

## 小型モジュール炉燃料の高燃焼度化適用性検討\*

松浦 敬三<sup>\*1</sup>, 高川 喜裕<sup>\*1</sup>

## Investigation of Applicability to High Burnup of Small Modular Reactor Fuel

Keizo MATSUURA<sup>\*1</sup> and Yoshihiro TAKAGAWA<sup>\*1</sup><sup>\*1</sup> Faculty of Engineering, Department of Applied Nuclear Technology

Recently, Small Modular Reactor has been investigated as a candidate of future reactor, which is safer and more economical than present reactor, in the world. Since the SMR is intended for use in remote areas where the power grid is not well developed, long-term operation without refueling, that is, high burnup of fuel is desirable. Therefore, the introduction of fuel enriched to about 20wt% is being considered. However, in a previous study, a rapid increase in the FP gas release rate was confirmed in the behavior analysis of high burnup fuel of 120 GWd/tU, suggesting that suppression of FP gas emission is the key to achieving long-term operation. On the other hand, considering the operation of SMR in areas where the power grid is well developed, it is expected to play a role in promoting carbon-free power generation by replacing thermal power generation by performing load-following operation in combination with renewable energy. However, in this case, it is necessary to confirm that the load fluctuation to the fuel caused by load-following operation does not cause fatigue failure. Since both problems are caused by burning SMR fuel to high burnup, this study focused on evaluation of FP gas release and fatigue under load-following operation. This study showed FP gas behavior in high burnup and that FP gas release can be reduced by increasing UO<sub>2</sub> grain size. Furthermore, this study also showed that daily load following operation doesn't cause fatigue failure on SMR fuel.

**Key Words :** SMR, fuel, high burnup, fission gas release, load follow, fatigue failure

## 1. 緒 言

近年, 安全性, 経済性を考慮した将来炉の候補として小型モジュール炉(Small Modular Reactor: 以下 SMR という)の研究開発が, 世界各国で進められている。

SMR は, 電力網の発達していない遠隔地での利用が考慮されているため, 燃料交換不要の長期間運転, つまり燃料の高燃焼度化が望ましいため, 濃縮度を 20wt%程度まで高めた燃料の導入が検討されている。ところが, 先行研究<sup>(1)</sup>において, 120GWd/t の高燃焼度燃料の挙動解析において, 燃焼末期に核分裂生成物ガス(Fission Products Gas, 以下 FP ガスと略する)放出率の急激な増加が確認され, FP ガス放出の抑制が長期間運転を達成するための課題であることがわかった。

一方, 我が国のような電力網が発達している地域における SMR の運用を考えると, 出力変動の大きい再生可能エネルギーと組み合わせて負荷追従運転を行うことにより, 火力発電を代替しカーボンフリーを推し進める役割が期待される。しかし, この場合, 負荷追従運転に起因する燃料への荷重変動が, 疲労破壊を引き起こさないことを確認する必要がある。

いずれの問題も, SMR 燃料を高燃焼度まで燃焼させることによる問題であるため, 本研究では, SMR 燃料を高燃焼度まで燃焼させた場合に問題となる FP ガス放出と疲労について焦点を当て評価するものである。

\* 原稿受付 2023 年 5 月 10 日

<sup>\*1</sup> 工学部 原子力技術応用工学科

E-mail: matsuura-k@fukui-ut.ac.jp

## 2. 解析方法

### 2.1 使用コードおよび入力データについて

本研究では、JAEA（日本原子力研究開発機構）で開発されている FEMAXI-8<sup>(2)</sup>を用いて燃料挙動を解析した。FEMAXI コードは JAEA を中心に FEMAXI- I (1974)から開発・改良が継続的になされており、FEMAXI-8 はその最新版である。コードの概要については、前報<sup>1)</sup>に述べており、入力データについても前報と同じ入力データを使用している。

### 2.2 FP ガス放出量評価

#### 2.2.1 FP ガス放出モデル

FEMAXI-8 における FP ガス放出モデル<sup>(3)</sup>は、Fig.2.1 に示すように  $\text{UO}_2$  結晶粒内（Intra-grain matrix）での FP ガス生成（Fission→Gas atom）、粒内拡散（Diffusion）、粒内気泡へのトラッピング（IG Gas bubble への Coalescence）と再溶解（Resolution）、結晶粒界（Grain boundary）への析出（Edge bubble）を考慮した熱拡散モデルとペレット周縁に生成されるリム組織を考慮した高燃焼度組織（High burnup structure）モデルの2つがある。熱拡散モデルは機構論的なモデルであるが、高燃焼度組織モデルはまだ解明されていない点が多く、経験的なモデルが使用されている。

