

JAERI-M

5 2 6 5

酸浸出法によるペレット中の  
被覆燃料粒子の破損率測定

1973年5月

飛田 勉, 岩本 多實

日 本 原 子 力 研 究 所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

酸浸出法によるペレット中の被覆燃料粒子の破損率測定

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

飛田 勉・岩本多實

(1973年4月21日受理)

高温ガス炉用燃料ペレット中の被覆粒子の破損率測定について、硝酸浸出法、乾式酸化-酸浸出法、電気化学的解砕-酸浸出法のいずれも酸浸出を伴う三つの方法について実験的検討を行なった。その結果、硝酸浸出法では硝酸がペレット内部まで十分に浸透しないこと、乾式酸化-酸浸出法ではペレットの酸化処理過程でSiC被覆層の破損を完全に防止できないことがわかり、両者ともに測定法として不適當であることがわかった。しかし電気化学的解砕-酸浸出法は被覆燃料粒子に損傷を与えることなくペレットを解砕した上、破損被覆燃料粒子中のウランを溶出できるので、被覆燃料粒子破損率の測定が可能であることがわかった。

Detection of Ruptured Fuel Particles in the Fuel Compact by Acid Leach Techniques

Tsutomu TOBITA and Kazumi IWAMOTO

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

( Received April 21,1973 )

The three techniques of determining failed particles in the HTGR fuel compact have been studied; (1) nitric-acid leaching, (2) oxidation and acid leaching, and (3) electrolytic disintegration and acid leaching. The nitric-acid leaching is not suitable since the acid does not penetrate into the matrix, and the oxidation and nitric acid leaching is also difficult for application because the SiC layer of fuel particles is destroyed casually by the oxidation. The electrolytic disintegration, on the other hand, is feasible, for compact is disintegrated stepwise on the cathodic side of compact in nitric acid without damage to the coatings of fuel particles; and the failed particle fraction is obtainable by analyzing the leached amount of U.

目 次 な し

## 1. はじめに

高温ガス炉用燃料として用いられる被覆粒子分散ペレット中の被覆燃料粒子の破損は燃料の寿命を短くすると同時に使用時におけるFP放出を誘発し、炉の安全運転にも支障をきたすので極度に排除されなければならない。このためペレット中に存在する破損被覆燃料粒子（以下破損粒子と略す）の量は厳しく規制されている。被覆燃料粒子の破損は物理的および化学的原因によって起る。前者にはペレット製造時の 1) 成形圧、2) 焼成の際の寸法変化に伴うひずみ応力、そして炉内での使用時における 3) FPガス内圧、4) 中性子照射による被覆層の寸法変化、5) 燃料核スウェリング、6) 熱膨脹差による被覆層の寸法変化などがある。後者としては燃料核と被覆層との相互作用およびアーマー効果<sup>1)</sup>がある。これらの原因による粒子被覆層の破損を極度に抑制できる燃料の開発が望まれており、製造者の努力もここに向けられている。

ペレット中の破損粒子量の測定は、照射前にはペレットの製品検査上、照射後には照射効果の評価上、いずれも要請される。この測定法としてはTable 1に示されるように、大別して破壊法と非破壊法とに分類できる。非破壊法には、1) 硝酸浸出法、2) 塩化物揮発法<sup>2)</sup>、3) 低照射FP放出法<sup>3)</sup>、4) ラドントレーサー法<sup>3)</sup>などがあり、破壊法には、5) 乾式酸化-酸浸出法、6) 電気化学的解砕-酸浸出法がある。このうち1)の硝酸浸出法は最も一般的で海外においても広く利用されているようである。2) 3) 4)の方法はユーリッヒやドラゴン計画で開発された方法であり、その検出感度の高い点は評価できるが、照射前の製品検査法としての利用に乏し、しかも3)は一般の燃料メーカーでは実施しにくい。本研究ではペレット製造過程に起る破損粒子量の測定を目的として 1)、5)および6)のいずれも酸浸出を伴う三つの方法について実験的検討を加えたのでその結果を報告する。このうち特に6) "電気化学的解砕-酸浸出法"は当研究室で筆者らが考案、実用化した方法であり、低電圧、小電流で燃料ペレットを解砕できる特徴があり、将来再処理など他の分野への応用も期待されよう。

## 2. 実験方法

まず被覆粒子を分散したペレットを調製し、ついでこのペレット中の破損粒子量を測定するため、単純な硝酸浸出法、乾式酸化-酸浸出法、および電気化学的解砕-酸浸出法の三者を試み、測定法の比較を行なった。

### 2.1 試料ペレットの調製

実際に使用したペレットは被覆層の健全な被覆粒子を用いて成形焼成したふつうの被覆粒子分散ペレットとあらかじめ人工的に被覆を破損させた粒子を入れた人工破損粒子入りペレットの2種類である。

#### 1) 被覆粒子分散ペレット

被覆粒子分散ペレットとしては製造方法が多岐にわたることを考慮して黒鉛粉末、バインダー、成形圧、焼成法、寸法などを変化させてTable 2に示すように大別して合計6種類を調製した。このうちバインダーとしてフェノール樹脂を用いたもの(試料B, C)は燃料メーカーから購入したものであり、他はすべてこの研究のために筆者らが試作したものである。以下にその製造法の概略を示す。

