

JAERI-M

5876

JRR-2水ループ照射装置(EFTL-2
及びHWL-1)によるUC₂核被覆粒子の
照射試験

1974年10月

岩本 多實・菊地 章・林 悌二・福田 幸朔
鹿志村 悟・飛田 勉

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、お申しこしてください。

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.

JRR-2 水ループ照射装置 (EFTL-2 及び HWL-1) による
UC₂ 核被覆粒子の照射試験

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

岩本 多實・菊地 章・林 悌二

福田 幸朔・鹿志村 悟・飛田 勉

(1974年10月3日受理)

JRR-2 に設置された EFTL-2 と HWL-1 の両水ループ照射装置により、天然ウラン UC₂ 核をもつ被覆燃料粒子を 1400℃ 以下の温度で、約 100 MWD/T 以下の燃焼度で照射した結果をまとめた。この試験は原研では初めての経験であり、その結果は、その後の照射研究に大いに役立っているほか、1400℃ での照射結果から、被覆層とくに SiC 層の耐熱性を充分改良する必要のあることと、四重被覆の TRISO-II 型粒子が三重被覆の TRISO-I 型粒子よりも、被覆層の劣化が少ないことが判明した。

Irradiation Tests of Coated UC₂ Particles in Water-cooled Irradiation
Loop Facilities (EFTL-2 and HWL-1) Installed to JRR-2

Kazumi IWAMOTO, Akira KIKUCHI, Teiji HAYASHI, Kosaku FUKUDA,
Satoru KASHIMURA and Tsutomu TOBITA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received October 3, 1974)

Irradiation tests of the coated UC₂ particles have been performed at temperatures lower than 1400°C and burn-ups below about 100 MWD/T in EFTL-2 and HWL-1, both a water-cooled loop facility, in JRR-2, followed by the post-irradiation observation. The first experience of this kind in JAERI, the tests showed that thermal stability of the coating layers, SiC layer especially, needs extensive improvement; deterioration of the coating layers is less in the TRISO-II than in the TRISO-I type.

目 次

1. はじめに	1
2. 水ループ照射装置 (EFTL-2 及び HWL-1) の概要	1
2.1 EFTL-2 (Experimental Fuel Test Loop-2)	1
2.2 HWL-1 (Horizontal Water Loop-1)	3
3. UC_2 核被覆粒子試料	6
4. キャプセル照射	9
4.1 HWL-1用キャプセル内の中性子束測定	9
4.2 キャプセルの構造	9
4.3 試料の照射条件	10
5. 照射後試験	16
5.1 試験の項目と方法	16
5.2 試験結果と考察	16
6. まとめ	34

1. はじめに

多目的高温ガス実験炉の研究が原研で取上げられたのに呼応して同炉用被覆粒子燃料の研究が昭和44年度の後半から開始され、燃料の製造試験を国内メーカーが、その評価試験を原研が、それぞれ受持つという形で今日まで進められている。研究に着手した頃の被覆粒子は燃料核に UO_2 を用い、三重又は四重に被覆したもので、海外ですでに開発されたものを対象に行ってきたが、46年度からは燃料核に UO_2 を用いることとなった。

燃料研究には原子炉内照射が必要であることから、45年度から被覆粒子の照射をJRR-2に設置され、それまで UO_2 燃料やUC燃料の照射試験に供されていた2基の水ループ照射装置、EFTL-2とHWL-1とを用いて実施することとした。まず、EFTL-2を用いて照射を行い、東海研ホットラボで照射後試験を行った。この照射と試験とはいづれも初めてのもので、ついで、HWL-1による照射に移行し、国産粒子試料と西独NUKEM社から購入した粒子試料との比較照射ということに重点がおかれた。これらの照射に用いた粒子はいづれも UO_2 核をもつものであるが、両ループによる照射試験を終了したので、その結果を本報告書としてまとめた。

2. 水ループ照射装置 (EFTL-2及びHWL-1) の概要

EFTL-2, HWL-1 はともに昭和39年7月30日付、39原第2377号により設計及び工事方法の認可を受けて以来、燃料試料の照射研究に供された水ループ照射装置である。

2.1 EFTL-2 (Experimental Fuel Test Loop-2)

本装置は核燃料試料を照射研究に供するためにJRR-2の水平実験孔HT-1に設置された装置である。装置はJRR-2の1階および地階にまたがって配置され、1階には、EFTL-2本体、ホルダー移送取出系および計測盤が、また地階には、熱交換系一式が気密室中に各々配置されている。EFTL-2とJRR-2原子炉とは、スクラム系およびアラーム系で連絡され、EFTL-2の重大事故如何によっては炉がスクラムする。フローシートをFig.1に示す。照射試料はホルダーに組込み水圧で炉心近くに位置する照射筒先端部に移送され、照射される。照射後は水圧により炉外のキャスクに戻され、ホットラボへ搬出される。

1) 照射筒およびプラグ

HT-1実験孔中には、照射筒およびプラグが挿入されている。照射筒は52SA ϕ 製の2重管で、その荷重はプラグによって支えられ、照射筒内の熱中性子束は約 $1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。EFTL-2本体とはフランジにより接合されている。

(イ) 照射筒内管：68.5mm (ID), 2662mm (L), 4mm (th)

(ロ) 照射筒外管：84.5mm (ID), 2666mm (L), 4mm (th)

1. はじめに

多目的高温ガス実験炉の研究が原研で取上げられたのに呼応して同炉用被覆粒子燃料の研究が昭和44年度の後半から開始され、燃料の製造試験を国内メーカーが、その評価試験を原研が、それぞれ受持つという形で今日まで進められている。研究に着手した頃の被覆粒子は燃料核に UO_2 を用い、三重又は四重に被覆したもので、海外ですでに開発されたものを対象に行ってきたが、46年度からは燃料核に UO_2 を用いることとなった。

燃料研究には原子炉内照射が必要であることから、45年度から被覆粒子の照射をJRR-2に設置され、それまで UO_2 燃料やUC燃料の照射試験に供されていた2基の水ループ照射装置、EFTL-2とHWL-1とを用いて実施することとした。まず、EFTL-2を用いて照射を行い、東海研ホットラボで照射後試験を行った。この照射と試験とはいづれも初めてのもので、ついで、HWL-1による照射に移行し、国産粒子試料と西独NUKEM社から購入した粒子試料との比較照射ということに重点がおかれた。これらの照射に用いた粒子はいづれも UO_2 核をもつものであるが、両ループによる照射試験を終了したので、その結果を本報告書としてまとめた。

2. 水ループ照射装置 (EFTL-2及びHWL-1) の概要

EFTL-2, HWL-1 はともに昭和39年7月30日付、39原第2377号により設計及び工事方法の認可を受けて以来、燃料試料の照射研究に供された水ループ照射装置である。

2.1 EFTL-2 (Experimental Fuel Test Loop-2)

本装置は核燃料試料を照射研究に供するためにJRR-2の水平実験孔HT-1に設置された装置である。装置はJRR-2の1階および地階にまたがって配置され、1階には、EFTL-2本体、ホルダー移送取出系および計測盤が、また地階には、熱交換系一式が気密室中に各々配置されている。EFTL-2とJRR-2原子炉とは、スクラム系およびアラーム系で連絡され、EFTL-2の重大事故如何によっては炉がスクラムする。フローシートをFig.1に示す。照射試料はホルダーに組込み水圧で炉心近くに位置する照射筒先端部に移送され、照射される。照射後は水圧により炉外のキャスクに戻され、ホットラボへ搬出される。

1) 照射筒およびプラグ

HT-1実験孔中には、照射筒およびプラグが挿入されている。照射筒は52SA ϕ 製の2重管で、その荷重はプラグによって支えられ、照射筒内の熱中性子束は約 $1 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。EFTL-2本体とはフランジにより接合されている。

(イ) 照射筒内管：68.5mm (ID), 2662mm (L), 4mm (th)

(ロ) 照射筒外管：84.5mm (ID), 2666mm (L), 4mm (th)

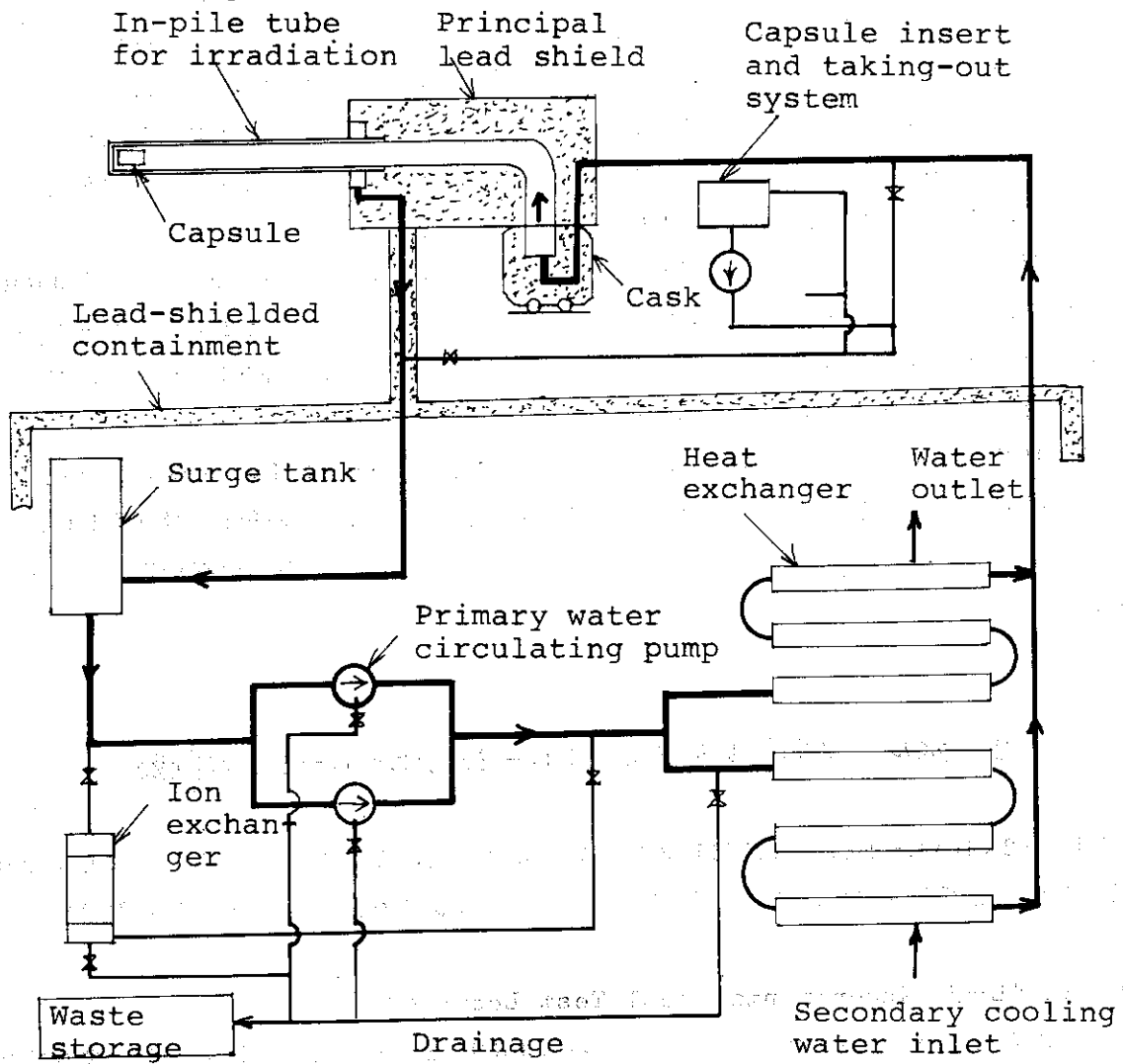


Fig. 1 Flow sheet of the EFTL-2 loop

2) EFTL-2 本体

EFTL-2 本体は、鉛製で炉心から γ 線を遮蔽するとともに、キャスク脱着装置を含んでいる。キャスクはレール上を移動することができ、レールおよび本体は、1階床面のアンカーボルトによって固定されている。1次冷却水出口配管は、水の N^{16} 放射線遮蔽のためカマボコ型鉛遮蔽がなされている。

3) ホルダー移送, 取出系

ホルダー移送, 取出系は冷却系とは独立に設けられており、サージタンク, ポンプ, 流量計および操作盤より構成される。さらに配管にまたがって操作台がある。

4) 計測盤

計測盤は、EFTL-2 全体の運転中における状態を計測し、記録し、1部制御するためのものである。さらに、照射筒先端温度、流量、サージタンク水位に対しスクラム系が、これらとスクラム系3種に加えてFPガスモニター、熱交出口温度、電気伝導度に対してアラーム系が備えられ、スクラム系に対して非常冷却系が連動する。

5) 1次冷却系

1次冷却系全体は、JRR-2地階の気密室中に配置されている。気密室上には、純水補給のために純水貯水タンクがある。

(イ) 循環ポンプ：2台並列、電動渦巻メカニカルシール型、 $4 \text{ m}^3/\text{hr}$ 揚程 2.5m

(ロ) 熱交換器：1台、除熱量 1.4 KW、2重管式 内管 STC、外管 SGP

(ハ) サージタンク：1基、直径 300mm、高さ 1500mm、 100ℓ 容量、SUS27、水位計付

(ニ) イオン交換塔：1基、混床式非再生型、100mm ID、鉛遮蔽 100mm、外径 320mm 接液部 SUS-27、外囲普通鋼、既設クレーンによって取出される。

6) ポンプ盤およびヒーター盤

現場においてポンプを始動するため、地階に配置されている。

2.2 HWL-1 (Horizontal Water Loop-1)

本装置は、燃料試料の照射研究に供するために JRR-2 の水平実験孔 HT-6 に設置された常温、常圧の水ループ照射装置で、炉内に挿入された照射筒およびプラグと炉外に設置された鉛遮蔽本体、冷却系、試料挿入取出機構、計測制御系および配管遮蔽系より構成されている。フローシートを Fig.2 に示す。基本的には EFTL-2 炉中照射装置と同様の構造を有している。

照射試料はホルダーに組込み、水圧により炉心近くに位置する照射筒先端部に移送され、ここで閉循環 1 次冷却系で冷却しつつ照射される。照射終了後は水圧により炉外に戻されキャスク中に入れられ、ホットラボへ搬出される。

1) 照射筒およびプラグ

HT-6 孔内には、照射筒とプラグが挿入されている。照射筒は 52SA ϕ 製の 2 重管で、その荷重はプラグによって支えられ、炉外部とはフランジにより接合されている。照射筒内の熱中性子束は約 $2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ で高速中性子束はその約 1/20 である。

