

JAERI - M
83-179

燃料コンパクト用マトリックス材の
黒鉛結晶子の配向性の測定

1983年10月

菊池輝男・辻 宏和・井川勝市・石本 清

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1983

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 榎高野高速印刷

燃料コンパクト用マトリックス材の黒鉛結晶子の配向性の測定

日本原子力研究所 東海研究所 研究炉管理部

菊池 輝男・辻 宏和⁺・井川 勝市⁺・石本 清

(1983年10月6日受理)

被覆粒子の熱分解炭素層の異方性を測定するために開発された光学異方性測定装置を用いて、燃料コンパクトのマトリックス材中の黒鉛粒子の配向性 (OPTAF) を測定するとともに、同じ材料についてX線回折法によりBAFを測定した。その結果、燃料コンパクト用マトリックス材の異方性を、光学的に測定できることがわかった。

Measurements of graphite-filler orientation in graphite/carbon matrices

Teruo KIKUCHI, Hirokazu TSUJI⁺, Katsuichi IKAWA⁺ and
Kiyoshi ISHIMOTO

Department of Research Reactor Operation,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received October 6, 1983)

The orientation of graphite filler in graphite/carbon matrices of fuel compact for HTGR was measured optically by the apparatus developed for measurements of the anisotropy of carbon on coated particles and optical anisotropy factor (OPTAF) was obtained. Comparison of factor thus obtained with BAF obtained by X-ray diffraction method indicated that the anisotropy of the graphite filler of fuel compact can be measured optically.

Keywords: HTGR, Fuel Compact, Graphite Carbon Matrix, Orientation,
Optical Anisotropy Factor, Bacon Anisotropy Factor,
Coated Particles

⁺ Department of Fuels and Materials Research, Tokai, JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	1
2.1 試料	1
2.2 測定方法	2
3. 結果および考察	4
3.1 マトリックスのみの成形体の黒鉛結晶子の配向性	4
3.2 燃料コンパクトの黒鉛結晶子の配向性	6
4. ま と め	6
謝 辞	7
参 考 文 献	7

Contents

1. Introduction	1
2. Experimentals	1
2.1 Materials	1
2.2 Measurement techniques	2
3. Results and discussion	4
3.1 Orientation of graphite powder in graphite/carbon matrices	4
3.2 Orientation of graphite powder in fuel compact	6
4. Conclusion	6
Acknowledgment	7
References	7

1. はじめに

高温ガス炉用燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を、黒鉛・炭素マトリックス中に均一に分散させたもので、黒鉛粉末には天然黒鉛、石油コークス黒鉛または針状コークス黒鉛などが、バインダーにはフェノール樹脂が用いられている。これらの燃料コンパクトは、フェノール樹脂を添着した黒鉛粉末を被覆粒子にオーバーコートしたあと、金型により成形し、焼成炭化して製造される。燃料コンパクトの熱の伝導性、機械的な強さ、熱膨脹などの性質は、燃料の照射による安全解析をすすめるうえで重要な性質であり、いくつか報告がなされている。^{1), 2), 3)} これらの燃料コンパクトの物理的性質は、マトリックス材単独の性質と深い関連があり、さらにこの性質は、ファイラー粒子である天然黒鉛や針状コークス黒鉛粉末の配向状態に支配される。そこで、燃料コンパクトやマトリックス材の物理的性質や照射挙動を理解するために、これらの燃料および材料中の黒鉛粒子の配向性を測定した。

多結晶黒鉛材の異方性についての定量的な表示は、通常 BAF (Bacon Anisotropy Factor) により示される^{4)~6)}。高温ガス炉用被覆燃料粒子の熱分解炭素層の異方性については、光学的に測定する方法が試みられ⁷⁾、実際の被覆粒子燃料へ適用されるに至った。^{8)~10), 13)} 木村ら¹¹⁾は、これらの熱分解炭素層の異方性の測定に用いられた光学的方法を、多結晶黒鉛の異方性の測定に応用し、多結晶黒鉛材の異方性も、熱分解炭素同様、光学的に測定が可能であることを示した。本報告は、木村らの方法を、燃料コンパクトのマトリックス材に適用し、異方性を光学的に測定した結果である。

2. 実験方法

2.1 試料

実験に使用した試料は、多目的高温ガス炉用燃料コンパクトおよび被覆粒子の分散されていないマトリックスのみの成形体である。燃料コンパクトの調製方法は、次の通りである。針状コークス黒鉛粉 (NCG)、または天然黒鉛粉と石油コークス黒鉛粉の混合物 (P2N8) に、アルコールに溶解したフェノール樹脂を添加し、十分に混合したあと、蒸発乾固し、乳鉢により粉碎した。これらのフェノール樹脂を添着した黒鉛粉末は、回転ドラムにより被覆粒子表面上にオーバーコートし、金型により中空円筒形にプレス成形した。生成形体は、不活性雰囲気中で、800℃までゆっくりと昇温して、フェノール樹脂を炭化させ、つづいて真空中で1800℃まで昇温し、この温度に1時間保持し脱ガス処理を行なった。燃料コンパクトの製造に使用した黒鉛粉末の特性を、Table 1 に、これらの黒鉛粉末の走査型電子顕微鏡写真を、Fig. 1 に示す。燃料コンパクトの製造プロセスのフローシートを、Fig. 2 に示す。なお、このプロセスで、被覆粒子の添加を省略すれば、マトリックスのみの成形体を得られる。この場合の製造条件は、燃料コンパクトの場合と全く同じである。この実験において使用した燃料コンパクトおよびマトリックスのみの成形体の仕様を、まとめて Table 2 に示す。

これらの燃料コンパクトおよびマトリックス成形体は、端面と平行に四等分し、さらにこれらの成形体の中心軸と平行に、Fig. 3 に示すように板状および弓形の試片を、ダイヤモンドカッターによ

1. はじめに

高温ガス炉用燃料コンパクトは、被覆燃料粒子を、黒鉛・炭素マトリックス中に均一に分散させたもので、黒鉛粉末には天然黒鉛、石油コークス黒鉛または針状コークス黒鉛などが、バインダーにはフェノール樹脂が用いられている。これらの燃料コンパクトは、フェノール樹脂を添着した黒鉛粉末を被覆粒子にオーバーコートしたあと、金型により成形し、焼成炭化して製造される。燃料コンパクトの熱の伝導性、機械的な強さ、熱膨脹などの性質は、燃料の照射による安全解析をすすめるうえで重要な性質であり、いくつか報告がなされている。^{1), 2), 3)} これらの燃料コンパクトの物理的性質は、マトリックス材単独の性質と深い関連があり、さらにこの性質は、ファイラー粒子である天然黒鉛や針状コークス黒鉛粉末の配向状態に支配される。そこで、燃料コンパクトやマトリックス材の物理的性質や照射挙動を理解するために、これらの燃料および材料中の黒鉛粒子の配向性を測定した。

多結晶黒鉛材の異方性についての定量的な表示は、通常 BAF (Bacon Anisotropy Factor) により示される^{4)~6)}。高温ガス炉用被覆燃料粒子の熱分解炭素層の異方性については、光学的に測定する方法が試みられ⁷⁾、実際の被覆粒子燃料へ適用されるに至った。^{8)~10), 13)} 木村ら¹¹⁾は、これらの熱分解炭素層の異方性の測定に用いられた光学的方法を、多結晶黒鉛の異方性の測定に応用し、多結晶黒鉛材の異方性も、熱分解炭素同様、光学的に測定が可能であることを示した。本報告は、木村らの方法を、燃料コンパクトのマトリックス材に適用し、異方性を光学的に測定した結果である。

