

JAERI-M

6717

被覆燃料粒子の照射挙動試験(II)

(71F-7A キャプセルによるJMTR照射)

1976年9月

岩本 多実・福田 幸朔・鹿志村 悟・菊地 章

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、複製などのお問合せは、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.

被覆燃料粒子の照射挙動試験 (II)  
(71F-7A キャプセルによるJMTR照射)

日本原子力研究所 東海研究所 燃料工学部  
岩本多実・福田幸朔・鹿志村悟・菊地 章\*  
(1976年8月25日 受理)

多目的高温ガス実験炉用に開発を進めているUO<sub>2</sub>核 TRISO被覆粒子の照射試験がJMTR反射体領域にあるJ-12孔を使って、71F-7Aキャップセルで初めて実施された。試料粒子はUO<sub>2</sub>核被覆燃料粒子として46年度に試作した国産燃料粒子であり、その照射安定性を調べることを目的とした。照射はJMTRの#17~#18サイクル(1972年10月2日~1972年12月14日)にわたって行われ、実効照射期間は43日であった。照射温度は最高温部にある試料粒子で平均1180°C、最低温部にあるもので~1040°C、燃焼度は2.02~1.78%FIMA、高速中性子束は最高で~ $2 \times 10^{20} n/cm^2$  ( $E > 0.18 MeV$ )であった。照射後、試料粒子の外観、金相、X線ラジオグラフィーおよびFP挙動が調べられた。これらの試験の結果、次のようなことがわかった。

- (1) 外観で調べた破損率は最高1%から最低0.3%の範囲にあった。
- (2) UO<sub>2</sub>核と被覆層の反応はみられなかった。
- (3) 破損しなかった粒子の被覆層には照射による劣化はみられなかった。
- (4) 破損しなかった粒子中のFPは粒子内によく保持されていた。

Irradiation behavior of coated fuel particles (II)  
( Irradiation in JMTR 71F-7A capsule )

Kazumi IWAMOTO, Kousaku FUKUDA, Satoru KASHIMURA  
and Akira KIKUCHI

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

( Received August 25, 1976 )

First irradiation examination of reference coated fuel particles for VHTR was carried out by 71F-7A capsule with use of J-12 irradiation hole in JMTR. The main purpose of the irradiation is to examine the irradiation stability of the reference particles fabricated in Japan in 1971. The capsule was irradiated during #17-#18 Reactor Cycle (October 1972 - December 1972) in which effective irradiation time was 43 days. As for irradiation conditions, the irradiation temperature of the particles located in the maximum temperature cell was 1180 °C and that of the particles in minimum one was 1040°C, fuel burn-up 2.02-1.78 %FIMA, and fast neutron dose max.  $2 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 0.18$  Mev). After irradiation, the coated fuel particles were examined in surface appearance, ceramography and X-ray microradiography, and the fission product behavior in the particles was also studied. From this irradiation examination, the followings were obtained:

- (1) Coating layer failure was found between 1 % and 0.3 % by surface appearance observation,
- (2) No reaction between UO<sub>2</sub> kernel and coating layers was observed,
- (3) Deterioration of the coating layers, particularly SiC layer, of unfailed particles was hardly noticed,
- (4) The retention of fission products within unfailed particles was good.

---

\* Division of Reactor Safety, Tokai, JAERI

## 目 次

1.はじめに	1
2.照射試験	3
2.1 照射試料	3
2.2 キャップセル構造	3
2.3 照射条件	4
2.4 燃焼度測定	4
3.照射後試験	5
3.1 照射後試験の概要	5
3.2 照射後試験結果	5
3.2.1 外観	5
3.2.2 金相およびX線ラジオグラフィー	5
3.2.3 酸浸出	7
3.3 FP挙動	7
4.考察	10
4.1 被覆層破損	10
4.2 UO <sub>2</sub> 核	11
4.3 FP挙動	12
5.まとめ	13

## 1 はじめに

被覆燃料粒子の照射試験は米国 GGA や英国 ドラゴン炉計画、西独を中心に進められてきた。GGA では最近、P キャプセルシリーズの照射試験を報告している。すなわち、P 13N (1972年1月～1973年1月照射) と P 13P (1972年4月～1973年4月照射) の両キャップセルの照射後試験が終了している<sup>(1)</sup>。これらのキャップセルはスイープガス方式であり、燃料コンパクトとコンパクト化されない被覆粒子を照射している。燃料核は酸化物、炭化物およびレジン核である。照射結果で特に興味あることは、外側 PyC の密度が  $1.93 \text{ g/cm}^3$  である粒子の破損が著しく大きいことである。さらに Large HTGR\* の燃料特性を調べるため P 13R および P 13S の両キャップセルが 1973 年 1 月から 1974 年 10 月まで GETR 炉で照射され、照射後試験が進行中である<sup>(1, 2)</sup>。これらもスイープガス方式であるが、特に変った試験として、P 13S の第 1 セルでは照射中に  $1075\text{--}1500^\circ\text{C}$  の温度間を 20 回の熱サイクルを加えて FP ガス放出率 (R/B)\*\* を測定している。この結果によると 9 回目までのサイクルでは R/B の増加はなかったが、10 回目に入ると急激に増加し始めている。GGA-ORNL の共同キャップセルである P 13Q は ORNL 炉で照射され、最終の炉サイクルで R/B が急激に増加している。P 13T は 1975 年 3 月～1976 年 7 月に照射され、 $\text{UC}_2$  核と  $\text{WAR UC}_4\text{O}_{0.4}$  核\*\*\* の照射安定性の比較を行なっている。このほかの P キャップセルシリーズとして P 13U, P 13V の両キャップセルで  $\text{UC}_3\text{O}_{0.5}$  核の照射が 1975 年 11 月から始まっている。

HT キャップセルシリーズによる照射試験は GGA と ORNL との共同試験であるが、HT-12～-15 および HT-17～-19 などのキャップセルで主に  $\text{ThO}_2$  核 BISO 粒子の照射がおこなわれ、現在照射後試験が進行中である<sup>(1)</sup>。HT-24, -25 は HFIR 炉で  $850\text{--}1020^\circ\text{C}$  の間で照射され、異ったメーカーの黒鉛粉で作られたコンパクトの照射安定性が調べられている<sup>(3)</sup>。このほか HT-28～-30 までのキャップセル照射の計画が進められており、これらでは被覆層パラメータを変えた  $\text{ThO}_2\text{-BISO}$  粒子が照射される。さらに GGA-ORNL 共同試験として HRB キャップセルシリーズがある。HRB-1～HRB-6 までのキャップセルはすでに照射が終了している<sup>(4-8)</sup>。最も新しい HRB-6<sup>(7)</sup> は HFIR 炉で 1973 年 2 月～1974 年 9 月まで照射され、再処理用の燃料照射および  $^{238}\text{U}$  と  $^{236}\text{U}$  の照射挙動のちがいをみることを目的とされた。

GGA や ORNL で行なわれている粒子の照射は燃焼度が 10～80% FIMA、高速中性子束が最高  $10^{22} \text{n/cm}^2$  まで行われているのに対し、ドラゴン計画下のヨーロッパ研究機関では一般的に燃焼度、高速中性子束ともあまり高くない。

ドラゴン関係で照射が終了したものの中で興味あるキャップセル照射を以下に列記する<sup>(9)</sup>。  
Studsvik 19 キャップセルでは炭素希釈  $\text{UO}_2\text{C}_x$  核粒子が  $1100\text{--}1500^\circ\text{C}$  の間で照射された。

\* GAA 社で計画されている 1160 MW(e) 出力のヘリウムガス冷却大型高温ガス炉

\*\* 放出速度 (Release rate) と生成速度 (Birth rate) の比

\*\*\* Weak Acid Resins 法の略。陽イオン交換樹脂にウランをくっつけ、これを  $1000\text{--}1800^\circ\text{C}$  で加熱することによって  $\text{UC}_x\text{O}_y$  組成の核が得られる。

メタン、プロパンおよびブタンで蒸着した  $P_y C-UO_2$  BISO 粒子の照射が、HTR-3 キャップセル ( $900-1200^\circ C$ , 10% FIMA), Corail ( $1200^\circ C$ , 0% FIMA), HFR 900 ( $900^\circ C$ , 8.4-15.2% FIMA) および BR2/1400 ( $1100-1400^\circ C$ , 10-17% FIMA) で行なわれ、 $P_y C$  物性に及ぼす中性子束と照射温度の影響が調べられている。ドラゴン炉照射中のものとしては<sup>(9)</sup>、アーベル効果を調べるため、HTE 2/Amoeba で Studvik 19 と同じ試料を使って  $1100-1700^\circ C$  (4~30% FIMA) で照射されている。 $P_y C$  および  $S_i C$  照射特性は HTE 2/ $P_y C$  および HTE 2/ $S_i C$  キャップセルでドラゴン炉を使って調べられている。(Th, U)O<sub>2</sub> の FP ゲッター入り BISO 粒子は FPR3 ( $900-1500^\circ C$ , 3% FIMA), Studsvik 20 ( $1100-1600^\circ C$ , 4% FIMA) および Essor Zenon 1 ( $850-1150^\circ C$ , 8% FIMA) で照射が行われている。このほかいろいろな種類の被覆材 ( $Al_2O_3$ , ZrC,  $S_i C$ ,  $P_y C$ ) の照射 (AMEX1 キャップセル), 種々の  $S_i C$  の中での  $A_g-110m$  の放出挙動 (FPC 21 キャップセル) が進行中である。このように、外国では数多くの照射実験が行なわれているが、その結果については、特にドラゴン・プロジェクト関係で公表されているものが少ないので、我が国においても出来るだけ多くの照射データーを収集する必要がある。

原研における多目的高温ガス実験炉の燃料照射は現在次の 3 つに分けて行われている。

- [1] JMTR における燃料粒子の照射
- [2] JMTR における燃料コンパクトの照射
- [3] JRR-2 における特殊照射 (アーベル、超高温照射など)

本報告シリーズは主に [1] について記するものであり、 $UO_2$  核被覆粒子を照射した 70F-4A キャップセルの結果についてはすでに報告している<sup>(10)</sup>。本報告では、47 年度に JMTR で照射した 71F-7A キャップセルについての結果を述べている。このキャップセルは実験炉の設計が予備設計として固められたのを受けて、46 年度に初めて試作した  $UO_2$  核 TRISO 被覆粒子の照射安定性の試験、および  $S_i C$  層、 $P_y C$  層中における固体 FP の移行挙動を調べる試料の提供を目的として最高 2% FIMA まで照射された。

## 2 照 射 試 験

### 2.1 照射試料

71F-7A キャップセルで照射された試料粒子は  $\text{UO}_2$  核 TRISO 被覆粒子としては 46 年度に初めて試作されたもので、71FC4 および 71FC5 と記される 2 種類の粒子である。これらの試料粒子の特性を Table 1 に、またその断面を Fig. 1 に示す。71FC4 および 71FC5 の  $\text{UO}_2$  核は共通で、核密度 94.8% TD, O/U 比は 2008, 蒸発性不純物量は  $14 \mu\ell/\text{g}$   $\text{UO}_2$  である。 $\text{UO}_2$  核の不純物分析結果を Table 2 に示す。不純物の中では、 $\text{Fe}$  および  $\text{Si}$  が最も多く、それ以外は 100 ppm 以下である。被覆層の蒸着条件は Table 3 に示されている。第 1 層(バッファーレン)は  $\text{C}_2\text{H}_2$  を 1300°C で熱分解したもので厚さは  $43 \mu$ , 密度は  $1.21 \sim 1.22 \text{ g/cm}^3$  である。第 2 層高密度  $\text{PyC}$  と第 4 層高密度  $\text{PyC}$  はほぼ同じ蒸着条件であり、両者とも  $\text{C}_3\text{H}_8$  を 1450°C で熱分解して得られたものである。厚みは両者で多少異なるが、密度は  $1.74 \sim 1.76 \text{ g/cm}^3$  でほとんど同じである。第 3 層  $\text{SiC}$  は  $\text{CH}_3\text{SiCl}_3$  を 1500°C で熱分解したもので、71FC4, 71FC5 とも厚みは  $28 \mu\text{m}$  であるが、密度は前者が  $3.17 \text{ g/cm}^3$ , 後者が  $3.19 \text{ g/cm}^3$  であった。被覆粒子としての性質は Table 4 に示されている。真球度は 50 粒の最大径の比の平均として求めたものである。露出ウラン量は粒子 5 g を各種類 2 バッチづつ硝酸浸出して求めたもので、Table 4 の値はその平均である。破壊強度は各試料 10 粒をラムスラー圧縮機で測定した平均値である。照射した粒子は 71FC4 と 71FC5 が各々 2 種類づつ、計 4 試料で、各々の重量は 4.7 g である。

### 2.2 キャップセル構造

71F-7A キャップセルの全体の構造を Fig. 2 に示す。この図にみられるように、本キャップセルは 2 個の独立した内部キャップセルから構成されており、その中にさらに 2 個の Ta 密封試料ホルダーが納められている。試料温度モニター用の熱電対は最上段試料ホルダーと最下段試料ホルダーに各々 2 本づつの W/R<sub>e</sub> 热電対が入れられている。Fig. 3 はキャップセル組立後の全体の写真を、Fig. 4 は組立前の部品、Fig. 5 は試料ホルダー部品と試料粒子を示す。黒鉛試料ホルダーには 8 個の直径 3 mm の穴があけられており、この中に試料粒子が納められる。キャップセル内での試料の配置は Fig. 6 に示すように上段より 71FC4-1, 71FC5-2, 71FC4-3, 71FC5-4 の順に入っている<sup>\*</sup>。Fig. 6 には上段部内部キャップセルの構造も示されている。下段部は熱電対が下から入っているだけで、本質的にはこの構造と同じである。内部キャップセルの中では黒鉛製試料ホルダーの上下に  $M_6$  热遮蔽板が入れられていて、軸方向の熱の逃げを防いでいる。