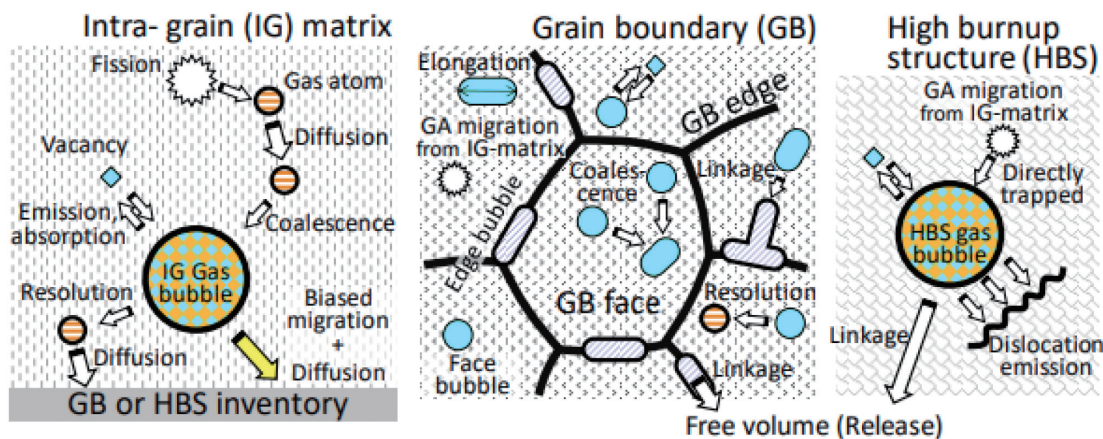


Fig. 2.1 FP gas release model<sup>(3)</sup>

FEMAXI-8 における FP ガス放出計算の基本的考え方は、以下のとおりである。実際には、以下の評価以外にも結晶粒成長の影響も評価する。

- ① 核分裂による FP ガス生成速度を求める
- ②  $\text{UO}_2$  結晶内での FP ガス原子の拡散を求める
- ③ 結晶粒内気泡への FP ガス原子のトラッピングと再溶解を求める
- ④ 結晶粒界へ移動する FP ガス原子量を求める
- ⑤ 粒界トンネルの形成の判断をして、FP ガス放出量を評価する

以下は、FP ガス放出評価における主要なモデルである②、③における結晶粒内の拡散を評価した Speight のモデル<sup>(4)</sup>である。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c}{\partial r} \right) - gc + b'm + \beta$$

ここで、

$c$  : 固体マトリックス単位体積あたりに溶解している FP ガス原子数 (atoms / cm<sup>3</sup>)

$D$  : ガス原子の拡散係数 (cm<sup>2</sup>/s)

$g$  : 粒内バブルにトラップされるガスの割合 (s<sup>-1</sup>)

$b'$  : 固体内への再溶解率 (s<sup>-1</sup>)

$m$  : バブルの空間単位体積あたりに存在するガス原子数 (atoms / cm<sup>3</sup>)

$\beta$  : ペレット単位体積あたりのガス生成率 (atoms/cm<sup>3</sup>/s)

### 2.2.2 FP ガス放出メカニズムの確認

FP ガス放出モデルに基づいて、燃料内で FP ガスがどのように挙動しているかについて確認する。具体的には、燃焼度とともに燃料内の単位体積あたりの FP ガス原子数を、1) 生成数、2) 結晶粒内存在数、3) 結晶粒マトリックス内存在数、4) 粒内気泡中存在数、5) 粒界存在数の観点で挙動を確認する。

### 2.2.3 ペレット大粒径化と FP ガス放出率の関係評価

120GWd/t の高燃焼度になると FP ガス放出率が大きくなり燃料の健全性への影響が懸念される。そこで、生成した FP ガスを結晶粒内に閉じ込めておくために、結晶粒径の粗大化を検討することとした。結晶粒径を粗大化することで、FP ガスが拡散した場合でも結晶粒内に留められ FP ガス放出しない可能性がある。そこで、結晶粒径と FP ガス放出率の関係を求め、高燃焼度時の燃料健全性対策の一つとして検討した。

## 2.3 疲労評価

### 2.3.1 疲労評価法

日負荷追従運転における疲労評価を行うため、応力振幅  $S$  (縦軸) と破断に至るまでの荷重の繰り返し数  $N$  (横軸) の関係を表した Langer-O'Donnell のジルカロイ設計疲労曲線<sup>(5)</sup>を用いる。

$N$  に対して  $S$  が一定になっている水平部分は無限の繰り返しに耐えうる応力振幅の上限値であり、これが疲労限度である。工業的には  $N = 10^6$  回における応力を疲労強度とすることがある。

応力振幅が変動する疲労寿命については、マイナー則<sup>(6)</sup>と呼ばれる仮説がある。これは、応力振幅  $S_1, S_2, S_3, \dots, S_m$  なる繰り返し荷重をそれぞれ  $n_1, n_2, n_3, \dots, n_m$  回ずつ与えたとき、

$$D = \sum_{i=1}^k \frac{n_i}{N_i}$$

ここで、

$N_i$  :  $S_i$  なる応力振幅のみを与えた場合の疲労寿命

として、累積疲労損傷係数  $D$  を定義し、 $D \geq 1$  の場合疲労破壊し、 $D < 1$  で疲労破壊しないという考え方である。

### 2.3.2 疲労評価条件

ここでは、高燃焼度時における疲労評価を行うため、Fig.2.2 に示す日負荷追従運転の出力変化を想定して、被覆管応力評価を行った。なお、疲労評価を行うために燃料寿命初期（0MWd/tU を始点とする 730 日間の日負荷追従運転解析）、寿命中期（0～60000MWd/tU までは定格運転、日負荷追従運転は 60000MWd/tU を始点とする 730 日間とした）、寿命末期（0～1000000MWd/tU までは定格運転、日負荷追従運転は 100000MWd/tU を始点とする 730 日間とした）の 3 つ時期に分けて応力評価を行った。なお、このように 3 つの時期に分けて応力評価を行ったのは、被覆管とペレットの接触状態が大きく変化する典型的なタイミングであることと FEMAXI-8 における出力履歴の入力数に制限があるためである。