2. 実験方法

2.1 試料

実験に使用した試料は、多目的高温ガス炉用燃料コンパクトおよび被覆粒子の分散されていないマトリックスのみの成形体である。燃料コンパクトの調製方法は、次の通りである。針状コークス黒鉛粉 (NCG)、または天然黒鉛粉と石油コークス黒鉛粉の混合物 (P2N8) に、アルコールに溶解したフェノール樹脂を添加し、十分に混合したあと、蒸発乾固し、乳鉢により粉碎した。これらのフェノール樹脂を添着した黒鉛粉末は、回転ドラムにより被覆粒子表面上にオーバーコートし、金型により中空円筒形にプレス成形した。生成形体は、不活性雰囲気中で、800℃までゆっくりと昇温して、フェノール樹脂を炭化させ、つづいて真空中で1800℃まで昇温し、この温度に1時間保持し脱ガス処理を行なった。燃料コンパクトの製造に使用した黒鉛粉末の特性を、Table 1 に、これらの黒鉛粉末の走査型電子顕微鏡写真を、Fig. 1 に示す。燃料コンパクトの製造プロセスのフローシートを、Fig. 2 に示す。なお、このプロセスで、被覆粒子の添加を省略すれば、マトリックスのみの成形体を得られる。この場合の製造条件は、燃料コンパクトの場合と全く同じである。この実験において使用した燃料コンパクトおよびマトリックスのみの成形体の仕様を、まとめて Table 2 に示す。

これらの燃料コンパクトおよびマトリックス成形体は、端面と平行に四等分し、さらにこれらの成形体の中心軸と平行に、Fig. 3 に示すように板状および弓形の試片を、ダイヤモンドカッターによ

り切り出し、板状の試片は BAF の測定に、弓形の試片は光学異方性係数 (OPTAF) の測定に使用した。BAF 用試料は、その両面を #1200 エメリーペーパーにより研磨し、そのまま測定に供した。OPTAF 用の試料は、成形圧方向と平行な面を、ダイヤモンド研磨盤により順次粒度を下げて研磨し、最終的には $0.25 \mu\text{m}$ のダイヤモンドペーストにより、仕上げ研磨を1分間行なった。OPTAF の測定に供する試料については、その研磨面の状態が、測定結果に重要な影響を及ぼすために^{1,2)}、試料表面の仕上げは、特に念入りに行なった。OPTAF の測定に使用した、マトリックスのみの成形体および燃料コンパクトの研磨面を Fig. 4 ~ Fig. 10 に示す。なお、燃料コンパクトについては、薄片試料の切出しが困難であるために、BAF の測定は行なわなかった。

2.2 測定方法

光学異方性係数 (OPTAF) は、光学的一軸性結晶の複反射の理論に基き、主として被覆燃料粒子の熱分解炭素層の異方性を、定量的に示す指数として導出されたものである。ここで、結晶性炭素は、複反射をおこすが、無定形炭素は、直線偏光と入射角の影響を全く受けず、2つの反射に対して、加成性が成り立つと考えている。OPTAF は、Grübmeier ら⁷⁾ の定義に従えば、直線偏光下における試料の最小と最大の反射率の比、 r_x / r_z をもって示される。これは、熱分解炭素にかぎらず、燃料コンパクトのマトリックス材のような、黒鉛粒子と無定形炭素から成る物質に対しても、適用できると考えた。本実験では、マトリックス材に対して、OPTAF と BAF の両者を測定し、さらに計算により OPTAF から BAF を求め、実測値との比較を行なった。

BAF (Bacon Anisotropy Factor) は、Bacon⁴⁾ によれば、次のようにあらわされる。

$$\text{BAF} = \frac{\sigma_{ox}}{\sigma_{oz}} = \frac{1}{2} \frac{\int I(\phi) \sin^3 \phi d\phi}{\int I(\phi) \cos^2 \phi \sin \phi d\phi} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 σ_{ox} 、 σ_{oz} は、それぞれ OX 方向および OZ 方向の熱膨脹係数、 $I(\phi)$ は OZ 方向 (成形圧方向) に対して、 ϕ だけ傾いたところにおける単位立体角あたりの C 軸の密度である。

Grübmeier ら⁷⁾ は、OPTAF と BAF との関係として、次の式を誘導した。

$$\text{OPTAF} = \frac{r_x}{r_z} = \frac{1 + \eta + \eta \cdot \text{BAF}}{2\eta + \text{BAF}} \dots\dots\dots (2)$$

黒鉛単結晶において、振動方向が主軸に垂直および平行であるときの反射率を、それぞれ r_a 、 r_c 、試料の反射率を r_x 、 r_z とする。偏光の方向と優先方位の方向 (C 軸) が平行ならば、

$$r_x = r_a + \frac{1}{2} (r_c - r_a) R_{oz} \dots\dots\dots (3)$$

垂直ならば、

$$r_z = r_c + (r_a - r_c) R_{oz} \quad \dots\dots\dots (4)$$

である。 R_{oz} は、Price ら⁵⁾の定義したオリエンテーションパラメーターである。 R_{oz} と BAF との間には、次の関係がある。

$$BAF = \frac{2(1 - R_{oz})}{R_{oz}} \quad \dots\dots\dots (5)$$

(3)、(4)および(5)式と、 $r_a / r_c = \eta$ から(2)式が得られる。

BAF の測定は、Bacon の方法⁴⁾に従って行なった。成形圧方向と平行に切出した板状試料を、X線ビームに対して 13° 傾けてセットし、その試料から 0.5 cm の位置に、X線乾板を垂直にセットした。X線ビームを一定時間照射したあと、X線乾板を現像し、乾板上に生じている円形の回折リングの濃度を、 0° から 90° まで 10° 間隔で、黒化度計により測定した。これらの濃度を、(1)式に代入し、図積分により BAF を求めた。

OPTAF の測定は、次のようにして行なった。測定は、OPTAF 測定用として特別に製作された、偏光顕微鏡¹⁰⁾(オリンパス光学製)を使用した。偏光顕微鏡の視野の中心に、OPTAF測定用の円形の視野が、特別にもうけられている。試料は、偏光顕微鏡の回転ステージ上に、ステージの 0° と成形圧の方向とを一致させてセットし、光源(タングステンランプ)からの光を、偏光板を通して直線偏光に変え、試料の研磨面に入射し、反射してぐる光を、光電子増倍管により増巾し、微小電流計によりその強度を測定した。なお、ステージは手動によりゆっくりと回転させ、その各々の角度における反射率を読み、反射率の最大値と最小値 r_x 、 r_z およびその値を示した角を読みとった。

OPTAF の測定視野は、段階的に変えられるが、最大のサイズは $176 \mu\text{m}$ で、以下 $88 \mu\text{m}$ 、 $40 \mu\text{m}$ ……となっている。被覆燃料粒子の熱分解炭素層の異方性を測定するには、測定視野はある程度小さい方がよく、通常 $10 \mu\text{m}$ 程度のスポットを使用しているが、¹⁰⁾マトリックス材の場合、黒鉛粉末ファイラーの粒径の平均は $20 \mu\text{m}$ であるので、これより大きな寸法の視野を用いる必要がある。本実験では、種々の測定視野について OPTAF を測定し、そのなかから最も適当なものを選んだ。

