＣＩ領域における燃料棒直径変形の実測値と解析値の差を縮少できると予想される。次に燃料棒のリッジ変形に対するＥおよびνの応答性をみると，図5.13の$E'/E=0.05$あるいは$E'/E=0.02$で観察されるように，リッジの形はＥよりもνによって強い影響を受けることがわかる。そこで，先ずＥを固定しνをパラメータとしてＰＣＩ模擬実験燃料棒のリッジ変形を解析し，実験データと比較することにより最適なν（以下，これをν'モデルと言う）を求めた。

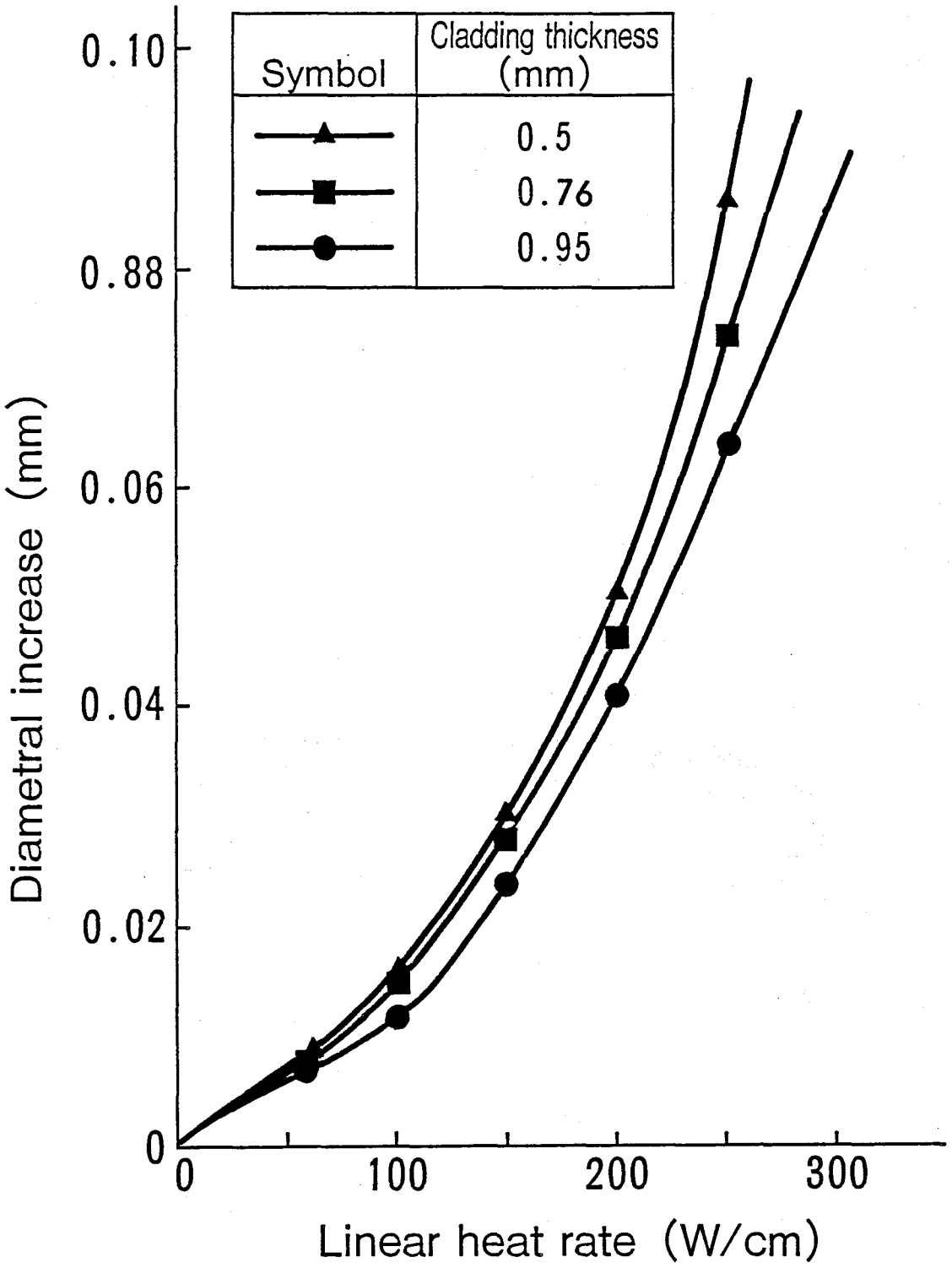


図 5.1 1　燃料棒の出力上昇時の外径変化

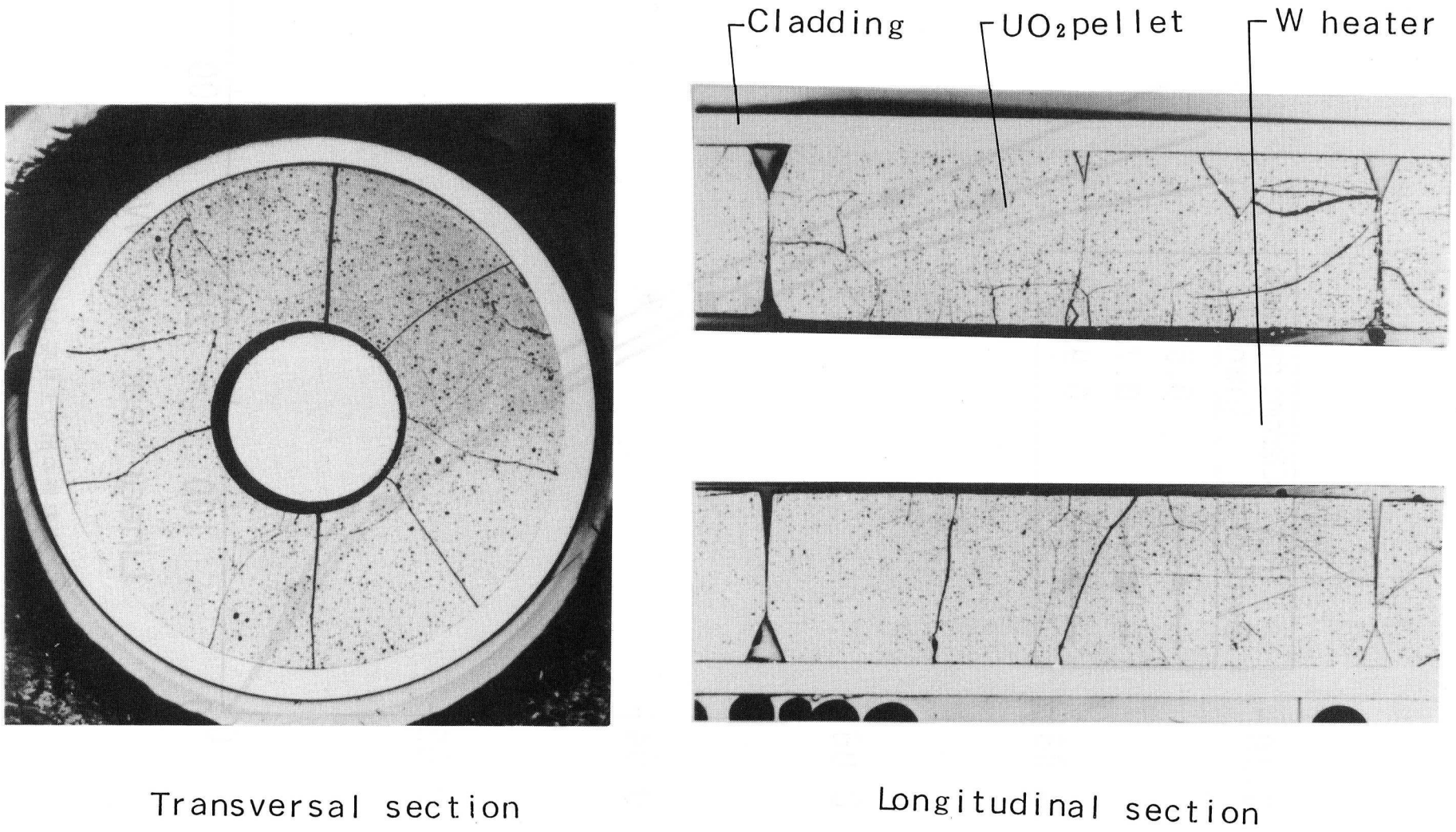
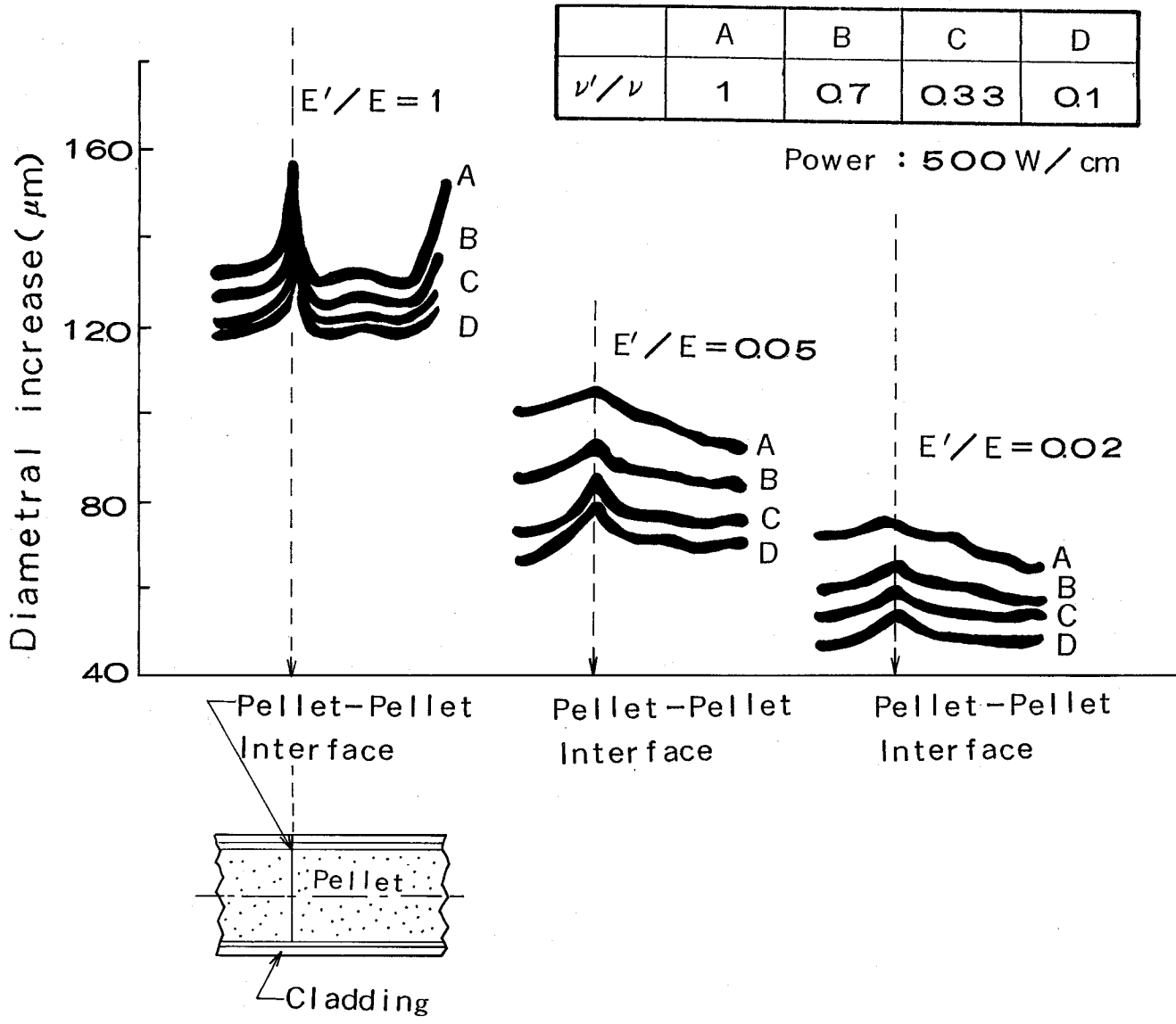


図 5.1 2　試験後の燃料棒の横断面および縦断面



	A	B	C	D
ν'/ν	1	0.7	0.33	0.1

図5.1 3　燃料棒の直径増加およびリッジ変形に及ぼす実効ヤング率，ポアソン比の影響

図5.1 4はそのような方法で求めたν'（$\nu' = 0.3\nu$）を用いて，別のＰＣＩ模擬実験燃料棒（ギャップ：３５μｍ，被覆管肉厚：0.９５㎜）のリッジを予測し，これを実測データと比較したものである。図の上段が燃料棒軸方向の直径プロファイルで，各々のリッジに対応して記号ａ～ｋを付けてある。図の下段はａ～ｋのリッジを一つにまとめて表わしたものである。また，実線は予測値である。実測データは広くばらついている。これはペレットの不確定な割れ挙動に起因すると考えられる。予測値は実測値のやや下方に位置しているが，ほぼリッジ形状を表現していると言えよう。

次に，上記で得た ν' を固定し，Eと熱膨張率（α）の内の一方を交互に減少させる方法で，出力と燃料棒の直径増加の関係を調べた。図5.15は，α を $\alpha'=\alpha/2$ とした場合（以下，α' モデル），図5.16は，Eを $E'=E/35$ とした場合（以下E′モデル）である。これらの結果から，出力に対する燃料棒の直径増加率はE′モデル，α' モデルのいずれにおいても緩やかにできることがわかる。しかし，被覆管肉厚に対する燃料棒直径変形の応答性が両モデルで異なっている。

そこで，被覆管肉厚と燃料棒の直径増加の関係について，炉外ＰＣＩ模擬実験の実測値（図5.11）とE′モデルおよび α' モデルを用いた計算値（図5.15，図5.16）とを比較した。図5.17はその結果を示したもので，被覆管の肉厚が0.5㎜の燃料棒の出力２５０Ｗ／㎝における直径増加量を１とし，被覆管肉厚増加による直径増加の変化を相対値で表わしている。

