

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2006-337312

(P2006-337312A)

(43) 公開日 平成18年12月14日(2006.12.14)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>G 2 1 C 3/62 (2006.01)</b>	G 2 1 C 3/62	B
	G 2 1 C 3/62	K
	G 2 1 C 3/62	N

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2005-165321 (P2005-165321)	(71) 出願人	000229461 株式会社グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン 神奈川県横須賀市内川二丁目3番1号
(22) 出願日	平成17年6月6日(2005.6.6)	(74) 代理人	100075812 弁理士 吉武 賢次
		(74) 代理人	100091982 弁理士 永井 浩之
		(74) 代理人	100096895 弁理士 岡田 淳平
		(74) 代理人	100117787 弁理士 勝沼 宏仁

最終頁に続く

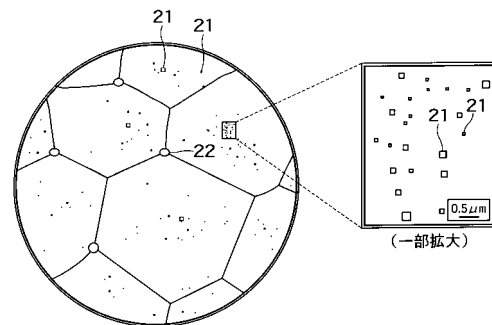
(54) 【発明の名称】 高燃焼度燃料用核燃料ペレット

(57) 【要約】

【課題】 高燃焼度時の核燃料ペレットにおける、燃料中心温度の上昇及び核燃料ペレットの体積膨張に伴う核燃料ペレットと燃料被覆管の相互作用の発生を緩和すること。

【構成】 本発明は、核燃料物質を含む酸化物燃料を焼結して製造される核燃料ペレットであって、結晶粒内に形成される製造時気泡の直径の平均値が0.2 μm以下であることを特徴とする。そして、上記構成によって高燃焼度時に燃料ペレットで生じる組織変化(リム組織形成)を抑制することができ、高燃焼度時の核燃料ペレットの体積膨張を低減することができる。したがって、高燃焼度時の核燃料ペレットと燃料被覆管の相互作用を緩和し、高燃焼度時の燃料の健全性裕度を向上させることができる。

【選択図】 図2



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ウランおよびプルトニウムのうち少なくとも一種の核燃料物質を含む酸化物燃料或いはこれに  $Gd_2O_3$  を添加した酸化物燃料からなる高燃焼度燃料用核燃料ペレットにおいて、当該酸化物燃料の母材結晶の平均粒径が少なくとも  $5\ \mu m$  以上であるとともに、当該酸化物燃料の結晶粒内に形成されている製造時気泡の直径の平均値が約  $0.2\ \mu m$  以下であるようにしたことを特徴とする、高燃焼度燃料用核燃料ペレット。

## 【請求項 2】

結晶粒界に軟質の第二相を伴っていることを特徴とする、請求項 1 記載の高燃焼度燃料用核燃料ペレット。

10

## 【請求項 3】

燃料集合体取出平均燃焼度が約  $4.5\ GWd/t$  以上である燃料集合体に用いられることを特徴とする、請求項 1 または 2 記載の高燃焼度燃料用核燃料ペレット。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、核燃料物質を含む核燃料ペレットに係り、特に高燃焼度まで使用される燃料集合体に用いられる高燃焼度用核燃料ペレットに関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

図 6 (a) は沸騰水型原子炉で使用されている燃料集合体を構成する燃料棒 1 の一部切り欠いて示す外觀図、(b) はその平断面拡大図であり、燃料棒 1 は、内面にジルコニウムライナ 2a を層着したジルコニウム製被覆管 2 を有しており、その被覆管 2 内に複数の核燃料ペレット 3 が装填され、上記被覆管 2 の両端部が下部端栓 4 及び上部端栓 5 により密封され、上記核燃料ペレット 3 と上部端栓 4 との間にはプレナムスプリング 6 が配設されている。そして、このように構成された多数本の燃料棒 1 を集束することにより燃料集合体が形成されている。