a) 試料A: UHTREXに用いられた燃料ペレットの製法<sup>4)</sup>を参考にしてほぼ同じ原料を用いて試作したもので、原料の性質をTable 3に示し、調製フローシートをFig. 1に示す。まず200℃で4時間空气中で乾燥した黒鉛粉末とサーマックス粉末とを85w/oと15w/oの割合で混合してから被覆粒子を一定量加え、円筒状ブレンダーでよく混合する。次にVarcum 8251レジン100ccに対して固結用触媒として無水マレイン酸4グラムを加え、35℃で約15時間保持したバインダーを黒鉛とサーマックスの混合物に対して、26w/o加え、混捏の上室温で一晩放置する。成形には温度120~150℃に保った穴径10.5mmφの金型ダイス(Fig. 2)を用い、秤量した燃料入り黒鉛粉末を入れ、上下方向から油圧プレスにより一定の圧力を加えた。この際、加えた圧力は除々に降下するので油圧計指針を見ながら補正し、2~3分間この圧に保った。成形圧としては150, 300, 500, 700, 1500, 3000Kg/cm<sup>2</sup>に変化させ、被覆粒子充填率は15, 20, 25, 30, 35V/oに変化させた。成形後マイクロメーターで寸法と重量を測定してから石英ポートに移し焼成した。すなわち、アルゴン雰囲気中で室温より500℃までを12℃/時間とゆるやかな速度で昇温し、500~900℃までを20℃/時間で昇温の上、950℃で1時間保ち炭化を目的とした一次焼成を行ない、ついで真空中で昇温し温度1500℃で1時間保ち脱ガスを目的とした二次焼成を行なった。この二次焼成温度1500℃は高温ガス冷却炉燃料の熱処理条件としては十分な温度ではないが実験の都合上選んだものである。なおペレット中に分散した被覆粒子は西ドイツNEUKEM社より購入したUO<sub>2</sub>燃料核をもつTRISO型被覆粒子であり、Fig. 3に外観および断面顕微鏡写真を、Table 4にその性質を示す。焼成を終えたペレットに対し外観検査、寸法測定、重量測定を行なった。外観写真をFig. 4に示す。ペレットの寸法は直径約10mmφ、長さ9~13mmであり、寸法と重量の測定から計算で求めたペレットの平均密度は粒子充填率15V/oの1.89g/cm<sup>3</sup>から充填率35V/oの2.22g/cm<sup>3</sup>までの範囲にあった。

b) 試料BおよびC: 燃料メーカーが試作したもので、Poco (Isotropic Graphite) およびAGL (Needle Coke Graphite) 製品の黒鉛粉末にバインダーとしてフェノール樹脂を20w/o添加して成形圧200~400Kg/cm<sup>2</sup>を加えて焼成し、UO<sub>2</sub>核をもつTRISO-II型被覆粒子の充填率20w/o、寸法を10mmφ×15mmまたは8mmφ×24mmφ×40mmとしたペレットであり、詳細は文献5)に述べられている。

c) 試料DおよびE: バインダーにピッチを用いたペレットで筆者らが一般の黒鉛材料の製造を参考にして調製したものである。原料としてはコークス粒子または人造黒鉛粉末を用いピッチを25w/o添加した後、成形圧250Kg/cm<sup>2</sup>または500Kg/cm<sup>2</sup>で成形の上試料Aに準じた方法で焼成したものである。

2) 人工破損粒子入りペレット(試料F)

被覆に人為的に破損を与えた被覆粒子を造り、これに黒鉛粉末とバインダーを混合して成形、焼成したもので、製法は試料Aと同一である。被覆燃料粒子は試料Aと同じく $UO_2$ 核をもつTRISO型のものを用いることとし、まず人為的に外部より粒子に応力を加えて被覆に破損を与えた後、顕微鏡で破損を確認し、次にX線ラジオグラフを撮り、その破損が内部の燃料核まで達してあることを確かめる。破損粒子の外観およびX線ラジオグラフをFig. 5, 6に示す。またX線ラジオグラフより燃料核寸法を測定し、容積を求めた上、核の密度を用いてウラン量を求めておいた。この粒子1~2ヶをペレットの中心部または周辺部に入れた(Fig. 7)。ペレットの寸法は直径約10mm $\phi$ 、長さ9~13mmで、寸法測定と重量測定より求めた密度は1.72~1.82 g/cm<sup>3</sup>であった。

## 2.2 硝酸浸出法

この方法は約8Nの硝酸にペレットを浸漬し、煮沸した後、硝酸中に溶出したウラン量を測定する方法である。まず硝酸がペレット中に侵入できるかどうかの問題であるので、これを確かめるため、試料Fの人工破損粒子入りペレットを1:1硝酸50ccで1~5時間煮沸した。煮沸後ペレットを取出し溶液中に浸出されたウラン量を蛍光光度法<sup>6)</sup>により測定した。すなわち、浸出液1ccを白金製試料皿にうつし、赤外線ランプで蒸発乾固した後、炭酸カルシウム、炭酸ナトリウム、フッ化ナトリウムの混合融剤1グラムを加え、ガスバーナーで900~950℃に加熱し約2分間熔融した。熔融後、蛍光分析計(島津KD-3B型)を用い、標準ウラン試料<sup>7)</sup>と比較して溶出ウラン量を求めた。また、酸浸出を終えたペレットに対し、X線ラジオグラフを撮り、浸出前と比較した。さらに健全な被覆粒子を分散したペレットについても上と同様に酸浸出法を行ない溶出ウラン量を求めた。

## 2.3 乾式酸化-酸浸出法

この方法は炭化ケイソ(以下SiCと略す)被覆層をもつTRISO型またはTRISO-II型被覆燃料粒子を分散したペレットを直接空气中で加熱して黒鉛マトリックスおよび粒子の最外炭素被覆層を酸化除去して残った灰とSiC層がむきだしになった被覆粒子とを硝酸で浸出して、マトリックスと最外被覆層中のウラン量を定量する方法である。この実験手順をFig. 8に示す。実験では試料ペレット(10mm $\phi$ ×12~15mm)を石英ボートに入れ、空气中850℃で1~5時間加熱したほか、ペレットとの比較に供するため被覆粒子のみも同じように加熱した。

## 2.4 電気化学的解砕-酸浸出法

この方法は硝酸溶液中で燃料ペレットに直流電流を通し、電気化学的にペレットを解砕して黒鉛粉末と被覆粒子とをばらばらにすると同時に破損粒子からのウラン溶出を行なうものである。Fig. 9にこの装置の概略を示す。試料ペレットをガラス製ホルダー中の白金陽極に乗せ、ペレットの上方には白金陰極を置き、全体を硝酸溶液(1:1)中に入れる。電圧4~20V、電流2~5Aで直流を通電すれば20~30秒後にペレットの陰極に面した表面の部分から徐々に解砕が始まる。解砕が進むにつれて、両極間の距離が大きくなり、電流が減少するので随時電圧補正を行ない電流をほぼ一定に保った。解砕が更に進んで試料が小さくなると試料を支