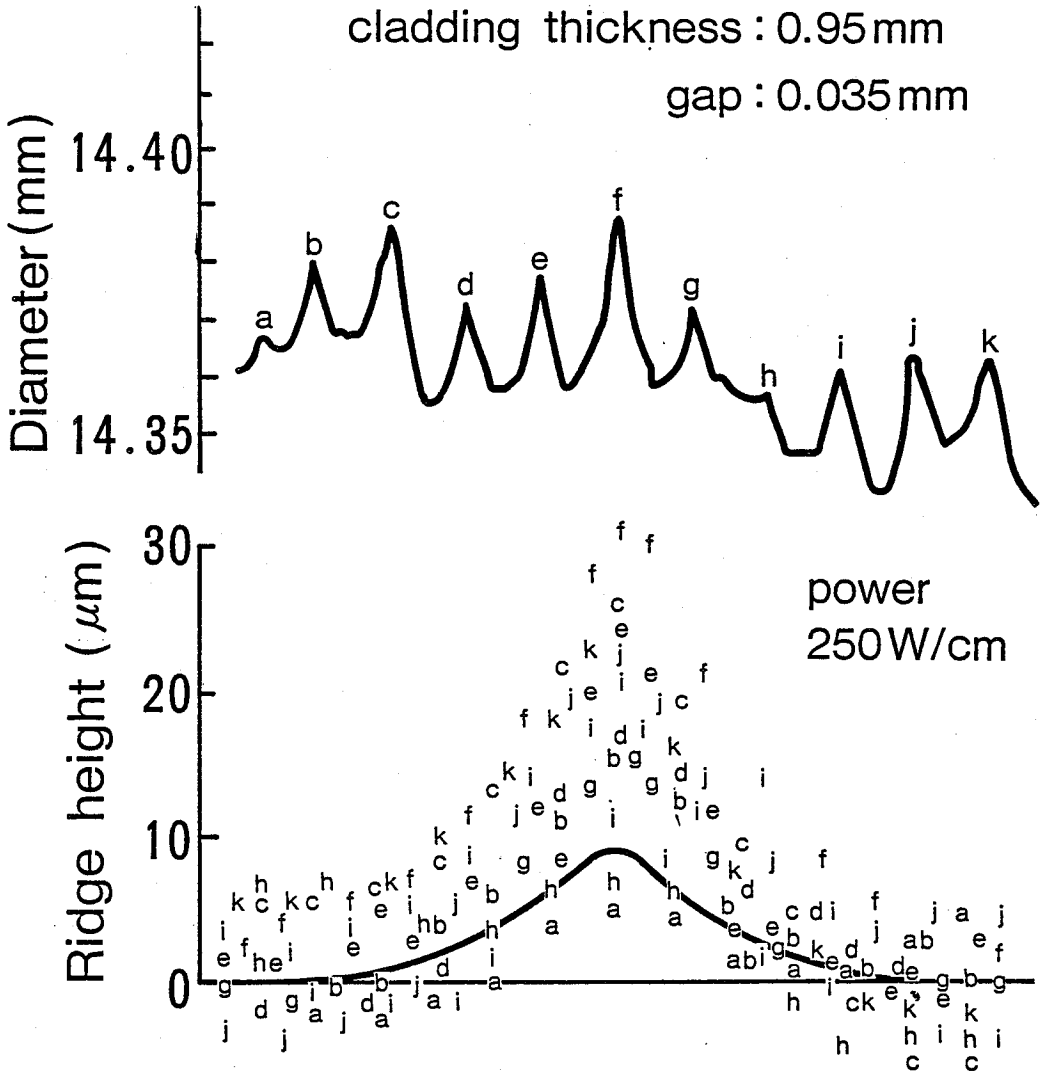


図5.14　リッジ形状の予測値と実測値の比較（ν' モデル）

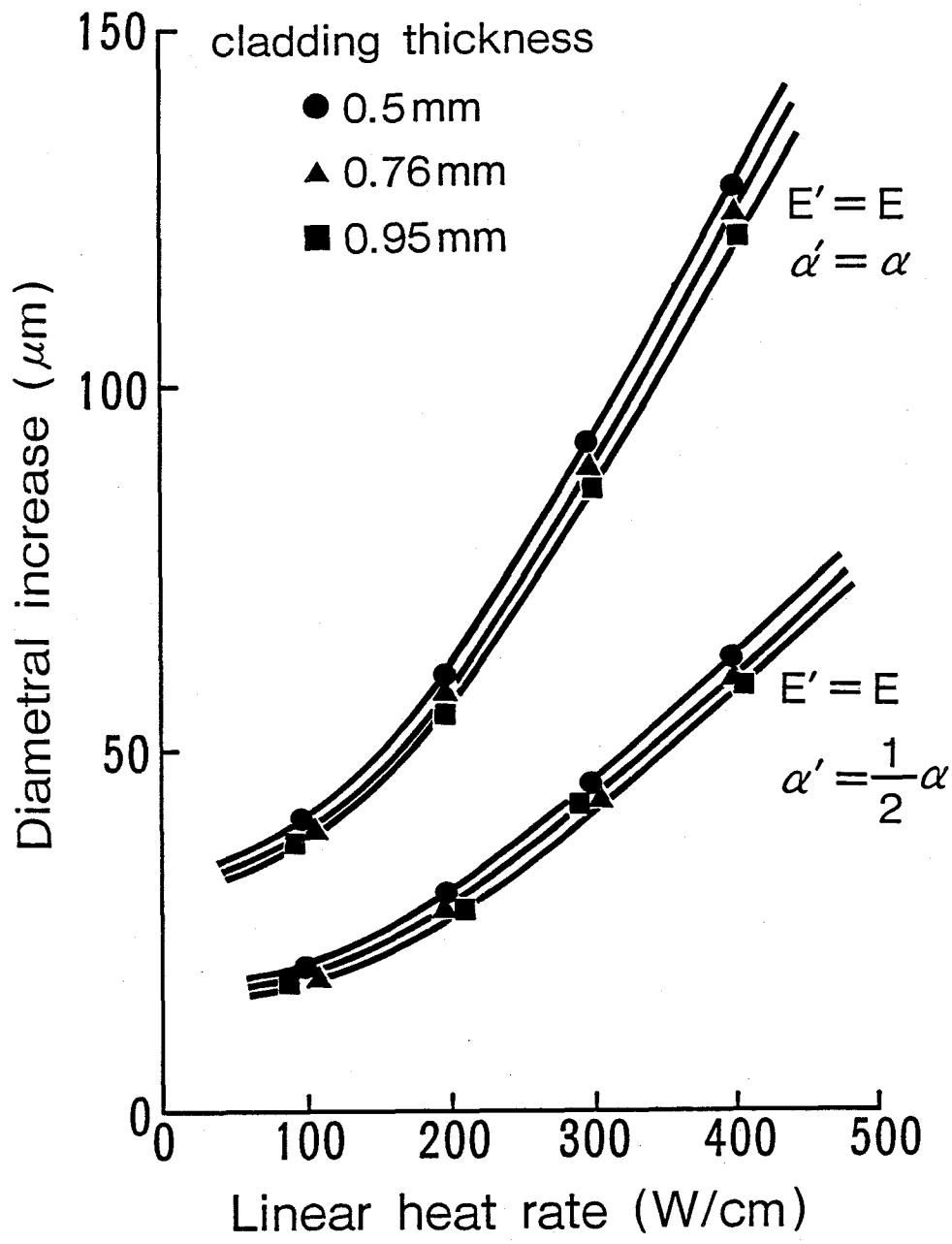


図 5.1 5　実効熱膨張率と被覆管肉厚

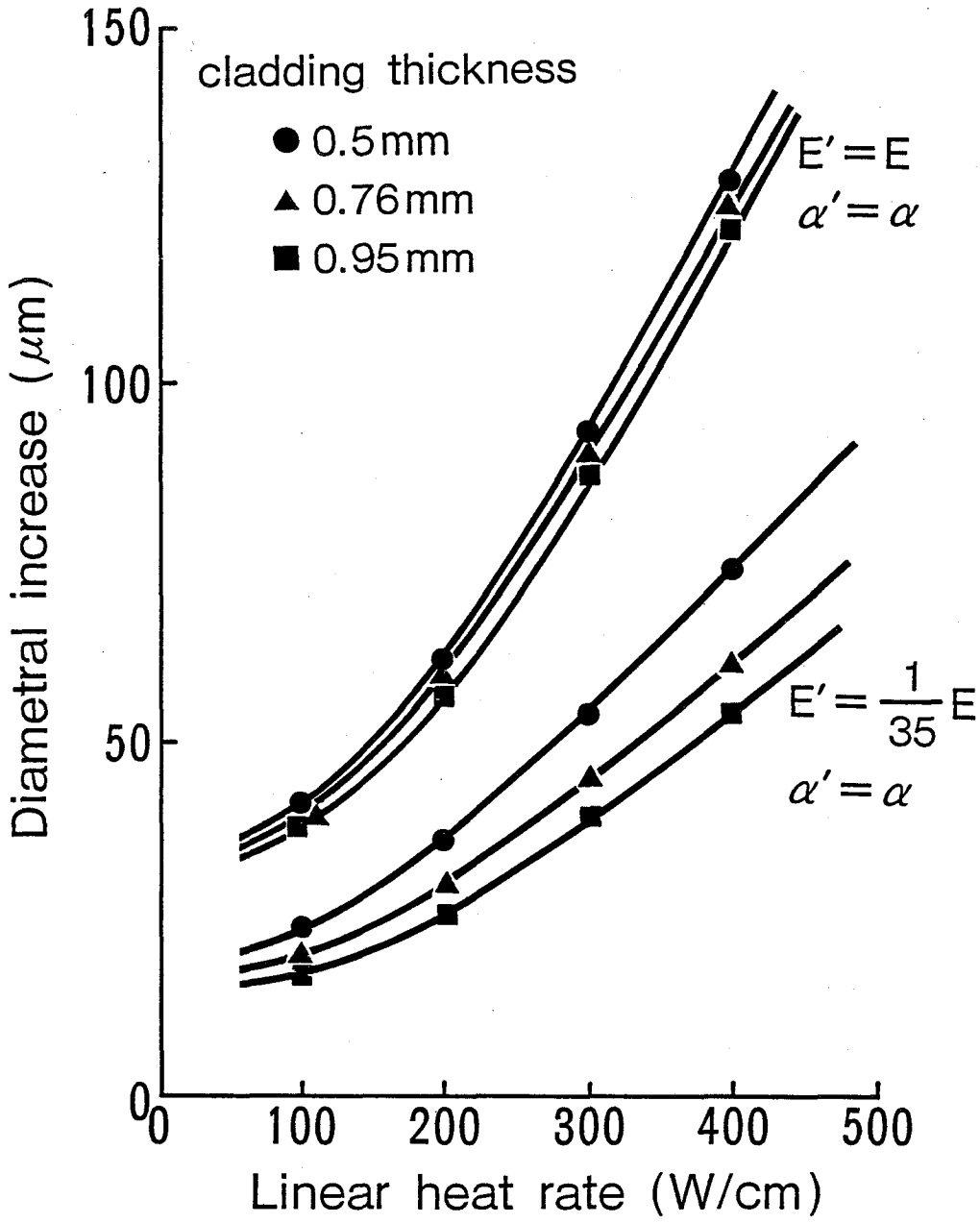


図 5.1 6　実効ヤング率と被覆管肉厚

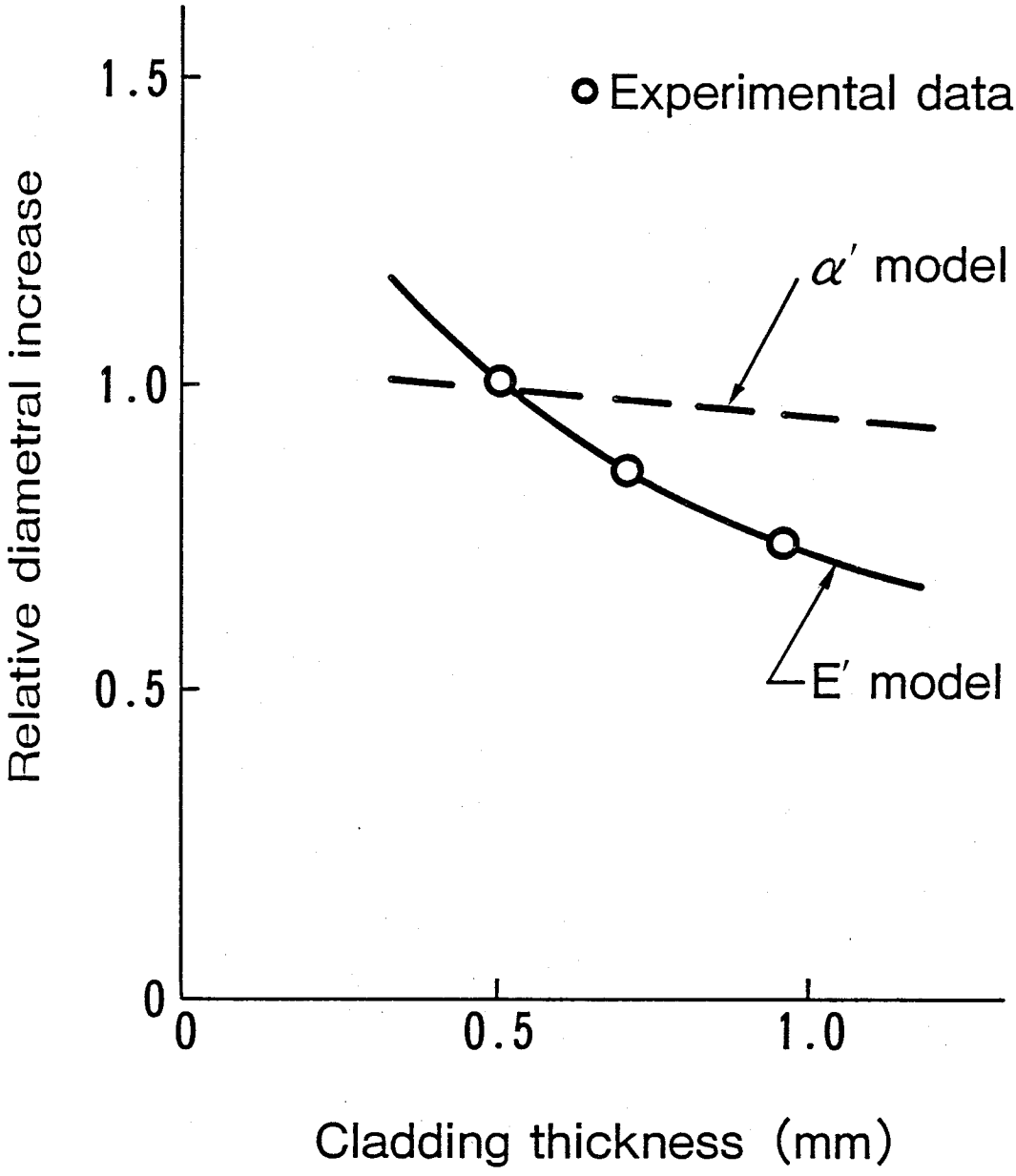


図5.17　被覆管肉厚の燃料棒直径変化に対する応答性，実験値（炉外ＰＣＩ模擬実験）と計算値（実効弾性モデル）との比較

この図から被覆管肉厚が0.5～0.95㎜の範囲にある燃料棒の直径変形は，α'モデルでは表現できないのに対し，E′モデルは実験値に良く合っていることがわかる。この結果から，割れペレットの実効的な変形モデルとしては，E′モデルを採用するのが妥当と考えられる。

ところで，破片の集合体である割れたペレットの実効的なヤング率（E′）は，被覆管内の空隙（ギャップ）の大小に依存すると考えられる。そこで次のような方法によりE′のギャップ依存性を調べた。まず炉外実験データ（図5.10）および燃

