

行政院原子能委員會  
委託研究計畫研究報告

燃料丸與護套機械作用-氫化鋯效應  
**The Hydride Effect on Pellet-Cladding  
Mechanical Interaction**

計畫編號：1002001INER003

受委託機關(構)：台灣科技大學

計畫主持人：趙振綱

聯絡電話：(02)27376465

E-mail address：[ckchao@mail.ntust.edu.tw](mailto:ckchao@mail.ntust.edu.tw)

核研所聯絡人員：曾哲聰

報告日期：100 年 11 月 30 日

## 目錄

中文摘要.....	- 3 -
英文摘要.....	- 4 -
作者及所屬單位.....	- 5 -
壹、計畫緣起與目的.....	- 6 -
貳、研究方法與過程.....	- 8 -
一、研究方法.....	- 8 -
二、研究過程.....	- 8 -
(一) 製造缺陷.....	- 8 -
(二) 溫度分佈與差異.....	- 10 -
(三) 氫化物析出差異與PCMI.....	- 12 -
參、主要發現與結論.....	- 21 -
一、主要發現.....	- 21 -
二、結論分析.....	- 21 -
肆、參考文獻.....	- 23 -

## 中文摘要

燃料丸端面製造缺陷是 2000 年中期前後，造成 BWR 燃料破損的重要機制之一，稱為非典型燃料丸與護套作用 (non-classical PCI)，而除了 BWR 燃料，PWR 電廠也發生少量類似的破損機制。燃料丸不規則端面除了造成較高之應力集中，破損案例肇因分析顯示，氫化鋁也扮演著關鍵角色。此外日本對高燃耗燃料行為的相關研究中，也發現在進行功率躍升實驗時，氫化鋁於護套外側集中，形成初始裂縫，並往內部成長，而成為另一種不預期的破損機制。護套中的氫原子隨溫度梯度往低溫區域擴散，並隨著環境變化析出成為氫化物，由於與鋁合金母材機械效應的差異，往往成為核燃料破損的起始點或是加劇的主因。

本研究探討燃料丸外緣因製造缺陷造成燃料棒與護套發生局部相對低溫現象，進而造成氫於護套部分區域之擴散與氫化物集中效應。研究過程先依據可預期之燃料丸製造缺陷，分析局部溫度差異，參考已建立之溫度梯度模型與氫濃度分佈模型取得氫化物局部差異性，接著導入有限元素法以及破壞力學理論建立分析模式。研究成果對近年來所發現之燃料丸製造缺陷以及裂縫由護套外側往內部成長之破損機制將有所貢獻，可以協助提升核燃料之運轉績效。

## 英文摘要

The pellet fabrication defect “Missing Pellet Surface (MPS)” became an important failure mechanism of BWR fuel in the past decade, and the unexpected high stress induced on cladding inner surface was identified as “non-classical PCI”. Similar failures were found for few PWR rods at the same time. The failure root cause analysis of some leaking rods indicated that hydrides may play an important role of the outside-in cracking. The study of high burnup fuel behavior performed by Japanese also revealed the cladding outside-in crack during power ramp test and may become another issue of high burnup fuel integrity. The cladding temperature gradient will induce the hydrogen re-distribution, and the precipitated hydride could initiate cladding crack and rod failure.

Our study is to investigate the cladding local temperature distribution with the MPS, then to identify the local cold spot area with higher hydrogen content and possible more hydride. The approach of pellet defect is based on the fabrication experience. A finite element model of cladding with non-homogeneous hydride distribution was applied in the analyses of the formation of outside-in crack and its stability. The established model is helpful to understand the hydride effect of Pellet-Cladding Mechanical Interaction (PCMI), either for the fabrication concern or high burnup fuel reliability.

## 作者及所屬單位

作者：

趙振綱

孫銘宏

張祖錕

所屬單位：

台灣科技大學機械工程研究所

## 壹、計畫緣起與目的

核燃料於反應器爐心中運轉，由於氧化鈾的陶瓷特性，在燃料丸徑向產生極大的溫度梯度，燃料丸因而由外緣指向中心的裂縫。在隨後反應器功率不斷的升降載過程中，燃料逐漸呈現不規則的外緣，遂與燃料棒護套內側發生機械交互作用，並對燃料護套造成局部應力集中效應。

PCMI 現象以及對燃料造成實際破損，過去比較常發生於 BWR 電廠，PWR 電廠則相對較少。2000 年前後，國際主要核燃料業者，陸續發生燃料丸端面缺角 (MPS) 的製造議題，以致造成與護套內緣更嚴重的機械作用；業者估算，局部應力集中因子甚至可以達到 1.4。由於燃料運轉策略是依據燃料行為程式的分析結果，滿足設計準則的升載過程中，卻有可能使護套處於非預期之應力狀況，因而發生破損。業界提出多種因應改善措施，譬如提高燃料丸製造規範與調降反應器功率升載速率，情勢似乎也獲得一定程度的改善。

但在此同時，氫化鋯對護套破損的可能影響卻再次成為關切議題。少數 PWR 破損燃料檢驗中，發現護套由外往內未穿透的裂縫前端有氫化物集中現象，析出之方位與裂縫走向平行成徑向排列。而其他破損案例也發現，燃料丸缺陷使得與護套的局部間距加大，造成護套局部之低溫效應，導致氫化物析出與集中現象，也成為近年來的另一個議題「由外往內成長之裂縫 (Outside-in crack)」。

此外日本近年來所進行的 BWR 高燃耗燃料研究顯示，運轉功率上升時，燃料護套出現了由外側起始的裂縫。而此裂縫會經由延遲氫化龜裂機制往護套內側成長，若成為穿透裂縫將造成護套破損。

由於氫化物效應在現今之燃料設計與運轉績效已經有所影響，對未來之燃料燃耗提升可能又會成為關切的議題，因此本研究以現有運轉經驗為基礎，將氫化物析出與分佈效應導入 PCMI 之模擬分析中，以驗證電廠升載運轉策略，並提升核燃料運轉績效與可靠度。