えている白金陽極が露出してしまうため、これより直接電流が流れて試料を流れる電流が少なくなり、解砕がほとんど進まなくなるのでこの場合は電圧を10~15Vに上げて解砕を行なった。解砕された黒鉛粉末および被覆粒子はホルダー下部の穴から電解槽の底に落下する。解砕時間は試料の大きさ、ペレット試料の種類で多少変わり、約2~5時間を要した。解砕中は電解液の温度が上昇し、蒸発減少するので水道水により電解槽を冷却し、蒸発を防いで溶液の温度をほぼ一定に保ち実験条件を同じにした。ペレット解砕完了後は、黒鉛粉末と被覆粒子の入った電解槽を取り出し、砂浴上で温度100~130°Cに加熱して破損粒子のウラン溶出を行なった。酸浸出後、硝酸中に溶出したウランを蛍光分析により定量した。なお、ペレットに通電し解砕する過程で健全な被覆燃料粒子がこの電解により破損するかどうかを調べるため、健全な被覆燃料粒子を硝酸中に浸しておいてペレット解砕時と同条件で通電した。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 硝酸浸出法

Table 5 に被覆燃料粒子および人工破損粒子入りペレットの酸浸出実験結果を示す。破損粒子のみの酸浸出ではほぼ全ウラン量が溶出されたが、ペレットの場合にはウランがほとんど溶出していないことがわかる。破損粒子をペレットの周辺部から2mm程度中に入った位置に埋込んだ場合でも溶出率は3~13パーセント程度であり、ペレットの内部へ硝酸が浸透しにくいことを示している。このことはFig. 10に示した酸浸出前後のX線ラジオグラフからも明らかである。使用したペレットのマトリックス密度は1.4~1.8 g/cm<sup>3</sup>で、実際の高温ガス炉燃料ペレットの密度範囲は充分含まれている。これらの結果から単純な硝酸浸出法では硝酸がペレット内部へ浸透しにくく破損粒子の検出に適していないことがわかる。

#### 3.2 乾式酸化—酸浸出法

ペレットと被覆粒子とを空气中で酸化した場合の結果をFig. 11に示す。試料Aのペレットを空气中850°Cで5時間加熱した場合、Fig. 11(a)にみられるように被覆粒子のSiC被覆層に破損が示された。また同ペレット中に分散したのと同種の被覆燃料粒子だけを酸化した場合にもFig. 11(b)にみられるようにSiC層の被覆破損が起り、内部の燃料核が露出している。さらに試料Cのペレットを酸化したときはFig. 11(c)に、粒子のみの場合にはFig. 11(d)に示されているがいずれも破損がみられた。しかし、同じSiCを含む被覆粒子でも、製造メーカーの異なるものを酸化した場合にはFig. 11(f)に示されるように破損は起らなかった。純度の高いSiCの酸化は空气中で850°C位の温度から測定にかかる速度になり、その速度は表面に生成するSiO<sub>2</sub>の状態により大きく影響され、特に水分を含む雰囲気では反応速度が急激に増大すると云われている<sup>8), 9)</sup>。Fig. 12にM. J. BenneffとG. H. Chaffeyが行なった950°Cで酸化したSiCの重量増加の関係を示す。化学蒸着により生成される燃料粒子の被覆層は他の工業的製法による製品に比べて緻密堅硬であるため、耐酸化性は良好と思われ、空气中850°C程度ではSiCが破損するような急激な酸化反応は起らないものと考えられる。

Fig. 11の(b), (d), (f)の結果はSiC層が破損する場合もあり、また破損しない場合もあることを示しているが、この原因については明らかでない。多分SiCの蒸着条件が影響しているものと思われる。上の例のようにSiC層が空気酸化で破損すれば酸浸出実験は不可能となるので、SiC層が破損しない場合でないこの方法は適用できないことになる。

### 3.3 電気化学的解砕—酸浸出法

第6表に調製した種々のペレットについて電気化学的解砕を行なった結果を示す。原料黒鉛粉末をPoco, AGL, Shell-100などの黒鉛粉末やコークス粉末、人造黒鉛粉末に変えたり、バインダーの種類や成形圧を変えた種々のペレットを解砕したところ、いずれの場合でも電圧4~20V, 電流2~5Aで数時間で解砕できることがわかった。Table 7にこの方法による粒子破損率の測定結果を示す。健全な被覆燃料粒子ではウランの溶出は見られず、電解による被覆破損は起らないことがわかる。人工破損粒子入りペレットでは試料中のウランは全量溶出されている。試料Aのペレットの場合には破損粒子は検出されなかったが、原研で計画している多目的高温ガス炉用燃料として燃料メーカーで試作された国産燃料ペレットBおよびCについては被覆燃料粒子の破損が検出され、特にCについては燃料粒子の約1パーセントが破損している。以上の実験結果から、この方法はペレットの製造条件に影響されることなく、また寸法的にも直径24mmφ, 長さ40mmのものまで適用できることがわかる。実験では硝酸の温度上昇を抑え、解砕と煮沸による溶出とを二段階で行なったので長い時間を要したが、実用化するには硝酸を煮沸下で行なえば所要時間を短縮できるものと思われる。なおこの方法は照射済みペレット中の粒子の破損率測定のため東海研ホットラボでセル内用に改造中であるほか、燃料メーカーでも製品検査のためこの方法を採用する予定である。