料棒直径測定照射実験データ[17]からハードＰＣＩ領域（出力が３００～４００Ｗ／cmの領域）の単位出力あたりの直径ひずみ増加率とギャップとの関係を調べ，次式を得た。

$$\frac{d\varepsilon}{dP} = 9.3\times10^{-5}\ exp\{-4.8\times(\frac{G_0}{D})\} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots \quad (5-3)$$

ここで，$d\varepsilon/dP$：単位出力あたりの燃料棒直径ひずみの増加率（cm／W）

G_0　　：初期ギャップ（μm）

D　　：被覆管内径（mm）

である。

次に，ＦＥＡＳＴコードを用いてν'を$\nu' = 0.3\nu$と固定し，E'/Eをパラメータにして出力３００～４００Ｗ／cmにおける燃料棒の直径変形解析を行い，E'/Eと$d\varepsilon/dP$との関係を求めた。図**5.18**にその結果を示す。

図からE'/Eは次式のように与えられる。

$$\frac{E'}{E} = 1.13\times10^{7}\ (\frac{d\varepsilon}{dP})^{1.67} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (5-4)$$

（５－４）式に（５－３）式を代入することにより，割れたペレットの実効的ヤング率E'は次式で表わされる。

$$E' = 2.1\cdot E\ exp\{-8.0\times10^{-2}\ (\frac{G_0}{D})\} \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots \quad (5-5)$$

最後にこのように導入したν'およびE'モデルが照射中の燃料棒のハードＰＣＩ挙動をどの程度正しく予測するかを調べるため，これらのモデルを実効弾性モデルとしてＦＥＡＳＴに組み込み，このコードでＨＢＷＲで実施された直径測定実験の燃料棒を対象に変形解析を行い，解析結果を直径測定データと比較した。図**5.19**は，解析に用いた有限要素モデルである。比較結果を図**5.20**に示す。図から実効弾性モデルは照射中の燃料棒のハードＰＣＩ挙動を良く表現していることがわかる。

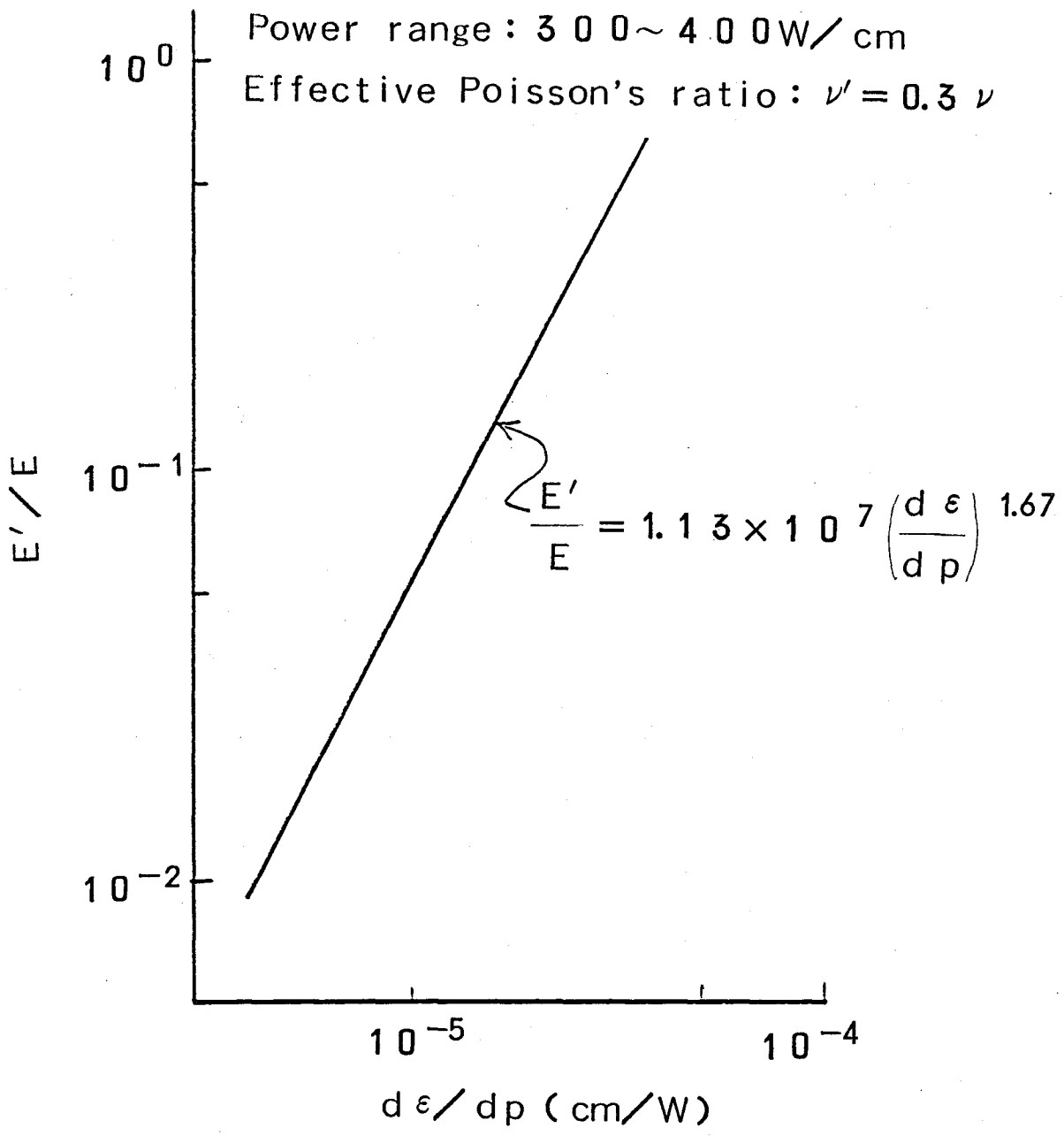


図5.18　燃料棒の直径ひずみ増加率（dε／dP）
とペレットの実効ヤング率（E′）の関係
（FEASTコードによる解析）

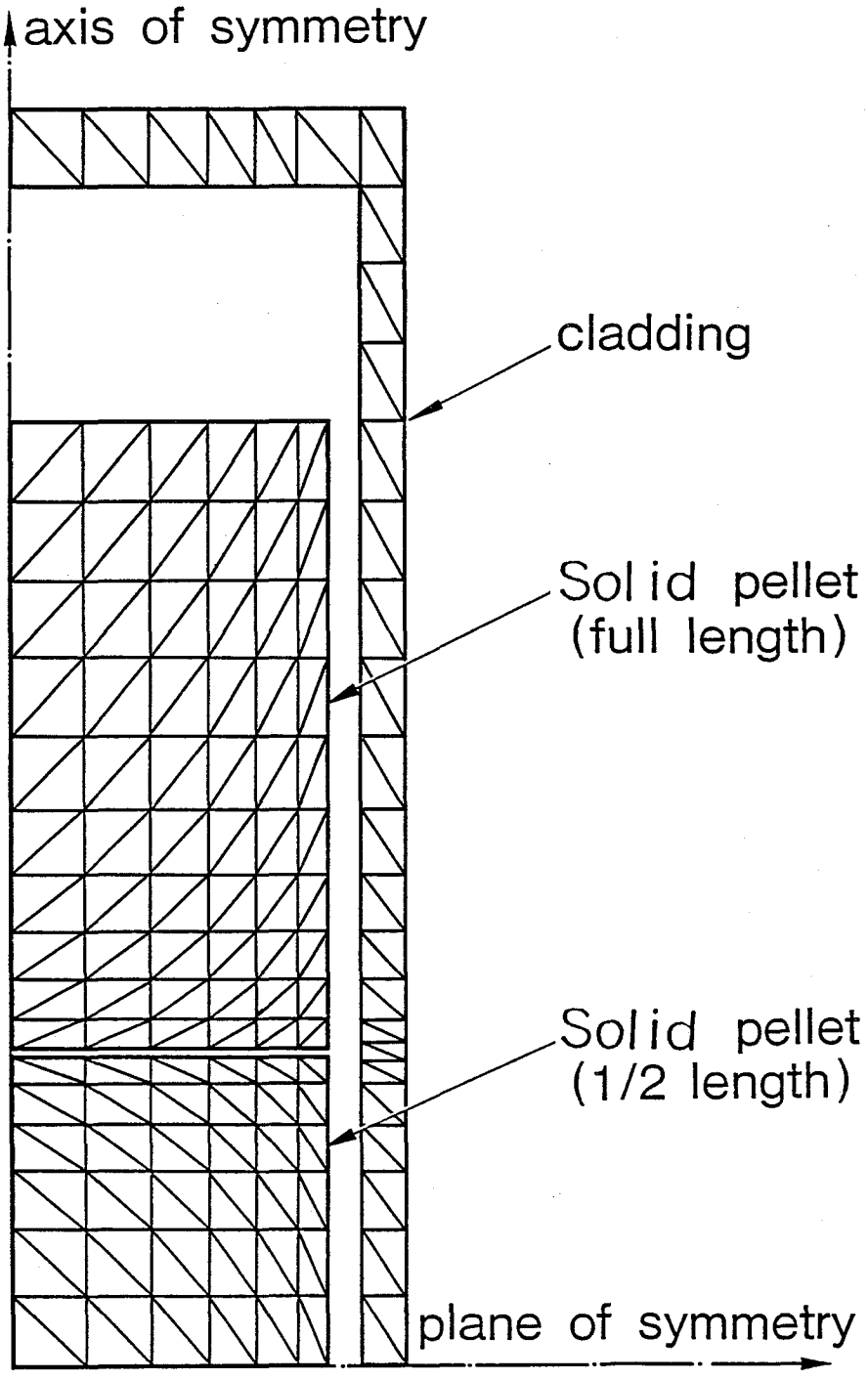


図 5.1 9　燃料棒変形解析有限要素モデル

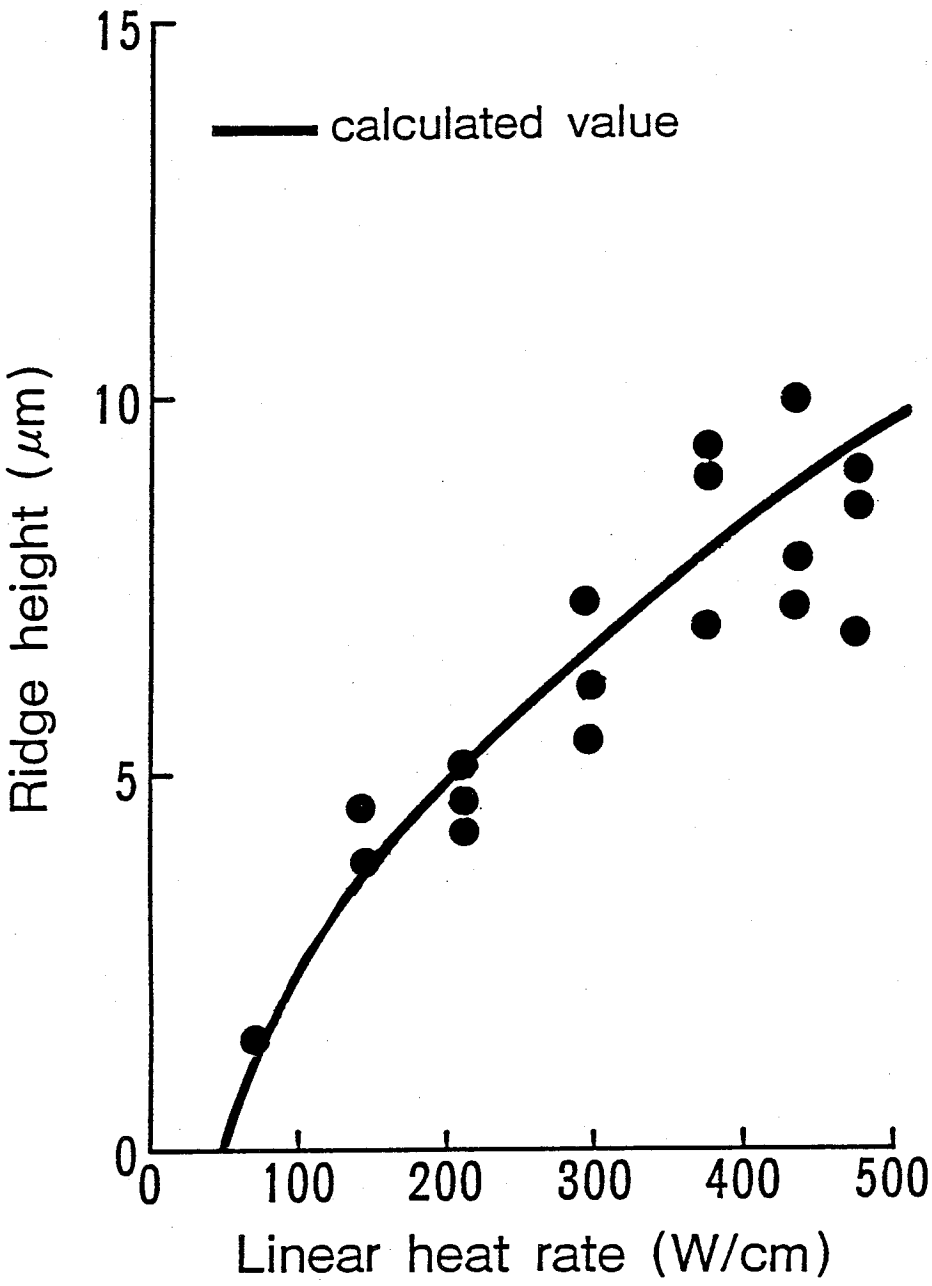


図 5.2 0　燃料棒変形（リッジ高さ）の炉内の実測値と実効弾性モデルによる計算値の比較

5. 結　言

ハードＰＣＩ領域における割れたペレットの実効的な変形モデルを検討した。ここでは，割れたペレットを破片が集まった１個の集合体と仮定し，これに実効的な機械的性質を与えるという方法を採用した。この機械的性質を見い出すため，中心加熱法による炉外ＰＣＩ模擬実験と燃料挙動解析コードによる燃料棒のＰＣＩ変形解析を行った。

(1) 炉外ＰＣＩ模擬実験では，燃料棒の設計仕様（ギャップや被覆管肉厚）とハードＰＣＩ挙動（直径増加やリッジ形成）の関係を調べた。その結果，燃料棒の直径増加やリッジ高さはギャップや被覆管肉厚の増加とともに減少することがわかった。