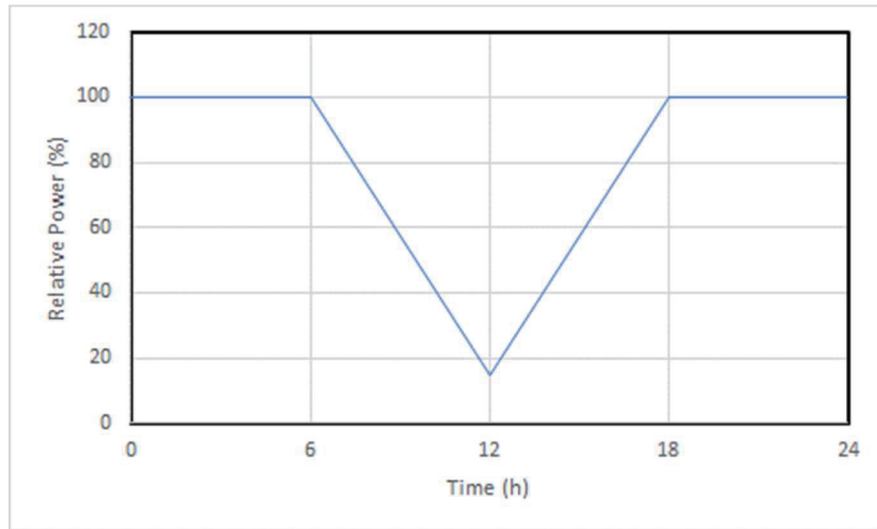


Fig. 2.2 Power history for FP gas release model and Fatigue failure



### 3. 解析結果

#### 3.1 FP ガス放出

##### 3.1.1 FP ガス放出メカニズムの確認

FP ガス放出メカニズムの確認を行うため、前報<sup>1)</sup>でも示した燃料棒平均燃焼度 120GWd/tU まで定格出力一定で燃焼させた場合の FP ガス放出率の変化を Fig. 3.1 に、燃料中心温度の変化を Fig.3.2 示す。

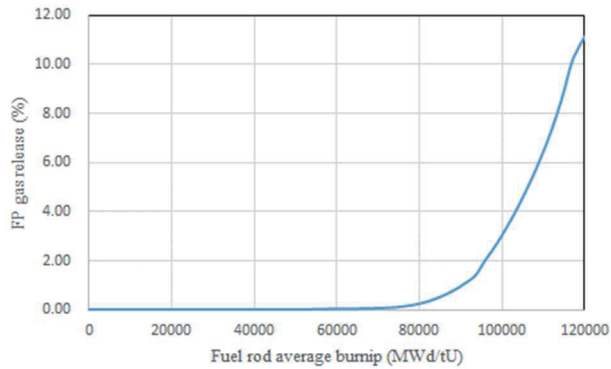


Fig. 3.1 FP gas release

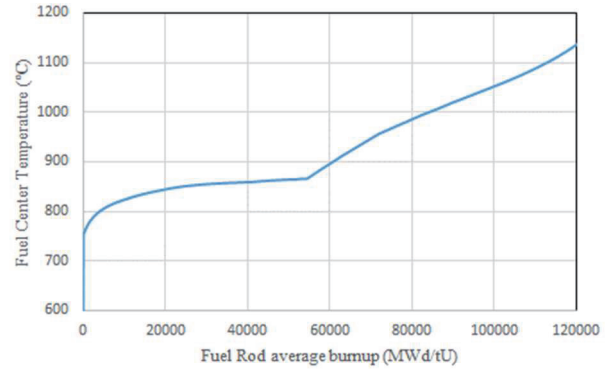


Fig. 3.2 Fuel Center Temperature

今回確認した FP ガス放出モデルの主要パラメータとその確認理由および図番号の対応を Table 3.1 に示す。

Table.3.1 Key parameters for confirming the FP gas release mechanism

Parameter	Reason	Fig. No.
Number of FP gas generation atoms per unit volume	Confirm that FP gas atoms (Xe, Kr) are generated in proportion to burnup	3.3
Number of intragranular FP gas atoms per unit volume	Confirm the relationship with the FP gas release rate	3.4
Number of FP gas atoms in intragranular matrix per unit volume	Confirm the relationship with the FP gas release rate	3.5
Number of FP gas atoms in intragranular bubbles per unit volume	Confirm the relationship with the FP gas release rate	3.6
Number of FP gas atoms per grain boundary unit surface area	Confirm the relationship between the FP gas release rate and the number of FP gas atoms in the grain	3.7
FP gas effective diffusion coefficient	Confirm relationship with FP gas release rate and other FP gas atomic numbers	3.8

Fig.3.3 は、単位体積当たりの FP ガス生成原子数の燃焼度依存性である。核分裂における FP ガス原子の収率は一定であるので、燃焼度に比例して FP ガス原子数が増加していることがわかる。Fig.3.4 は、単位体積当りの粒内 FP ガス原子数の燃焼度依存性である。結晶粒内 FP ガス原子数は約 70000MWd/t まで増加した後、急激に減少していることがわかる。結晶粒内 FP ガス原子数が減少し始める時期は FP ガス放出率の増加時期と一致している。Fig.3.5 は、単位体積当たりの結晶粒内マトリックス中の FP ガス原子数の燃焼度依存性である。結晶粒内マトリックス中の FP ガス原子数は約 70000MWd/t まで増加した後、急激に減少していることがわかる。結晶粒内マトリックス中の原子数が減少し始める時期は FP ガス放出率の増加時期と一致している。Fig.3.6 は、単位体積当たりの結晶粒内気泡中の FP ガス原子数の燃焼度依存性である。結晶粒内気泡中の FP ガス原子数は約 70000MWd/t まで増加した後、急激に減少していることがわかる。結晶粒内気泡中の FP ガス原子数が減少し始める時期は FP ガス放出率の増加時期と一致している。Fig.3.7 は、粒界単位表面積当たりの FP ガス原子数の燃焼度依存性である。粒界単位表面積当たりの FP ガス原子数は、約 100000MWd/t まで増加した後、急激に減少していることがわかる。これは、結晶粒内の FP ガス原子数が減少し始めた燃焼度から少し遅れてピークを迎えた後、減少していることがわかる。Fig.3.8 は FP ガス実効拡散係数の燃焼度依存性である。燃焼度が約 60000MWd/t を超えると増加し始めることがわかる。