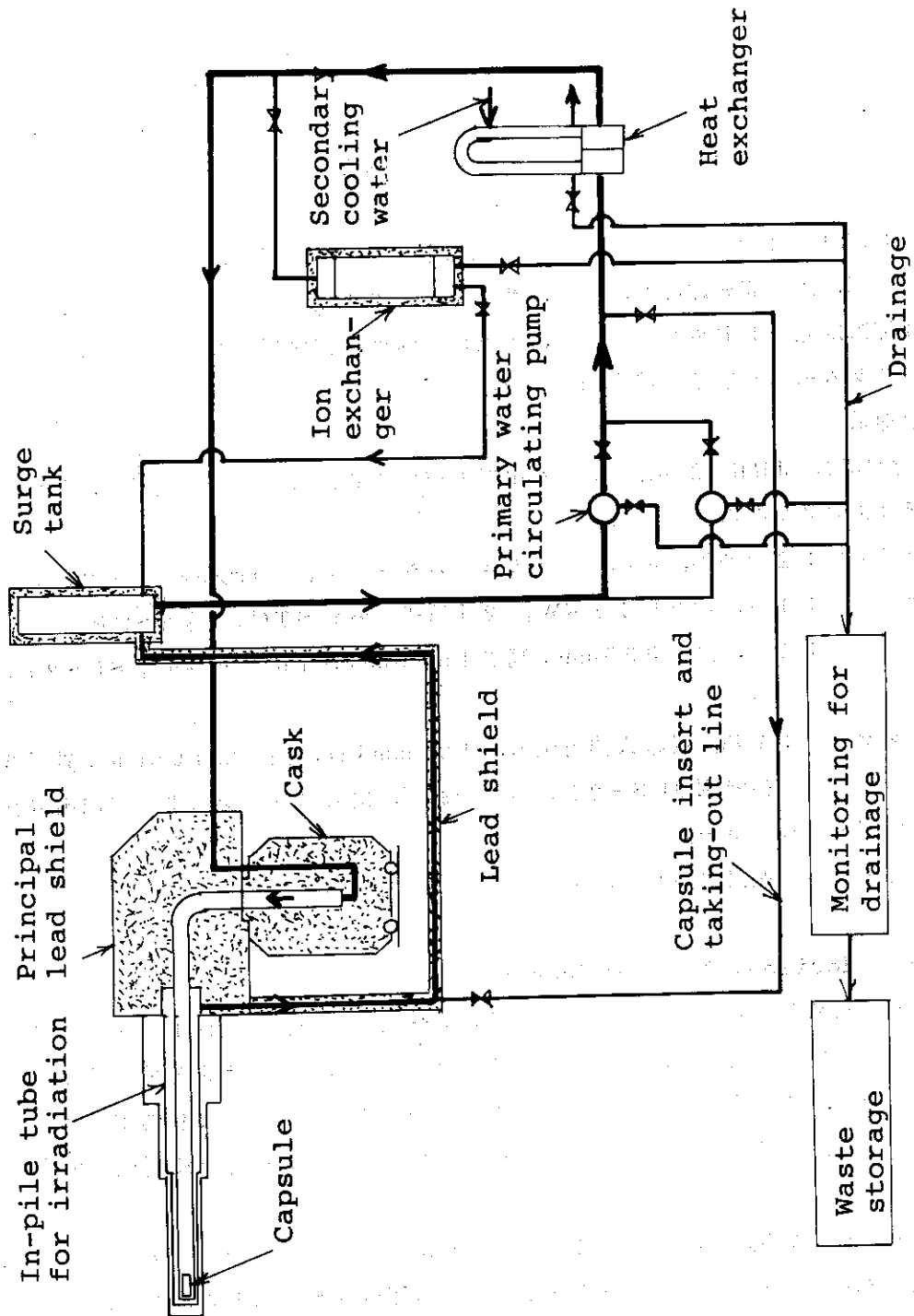


Fig. 2 Flow sheet of the HWL-1 loop

(イ) 照射筒内管：内径 68.6mm，外径 75mm，長さ 2700mm の 52SA ϕ 製で，先端部に測温用の白金抵抗体 2 ヶを有し，0.5mm ϕ の銀導線 4 本が埋設されている。

(ロ) 照射筒外管：内径 90mm，外径 100mm，長さ 2720mm の 52SA ϕ 製

(ハ) プラグ：内径 160mm，外径 297mm，長さ 800mm の鋳鉄製で炉本体とフランジ接合。

2) 冷却系

炉室に設置された冷却装置より出た冷却水は，試料輸送容器，試料移送用管を経て，照射筒の内管内に送りこまれ，試料を冷却した後，内管と外管との間隙を通過して冷却装置に戻る閉循環系となっている。冷却装置は 1.5 KW の除熱能力を有し以下より構成される。

(イ) 循環ポンプ：2 台並列，ノンシール型，ケミポンプ全揚程 20m，流量 10m³/hr のポンプ 1 台。

(ロ) 熱交換器：多管式 1 基，除熱能力 1.5 KW，伝熱面積 0.85m²，外径 140mm，長さ 1053mm

(ハ) サージタンク：1 基，容積 150 ℓ ，直径 400mm，高さ 1200mm の SUS 製，鉛遮蔽 80mm 付きのため外寸法は直径 570mm，高さ 1405mm，水位計付。

(ニ) イオン交換樹脂塔：1 基，混床式非再生型，容量 20 ℓ /hr，直径 106mm，高さ 676mm，鉛遮蔽 110mm 付きのため外寸法は直径 344mm，高さ 970mm。

(ホ) 配管：SUS 製（外径 48.6mm）

3) 試料挿入，取出系

試料の挿入，取出は 1 次冷却系内の水を利用したハイドロラビット方式によっており，キャスク内に入れた試料を水流により照射筒先端まで圧入し，照射後は水流を逆方向に切換えてキャスク内に戻す構造で，水流調節は 1 次冷却系に付設された弁の切換えによる。

4) 計測，制御系

HWL-1 運転時の計測制御を行う系で，流量，温度，水位，電気伝導度，FP ガス，圧力，水洩れなどを対象とする。このうち，照射筒先端温度，流量，サージタンク水位に対してスクラム系が，これらと残りに対してはアラーム系が付設されており，スクラム，アラームの両信号は JRR-2 運転制御室に送られる。これらは計測，制御盤にまとめられている。

5) 遮蔽系

以下の部分により構成される。

(イ) 照射筒取付部：試料移送用管を包む鋼板外装の鉛遮蔽で，キャスクを下部に接合する。外寸法は，幅 1020mm，奥行 995mm，高さ 780mm

(ロ) 配管部：1 次冷却系出口配管の炉壁部分からサージタンクまでの鉛遮蔽，厚さ 100mm。

(ハ) イオン交換樹脂塔：樹脂塔のまわりを 110mm 鉛厚で遮蔽。

(ニ) サージタンク：サージタンクのまわりを 80mm 鉛厚で遮蔽。

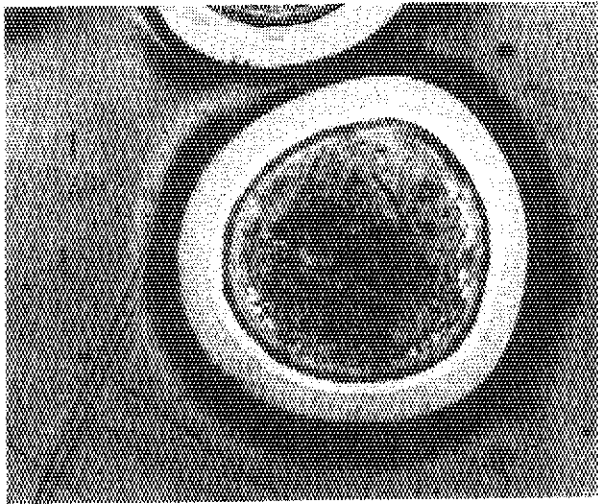
3. UC₂ 核被覆粒子試料

照射試験に供した試料は、44年度に原研で高温ガス炉用燃料の研究が開始されたのに呼応して原子燃料工業(株)(当時、古河電工(株))が同年度に試作したTRISO型被覆粒子(69FC1)、45年度に試作したTRISO型粒子(70FC1)、およびTRISO-II型粒子(70FC2)ならびに45年度に西独NUKEM社から入手したシール層付きTRISO型粒子(70NC3)の計4種類であり、いずれも天然ウランUC₂核を有している。国産試作品はいずれも核を粉末冶金法で球形化し、第1層の低密度の熱分解炭素(PyC)層をアセチレンの約1300℃の熱分解で、高密度PyC層をプロパンの約1700℃の熱分解で、またSiC層をメチルトリクロルシランの約1600℃の熱分解でそれぞれ造っている。輸入品の70NC3は低密度PyC層とSiC層を上記温度付近で造り、高密度PyC層をメタンの約1900℃の熱分解で造っている。各試料の代表的な性質をTable-1に示し、断面をFig.3に示している。

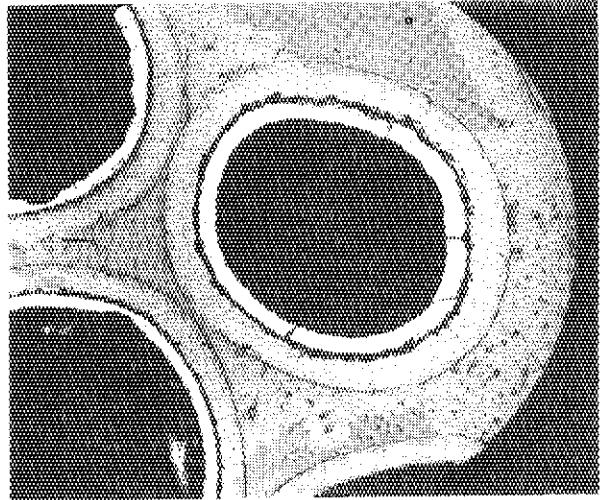
これらの試料のうち69FC1はEFTL-2で、残りの3種類はHWL-1で照射した。69FC1に対しては受入れたままのもの(AR)のほか真空で1700℃で80時間加熱したもの(TH)、およびHe中で930℃と1630℃の間で熱サイクルを15分/サイクルの割合で500回与えたもの(TT)も照射した。他の試料は受入れたままのものを照射した。

Table 1 Properties of the coated UC₂ particles used in the irradiation experiments

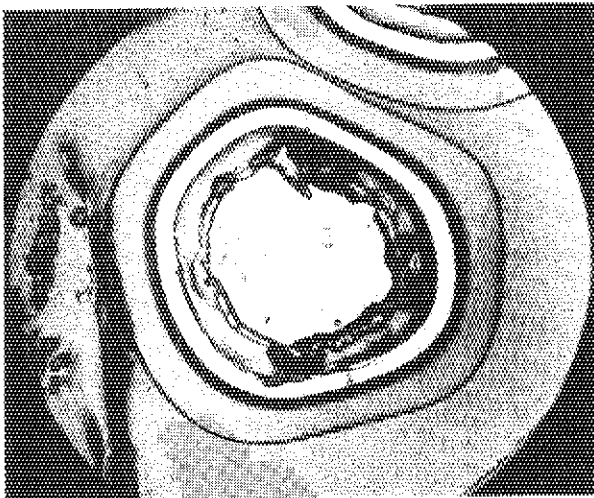
	Attribute	69FC1	70FC1	70FC2	70NC3
Kernel	Chemical form	UC ₂	UC ₂	UC ₂	UC ₂
	C/U ratio (-)	1.95	2.15	2.15	
	UC/UC ₂ ratio (-)	2.1	0.1	0.1	0
	Diameter (μ)	350-590	420-500	420-500	315-420
	Density (% T.D.)	88	86	86	
Buffer coating	Thickness (μ)	53	45	50	40
	Density (g/cm ³)	0.9	0.9	0.9	
Inner HDI PyC coating	Thickness (μ)	---	---	35	15
	Density (g/cm ³)	---	---	1.8	
SiC coating	Thickness (μ)	27	25	25	30
	Density (g/cm ³)	3.1	3.1	3.1	
	Free Si (w/o)	5.3	2.6		0
Outer HDI PyC coating	Thickness (μ)	50	45	50	40
	Density (g/cm ³)	1.8	1.8	1.8	
	Diameter (μ)	610-850	650-730	740-820	565-670
Coated particle	U content (gU/g)	0.52	0.520	0.426	0.48
	Crushing strength (Kg/particle)	2.18	2.27	2.67	
		Prepared by a domestic fuel company			Prepared by NUKEM



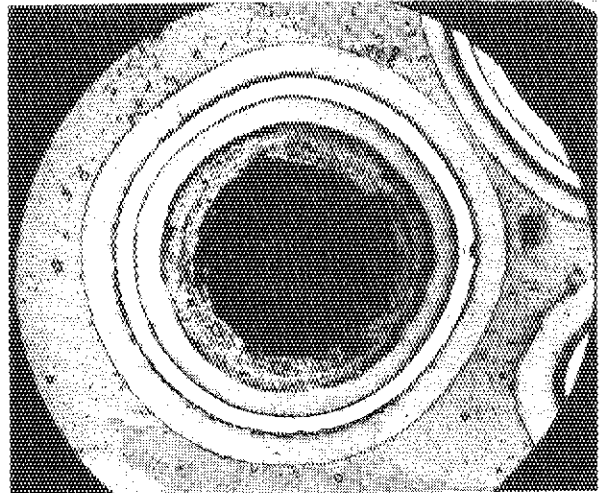
69FC1



70FC1



70NC3



70FC2

Fig. 3 Sectional views of the coated-fuel particle samples

4. キャプセル照射

EFTL-2, HWL-1 ともに照射キャプセル内の試料位置における中性子束については正確な値が把握できていなかったため、照射に供したキャプセルの同種の模擬キャプセルを製作して、モニターワイヤーを入れて照射して中性子束をHWL-1キャプセルに対してのみ測定した。HWL-1用キャプセル設計に際しては、この値を用いて熱計算を行ない、またEFTL-2キャプセルに対しては照射孔の中性子束値を用いた。