(2) 燃料棒のＰＣＩ変形解析ではUO_2ペレットのヤング率，ポアソン比，熱膨張率と燃料棒のハードＰＣＩ挙動との関係を調べた。その結果，ポアソン比（ν）は燃料棒のリッジ変形に強く関与する物性値であり，特に割れたペレットの実効的なポアソン比（ν'）を$\nu' = 0.3\,\nu$とするとハードＰＣＩのリッジ変形を良く表現すること，熱膨張率は燃料棒の直径増加率に影響を与えるが，変形に対する被覆管肉厚の影響を十分表現できないことがわかった。これに対し，ヤング率は燃料棒の直径増加率および直径増加に対する被覆管の肉厚効果の両方に強く影響を与える物性値であることが確認された。

(3) 炉外実験とＰＣＩ変形解析の結果から，割れペレットの実効的な変形モデルとして，実効ヤング率モデルを導入した。割れたペレットの実効ヤング率E'（Ｍｐａ）は初期ギャップをG_0（μｍ），被覆管内径をＤ（㎜）とすれば下式で与えられる。

$$E' = 2.1 \cdot E \exp\left\{ -8.0 \times 10^{-2} \left(\frac{G_0}{D}\right) \right\}$$

(4) 上記，ν'およびE'を取り入れた燃料挙動解析コードは，照射中の燃料棒のハードＰＣＩ変形挙動を良く表現した。

6. 参考文献

(1) E. Dumcombe et. al.: CYGRO-3.A computer programme to determine temperature, stress and deformations in oxide fuel rods, WAPD-TM-961 (1970)

(2) E. Rolstad and S.E. Wennemo, : Status of POSHO-TERMAL Fuel Performance Model: IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modeling, Preston, UK (1982)

(3) M.P. Bohm: NUREG-1028 (1977)

(4) K.Ito, M.Ichikawa, T.Nakajima, M.Sogame, T.Okubo and T.Saito: A comparison of FEMAXI-III code claculations with irradiation experiments, Res Mechanica 2 (1981)

(5) D.D. Lanning, F.E. Panisko, C.L. Mohr : "Gapcon-Thermal-3 Verification and Comparison to In-Reactor Data", PNL-2435 NUREG/CR-0218, R1 & R3 (September 1978)

(6) K.Ito, M.Ishida, and M.Oguma: "FEAST": A Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-mechanical Fuel Rod Behavior, Paper Presented at the Enlarged HPG Meeting Loen, 1978

(7) M. OGUMA : Cracking and Relocation Behavior of Nuclear Fuel Pellets during Rise to Power; Nucl. Eng. Des., 76, 1 (1983)

(8) K.Ito, Y.Wakashima and M.Oguma: Pellet compliance model based on out-of-pile simulation, Nucl. Engrg. Des. 56 (1980) 117.

(9) 藤江，小熊，新保，牧，河原：沸騰水型原子炉（ＢＷＲ）燃料に対する信頼性向上の研究現状；日立評論，６０〔２〕，（１９７８）

(10) M. Jacob and K. A. Rees : Trans. Amer. Inst. Chem Engrgs., 37 (1941)

(11) A.M. Ross and R.L. Stoute : Heat Transfer Coefficient Between UO_2 and Zircaly-2: CRFD-1075 (June 1962)

(12) A.D. Appelhans, S.J. Dagdjartsson and R.W. Miller,: Cracking and relocation of UO_2 fuel during initial nuclear operation, NUREG/CR-425 (1980).

(13) N. Igata and K. Domoto : J. Nucl. Mater., 45, 317 (1972/73)

(14) MATPRO Version-09: A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior, TREE-NUREG-1005, 1976

(15) K.O. Villponnen, et al. : IAEA Specialists' Meeting, Riso, (1980)

(16) M.Ichikawa, K.Yanagisawa and E.Koistad: "Studies on Radial and Axial Deformation of Fuel Rods by Inpile Measurements"; International Atomic Energy Agency Specialists' Meeting on, PELLET-CLADDING INTERACTION IN WATER REACTOR FUEL, (1983)

(17) 小熊，細川：燃料棒照射初期のギャップ解析とリロケーションモデル；日本原子力学会分科会（昭和５３年）

(18) 小熊，他：グラファイトコーティング燃料棒のＰＣＩ炉外実験；日本原子力学会年会（昭和５５年）

第6章　ペレットと被覆管相互作用の開始条件

1. 緒　　言

燃料挙動解析コードで燃料棒のＰＣＩ挙動を解析する場合，ハードＰＣＩによって被覆管に発生する応力やひずみは，前章で述べた割れたペレットの機械的性質だけでなく，ハードＰＣＩがどの時点（出力）で発生したかによっても影響を受ける。[(1)～(3)] したがって，このハードＰＣＩ開始出力の正確な予測が燃料挙動モデリングの最も重要な課題の一つとなっている。[(4)～(6)] 第4章で導入したギャップ閉塞モデルは，図4.19に示したように出力上昇に伴いギャップがどのように閉塞してゆくかということを予測するが，ハードＰＣＩは実効的なギャップがある正の値“G_h”に減少したとき発生することになるので，このギャップ閉塞モデルからどの時点でハードＰＣＩが起こるかを予測することはできない。

本章の研究は，ハードＰＣＩ開始点を求めることを目的に行ったものである。ハードＰＣＩ開始点は，割れたペレットの破片同志が互いに不整合な噛み合いを生じ，その部分に多数の空隙を残した状態で破片同志が固着したときであると考えられる。そこで，ここでは割れたペレット片相互間の摩擦力とせん断力とからペレット片の固着条件を解析的に求める方法と，燃料棒横断面における空隙率（void ratio）の概念を導入しハードＰＣＩが発生する臨界空隙率（critical void ratio）をＰＣＩ実験データから求める実験的方法の2種類の方法について検討を行った。後者の臨界空隙率はハードＰＣＩ発生時において，被覆管横断面の内側の全面積に対する全空隙面積の割合であり，ハードＰＣＩが発生する実効的残留ギャップG_hに対応するものである。

2. ハードＰＣＩ開始条件の解析的検討

第4章で述べたソフトＰＣＩは，被覆管と接触したペレット片と接触していないペレット片との間ですべりが起こり，被覆管の抗力がペレット全体に伝達されない状態である。これに対し，ハードＰＣＩはペレット片相互のすべりが抑制され，剛体のように被覆管の拘束力をペレット全体が受けるようになった状態と考えられる。以下，ハードＰＣＩ開始条件を解析的に検討する。

解析にあたって，まず次のような仮定を置いた。

(1)　ハードＰＣＩは，ペレット片相互間の固着によって生じる。

(2) ペレット片の固着は，ペレット片－ペレット片接触面に生じる摩擦力がUO_2のせん断力に等しくなったときに発生する。[7]

(3) ペレットは図**4.1 3**に示したような，一定の幾何学的パターンで割れる。

2.1 ペレット片－ペレット片接触面に作用する垂直抗力

図**6.1**に，割れたペレットの横断面の幾何学的モデルを示す。図から，被覆管と接接触する一個のペレット片に加わる外力F_{PCI}と接触面に生じる摩擦力F_X，垂直抗力Wとの関係は，次のように表わされる。

$$F_{PCI}=F_1\cos\theta+F_2\cos\theta+W_1\sin\theta+W_2\sin\theta \quad \cdots\cdots \quad (6-1)$$

幾何学的対称性から，$W_1=W_2=W$，$F_1=F_2=F_X$である。そして，接触面の摩擦係数をμとすれば，垂直抗力Wは次式で与えられる。

$$W=F_{PCI}/2(\mu\cos\theta+\sin\theta) \quad \cdots\cdots \quad (6-2)$$

摩擦係数μは，図**6.2**のような接触面の凹凸を仮定すると，（6－3）式となる。[8]

$$\mu=\mu_0+\tan\lambda \quad \cdots\cdots \quad (6-3)$$

但し，μ_0はUO_2－UO_2の摩擦係数である。また，$\tan\lambda$は表面の凸部を乗り越えるための荷重成分である。

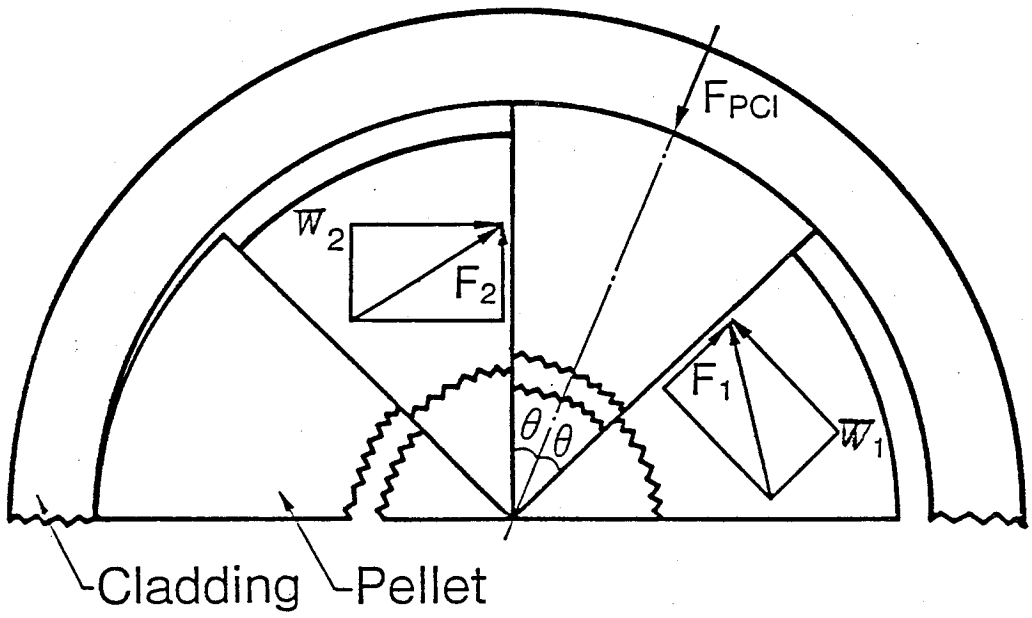


図 6.1　割れたペレットの横断面（模式図）

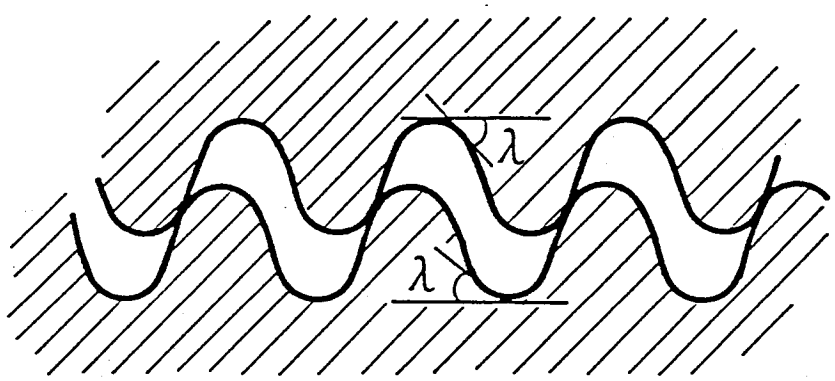


図 6.2　ペレット破面の凹凸

2.2　接触面の真の接触面積

一般に，接触している2平面の接触面を微視的に観察すると，真に接触しているのは各々の面に存在する凸部である。ペレット破面の凸部が，全て等しい半径 r_0 の半球で構成されていると仮定し，互いに接触する1対の凸部を模式的に示したものが図 6.3 である。

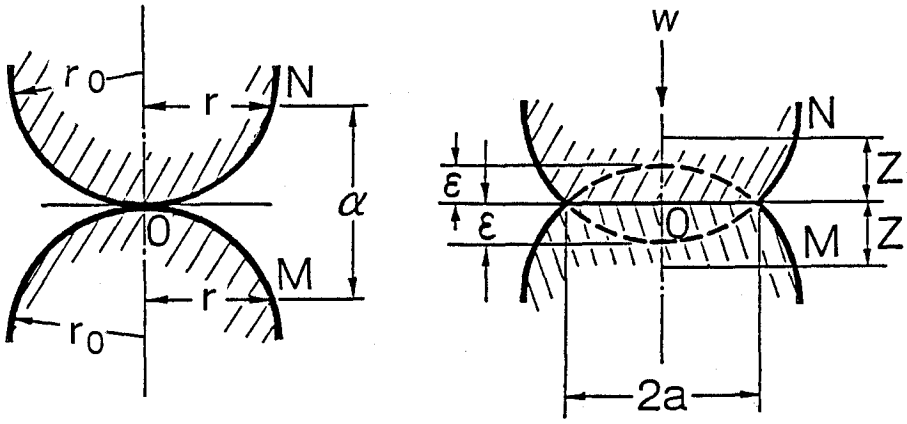


図 6.3　接触面の1対の凸部が垂直力で弾性変形する場合の概念図

図に示すように垂直方向荷重 w によって凸部が互いに弾性的に潰れると仮定する。図から次のような関係が得られる。

$$\alpha = 2\varepsilon + 2Z \quad , \quad Z = r^2 / 2r_0 \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (6-4)$$

ここで，α ：半球の任意の2点M，N間の距離

ε ：半球が潰れたときその場所における半径の減少分

Z ：M点またはN点と半球接触部との距離

r ：2個の半球の接触点における法線とM点またはN点との距離

である。

M点またはN点における変位 ε は，球－球接触の弾性論より次式で与えられる。[9]

$$\varepsilon = \frac{(1-\nu^2)}{\pi E} \iint \frac{q}{r} \cdot dA \qquad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (6-5)$$

ここで，ν　：UO_2 ペレットのポアソン比

E　：UO_2 ペレットのヤング率

q　：接触面に作用する圧力

dA：接触面上の微小面積

である。

（6－4），（6－5）式から（6－6）式が得られる。

$$\frac{(1-\nu^2)}{E}\cdot\frac{q_0\pi}{2a}(2a^2-r^2)=\alpha-\frac{r^2}{r_0} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (6-6)$$

ただし，a：半球同志の潰れによって形成される接触部の半径

q_0：半球の先端部分の圧力

である。ここでq_0は，$q_0=3w/2\pi a^2$で与えられる。これを（6－6）式に代入し整理すると，接触部の半径aは次のように表わされる。(7)

$$a=\left(\frac{3}{4}\cdot\frac{1-\nu^2}{E}\cdot r_0\cdot w\right)^{\frac{1}{3}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (6-7)$$

このような互いに接触する凸部が接触面にn個存在すれば，接触面の真の接触面積Aは

$$A=n a^2\pi \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (6-8)$$

である。いま，半径r_0の凸部（半球）が接触面上で密に配列しているとすれば，接触面の面積に対する凸部の投影面積の比Xは，簡単な幾何学的計算から$X=\pi/4$と近似される。ペレットの半径，高さをそれぞれR，Lとすれば，破面，すなわち接触面に存在する凸部の数nは次式で与えられる。

$$n=RL/4r^2 \quad \cdots\cdots\cdots\cdots (6-9)$$

すなわち，垂直力Wによるペレット片ーペレット片接触面の真の接触面積Aは，（6－8）式に（6－9）式，（6－7）式および$w=W/n$を代入することによって次のように与えられる。

$$A = \frac{3\pi}{4} \{ R \cdot L (\frac{1-\nu^2}{E})^2 W^2 \}^{\frac{1}{3}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (6-10)$$