20

## 【0003】

ところで、軽水炉あるいは高速増殖炉に装荷される上記燃料棒 1 からなる原子炉燃料は、原子炉において経験された最も高い燃焼度までその健全性が確認されている。現在、原子炉経済性の向上および核燃料サイクルコストの低減を目的として原子炉燃料の高燃焼度化が進められているが、燃料の高燃焼度化により高燃焼度時の燃料の健全性裕度が圧迫される可能性がある。具体的な健全性圧迫要因の一つとして、核燃料ペレット 3 の体積膨張（スエリング）に伴う核燃料ペレット 3 と燃料被覆管 2 の相互作用（PCI）の増大が挙げられる。高燃焼度時においては、後述のリム組織形成に伴う体積膨張が生じて核燃料ペレット 3 と燃料被覆管 2 の相互作用が増大することが予想され、特に反応度事故時など異常事象が生じた際の燃料の健全性裕度が問題となる可能性がある。

30

## 【0004】

高燃焼度まで照射された燃料ペレット 3 では、照射欠陥の蓄積・再編成に伴って微細組織変化が生じる結果、気孔率の高い領域が形成されることが一般に知られている。この高燃焼度燃料特有の微細組織は、ペレット外周部で典型的に認められることからリム組織と呼ばれている。上記組織変化の結果、リム組織形成領域では、製造時結晶粒が非常に細かい結晶粒に細分化されるとともに、内部に高圧の FP ガスを蓄積した粗大化気泡が形成される。高燃焼度時の燃料の加速的な体積膨張は、この粗大化気泡形成に伴うものであると理解されている。したがって、核燃料ペレットのリム組織形成を抑制する対策を講じることは、高燃焼度時の核燃料ペレットと燃料被覆管の相互作用を低減させて燃料の健全性向上を図る上で非常に重要な命題である。

40

## 【0005】

リム組織形成を抑制する対策として、製造時結晶粒径を大きくする方法（製造時結晶の大粒径化）が有効であることが経験的に知られている。これは次のような理由によると解

50

積される。

【0006】

高燃焼度時にリム組織が形成されるメカニズムとして、再結晶化現象に伴うメカニズム及びポリゴニゼーション現象に伴うメカニズムなどが提唱されている。両者に共通していることは、核分裂に伴って材料中に導入される転位が、リム組織形成メカニズムにおいて重要な役割を果たしている点である。

【0007】

材料中に導入された転位は、核分裂時に生成されるエネルギーあるいは照射欠陥を消費しながら材料中を動くことが知られているが、J. Nucl. Mater., 278 (2000) 54 - 63で報告されているように、製造時結晶粒界が転位の運動を妨げる障害物となる結果、ある程度燃焼が進んだ核燃料ペレットでは製造時結晶粒界などに転位が高密度で集積する。このように高密度で転位が集積した部位において、再結晶化あるいはポリゴニゼーションにより新しく結晶粒が形成され、これらの場所を起点としてリム組織が形成される。したがって、製造時の結晶粒径を大きく、すなわち製造時の結晶粒界まで転位が到達するのに要する平均移動距離を長くすることにより、リム組織形成を抑制することができる。

10

【0008】

上記の原理に基づいて製造時結晶の大粒径化によってリム組織形成を抑制する技術は、 $UO_2$  燃料だけでなく、 $UO_2$  燃料に可燃性毒物である  $Gd_2O_3$  を添加した  $Gd_2O_3$  添加  $UO_2$  燃料についても同様に有効であると考えられる。ただし、製造時結晶の大粒径化は、核燃料ペレットの重要な物性の一つであるクリープ特性を低下させる。このことは、高燃焼度時の核燃料ペレットと燃料被覆管の相互作用の増大に繋がるため、高燃焼度時の燃料の健全性を考える上で核燃料ペレットのクリープ特性を低下させることは好ましくない。