マトリックス材の OPTAF は、非常にせまい領域の測定値であるために、その値が必ずしも試料を代表しているわけではないから、試料断面内を数多く測定し、その平均をとるという操作が必要である。本実験の場合は、各試料の断面について15点測定し、それぞれの測定値の加圧方向に対する正射影の平均をもって、その試料の OPTAF とした。しかし、このような方法では、測定時間も長くかかるうえに、煩雑であるために、簡便法について実験し、両者の比較を行なった。簡便法は、ツァイス社製偏光顕微鏡に、光度計をとりつけ、試料の中心1箇所のみ測定し、これをもって試料の OPTAF とした。X線の回折強度から BAF を求める簡便法については、野田らの誘導した式^{16),17)}を用いた。燃料コンパクトの OPTAF の測定に関しては、マトリックス内における黒鉛粒子の配向性を測定するだけにとどめた。

3. 結果及び考察

3.1 マトリックスのみの成形体の黒鉛結晶子の配向性

Fig. 11および Fig. 12は、測定視野の寸法とOPTAFとの相関を調べた結果で、Fig. 11に測定視野40 μm と88 μm で測定したOPTAFの相関を、Fig. 12に測定視野88 μm と176 μm で測定したOPTAFの相関を示す。Fig. 13および Fig. 14は、測定視野の寸法と黒鉛粒子のC軸方向の優先的配向方向の相関を調べた結果で、Fig. 13に測定視野40 μm と88 μm における優先的配向方向の相関を、Fig. 14に測定視野88 μm と176 μm で測定した優先的配向方向の相関を示す。これらは、同じ位置を測定視野を変えて測定しており、黒鉛の結晶子が十分に大きく、かつ無定形炭素を含んでいなければ、同じ値を示すはずであるが、測定視野に比較して結晶子が小さいために、このようにならついた値を示している。しかし、測定視野を大きくすれば、相対的に黒鉛粉末の粒径および配向方向が平均化されるために、測定値の相関はよくなる。以上の結果から、以後の測定は88 μm の測定視野を用いて行なった。

マトリックスのみの成形体のOPTAFの測定結果を、Fig. 15～Fig. 18に示す。これらの図の右肩の数字は、試片の採取位置を示す。OPTAFは、各試片について各15点測定し、それぞれの測定点においてベクトル表示している。これらの図において、線分の長さはOPTAFの大小に、その方向はC軸の優先的な配向方向に対応している。比較のめやすとして、OPTAF 1.2と1.4を、これらの図の下端に記載した。これらの測定結果から、マトリックスのみの成形体においては、黒鉛粒子のC軸は、成形圧方向に優先的に配向していることがわかる。また、OPTAFは、マトリックス材の断面内において全て一定でなく、位置により値が異なることがわかる。Fig. 15～Fig. 18の測定値の平均をとり、それをTable 3に示す。

針状コークス黒鉛系マトリックスで、バインダー添加率10%の場合 (Fig. 15)、マトリックス内部においてはほぼ一様なOPTAFを示しているのに対し、バインダー添加率20%の場合 (Fig. 16)、両端部において黒鉛粉末の優先的な配列が、顕著に認められるのに対し、内部においてはOPTAFの値が小さくなっている。これは、マトリックスの成形の際、成形圧が成形体内部で一様でなく、両端部において強いことと関係しているものと考えられる。バインダー添加率10%と20%の針状コークス黒鉛系マトリックスにおいては、Fig. 15, Fig. 16およびTable 2から、バインダー添加率10%の方が異方質であることがわかる。天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系マトリックスの場合、マトリックス材の位置による異方性の違いは、ほとんどみられない。バインダー添加率10%と20%では、バインダー添加率20%の方が異方質である。(Fig. 17, Fig. 18およびTable 3) 通常、バインダー添加率の増加は、異方性を緩和する方向に作用する。本実験と同じバッチのマトリックス成形体の熱膨張の測定においても、バインダー添加率の増加に対して、異方性は減少していた²⁾。Fig. 19の断面写真においても、マトリックス中の黒鉛粒子は、成形圧方向に優先的に配向しており、バインダー添加率の増加に対して、この配列が若干みだれてくるのがわかる。

Fig. 20は、簡便法によるOPTAFとオリンパス光学製装置によるOPTAFを比較したものである。オリンパス光学製装置によるOPTAFは、試料毎に測定した15点の平均であり、簡便法

による OPTAF は、ツァイス製装置による各試料の中心の 1 点の測定値である。なお、各マトリックス毎の平均値も、同図に示した。この図において、試料毎の測定値はばらついているが、マトリックス毎の平均値では、両者の差は 10% 以内で一致しており、OPTAF の測定は、簡便法でも十分に実用に供しうると考えられる。

Fig. 21 は、各マトリックス材について、BAF の実測値と OPTAF の実測値との相関を調べたものである。両者にはよい相関がみられる。なお、Fig. 21 以下の議論においては、OPTAF の値は、全てオリンパス光学製装置により測定した値のことである。Fig. 22 は、(2)式を用いて OPTAF の実測値から BAF を算出し、これと BAF の実測値を比較したもので、BAF の実測値の方が、推定値よりも大きい。なお、この計算には、 $\eta = 3.5$ を用いた。^{9),13)} OPTAF の実測においては、気孔や粒界などの影響をうけやすく、このために推定値が若干小さくなったものと考えられるが、詳細は不明である。Fig. 23 は、近似法により求めた BAF と、Bacon の方法により求めた BAF との相関を示したもので、両者よく一致しており、BAF の近似法は、実用に十分供し得るものと考えられる。

Fig. 17, Fig. 18 および Table 3 にみられるように、天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系マトリックスにおいては、フェノール樹脂添加率の増加に対して、異方性は増加しており、これは今まで得られた知見と逆の結果である。マトリックスのみの成形体の熱膨脹、電気抵抗および超音波伝播速度の測定^{2),14),15)}によれば、フェノール樹脂の添加率の増加に対して、異方性は減少している。そこで、Fig. 17 および Fig. 18 の結果を再チェックする目的で、マトリックス組成は同じであるが、バッチの異なるマトリックス成形体について、OPTAF および BAF の測定を行なった。その結果を、Fig. 24 および Fig. 25 に示す。これらの測定値から平均値を求め、BAF との対応を、Fig. 26 に示す。フェノール樹脂の添加率の増加に対して、OPTAF および BAF は減少ないしほぼ同じ値を示し、従来の結果と一致している。Fig. 19 にもみられる通り、マトリックス中の黒鉛粉末の層面は、成形圧方向と垂直に作用する傾向があり、フェノール樹脂の添加は、これらの黒鉛粒子の優先的な配列を、緩和するように作用する。従って、Fig. 17 および Fig. 18 の天然黒鉛-石油コークス黒鉛混合系マトリックスにみられた、フェノール樹脂の添加率の増加に対する異方性の増加は、フェノール樹脂の偏在のような、製造工程における処理条件のばらつきの結果であると推定される。