## 4. 結 論

被覆粒子分散ペレット中の被覆粒子の破損率を測定するため酸浸出を伴なり三つの方法を実験的に検討した結果以下の結論が得られた。

- 1) 硝酸浸出法：ペレットマトリックス中への硝酸の浸透が不十分であり、粒子の破損率測定に適當でない。
- 2) 乾式酸化—酸浸出法：この方法は被覆にSiC層をもつ被覆燃料粒子に限られ適用に制限がある。その上熱分解炭素層の酸化中にSiC層の破損を引き起すことがあるので測定法としては必ずしも適當ではない。
- 3) 電気化学的解砕—酸浸出法：被覆粒子に損傷を与えることなく、またペレットの製造条件に関係なく解砕でき、同時にウラン浸出ができるのでペレット中の粒子の破損率測定に適している。実用化にあたっては被覆層の微細なクラックへの硝酸浸透が問題となるのでどの程度のクラックまで浸出できるかを明確にしておくことが望ましい。

## 謝 辞

本研究を実施するにあたり、終始御激励下さった燃料工学部長石原健彦氏および研究結果の討議に加わった燃料工学部燃料照射研究室の諸兄に厚く感謝致します。

## 引用文献

- 1) Iwamoto, K., Kashimura, S., Kikuchi, A. : J. Nucl. Sci. Technol., 9(8) (1972) P. 465-472
- 2) Koss, P., Bildstein, H. : CONF-660524 (1968)
- 3) Holliday, J., Price, M.S.T. : "Non-Destructive Testing of Coated Particle Fuels" IAEA Panel on Non-Destructive Testing of Reactor Core Components and Pressure Vessels, Vienna, Nov. 29-Dec. 3 (1971)
- 4) Taub, J.M., Bard, R.J. : "Coated Particle Fuel Elements for UHTREX" LA-3378
- 5) 燃料照射研究室 : "被覆粒子燃料研究状況報告第5号" JAERI-memo 5115 (1973)
- 6) 赤石準, 矢部明 : "固体蛍光法によるウランの定量法" JAERI-memo 3622 (1969)
- 7) 原子燃料公社(現動燃団)東海事業所分析課 : 鉍石中のウランの分析法 "蛍光光度法"
- 8) 今井勇之進, 河嶋千寿編 : "耐熱材料ハンドブック" 朝倉書店 (1965) P. 747
- 9) Bennett, M.J., Chaffey, G.H. : J. Nucl. Mater. 39 (1971) P. 253-257

Table 1 Summary of the methods for determining the failed particle fraction in fuel compacts for HTGR.

Inspection methods		Operation	Institution	Remarks
Non-destructive	(1) Nitric acid leach technique	Compacts are leached with boiling 8N HNO <sub>3</sub> solution, and leached U is analyzed	Accepted as general methods at many institutions	Nitric acid penetration into the compact matrix is difficult
	(2) Chlorination technique	Compacts are chlorinated by chlorine gas at elevated temperature, and chlorinated U is analyzed	Jülich	Operation is complicated
	(3) Light irradiation and FP gas release technique	Samples are lightly irradiated and FP gas release from ruptured particles is measured at high temperature	Dragon	Accuracy is high but irradiation facility is required
Destructive	(4) Radon tracer method for the measurement of gas leakage	Emanation of radon from coated particles with radium doped -kernel is measured	"	Actual fuels can not be tested
	(5) Oxidation and acid leach technique	All the carbonaceous materials existing outside the SiC coating layer is oxidized in air and then the residual particles are leached with acid		Only TRISO-coated particles can be tested
	(6) Electrolytic disintegration and acid leach technique	Compacts are disintegrated electrolytically in nitric acid and leaching is done at the same time	Present work by the authors	Penetration of nitric acid into the fine crack in the coatings is difficult

Table 2 Fuel compacts used in the experiments.

Sample classification	Graphite flour	Binder	Forming pressure (kg/cm <sup>2</sup> )	Fuel loading (v/o)	Compact dimension (dia. x length (mm))	Remarks
A	Shell-100	Varcum 8251	150-3000	15 - 35	10 x 9 - 13	Fabricated by the authors
B	Poco	Phenol resin	200-400	20	10 x 15	Purchased from the private fuel production company.
					8, 24 x 40	
C	AGL	"	"	20 - 30	10 x 15	"
					8, 24 x 40	
D	Coke	Pitch	500	—	10 x 10	Fabricated by the authors
E	Graphite flour	"	250	—	10 x 10	"
					10 x 10	
F	Shell-100	Varcum 8251	300, 700	Two ruptured coated fuel particles are contained	10 x 9 - 13	Fabricated by the authors

Table 3 Properties of raw materials for fuel compacts A and F.

Graphite flour	Particle size : $< 88 \mu$	Purchased from Nippon Carbon Co.
Thermax	Particle size : $< 88 \mu$	"
Varcum 8251	Partially polymerized furfuryl alcohol Color : Very dark brown Resin solids content: 50-55 w/o Viscosity : 160-320 c.p (25°C) pH : 5.0-6.0 Density : $1.2 \text{ g/cm}^3$ (25°C)	Purchased from Dainippon Ink Co.

Table 4 Coated fuel particles 70NC3 used for  
fabricating compacts A and F.

Kernel	Composition $^{235}\text{U}$ enrichment Size	$\text{UC}_2$ 0.7 % (Natural) 315-420 $\mu$
Coating layer	1st 2nd 3rd	PyC SiC PyC } 126 $\mu$
Particle size	440-546 $\mu$	
Crushing strength	2.99 Kg (an average of 50 particles)	

Table 5 Results of the nitric acid leach for coated particles and fuel compacts.

Sample classification	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Location of particles in the sample	Total U in the sample (mg)	Leaching time (hrs)	U leached (mg)	Percentage of U leached (%)
— Sound particles	—	—	454	5	0.005	0.001
— Ruptured particles	—	—	0.608	1	0.605	99.51
F Graphite compacts containing ruptured particles	No.1	Center	"	"	—	—
	No.2	"	"	"	—	—
	No.3	"	0.304	5	0.006	1.97
	No.4	Near periphery	0.608	1	0.080	13.16
	No.5	"	"	5	0.019	3.13
	No.6	"	"	1	0.025	4.11

Table 6 Results of the electrolytic disintegration of fuel compacts.