---

\* 試料記号の最後の番号は照射のちがいを区別するためつけたもので、以後の試料記号はすべてこれを使用する。

### 2.3 照射条件

71F-7AキャップセルはJMT-Rの反射体領域にあるJ-12照射孔で#17～#18サイクル(1972年10月2日～1972年12月14日)にわたって照射された。実効照射期間は43日で、このうち高温を保った期間は30.1日であった。照射中の試料温度経過をFig.7に示す。この温度は下段内部キャップセルの中の最下段試料ホルダーに納められている71FC5-4試料の温度を示している。この熱電対の指示では、#17サイクルで最高1170°C、最低1080°C、平均1130°C、#18サイクルで最高1200°C、最低1100°C、平均1140°Cであった。Fig.8は炉内でのキャップセル試料位置と熱中性子束の相対的強度との関係を示すものであるが、試料温度が単純に熱中性子束強度のみに比例すると仮定して、他の試料粒子の温度を推定した。これによると71FC4-3が最高～1240°Cで照射され、平均温度も1180°Cと最も高い。本キャップセルの高速中性子照射量は鉄ワイヤーをモニターとして $^{54}\text{Fe}$ (n, p) $^{54}\text{Mn}$ 反応を利用して測定された。Fig.9に結果が示されているが、この中で実線は標準型の分布にもとづき最小自乗法により決定されたもの、また破線は試料中心での高速中性子照射量を示している。この測定で求められた高速中性子照射量(>1.0 MeV)は最大 $8.5 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ である。これをE>0.18 MeVに換算すると $1.8 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ となる。71FC5-2、71FC4-3および71FC5-4の照射量はほぼ上記の値であるが、71FC4-1は多少低く～ $7 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ ( $1.4 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ , E>0.18 MeV)である。

### 2.4 燃焼度測定

試料粒子の燃焼度は71FC4-3粒子によって測定された。測定方法は70F-4Aキャップセルの場合と同一であり<sup>10</sup>、結果はTable 6に示されている。この表の燃焼度については照射中の $^{137}\text{Cs}$ の崩壊はその半減期が照射時間にくらべると著しく長いので計算に入れていない。この結果をもとにして、Fig.8の熱中性子束の相対強度から求めた他の試料粒子の燃焼度をTable 5に示す。この中で71FC4-3が最高で2.02%，71FC4-1が1.78% FIMAで最も低い。

### 3 照射後試験

#### 3.1 照射後試験の概要

照射済み 71F-7A キャップセルは J M T R ホットラボで解体、中性子モニターを取出した後、1973年4月26日に内部キャップセルだけが東海研ホットラボに搬入された。照射後試験は同年6月末から開始された。Fig. 10 にキャップセル解体から照射後試験までの試験手順を示す。

#### 3.2 照射後試験結果

##### 3.2.1 外観検査

外観検査は東海研ホットラボ、No.5 ジュニアセルに設置してある被覆粒子検査用ペリスコープ（島津製作所、型式M-150）を使って20倍と40倍で観察された。検査粒子数はすべて300粒である。外観検査による観察結果はTable 7にまとめられている。Fig.11-1～-4 にこれらの外観検査の代表的な写真を示す。Fig.11-1 は試料粒子 71FC4-1 (1040°C 照射、1.78% FIMA) の外観を示しているが、この粒子には Fig.11-1(A) にみられるように表面に“しみ”が出ているものが10粒子観察された。この“しみ”は被覆層欠陥による燃料物質またはFPの移動によるものではなさそうである。この試料粒子には被覆層の割れがあるもの (Fig.11-1(B)) が1粒子、完全に破損しているものが2粒子みられた。Fig.11-2 に 71FC5-2 (1130°C 照射、1.94% FIMA) の外観を示す。この粒子には 71FC4-1 に見られたような粒子表面の“しみ”は見られず、表面は比較的なめらかであった。この試料粒子には微小クラックと被覆層が割れて核が分離したものがそれぞれ1粒子づつ見つかった。71FC4-3 (1180°C 照射、2.02% FIMA) はこのキャップセルでは最も高い温度で照射されたが (Fig.11-3)，粒子の破損は最も少なく、表面に“しみ”があるものが1粒と、表面が一部破損しているものが1粒子見られただけである。Fig.11-4 は 71FC5-4 (1140°C 照射、1.95% FIMA) の外観であるが、破損したものを除くと粒子表面は滑らかであった。この粒子は“しみ”や微小クラックは見られなかったが、粒子表面が一部破損したものと、被覆層が完全に割れ、燃料核が露出しているもの (Fig.11-4(B)) が各々1粒子づつ見られた。

##### 3.2.2 金相およびX線ラジオグラフィ検査

照射による被覆粒子内の変化を観察するために、金相およびX線ラジオグラフィによる検査が行われた。金相検査はホットラボ鉛セルライン No.5 から No.12 で行われた。照射粒子各試料50粒子づつをエポキシ系樹脂に埋込んで気泡抜きして硬化させた後、#320, #400, #600 の SiC 耐水研磨紙でこの順に研磨を行ない、20 μ ダイヤモンドデスク、#800 SiC 耐水研磨紙、8 μ ダイヤモンドデスクと交互に研磨を続けた。精研磨としては1 μ ダイヤモンド研磨剤を使って7～15分のDPクロス研磨を行なった。金相観察はテラトーム型金属顕微鏡（オーストリア、ライヘルト社）で行い、100倍と400倍の写真撮影が行われた。

一方、X線ラジオグラフィ検査はホットラボ・ジュニアセルに設置してある被覆粒子用X線マイクロラジオグラフィ装置<sup>(1)</sup>によって行われた。X線ラジオグラフィ検査に供した試料粒子

数は～50粒子である。

金相検査の結果をFig.12-1～-4に、そのX線ラジオグラフィの結果をFig.13に示す。Fig.12-1およびFig.13(A)は71FC4-1の金相およびX線ラジオグラフであるが、これらの写真と照射前の断面を示すFig.1との比較から明らかなように、健全な粒子内では照射による変化はほとんど認められなかった。Fig.12-1(D)に見られる第1層の破損は写真全体の傷からみて研磨中に生じたものと推定される。特に今回の照射で注目されるのはSiC層の劣化がまったく起らなかつことである。照射による変化と推定されることとは、UO<sub>2</sub>燃料核の結晶粒界にわずかではあるが気泡が集まっていることである。これらの気泡は大部分が燃料核製造時にまき込まれたものであるが、一部分にはFPガスやウラン分裂によって遊離した酸素ガスによる寄与も考えられる。Fig.13(A)に見られるX線ラジオグラフからは燃料核が第1層に移行している様子はまったく認められなかつた。

Fig.12-2およびFig.13(B)は71FC5-2の金相およびX線ラジオグラフを示す。

71FC5-2の場合、高密度PyCおよびSiCの劣化は認められなかつたが、Fig.12-2(E)に示すように第1層PyCと燃料核との間に奇妙な反応が観察された。写真に見られるように、第1層PyCの亀裂の間に燃料核が流れこんでいるもので、これは明らかに蒸着によるものでなく、照射によって生じたものである。他のほとんどの粒子内では第1層PyCは密着していて、燃料核と第1層PyCの間に間隙があるのに対し、Fig.12-2(E)にみられる粒子では第1層PyCと第2層PyCの間に間隙ができ、第1層PyCと燃料核は密着し、その間には反応を起している様子さえ見られる。また、この第1層の金相をFig.12-2(F)のそれと比較すれば、(E)のそれはかなり高密度化しているよう見える。(E)の第1層にみられた亀裂に面する第2層PyCの内面にはFPが拡散しているのか、あるいは核分裂によると推定される若干黒化された部分が観察される。

このような現象の発生機構としては、第1層PyCが異常に高密度化して収縮し、亀裂が発生すると同時に、燃料核がスエリングによってその亀裂から外に出て来たことが考えられる。UO<sub>2</sub>の1750°C照射データでは<sup>12</sup>、わずか0.4%FIMAの燃焼度でもスエリングは10%以上の体積膨脹を示している。PyCの照射下における密度および寸法変化はKaae<sup>(13, 14)</sup>等によって調べられているが、これによるとPyCの高密度化はPyC密度が低ければ低いほど大きい。たとえば1.43 g/cm<sup>3</sup>の密度を有するPyCを1000°C, 3.85×10<sup>21</sup>n/cm<sup>2</sup>に照射すると、1.9 g/cm<sup>3</sup>の高密度のものになる。また寸法変化においても、低密度PyCになればなるほどその収縮は大きい。

この報告での照射量はKaae等のものにくらべるとはるかに小さいが、照射開始と同時にPyCの急激な密度増加、寸法収縮が起ることから<sup>15</sup>、上に述べた現象の発生機構も第1層PyCの高密度化、寸法収縮およびUO<sub>2</sub>核のスエリングはどの効果によって説明し得る。なおFig.12-2(F)にみられる粒子では別な部分にもこれと同様な現象が生じている。これと似た現象として、亀裂の中にFPが入り込んだ粒子がユーリッヒ研究所で観察されている<sup>15</sup>。

71FC5-2のUO<sub>2</sub>核内の気泡は71FC4-1のUO<sub>2</sub>核にくらべるとその数が多く見られる。71FC5-2では気泡が結晶粒界に集まっているものと、比較的均一に分散している粒子

とがある。Fig. 13(B)に見られるようにX線ラジオグラフでは大きな劣化は観察されなかつたが、矢印で示すように第1層PyCと第2層PyCの間に間隙がある粒子がいくつかあった。これらも先に述べたように、第1層PyCの高密変化、寸法収縮によるものと推定される。

Fig. 12-3とFig. 13(C)は71FC4-3の金相とX線ラジオグラフを示す。71FC4-3はこのキャップセルで最も高温高燃焼度で照射されたものである。100倍の観察でみる限り被覆層の劣化は見られない。Fig. 12-3(A)では、第1層、第2層PyCの一部分が欠け落ちているが、これは研磨によるものと推定される。この部分の燃料核は何ら反応を起していないからである。Fig. 12-3(E)および(F)にみられる燃料核部分には2つの現象がみられる。その1つは気泡に附着した白色の微小析出物であり、他の結晶粒界に現われた気泡である。白色析出物は結晶粒内にはまったく見られない。71FC4-1(Fig. 12-1)にも極くわずかではあるがこれに似た析出物らしきものが見られるが、Fig. 12-3(E), (F)ほど著しくない。この白色析出物については後述する。気泡は照射温度が比較的高く、可動性が増すために他の試料粒子にくらべて結晶粒界に最もよく集まっている。X線ラジオグラフ(Fig. 13(C))では第1層と第2層の間に間隙が見られる以外は変化は見られなかった。

Fig. 12-4およびFig. 13(D)は71FC5-4の金相およびX線ラジオグラフを示す。この粒子も高密度PyC, SiC層に何ら照射変化は見られなかつた。ただFig. 12-4(A), (D)に見られるように第1層と第2層の剥離、Fig. 12-4(E)に見られる第1層の破損などが照射による変化であると考えられる。Fig. 12-4(F)では照射によるものではないが、燃料核の凹面に沿って第1層が厚くなっている様子が見られる。Fig. 13(D)のX線ラジオグラフでも第1層と第2層の間隙(矢印)以外は大きな変化は見られなかつた。

### 3.2.3 酸浸出試験

酸浸出試験には外観検査を終えた300粒の試料粒子が使用された。粒子を6M-HNO<sub>3</sub>の浸出液で1時間煮沸した後、粒子と液を分離した。その浸出液と別に分けていた浸出処理しない10粒子とのγ線強度(<sup>95</sup>Zr 725 keV フォトピーク)を比較することによって酸浸出率を求めた。結果をTable 8に示す。この表の中にみられる酸浸出破損率とは、得られた酸浸出率をもとに破損した粒子の核が完全に溶出したと仮定して300粒の中で何個が破損していたかをその比率として表わしたものである。この酸浸出破損率とTable 7の外観破損率を比較すると両者は比較的一致している。さらにTable 7の粒子破損率と酸浸出破損率とは良く一致している。このことから、外観で観察されたマイクロクラックや表面の一部破損は浸出液を燃料核にまで通し得るような破損には到っていないことを示している。ただしFP放出の面から見た破損については別の試験(スイープガスキャップセル照射または照射後FPガス放出実験など)により測定しなければならない。

酸浸出破損率では照射温度が最も低い71FC4-1が最も大きく、照射温度が最も高い71FC4-3が最も小さいという予想とは逆の結果が得られているが、この原因は明らかでない。

### 3.3 FP挙動

71F-7Aキャップセルで照射された被覆燃料粒子のFP挙動を71FC5-4粒子によって調

べた。測定目的は

- (i) 高温照射下における被覆層内の FP 分布
- (ii) 照射後加熱による FP 放出
- (iii) 照射後加熱における被覆層内での FP 分布の変化

である。(i)および(iii)の測定のために高密度  $P_y C$  層を  $140^\circ C$  の重クロム酸カリーエチル酸混液中で段階的に溶解し、一方  $S_i C$  層は  $800^\circ C$  でカ性カリーエチル酸ナトリウム混合アルカリ中で段階的に溶解した。溶解各段階における被覆層厚み減少は X 線マイクロラジオグラフィで測定し、また除去された被覆層中に含まれていた  $^{137}C_s$ ,  $^{90}S_r$  および  $^{144}C_e$  は溶解液の中にとり集めて  $\beta$  線または  $\gamma$  線でその量を測定した。溶解時に被覆層が破損したら、溶解を続行し、燃料核を完全に溶かして燃料核内の FP の量を測定した。

(ii)の測定のために、細長い黒鉛ルツボに被覆層が健全な照射済み 71 FC5-4 粒子を 1 個入れ、 $1200\sim1800^\circ C$  の間で  $100^\circ C$  間隔 ( $1300^\circ C$  での加熱は行わなかった) で段階的に温度を上げて加熱した。各温度での保持時間は 2 時間である。加熱後、各加熱温度の黒鉛ルツボを酸化焼却し、その中の FP を取り集めた。加熱後の FP は(iii)の測定をし、最後に燃料核中の FP を捕集した。

照射後の被覆層中の FP 分布を Fig. 14 に示す。この図で、縦軸を燃料核単位体積あたりの FP 濃度に対する被覆層単位体積あたりの FP 濃度の比として示しており、横軸を粒子半径で示している。この図には計算で求めた  $P_y C$  中のウラン汚染(表面および内部汚染による寄与)による FP の分布を斜線領域で示した。各 FP の分布の特徴は次のようなものである。

- 1)  $^{137}C_s$  ; 外部  $P_y C$  中では粒子表面に向けて急激に濃度が上昇し、逆に外部  $P_y C - S_i C$  の境界では極端に濃度が減少した。 $S_i C$  層中では内部に向って急激に濃度が増加し、内部  $P_y C$  でも内部に向って濃度が上昇している。
- 2)  $^{90}S_r$  ; 外部  $P_y C$  中では粒子表面付近で濃度が極めて高いが、その他の部分ではほぼ一定の濃度を保っている。 $S_i C$  層中では内部に向って濃度は急激に増加しているが、増加の度合は  $^{137}C_s$  にくらべると多少、小さい。内部  $P_y C$  では内部に向った濃度の増加は小さくなっている。
- 3)  $^{144}C_e$  ; 外部  $P_y C$  中ではウラン汚染による FP の分布レベルとほとんど同じである。  
 $S_i C$  層中では内部に向って濃度が増加しているが、増加の度合は  $^{137}C_s$ ,  $^{90}S_r$  にくらべると極端に小さい。内部  $P_y C$  層中ではこの FP 濃度は  $^{137}C_s$ ,  $^{90}S_r$  にくらべて  $10\sim100$  倍ほど小さい。