4.1 HWL-1用キャプセル内の中性子束測定

熱中性子束 (ϕ_{th}) は $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 反応により、また高速中性子束 (ϕ_f) はエネルギーが 2.9 MeV 以上に対して $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応または $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応により測定できる⁽¹⁾。HWL-1では照射筒の先端部にキャプセルが置かれて照射を行うが、次節で述べるキャプセルの内筒部分を黒鉛円柱で模擬して、その中で上の反応を起こさせて中性子束測定を行った。すなわち、 ϕ_{th} 測定のため、Co-Al 合金ワイヤー (2w/o Co) と同ワイヤーを 0.6 mm 厚さの Cd で包んだものを、また、 ϕ_f 測定のため、0.6 mm 厚さの Cd で包んだ Ni はくと減圧石英アンプルに入れた精製 MgSO_4 粉末とをそれぞれ黒鉛円柱内に入れて、1 原子炉サイクル (290 時間) 照射した。照射後文献(1)の方法で放射能を測定し、キャプセル内の ϕ_{th} と ϕ_f を求めた。測定結果を Fig. 4 に示す。図から明らかなようにキャプセル内の ϕ_{th} は 2×10^{13} n/cm²·sec, ϕ_f は 1×10^{12} n/cm²·sec であることがわかった。

4.2 キャプセルの構造

1) EFTL-2用キャプセル

このキャプセルによる照射の目的は、被覆粒子を照射し、照射後試験も一応実施することにより、その後の照射試験の問題点を探索することにあつた。したがって、キャプセルとしても、従来 UC 試料の照射に使用してきたのと同じ構造の Fig. 5 に示す 2 種のキャプセル E1D と E2C を使用した。すなわち、温度測定用熱電対付きの E1D で 2.6 % 濃縮の UC₂ ベレットを照射し、照射温度を推定しておき、ついで、その熱電対部に天然ウラン UC₂ 被覆粒子 69 FC1 を 3 種類 (AR, TH, TT の三者) 少量つつ入れ、E2C キャプセルとした。E1D と同じ熱中性子束条件下で同一期間照射して、E2C の試料温度は E1D の測定値と同一とみなした。

2) HWL-1用キャプセル

EFTL-2での照射経験をもとに、HWL-1用キャプセルを設計した。この際、(1)照射資料は天然ウラン核の粒子とする、(2)国産試料と輸入試料を同時に照射できる構造とする、(3)照射温度をできるだけ高くする、の 3 点に留意した。熱計算にあたっては径方向のみに対して行い、軸方向の熱移動を無視したが以下に述べるように、キャプセルが照射装置上の制限から長さが直径に比して短かいものとなったため、軸方向の熱損失が大きかったので、目的温度は発熱量調整を経験的に実施することにより達成した。

代表的なキャプセルの構造を Fig.6 に、構成部品を Fig.7 に示す。このキャプセルは、試料の天然ウランのみでは昇温できないので、濃縮ウランを試料の周りに配置する構造をとっている。すなわち、試料の周りに円環状の間隙を設け、この中に天然ウランと 20%濃縮ウランのそれぞれの UC_2 核を高密度 PyC で被覆した粒子（以下ヒーター粒子と呼ぶ）を、目的とする温度に応じて両ヒーター粒子の混合比を変えて入れ発熱量を調整することができる。また、径方向の熱損失を少なくするために、径方向の熱伝導度が軸方向のそれに比して約 10 倍小さいとされている熱分解黒鉛の円筒を熱遮蔽用に配置しているほか、軸方向の熱損失をアルミナ板で防いでいる。さらに、このキャプセルでは Ta 製試料容器を 3 個並べ、熱電対 (W-5Re/W-26, Re, BeO 絶縁, Ta 被覆付き, 1.6mm ϕ) によって温度の測定を行うことができる。

照射したキャプセルは後述するように H3C から H6C までの計 4 個であり、試料の配置は全キャプセルを通じて Fig.8 の通り、70FC1, 70NC3, 70FC2 の 3 種類をそれぞれ 0.6g ずつ Ta 製の容器に入れた。試料の照射温度を上昇させるために以下の方法をとった。すなわち、まず、第 1 に H3C と H4C とにより熱計算値と実測温度との関係を求めたところ、軸方向の熱損失が大きく熱計算精度の向上による温度推定は困難であることが判明したので、推定発熱量と実測温度との関係を外挿して H5C や H6C に対する昇温を行った。

4.3 試料の照射条件

キャプセルの照射条件は Table 2 に一覧されている。

1) EFTL-2 による照射

E1D キャプセルを 280 時間照射したところ、照射期間中の最高温度 1150°C, 最低温度 950°C, 平均約 1050°C の結果を得た。したがって E2C キャプセルの試料もこの温度で照射されたものとみなした。

2) HWL-1 による照射

まず、H3C キャプセルを照射したところ、予定の約 1200°C に対し約 600°C に達したに過ぎなかったため、ヒーター粒子の ^{235}U 量を増して H4C キャプセルを照射した。この結果 1630°C の計算値に対して 920°C が得られたが、さらに目標の 1400°C を達成させるため、キャプセルの線出力計算値と試料到達温度との関係を Fig.9 に示すように点綴した上で、 ^{235}U 量を増した結果、H5C キャプセルで目標の 1400°C を達成することができた。H5C の照射温度は Fig.10 にみられるように全体として照射時間の経過とともに減少しており、最高 1440°C, 最低 1250°C で照射中の平均は 1400°C であった。照射中の温度降下は ^{235}U の燃焼にともなう発熱量減少のほか制御棒配置を含めた炉の燃料の状況にも大きく支配されていると考えられている。

なお、HWL-1 では、H3C, H4C, H5C のキャプセルのほか H6C キャプセルを照射した。このキャプセルの照射目的は H5C の熱遮蔽体を黒鉛からアルミナに変更して保温を良くし、H5C よりさらに高温を達成するためのキャプセル開発にあたり、照射温度として最高 1000°C, 最低 925°C という低い温度をねらったものであったため、結局 H4C と同程度の照射であったので、照射後試験は実施しなかった。

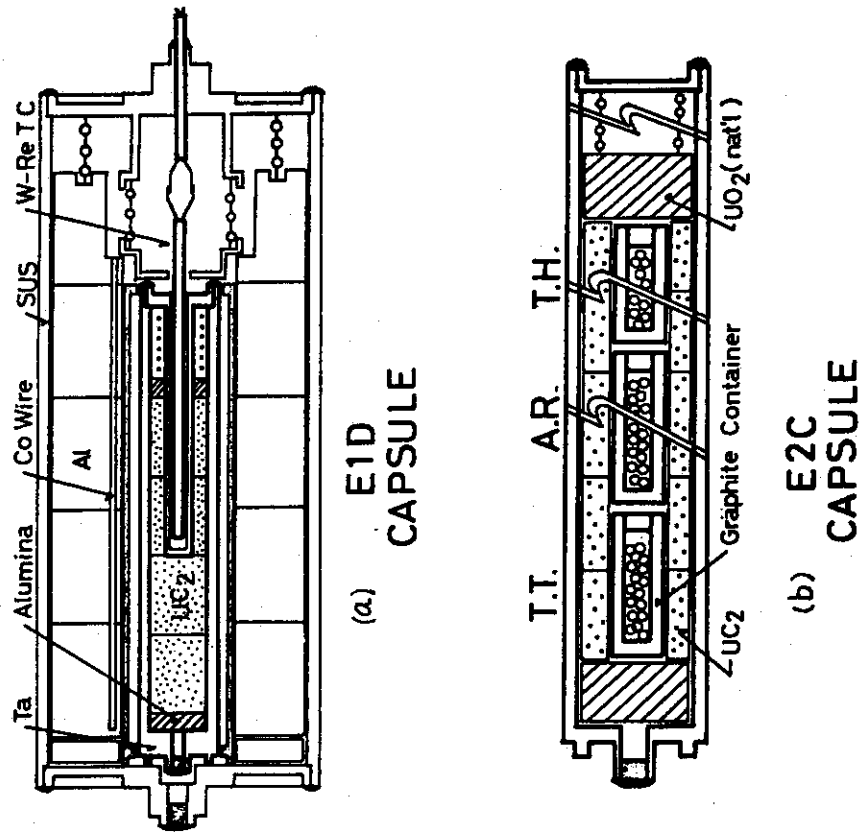


Fig. 5 Irradiation capsules for the EFTL-2 loop

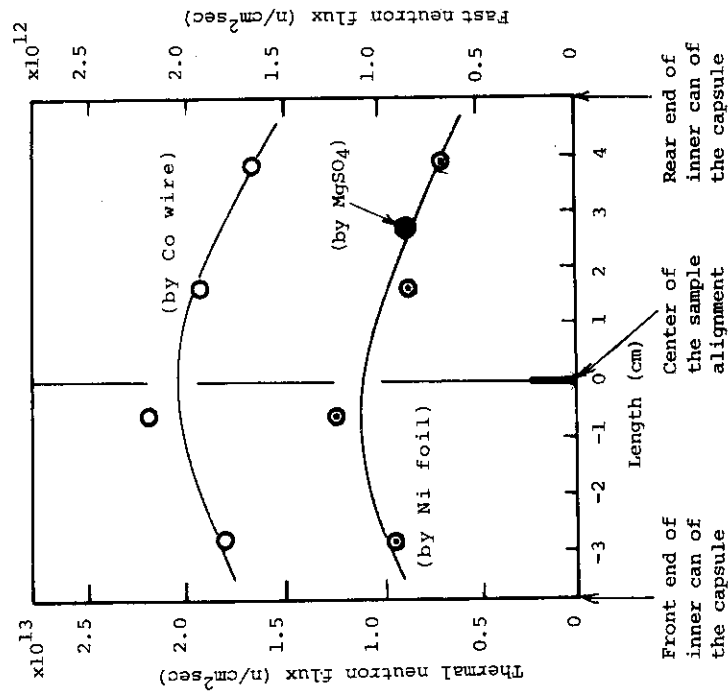


Fig. 4 Neutron distribution in the irradiation capsule of the HWL-1 loop

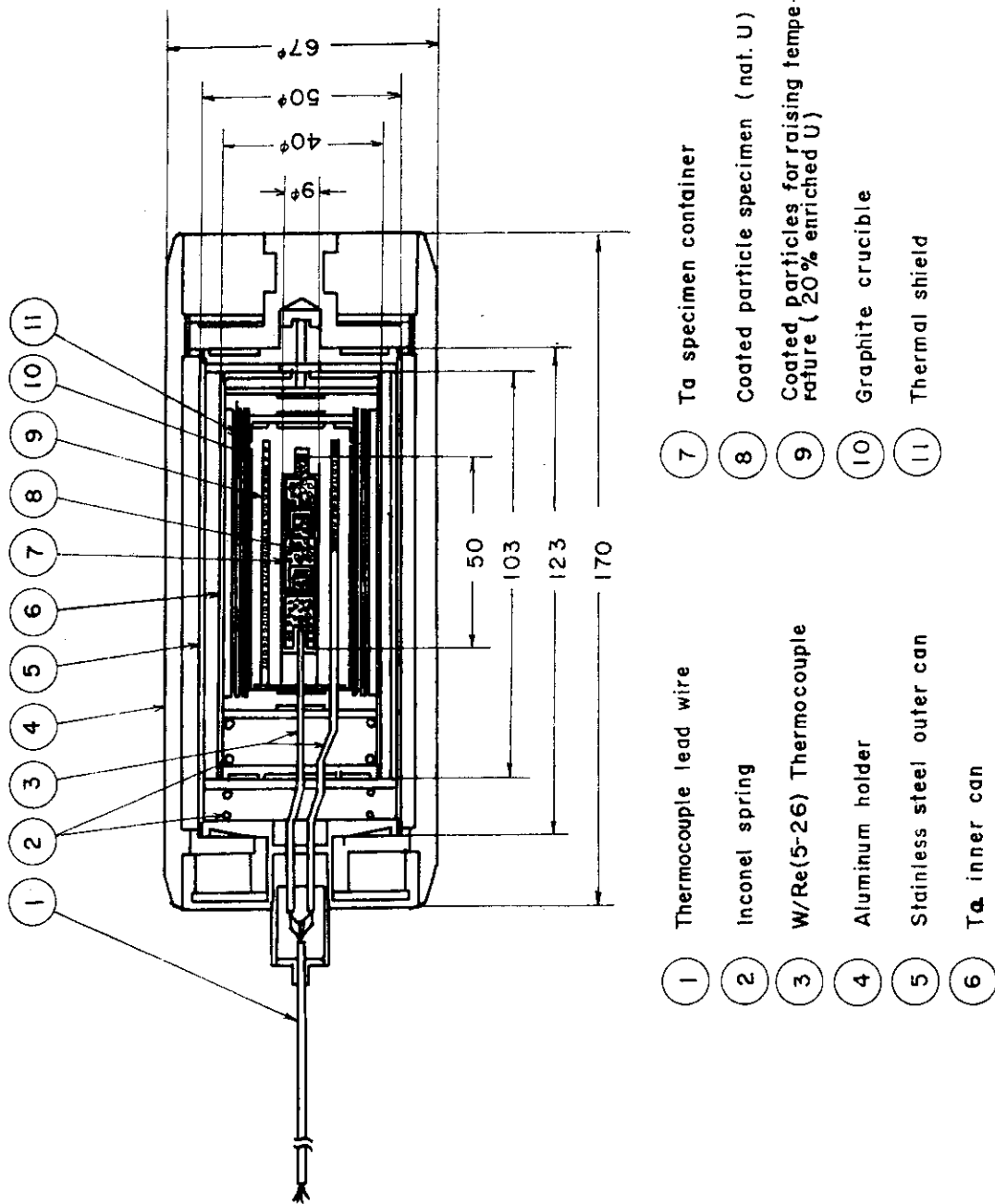
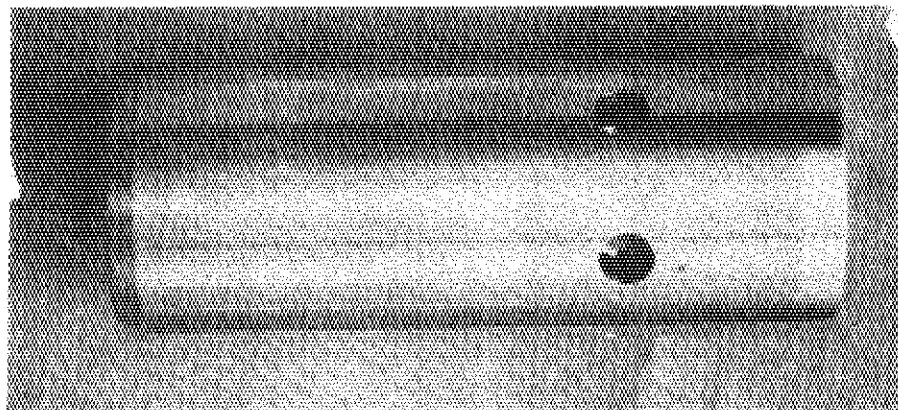
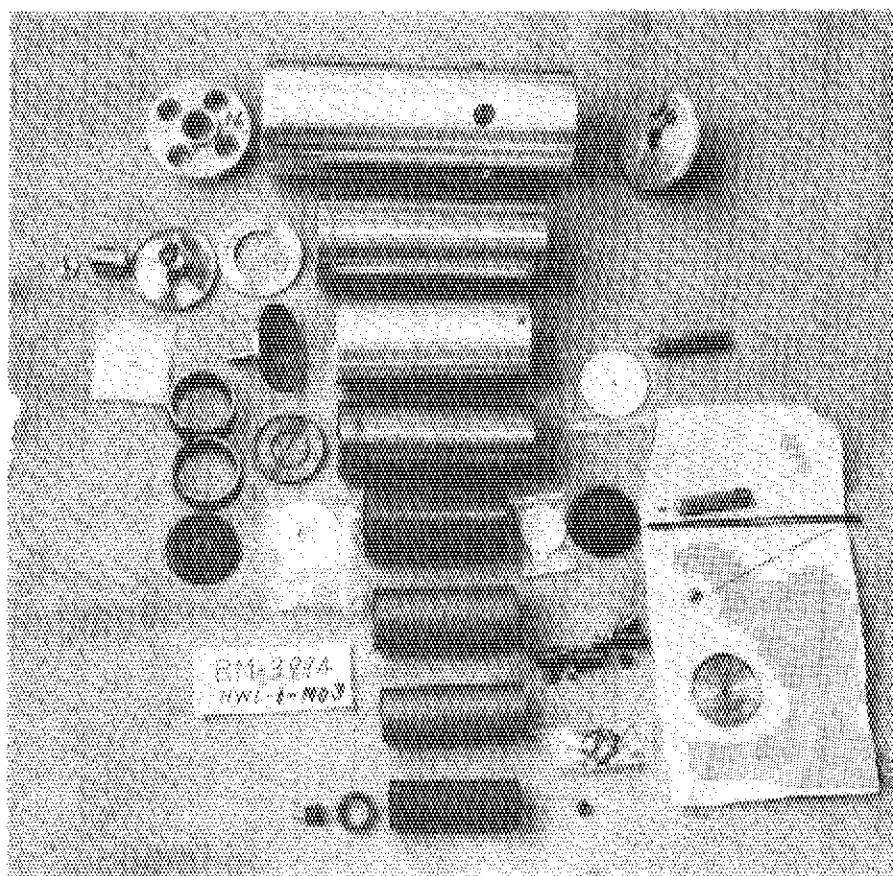