以上の検討は，接触する凸部は垂直抗力によって弾性的に変形するとの仮定に基づいている。もし，凸部の変形が塑性変形であれば，（６－１０）式は成立しない。すなわち，弾性変形であれば$A \propto W^{\frac{2}{3}}$であるのに対し，塑性変形では$A \propto W$となる。[8][10] しかし，面と面の圧接や摩耗の研究結果によれば，接触面ではまず最初に突出した少数の凸部が塑性変形によって潰れ，やがて細い多数の凸部によって荷重が支えられるようになる。そして，このような多点接触下では，凸部の弾性変形でこれらの接触現象を説明できるとされている。[10][11] このことから，実際のUO_2ペレット破面においても表面の凸部の変形を弾性変形と仮定しても妥当と考えられる。

2.3 ハードＰＣＩ開始条件

最初に仮定したように，ハードＰＣＩはペレット片－ペレット片接触面に生じる摩擦力F_Xが，真の接触部分をせん断するのに必要なせん断力F_Yを越えたとき発生するとして，その条件を求める。まず接触面の摩擦力F_Xは，図**6.1**から，

$$F_X = W\mu \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (6-11)$$

である。せん断力F_Yは，UO_2のせん断強度をτとすれば，$F_Y = A \cdot \tau$である。これに，（６－１０）式の真の接触面積Ａを，さらにUO_2のポアソン比$\nu = 0.3$[12]を代入すれば，F_Yは次式で与えられる。

$$F_Y = 2.21 \cdot R \cdot L \cdot (\frac{W}{E})^{\frac{2}{3}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (6-12)$$

図**6.4**に，垂直力ＷとF_X，F_Yとの関係を示す。この関係から，ハードＰＣＩ開始点（$F_X = F_Y$），およびハードＰＣＩ領域（$F_X > F_Y$）の垂直力Ｗが得られる。一方，燃料挙動解析コードを用いれば，ペレット片の接触面に生じる垂直力Ｗは容易に計算されるから，$F_X \geq F_Y$となる出力としてハードＰＣＩ開始出力を求めることができる。この方法は，有限要素法を用いた燃料挙動解析コードのように，ペレット片－ペレット片接触部の局所的解析ができる場合は有用であるが，

あらかじめペレットの割れ形態や破面の状態を知っておく必要があるという問題がある。この意味では，次節に述べる実験的アプローチの方が簡便法としてより容易にハードＰＣＩ開始条件を与えることになる。

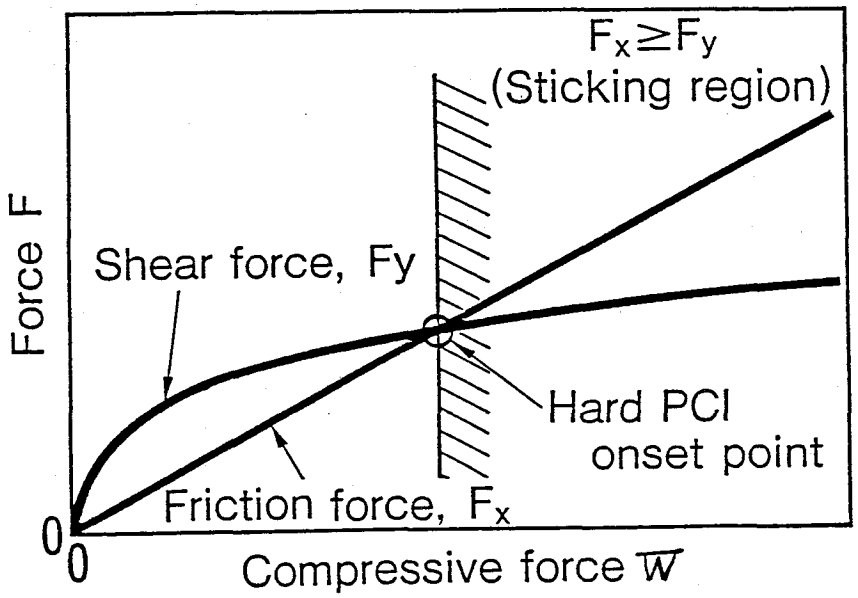


図 6.4　ハードＰＣＩ開始条件

3. ハードＰＣＩ開始条件の実験的検討

本節および次節では，燃料棒横断面における空隙率の概念に基づき，ハードＰＣＩを実験的に検討した結果について述べる。

炉外ＰＣＩ模擬実験（第５章）で得られた燃料棒の出力上昇過程における典型的な直径変化挙動は，図5.10のように，初期ギャップとは無関係に燃料棒の外径がほぼ一定の値（同図，点線）になるとハードＰＣＩが発生することを示した。これは，被覆管の初期寸法が全て同一であるから，一定のひずみを生じたときハードＰＣＩが発生したことを示している。点線での変形を弾性変形と仮定すれば（この仮定は，予備実験で点線のところまで直径変形させた燃料棒には全く塑性ひずみが観察されなかったことから妥当と考えられる），割れたペレットはその時点で被覆管から等しい拘束力（反力）を受けていたことになる。このことから，割れたペレットにある一定の荷重が加わると，割れたペレットは見掛け上剛体のようになってハードＰＣＩを起こすと考えられる。言い換えれば，リロケーションした割れたペレット片群の熱膨張によって被覆管内の空隙率がある値まで減少したとき，割れたペレットの圧縮性が喪失しハードＰＣＩが開始すると考えられる。そこで，この割れたペレットの圧縮性が喪失する臨界空隙率を燃料棒の照射データから実験的に求めた。

3.1　ＨＢＷＲ照射燃料棒

解析対象とした燃料棒は，ＨＢＷＲにおいて照射された全長約６００㎜の短尺燃料棒６本（Ｂ１～Ｂ６）である。それら燃料棒の設計仕様は，燃料棒長さやその他実験パラメータとなっている特殊な仕様を除けば基本的に，ＢＷＲ８×８型燃料のそれと[13]と同一である。表6.1に燃料棒の主な仕様を示す。

表 6.1　ＨＢＷＲ直径測定照射実験用燃料棒の主な設計仕様

Item ＼ Rod	B1	B2	B3	B4	B5	B6
Initial gap (μm)	60	110	210	75		
UO pellet						
Diameter (mm)	10.58	10.55	10.44		10.47	
Length (mm)		10.10		10.74	10.72	5.35
Density (%TD)			96			
Pellet form		chamfer		chamfer	hollow	hollow/disk
Enrichment (%)			10			
Zr-2 Cladding						
Outer dia. (mm)			12.3			
Thickness (mm)		0.81			0.86	
Heat Treatment			Full anneal			
Fuel rod						
Filler gas press.(MPa)		0.1(He)			0.3(He)	
Fuel length (mm)		340			400	

6本の燃料棒は，いずれも１０％濃縮UO_2ペレット（密度；９５％ＴＤ）を燃料棒長さが３４０～４００mmになるように，外径約１２.３mmの再結晶焼鈍ジルカロイ－２被覆管に装填したものであるが，表からわかるように，Ｂ１～Ｂ３燃料棒はギャップが，Ｂ４～Ｂ６燃料棒はペレットの形状がそれぞれ主要な設計パラメータになっている。Ｂ１～Ｂ３燃料棒の場合ペレットの外径を変えることによって，６０，１１０，２１０μmの３種類のギャップを設けている。また，Ｂ４～Ｂ６燃料棒では，標準ペレットであるチャンファペレットの他にホロー（中空），ホロー／ディスク（短尺中空）の２種類のペレットが，各々燃料棒別に装填されている。なお，燃料棒に充填されるH_eガスの圧力はＢ１～Ｂ３燃料棒が約１気圧，Ｂ４～Ｂ６燃料棒が約３気圧である。これらの燃料棒はいずれも燃料中心温度測定用熱電対（Ｗ３％Ｒｅ－Ｗ２５％Ｒｅ）と燃料棒伸び検出器が取付けられている。

3.2　燃料集合体の構造

燃料棒は３本を１組として，ＨＢＷＲの燃料棒直径測定用計装燃料集合体，２体に組込まれた。図6.5に直径測定用燃料集合体の代表的構造を示す。[14] 燃料集合体に装備されている直径測定器は，基本的には第５章で述べた炉外ＰＣＩ模擬実験で使用した直径測定器と同じ機能と構造のものである。[15] すなわち，円周方向に６０°間隔で梃子式の変位検出子と差動トランスデューサが配置され，これが水圧駆動で燃料棒に沿って上下に移動し，照射中の燃料棒の直径と軸方向プロファイルデータを出力する。直径測定精度は±２μmである。燃料集合体の他の計装としては，燃料棒の出力解析に必要な情報を得るための，タービン流量計，冷却水温度測定用熱電対，中性子束検出器などがある。[15] 中性子検出器は，集合体の径方向および軸方向に３～４個づつ配置され，燃料棒軸方向の局所的な出力計算が精度よくできるように考慮されている。この他に燃料集合体には燃料棒の破損を探知する破損検出器や，出力上昇速度および出力レベルを制御する出力制御機構が設けられていが，これらは本解析と直接関係はない。２体の燃料集合体は相次いでＨＢＷＲに装荷され，照射が行われた。本解析に関係する第１回出力上昇試験の出力条件は，燃料棒の平均出力上昇速度が２Ｗ／cm／ｍｉｎ，最高到達出力が約４８０Ｗ／cmである。なお，これら燃料棒は１～２年間照射された後，ノールウェー国のシェラー研究所で一連の照射後試験が実施された。

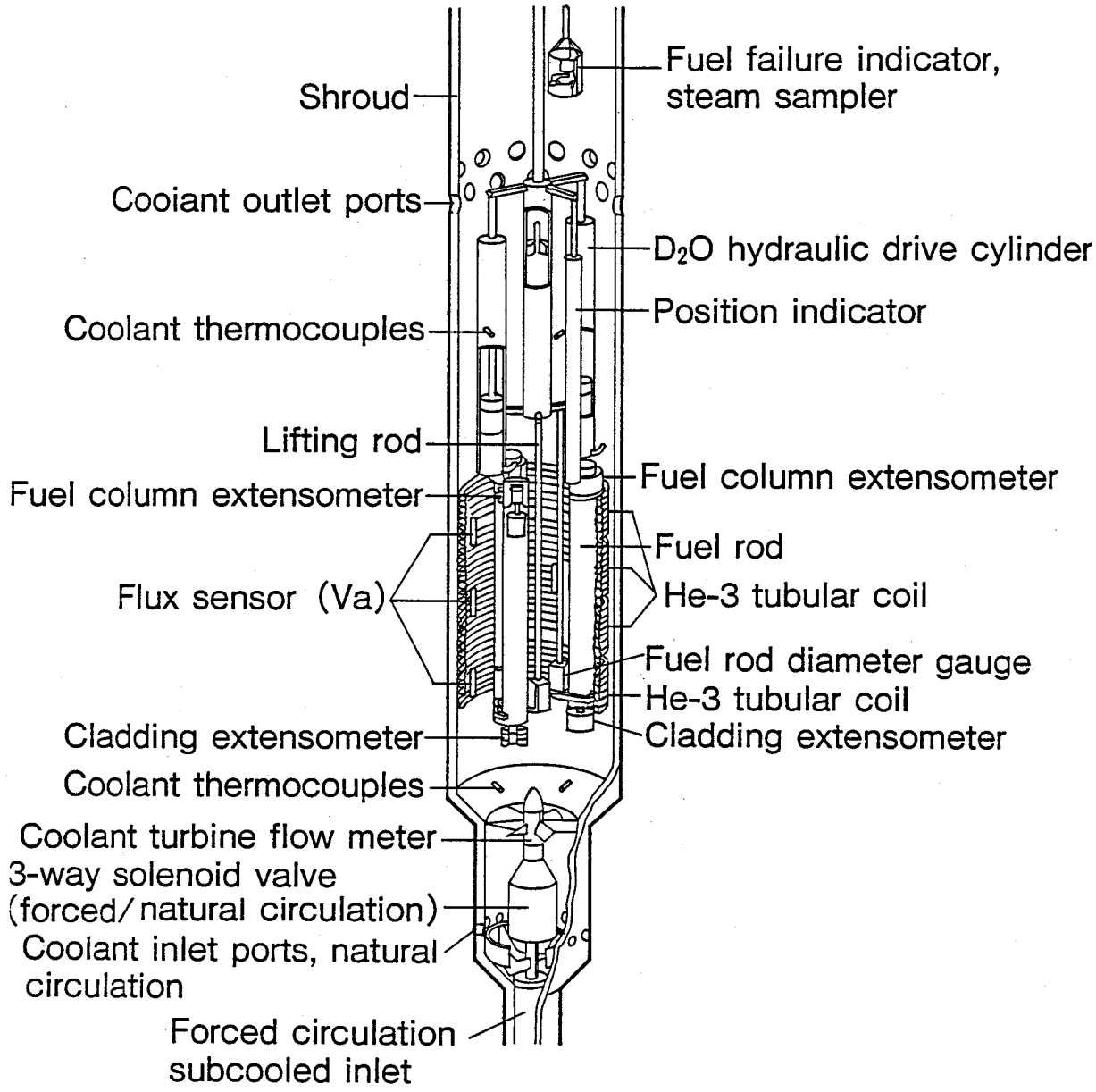


図 6.5　燃料棒直径測定用照射燃料集合体
の一例（ＨＢＷＲ照射リグ）

4. 結果および検討

4.1 燃料棒のギャップとハードＰＣＩ開始出力

Ｂ１～Ｂ６燃料棒の第１回出力上昇時における，リッジ高さと直径測定結果を図6.6～図6.11に示す。これらの結果はいずれも，燃料棒の軸方向中央部約２００㎜の区間で測定された直径およびリッジ高さのデータを平均したものである。まずギャップを実験パラメータにしたＢ１～Ｂ３燃料棒の測定結果をみると，ハードＰＣＩ開始出力（図中，矢印）はギャップに強く依存していることがわかる。これらの結果は図5.10に示した，炉外ＰＣＩ模擬実験の結果と定性的に良く一致している。