Fig. 15 は  $1800^\circ C$  までの段階的加熱後における FP 分布である。加熱後における FP 分布は次のようなものである。

- 1)  $^{137}C_s$  ; 外部  $P_y C$  中では、粒子表面付近での著しく高い濃度は照射後加熱によっても変らない。外部  $P_y C - S_i C$  層境界付近では濃度がかなり高くなっている。 $S_i C$  層中では加熱前のものと比べて濃度勾配が急になっている。
- 2)  $^{90}S_r$  ; 外部  $P_y C$  中では、表面側の前半分で濃度が減少しているのに対し、内面半分では濃度が増加している。 $S_i C$  層では濃度勾配が多少増加していると判断される。

3)  $^{144}\text{Ce}$  ; 外部  $\text{P}_y\text{C}$  中での濃度分布は加熱前のものとほとんど変らない。 $\text{SiC}$  層中では濃度勾配が著しく大きくなり、内部  $\text{P}_y\text{C}$  中の濃度も加熱前にくらべてかなり増加している。

Fig.16 は照射後加熱によって放出された F P の放出率の結果である。測定された 3 つの F P の中で  $^{137}\text{Cs}$  が最も放出率が小さく、1800°Cでも  $1 \times 10^{-5} (-)$  程度であった。また  $^{144}\text{Ce}$  の放出率も小さく、1800°Cで  $3 \times 10^{-6} (-)$  である。 $^{90}\text{Sr}$  の場合は全般的に放出率が大きく、1800°C以下でも  $10^{-4} (-)$  程度であるが、1800°Cになると急激に放出が大きくなり始めている。全般的な傾向としては、どの F P も最初の加熱温度 1200°Cで最も大きな放出を示し、濃度が上昇するにつれて放出率の増加の度合は減少している。

## 4 考 察

### 4.1 被覆破損

今回の照射粒子破損の特徴的なことは、燃料核移動、粒子内での反応や被覆層劣化などが観察されなかったにもかかわらず、破損率が比較的大きなことである。特に照射温度が1040°Cと最も低い71FC4-1試料粒子の外観、酸浸出による破損率が $\sim 1 \times 10^{-2}$ (%)に達したことである。被覆粒子の破損原因には(i)粒内ガス圧、(ii)燃料核移動、(iii)S<sub>i</sub>C層と希土類元素との反応、(iv)製造時における欠陥粒子などがあげられる<sup>(16)</sup>。粒子内圧は2%FIMA、1200°C照射で約100 kg/cm<sup>2</sup>に達すると推定される<sup>(17)</sup>。この内圧が今回の被覆粒子を破壊に到らしめるにはあまりにも小さすぎる。今回の破損原因として強いてあげられそうなことは被覆層の密度であろう。Table 1に示すように、第2層、第4層P<sub>y</sub>Cの密度は1.74-1.76 g/cm<sup>3</sup>であり比較的小さい。またS<sub>i</sub>C密度は3.17-3.19 g/cm<sup>3</sup>でこれもあまり高い方ではない。Kaae等<sup>(14)</sup>による照射P<sub>y</sub>Cの寸法収縮測定では、1430°C以下の照射温度、 $5.2 \times 10^{21} n/cm^2$ の照射量で、1.8 g/cm<sup>3</sup>の密度を持つP<sub>y</sub>Cは蒸着平行方向での寸法変化がほとんどない。これ以下での密度では収縮を、これ以上では膨脹を示す。また蒸着垂直方向での寸法変化も、1.8 g/cm<sup>3</sup>以下の密度を持つP<sub>y</sub>Cはかなり大きい収縮を示すが、1.8 g/cm<sup>3</sup>以上になると収縮量はあまり変わらない。このような傾向は照射量が多少あっても、あまり大きな変化はない。前にも記したように、P<sub>y</sub>Cの高密度化は、密度が低いほどその程度が大きい。Kaae等によるP<sub>y</sub>Cの寸法収縮測定からみると、1.80 g/cm<sup>3</sup>の密度を持つP<sub>y</sub>Cが最も照射に対して安定なようである。GGAの照射によると<sup>(18)</sup>、1.80-1.85 g/cm<sup>3</sup>の密度を有するP<sub>y</sub>Cが最も照射破損が少ないと報告されている。しかしS<sub>i</sub>Cについては3.18 g/cm<sup>3</sup>以上の密度を有するものについてははっきりした照射破損の傾向がわかっていない<sup>(1)</sup>。このような照射報告例を考慮に入れると、今回の照射試料粒子の破損は、高密度P<sub>y</sub>C(第2層、第4層)の密度が低かったことに原因がありそうである。つまり、第2層、第4層のP<sub>y</sub>Cが照射によって高密度化と同時に寸法収縮を起し、被覆層全体に異常な応力が加わったためではないかと推定される。このことは70F-4Aキャップセルの粒子破損結果と比較すると、もっと明確になる。

70F-4Aキャップセルの照射粒子はUC<sub>2</sub>核であるが、その照射条件は71F-7Aの場合とあまり変わらない。UC<sub>2</sub>核とUO<sub>2</sub>核との照射に対する影響のちがいの最も大きな点は粒子内に発生するガス圧であるが、前回同様、今回の場合も粒子破損を生じせしめるほどの内圧は生じていない。それにもかかわらず、70F-4Aキャップセル照射粒子には燃料核が露出するような大きな破損は見られなかった。両キャップセルの試料粒子のちがいは、高密度P<sub>y</sub>C(第2層、第4層)の密度がちがっていることである。70F-4Aキャップセル照射粒子の密度が1.80 g/cm<sup>3</sup>あるのに対し、今回のそれは1.74-1.76 g/cm<sup>3</sup>である。従って70F-4Aキャップセル照射粒子のP<sub>y</sub>C密度は照射に対しては好条件のものであったことが、粒子破損を著しく小さくしたものと考えられる。

#### 4.2 $\text{UO}_2$ 核

$\text{UO}_2$  燃料核の照射は今回が最初であったが、70F-4Aで照射した  $\text{UC}_2$  核と異っていた点は、被覆への燃料核物質の移行が認められなかったことである。このことは  $\text{UO}_2$  核と  $\text{PuO}_2$  被覆層との両立性は  $\text{UC}_2$  核にくらべて良好であることを示している。この他の  $\text{UO}_2$  核の利点は、ある種の FP の保持能力が高いことであるが、これについては後述する。 $\text{UO}_2$  核の場合、照射によって粒内に FP ガスの他に CO ガスが生成することは  $\text{UC}_2$  核とは異なる。このガスは燃料核移動や被覆層破損の原因となる。 $\text{UO}_2$  結晶内に発生したこれらのガス原子は約 1400°C 以上の温度で結晶粒界に移行し、粒界に気泡を発生させる<sup>19</sup>。粒界気泡は却 1600°C 以下では動きにくく<sup>19</sup>、粒界に固定され、スエリングの原因となるが、気泡が大きくなつくると、気泡の結合 (interlinking) 起し、ガスはこれらの結合路を経て外部へ逃げ<sup>20</sup>、その後、焼結が起る。Turnbull<sup>12</sup>の走査電顕による照射  $\text{UO}_2$  中の気泡観察では、平板結晶面からなる多角  $\text{UO}_2$  結晶粒表面の中央部にある気泡は比較的大きく、結晶表面端にある気泡は非常に小さい。このことは結晶表面端で気泡がガスを放出して、焼結を起した結果であると考えられている<sup>12</sup>。今回の照射では Fig. 12-3 (E) および (F) に見られるように比較的はっきりと気泡が粒界に集まっている粒子もあれば、Fig. 12-2 (E) や Fig. 12-4 (F) に見られるように、結晶粒内に多量の気泡が分散しているものもある。Fig. 12-3 (E) の写真を他の気泡観察と比較の為に Fig. 17(A) に再度示す。Fig. 17(A) に示すように、今回の照射では、粒界にある気泡は非常に大きなものと微小なもの ( $< 1 \mu$ ) からなっているようである。たとえばこの写真の中の S で示した部分の結晶粒界には微小な気泡の列が見られるが、L で示した部分の結晶粒界端には大きな気泡があり、その両端を結ぶように微小な気泡の列が見られる。これは Turnbull が観察した気泡の焼結機構とは異った気泡の配列である。また I には気泡の interlinking と思われる部分も見られる。

白色析出物 (Fig. 17(A)) についてはいくつかの報告例がある。Bradbury<sup>21</sup> は照射  $\text{UO}_2$  中に 2 種類の白色析出物を観察している。これらは FP(又はその酸化物) からなるもので、その 1 つは  $\text{M}_\alpha$ ,  $\text{T}_\alpha$ ,  $\text{R}_\alpha$  および  $\text{R}_\beta$  からなるものと、他は  $\text{B}_\alpha$ ,  $\text{S}_\alpha$ ,  $\text{Z}_\alpha$ ,  $\text{C}_\alpha$  からなるものである。同様に O'Boyle 等<sup>22</sup> も照射  $\text{UO}_2 \cdot \text{PuO}_2$  に Bradbury とほとんど同じ 2 種類の白色析出物を見出している。Jeffery<sup>23</sup> はこれらの白色析出物は 3 種類あると結論づけている。つまり  $\text{M}_\alpha$  を主成分とするもの、 $\text{M}_\alpha$ ,  $\text{B}_\alpha$  を主成分とするもの、および  $\text{B}_\alpha$  を主成分とするものである。Fig. 17(B) は Jeffery が観察した照射  $\text{UO}_2$  (4.6% FIMA,  $< 1500^\circ\text{C}$ ) 中の白色析出物であり、この場合も我々と同様に白色析出物は気泡に附着していることが説明されている。このような白色析出物の観察の類似性から、71FC4-3 に現われた白色析出物 (Fig. 17(A) 又は Fig. 12-3(E)) は Jeffery の観察したものと同一のものであると断定できる。

これらの白色 FP 析出物と気泡との関係は Hasting<sup>19</sup> によって調べられている。Fig. 18 はその観察結果であるが、これは照射  $\text{UO}_2$  の破面に現われた気泡のレプリカをとって観察したものである。Fig. 18(a) ( $\sim 1500^\circ\text{C}$ ) に見られるように、矢印 A で示される方向に温度勾配がかかっており、気泡は高温側に向って動こうとしているが、P で示される部分の FP 析出物

が気泡の動きを阻止している様子が示されている。つまり FP析出物は気泡の動きを阻止するために、白色FP析出物と気泡は同一場所に観察されるのである。なお、Fig.18(a)のB<sub>1</sub>で示される微小気泡にはFP析出物は附着していない。Fig.18(b)は気泡がさらに大きくなっている部分で、Iで示される部分は気泡のinterlinkingが起っている。これを平面的に見れば、我々が観察したFig.17(A)のIの部分と同じに見えるはずである。なお、未照射UO<sub>2</sub>を高温加熱すると白色析出物が現われることがあるが、Anderson<sup>(24)</sup>やRothwell<sup>(25)</sup>によると、これは高温でUO<sub>2</sub>が分解して金属ウランが析出するためであると報告されている。

#### 4.3 FP分布

71FC5-4のFP挙動試験では破損していない健全な試料粒子はFPをよく保持していることがわかった。Fig.14, 15に示すように、特にS<sub>i</sub>C層中では表面に向ってFP濃度が急激に低下していることは、S<sub>i</sub>C層のFPに対する保持をよく示している。Fig.14に見られるように、内部P<sub>y</sub>CからS<sub>i</sub>C層にかけて<sup>144</sup>C<sub>e</sub>濃度が極端に低いのは明らかにUO<sub>2</sub>核内で<sup>144</sup>C<sub>e</sub>が保持されていることを示している。

C<sub>e</sub>はUO<sub>2</sub>核内では安定な酸化物(C<sub>e</sub><sub>2</sub>O<sub>3</sub>)を形成し<sup>(26)</sup>、核からのC<sub>e</sub>放出を小さくする作用がある。外部P<sub>y</sub>Cでは<sup>144</sup>C<sub>e</sub>はウラン汚染レベルと同程度であることから、照射中にS<sub>i</sub>C層から移行してきた様子はない。<sup>90</sup>S<sub>r</sub>はこのレベルより10倍ほど大きく、照射中にS<sub>i</sub>C層から移行が起っていることを示している。<sup>137</sup>C<sub>s</sub>の外部P<sub>y</sub>C中での分布はこれらのFP分布と異っており、粒子外表面に向って急激に濃度が増加している。P<sub>y</sub>C中のC<sub>s</sub>の移行はS<sub>r</sub>やC<sub>e</sub>の場合と異っており、主にP<sub>y</sub>C中の気孔のガス相を通って起る<sup>(26)</sup>。従って外部P<sub>y</sub>C層中で気孔分布が径方向で異っていたり、密度が異っていたりすると、C<sub>s</sub>の分布はこれらの物性に著しく影響をうけやすい。C<sub>s</sub>分布の特異性はこのような物性の不均一のために起っているとも考えられる。

加熱後の分布(Fig.16)では、外部P<sub>y</sub>C層中で表面付近の<sup>90</sup>S<sub>r</sub>濃度が著しく減少している。<sup>137</sup>C<sub>s</sub>や<sup>144</sup>C<sub>e</sub>は表面付近での大きなちがいは見られない。このような加熱による濃度減少はFP放出率(Fig.17)と対応している。つまり外部P<sub>y</sub>C層中の表面付近での<sup>137</sup>C<sub>s</sub>、<sup>144</sup>C<sub>e</sub>濃度は加熱によってほとんど変っておらず、これに対応してこれらのFP放出率も非常に低い。一方、<sup>90</sup>S<sub>r</sub>濃度の大きな減少はその放出率の大きい事と対応している。外部P<sub>y</sub>C層の内表面では特に<sup>90</sup>S<sub>r</sub>と<sup>137</sup>C<sub>s</sub>の濃度が増加し、S<sub>i</sub>C層からこれらのFPが移行していることを示している。S<sub>i</sub>C層中の<sup>144</sup>C<sub>e</sub>は加熱によって濃度が増加しているが、これは燃料核中のC<sub>e</sub>酸化物が分解して、核からのC<sub>e</sub>放出が大きくなっていることを示している。

## 5 ま と め

多目的高温ガス炉燃料の研究のために、昭和46年度に試作したUO<sub>2</sub>核四重被覆燃料粒子2種が、4つの照射粒子試料として#17～#18サイクル（1972年10月2日～1972年12月14日）にわたってJMT-R反射体領域で照射された。照射温度は平均で1180～1040°C，燃焼度は最高2.02% FIMA，高速中性子束は～ $2 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (E>0.18 MeV) であった。この照射で得られた結論は次のようなものである。