本実験の測定方法の信頼性を確認し、本実験データと種々の物性値との相関を調べることを目的に、従来データとの比較を試みた。マトリックスのみの成形体について、これまでに測定された物性値としては、熱膨脹、電気抵抗および超音波伝播時間がある。^{14),15)} 黒鉛材の熱膨脹、電気抵抗および BAF のデータは、松尾のデータ¹⁶⁾を引用した。Fig. 29 は、針状コークス黒鉛系マトリックスについて、マトリックス中の超音波伝播時間から求めた異方性係数と BAF との比較である。Fig. 30 は、針状コークス黒鉛、ギルソナイトコークス黒鉛、石油コークス黒鉛の熱膨脹から求めた異方性係数と BAF との相関関係に、本実験のマトリックス材の熱膨脹から求めた異方性係数および BAF を対応させたものである。Fig. 31 は、針状コークス黒鉛およびギルソナイトコークス黒鉛の電気抵抗から求めた異方性係数と BAF との相関関係に、本実験の針状コークス黒鉛系マトリックスの電気抵抗から求めた異方性係数および BAF を、対応させたものである。黒鉛材の場合、電気抵抗および熱膨脹の異方性が増加すれば、これに対応して BAF も増加している。本実験のマトリックス成形体は、これらの黒鉛材より更に異方質で、電気抵抗および熱膨脹から求めた異方性係数と BAF との関係は、

黒鉛材と同様な挙動を示していた。また、本実験のマトリックスに関して、電気抵抗および熱膨張から求めた異方性係数は、X線回折から求めた異方性係数（BAF）より大きいが、超音波伝播時間から求めた異方性係数の場合、これと逆になっている。

3.2 燃料コンパクトの黒鉛結晶子の配向性

フェノール樹脂添加率20%の針状コークス黒鉛系マトリックスに、被覆粒子を22%充填した燃料コンパクトについて、成形圧と平行および垂直方向の断面の黒鉛粉末の配向状態を調べた。これらのOPTAFの測定視野は、 $88\ \mu\text{m}$ である。測定結果を、Fig. 30およびFig. 31に示す。Fig. 30の試料の成形圧方向は、上下方向であるが、Fig. 31の試料のそれは、紙面に垂直方向である。いずれの場合も、被覆粒子近傍では、C軸の優先的配向方向は、被覆粒子表面の法線方向と一致しており、黒鉛粒子の層面が、被覆粒子の表面と平行に配列している様子がわかる。これは、燃料コンパクトを、オーバーコートプレス法により製造しているためである。さらに、オーバーコート粒子の境界においては、成形圧の影響で、このような黒鉛粒子の層面の配列がみだれていることがわかる。これらの断面においては、全く方向性を示さない領域もみられるが、こゝでは黒鉛粒子がランダムに配列しているか、または、黒鉛粒子の層面と垂直に、OPTAFを測定しているためと考えられる。また、Fig. 31では、黒鉛粒子の配向性は特定方向にかたよらず、一様に被覆粒子まわりに放射状に配列しているのに対し、Fig. 30では、成形圧と平行方向においてOPTAFの値が大きくなる傾向を示し、オーバーコート処理の際に、被覆粒子のまわりに円周状に整列した黒鉛粒子の層面も、型込み成形の際の成形圧により、一部成形圧と垂直に再配列されると考えられる。これは、燃料コンパクトの熱膨張が、成形圧方向において大きく、これと垂直方向において小さいこと²¹からも説明できる。なお、Fig. 30の金相写真を、Fig. 10に示す。但し、Fig. 10は裏焼きである。

4. ま と め

被覆粒子の熱分解炭素層の異方性を測定するために開発された光学異方性測定装置を用いて、種々の燃料コンパクト用マトリックス材中の黒鉛粒子の配向性（OPTAF）を測定した。その結果、マトリックス中の黒鉛粒子の層面は、成形圧方向と垂直に配向していることがわかった。これらのOPTAFの実測値を、Grübmeierらの誘導した式に従ってBAFに換算し、同じ試料について測定したBAFと比較した。その結果、BAFの実測値の方が、OPTAFからの換算値よりも大きかったが、両者の間にはよい相関がみられ、燃料コンパクト用マトリックス材の異方性を、光学的に測定できることがわかった。燃料コンパクトについても、OPTAFを測定した。その結果、黒鉛粒子の層面は、局所的には被覆粒子のまわりに円周状に配列しているが、全体的にながめた場合、成形圧と垂直に配向しているのがみられた。

黒鉛材と同様な挙動を示していた。また、本実験のマトリックスに関して、電気抵抗および熱膨脹から求めた異方性係数は、X線回折から求めた異方性係数（BAF）より大きい。超音波伝播時間から求めた異方性係数の場合、これと逆になっている。

3.2 燃料コンパクトの黒鉛結晶子の配向性

フェノール樹脂添加率20%の針状コークス黒鉛系マトリックスに、被覆粒子を22%充填した燃料コンパクトについて、成形圧と平行および垂直方向の断面の黒鉛粉末の配向状態を調べた。これらのOPTAFの測定視野は、 $88\ \mu\text{m}$ である。測定結果を、Fig. 30およびFig. 31に示す。Fig. 30の試料の成形圧方向は、上下方向であるが、Fig. 31の試料のそれは、紙面に垂直方向である。いずれの場合も、被覆粒子近傍では、C軸の優先的配向方向は、被覆粒子表面の法線方向と一致しており、黒鉛粒子の層面が、被覆粒子の表面と平行に配列している様子がわかる。これは、燃料コンパクトを、オーバーコートプレス法により製造しているためである。さらに、オーバーコート粒子の境界においては、成形圧の影響で、このような黒鉛粒子の層面の配列がみだれていることがわかる。これらの断面においては、全く方向性を示さない領域もみられるが、こゝでは黒鉛粒子がランダムに配列しているか、または、黒鉛粒子の層面と垂直に、OPTAFを測定しているためと考えられる。また、Fig. 31では、黒鉛粒子の配向性は特定方向にかたよらず、一様に被覆粒子まわりに放射状に配列しているのに対し、Fig. 30では、成形圧と平行方向においてOPTAFの値が大きくなる傾向を示し、オーバーコート処理の際に、被覆粒子のまわりに円周状に整列した黒鉛粒子の層面も、型込み成形の際の成形圧により、一部成形圧と垂直に再配列されると考えられる。これは、燃料コンパクトの熱膨脹が、成形圧方向において大きく、これと垂直方向において小さいこと²⁾からも説明できる。なお、Fig. 30の金相写真を、Fig. 10に示す。但し、Fig. 10は裏焼きである。

4. ま と め

被覆粒子の熱分解炭素層の異方性を測定するために開発された光学異方性測定装置を用いて、種々の燃料コンパクト用マトリックス材中の黒鉛粒子の配向性（OPTAF）を測定した。その結果、マトリックス中の黒鉛粒子の層面は、成形圧方向と垂直に配向していることがわかった。これらのOPTAFの実測値を、Grübmeierらの誘導した式に従ってBAFに換算し、同じ試料について測定したBAFと比較した。その結果、BAFの実測値の方が、OPTAFからの換算値よりも大きかったが、両者の間にはよい相関がみられ、燃料コンパクト用マトリックス材の異方性を、光学的に測定できることがわかった。燃料コンパクトについても、OPTAFを測定した。その結果、黒鉛粒子の層面は、局所的には被覆粒子のまわりに円周状に配列しているが、全体的にながめた場合、成形圧と垂直に配向しているのがみられた。