ギャップの最も小さい（G_0＝６０μm）Ｂ１燃料棒では，約１００Ｗ／cm付近からハードＰＣＩを裏付けるリッジが出現し[17]，出力上昇とともにそれが顕著になってくる。直径測定データは，直径測定器が稼動直後にドリフト現象を起こしたためソフトＰＣＩ領域の変形挙動が不明瞭であるが，リッジ形成出力とほぼ同じ出力（約100Ｗ／cm）から出力に対する直径増加率が増大し，ハードＰＣＩ領域に入ったことを示唆している。Ｂ２燃料棒（G_0＝１１０μm）の場合は，出力上昇開始直後に直径測定器が故障したため，低，中出力領域のデータは得られなかった。直径測定器が機能復帰した約４５０Ｗ／cm（最高出力）では，既に２～４μmのリッジ形成が認められた。Ｂ１燃料棒の，リッジ高さの出力に対する増加率が他の燃料棒のそれと同じであると仮定し，測定されたリッジ高さから逆にリッジが最初に形成される出力を推定すると，約４１０Ｗ／cmとなる。しかし，この出力をハードＰＣＩ開始出力とするにはデータ点が１点のみで問題がある。そこで，ハードＰＣＩ開始出力は，４１０～４５０Ｗ／cmの範囲にあるとするのが妥当と考えられる。ギャップが最も広い（G_0＝２１０μm）のＢ３燃料棒では最高出力４５０Ｗ／cmまで，リッジ変形やジルカロイ被覆管の熱膨張で予測される以上の直径増加は認められなかった。次に，ギャップが一定（G_0＝７５μm）でペレット形状を実験パラメータとしたＢ４～Ｂ６燃料棒では，いずれの燃料棒の場合でもリッジ形成出力はほぼ一定（約２３０Ｗ／cm）である。このことから，ハードＰＣＩ開始点は，ペレットの形状にはほとんど依存しないことがわかる。なお，Ｂ４～Ｂ６燃料棒の低，中出力範囲の直径変形挙動をみると，UO_2 ペレットの破壊出力である６０Ｗ／cm付近からハードＰＣＩ開始出力に至るまで，ソフトＰＣＩによると思われる緩かな直径増加現象，すなわち第４章で述べた，ソフトＰＣＩ領域がかなり明瞭に観察される。