Sample classification	Compacts used							Conditions of disintegration		
	Dimension (dia. x length(mm))	Graphite flour	Binder	Forming pressure (kg/cm <sup>2</sup> )	Matrix density (g/cm <sup>3</sup> )	Fuel loading (v/o)	Voltage (V)	Current (A)	Time required to complete disintegration (hrs)	
A	10 x 12	Shell-100	Varcum 8251	150-1500	1.58	15-35	5-10	2-5	3-5	
	10 x 12	"	"	2000-3000	1.66	15-35	6-10	2-5	5-7	
B	10 x 15	Poco	Phenol resin	400	1.48	20	6-20	2-5	< 2	
	24 x 40	"	"	200	1.68	20	< 5	2.5-5	5-7	
C	10 x 15	AGL	"	200	1.58	20-30	7-10	4-5	< 1	
D	10 x 10	Coke	Pitch	500	1.68	—	4-7	1.5-4	< 3	
E	10 x 10	Graphite flour	"	250	1.53	—	4-5	1.5-2	1.5-2	



Table 7 Results of the amounts of ruptured particles in the fuel compacts measured by electrolytic disintegration and acid leach technique.

Sample classification	*U-content in the sample (mg)	U leached (mg)	Percentage of U leached (%)	Remarks
Coated fuel particles	454	—	—	70NC3 particles 1 g
"	"	0.0025	0.001	"
Fuel compact	195	0.014	0.007	70NC3 particles (15 v/o, 500 kg/cm <sup>2</sup> )
"	324	0.065	0.020	70NC3 particles (25 v/o, 500 kg/cm <sup>2</sup> )
"	456	0.012	0.026	70NC3 particles (35 v/o, 500 kg/cm <sup>2</sup> )
"	8914	0.9	0.010	Trially fabricated fuel compact for HTGR (8 <sup>ID</sup> × 24 <sup>OD</sup> × 40 <sup>mm</sup> )
"	8357	80.0	0.957	
Graphite compact	No.7 0.608 (0.740)	0.635	100	Contains two ruptured particles
	No.8 0.304 (0.330)	0.300	100	Contains one ruptured particles
	No.9 0.608 (0.700)	0.650	100	Contains two ruptured particles

\* Number in ( ) in the column U-content is calculated value from X-ray microradiograph of ruptured coated fuel particles.

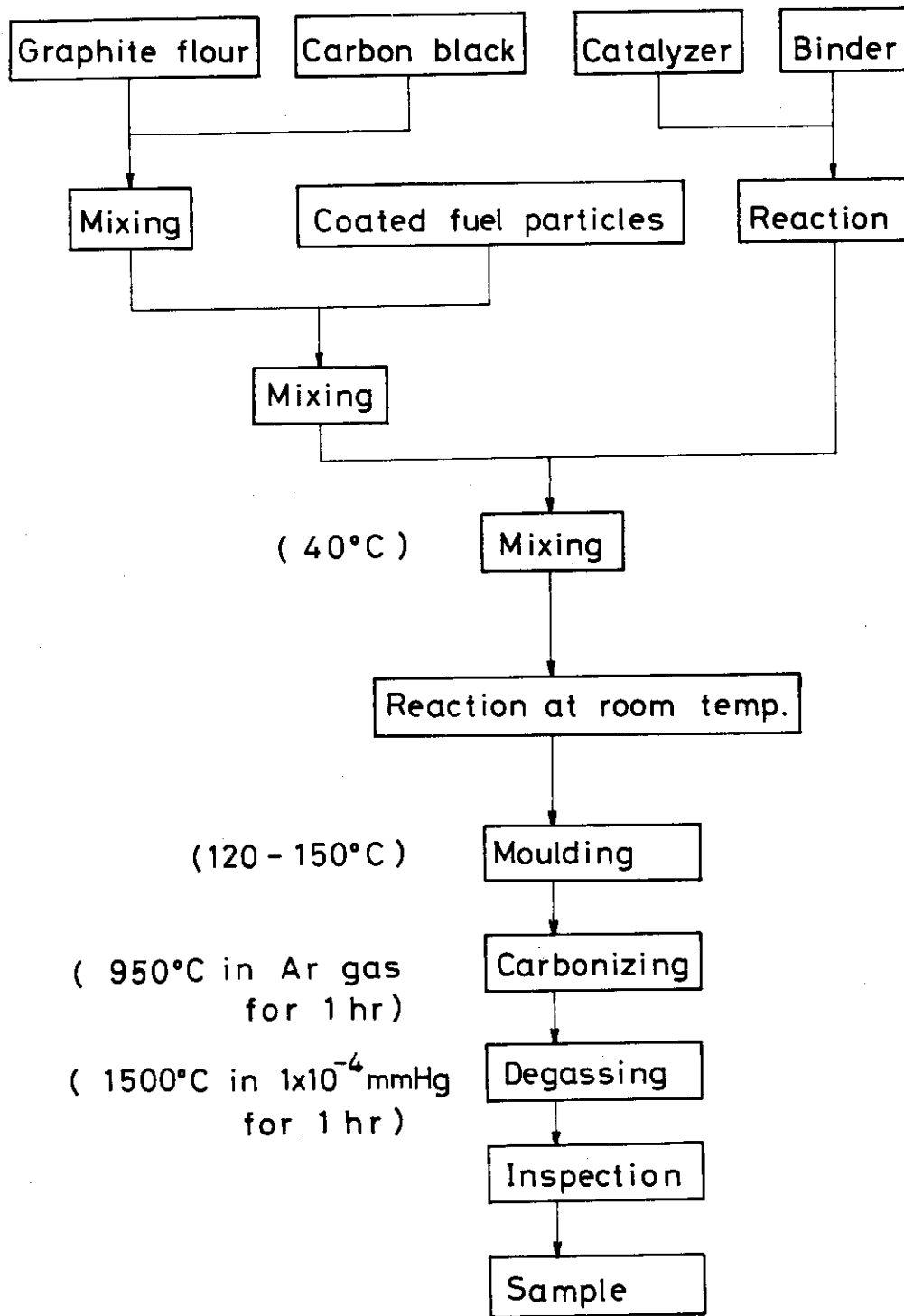


Fig 1 Preparation method of fuel compact A.