Fig. 6 Irradiation Capsule for HWL-1 Loop



External view of the capsule



Components of the capsule

Fig. 7 Irradiation capsule for the
HWL-1 loop

Table 2 Irradiation histories of the capsules

Loop facility	Capsule	Coated particle samples	Irradiation period (Reactor operation cycles)	Irradiation temperature (°C)			Irradiation time (hr)	Estimated burn-up (MWD/T)
				Max.	Min.	Ave.		
EFTL-2	E1D	None	June 1-13, 1970 (R2-45-03)	1150	950	1050	280	-
	E2C	69FC1AR 69FC1TH 69FC1FT	July 13-25, 1970 (R2-45-05)	1150	950	1050	280	26
	H3C	70FC1 70NC3 70FC2	Mar. 1-13, 1971 (R2-45-12)	600	600	600	280	50
HWL-1	H4C	70FC1 70NC3 70FC2	Mar. 22-Apr. 24 1971 (R2-45-13- R2-46-01)	930	900	910	560	100
	H5C	70FC1 70NC3 70FC2	May 31-July 3, 1971 (R2-46-03- 04)	1440	1250	1400	560	100
	H6C	70FC1 70NC3 70FC2	Jan. 17-29, 1972 (R2-46-11)	1000	925	950	280	50

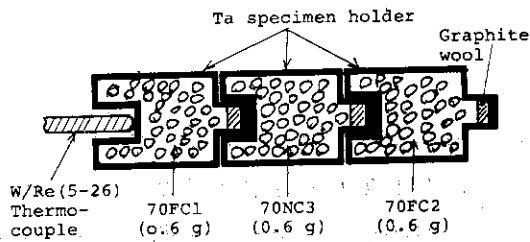


Fig. 8 Arrangement of sample particles in the HWL-1 capsule

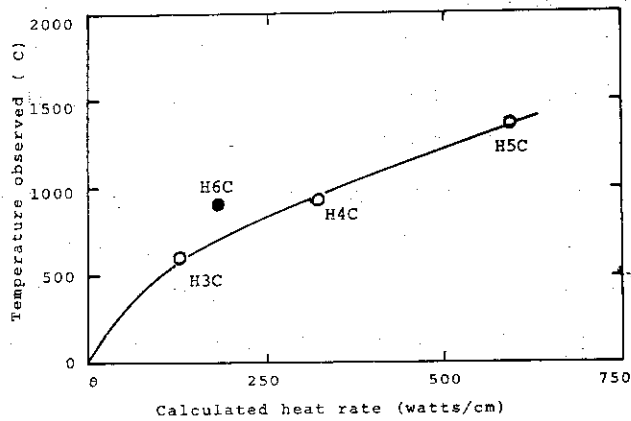


Fig. 9 Relationship between the temperature attained by irradiation and the calculated linear heat rate

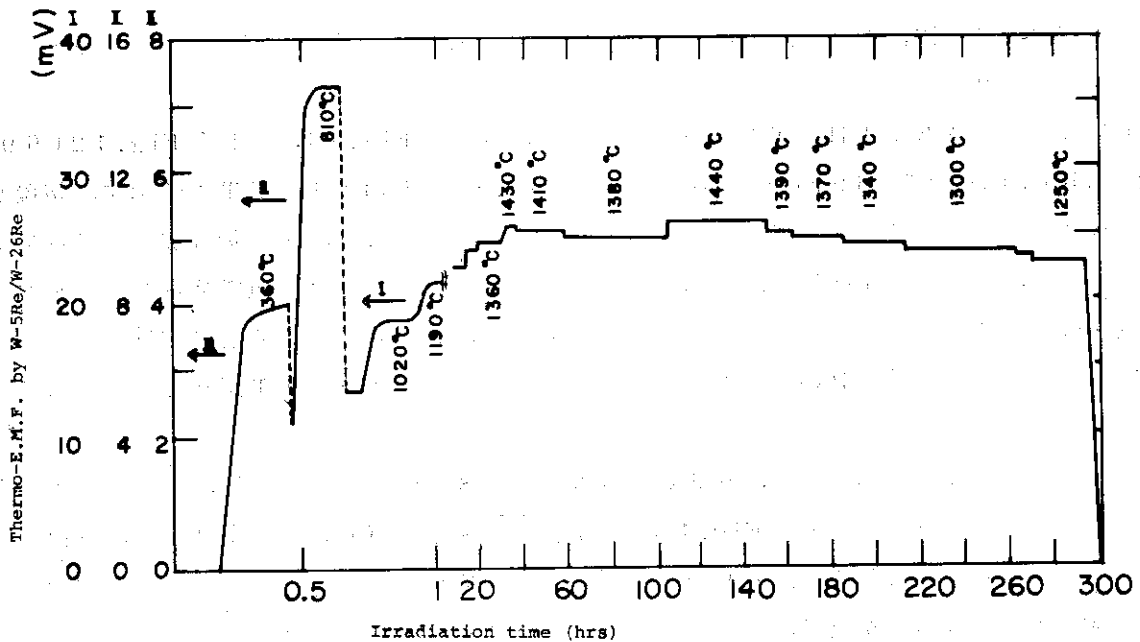


Fig. 10 Temperature change in the H5C capsule during irradiation in the HWL-1 loop

5. 照射後試験

5.1 試験の項目と方法

照射済み試料の照射後試験は東海研ホットラボ管理室に依頼して実施した。被覆粒子試料の試験は初めてのことであったので、EFTL-2試料は試験実施の経験を積むことに主眼がおかれ、HWL-1試料からようやく本格的実施をめざしたが、試験項目の選択や方法はまだ充分とはいえない。

照射済みキャプセルはホットラボに搬入され、解体して試料が取り出された。Table 3 に示した試験項目、すなわち、(1)外観、(2)X線マイクロラジオグラフィー、(3)金相、(4)酸浸出、および(5)燃焼度を選んで○印を付したものについて試験が実施された。燃焼度に関してはE2Cキャプセル分については破壊法による ^{137}Cs 測定により実施されたが、HWL-1照射試料についてはホットラボの方針変更により実施できなかったため後述する非破壊法によって行った。外観、金相については通常の方法で行われた。X線マイクロラジオグラフィーについては、被覆粒子とフィルムとを密着させ、軟X線を照射する方法によって行われた。また、酸浸出については煮沸した8N硝酸に試料粒子を浸漬して浸出されたFPの放射能を測定するに留り、正確なFPの浸出率を求めることはできなかった。ただし、被覆粒子の放射能概数を測定したのでおおよその値は求められた。

なお、照射試料の試験結果と比較するため照射の熱履歴と同じ熱履歴を炉外加熱によって与え、外観と金相とを調べた。

5.2 試験結果と考察

照射後試験の結果は、炉外試験の結果を含めて以下に主に写真によって示されている。

1) EFTL-2照射試料

69FC1粒子のAR, TH, TTの各試料に対し、外観をFig.11, 金相をFig.12(69FC1-AR), Fig.13(69FC1-TH) およびFig.14(69FC1-TT)に示す。被覆層外観組織は照射によって変化していないが、粒子は照射によっても、また炉外加熱によっても破損しており、破損率はTable 4に示されているようになりに大きい値であった。金相写真は外観上破損を認めなかった粒子に対するものであるが、AR試料では照射や炉外加熱によってSiC層が減少し、最外PyC層中にポアが発生している。TH, TT試料では照射による影響は認められない。

外観上健全なAR試料に対して、95°Cの8N硝酸で8時間浸出処理をし、粒子と浸出液の γ 線スペクトルを比較した結果をFig.15に示す。 ^{137}Cs と ^{144}Ce の浸出がみられ、浸出率は 10^{-4} 以下であった。このことはFPが被覆層を拡散して粒子表面に蓄積するような場合を除けば、綿密な被覆層外観検査で、硝酸浸出処理と同程度の被覆破損を検出できることを示唆している。

照射試料の燃焼度は ^{137}Cs の定量から求められ、26MWD/TUが得られた。被覆粒子が微小な球形の核を有することに着目して、燃焼度を非破壊的に測定する方法を試みた。すなわち、

照射済み粒子のX線ラジオグラフをとり、燃料核直径を求め、核製造時に求めた密度から核中のU量を計算する。一方、同じ粒子の γ 線スペクトロメトリーから核種存在量を求める。両者から燃焼度が求められる。たとえば、Fig.16に示した粒子とフィルムを密着させてとったX線ラジオグラフから核の平均直径として、 $6.86 \times 10^{-2} \text{ cm}$ を得、密度値 10.33 g/cm^3 を用い、結局燃焼度として 24 MWD/TU が得られた。この値は上記の 26 MWD/TU に近く、有望であることが判明した。なお、 γ 線スペクトロメトリーによる核種同定については、原研原子炉工学部原子炉計測研究室の協力を得た。

2) HWL-1照射試料(H3C, H4C キャプセルによる930°C以下の照射)

H3CとH4Cキャプセル照射試料に対しては、外観、X線ラジオグラフィ、酸浸出の3試験を行なった。これらの試料の照射温度は930°C以下であり、外観組織には異常は認められなかったが、X線ラジオグラフィ検査(Fig.17)ではTable 5に示すように少量の破損粒子が認められた。酸浸出は、X線ラジオグラフィを終えた粒子をアセトンで洗滌した後、100mlのメスフラスコに入った8N硝酸70mlで1時間煮沸する方法で行なわれた(照射後約1年経過)。酸浸出前の試料と浸出液全量とをほぼ同じ距離からGMサーベーターで計測した。この結果をTable 5に示す。この表から粒子の破損率は600°Cで照射したH3Cキャプセル試料で0.1~0.2%、910°Cで照射したH4Cキャプセル試料で0.6~2%であったことが推定され、温度が高くなると破損率が大きくなっている。また、H4C試料で三重被覆の70FC1が四重被覆の70NC3や70FC2より破損しやすいことを示している。粒子および浸出液に対する γ 線スペクトルをFig.18に示す。浸出液中には ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 、 ^{137}Cs などのピークは認められない。なお、Ta製試料容器に粒子試料をTa溶接により封入するさいの高温化による粒子への影響がなかったことは外観、X線ラジオグラフィ検査の結果から明らかである。

3) HWL-1照射試料(H5C キャプセルによる1400°C照射)

H5Cキャプセル試料は最高1440°C、最低1250°C、平均1400°Cで2原子炉サイクル照射された後、外観、X線ラジオグラフィ、金相、酸浸出の照射後試験が実施された。

Ta試料容器3個のうち1個(Fig.8で熱電対が挿入してある70FC1試料用)はFig.19に示すように、容器が破損した。また、他の2個は表面の変色がみられた。この原因を調べるため、Ta棒と燃料粒子とを接触させた状態でHe雰囲気中に置き1400°Cで500時間の加熱を行なったところ、Taと粒子の間の反応が肉眼で観察された。したがって上の容器の破損もTaと粒子の被覆層炭素との反応によるもので、照射前には容器と粒子との反応は見られなかったことから照射中に生じたものであることが結論される。

外観検査結果を炉外加熱結果と併せてFig.20に示す。70FC1、70NC3、70FC2いずれの試料もその外観は著しく損なわれており、破損しているもの、Taとの反応生成物と思われる析出物のあるものなどもみられた。これは上に述べたTa容器と最外被覆層炭素との反応に起因するとみられる。

X線ラジオグラフィ検査の結果をFig.21に示す。予想された通り、破損層の破損が著しいことがわかる。金相検査は、外観上破損が認められない粒子を選んで実施された。その結果をFig.22、Fig.23、Fig.24に、照射前と炉外加熱との結果と併せて示している。試料の研

磨方法はすべて同じであるが、照射した粒子では被覆層がもろくなり、研磨中に逸散したのもあった。照射前、炉外加熱の結果と照射結果との比較から次のことがわかる。

- (イ) 照射粒子の被覆層の各層の境界が不明瞭となっている。
- (ロ) 最外層と70FC2の第2層のいずれも高密度炭素層のポアの数と大きさが照射により増大している。
- (ハ) SiC層は照射により厚さが減少しているほか、ポアの発生が見られ、外側表面の凹凸が照射によりはげしくなっている。この度合は70FC1>70FC2>70NC3の順に大きい。さらに70FC1ではSiC層が局部的に半月状に侵食されている。
- (ニ) TRISO-I型の70FC1では第1層の低密度炭素層に白色にみえる析出物がある。