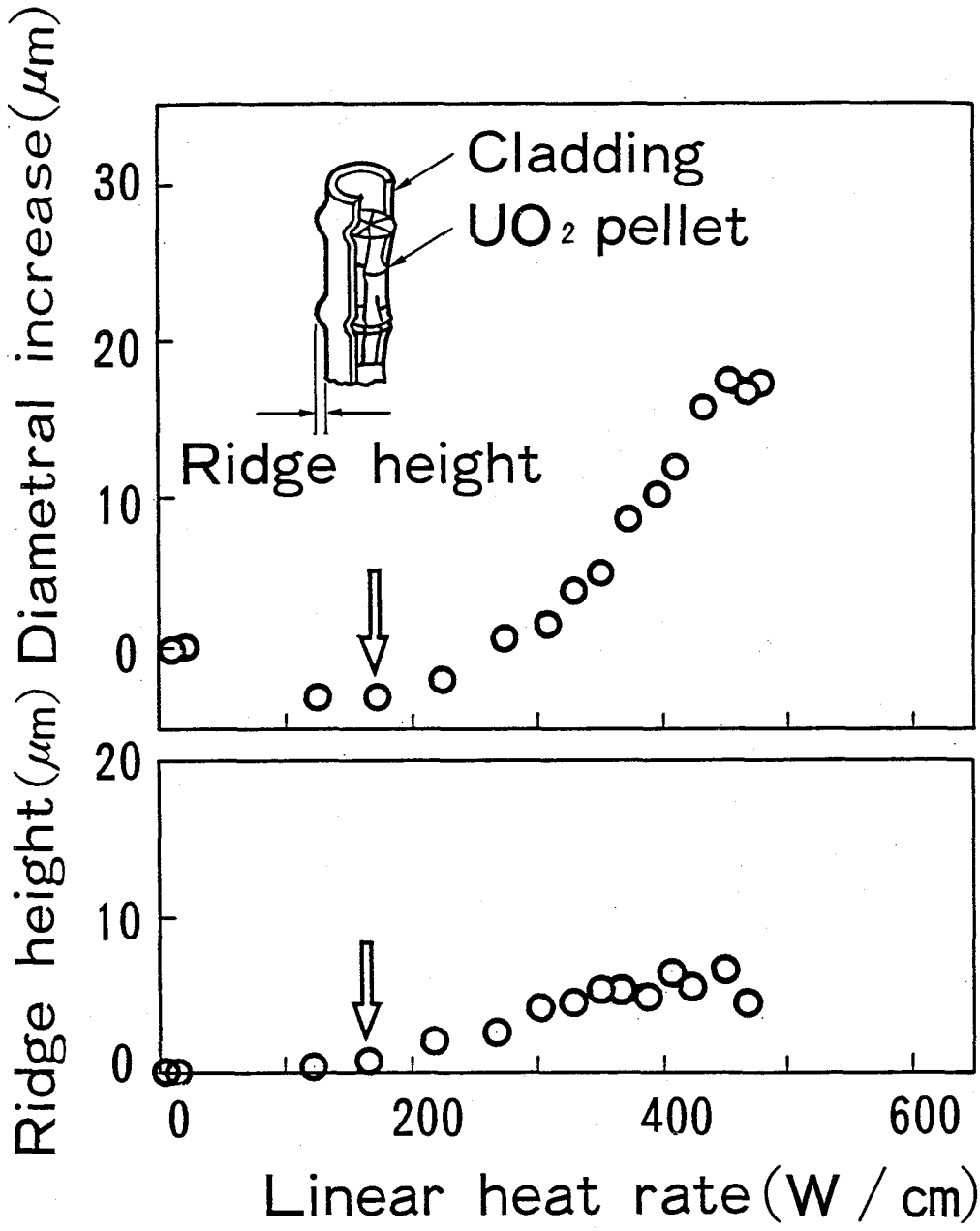


図 6.6　第 1 回出力上昇時における B 1 燃料棒の
リッジおよび直径変形挙動

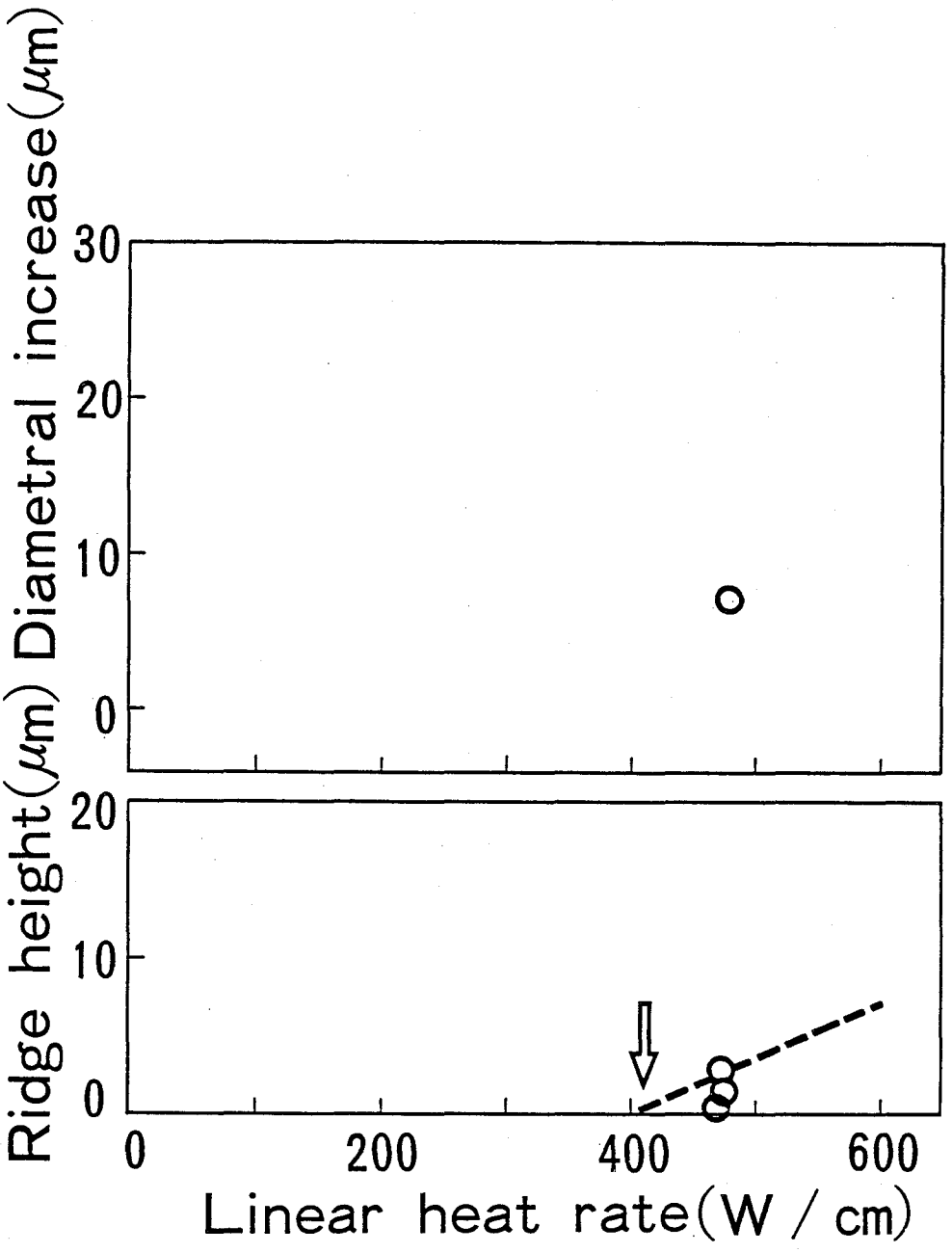


図6.7　第1回出力上昇時におけるB2燃料棒の
リッジおよび直径変形挙動

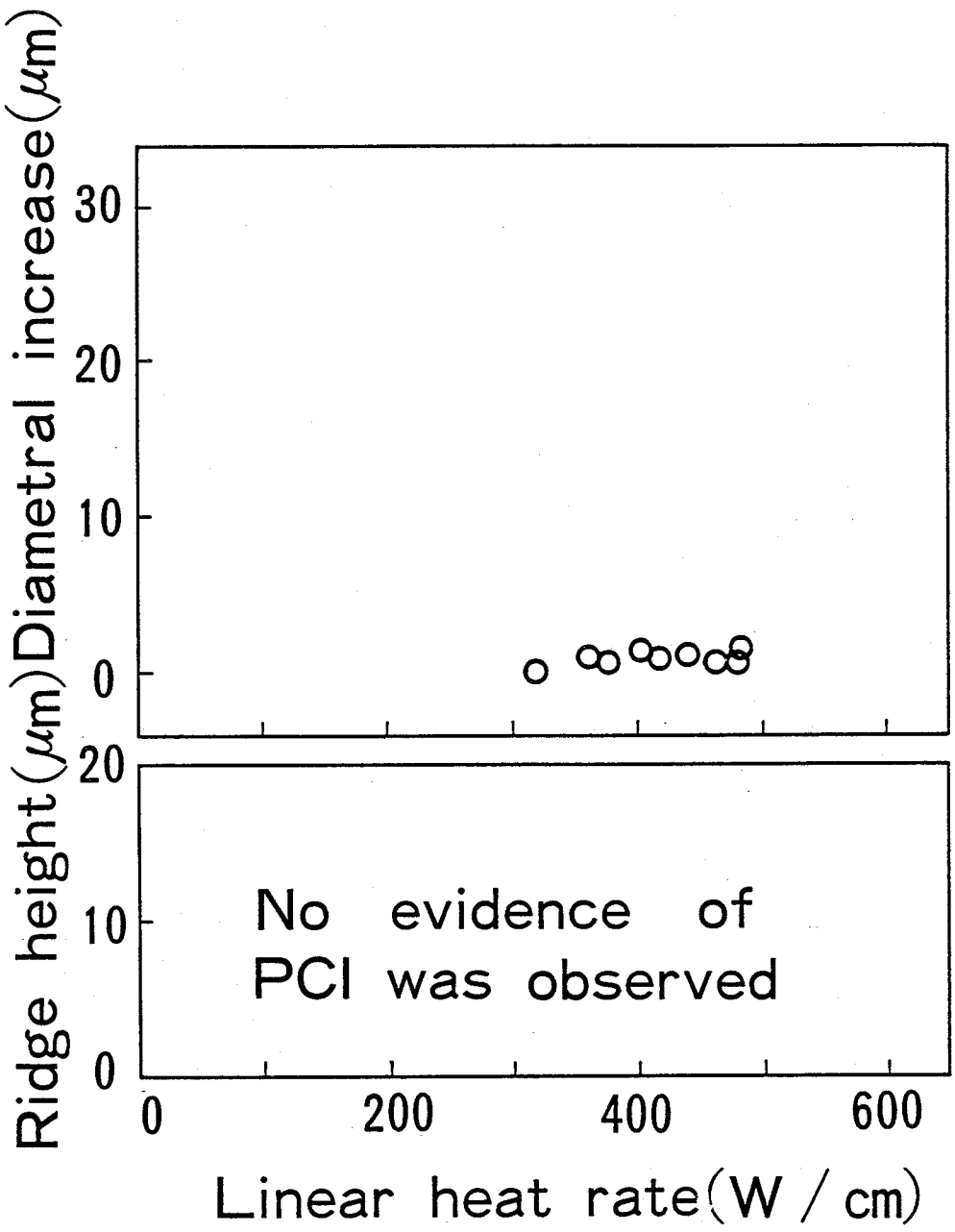


図 6.8　第 1 回出力上昇時における B 3 燃料棒の変形挙動

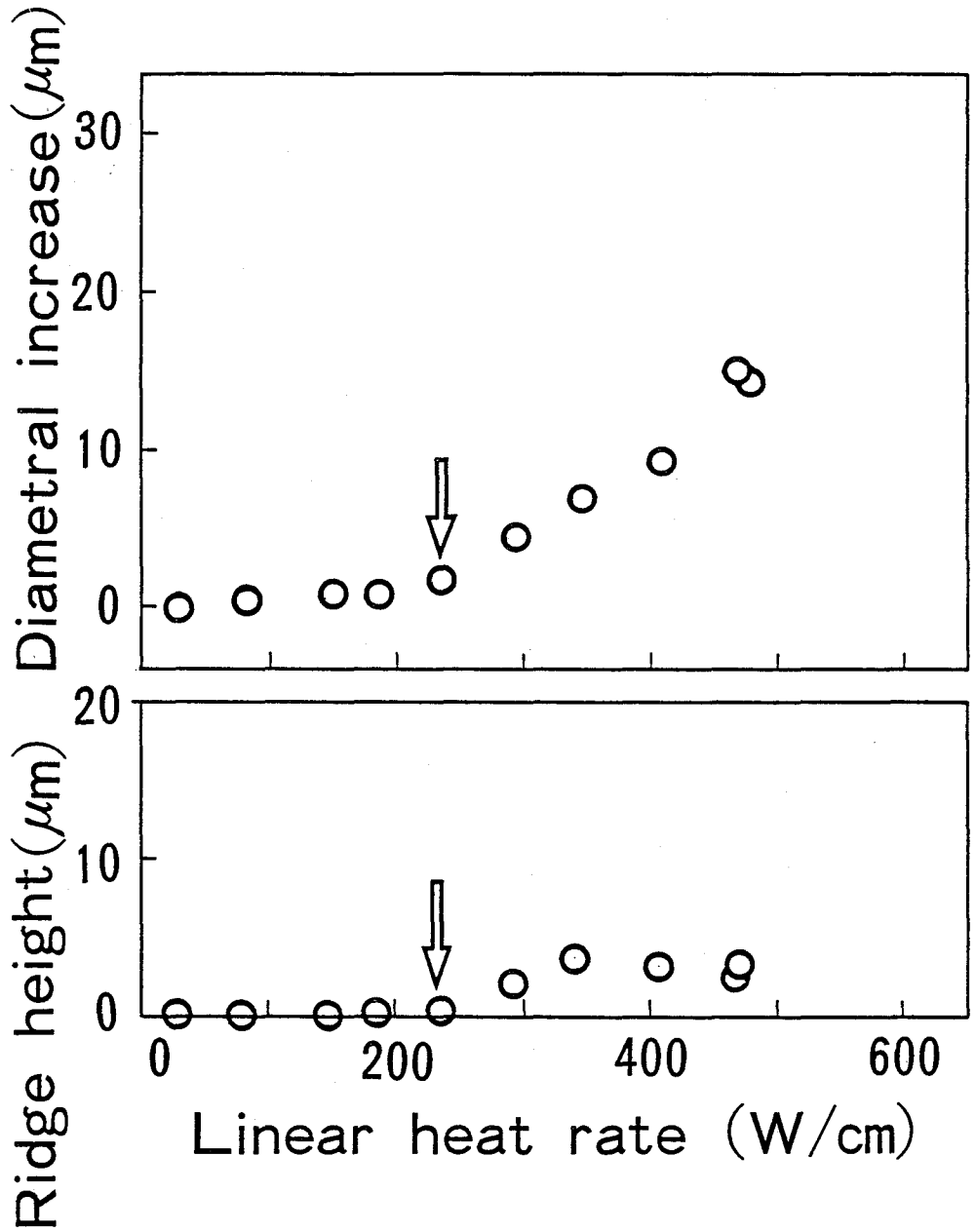


図 6.9　第 1 回出力上昇時における B 4 燃料棒の
リッジおよび直径変形挙動

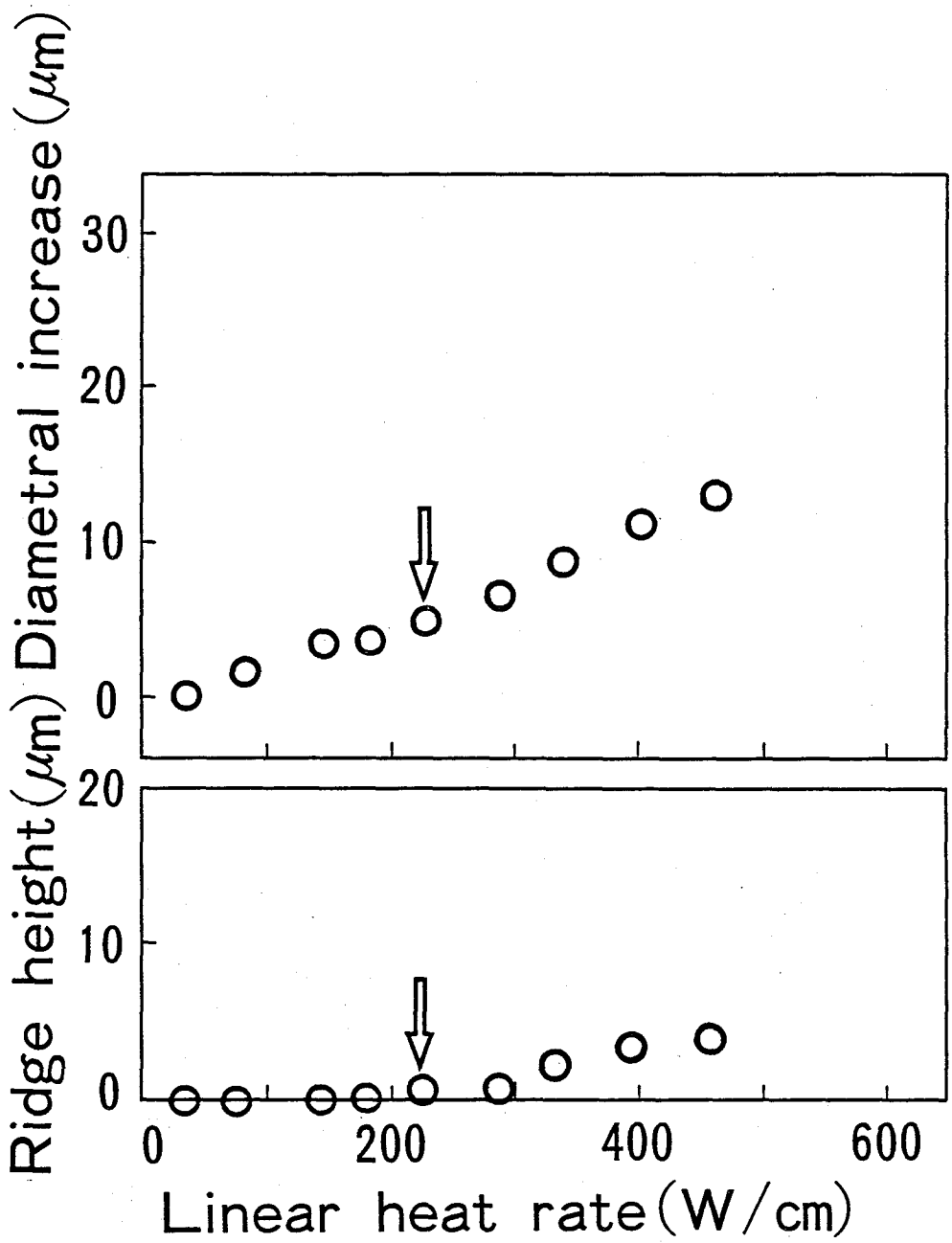


図6.10　第1回出力上昇時におけるB5燃料棒のリッジおよび直径変形挙動

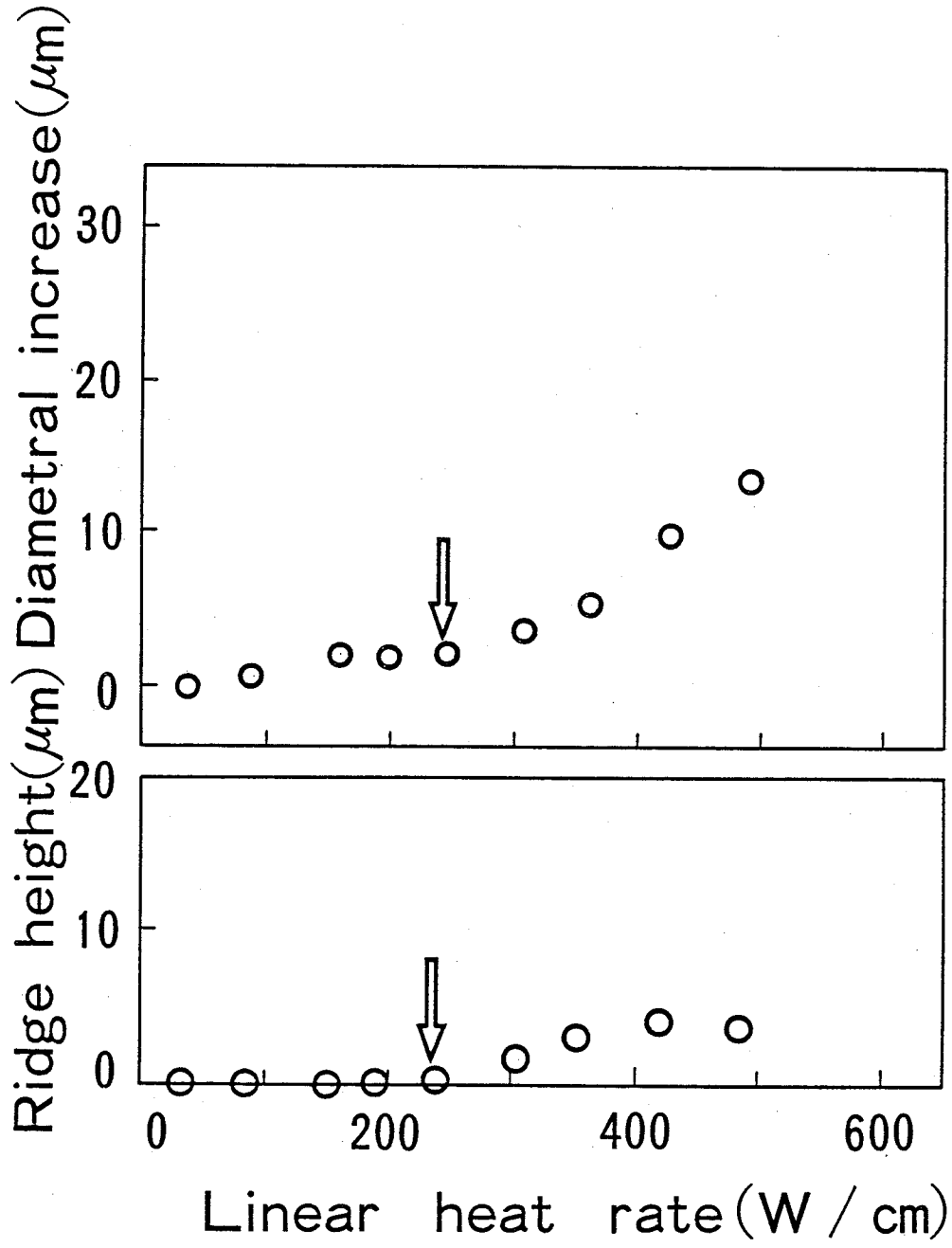


図6.11　第1回出力上昇時におけるB 6燃料棒のリッジおよび直径変形挙動

4.2 ハードＰＣＩ開始条件

本実験結果および前章の炉外ＰＣＩ模擬実験結果から，ハードＰＣＩは，割れたペレットの圧縮性が被覆管の拘束力に対して見掛け上喪失したときに発生すると考えられる。粒状物質をシリンダーに充塡し一定荷重で緩やかに圧縮してゆくと，充塡物質の空隙率が次第に減少し，最終的にそれがある値に達するとその物質の圧縮性が失われ，それ以上変形させることができなくなる現象は一般によく知られている。[16][17]第４章で述べたように，ペレットの破片をそのような粒体と仮定すれば，ハードＰＣＩは，割れたペレット，すなわち粒体の集合体が出力上昇とともに熱膨張する結果，被覆管内側の空隙率が減少し，ある臨界値に達したときに発生するとみなすことができよう。空隙率とは被覆管内側の断面積に対するペレットに占有されていない空間面積の比である。いま，ペレット内部に存在する割れ空間が全てギャップに集まったとしたときの実効ギャップをＧ，被覆管の内径をD_cとすれば，空隙率βは，$\beta=2G/D_c$（（４－１２）式）で近似される。一方（４－１２式）のＧは，出力の関数として（４－１５）式で与えられる。したがって，（４－１５）式にＢ１～Ｂ６燃料棒の被覆管内径D_cとハードＰＣＩ開始出力Ｐを代入し，得られたＧを（４－１２）式に代入すれば，これら燃料棒の臨界空隙率を求めることができる。このようにして求めた臨界空隙率を**表6.2**に示す。また，**表6.3**は他の類似した燃料棒照射実験データから同様な方法で求めた臨界空隙率である。**表6.2**，**表6.3**から，２１０μｍ以上の広ギャップ燃料棒および７０μｍ以下の狭ギャップ燃料棒を除けば，ギャップに依らず空隙率が0.２５～0.２９％の範囲でハードＰＣＩが発生することがわかる。ここでは，平均的ギャップを持つ燃料棒の臨界空隙率として，より低いハードＰＣＩ開始出力を与える値の0.２９％を採ることにする。ギャップ２１０μｍのＢ３燃料棒では，最高到達出力４５０Ｗ／cmにおいてもハードＰＣＩが発生しなかったが，これは４５０Ｗ／cmでの空隙率が，0.６３％でハードＰＣＩの臨界空隙率0.２９％に達していなかったことから理解できる。なお，この燃料棒がハードＰＣＩを開始する出力，すなわち空隙率が0.２９％に達する出力はおよそ６５０Ｗ／cmと計算される。また，７０μｍ以下の狭ギャップ燃料棒では，臨界空隙率は0.２９％以下で，かつその値はギャップが狭くなると更に減少する傾向がみられる。この理由は，ペレットが出力上昇過程で割れても被覆管内の自由空間が少ないので，ペレット片は

大きくリロケーションすることができず，開いたクラックが熱膨張で再び閉じ合わされるような状態でハードＰＣＩが起こるためと考えられる。ギャップが狭くなればなる程このような状態になりやすいから，ギャップの減少とともに臨界空隙率も減少することになる。このような状態は，圧縮される粒体のようにペレット片同士が不規則に移動し，噛み合いつつ被覆管内側の空間を埋めてゆくという最初の仮定からはずれている。したがって，ギャップがペレットジャンプ量に近い（一般的な軽水炉燃料棒では，５０μｍ程度）狭ギャップ燃料棒については空隙率の概念を適用することはできない。

表6.2　ハードＰＣＩ開始時におけるギャップおよび空隙率

Rod No.	Initial gap (μm)	Hard PCI onset power (W/cm)	Effective gap (μm)	Critical void ratio (%)
B4	75	230	12.9	0.25
B5	75	220	13.4	0.26
B6	75	230	12.9	0.25
B2	110	410～450	13.1	0.25～0.29
B1	60	100	8.6	0.18
B3	210	>450	>33	< 0.63

表6.3　ハードＰＣＩ開始時における空隙率

Rod No.	Initial gap (μm)	Hard PCI onset power (W/cm)	Critical void ratio (%)
C1	63	120	0.20
C2	69	160	0.22
C3	69	195	0.25
C4	75	210	0.27
C5	75	200	0.28
C6	100	380	0.26

5. 結　言

燃料棒のハードＰＣＩ開始条件を，解析的方法および実験的方法により検討した。

解析的方法では，リロケーションしたペレット片が被覆管から拘束力を受け，隣接するペレット片との間の摩擦力が，真の接触部のせん断力と等しくなったとき，割れたペレットは見掛け上剛体のようになりハードＰＣＩが開始されると仮定した。そして，その開始条件を解析的に求めた。この方法は，ペレット片相互の局所的応力解析が可能な燃料挙動解析コードのサブモデルとして適しているが，解析に先立ちペレットの破面に関する情報を必要とするという問題がある。

実験的方法では，割れたペレットを粒状の破片の集合体とみなし，粒体物質の充塡の場合と同じように，この集合体の圧縮性が被覆管の拘束力に対し見掛け上消失したとき，ハードＰＣＩが開始されると仮定した。そして，この圧縮性消失は，被覆管断面の全空間面積と，ペレットが占有していない全空隙面積とから決まる空隙率がある臨界値になったとき発生するとして，この臨界空隙率をＨＢＷＲ照射燃料棒のＰＣＩ変形データから求めた。その結果，平均的初期ギャップを有する一般的な軽水炉燃料棒の臨界空隙率は，ほぼ0.29％であることがわかった。リロケーションが初期の段階で制約されるような

狭ギャップ燃料棒では，割れたペレットの挙動を粒体の充塡挙動のようには仮定できない。したがって，ギャップがペレットジャンプ量に近い狭ギャップ燃料棒では，空隙率の概念は適用できない。

6. 参考文献

(1) K. Ito, M. Ichikawa, T. Nakajima, M. Sogame, T. Okubo and T. Saito, A comparison of FEMAXI-Ⅲ code calculations with irradiation experiments, Res Mechanica 2 (1981) 109.