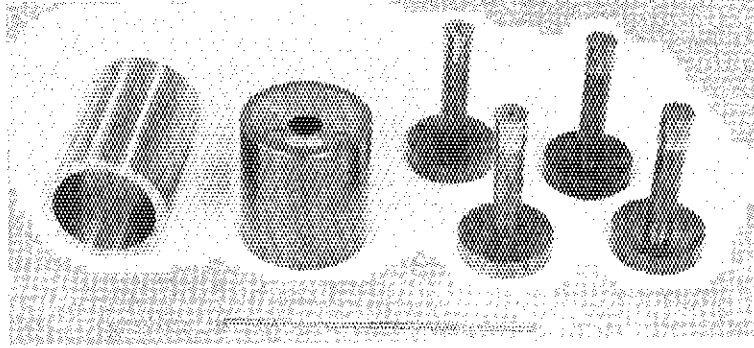
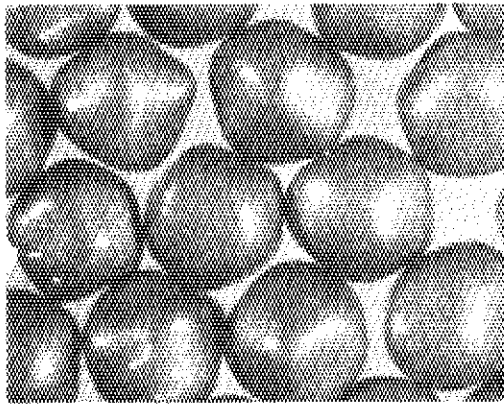
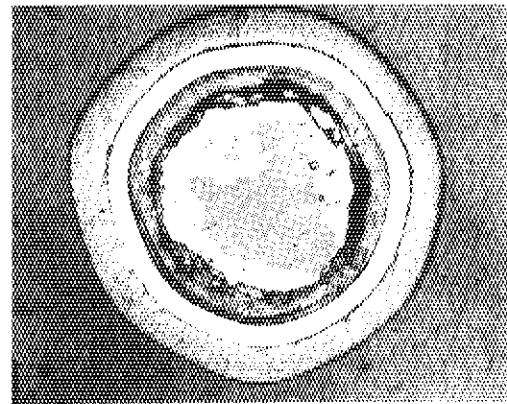


Fig. 2 Die used for pressing fuel compacts A, D, E and F.

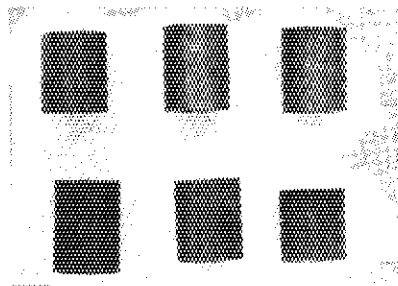


(a) External view

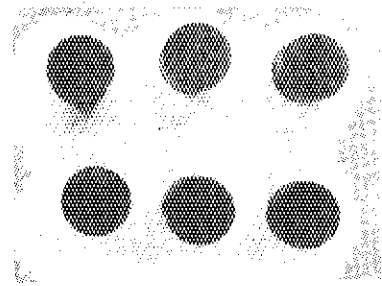


(b) Metallograh of sectioned particle

Fig. 3 Coated fuel particles 70NC3.



(a) Side view



(b) End view

Fig. 4 External view of fuel compacts prepared.



Fig. 5 Appearance of ruptured coated fuel particles.

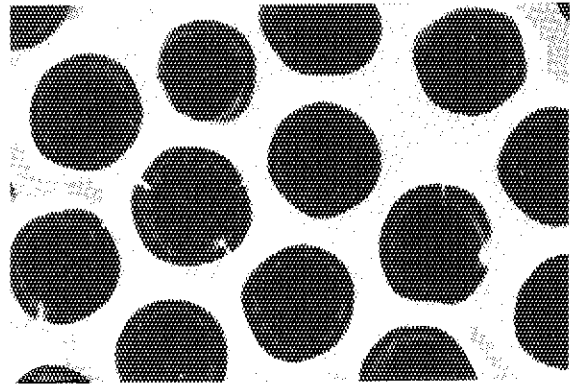
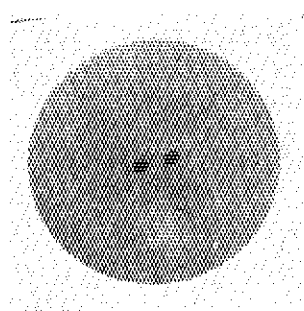
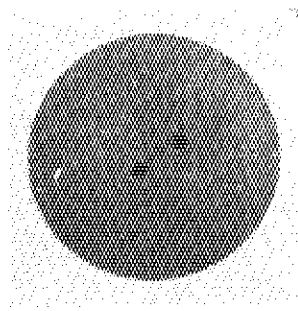


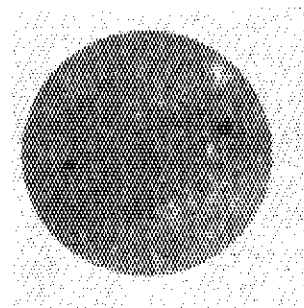
Fig. 6 X-ray microradiograph of ruptured coated fuel particles.



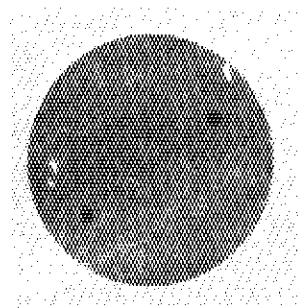
(a) Compact No. 8



(b) Compact No. 9



(c) Compact No. 10



(d) Compact No. 11

Fig. 7 X-ray radiograph of graphite compacts F containing ruptured coated fuel particles.