謝 辞

本研究を実施するにあたって、御激励を賜った岩本多実燃料工学部長に、謝意を表す。OPTAF および BAF の測定にあたっては、燃料照射研究室、小林紀昭氏の御協力をいただいた。同氏に謝意を表す。本報告を刊行するにあたり御配慮いただいた、桜井研究炉管理部長に謝意を表す。

参 考 文 献

1. 菊池輝男, 岩本多実, 井川勝市, JAERI-M 9287, (1981)
2. 菊池輝男, 岩本多実, 井川勝市, JAERI-M 9052, (1980)
3. 菊池輝男, 飛田 勉, 井川勝市, 岩本多実, JAERI-M 82-206, (1982)
4. Bacon, G. E., J. Appl. Chem., 6, PP 477 (1956)
5. Price, R. J., Bokros, J. C., J. Appl. Phys. 36, PP 1897 (1965)
6. 野田稲吉, 稲垣道夫, 加藤 肇, 田中 満, 工化誌, 65, PP 463 (1962)
7. Grubmeier, H. B., Sheidler, G. P., Jul-597-RW, (1967)
8. Delle, W. W., Koizlike, K. K., Luhleich, H., Nickel, H., Jul-1333, (1976)
9. Koizlik, K., Tauber, K., Nickel, H., Wasmund, H., Jul-1082-RW, (1974)
10. 小林紀昭, 未発表データ (1974)
11. 木村啓士, 田中英彦, 安田栄一, 鈴木弘茂, 炭素, No.76, PP 7-12, (1974)
12. Koizlik, K., Jul-868-RW, (1972)
13. 岩本多実, 菊池輝男, 飛田 勉, 小川清行, 菊池 章, 真鍋勝美, 甲斐 洋, 後藤雅和, 阪西健一, 未発表データ, (1976)
14. 岩本多実, 菊池輝男, 飛田 勉, 真鍋勝美, 甲斐 洋, 後藤雅和, 阪西健一, 未発表データ, (1977)
15. 松尾秀人, 私信, (1976)
16. 稲垣道夫, 炭素, 18, PP 18-26, (1963)

謝 辞

本研究を実施するにあたって、御激励を賜った岩本多実燃料工学部長に、謝意を表す。OPTAF および BAF の測定にあたっては、燃料照射研究室、小林紀昭氏の御協力をいただいた。同氏に謝意を表す。本報告を刊行するにあたり御配慮いただいた、桜井研究炉管理部長に謝意を表す。

参 考 文 献

1. 菊池輝男, 岩本多実, 井川勝市, JAERI-M 9287, (1981)
2. 菊池輝男, 岩本多実, 井川勝市, JAERI-M 9052, (1980)
3. 菊池輝男, 飛田 勉, 井川勝市, 岩本多実, JAERI-M 82-206, (1982)
4. Bacon, G. E., J. Appl. Chem., 6, PP 477 (1956)
5. Price, R. J., Bokros, J. C., J. Appl. Phys. 36, PP 1897 (1965)
6. 野田稲吉, 稲垣道夫, 加藤 肇, 田中 満, 工化誌, 65, PP 463 (1962)
7. Grubmeier, H. B., Sheidler, G. P., Jul-597-RW, (1967)
8. Delle, W. W., Koizlike, K. K., Luhleich, H., Nickel, H., Jul-1333, (1976)
9. Koizlik, K., Tauber, K., Nickel, H., Wasmund, H., Jul-1082-RW, (1974)
10. 小林紀昭, 未発表データ (1974)
11. 木村啓士, 田中英彦, 安田栄一, 鈴木弘茂, 炭素, No.76, PP 7-12, (1974)
12. Koizlik, K., Jul-868-RW, (1972)
13. 岩本多実, 菊池輝男, 飛田 勉, 小川清行, 菊池 章, 真鍋勝美, 甲斐 洋, 後藤雅和, 阪西健一, 未発表データ, (1976)
14. 岩本多実, 菊池輝男, 飛田 勉, 真鍋勝美, 甲斐 洋, 後藤雅和, 阪西健一, 未発表データ, (1977)
15. 松尾秀人, 私信, (1976)
16. 稲垣道夫, 炭素, 18, PP 18-26, (1963)

Table 1 Characteristics of graphite powder

Graphite	Needle coke graphite	Petroleum coke graphite	Natural graphite
Crystallite size Lc Å	420	620	1500
Crystallite size La Å	1300	1700	3900
002 d spacing Å	3.37	3.37	3.36
Median particle size µm	< 20	< 20	< 20
Density g/cm ³	Real	2.15	2.25
	Bulk	0.69	0.66
Specific surface area m ² /g	7.9	1.2	7.1

Table 2 Type of graphite/carbon matrices and fuel compact

Batch No.	Graphite Powder	Binder	Binder content (%)	Dimension dia. × length (OD×ID×L) (mm)	C.P.P. acking fraction (%)	Forming method
73KYON 1	A	Phenol rosin	10	24×40	—	Mold
73KYON 2	A	"	20	"	—	"
73KYOP 1	B	"	10	"	—	"
73KYOP 2	B	"	20	"	—	"
74KYOP 1	B	"	10	36×18×36	—	"
74KYOP 2	B	"	20	"	—	"
73KYONF 2	A	"	20	24×40	22	"

A: Needle coke graphite

B: Natural graphite : Petroleum coke graphite (4 : 1)

Table 3 Comparison of BAF and OPTAF

Sample		BAF			OPTAF	
		X-ray method	convenient method	optical method	OLYMPUS	ZEISS
NCG 20	1	1.65	1.67	1.77	1.20	1.24
	2	1.85	1.98	1.47	1.14	1.32
	3	1.77	1.77	1.43	1.13	1.26
	4	2.05	2.02	1.66	1.19	1.28
	Av.	1.83	1.86	1.58	1.16	1.27
NCG 10	1	2.33	2.41	1.65	1.19	1.28
	2	2.14	2.20	1.78	1.22	1.26
	3	2.11	2.28	1.89	1.25	1.29
	4	2.34	2.56	1.69	1.20	1.31
	Av.	2.23	2.36	1.75	1.21	1.28
P2N8-20	1	3.06	3.03	2.21	1.33	1.33
	3	2.81	2.93	2.51	1.40	1.40
	4	2.76	2.65	1.93	1.26	1.33
	Av.	2.88	2.87	2.22	1.33	1.35
P2N8-10	1	1.74	1.90	1.80	1.23	1.28
	3	2.10	2.09	1.67	1.19	1.17
	4	1.87	1.88	1.60	1.17	1.13
	Av.	1.90	1.96	1.69	1.20	1.19