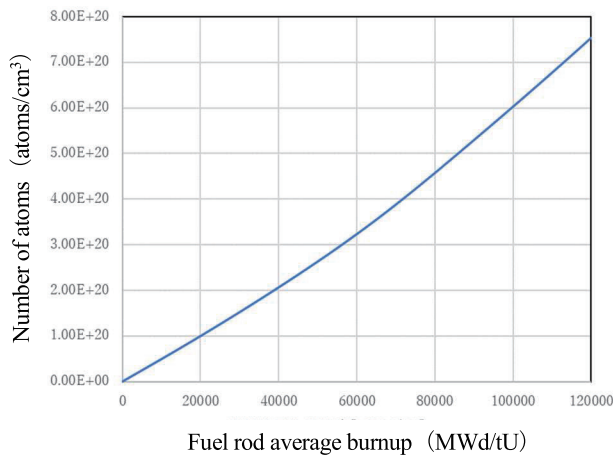


Fig. 3.3 FP gas generation atoms

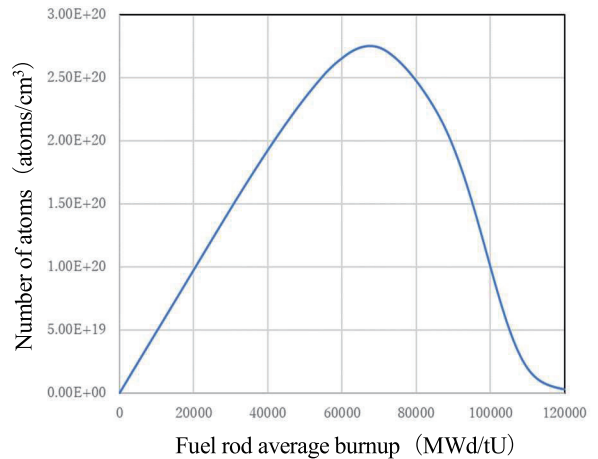


Fig. 3.4 Intragranular FP gas atoms

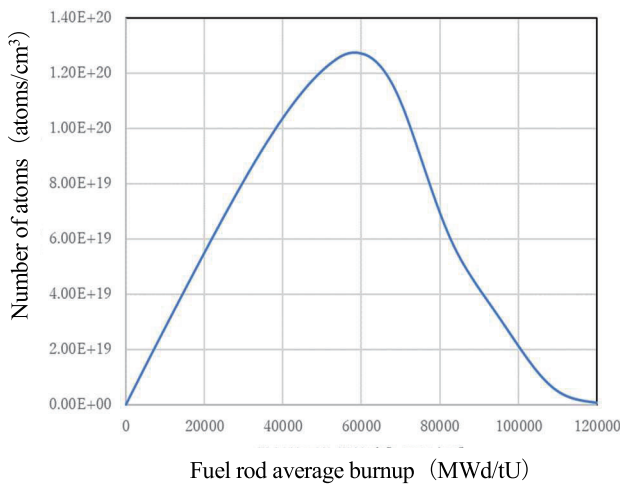


Fig. 3.5 FP gas atoms in intragranular matrix

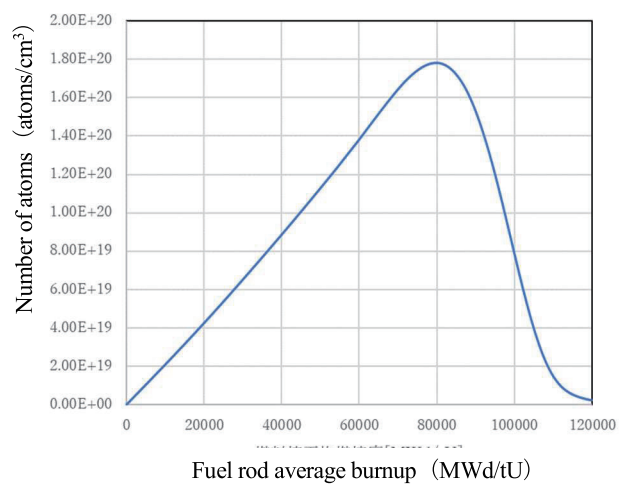


Fig. 3.6 FP gas atoms in intragranular bubbles

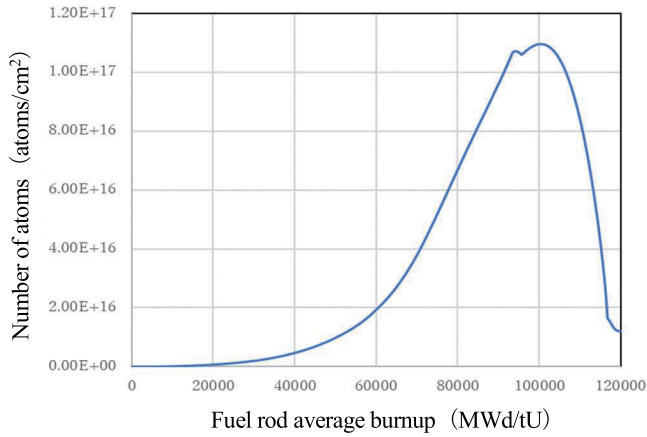


Fig. 3.7 FP gas atoms per grain boundary unit surface area

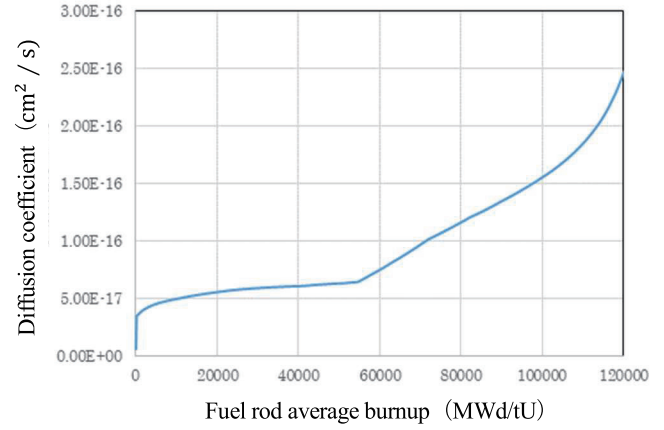


Fig. 3.8 FP gas effective diffusion coefficient

### 3.1.2 ペレット大粒径化と FP ガス放出率の関係評価

ペレット粒径と FP ガス放出率の関係を確認するため、ペレット粒径を 10 $\mu\text{m}$  から 100 $\mu\text{m}$  まで 10 $\mu\text{m}$  刻みで増加させた場合の FP ガス放出率変化を求めた。その結果を Table3.2 および Fig.3.9 に示す。結果に示すとおり粒径の増加とともに FP ガス放出率(Fission Gas Release : FGR)は低下していくことがわかる。