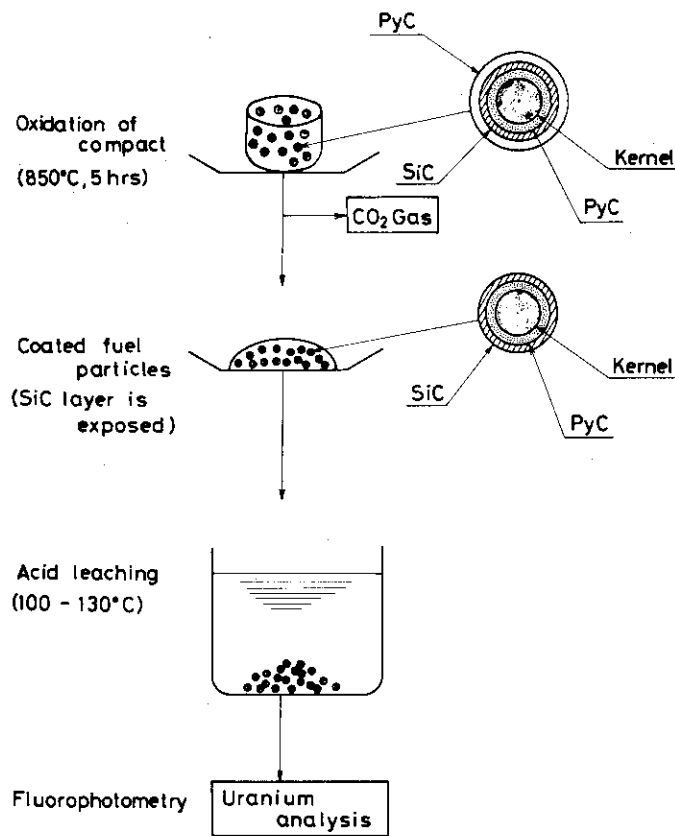


Fig. 8 Schematic flow diagram for the oxidation of fuel compacts in air.

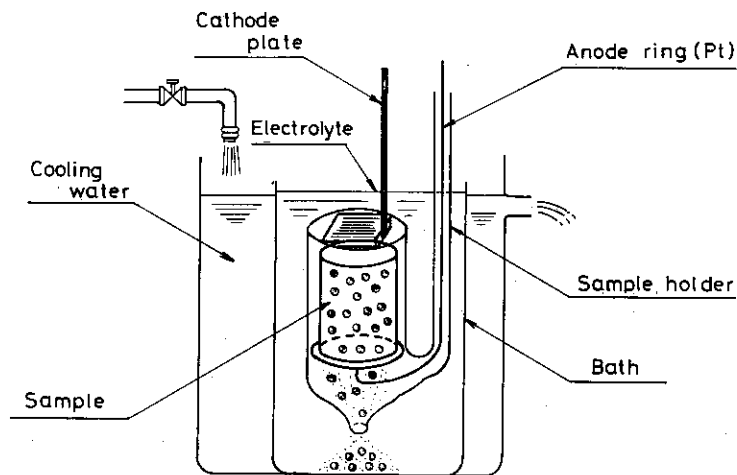


Fig. 9 Schematic drawing of the electrolytic disintegration and acid-leaching of fuel compact.

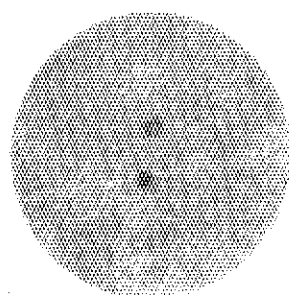
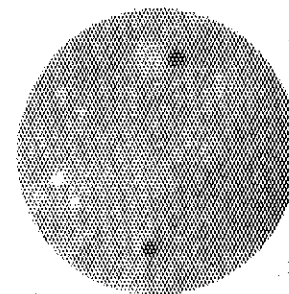
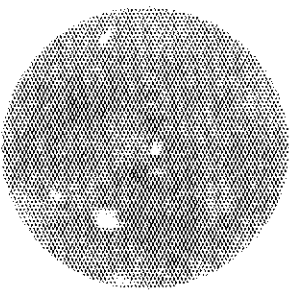
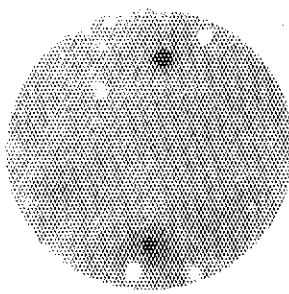
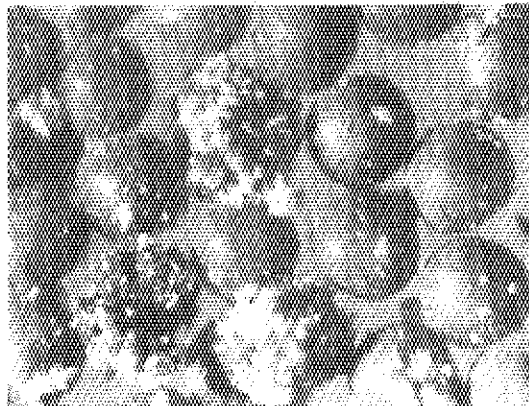
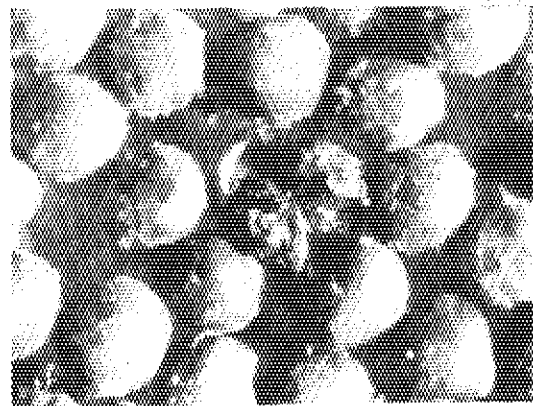
	Fuel location (Center)	Fuel location (Near periphery)
Before leaching	 Compact No.1 Density 1.73g/cm <sup>3</sup> Compact No.3 Density 1.76g/cm <sup>3</sup>	 Compact No.6 Density 1.82g/cm <sup>3</sup> Compact No.5 Density 1.78g/cm <sup>3</sup>
After leaching	 Leaching time: 1 hr Leaching time: 5 hrs U leached: — U leached: 6 μg	 Leaching time: 1 hr Leaching time: 5 hrs U leached: 25 μg U leached: 19 μg