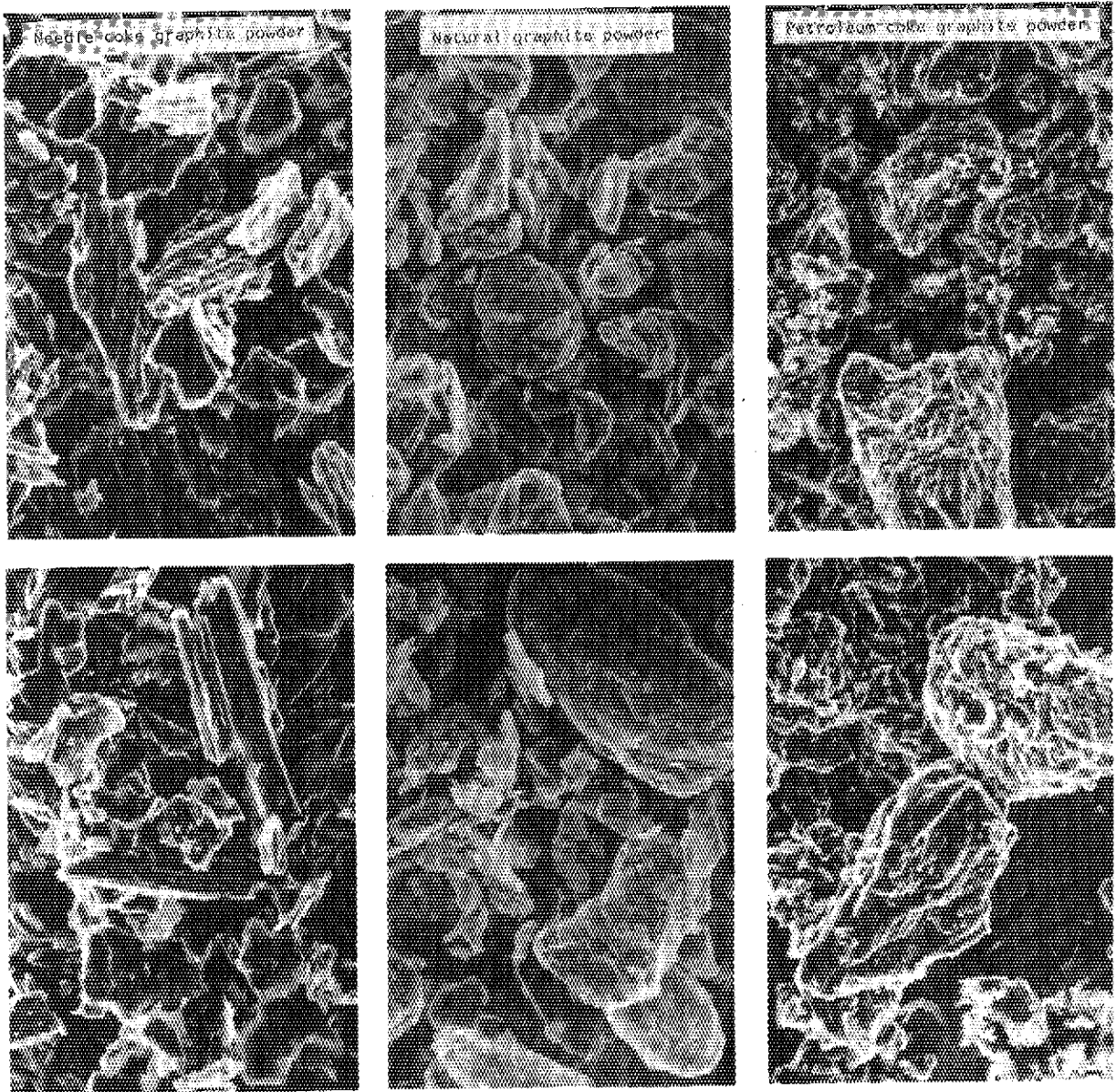


Fig. 1 Scanning electron micrographs of graphite powder

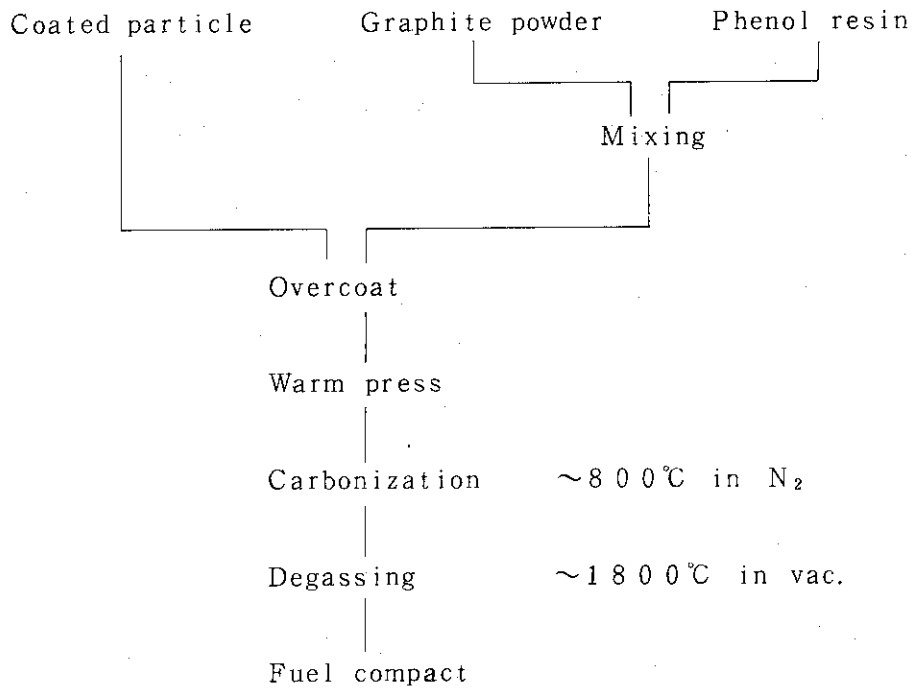


Fig. 2 Manufacturing process of fuel compact

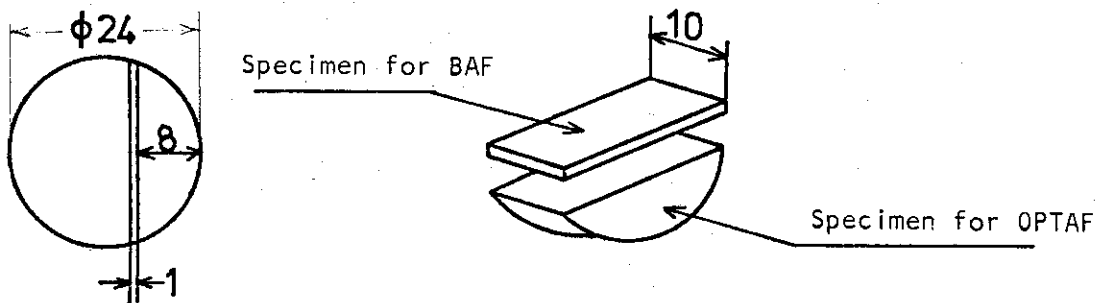


Fig. 3 Cutting method of graphite/carbon matrix

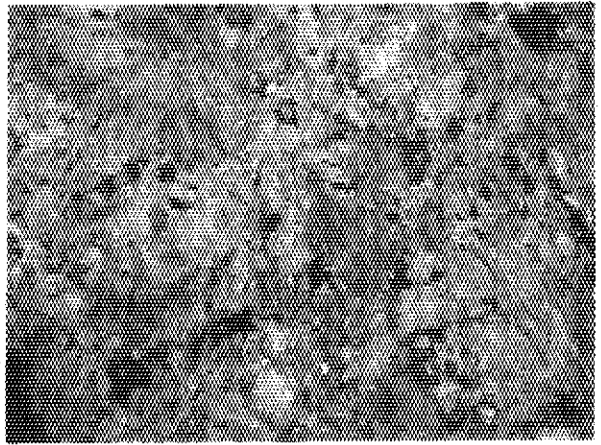
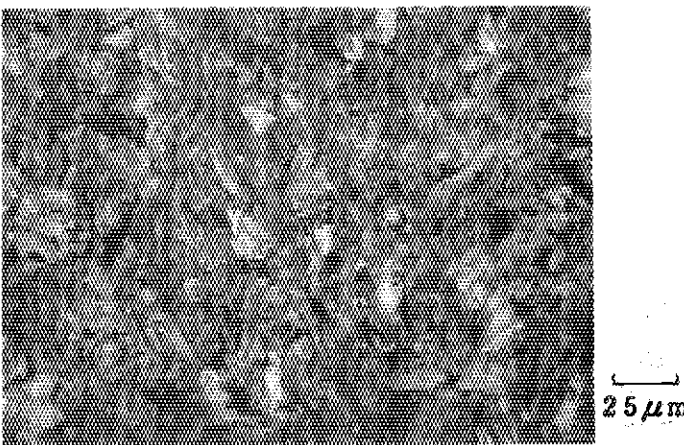
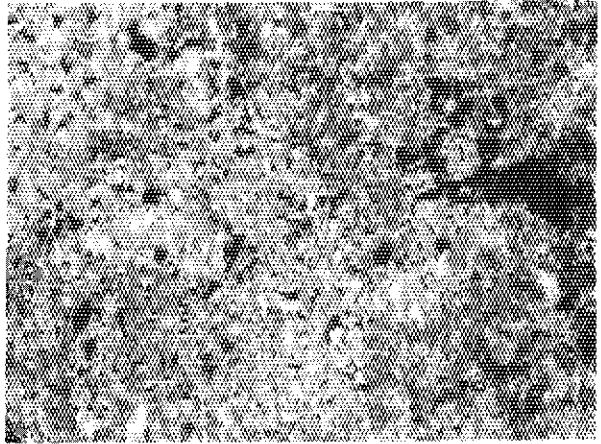