20

【0009】

その対策技術として、特開平1-193691号公報や特開平1-20119号公報などに代表されるような、結晶粒界に軟質層(ガラス相)を析出させてクリープ特性を向上させる技術が考案されているが、まだ商用原子炉への適用には至っていない。したがって、大粒径化以外の方法によるリム組織形成抑制技術を開発し、実用化することが要望されている。

30

【特許文献1】特開平1-193691号公報

【特許文献2】特開平1-20119号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明は、核燃料ペレットのリム組織形成を抑制する技術として、上記の大粒径化以外の原理に基づいて考案したリム組織形成抑制技術を適用し、高燃焼度時の燃料の健全性裕度を向上させた原子炉用燃料集合体に用いる高燃焼度燃料用核燃料ペレットを得ることを目的とする。

【課題を解決するための手段】

40

【0011】

本発明は、ウランおよびプルトニウムのうち少なくとも一種の核燃料物質を含む酸化物燃料或いはこれに  $Gd_2O_3$  を添加した酸化物燃料からなる高燃焼度燃料用核燃料ペレットにおいて、当該酸化物燃料の母材結晶の平均粒径が少なくとも  $5\mu m$  以上であるとともに、当該酸化物燃料の結晶粒内に形成されている製造時気泡の直径の平均値が約  $0.2\mu m$  以下であるようにしたことを特徴とする。

【0012】

すなわち、リム組織形成機構が転位の集積を起点としているという点に着目するとき、前記製造時結晶の大粒径化技術の他に、もう一つ有効なリム組織形成抑制対策がある。具体的には、酸化物燃料の結晶中に障害物を多数設けて転位の易動度を小さくする、つまり

50

転位を動きにくくするという発想である。

【0013】

転位の易動度を小さくする方法としては、(1)酸化物燃料中に構成元素以外の元素を母材結晶中に溶かす(固溶させる)方法、(2)酸化物燃料の母材中に第二相粒子を高密度で析出させる方法などが挙げられる。前者(1)は固溶硬化、後者(2)は析出硬化との関連で他材料でも広く用いられている手法であるが、前者(1)については酸化物の核燃料の熱伝導特性に好ましくない影響を及ぼす可能性があり、後者(2)については酸化物の核燃料の機械的特性に好ましくない影響を及ぼす可能性がある。これらの手法以外に、核燃料という特殊材料ならではの手法、すなわち(3)粒内気泡によって転位が拘束(トラップ)される現象を利用する手法があり、本発明はこれに基づいたものである。

10

【0014】

酸化物燃料中においてウランなどの核燃料物質が核分裂すると、核分裂生成原子(FP原子)のほか、多数の格子間原子および空孔(原子がはじき出されてできる空席)が生成される。空孔については、その大部分が短時間のうちに格子間原子と再結合して消滅するか、あるいは結晶粒界などのsinkにおいて消滅するが、残りの一部については空孔同士が結合して非常に微小な欠陥複合体(クラスター)を形成し、ガス性のFP原子(FPガス原子)を内部に蓄積して数nm程度の微小な粒内気泡を形成する。図7に模式的に示すように、このようにして形成された粒内気泡11は、転位12を拘束(トラップ)し、その移動を妨げる障害物としてふるまう。したがって、酸化物燃料の母材中に粒内気泡11が密に形成されるように工夫すれば、転位の易動度を小さくし、以って高燃焼度時のリム組織形成を抑制することが可能となる。