因此本計劃之目的為，首先將檢視由缺陷燃料丸所造成護套局部的低溫區域，再依此低溫區域的溫度差異模擬析出之氫化物分佈效應，運用有限元素分析模式，建立護套發生由外往內成長裂縫之模式將與先前由內往外成長的裂縫模式有所不同，並在裂縫形成後評估其穩定性。並建立無裂縫模型，依適用之應力準則，預測其破裂起始點。

## 貳、研究方法與過程

### 一、研究方法

本計畫參考廠家製造經驗，建立初始具端面缺角之燃料丸，以合理模擬真實狀況。幾何形狀確定之後匯入套裝軟體 Ansys-workbench 11，並設定相關參數：如燃料丸熱功率、燃料熱傳導係數、鋁合金熱傳導係數、護套表面溫度等。分析之後得到護套溫度分佈與局部之溫度梯度變化，再將護套溫度分佈與氫在鋁合金中的擴散與析出機制，做出有效之連結，並估算其氫含量定性分佈趨勢，評估氫原子在此溫度梯度下的分佈與析出情形，再依據此氫化物分佈結合傳統 PCMI 之分析模式，以評估氫化物在護套中所造成之影響與其所扮演的角色。

### 二、研究過程

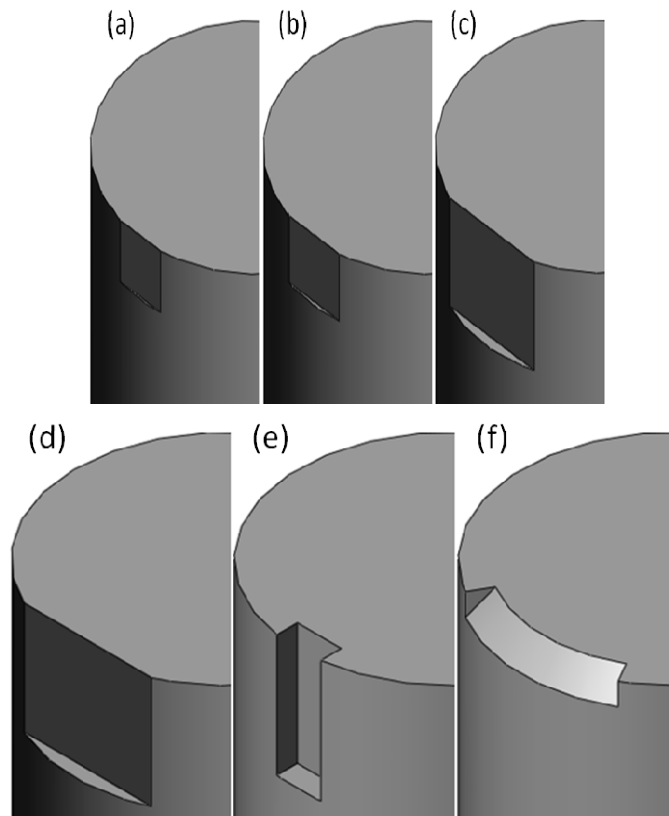
#### (一)製造缺陷

利用商用套裝軟體 SolidWorks2008 建立六種不同缺陷型態之燃料丸模型如圖一所示，其尺寸、護套厚度、缺陷形狀均參照國內 BWR 電廠現有 10x10 燃料之設計如表一。燃料護套之材料性質為鋁-2 合金，內徑 8.84mm，外徑 10.04 mm，護套厚度 0.6 mm，缺角空間則填以氫氣模擬如圖二所示。

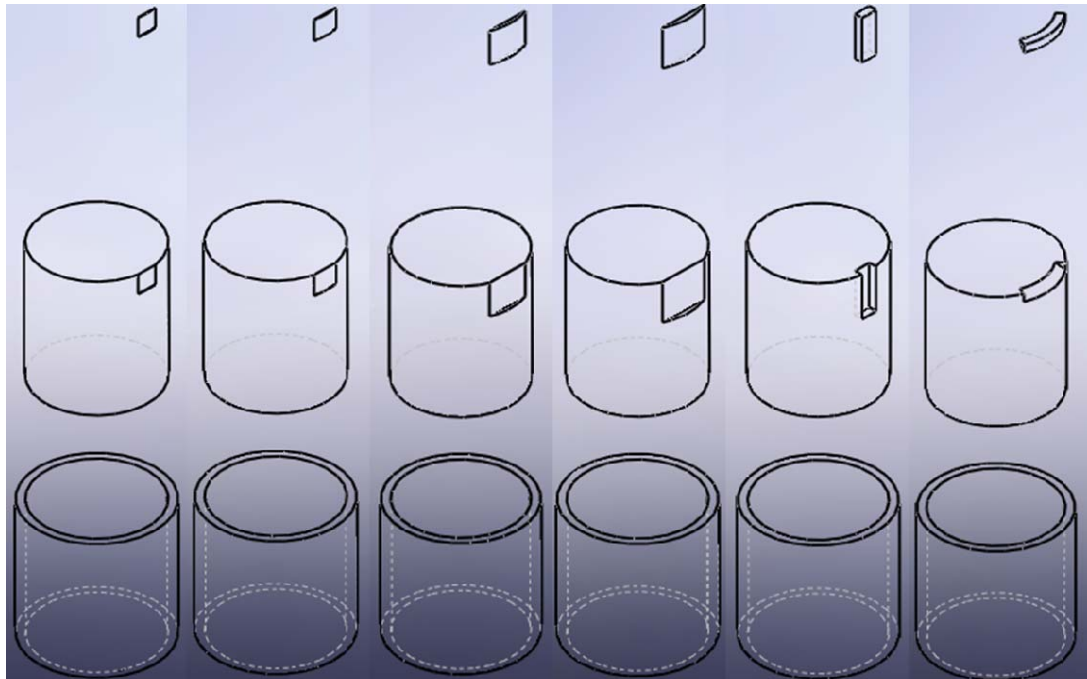
表一 各缺陷型態之幾何尺寸



	Type 1	Type 2	Type 3	Type 4	Type 5	Type 6
Width (mm)	1.52	1.91	3.18	3.68	1.27	60°
Length (mm)	1.52	1.65	2.67	3.18	3.47	0.635
Depth (mm)	x	x	x	x	0.635	0.635