- (1) 最も低い温度（1040°C平均）で照射された粒子の破損率が最も大きく， $1 \times 10^{-2}$ （外観破損率）であった。
- (2) UO<sub>2</sub>核と被覆層との反応はみられなかった。
- (3) 最高の燃焼度（2.02% FIMA）で照射された粒子の燃料核には、気泡と共に存する白色析出物が観察されたが、これはある種のFP（又はその酸化物）からなるものであることが推定された。
- (4) 破損していない粒子の被覆層は粒内にFPをよく保持していた。

## 謝 辞

本キャップセルの照射試験実施にあたって御協力を賜わった事に対し、特に次の課室の諸兄に謝意を表したい。

(1) キャップセル設計、製作、照射

大洗研究所材料試験炉部照射一課、同二課、同三課、計画課

東海研究所技術部工作課

(2) 照射後試験

東海研究所炉管理部ホットラボ管理室

大洗研究所材料試験炉部ホットラボ課

(3) 燃焼度測定

東海研究所化学部燃焼測定開発室

最後に本報告書を書くにあたって御激励を賜わった燃料工学部野村部長に謝意を表したい。

## 参 考 文 献

- (1) GA-A 13030 (1974).
- (2) GA-A 13444 (1975).
- (3) W.R.Johnson, R.L.Hamner, J.M.Robbins and B.H.Montgomery, GA-A 13486 (1974).
- (4) J.L.Scott, J.A.Conlin et al, ORNL-TM-3640 (1972).
- (5) J.H.Coobs, J.L.Scott et al, ORNL-TM-3988 (1972).
- (6) J.H.Coobs, J.A.Conlin et al, ORNL-TM-4526 (1974).
- (7) F.J.Homan, E.L.Longer et al, ORNL-TM-5011 (1975).
- (8) C.B.Scott and D.P.Harmon, GA-A 13267 (1975).
- (9) Dragon High Temperature Reactor Project, 16th Annual Report 1974-1975.
- (10) 岩本多実, 福田幸朔, 鹿志村悟, 菊地 章, JAERI-M 6480 (1976)
- (11) 鹿志村悟, 岩本多実, 飯田省三, 斎藤光男, JAERI-M 6332 (1975)
- (12) J.A.Turnbull, J.Nucl.Mater. 50 (1974) 62.
- (13) J.L.Kaae, D.W.Stevens and J.C.Bokros, Carbon 10 (1972) 561.
- (14) J.L.Kaae, J.C.Bokros and D.W.Stevens, Carbon 10 (1972) 571.
- (15) H.A.Schulze, JUL-1078-RW (1974).
- (16) C.L.Smith, GA-A 12971 (1974).
- (17) 荒井長利, "被覆燃料粒子の健全性に関する検討" (1974).
- (18) GA-A 13126 (1974).
- (19) I.J.Hastings, J.Nucl.Mater. 54 (1974) 138.
- (20) J.R.Findlay, "Behavior and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuels (IAEA-PL-463-10, Vienna, 1974) p 211.
- (21) B.T.Bradbury, J.Nucl.Mater. 9 (1963) 217.
- (22) D.R.O'Boyle, F.L.Brown and J.E.Sanecki, J.Nucl.Mater. 29 (1969) 27.
- (23) B.M.Jeffery, J.Nucl.Mater. 22 (1969) 33.
- (24) J.S.Anderson, Nature 185 (1960) 915.
- (25) E.Rothwell, J.Nucl.Mater. 6 (1962) 2.
- (26) J.Englhard, JUL-752-RG (1971).

Table 1 Characterization of coated fuel particles irradiated in 71F-7A capsule

試料粒子	被覆型	燃料核			第1層 (PyC)		第2層 (PyC)		第3層 (SiC)		第4層 (PyC)		粒子径 (μ)
		*組成	核密度 (%)	濃縮度 (%)	厚さ (μ)	密度 (g/cm³)	厚さ (μ)	密度 (g/cm³)	厚さ (μ)	密度 (g/cm³)	厚さ (μ)	密度 (g/cm³)	
71FC4	TRISO-II	UO <sub>2</sub>	94.8	19.95	43	1.22	33	1.74	28	3.17	41	1.74	785
71FC5	TRISO-II	UO <sub>2</sub>	94.8	19.95	43	1.21	34	1.76	28	3.19	45	1.76	793

\* O/U比: 2.008

Table 2 Impurity analysis in UO<sub>2</sub> kernel

成分	結果(ppm)	成分	結果(ppm)	成分	結果(ppm)
Ce	<10	Cd	<0.3	Ni	<10
F	<5	Cr	<10	Ag	<0.1
C	10	Cu	<5	Sn	2
Si	150	Fe	220	Mg	<2
Ca	10	Pb	<1	N	10
Al	20	Mo	20	B	<0.2

Table 3 Deposition conditions of coating layers

	第1層	第2層	第3層	第4層
蒸着ガス	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	CH <sub>3</sub> SiCl <sub>3</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>
蒸着ガスの流量	25ℓ/min	10ℓ/min	7.5ℓ/min	14ℓ/min
流動ガス流量	30ℓ/min	30ℓ/min	30ℓ/min	30ℓ/min
蒸着温度	1300°C	1450°C	1500°C	1450°C
蒸着時間	90 sec	3min 50 sec	14min	4min 40 sec
蒸着速度	28μ/min	8μ/min	1.6μ/min	9.5μ/min

Table 4 Properties of coated fuel particles for irradiation

試料粒子	粒子真球度	露出ウラン(μg/5g)	破壊強度(kg/1粒子)	被覆粒子密度(g/cm³)
71FC4	1.03	23.8	2.69	3.9
71FC5	1.02	24.5	2.64	3.9

Table 5 Irradiation temperature, fuel burn-up and fast neutron fluence

試料	最高 (°C)	最低 (°C)	平均 (°C)	燃焼度 (% FIMA)	高速中性子照射量 (E>0.18MeV, n/cm <sup>2</sup> )
71FC4-1	1090	980	1040	1.7 <sub>8</sub>	1.4×10 <sup>20</sup>
71FC5-2	1190	1070	1130	1.9 <sub>4</sub>	1.7×10 <sup>20</sup>
71FC4-3	1240	1120	1180	2.0 <sub>2</sub>	1.8×10 <sup>20</sup>
71FC5-4	1200	1080	1140	1.9 <sub>5</sub>	1.8×10 <sup>20</sup>

Table 6 Burn-up measurment of 71FC4-3

粒子番号	ウラン原子数 (×10 <sup>18</sup> atoms)	セシウム-137原子数 (×10 <sup>15</sup> atoms)	燃焼度 (% FIMA)
1	1.9 2 <sub>7</sub>	1.8 <sub>8</sub>	1.6 <sub>9</sub>
2	2.1 4 <sub>2</sub>	2.2 <sub>4</sub>	1.8 <sub>1</sub>
3	1.4 5 <sub>5</sub>	1.6 <sub>5</sub>	1.9 <sub>6</sub>
4	1.6 9 <sub>1</sub>	2.2 <sub>1</sub>	2.2 <sub>6</sub>
5	1.5 6 <sub>7</sub>	2.2 <sub>0</sub>	2.4 <sub>3</sub>
	mean		2.0 <sub>2</sub>

Table 7 Observation of surface appearance of coated fuel particles irradiated in 71F-7A capsule

照射温度 (°C)	破損状況*				外観破損率** (-)	粒子破損率*** (-)
	しみ	マイクロクラック	表面一部破損	粒子破損		
71FC4-1	1040	~10粒	1粒	—	2粒	1×10 <sup>-2</sup>
71FC5-2	1130	—	1粒	—	1粒	6.7×10 <sup>-3</sup>
71FC4-3	1180	1粒	—	1粒	—	3.3×10 <sup>-3</sup>
71FC5-4	1140	—	—	1粒	1粒	6.7×10 <sup>-3</sup>

\* 外観検査粒子数はすべての試料粒子とも300粒である。

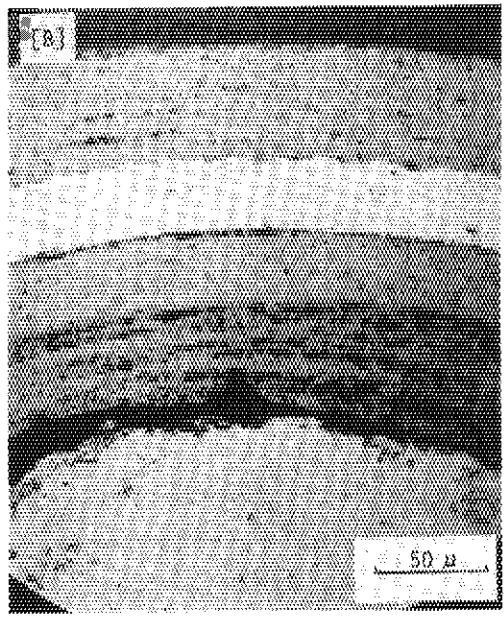
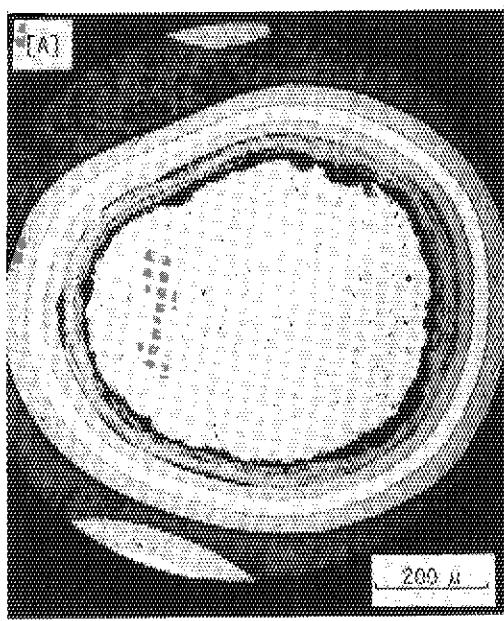
\*\* 外観破損率とは被覆層が破損している粒子の割合であり、ここでは粒子表面のしみは破損率の計算に加えなかった。

\*\*\* 粒子破損率とは、被覆層が完全に割れ、燃料核が露出している粒子の割合である。

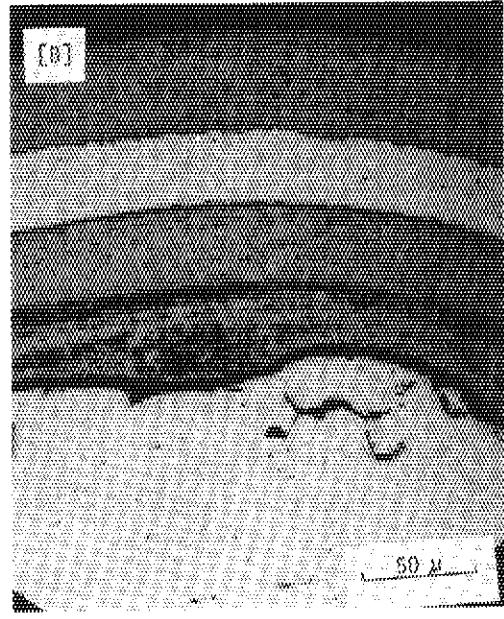
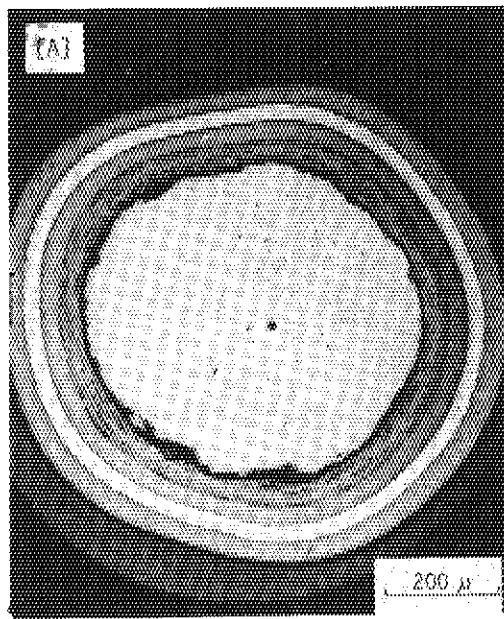
Table 8 Results of acid leaching of irradiated particles

	粒子全数の <sup>95</sup> Zr count (count/sec)	浸出液の <sup>95</sup> Zr count (count/sec)	酸浸出率 (-)	酸浸出破損率* (-)
71FC4-1	1738.625	13.95	8.02×10 <sup>-3</sup>	6.7×10 <sup>-3</sup> ~1.0×10 <sup>-2</sup>
71FC5-2	2186.625	6.82	3.12×10 <sup>-3</sup>	3.3×10 <sup>-3</sup>
71FC4-3	—	—	<1×10 <sup>-5</sup>	<3.3×10 <sup>-3</sup>
71FC5-4	1872.625	5.95	3.18×10 <sup>-3</sup>	3.3×10 <sup>-3</sup>