20

【0015】

本発明では、上記を実現するための具体的手段として、製造時気泡に着目したものである。酸化物燃料は、核燃料物質を含む酸化物粉末を高温で焼結した焼結ペレットとして原子炉で用いられる。通常、この焼結過程において完全に焼結されることはなく、図1に模式的に示すように、空隙が形成される。これが製造時気泡と呼ばれるものであり、製造時気泡の大きさ及び数密度は、焼結温度や焼結雰囲気などの焼結条件及び酸化物粉末の諸特性に左右される。製造時気泡のうち、気泡径が比較的小さなものについては、核分裂片の通過に伴って照射初期に消失すると考えられ、それらの微小な製造時気泡は空孔として結晶粒界及び結晶粒内に分散する。図1において符号21は粒内に形成された製造時気泡であり、符号22は粒界に形成された製造時気泡である。実際に、J. Nucl. Mater., 62(1976)138において、直径がおよそ0.5 $\mu$ m以下の小さな製造時気泡の数密度が照射初期に急激に減少していることが報告されている。言い換えれば、直径がおよそ0.1~0.3 $\mu$ m以下の小さな製造時気泡は、燃焼初期において主要な空孔供給源としてふるまい、微小粒内気泡の形成を促す機能を果たす。したがって、結晶粒内に形成される製造時気泡21の直径の平均値がおよそ0.2 $\mu$ m以下である核燃料ペレットを用いれば、高燃焼度時の核燃料ペレットのリム組織形成を抑制することができ、もって高燃焼度時の燃料健全性の向上を図ることができる。

30

【0016】

また、製造時結晶粒内に多数の微小気泡が形成されるような核燃料ペレットは、前述の核燃料ペレットと燃料被覆管の相互作用と同様に高燃焼度時に特に問題となるFPガス放出を低減する上で非常に好ましい。

40

【0017】

核燃料ペレット内では、核燃料物質が核分裂するのに伴って様々な種類の核分裂生成原子が生成される。あるものは金属性の析出物を形成し、あるものは母材中に固溶するが、XeやKrなど希ガス類のFP原子は母材中にほとんど固溶しないため、結晶粒内の微小気泡に蓄積されるか、リム組織(粗大化気泡)に蓄積されるか、結晶粒界に形成される粒界気泡に蓄積されるか、あるいは粒界気泡が連結して形成される粒界トンネルを経てペレットから燃料棒内部へと放出される。燃料棒内にFPガスが放出されると、核燃料ペレットと被覆管との間のギャップにおける熱伝導度が低下して燃料中心温度が上昇するのに加え

50

、燃料棒内圧の増大に繋がる。燃料棒内圧が炉心冷却材の静水圧を著しく超えてしまうと、つまり燃料被覆管を膨らませるような応力が生じるわけであるから、核燃料ペレットと燃料被覆管のギャップが広げられてギャップにおける熱伝導率がさらに低下し、燃料中心温度の上昇をもたらし、これに伴ってさらにFPガスが放出されるという悪循環に陥る可能性がある。したがって、高燃焼度時の燃料の健全性裕度を向上させる上で、高燃焼度時のFPガス放出を抑制することは非常に重要である。核分裂に伴って生成されたFPガスは、主として粒内気泡、粒界気泡あるいは粗大化気泡の内部に蓄積されるが、特にFPガス放出が起りやすい事故時あるいは出力急昇時などの場合を考慮すると、より多くのFPガスが粒内気泡に蓄積されている状態にあることが最も好ましく、このような状態が形成されるように促すことが本発明の意図するところである。

10

**【発明の効果】****【0018】**

本発明によれば、核燃料焼結ペレットの結晶粒内に直径の平均値が約 $0.2\mu\text{m}$ 以下であるような微小な製造時気泡を多数有するようにすることにより、高燃焼度時における核燃料ペレットのリム組織形成を抑制することができる。従って、高燃焼度時のペレット-燃料被覆管相互作用を軽減せしめ、高燃焼度時の燃料健全性を向上させることができる。

**【発明を実施するための最良の形態】****【0019】**

本発明による核燃料ペレットを沸騰水型原子炉用材料に適用した実施例を以下に説明する。

20

**【0020】**

本発明による核燃料ペレット3は、図1に模式的に示すように、結晶粒内に形成された製造時気泡21及び結晶粒界に形成された製造時気泡22を有し、かつ直径約 $0.2\mu\text{m}$ 以下の微小な製造時気泡を結晶粒内に多数有する。