Table3.2 Relationship between pellet grain size and FP gas release rate (FGR)

Grain size ( $\mu\text{m}$ )	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
FGR(%)	11.1	11.2	9.0	7.1	5.6	4.5	3.5	2.6	2.2	0.5

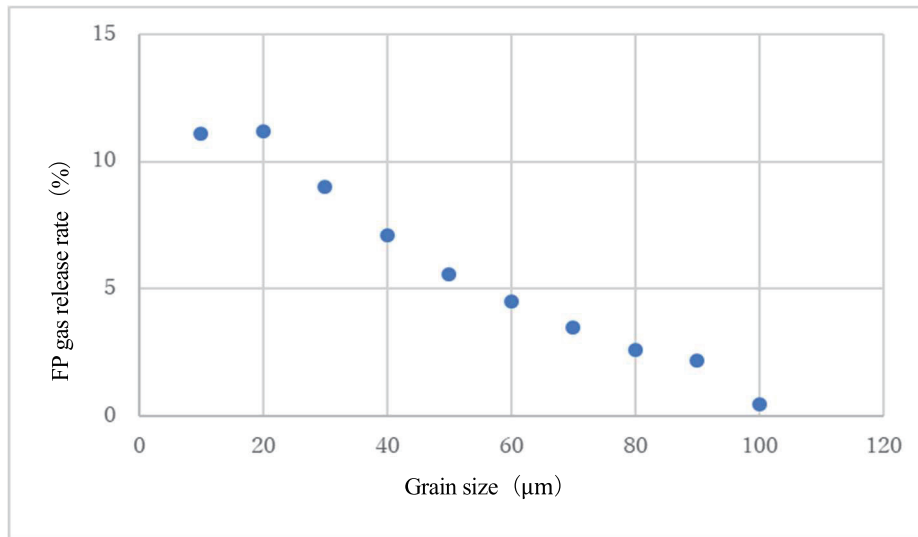


Fig. 3.9 Relationship between grain size and FP release rate

### 3.2 疲労評価

まず、燃料寿命初期での解析結果を述べる。ペレット外径および被覆管内径について Fig.3.10 に示す。寿命初期では、ペレットと被覆管は接触していないことがわかった。被覆管相当応力について Fig.3.11 に示す。寿命初期では、応力振幅が  $0.05\text{MPa}$  程度であった。なお、疲労評価として 1 日周期の負荷追従運転解析を行っているため、解析結果である被覆管内外径および被覆管応力は 1 日周期でその値が変動しているためグラフの見かけとして幅の広い線として描画されている。燃料寿命中期および燃料寿命末期においても同様である。