\* 酸浸出率破損率とは、酸浸出で浸出されたウラン相当量を粒子数で換算して表現してある。

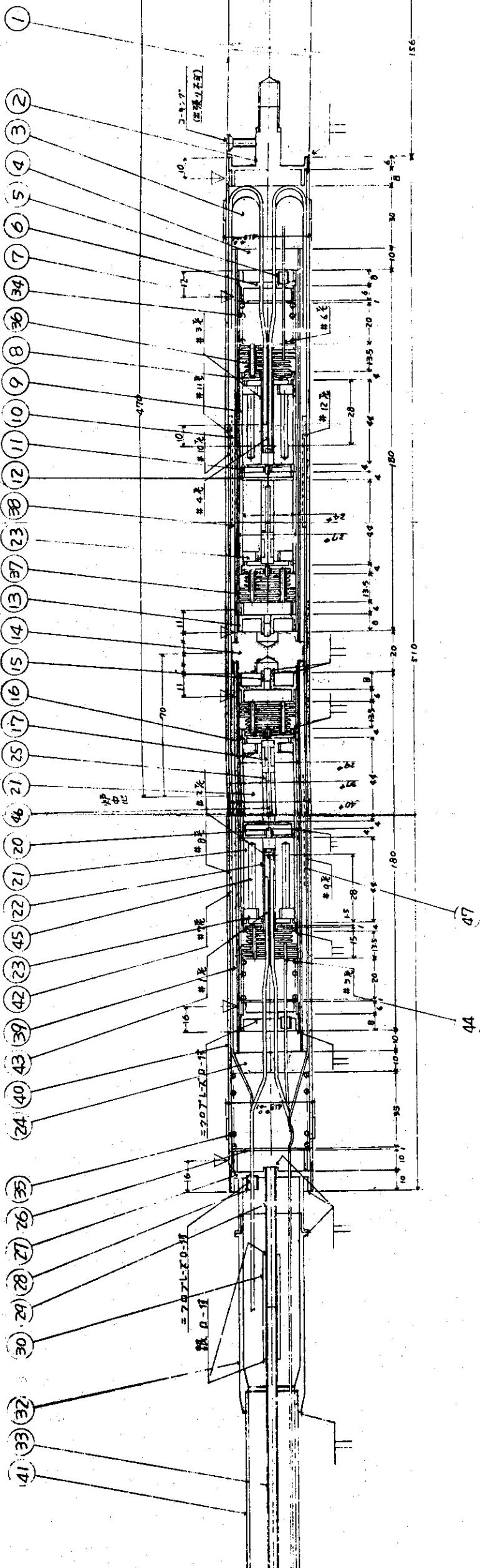


71FC4



71FC5

Fig. 1 Cross sections of coated fuel particle for irradiation



40	MD-6140	外殻	管	1
39	MD-6139	燃焼管本体	1	AB1
38	MD-6138	燃焼管	2	
37	MD-6137	燃焼管折板	2	
36	MD-6136	スプリング	1	AB2
35	ME-16809	アーチ	2	
34	ME-16803	スプリング	2	
33	ME-16807	樹脂	1	AB3
32	ME-16806	保冷材	1	
31	ME-16807	樹脂	1	AB4
30	ME-16804	底 管	1	
29	ME-16803	側 管	1	
28	ME-16802	リード	4	AB5
27	ME-16801	上印	4	AB6
26	ME-16800	アーチ	1	AB7
25	ME-16797	樹脂	2	
24	ME-16799	スチルブレーカー	1	
23	ME-16797	スベーザ	1	
22	ME-16796	ヘガタ	4	AB8
21	ME-16795	エリュ	2	AB9
20	ME-16794	エラスチル	4	AB10
19	ME-16793	スベーザ	4	AB11
18	ME-16791	スベーザ	2	AB12
17	ME-16790	スベーザ	2	AB13
16	ME-16789	アーチ	2	AB14
15	ME-16788	スベーザ	2	AB15
14	ME-16787	アーチ	2	AB16
13	ME-16787	端	2	AB17
12	ME-16786	端	4	AB18
11	ME-16785	端	4	AB19
10	ME-16784	内 管	2	AB20
9	ME-16782	端 材	2	AB21
8	ME-16781	アーチ	2	AB22
7	ME-16780	アーチ	2	AB23
6	ME-16779	アーチ	2	AB24
5	ME-16778	アーチ	2	AB25
4	ME-16777	スベーザ	2	AB26
3	ME-16776	下部	1	AB27
2	ME-16775	スベーザ	2	AB28
1	ME-16775	スベーザ	1	AB29

88	ME-4888	組立図	1
----	---------	-----	---

Fig. 2 IMTR 照射チャップセル 71 F - 7 A (粒子用)

日本原子力研究所 NMB-2311-1

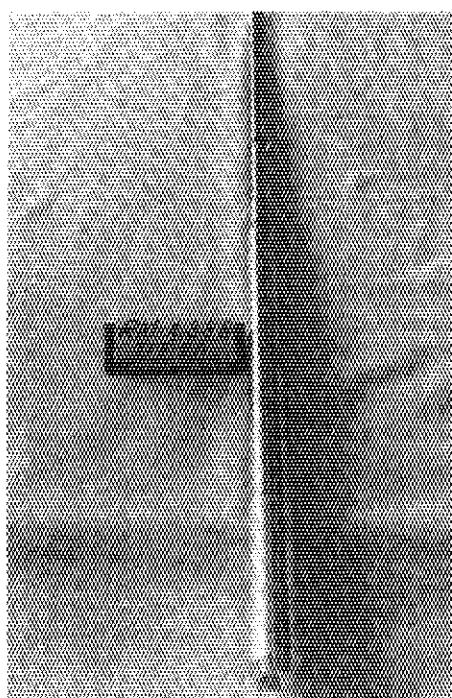


Fig. 3 View of 71F-7A capsule

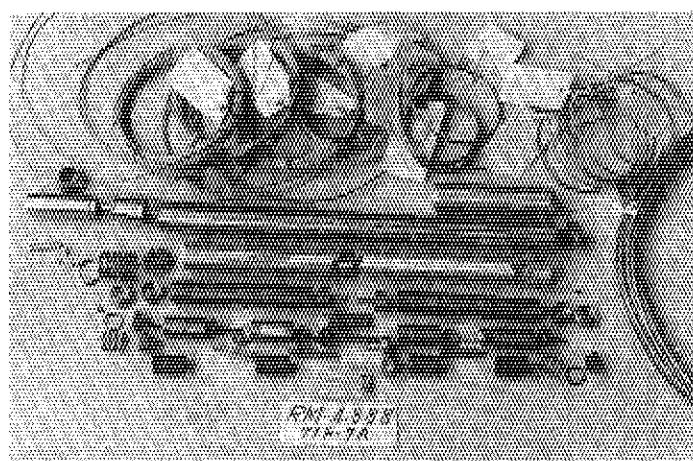


Fig. 4 Capsule parts of 71F-7A capsule

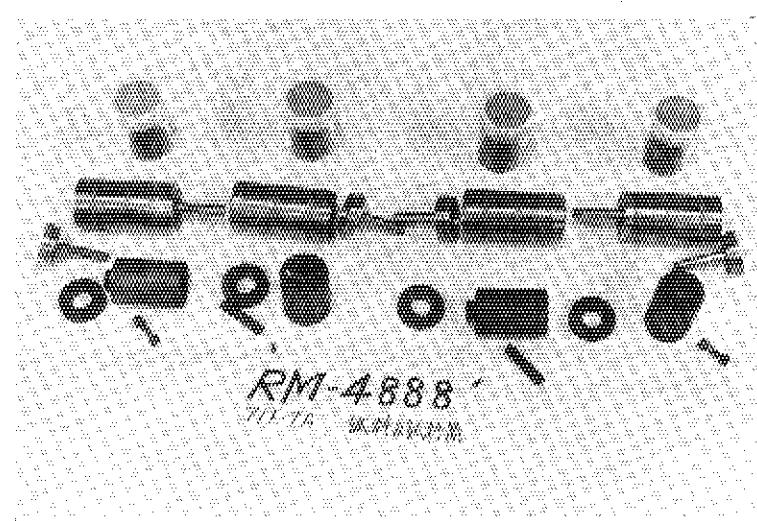


Fig. 5 Inner cells for coated fuel particles

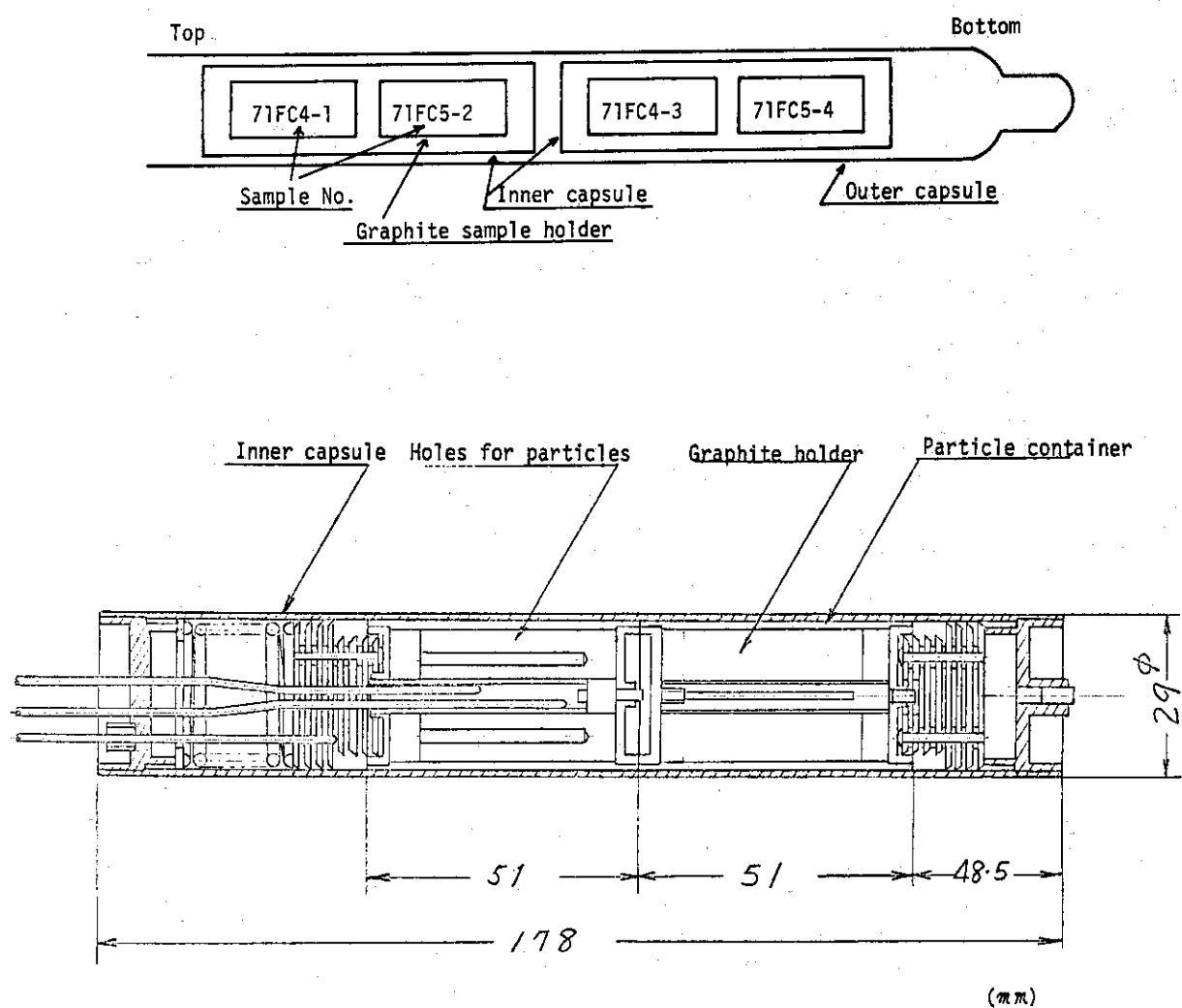


Fig. 6 Alignment of sample particles in 71F-7A capsule and detailed configuration of inner capsule

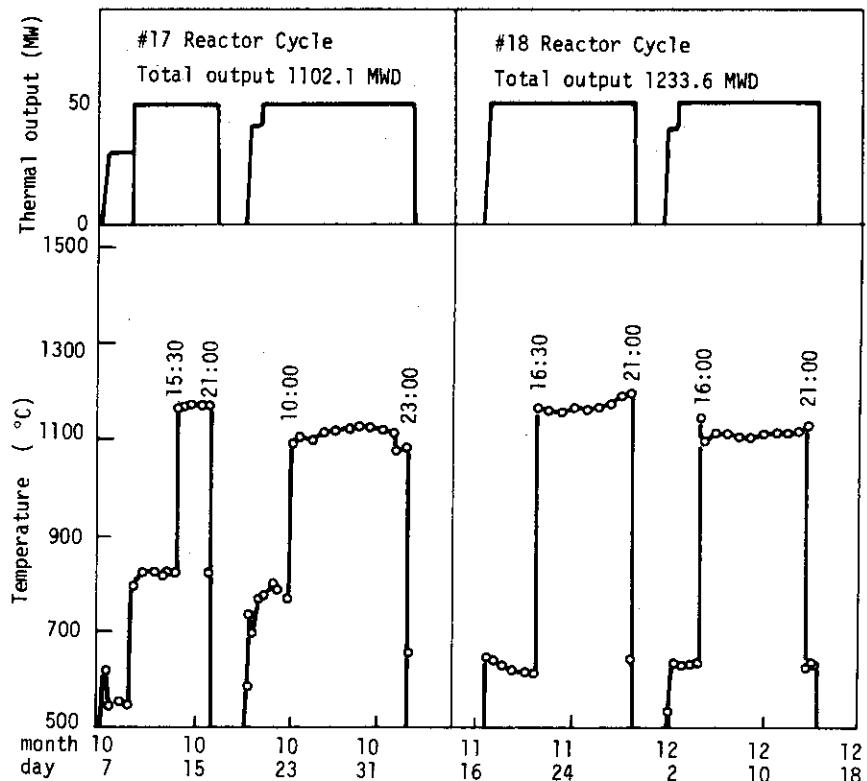


Fig. 7 Irradiation temperature during #17 and #18 Reactor Cycle

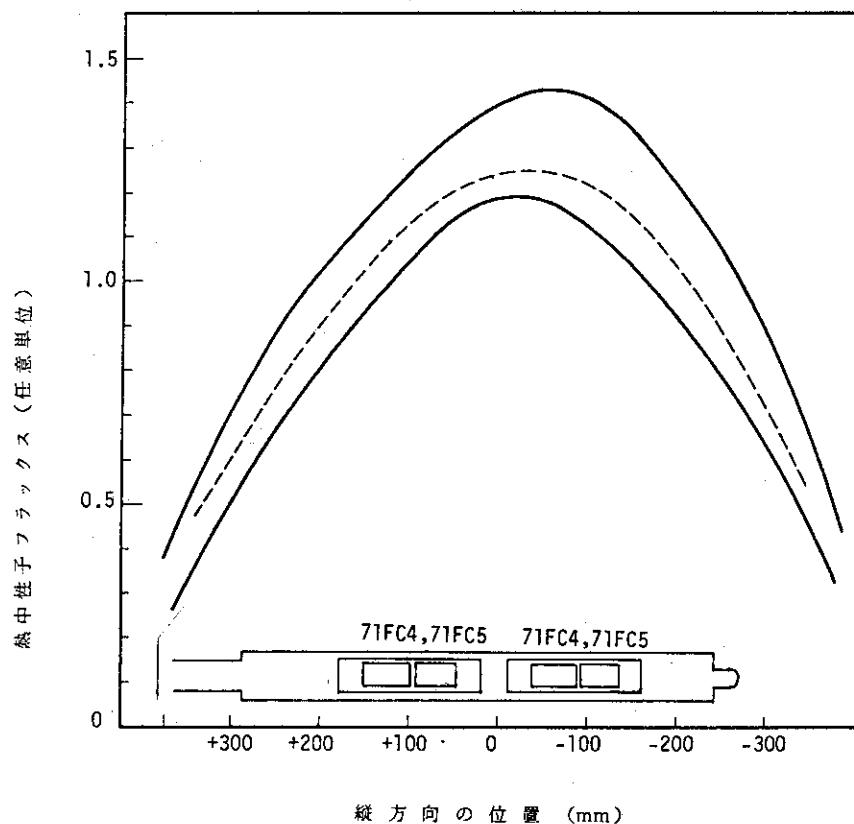


Fig. 8 Array of particle sample in 71F-7A capsule and the capsule location in thermal neutron flux distribution of J-12 irradiation hole