**【0021】**

本発明の原理は、前述のように、直径およそ $0.1\mu\text{m}$ 以下の製造時気泡が結晶粒内に多数形成されている核燃料ペレットにおいて特に有効である。逆に、製造時気泡のほとんど全てが直径約 $0.5\mu\text{m}$ 以上であるような核燃料ペレットについては、本発明の効果はあまり期待できない。核燃料ペレットに形成される製造時気泡の直径の頻度分布はおよそ対数正規分布に従うことから、本発明の原理は、これらの製造時気泡の直径の中央値(メジアン)を約 $0.2\mu\text{m}$ 以下に制御することによっ

30

**【0022】**

てはじめて、その効果を期待することができる。図2及び図3は結晶粒内に多数の微小な製造時気泡を有する核燃料ペレットAの照射前並びに高燃焼度時の微細組織、図4及び図5は結晶粒内に微小な製造時気泡を有していない核燃料ペレットBの照射前並びに高燃焼度時の微細組織を模式的に示したものである。なお、図3および図5においては、粒内気泡の形成状況の違いを識別しやすいように、転位を省略して図示している。

**【0023】**

前記酸化物燃料ペレットAは製造時の結晶粒径が約 $10\mu\text{m}$ の $\text{UO}_2$ 燃料ペレットであり、前記酸化物燃料ペレットBは製造時の結晶粒径が約 $50\mu\text{m}$ の $\text{Gd}_2\text{O}_3$ 添加 $\text{UO}_2$ 燃料ペレットである。いずれの酸化物燃料も、核燃料物質を含む酸化物粉末を焼結して焼結ペレットとし、燃料被覆管に装填して原子炉内でペレット平均燃焼度約 $70\text{GWd/t}$ 程度まで照射した後、微細組織を調べた。

40

**【0024】**

図3および図5を比較すると、結晶粒内に多数の微小な製造時気泡を有する酸化物燃料ペレットの方が、高燃焼度時に粒内気泡11が有意に高い数密度で形成されていることがわかる。

**【0025】**

また、観察領域全体に対してリム組織形成領域(製造時結晶の細粒化および粗大化気泡

50

の形成が認められた領域)が占める割合を調べた結果、結晶粒内に多数の微小な製造時気泡を有する酸化燃料ペレットでおよそ5割~7割、結晶粒内に微小な製造時気泡を有さない酸化燃料ペレットでは9割以上の領域でリム組織が形成されていた。

【0026】

結晶粒径だけを考慮すれば、製造時の結晶粒径が小さい酸化燃料ペレットAは、酸化燃料ペレットBに比べてリム組織が形成されやすい傾向にある。しかし実際には、製造時の結晶粒径を大きくした酸化燃料ペレットBの方が、より広範囲にわたって組織変化を生じている。この結果は、前記原理を支持するデータであり、製造時気泡の形成状況を適切に制御するという手段によって、高燃焼度時における核燃料ペレットのリム組織形成を抑制できることを裏付けている。

10

【0027】

原子炉で従来用いられているウラン燃料については、図2に代表されるように、主として結晶粒界に直径0.2μm以上の比較的大きな製造時気泡22が形成されている一方で、結晶粒内に約0.1μmあるいはそれ以下の小さな製造時気泡21が形成されている。他方、ガドリニア燃料では、図4に代表されるように、約0.1μm以下の小さな製造時気泡はほとんど認められず、主として直径約1μm程度あるいはそれ以上の比較的大きな製造時気泡が形成されている。両者の差異は、ウラン燃料とガドリニア燃料とで焼結特性(焼結し易さ)が異なること及び焼結条件が異なることによるものであり、さらには焼結時のペレット密度を調整するために意図的に混合される造孔材(ポアフォーマー)の作用が加味された結果生じた違いである。本発明の原理は、原子炉で用いられる酸化燃料全般において有効であるが、前記図2~図5から示唆されるように、従来用いられているガドリニア燃料において特に有効である。また、核燃料物質としてウランとともにプルトニウムを用いた混合酸化燃料を原子炉で使用する場合についても、本発明の原理によるリム組織形成抑制効果は有効であり、混合酸化燃料の使用は本発明の効果を妨害するものではない。