圖一 各缺陷型態之模型。(a)~(f) 依序為 Type1~Type6



圖二 六種缺陷型態燃料丸、缺角空間、護套之模型

## (二)溫度分佈與差異

將模型建立完成後匯入分析軟體 Ansys-workbench 11，並設定材料性質參數如表二所示

表二 材料性質

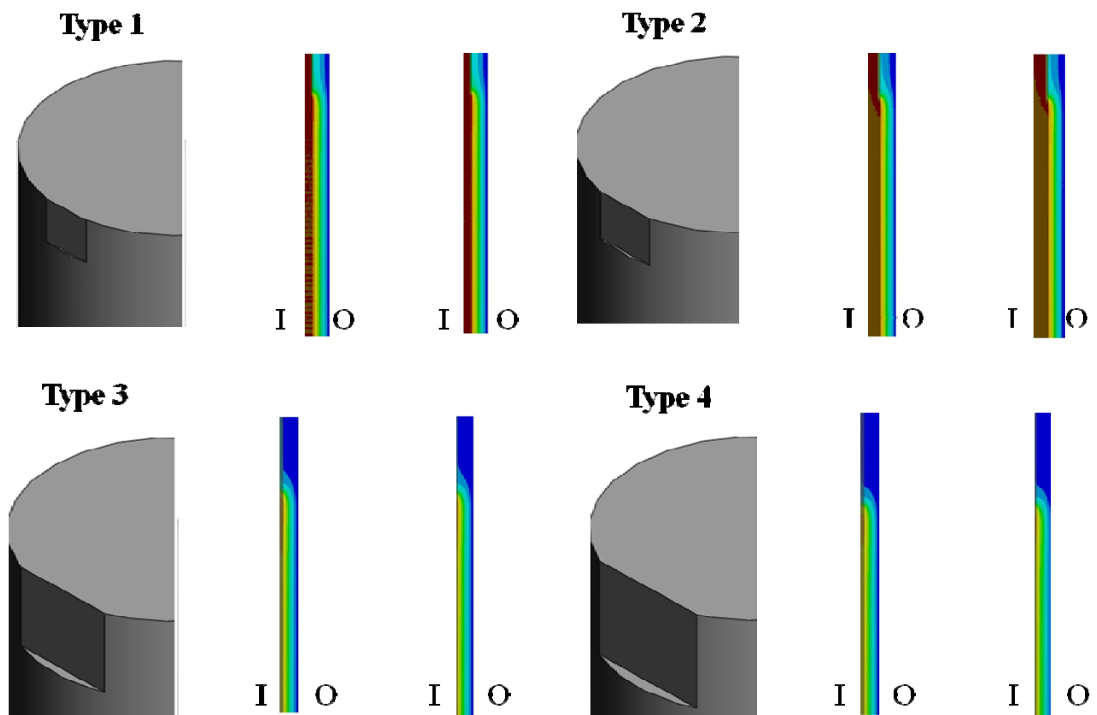
	二氧化鈾	氦氣	鋁合金
楊氏系數(GPa)			105
蒲松比			0.32
熱傳導係數(W/m.K)	7.991~1.718(300K~3000K)		21.5
熱膨脹係數(1/°K)		0.15522	$6 \times 10^{-6}$
熱對流係數(W/mm)		$1.931 \times 10^{-4}$	
密度(g/cc)			6.56
比熱(J/g.K)			0.285
Mesh type	free	free	free
Mesh size(mm)	0.2	0.2	0.2
邊界條件	熱功率(0.45,0.55W/mm <sup>3</sup> )		外表面溫度(285°C)

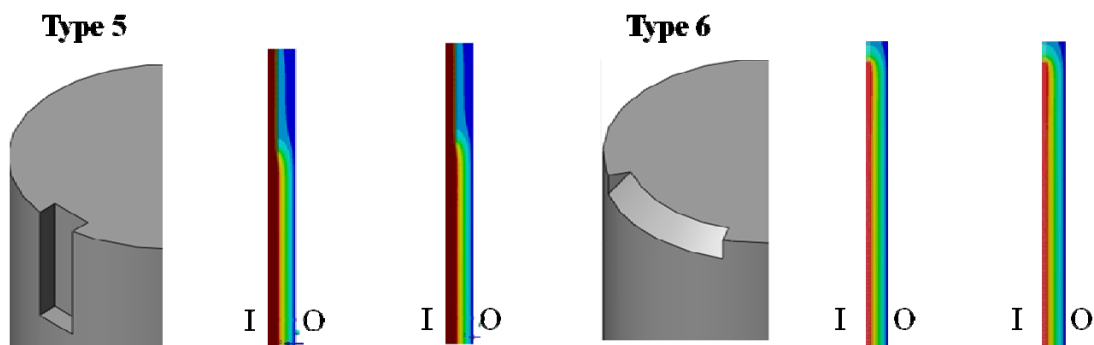
輸入完後，接著設定網格化方法（採用 Free Mesh Method）與尺寸（0.2mm）與邊界條件設定（設定燃料丸為一熱源，護套外表面為

固定溫度 285 °C) ，圖三所示為其六種缺陷燃料丸所造成局部溫度分佈差異之結果圖，表三為六種缺陷在兩種不同熱功率下之內外表面溫度、溫度差

表三 各缺陷型態之護套內外表面溫差(°C)