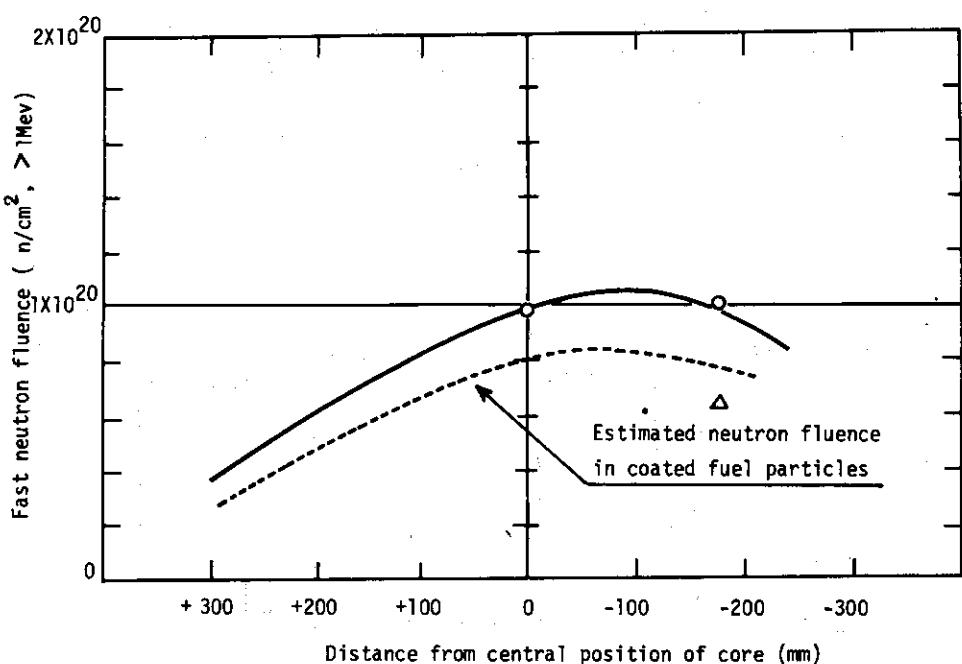


Fig. 9 Fast neutron fluence distribution measured

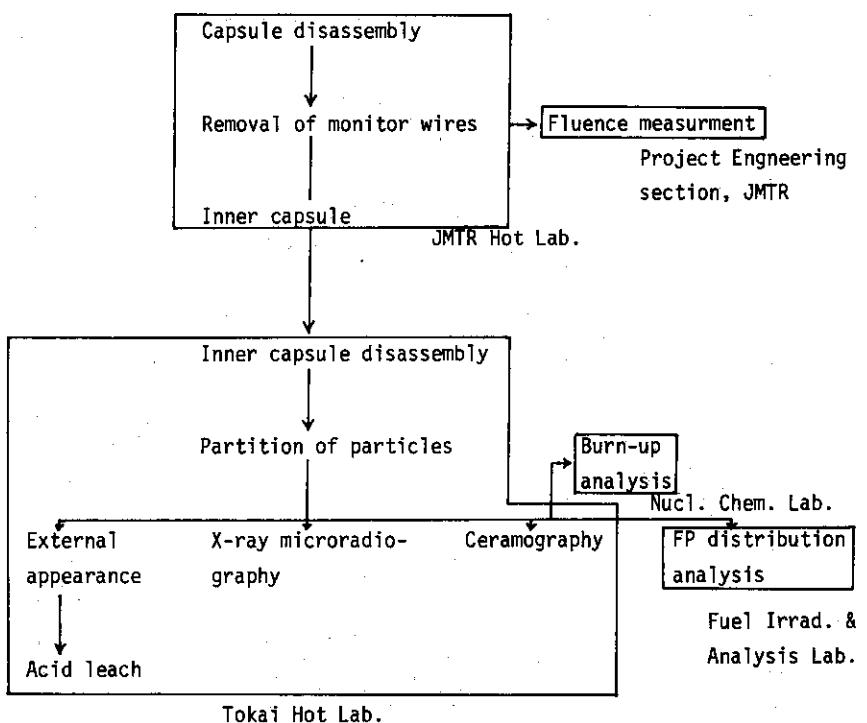


Fig. 10 PIE procedure

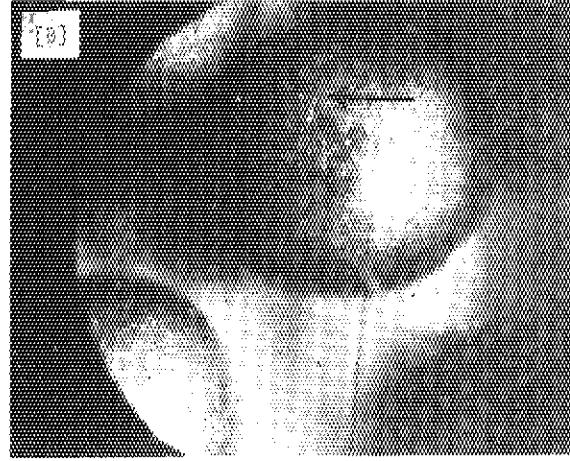
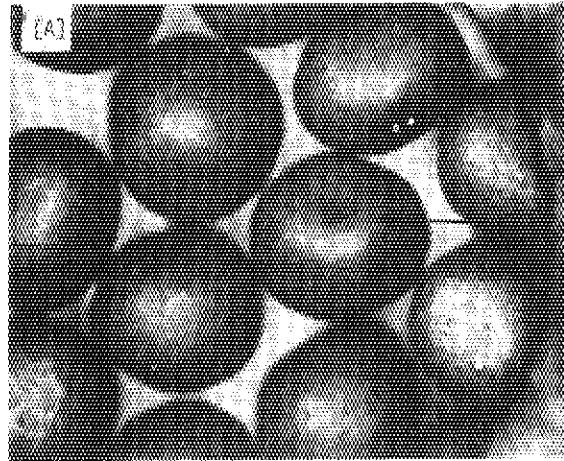


Fig. 11-1 Surface appearance of 71FC4-1 irradiated up to 1.78 %FIMA at  
1040°C

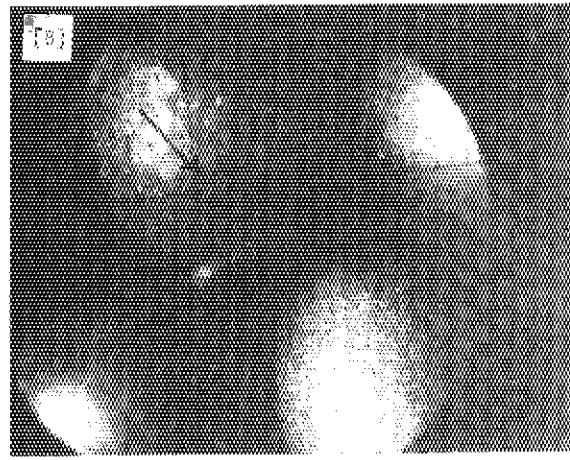
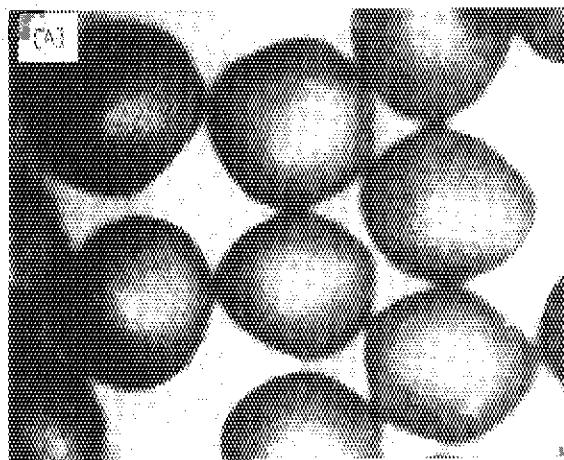


Fig. 11-2 Surafce appearance of 71FC5-2 irradiated up to 1.94 %FIMA at  
1130°C

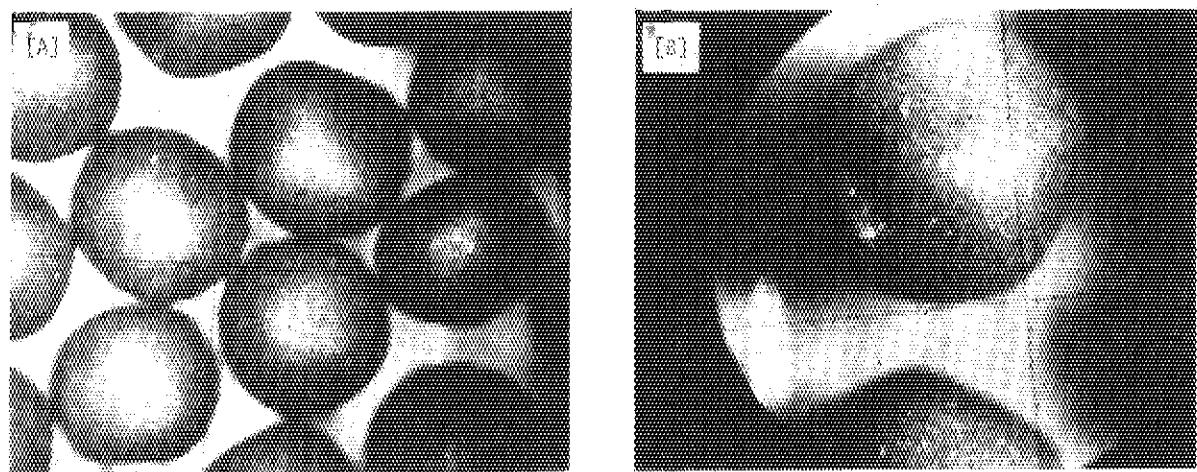


Fig. 11-3 Surface appearance of 71FC4-3 irradiated up to 2.02 %FIMA at  
1180°C

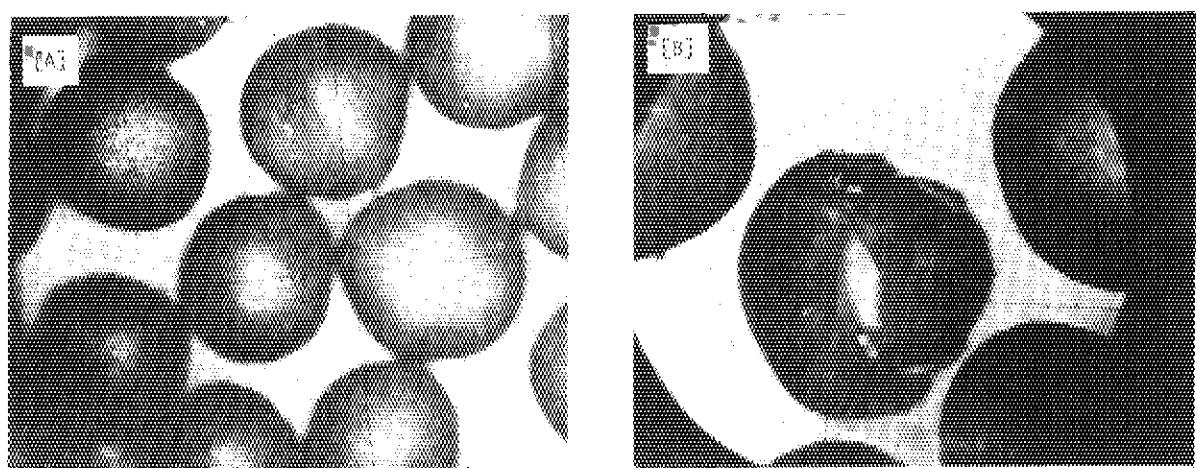


Fig. 11-4 Surface appearance of 71FC5-4 irradiated up to 1.95 %FIMA at  
1140°C

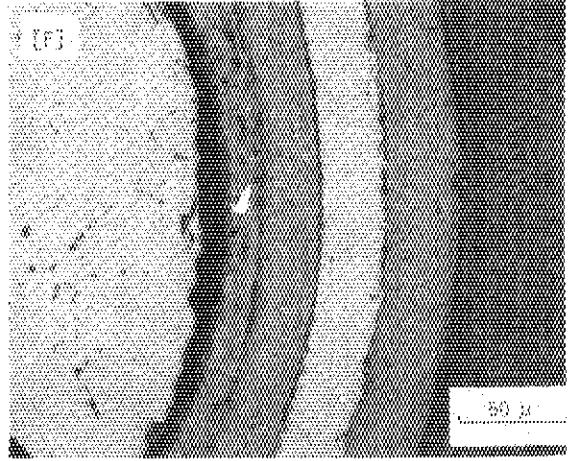
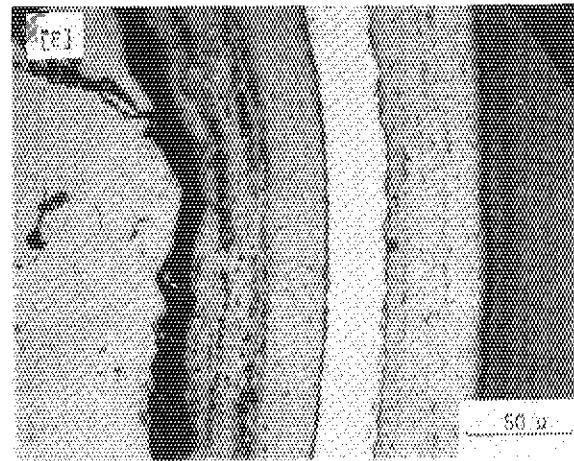
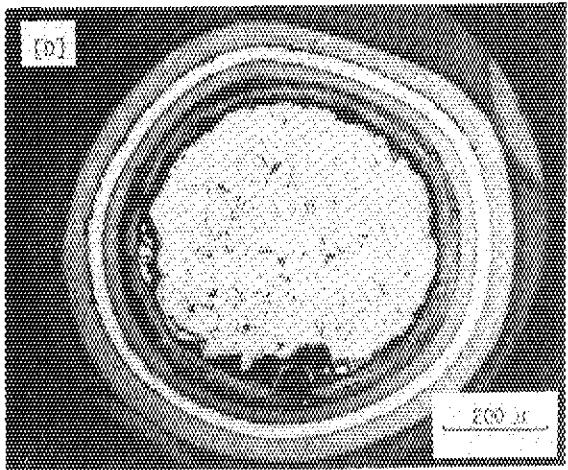
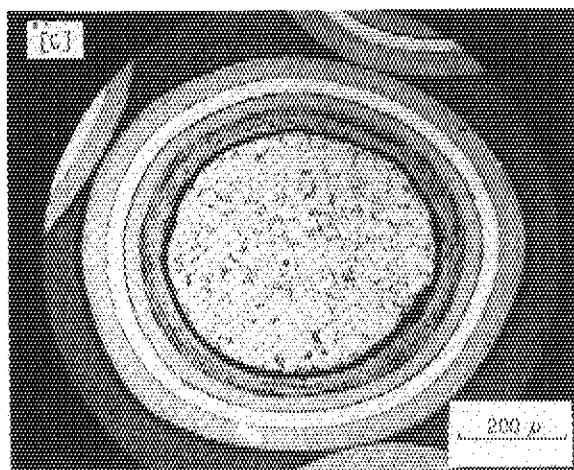
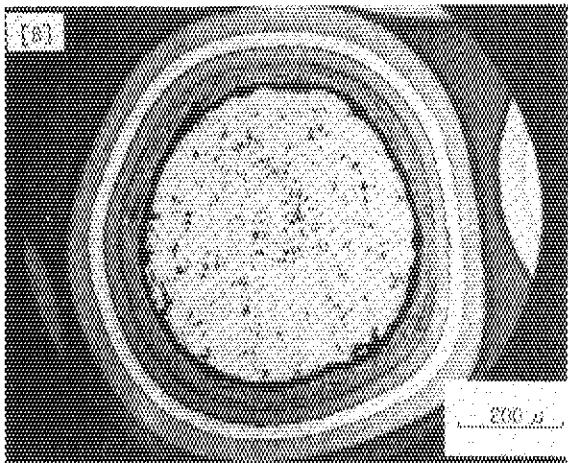
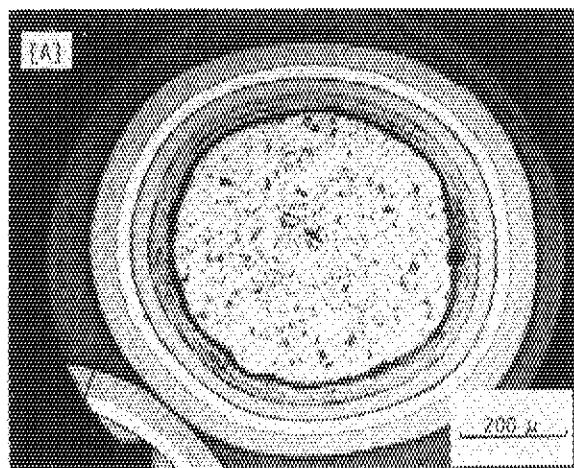