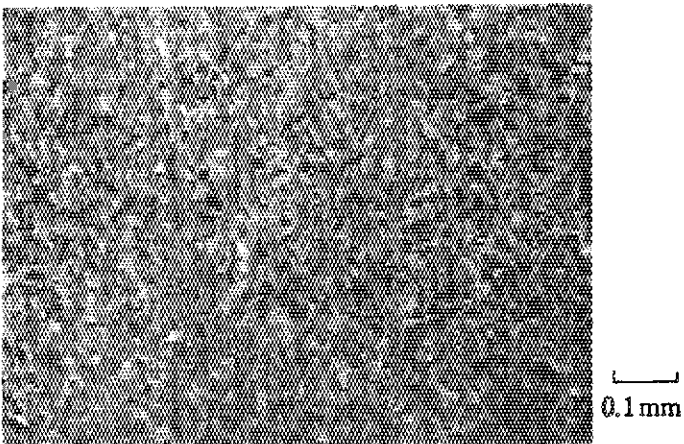
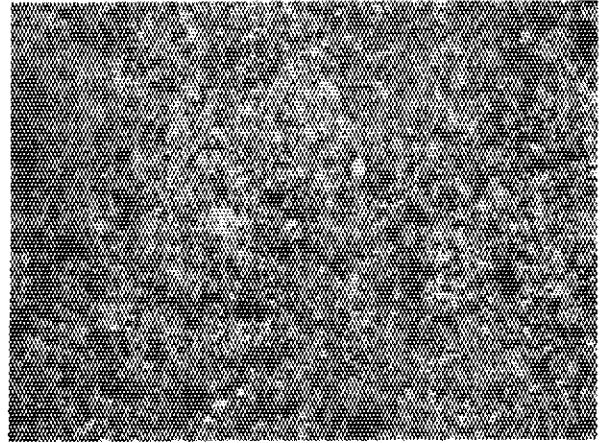
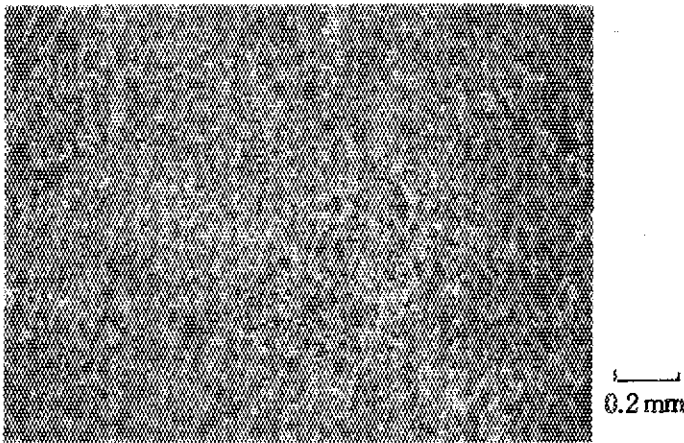


Fig. 4 Cross section of graphite/
carbon matrix of 73KYON 1
Graphite powder : Needle Coke
graphite
Binder content : 10%

Fig. 5 Cross section of graphite/
carbon matrix of 73KYON 2
Graphite powder : Needle
coke graphite
Binder content : 20%