		Type 1	Type 2	Type 3	Type 4	Type 5	Type 6
熱功率 0.45 W/mm <sup>3</sup>	外表面溫度(°C)	285.00	285.00	285.00	285.00	285.00	285.00
	內表面溫度(°C)	314.06	315.53	319.22	320.36	312.63	312.5
	溫度差(°C)	29.06	30.53	34.22	35.36	27.63	27.5
熱功率 0.55 W/mm <sup>3</sup>	外表面溫度(°C)	285.00	285.00	285.00	285.00	285.00	285.00
	內表面溫度(°C)	320.77	322.59	327.06	328.42	318.85	318.75
	溫度差(°C)	35.77	37.59	42.06	43.42	33.85	33.75





圖三 六種缺陷燃料丸所造成護套局部溫度差異

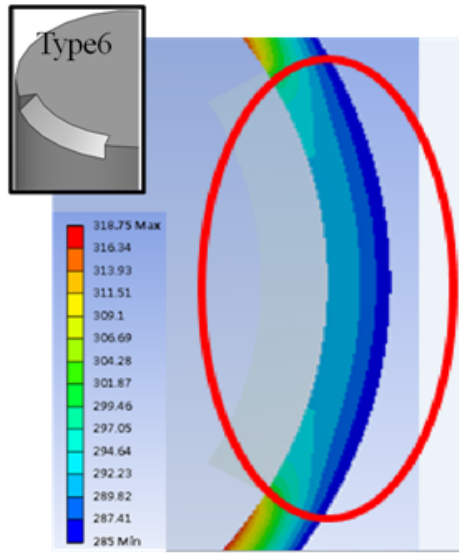
由上圖三所示可以發現，Type1-4 的缺角空間尺寸越大所造成護套的溫度差也將越大，Type6 為案例中最常見的缺陷型態，因此所造成的局部低溫區域也將最具代表性，也將於之後利用此缺陷造成之溫度分佈與氫化物析出效應做出有效之連結。

### (三) 氫化物析出差異與 PCMI

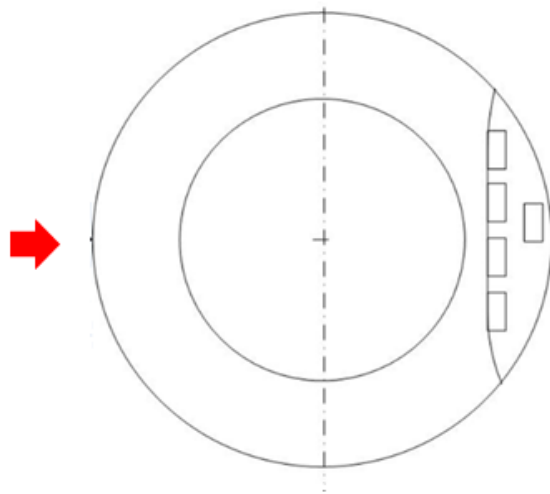
根據溫度分佈分析結果建立氫化物分佈模型概念如圖四所示，於此我們挑選 Type 6 的溫度分佈作為模擬之對象。由於目前文獻中尚無溫度分佈造成氫化物分佈之可靠定量關係，因此現階段先以氫化物分佈之定性趨勢見表四，分別建立無裂縫、有裂縫之半圓形 2D 燃料丸護套模型如圖五所示。利用套裝軟體 Ansys11 進行有限元分析，其材料性質如表五、邊線網格化（將邊線 1 做 elements divisions:6 等分處理；邊線 2 做 elements divisions:60 等分處理；邊線 3 做 elements divisions:60 等分與 space ratio :0.2 處理）如圖六所示；裂縫面臨氫化鋯燃料丸護套模型與裂縫未面臨氫化鋯燃料丸護套模型之個別節點數與元素個數如圖七所示；氫化鋯與鋯二合金網格化（mesh size: 氫化鋯網格大小設定為 0.012mm，鋯二合金網格大小設定 0.050mm；mesh type：氫化鋯、鋯二合金皆採用 free mesh，網格形

狀均選用三角形) 如圖八所示、裂縫尖端網格化 (採用之元素半徑、元素個數、節點位置依序為 Radius of 1<sup>st</sup> row of elems : 0.006mm ; No. of elems around circumferential : 8 ; Midside of node position : 偏移四分之一處) 如圖九所示, 邊界條件設定 (Case1~Case6, 藍線處為對稱面, 紅箭頭處為受力情況) 如圖十及各應力分析之狀況如表六。無裂縫模型之分析中可用於推測護套之破裂起始點 (Crack Initiation), 具有裂縫之模型則可用於判斷裂縫之穩定 (Crack Stability) 進而推測裂縫之成長趨勢。有裂縫與無裂縫兩種不同考量之氫化物分佈模型, 受力則分兩種情況來討論, 以模擬運轉中護套所受到之作用力, 分別為「均勻分佈力」與「兩個單點集中力」, 做為負載之設定條件。其中兩個集中力之夾角  $60^{\circ}$  是製造缺陷的型態, 接續無裂縫模型之分析也是以相同條件進行模擬。現階段分析則含有兩個不同氫化物分佈模型, 用以模擬實際氫化物分於不同位置時之應力分佈。無裂縫之分析運用 von-Mises stress 準則, 以最高應力來推測裂縫可能起始點; 有裂縫之分析則採用應力強度因子以判斷其穩定性。此外並比較兩種氫化物分佈不同模型之間的差異性, 其分析結果如下圖十一、十二; 表七、八。