Fig. 12-1 Cross sections of 71FC4-1

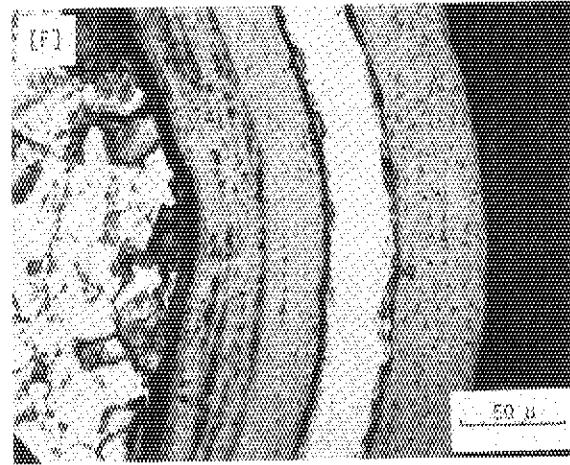
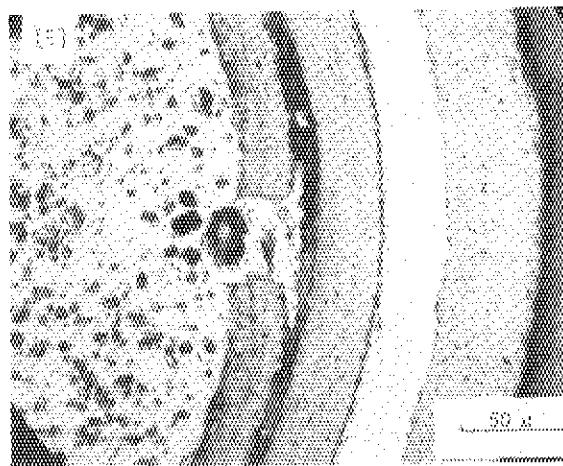
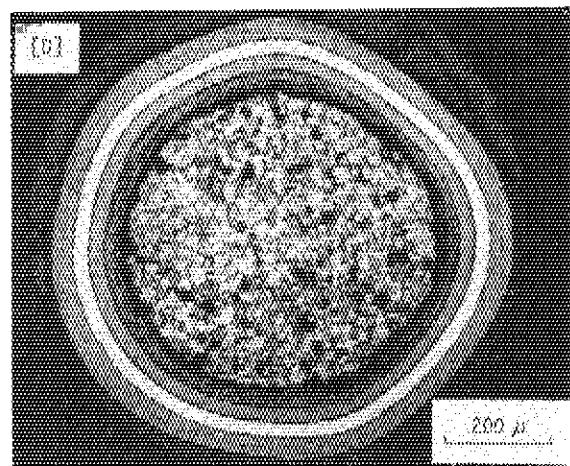
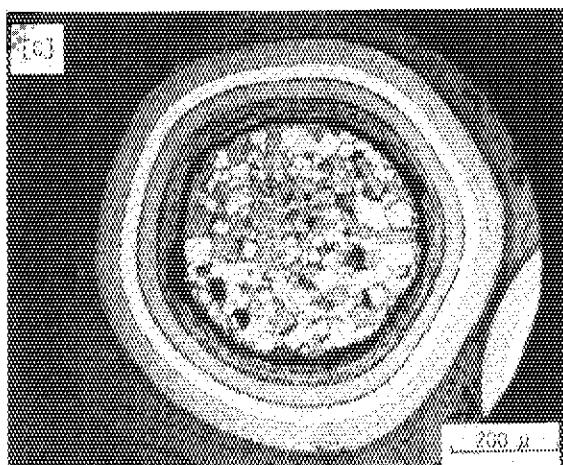
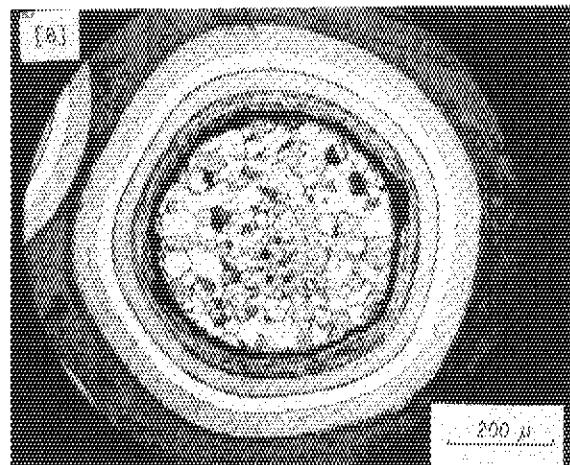
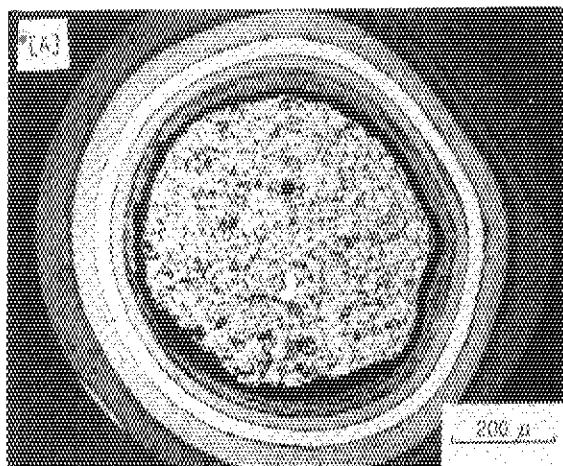