20

【0028】

さらに、本発明を適用した核燃料ペレットについて、結晶粒界に軟質の第二相を析出させてクリープ特性を向上させることは、高燃焼度時の核燃料ペレット3と燃料被覆管2の相互作用をさらに緩和させる上で望ましい。さらに、製造時の結晶粒径を大きくした核燃料ペレットに本発明を適用することは、本発明によるリム組織抑制効果をさらに増幅させる上で非常に望ましい。逆に、製造時の結晶粒径を現行材のそれよりも小さくすることは、本発明の効果を限定することになる。核燃料ペレットの平均粒径は、酸化燃料粉末の諸特性、粉末の混合状態、焼結雰囲気あるいはGd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>添加量などによって変化することが知られているが、現行の核燃料ペレットについては、平均粒径が概ね10μm程度、少なくとも5μm以上となるような条件で製造されている。したがって、本発明の原理に基づいてリム組織形成を現状以下に抑えるためには、製造時の結晶粒径が少なくとも5μm以上である核燃料ペレットに本発明を適用することが望ましい。

30

【0029】

上記のことから、本発明による核燃料ペレットを原子炉用燃料材料として適用することにより、高燃焼度におけるリム組織形成を抑制し、以って核燃料ペレット3と燃料被覆管2の相互作用を緩和し、高燃焼度時の燃料健全性を向上させた原子炉用燃料集合体を提供することができる。

40

【図面の簡単な説明】

【0030】

【図1】本発明による核燃料ペレットの微細組織の模式図。

【図2】結晶粒内に微小な製造時気泡を有する核燃料ペレットAの照射前の微細組織を示す模式図。

【図3】結晶粒内に微小な製造時気泡を有する核燃料ペレットAの高燃焼度時の粒内気泡形成状況を示す模式図。

【図4】結晶粒内に微小な製造時気泡を有していない核燃料ペレットBの微細組織を示す

50

模式図。

【図5】結晶粒内に微小な製造時気泡を有していない核燃料ペレットBの高燃焼度時の粒内気泡形成状況を示す模式図。

【図6】(a)は原子炉用燃料棒の一部断面外形図、(b)はその平断面拡大図。

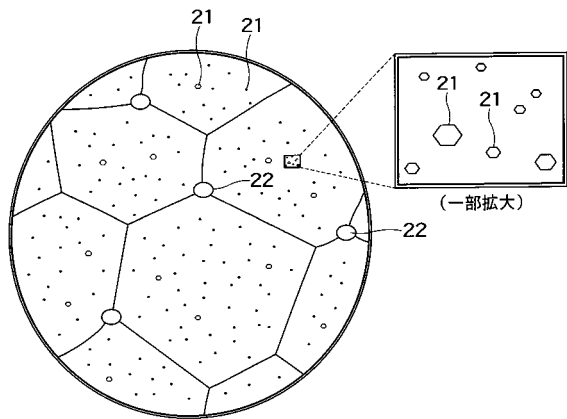
【図7】照射済核燃料ペレットで観察された転位および粒内気泡の模式図。

【符号の説明】

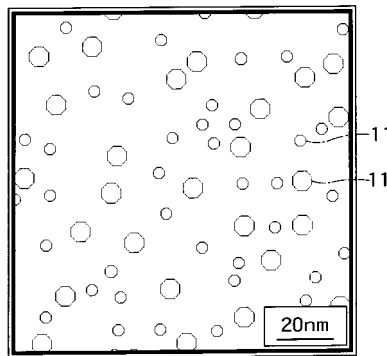
【0031】

- 1 燃料棒
- 2 被覆管
- 3 核燃料ペレット
- 4 下部端栓
- 5 上部端栓
- 6 プレナムスプリング
- 11 粒内気泡
- 12 転位
- 21 粒内に形成された製造時気泡
- 22 粒界に形成された製造時気泡