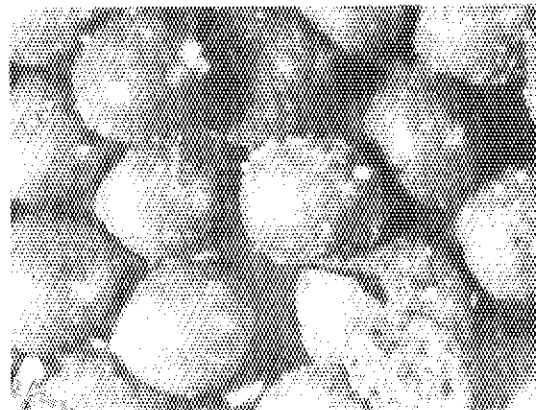
Fig. 10 X-ray radiograph of fuel compacts before and after acid leach.



(a) Compact (70NC3)  
850°C, 5 hrs



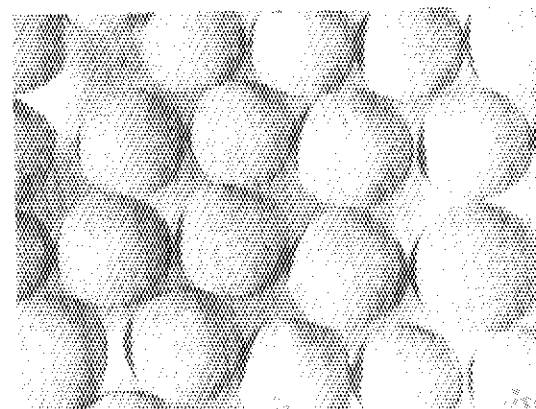
(b) Coated fuel particles  
850°C, 1 hr (70NC3)



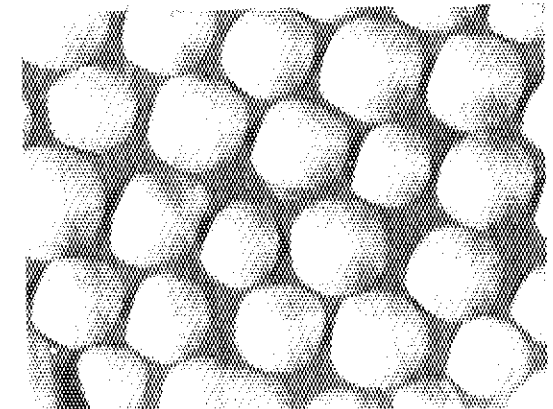
(c) Compact (71FC1)  
850°C, 5 hrs



(d) Coated fuel particles  
850°C, 1 hr (71FC1)



(e) Coated fuel particles  
As recived(71GC4)



(f) Coated fuel particles  
850°C, 1 hr (71GC4)

Fig. 11 Appearance of coated fuel particles after oxidation by air at 850°C.

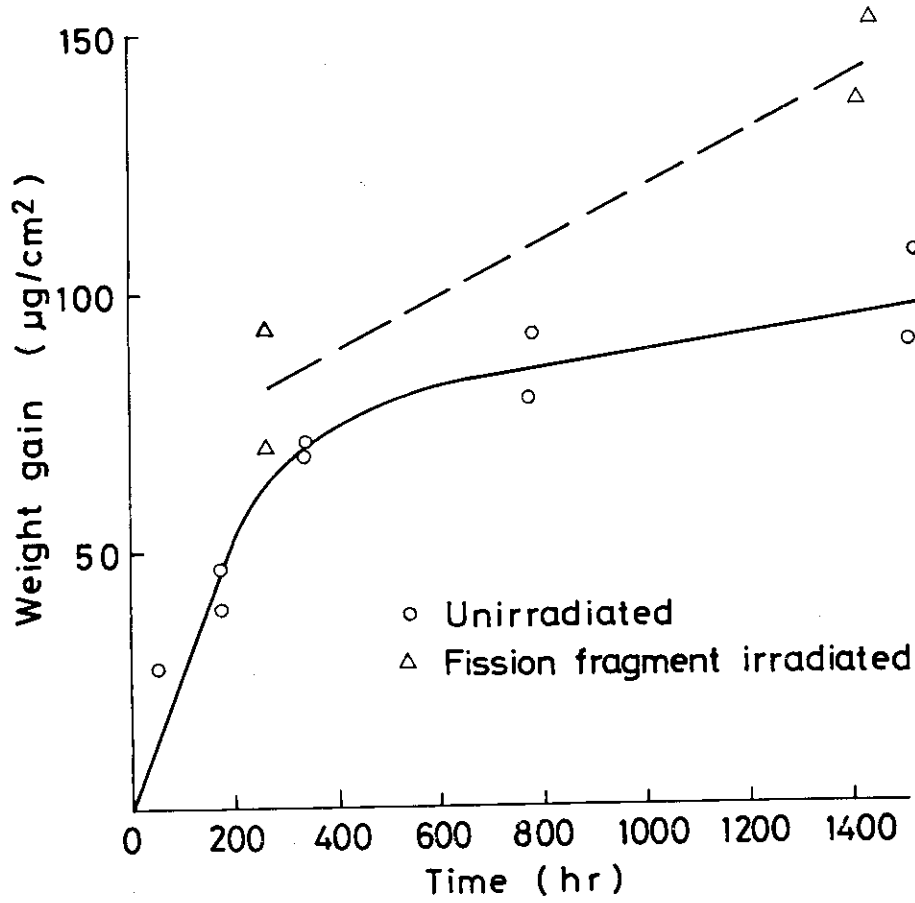


Fig. 12 Oxidation of silicon bonded silicon carbide by oxygen at 950°C.<sup>9)</sup>