Fig. 12-2 Cross sections of 71FC5-2

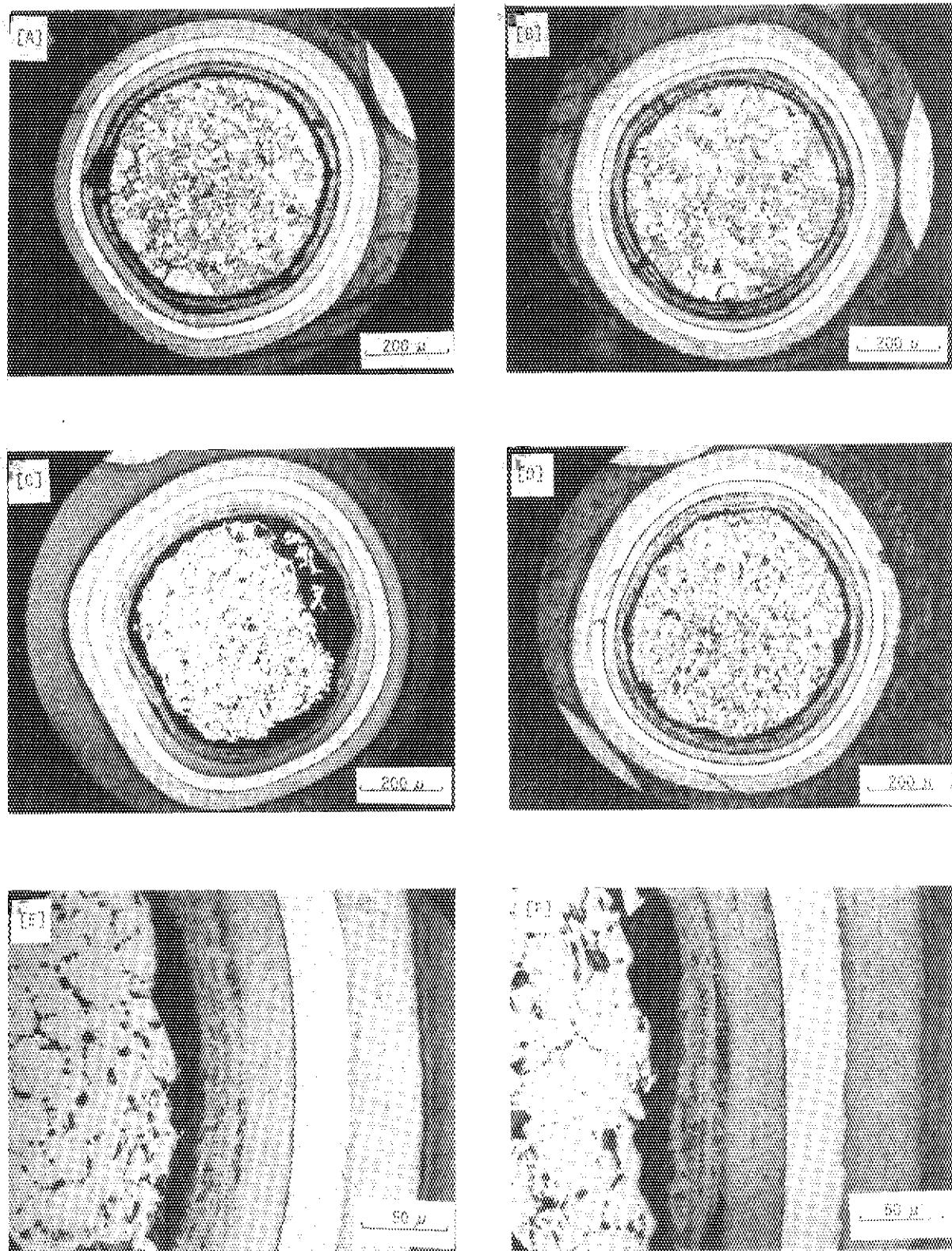


Fig. 12-3 Cross sections of 71FC4-3

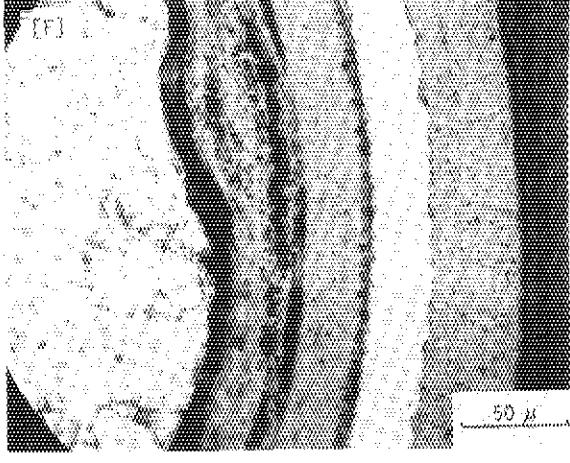
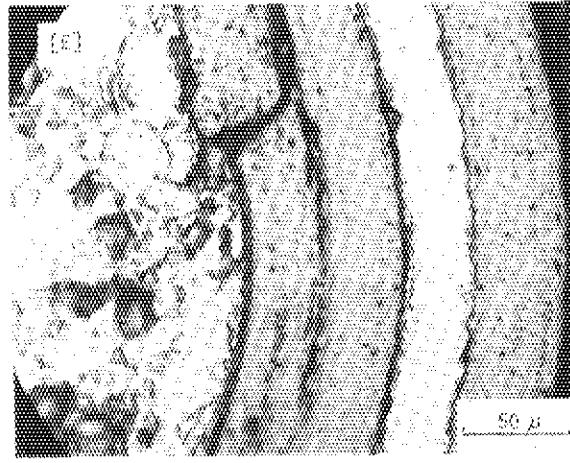
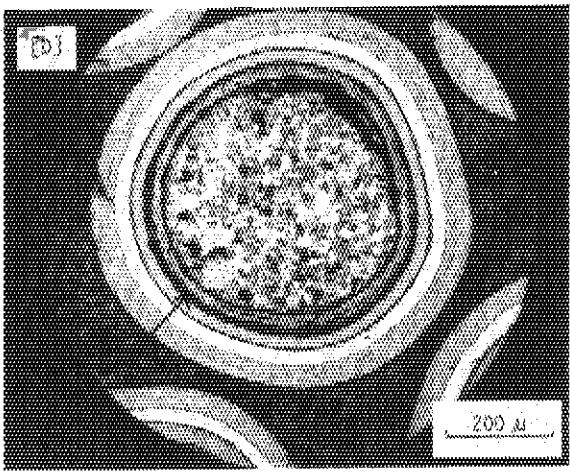
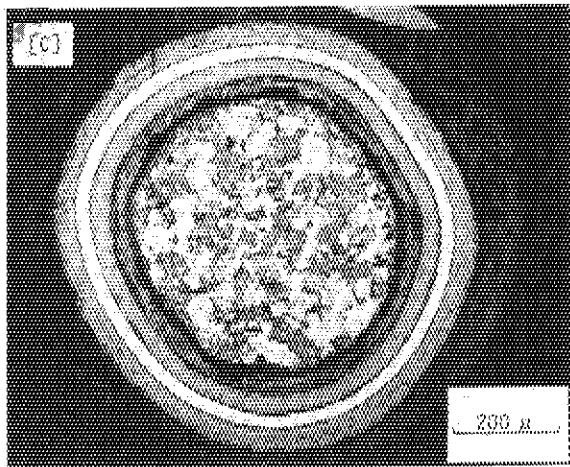
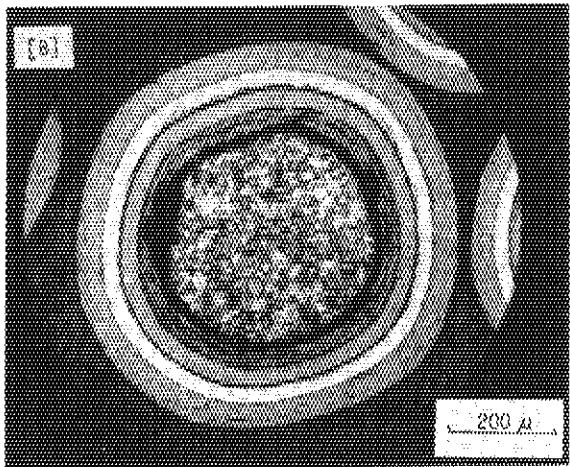
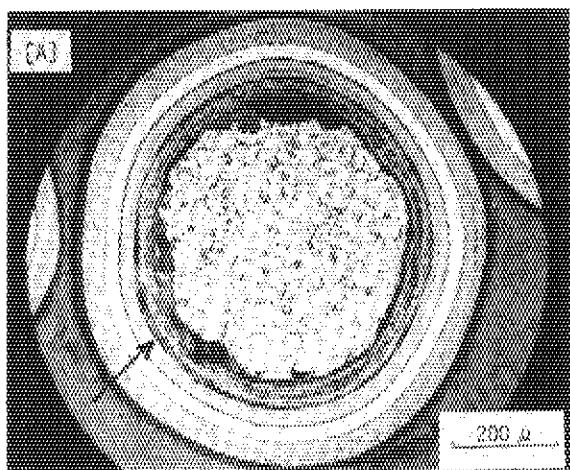
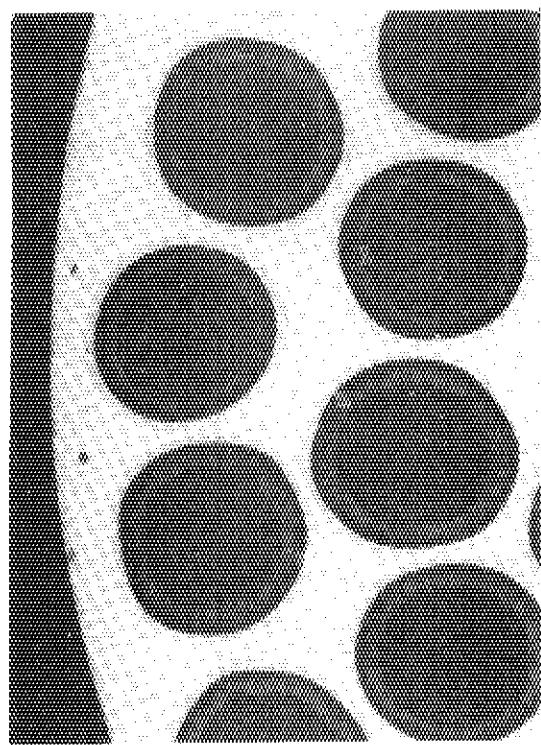
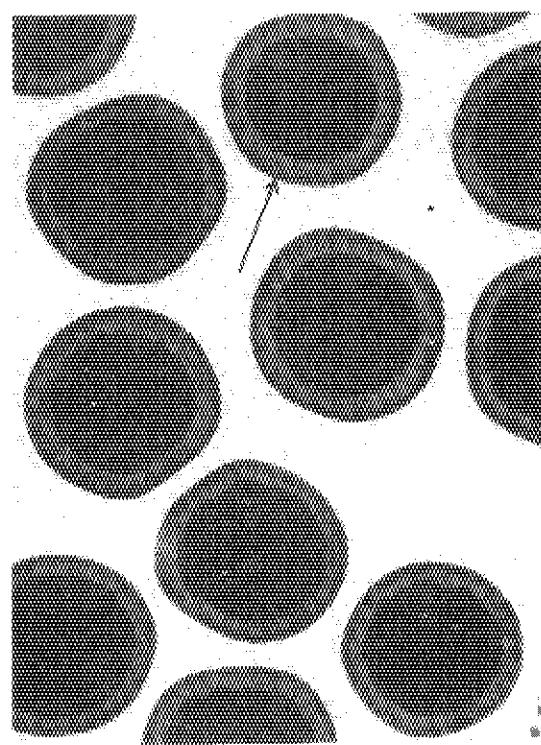


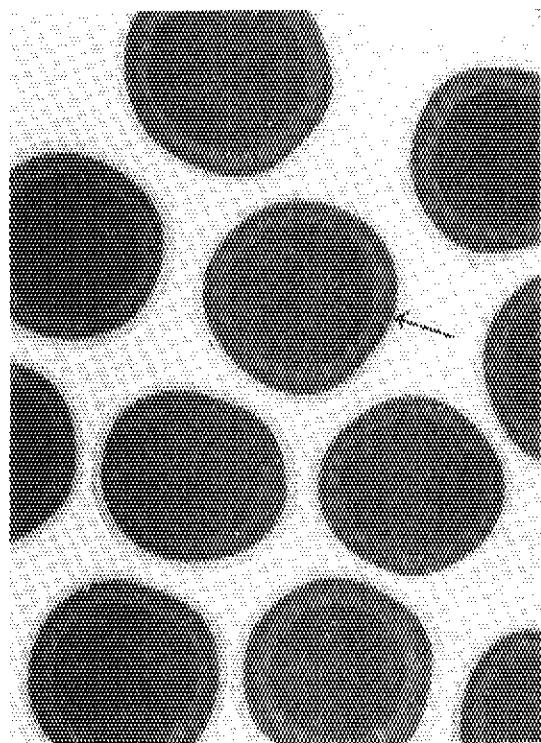
Fig. 12-4 Cross sections of 71FC5-4



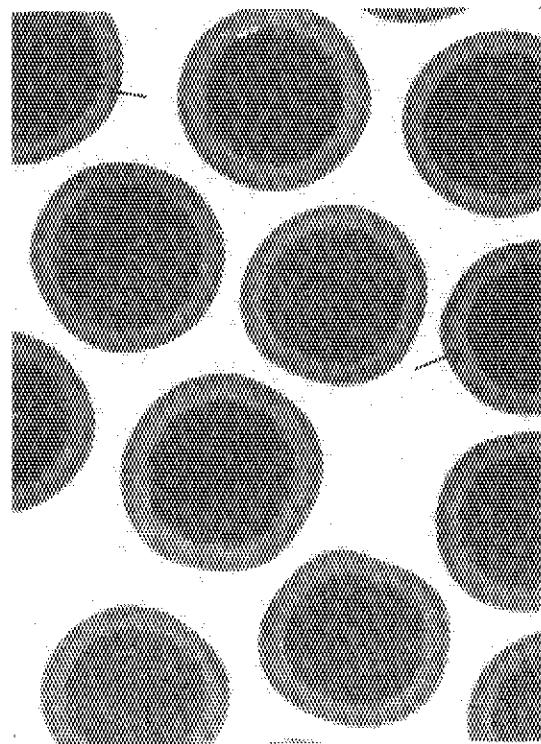
[A] 71FC4-1



[B] 71FC5-2



[C] 71FC4-3



[D] 71FC5-4

Fig. 13 X-ray microradiographs of irradiated particles

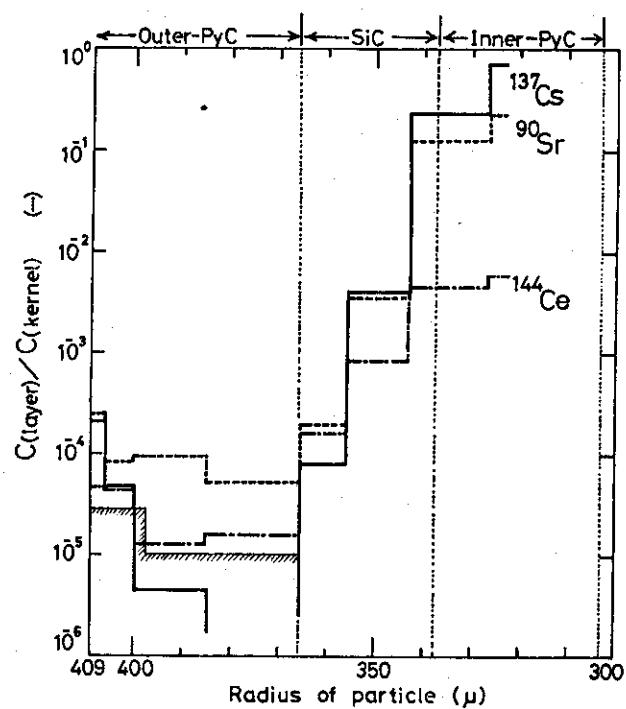


Fig. 14 Fission product distributions of 71FC5-4

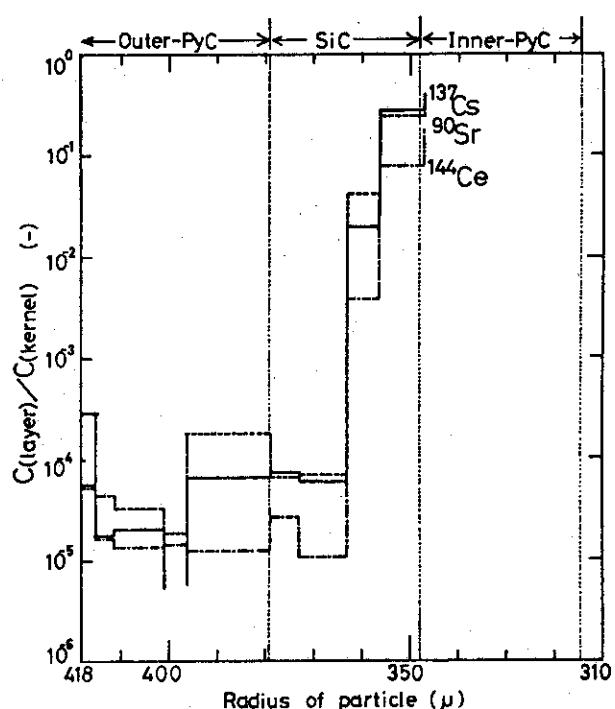


Fig. 15 Fission product distributions of 71FC5-4 after post irradiation annealing

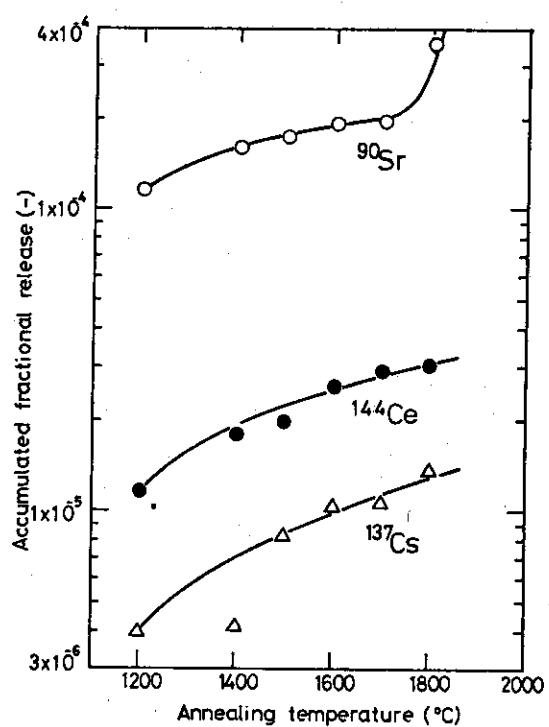
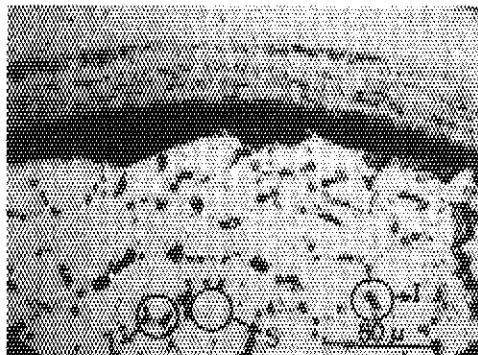
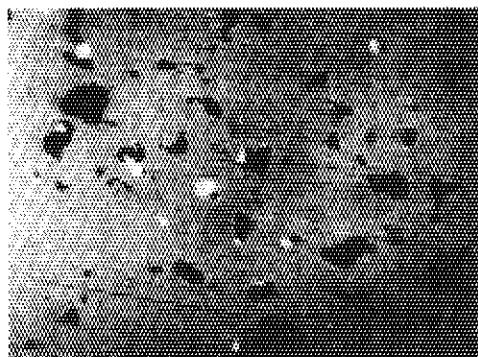


Fig. 16 Fission product release from 71FC5-4 in post irradiation annealing

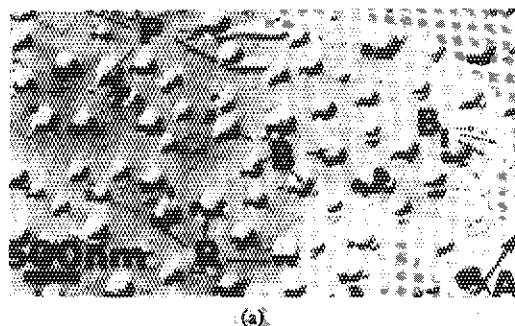


[A] Bubbles and white precipitates appeared in  $\text{UO}_2$  kernel of irradiated 71FC4-3: Only fine bubbles(S) and both large and fine bubbles(L) concentrate in grain boundaries and interlinking(I) is seen.



[B] Bubbles and white precipitates appeared in irradiated  $\text{UO}_2$  (4.6 %FIMA, 1500°C)<sup>(23)</sup>: Note that appearance of white precipitates is very similar as [A].

Fig. 17 Micrographs of irradiated  $\text{UO}_2$



(a)



(b)

Fig. 18 Observation of interaction between bubbles and precipitates<sup>(19)</sup>

Electron micrographs of replicas from an irradiated  $\text{UO}_2$  fuel element. In (a) the operating temperature ( $T$ ) was about 1800 K and the micrograph shows the plane of a grain boundary containing bubbles (B) attached to precipitates (P). Smaller unattached bubbles ( $B_1$ ) are also present. The arrow (A) indicates the proposed direction of the temperature gradient. (R) indicates where precipitates have been removed during preparation. Fig. 1b, from an area closer to the fuel centre, shows interlinking (I) occurs before the bubbles are large enough to break away from the precipitates.