### Temperature distribution



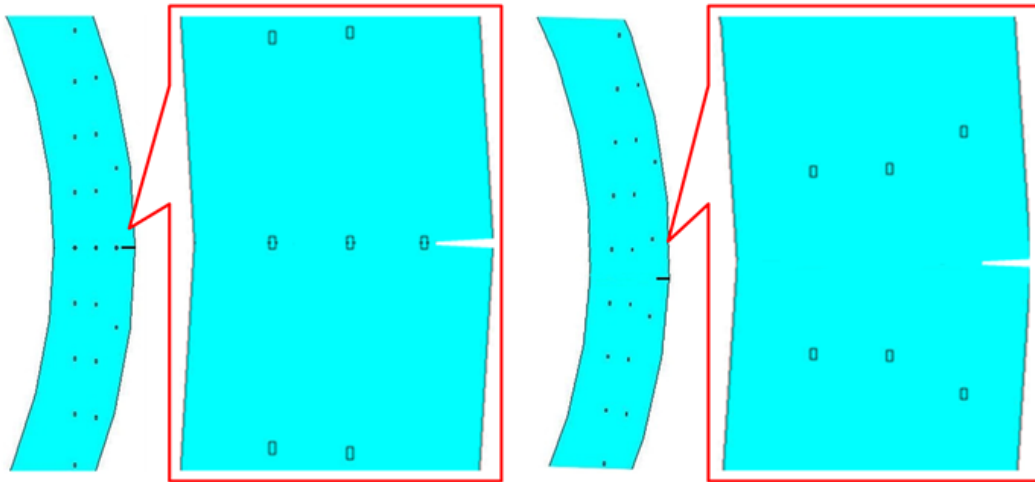
### Hydride distribution



圖四 缺陷造成溫度差異之氫化鋯分佈概念

表四 氫濃度與氫化鋯分佈定性趨勢假設

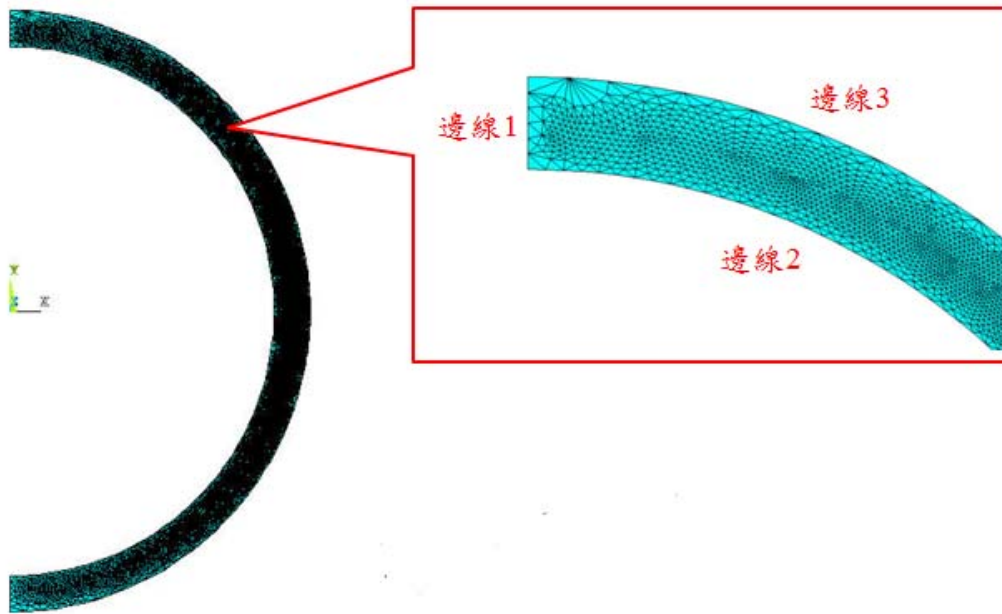
分三層	最內層	第二層	最外層	裂縫長度
佔護套厚度比例(%)	0.26	0.25	0.24	0.20
厚度(mm)	0.16	0.15	0.14	0.12
鋯合金面積(mm <sup>2</sup> )	1.26	0.67	0.23	X
氫化鋯濃度(%)	0.20	0.30	0.40	X
氫化鋯總面積(mm <sup>2</sup> )	2.5x10 <sup>-3</sup>	2.0x10 <sup>-3</sup>	9.0x10 <sup>-4</sup>	X
氫化鋯單塊面積(mm <sup>2</sup> )	0.012 x 0.024			X
氫化鋯個數	9	7	3	X



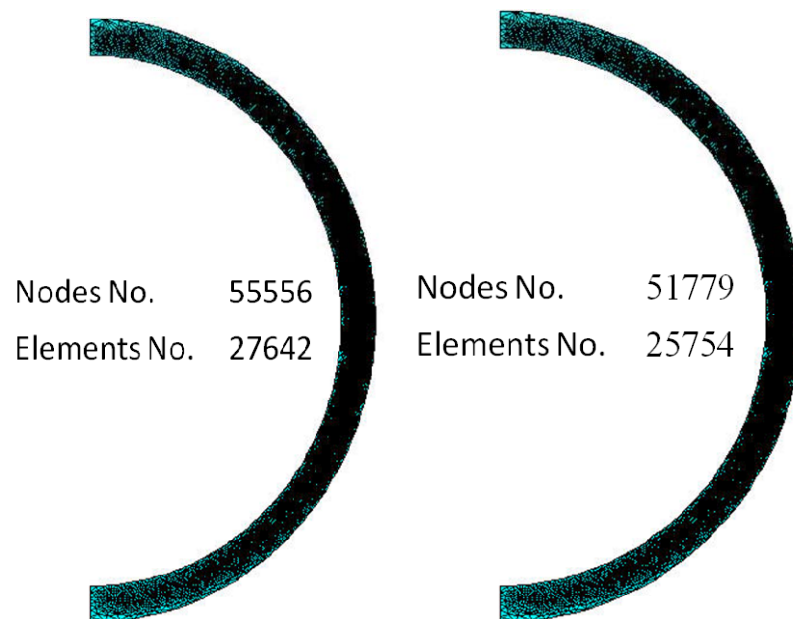
圖五 半圓形 2D 燃料丸護套模型

表五 鋁合金與氮化鋁之材料性質

	鋁合金	氮化鋁
楊氏系數 (GPa)	105.000	135.900
浦松比	0.320	0.320
熱傳導係數 (W/m.K)	21.500	17.100
熱膨脹係數 (1/°K)	$6.0 \times 10^{-6}$	$6.3 \times 10^{-6}$
密度 (g/cc)	6.560	6.440
比熱 (J/g.K)	0.285	0.285
Element Type	PLANE82	PLANE82