被覆層にみられたこれらのポア発生、厚さの減少（もろくなることと対応）、侵食、析出物発生などの劣化が70FC1>70FC2>70NC3の順に起りやすかったことは、国産の被覆技術が西独のそれに劣ることを示すととも、1400°Cで西独製の70NC3にもみられたことは多目的高温ガス炉燃料の開発にあたって被覆粒子の耐熱性を充分改良しなければならないことを示している。これらのうちポア発生については燃料核の存在の有無にかかわらず、被覆層内に発生したものと考えられる。照射前のSiC層断面のSEM写真がFig.25に示されているが、70FC2には層内にポアが多くみられるのに反し、70NC3にはポアは少ない。1400°Cでの照射によるポアの発生は、70FC2の方が70NC3より多かったが、これは照射前の状態と関連があるものと思われる。なお、ポアの発生については、SiC中の遊離Si量と大きな関連があることや遊離SiがUC₂核との両立性を損なうことが、炉外加熱実験によって知られており²⁾、上の照射後試験の結果もこのことを裏づけている。

また、厚さの減少は、被覆層にポアが発生しもろくなっており、研磨中に剝離したことによると考えられる。

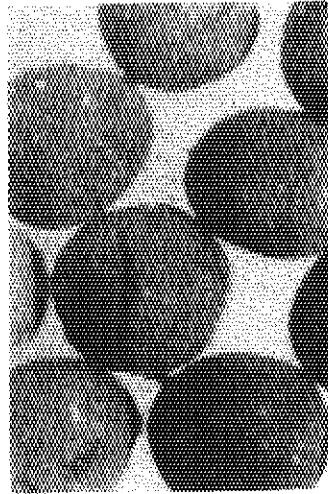
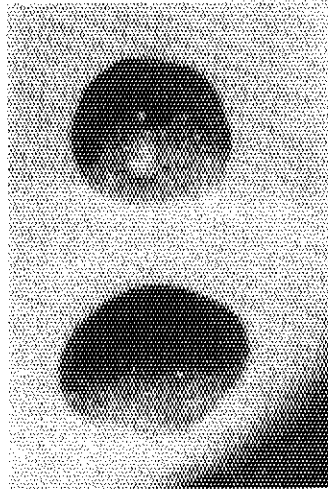
なお、酸浸出試験は粒子の破損が著しかったので中止した。

Table 3 Postirradiation examination items of the irradiated coated-fuel-particles

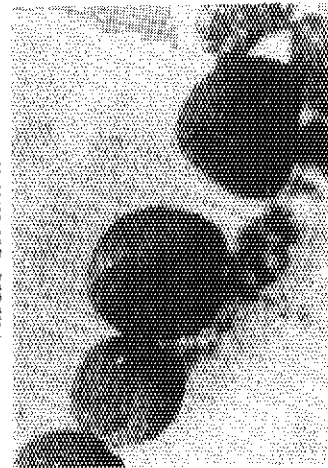
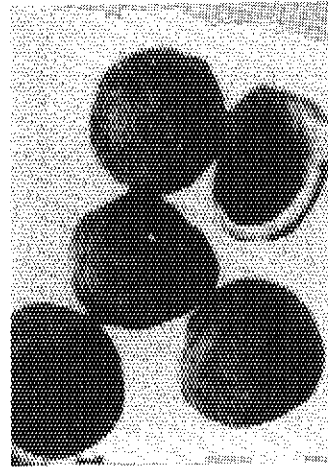
Capsule	Coated particle samples	No. of particles irradiated	Postirradiation examination items*					Remarks
			External view	X-ray radiography	Metallography	Acid leach	Burn up	
E2C	69FC1AR	220	o	--	o	o	o	
	69FC1TH	75	o	--	o	--	--	
	69FC1TT	30	o	--	o	--	--	
H3C	70FC1	850	o	o	--	o	--	
	70NC3	850	o	o	--	o	--	
	70FC2	850	o	o	--	o	--	
H4C	70FC1	850	o	o	--	o	--	
	70NC3	850	o	o	--	o	--	
	70FC2	850	o	o	--	o	--	
H5C	70FC1	850	o	o	o	--	--	
	70NC3	850	o	o	o	--	--	
	70FC2	850	o	o	o	--	--	
H6C	70FC1	850	--	--	--	--	--	PIE was cancelled
	70NC3	850	--	--	--	--	--	
	70FC2	850	--	--	--	--	--	

* Each item marked o was done.

69FC1TT



69FC1TH



69FC1AR

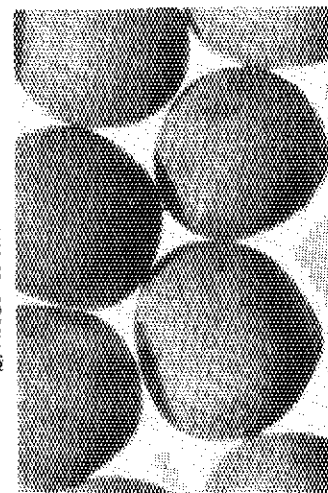
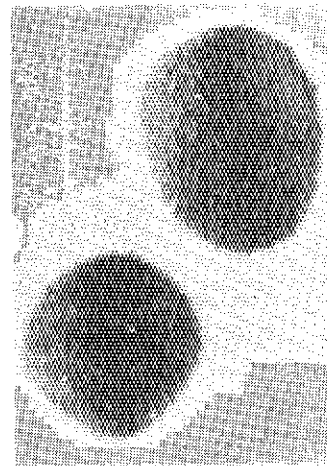
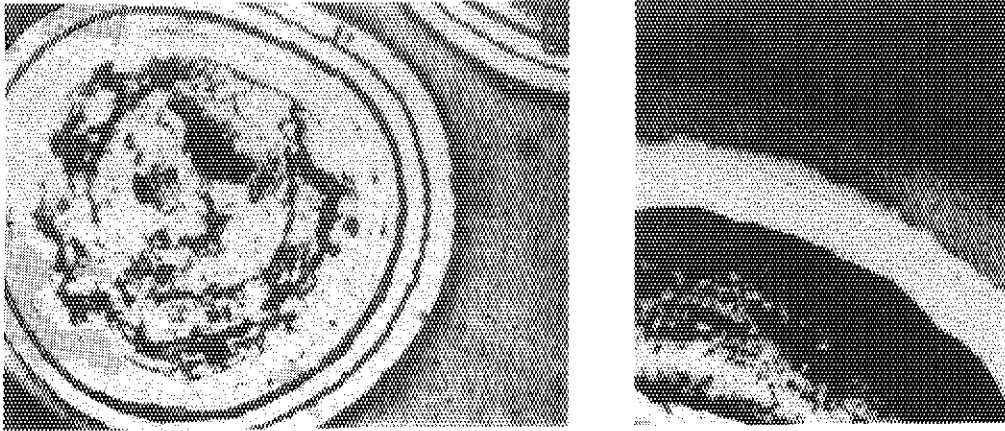
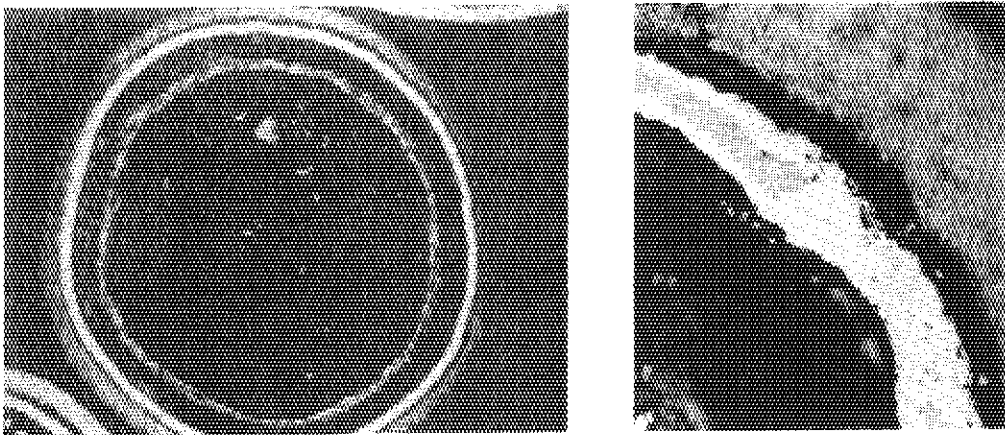


Fig. 11 External views of the 69FC4 samples before and after irradiation by E2C capsule

1. Before irradiation



2. After irradiation



3. After out-of-pile heating

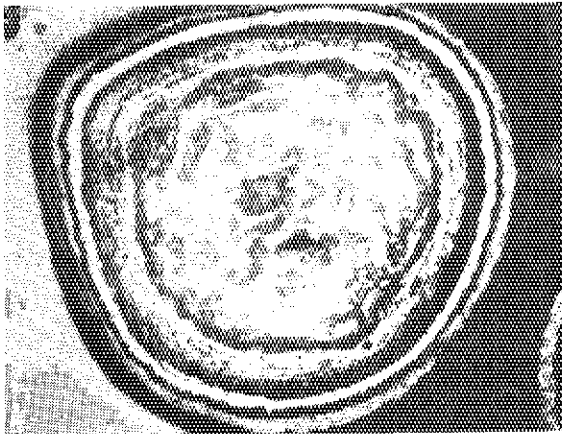
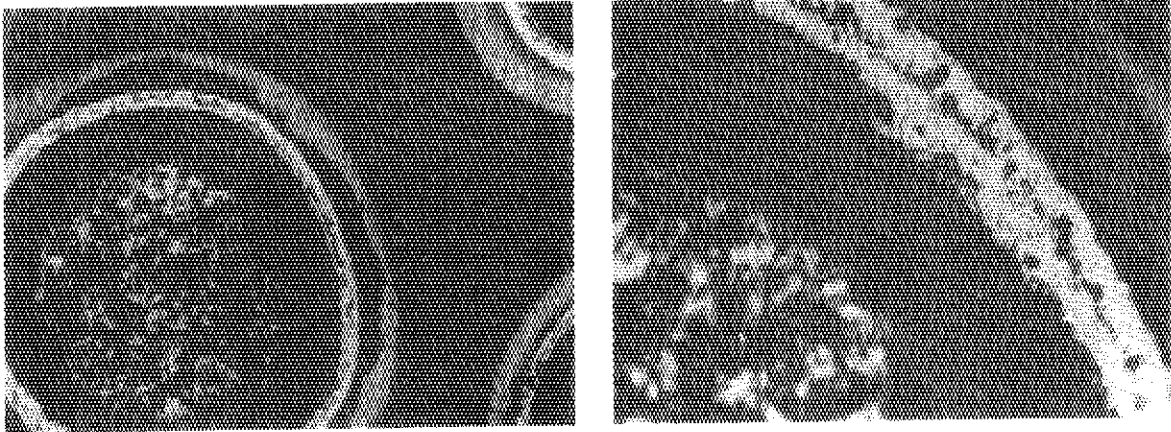


Fig. 12 Sectional views of the $^{69}\text{FClAR}$ sample before and after irradiation by E2C capsule

1. After irradiation



2. After out-of-pile heating

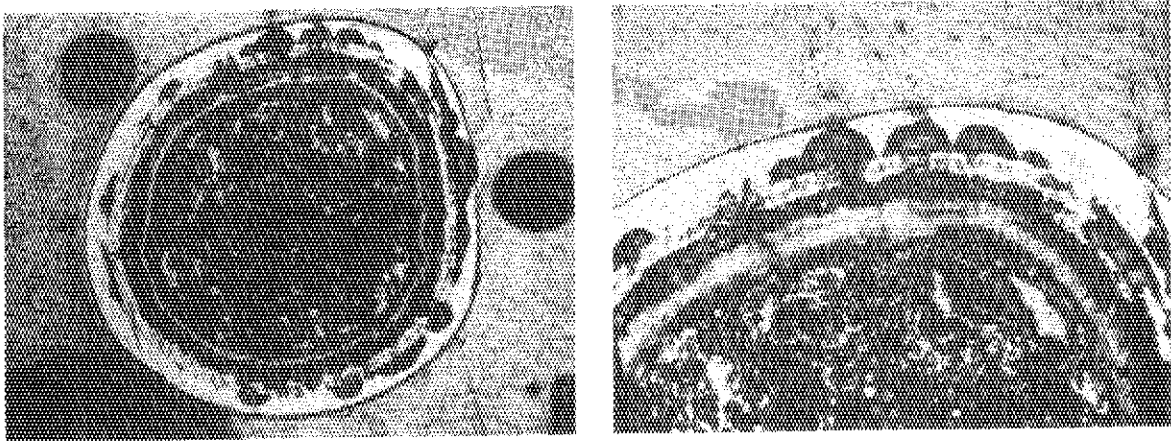
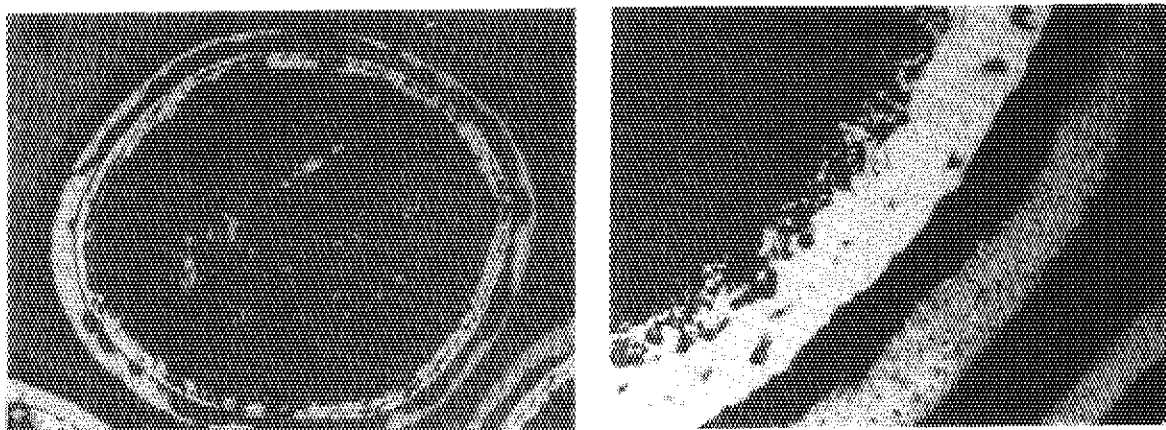
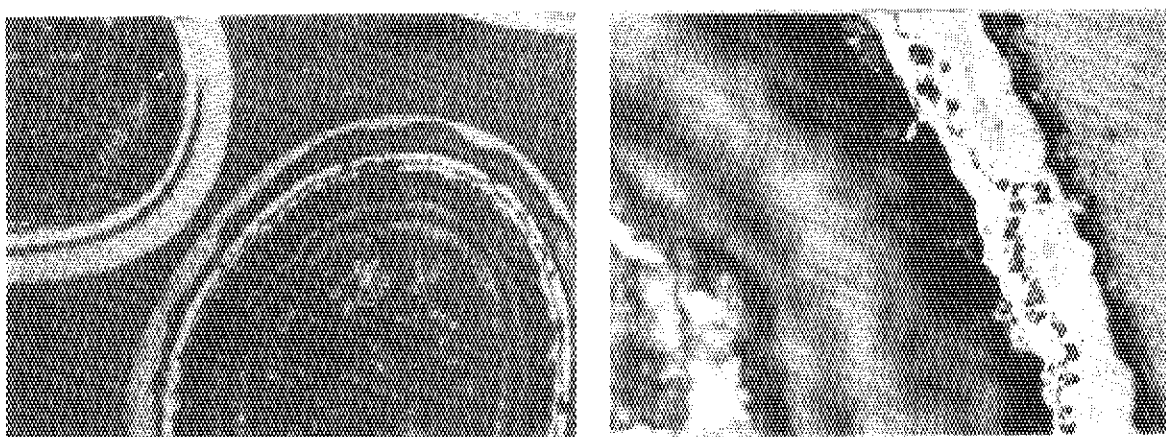