(2) D. D. Lanning, F. E. Panisko, C. L. Mohr, "Gapcon-Thermal-3 Verification and Comparison to In-Reactor Data", PNL-2435, NUREG/CR-0218, R1 & R3 (September 1978).

(3) K. Ito, M. Ishida, and M. Oguma ; "FEAST", A Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-mochanical Fuel Rod Behavior, Paper Presented at the Enlarged HPG Meeting, Loen, 1978.

(4) M. P. Bohm : NUREG-1028 (1977)

(5) Entropy Limited : EPRI NP-2291,1 (1982)

(6) K. Ito et al. : Res Mechanics, 2, p109 (1981)

(7) G. E. Dieter : Mechanical Metallurgy ; McGraw-Hill Kogakusha Ltd. (1976)

(8) E. P. Bohm and D. Tabor : The Friction and Lubrication of Solids; Claredon Press (1954)

(9) S. P. Timoshenko and J. N. Goodier : Theory of Elasticity, (McGraw-Hill Kogakusha, 3rd Edition) pp 409-420

(10) J. A. Archard : J. Appl. Phys. 32, p1420 (1961)

(11) J. A. Archard : Proc. Roy. Soc. Lond., 243, Series A, p190 (1957)

⑫ MATPRO Version-09 ; A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior, TREE-NUREG-1005, 1976 4, P179 (1978)

⑬ 藤江，小熊，新保，牧，河原：沸騰水型原子炉（ＢＷＲ）燃料に対する信頼性向上の研究現状；日立評論，６０〔２〕，（１９７８）

⑭ 小熊，細川：燃料棒照射初期のギャップ解析とリロケーションモデル；日本原子力学会分科会，（昭和５３年）

⑮ HP : OECD Holder Reactor Project; (1984)

⑯ K. Chino et al. : Power and Powder Metallurgy 29,

⑰ H. F. Fishmeister et al. :Power Metallury p

第7章　結　　論

軽水炉燃料のより優れた負荷追従性能と燃焼度の伸長は，今後の原子力発電の経済性向上のために達成しなければならない重要課題である。一方，燃料破損の主原因はＰＣＩ／ＳＣＣであるから，このような燃料の高性能化にはまず燃料棒の高出力変動下における使用限界をＰＣＩの観点から正確に評価することが必要である。このためには，UO_2 ペレットの変形挙動に関する正しい理解が不可欠である。特に燃料棒の最初の出力上昇過程で起こる“破壊（割れ）”や“リロケーション”などのペレットの変形は，燃料棒のＰＣＩ性能に決定的な影響を与えるから，それらの正確な理解が最も重要となる。

本研究は，燃料棒の出力上昇開始から定格出力に至るまでの UO_2 ペレットの変形挙動を解明するとともに，それらをモデル化し燃料挙動解析技術に反映することを目的として行ったものである。

本研究の内容は(1) UO_2 ペレットの破壊挙動に関するものと，(2)出力上昇過程における UO_2 ペレットの挙動との二つに大別される。

(1)　UO_2 ペレットの破壊挙動

ＢＷＲは起動時に一定出力レベルまで制御棒引抜きにより出力急昇するから，UO_2 ペレットはこの出力上昇過程で熱衝撃的に割れると考えられる。そこで，UO_2 ペレットの破壊（割れ）の問題を取り上げ，熱衝撃破壊とそのような破壊を評価する上で基本的な物性値である破壊強度とについて検討を行った。

まず UO_2 ペレットの熱衝撃破壊と気孔率，微細組織との関係を理論解析と炉外熱衝撃実験とから調べた（第２章）。その結果理論解析で導出した，ペレットの気孔率や潜在クラック（例えば結晶粒界，気孔など）の大きさと熱衝撃損傷挙動との関係を表わす理論式が妥当であることを確認した。そして，出力上昇過程の UO_2 ペレットの熱衝撃損傷を低減するためには，ペレットの気孔率を高く（密度を低く）すればよいこと，また気孔率の変更に対し制約がある場合には，粗大な潜在クラックを除き細かい潜在クラックを数多く分散させればよいことなどを見い出した。

次に，ペレットの破壊強度と気孔率や潜在クラックとの関係を炉外実験により調べた（第3章）。その結果，気孔率，気孔径，結晶粒径のいずれの増加もペレットの破壊強度を減少させるが，特に気孔率の影響の大きいこと，また一定気孔率のもとではペレット表面に存在する最大気孔が破壊強度を支配する潜在クラックであることなどを見い出した。そして，UO_2 ペレットの破壊強度を微細組織のパラメータとして表わす実験式を導出し，その検証を行った。

一般に，UO_2 ペレットの破壊（割れ）はリロケーションやＦＰガス放出を増大させる原因となるから，ＰＣＩ／ＳＣＣの観点からはペレットに割れが生じない方が好ましい。しかし，出力上昇時にペレットに発生する熱応力は UO_2 ペレットの破壊強度に比べ数倍から１０倍程度高いから，現在の製造法で製作された通常の微細組織をもつ UO_2 ペレットを用いる限り，割れを完全に防止することはできない。そこで一つの対策は，ペレットの熱衝撃損傷抵抗を増大させ出力上昇時の損傷の程度をできるだけ低減することである。第2章の熱衝撃挙動に関する研究の結果は，ＢＷＲで予想される最大熱衝撃温度差において，気孔率が0.05のペレットは完全に破砕してしまうのに対し，気孔率0.15のペレットでは破砕が防止できる可能性のあることを示唆している。したがって，UO_2 ペレットを低密度化することは一つの対策となり得る。しかし，第3章の破壊強度に関する研究の結果は，気孔率の増加がペレットの破壊強度を大幅に減少させることを示した。これは，気孔率の増加により，低い熱応力，すなわち低出力レベルでペレットに割れが発生することを意味している。言い換えれば気孔率の増加はペレットの熱衝撃損傷抵抗を増加させるものの熱衝撃破壊抵抗を減少させるという結果をもたらす。更に気孔率の増加はペレットの熱伝導率を減少させるから，ペレット温度の上昇による割れやＦＰガス放出の増加を招くことになる。このように単にペレットの気孔率を増大することが燃料棒のＰＣＩ／ＳＣＣ性能を向上させることには必ずしもならない点に注意する必要があろう。したがって，UO_2 ペレットの気孔率あるいは潜在クラックなどの微細組織は，燃料棒の設計仕様と使用条件を考慮した性能評価を行った上で最適化をはからなければならない。

(2) 出力上昇過程における UO_2 ペレットの挙動

最初の出力上昇における UO_2 ペレットの挙動をハードＰＣＩ発生点の前と後に分け，

それぞれについて挙動解明とモデル化とを行った。最後にハードＰＣＩ開始条件を解析的方法，実験的方法の２通りの方法から検討した。

ハードＰＣＩ開始前のペレットの挙動（第４章）については，まず燃料棒の照射実験を行い照射中の計装データから間接的にペレットの割れ，リロケーション挙動を検討した。次いでペレットの割れ解析を行い，出力と割れパターンの関係，割れパターンとリロケーションの関係を求めペレットのリロケーション挙動に対し定量的説明を試みた。その結果，ペレットに発生するクラックの数は出力に対してほぼ直線的に増加すること，リロケーションの大きさはクラック数にほぼ比例すること，更に典型的なＢＷＲ燃料仕様と出力条件では，UO_2 ペレットは約６０Ｗ／cmの出力レベルで割れ，割れと同時に約５０μmの急激なリロケーション（ペレットジャンプ）を起こし，次いで緩かなリロケーション期間を経てハードＰＣＩに至ることがわかった。これらの知見から，ハードＰＣＩ開始前のギャップ変化を表わすギャップ閉塞モデルを提案した。

ハードＰＣＩ開始後のペレットの挙動（第５章）に関しては，従来のペレット変形モデルの多くが，割れたペレットはハードＰＣＩを起こすとその機械的性質は中実ペレットのそれに復帰すると仮定していた。このため，燃料棒のＰＣＩ変形予測精度は良いものではなかった。ここでは割れたペレットを破片の集合体とみなし，これに固有の機械的性質を与える“実効弾性モデル”を導入した。そしてこの実効弾性定数を模擬燃料棒を中心加熱する炉外ＰＣＩ模擬実験と燃料棒のＰＣＩ解析とから決定した。この実効弾性モデルは，ハードＰＣＩ領域の燃料棒の変形（直径やリッジ形状，高さなど）を良く予測するものであることがわかった。

最後にハードＰＣＩがどのような条件で発生するかを解析的方法と実験的方法のそれぞれから導いた（第６章）。解析的方法では，割れたペレット片が被覆管から抗力を受けた場合，隣接するペレット片との摩擦力が接触面の凸部をせん断するに要する力より大きくなった時ペレット片同志の固着が起こり，ハードＰＣＩが発生すると仮定してその固着条件を導いた。また実験的方法では，被覆管の抗力に対して割れたペレットの圧縮性がみかけ上消失した時，ハードＰＣＩが開始されると仮定した。そして圧縮性消失

は燃料棒横断面の空隙率がある臨界値に達した時起こるとして，この臨界空隙率を燃料棒照射実験から求めた。

UO_2 ペレットの変形挙動に関するこれらのモデルは，燃料挙動解析コードに採用され，挙動予測技術に貢献してきた。例えば，BWRの一般的な出力運転（PCIOMR）における燃料棒の直径増加，リッジ変形あるいはFPガス放出量などについては，信頼性の高い予測が可能となっている。しかし，負荷追従運転のような急出力変動下での，FPガス放出量や燃料棒変形などの予測は，まだ信頼性の点で満足できるまでには至っていない。この原因の一つは，熱衝撃破壊や熱サイクル破壊など，急出力変動下での UO_2 ペレットの破壊挙動に関する知見が不十分で，まだ燃料挙動解析コードに挙動モデルとして組み入れられるまでに至っていないためである。したがって，今後の問題は本論文の第2章，第3章で述べたような UO_2 ペレットの破壊挙動に関する研究を進め，出力変動下でのペレット挙動のより詳しい知見を得ることと，それらの研究成果を如何に今後の燃料挙動モデリングに取り入れてゆくかということである。

発表論文一覧

(1) M. OGUMA : Cracking and Relocation Behavior of Nuclear Fuel Pellets during Rise to Power ; Nucl. Eng. Des., 76, 1 (1983)

(2) M. OGUMA : Integrity Degradation of UO_2 Pellets Subjected to Thermal Shock ; J. Nucl. Mater. to be published

(3) M. OGUMA : Microstructure Effects on Fracture Strength of UO_2 Fuel Pellets ; J. Nucl. Sci Technol., 19,2 (1982)

(4) M. OGUMA and T. HOSOKAWA : Modelling of Pellet-Cladding Gap Behavior during Early Power Operation ; Enlarged Halden Program Meeting, HPR F4-5, (1978)

(5) S. SHIMADA and M. OGUMA : Analysis of Fuel Relocation using In-pile Data from IFA-211 and IFA-411 ; Enlarged Halden Program Meeting, HPR 3/6 (1979)

(6) K. ITO, Y. WAKASHIMA and M. OGUMA : Pellet Compliance Model Bassed on Out-of-pile Simulation ; Nucl. Eng. Des. 56, 1 (1980)

(7) S. SAKAGAMI and M. OGUMA : Analytical Models for Describing Fuel Pellet Mechanical Behavior in Nuclear Reactor Fuel Rods ; Nucl. Tech., to be published

(8) K. ITO, M. ISHIDA and M. OGUMA : "FEAST" a Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-Mechanical Fuel Rod Behavior ; Enlarged Halden Program Meeting, HPR F5-1, (1978)

(9) T. KUBO, M. OGUMA and H. FUJIE : External Pressure Creep Behavior of Zircaloy-2 Tube ; Transactions of ANS Topical Meeting, 28 (1978)

(10) 久保，小熊，原：ジルカロイ－2燃料被覆管の外圧クリープ；日本原子力学会誌，23，7（1980）

(11) H. HIRAI and M. OGUMA : Grain Growth in Gd_2O_3-UO_2 Pellets ; Enlarged Halden Program Growp Meeting, 1/3, (1984)

(12) K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potentials of UO Fuel Simulating High Burnup ; J. Nucl. Sci. Technol., 29, 10 (1983)

(13) K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potentials of (U, Nd) O_{2+x} Solid Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500 °C ; J. Nucl. Mater., 118,2-3, (1983)

(14) K. UNE and M. OGUMA : Oxyten Potential of $U_{0.85}Zr_{0.15}O_{2+x}$ Solid Solutions at 1500 °C ; J. Am. Ceram. Soc., 66, 10 (1983)

(15) K. UNE and M. OGUMA : Thermodynamic Properties of Nonstoichiometric Urania-Gadolinia Solid Solutions in the Temperature Range 700 - 1100 °C ; J. Nucl. Mater., 110, 2-3, (1982)

(16) K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potentials of (U, Gd) $O_{2\pm x}$ Solid Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500 ℃ ; J. Nucl. Mater., 115, 1 (1983)

(17) K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potential of $U_{0.96}Gd_{0.04}O_2$ (UO_2-3wt% Gd_2O_3) Solid Solution ; J. Nucl. Mater. to be published

謝　　辞

本研究を遂行するにあたり，終始御指導，御鞭撻をいただいた日本核燃料開発株式会社第2研究部，村田寿典部長（現，取締役）に深く感謝致します。

また本論文のまとめに際し，懇篤な御指導と御助言を賜った大阪大学工学部井本正介教授，三宅正宜教授，山根寿巳教授に心よりお礼申し上げます。

本研究の一部は，株式会社日立製作所エネルギー研究所に在勤中に行ったものであるが，その際の研究遂行のみならず本論文のまとめに関し，種々の御支援と励ましをいただいたエネルギー研究所谷口薫所長（現，日本核燃料開発株式会社社長），山田周治副所長（現，所長），土井彰部長に感謝の意を表します。

最後に，第2章から第6章にわたり試料の製作，実験，解析に多大の御協力をいただいた，日本核燃料開発株式会社研究部の増田宏，細川隆徳，若島喜和，安田隆芳，宇根勝巳，伊東賢一，田辺勇美の各氏に感謝致します。