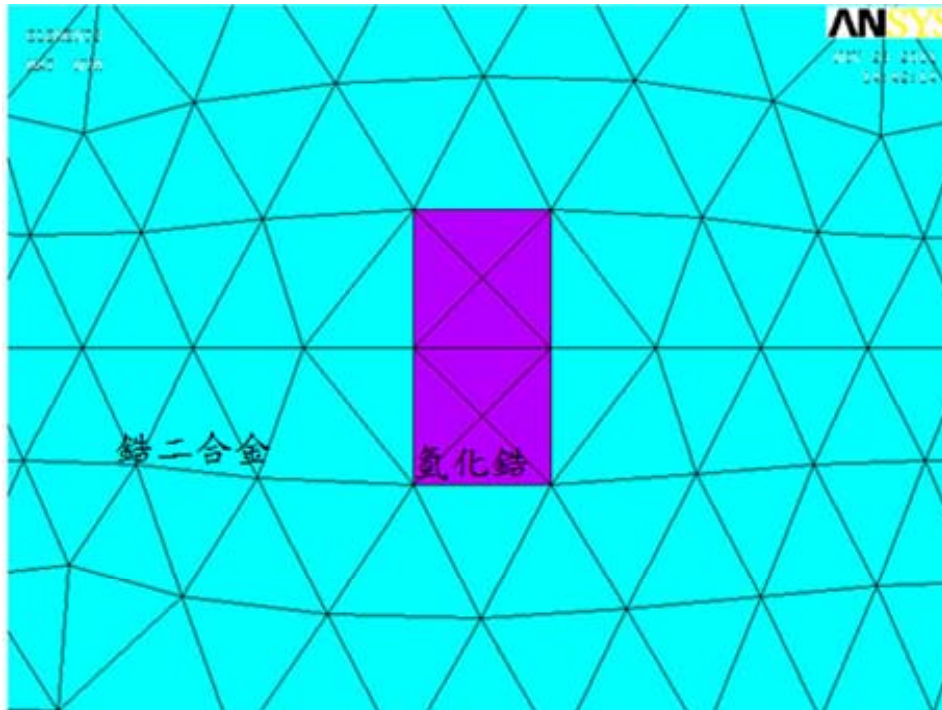


圖六 邊線之網格化

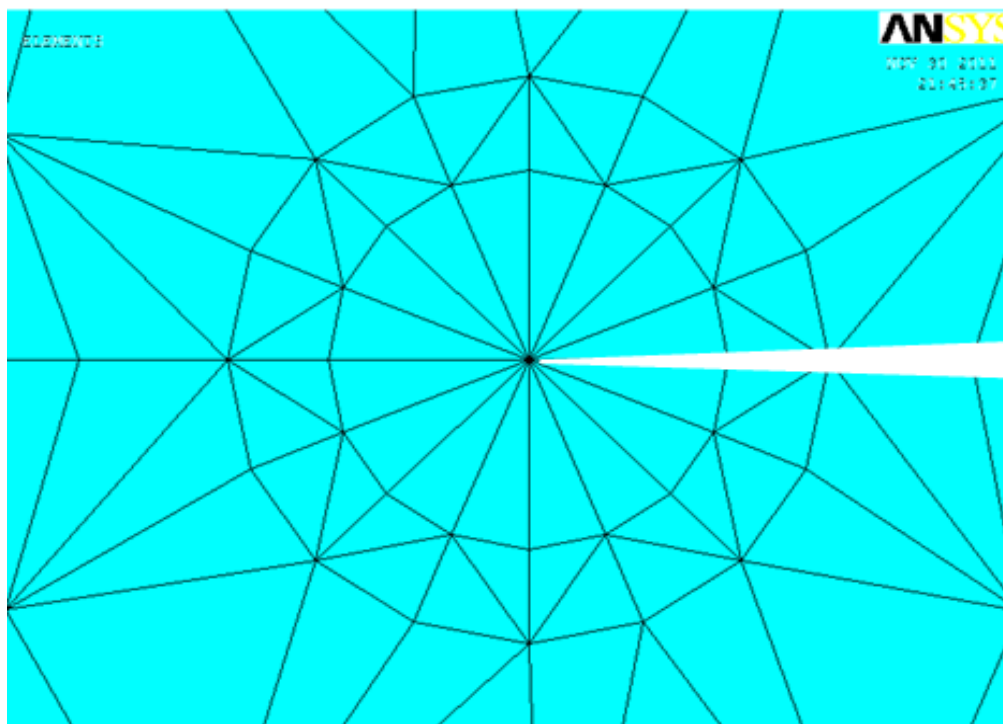


圖七 裂縫面臨氫化鋯燃料丸護套模型與裂縫未面臨氫化鋯燃料丸護套模型之個別節點數與元素個數

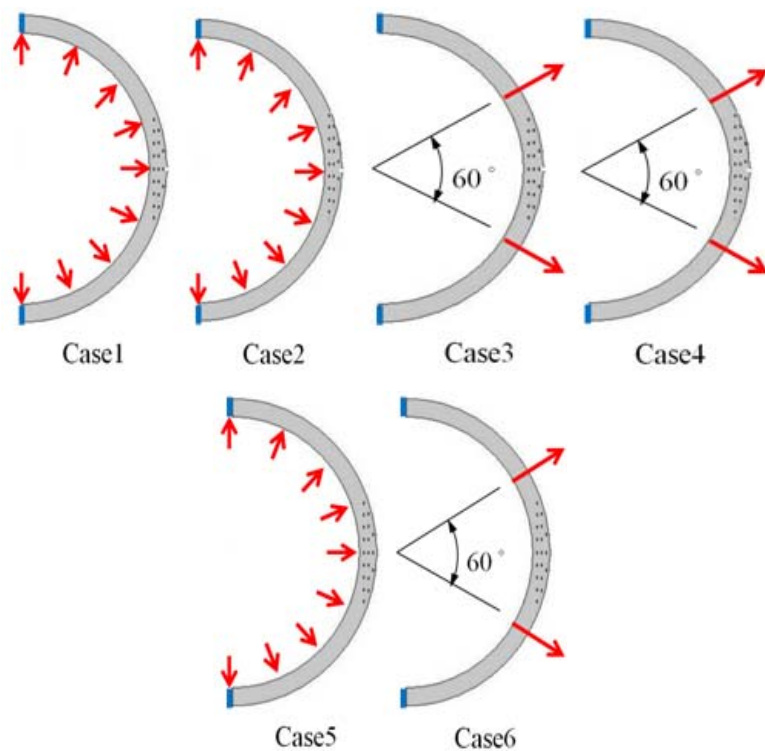




圖八 氮化鋁與鋁二合金網格化



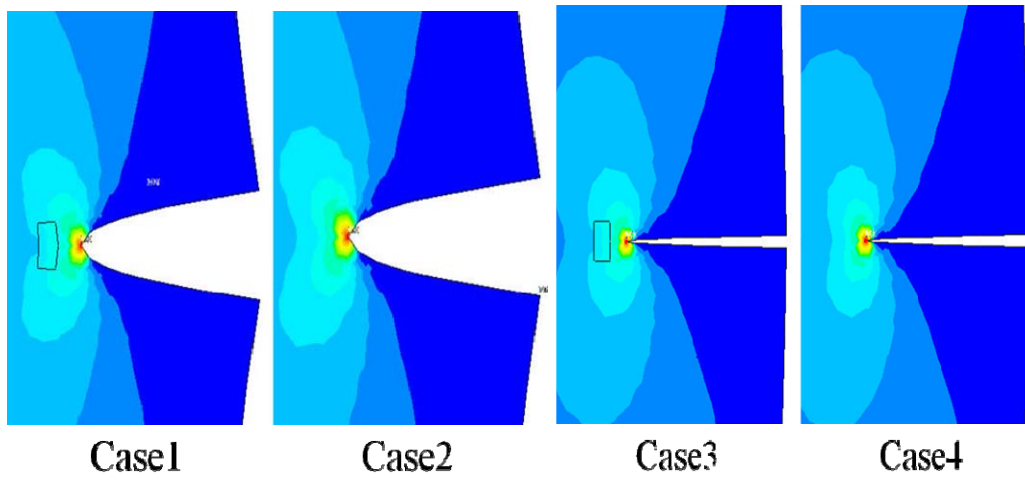
圖九 裂縫尖端網格化



圖十 各應力分析狀況之邊界條件

表六 各應力分析狀況

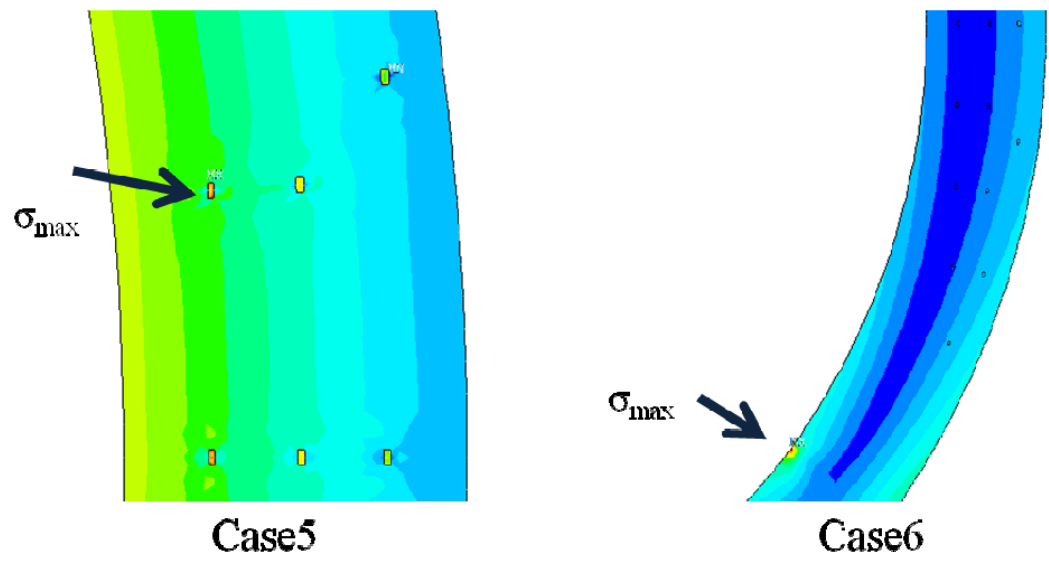
	Case 1	Case 2	Case 3	Case 4	Case 5	Case 6
裂縫	有	有	有	有	無	無
受力 (MPa)	均勻 (6.89)	均勻 (6.89)	單點 (7.07)	單點 (7.07)	均勻 (6.89)	單點 (7.07)
裂縫尖端面對氫化鋯	有	無	有	無	X	X



圖十一 Case1-4 有裂縫模型應力分佈結果圖

表七 Case1-4 有裂縫模型之應力強度因子值

	Case 1	Case 2	Case 3	Case 4
裂縫	有	有	有	有
受力	均勻	均勻	單點	單點
裂縫尖端面對氧化鋁	有	無	有	無
$K_I$ (MPa*m <sup>0.5</sup> )	44.033	44.721	33.777	34.319