Fig. 13 Sectional views of the 69FC1TH sample before and after irradiation by E2C capsule

1. Before irradiation



2. After irradiation



3. After out-of-pile heating

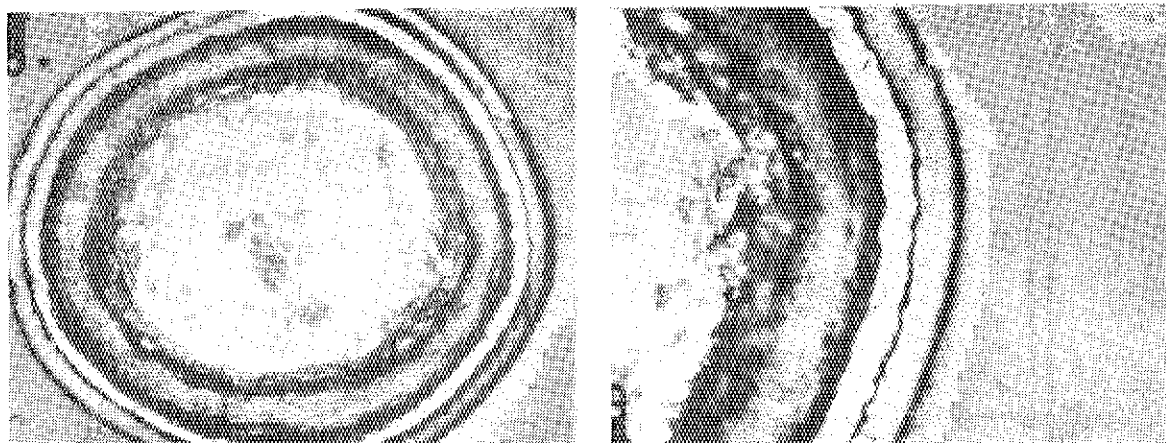


Fig. 14 Sectional views of the 69FClTT sample before and after irradiation by E2C capsule

Table 4 Percentage of ruptured particles
in the 69FC1 samples

Sample particles	After irradiation by E2C capsule at 1050°C	After out-of-pile heating at the same temperature as irradiation
69FC1AR	< 18	0.3
69FC1TH	< 40	100
69FC1TT	< 56	10

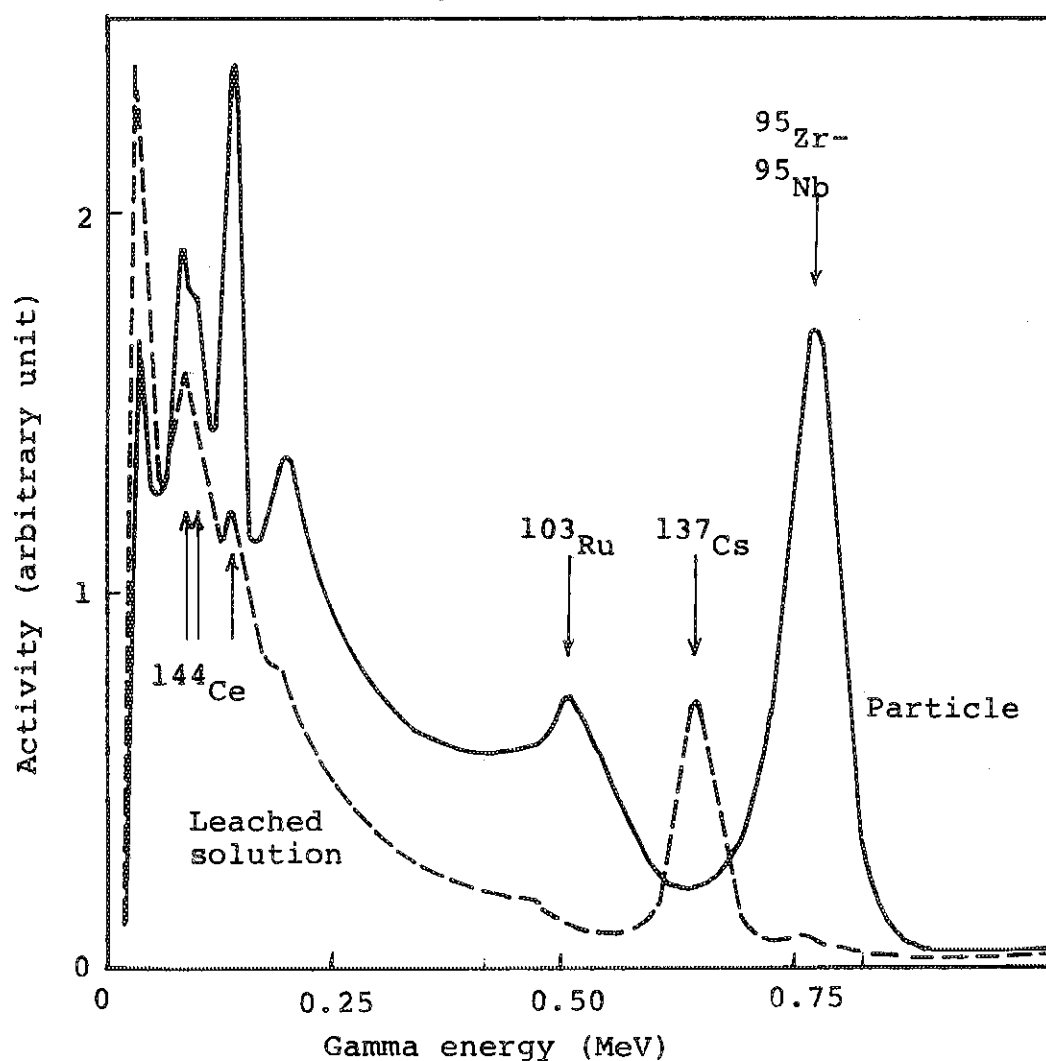


Fig. 15 Comparison of the gamma spectra before and after the nitric-acid leach of the 69FC1AR sample irradiated by E2C capsule

Table 5 Results of postirradiation examination for coated particles irradiated by H3C and H4C capsules

Capsule	Sample article	No. of particles examined	No. of ruptured particles*	Surface dose of examined particles (mR/h)	Surface dose of leached solution (mR/h)	Rupture fraction	Acid-leach fraction
H3C	70FC1	181	---**	50	0.05	--	0.001
	70NC3	192	--	50	0.05	--	0.001
	70FC2	184	1	50	0.1	0.005	0.002
H4C	70FC1	150	--	50	1.0	--	0.02
	70NC3	96	--	50	0.5	--	0.01
	70FC2	145	1	50	0.3	0.007	0.006

* Obtained by X-ray microradiography

** Unobtainable

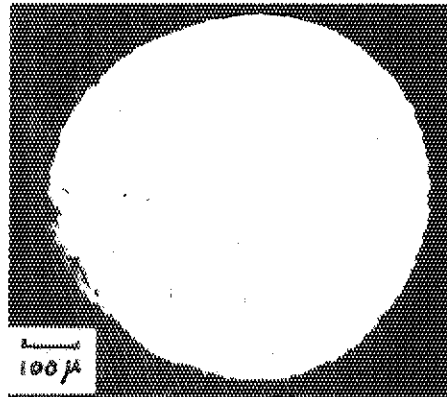
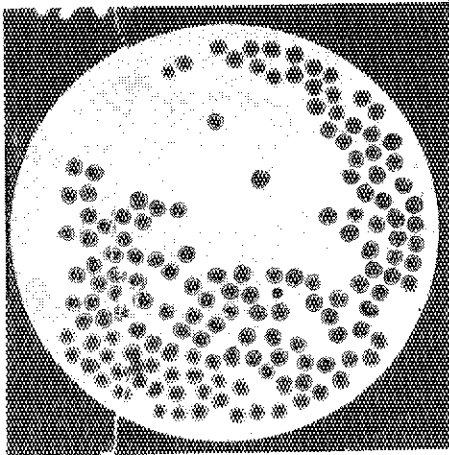


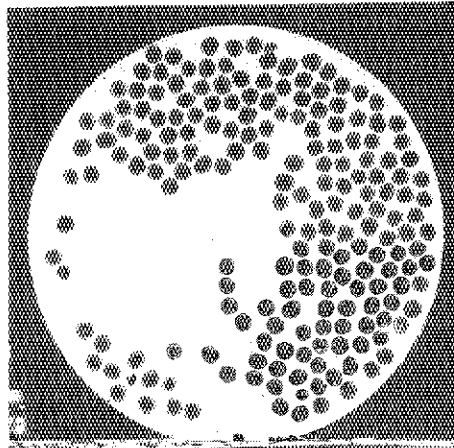
Fig. 16 Contact X-ray microradiographs of the 69FC1AR sample irradiated by E2C capsule

1. Irradiated by H4C capsule

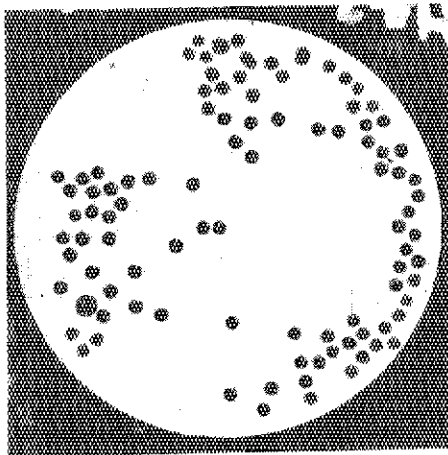
2. Irradiated by H3C capsule



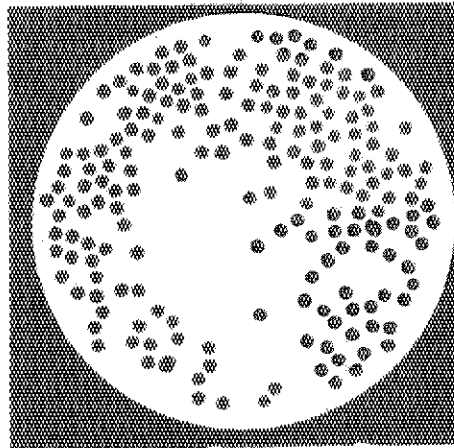
70FC1



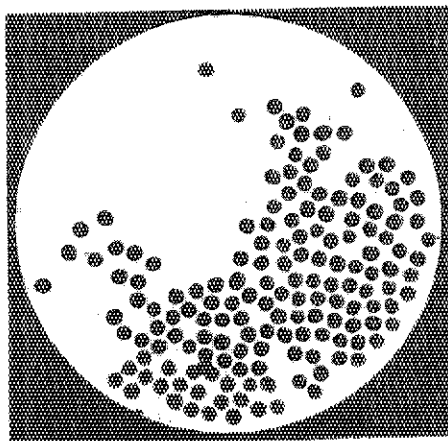
70FC1



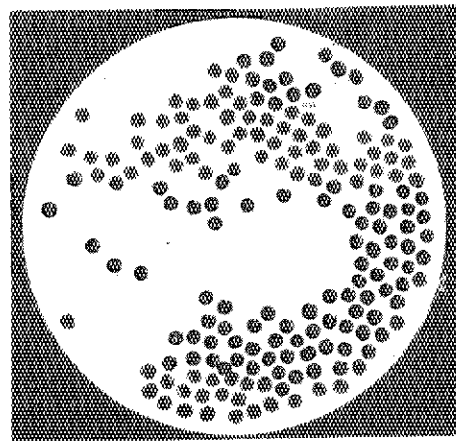
70NC3



70NC3



70FC2



70FC2

Fig. 17 Contact X-ray microradiographs of the coated particle samples irradiated by H4C and H3C capsules

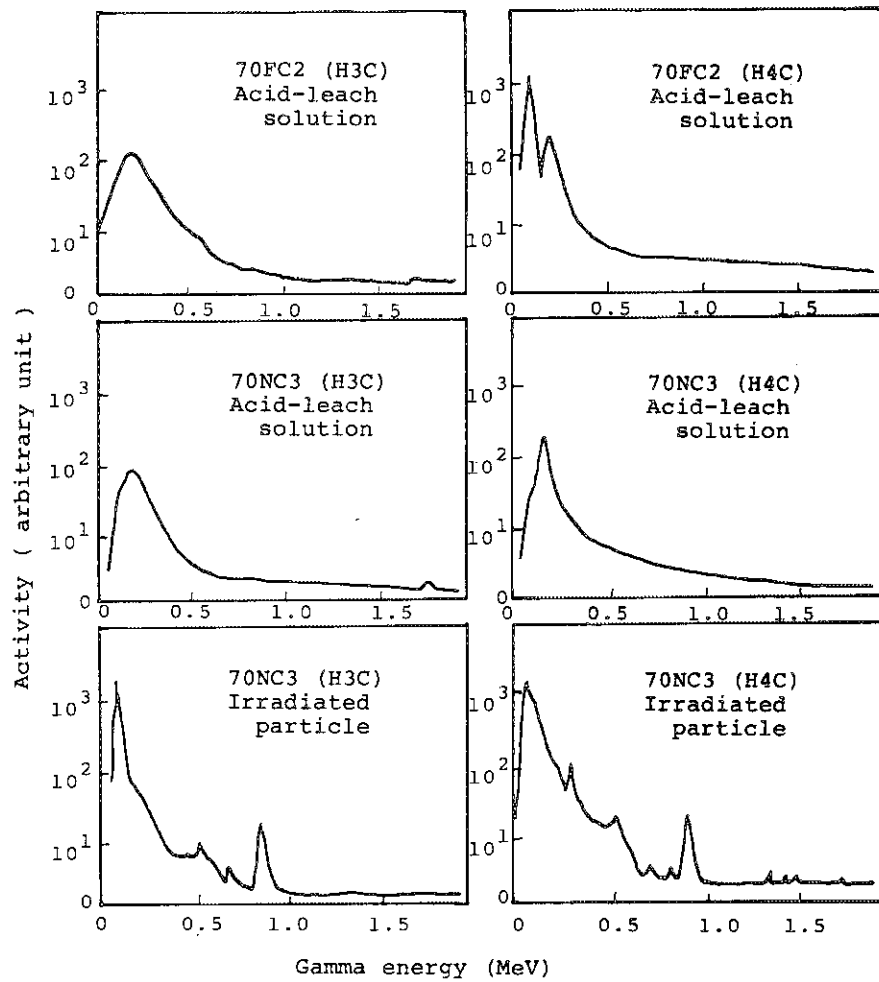


Fig. 18 Comparison of the Gamma spectra before and after nitric-acid leach of the coated particles irradiated by H3C and H4C capsules