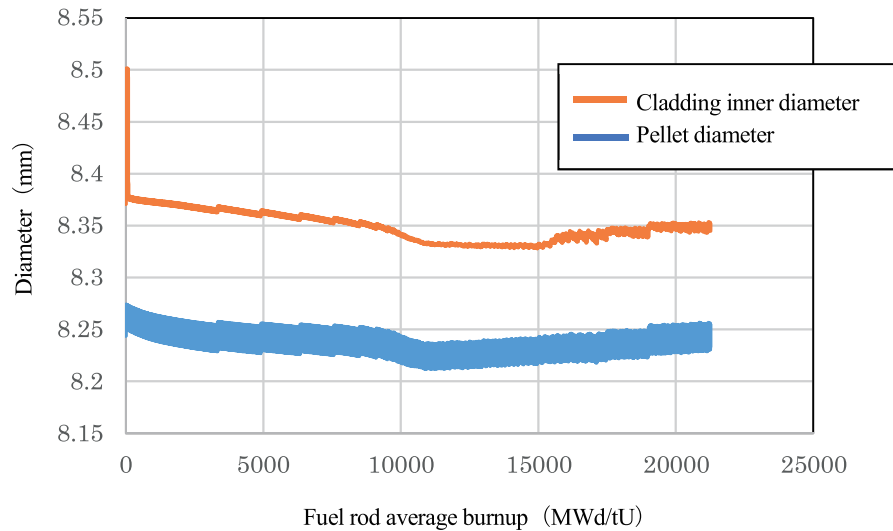


Fig. 3.10 Pellet outer diameter and cladding inner diameter

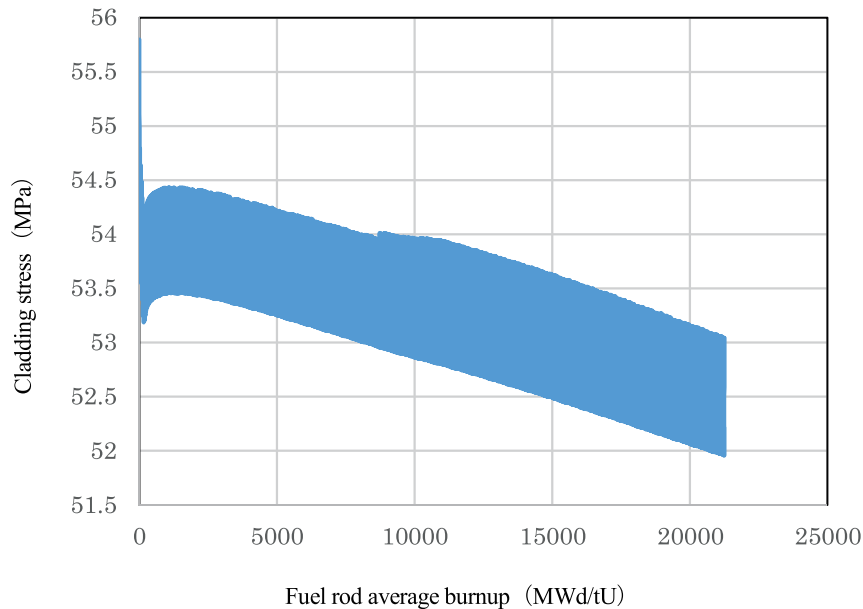


Fig. 3.11 Cladding equivalent stress

次に、燃料寿命中期での解析結果を述べる。この解析では、燃料棒平均燃焼度 60000MWd/tU から日負荷追従運転を開始しているため、当該燃焼度から出力の変動とともに燃料ペレットおよび被覆管の熱膨張量が変動し、被覆管内外径および被覆管応力の振動が始まっている。ペレット外径および被覆管内径について Fig.3.12 に示す。寿命中期では、ペレットと被覆管は接触していることがわかった。被覆管相当応力について Fig.3.13 に示す。寿命中期では、応力振幅が 50MPa 程度であった。

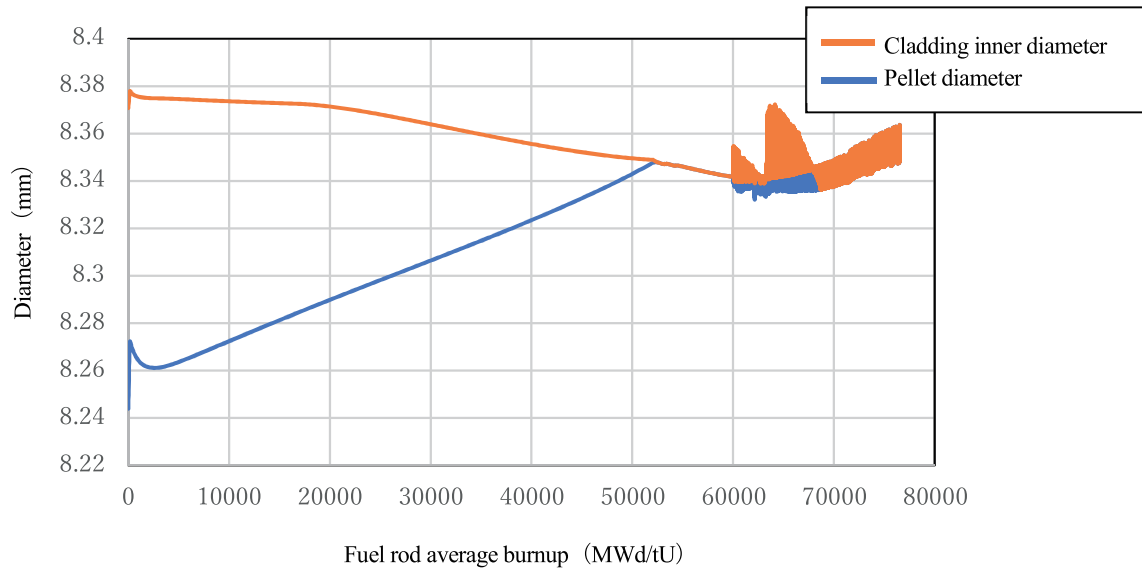


Fig. 3.12 Pellet outer diameter and cladding inner diameter

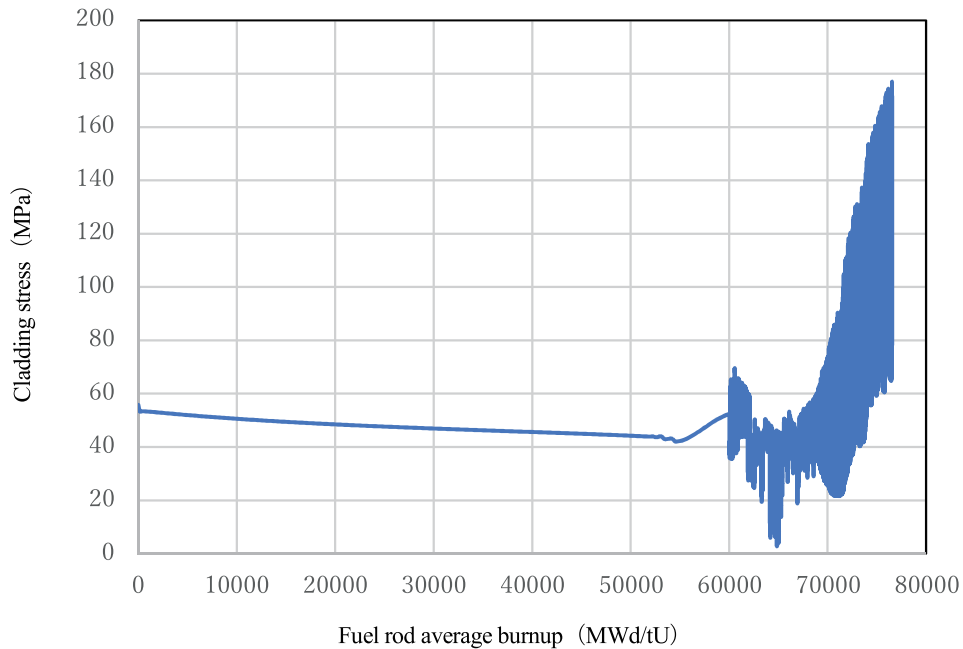


Fig. 3.13 Cladding equivalent stress



燃料寿命末期での解析結果を述べる。この解析では、燃料棒平均燃焼度 120000MWd/tU から日負荷追従運転を開始しているため、当該燃焼度から出力の変動とともに燃料ペレットおよび被覆管の熱膨張量が変動し、被覆管内外径および被覆管応力の振動が始まっている。ペレット外径および被覆管内径について Fig.3.14 に示す。寿命末期では、ペレットと被覆管は接触していることがわかった。被覆管相当応力について Fig.3.15 に示す。寿命末期では、応力振幅が 60MPa から 95MPa 程度であった。