圖十二 Case5-6 無裂縫模型應力分佈結果圖

表八 Case5-6 無裂縫模型最大應力值

	Case 5	Case 6
裂縫	無	無
受力	均勻	單點
$\sigma_{\max}$ (MPa)	65.723	233.064

## 參、 主要發現與結論

### 一、 主要發現

燃料丸因為製造缺陷會造成燃料棒護套局部之低溫區域，由於氫的擴散與析出效應，局部區域會有較多氫化物。暫時以定性方式依據分析所得之溫度梯度，設定非均勻之氫化物分佈，做為分析之起始條件。研究分析主要發現如下：

- (一) 無裂縫情況下，氫化物析出區為最高應力區域，護套受到均勻作用力時更為明顯，因此確實可能成為裂縫之起始點。
- (二) 裂縫起始於護套外緣之後，析出偏離裂縫之氫化物比析出於裂縫前端的氫化物呈現稍高的  $K_I$  值，因目前假設之氫化物偏向環向方位，因此氫化物對裂縫成長略有阻絕效果。
- (三) 若裂縫面對的氫化物分佈型態相同，均勻受力之  $K_I$  值高於集中單點受力，裂縫成長機會較高。

### 二、 結論分析

- (一) 在所考量之製造缺陷型態之中，Type 6 最具代表性，因此其它型態暫時不做深入比較。
- (二) 氫化物析出位置為最高應力區域，是否成為裂縫之起始點必須選取合理之破裂準則，並且有可靠的實驗數據做比較；護套應變能密度分佈等高線或許是未來可以嘗試的方向。
- (三) 目前氫化物析出尚未考慮方位效應，未來可以調整有限元素模式中氫化物元素之形狀以模擬徑向排列氫化物，並比

較方位效應對裂縫穩定性之影響。

- (四) 由於燃料丸與護套之機械作用複雜，必須再增加護套受之力之分析實例，或是提升到三維分析，才能更符合實際模擬。
- (五) 於本研究中製造缺陷造成之局部溫度差異獲得驗證。
- (六) 依據溫度差異，二維之氫化物非均勻分佈得以建立。
- (七) 機械負載之下，以最高應力區域作定性判斷，氫化物析出處為裂縫起始之可能位置。
- (八) 針對氫化鋁效應，初步建立之護套由外往內裂縫穩定性研究分析模式合理，可應用於後續研究。

#### 肆、 参考文献

- C Powers, et al., Hot Cell Examinations Results of Non-Classical PCI Failures at Ls Salle, Proceedings of the 2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting, October 2~6, Kyoto, Japan.
- Y Aleshin et al. The Effect of Pellet and Local Power Variations on PCI Margin, Proceedings of Top Fuel 2010, September 26~29, Orlando, USA.
- H HAYASHI, K OGATA, T BABA, Katsuichiro KAMIMURA (2006) Research Program to Elucidate Outside-in Failure of High Burnup Fuel Cladding. Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 43 No. 9 pp 1128–1135
- J S LEE, J S YOO, H K KIM, D MITCHELL, Y ALESHIN The Mechanical Behavior of Pellet-Cladding with the Missing Chip under PCMI Loadings during Power Ramp. Proceedings of the 2007 International LWR Fuel Performance Meeting
- M KURODA et al (2000) Influence of precipitated hydride on the fracture behavior of zircaloy fuel cladding tube. Journal of Nuclear Science and Technology Vol.37 No.8 pp 670-675
- K Sakamoto, M Nakatsuka, T Higuchi (2011) Simulation of Outside-in Cracking in Boiling Water Reactor Fuel Cladding Tubes under Power Ramp. Journal of ASTM International Vol. 7 No. 6 Paper ID JAI102938 Available online at [www.astm.org](http://www.astm.org)
- H MAKI, M SATO (1975) Thermal Diffusion of Hydrogen in Zircaloy-2 Containing Hydrogen beyond Terminal Solid Solubility. Journal of Nuclear Science and Technology 12[10] pp 637-649

- K Ogata et al Hydrogen Thermal Diffusion and Crack Propagation Behaviors in Irradiated Zircaloy-2 Cladding Tubes. Proceedings of 2010 LWR Fuel Performance/TopFuel/WRFPM Orlando, Florida, USA, September 26-29, 2010 Paper 0067
- K FORSBERG, A R MASSIH (1990) REDISTRIBUTION OF HYDROGEN IN ZIRCALOY Journal of Nuclear Materials 172 130-134
- H MAKI, M SATO (1973) Effect of Stress on Hydride Precipitation Behavior in Zircaloy-2. Journal of Nuclear Science and Technology 10 (8) : 470-477
- A Sawatzky (1960) . Hydrogen in zircaloy-2 Its distribution and heat of transport. Journal of Nuclear Materials 2 (4) : 321-328
- K Forsberg, A R Massih (1990) Redistribution of hydrogen in Zircaloy. Journal of Nuclear Materials 172: 130-134
- S Shimada, et al. (2004) A metallographic and fractographic study of outside-in cracking caused by power ramp tests." Journal of Nuclear Materials. 327: 97-113
- A G Varias, A R Massih (2000) Simulation of hydrogen embrittlement in zirconium alloys under stress and temperature gradients. Journal of Nuclear Materials 279: 273-285
- S YAMANAKA, M KURODA et al. (2002) Mechanical Properties of Zirconium Hydride and Hydrogen Solid Solution. Transactions of the Atomic Energy Society of Japan 1(4): 323-327.
- Singh R N et al. (2002) Delayed hydride cracking in Zr-2.5Nb pressure tube material. Journal of Nuclear Materials 304: 189-203.
- 楊國慶,核燃料護套破壞機制之研究,台灣科技大學機械工程學



系博士論文,2010

- 黃憲章,用過核燃料護套封箱期間熱應力作用之裂化分析,台灣科技大學機械工程學系碩士論文,2006
- 陳錦坤,用過核燃料護套中期儲存潛變劣化機制分析,台灣科技大學機械工程學系碩士論文,2006