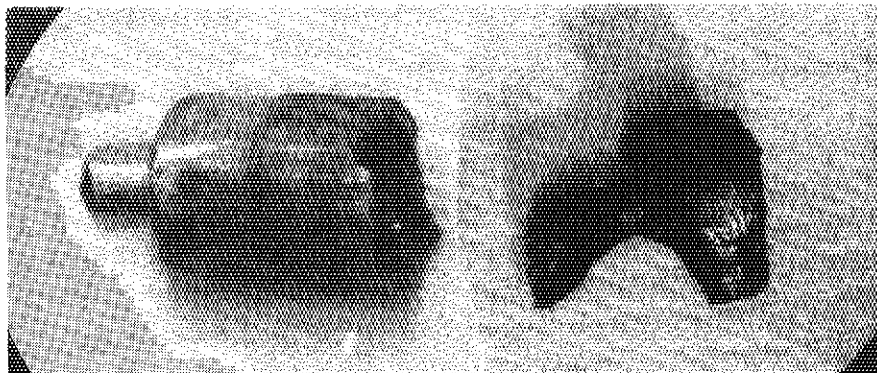


Fig. 19 External view of the tantalum specimen holder for the coated particle sample used in H5C capsule (Thermocouple was inserted to the right-hand side portion of the holder)

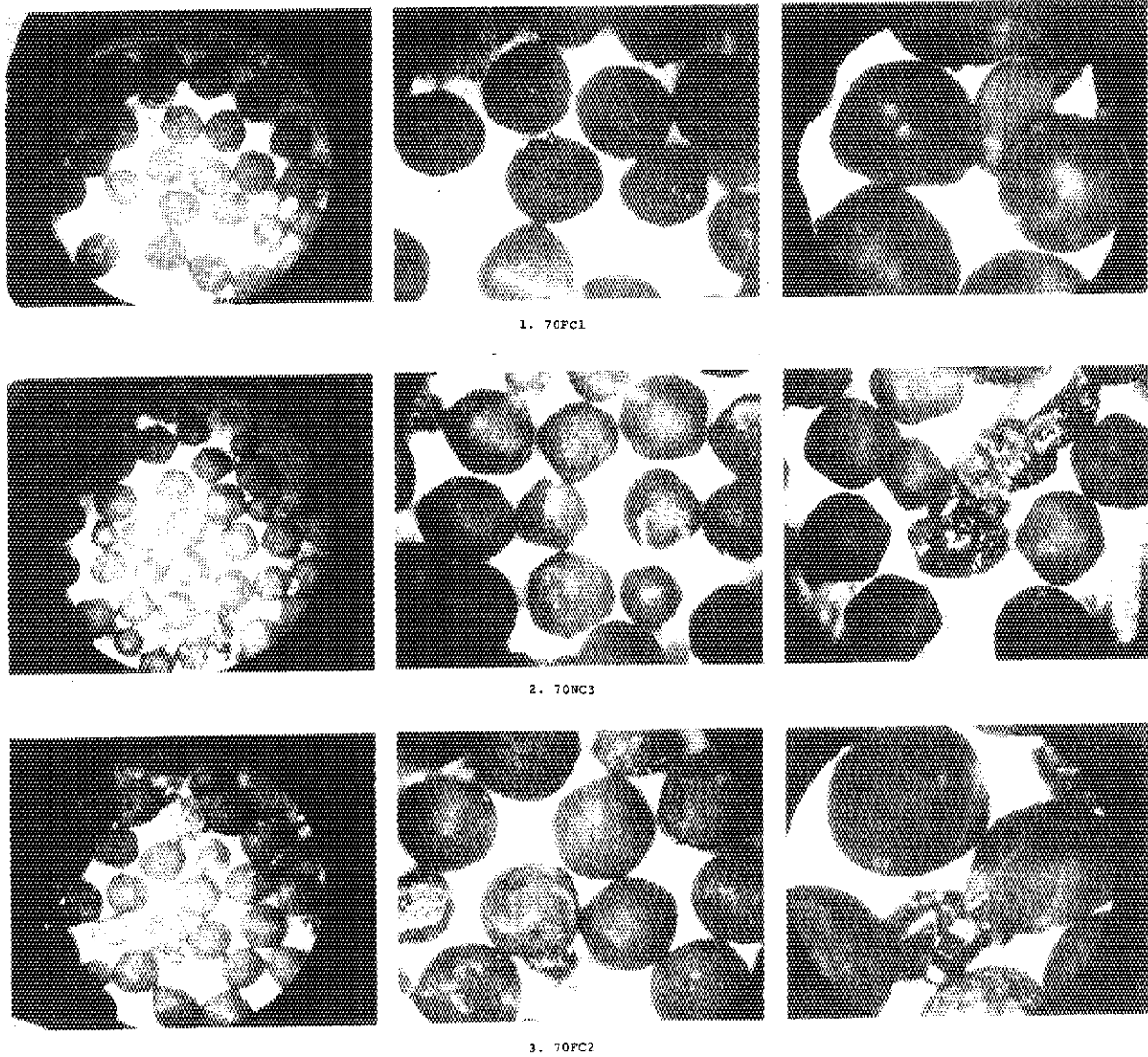
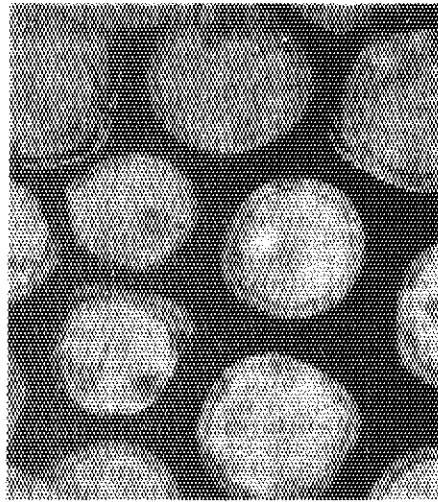
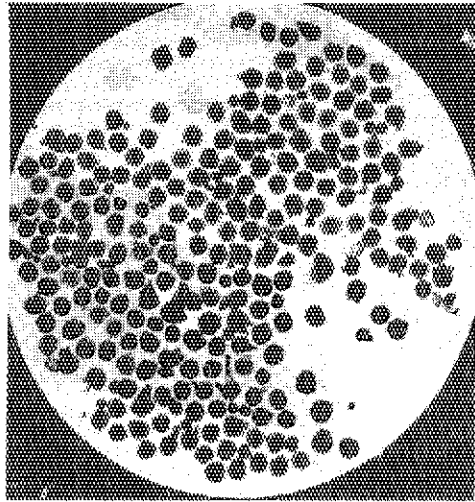
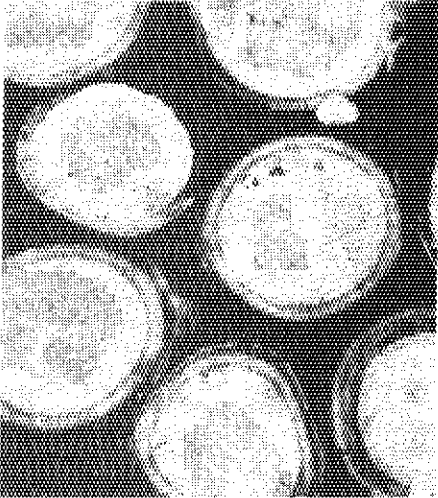
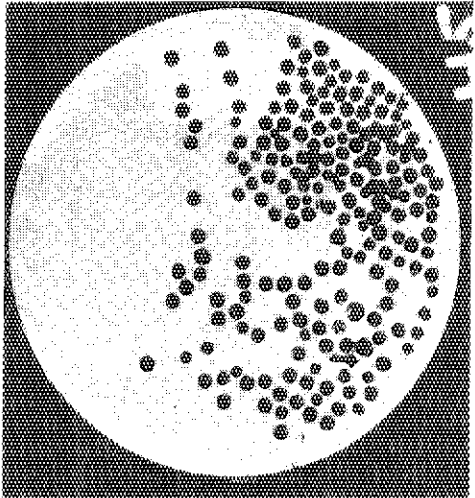


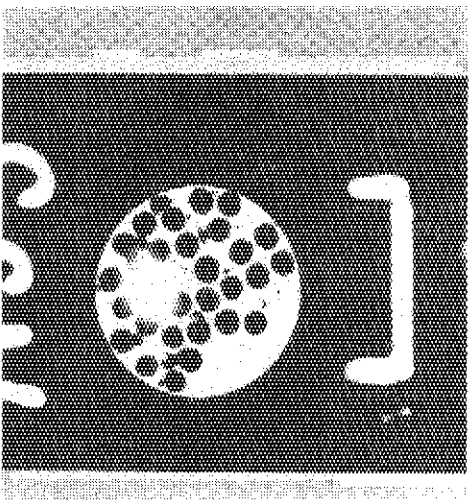
Fig. 20 External views of the coated fuel particles irradiated by HSC capsule



70FC2

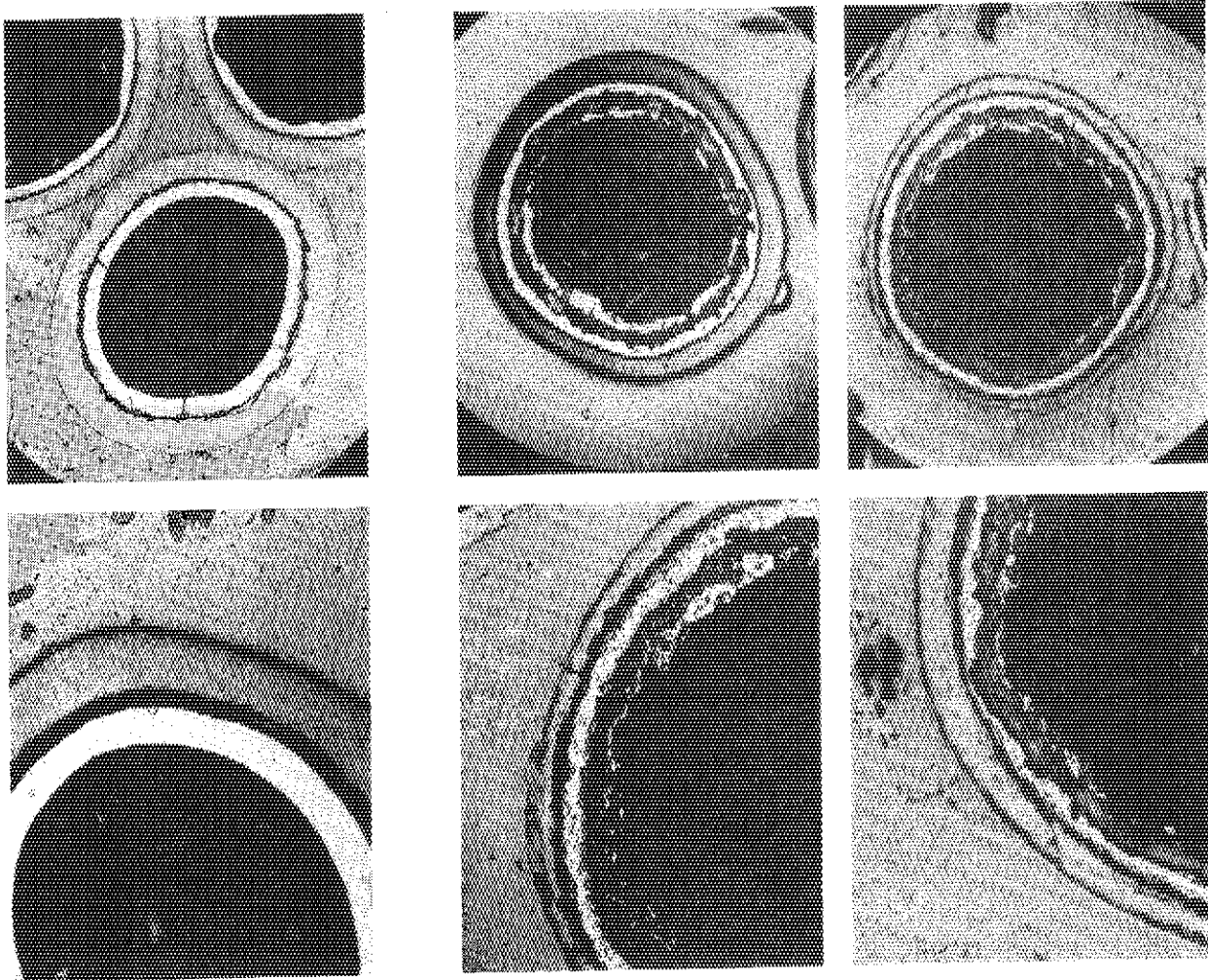


70NC3



70FC1

Fig. 21 Contact X-ray microradiographs of the coated fuel particles irradiated by H5C capsule