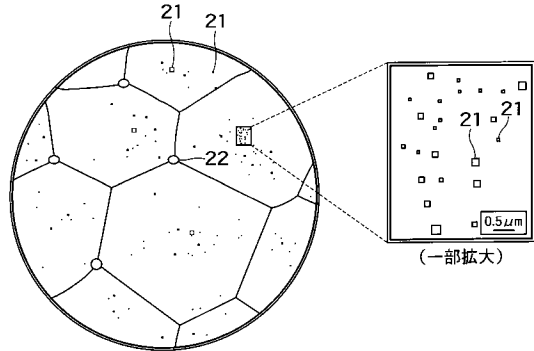
【図1】



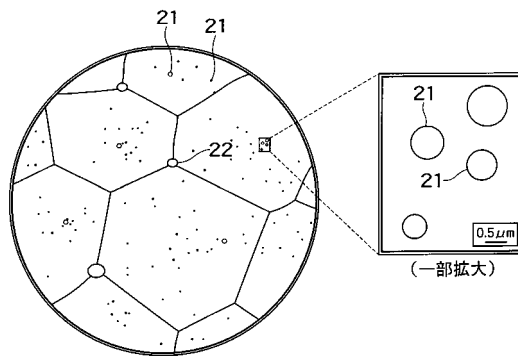
【図3】



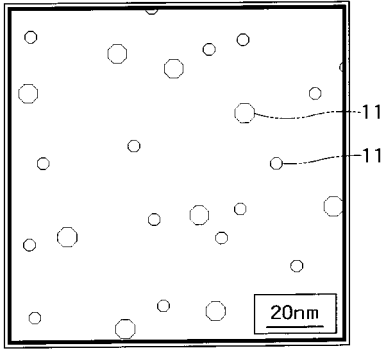
【図2】



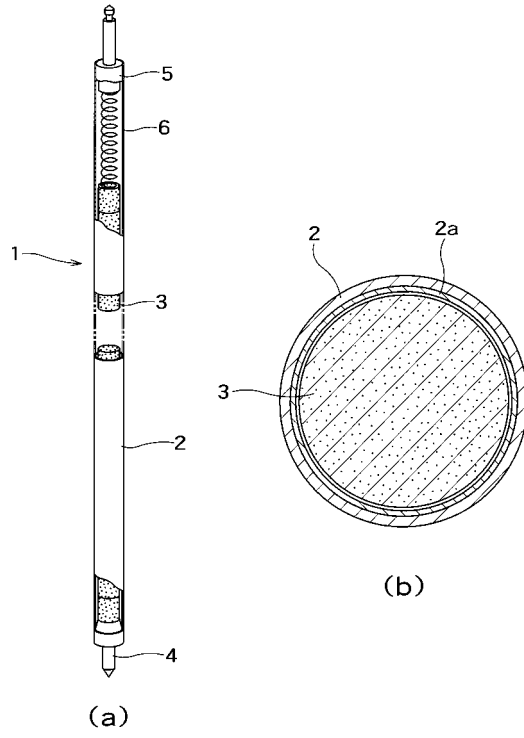
【図4】



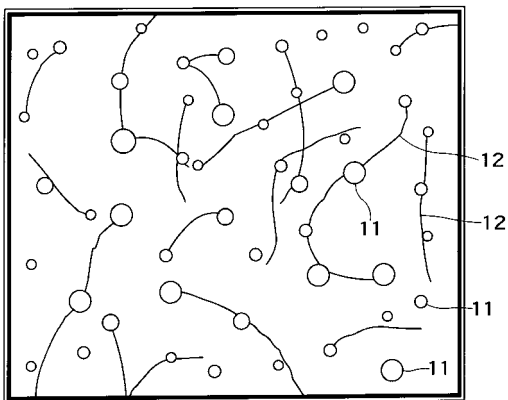
【 図 5 】



【 図 6 】



【 図 7 】



## フロントページの続き

- (72)発明者 高 川 佳 浩  
神奈川県横須賀市内川二丁目3番1号 株式会社グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン  
内
- (72)発明者 宇 根 勝 己  
神奈川県横須賀市内川二丁目3番1号 株式会社グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン  
内