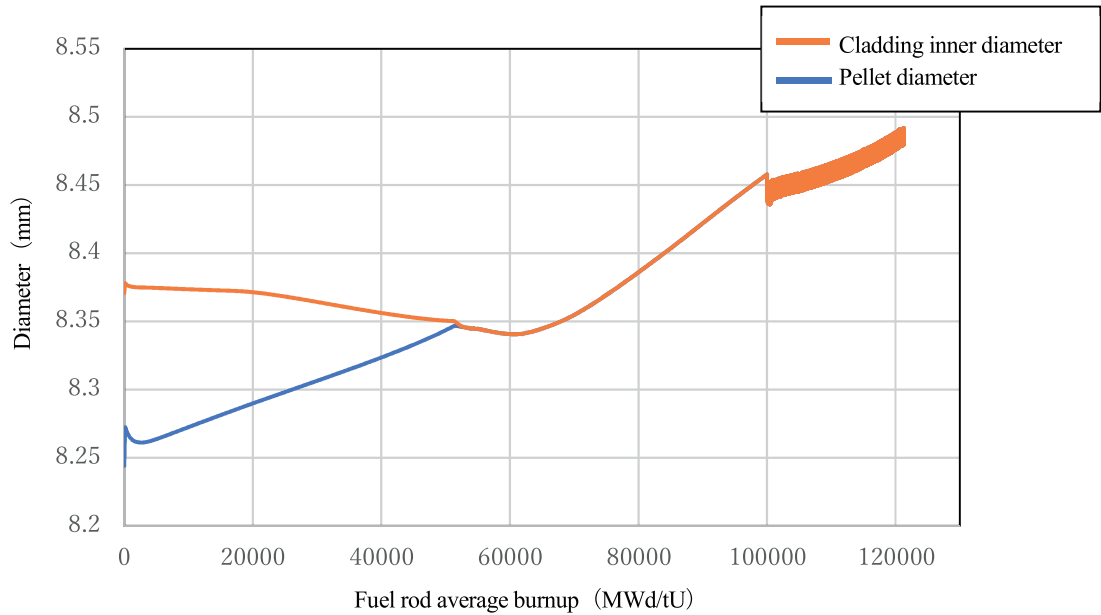


Fig. 3.14 Pellet outer diameter and cladding inner diameter

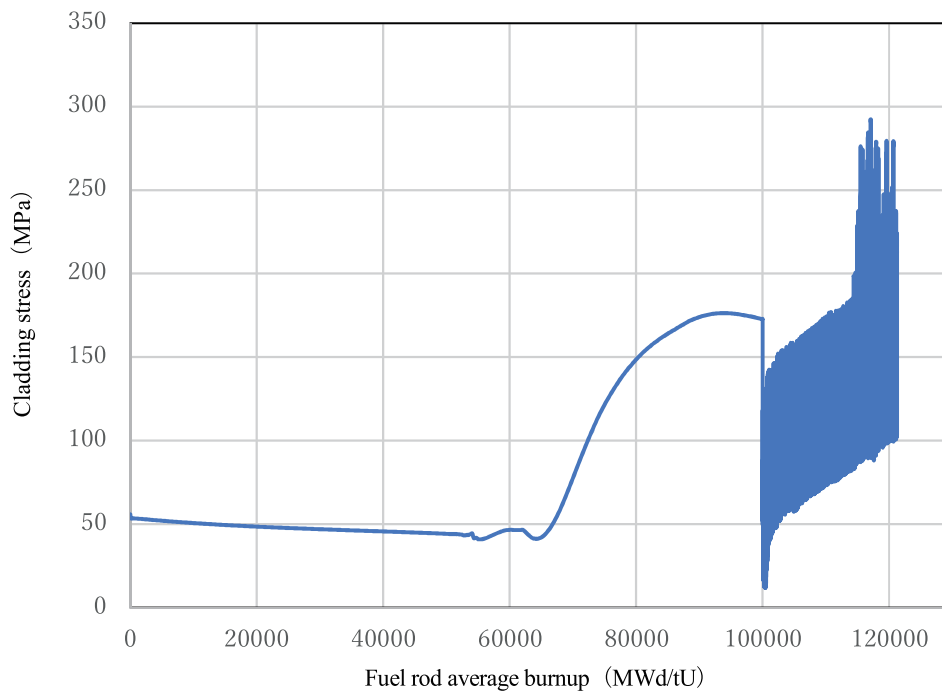


Fig. 3.15 Cladding equivalent stress

## 4. 考 察

### 4.1 高燃焼度時における FP ガス放出モデル評価

FP ガス放出モデルの一つ、熱拡散モデルにおいて熱拡散の程度を表すのは、Fig.3.8 に示す FP ガス原子の実効拡散係数であるが、これは、Fig.3.2 に示すペレット中心温度と連動して増加しており、特に 800°C を超えてからの中心温度変化に対する実効拡散係数の感度が大きいことがわかる。