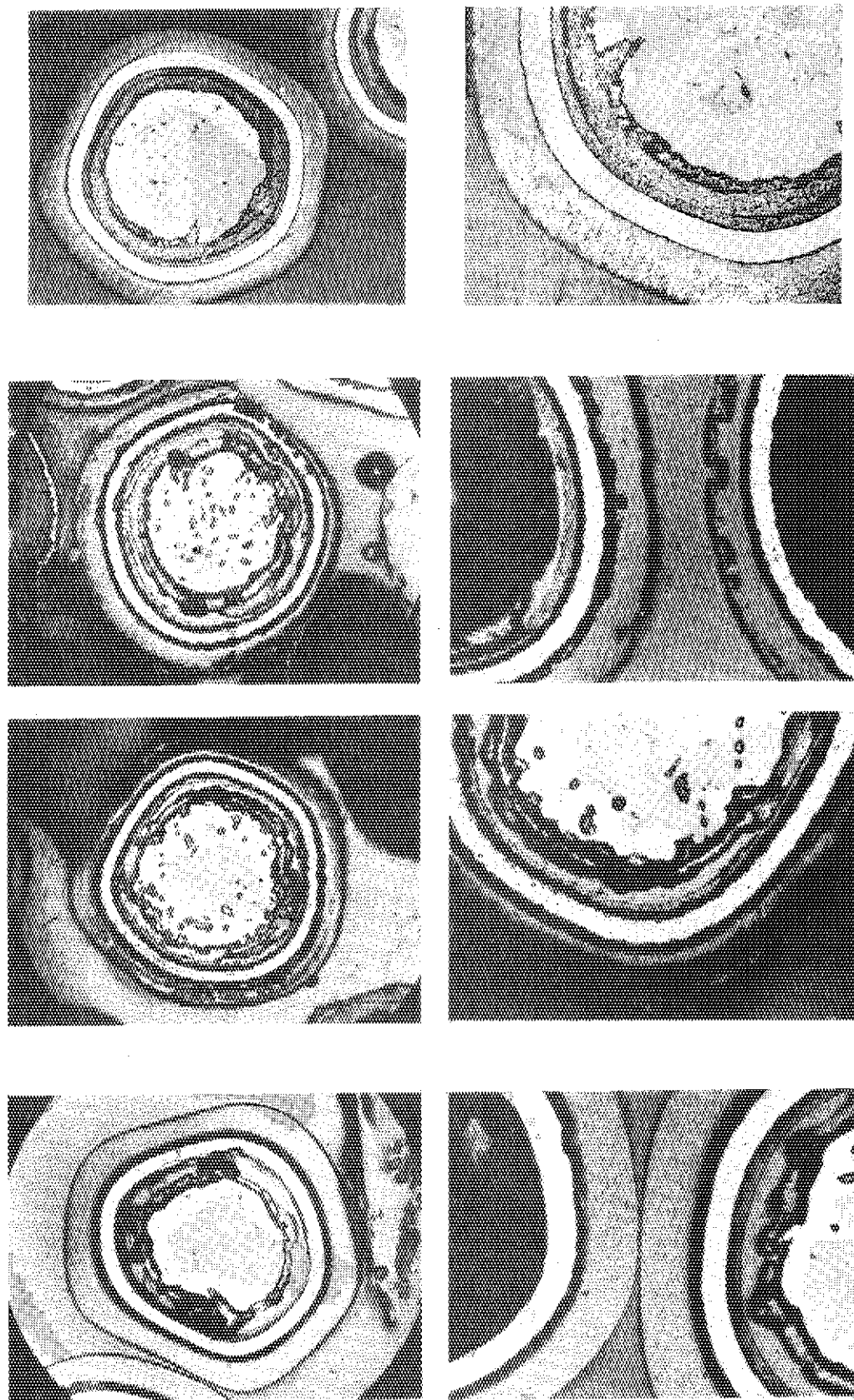


1. As recieved

2. After irradiation at 1400°C by H5C capsule

Fig. 22

Comparison of the sectional views of the 70FC1 samples irradiated at 1400°C by H5C capsule with non-irradiated samples

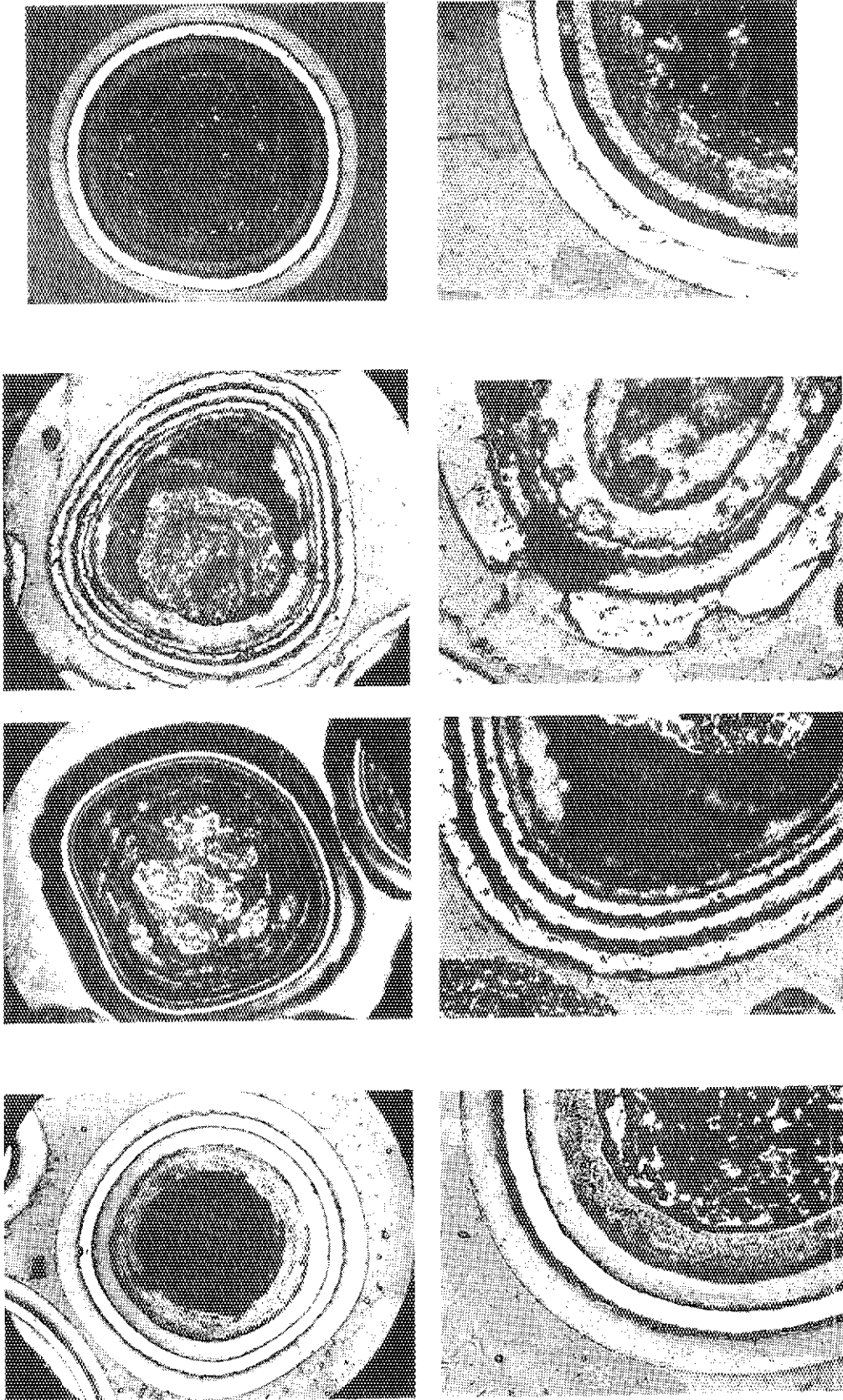


3. After out-of-pile heating

2. After irradiation at 1400°C by H5C capsule

1. As received

Fig. 23 Comparison of the sectional views of the 70NC3 samples irradiated at 1400°C by H5C capsule with non-irradiated samples

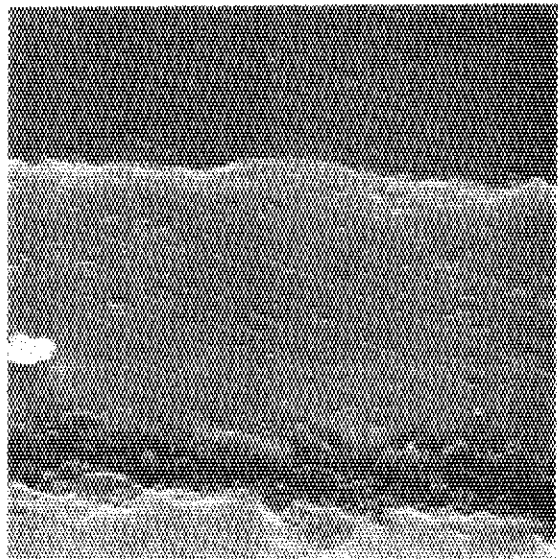
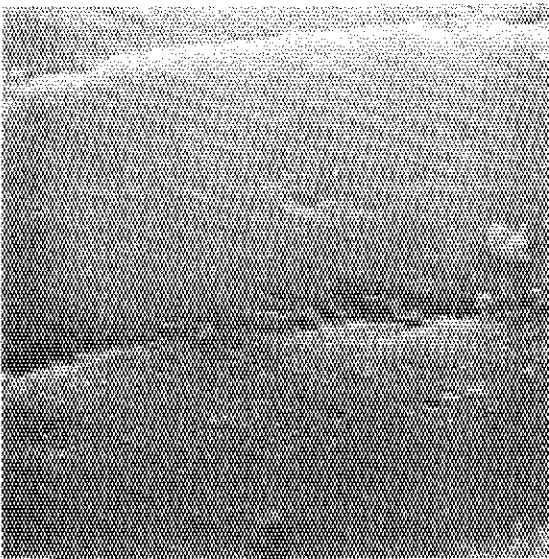
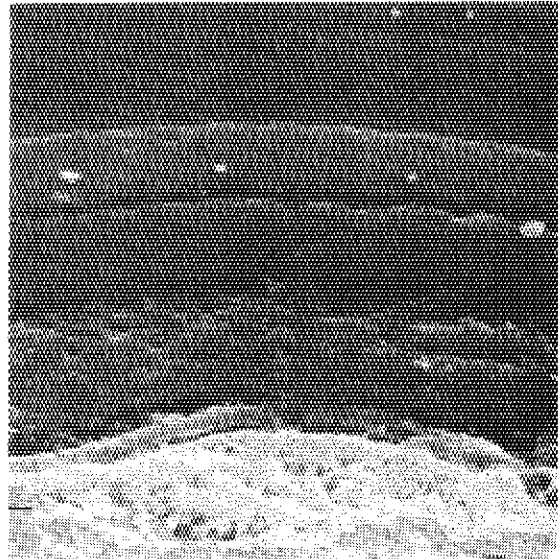
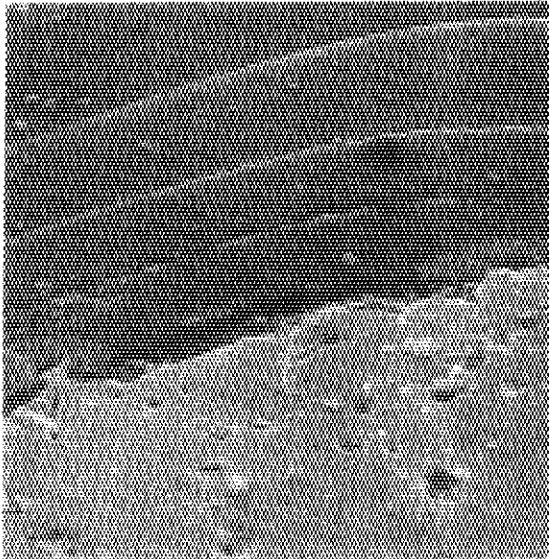


3. After out-of-pile heating

2. After irradiation at 1400°C by H5C capsule

Fig. 24 Comparison of the sectional views of the 70FC2 samples irradiated at 1400°C by H5C capsule with non-irradiated samples

1. As received



1. 70NC3

2. 70FC2

Fig. 25 Scanning electron micrographs of the section of the as-received 70NC3 and 70FC2 samples

6. ま と め

JRR-2に設置されたEFTL-2及びHWL-1の2つの水ループ照射装置によって44年度と45年度に試作した天然ウラン UO_2 核をもつ被覆燃料粒子の照射挙動試験が行なわれ、それらのループによる照射研究の終了をみたので、その結果をまとめた。それらのループによる被覆粒子の照射と照射後試験は、ともに原研にとって初めての経験であり、高温ガス炉燃料の照射挙動研究の推進に一つの礎が築かれ、以後の研究推進に大いに役立っているほか、照射量は微々たるものであったが、国産と西独製の被覆粒子試料に対する照射挙動の評価として、次の事柄が判明した。

(1) 1400°C照射によってSiC被覆層に、ポアの発生や厚さの減少がみられた。このようなSiC層の劣化は国産品と西独製品ともにみられたが、国産品の方が著しかった。西独製品が一応先進国の技術によって造られた試料であることと、燃焼度が100MWD/T程度で、照射期間が23日程度に過ぎないことを考え合わせると、SiC層をもつ被覆粒子が1400°Cでの使用に耐えるようにするには、特にSiC層の耐熱性を十分に改良する必要がある。

(2) 国産粒子の高密度炭素層は、照射によってポアの数と大きさが増大した。

(3) 低密度炭素、SiC、高密度炭素からなる三重被覆を有するTRISO-I型被覆粒子の被覆層の劣化は、低密度炭素、高密度炭素、SiC、高密度炭素からなる四重被覆を有するTRISO-II型被覆粒子よりも著しかった。このことは、炉外試験でも認められており、TRISO-II型粒子の方が被覆層劣化を低く抑えることができ、燃料粒子としての使用上からも好ましいと思われる。

なお、被覆燃料粒子の高温照射挙動の研究は、このループ照射研究に引続いて、JRR-2のVT-1孔や円筒燃料孔を利用して、あるいは、JMTRを利用して粒子のみならず燃料コンパクトを含めて発展的に進められており、高温ガス炉燃料の研究開発の一翼をになっている。

謝 辞

水ループ照射装置の運転については著者らが所属する燃料工学部燃料照射研究室の諸兄の協力を賜った。また、照射後試験については研究炉管理部ホットラボ管理室に依頼して実施された。関係各位に深く感謝の意を表する。さらに、本研究の実施について激励を賜った前燃料工学部長、現企画室長石原健彦氏ならびに燃料工学部長野村末雄氏に謝意を表する。

引用文献

- 1) ASTM E261-65T, E262-65T, E264-65T, E264-65T
- 2) K. Fukuda, S. Kashimura, T. Tobita, K. Iwamoto, J. Nucl. Sci. Technol., 10 640(1973).