また、拡散係数の上昇にともない、粒内の FP ガス原子は結晶粒内、粒内気泡にかかわらず蓄積から減少へと転じている。熱拡散の流れを Fig.4.1 に示す。粒内に蓄積されていた FP ガス原子は一気に粒界へ移動していると考えられる。一方、粒界における FP ガス原子数は、粒内の FP ガス原子の拡散による減少から時間遅れで増加していることがわかる。つまり、粒内の FP ガス原子が拡散により減少し粒界に蓄積し、その後、粒界トンネルが形成されることにより、粒界の FP ガス原子が放出され、FP ガス放出率が急増していることがわかる。

上記のように、FP ガス放出の計算は、燃料中心温度上昇を起因とする FP ガス拡散係数の増大に因るものであり、燃料中心温度の上昇は高燃焼度における FP による熱伝導率低下が原因と考える。このように現状の FP ガス放出モデルは高燃焼度における FP ガスの挙動を適正に表現していると考えるが、FP ガス量の絶対値および放出時期については、試験炉における内圧変化データや照射後試験におけるペレット分析データ等に基づいて今後高精度化していく必要がある。

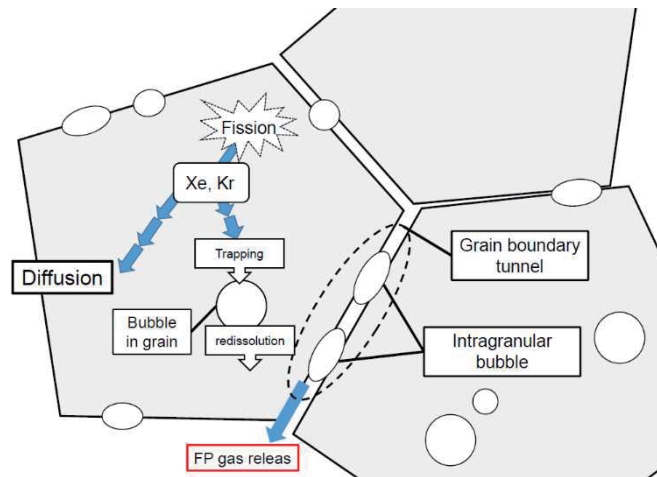


Fig.4.1 Thermal diffusion model of FP gas

### 4.2 高燃焼度時における疲労評価

高燃焼度時に至るまでの負荷追従運転時の被覆管の疲労評価を行うために燃料寿命初期、寿命中期、寿命末期の3つに分けて応力振幅を求めた。その中で最も応力振幅が大きかった寿命末期に基づいて疲労評価を行う。燃料寿命末期において最大の応力振幅は 95MPa であった。ジルカロイ-4 の S-N 曲線<sup>9)</sup>より、95MPa での許容繰返し数は約 10000 回であることがわかる。一方、解析対象燃焼度 120GWd/t に対する応力振幅繰返し数は、FEMAXI-8 で解析可能な繰返し数 730 回に相当する燃焼度が約 21.3GWd/tU であることから、この応力振幅が 120GWd/tU の期間繰返し継続したとすると、応力振幅の繰返し数は 4120 回と見積もることができる。これを用いて累積疲労損傷係数  $D$  を以下のように求める。

$$\frac{(95\text{MPa での応力振幅繰返し数})[\text{回}]}{(95\text{MPa での許容繰返し数})[\text{回}]} = \frac{4120}{10000} = 0.412 (< 1)$$

したがって、本解析では高燃焼度、負荷追従運転時に被覆管の疲労破壊が起こる可能性は低いと考える。しかし、本解析では運転停止や異常な過渡変化などによる応力振幅について考慮していないので、今後プラント寿命内に発生する応力変動の要因を精査して評価する必要がある。

## 5. 結 論

SMR 燃料の高燃焼度時の FP ガス放出計算の詳細検討，具体的には，FP ガス放出計算を構成している要素モデルが高燃焼度化にともなってどのように現象を評価しているか，代表的なパラメータの推移を確認してモデルの妥当性について検討した．その結果，現状の FP ガス放出モデルは高燃焼度における FP ガスの挙動を適正に表現していることを明らかにした．一方，FP ガス量の絶対値および放出時期については，試験炉における内圧変化データや照射後試験におけるペレット分析データ等に基づいて今後高精度化していくことが今後の課題である．

SMR 燃料に対する負荷追従運転による疲労破壊の可能性について評価するため，被覆管ペレット接触後の応力増加が予想される寿命末期の応力評価に重点を置いて累積疲労損傷係数を評価した．その結果，燃料寿命末期での応力振幅が寿命全般にわたって発生していたと仮定しても，被覆管の疲労破壊が起こる可能性は低いことを明らかにした．しかし，運転停止や異常な過渡変化などによる応力振幅，より高燃焼度時の運転については今後精査していくことが課題である．

## 参考文献

- (1) 松浦敬三，原子愛唯，“小型モジュール炉燃料の高燃焼度化に向けた燃料ふるまい解析”，福井工業大学研究紀要，Vol.52, pp.40-50, 2022.
- (2) Y.Udagawa, M.Amaya, "Model Updates and Performance Evaluations on Fuel Performance Code FEMAXI-8 for Light Water Reactor Fuel Analysis", Journal of Nuclear Science and Technology, (2019).
- (3) 鈴木元衛他，“軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造 [改訂版]”，JAEA-DATA/Code 2013-014(2014)
- (4) Speight M.V., A Calculation on the Migration of Fission Gas in Material Exhibiting Precipitation and Re-solution of Gas Atoms under Irradiation, Nucl. Sci. Eng. 37, p.180 (1969)
- (5) W. J. O'Donnell and B. F. Langer, "Fatigue Design Basis for Zircaloy Components", Nuclear Science and Engineering, 20, 1-12 (1964).
- (6) Miner, M.A., J. Appl. Mech., A, 12 (1945), 159.

(2023年8月3日受理)