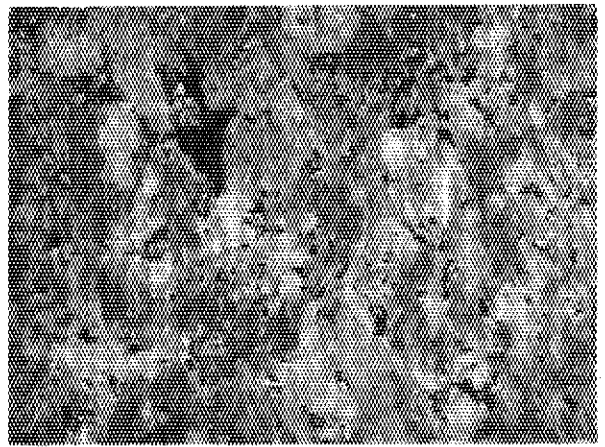
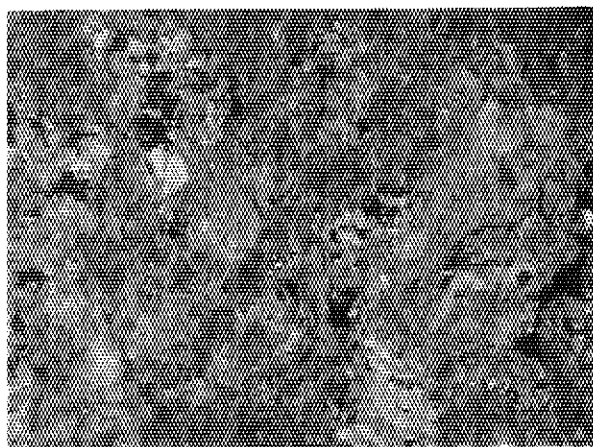
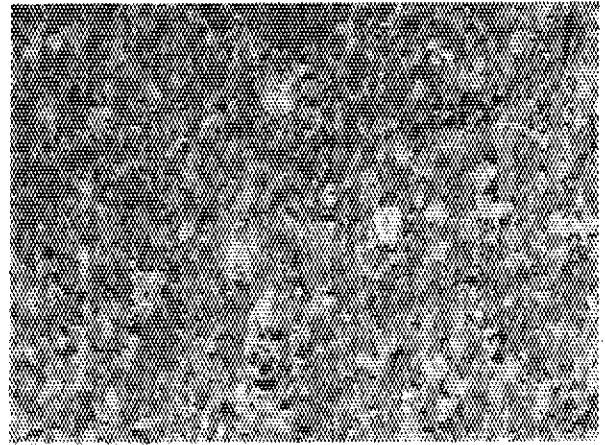
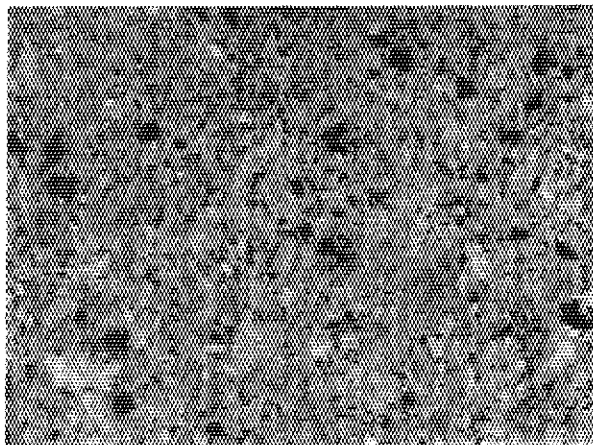
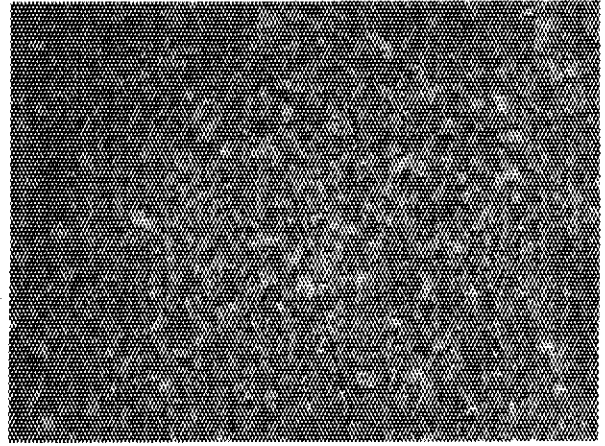
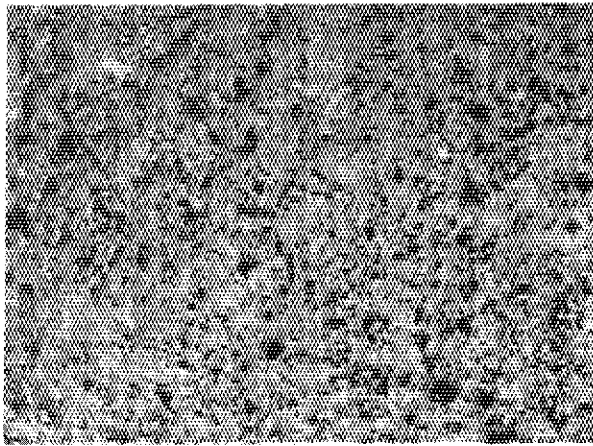


Fig. 6 Cross section of graphite/
carbon matrix of 73KYOP 1
Graphite powder : Natural
graphite and petroleum
coke graphite (4 : 1)
Binder content : 10%

Fig. 7 Cross Section of graphite/
carbon matrix of 73KYOP 2
Graphite powder : Natural
graphite and petroleum
coke graphite (4 : 1)
Binder content : 20%

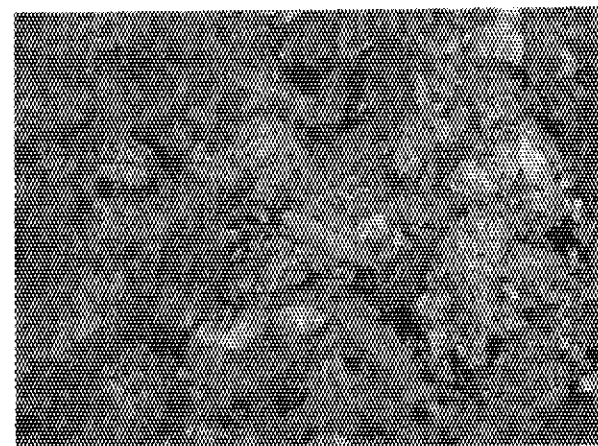
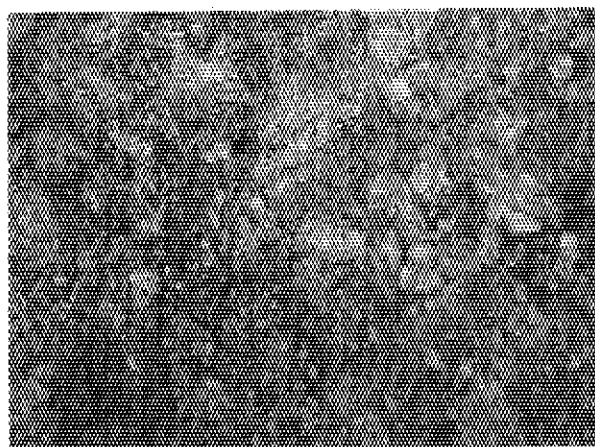
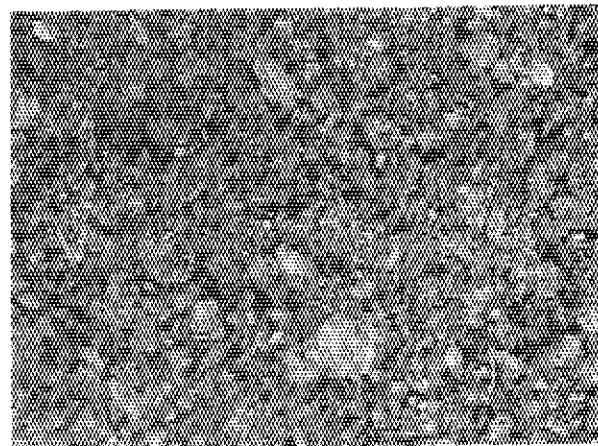
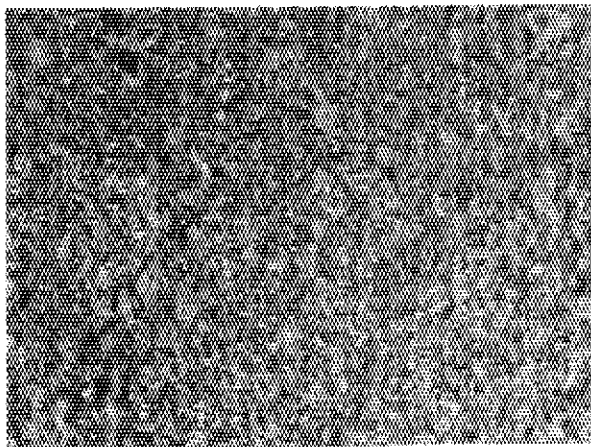
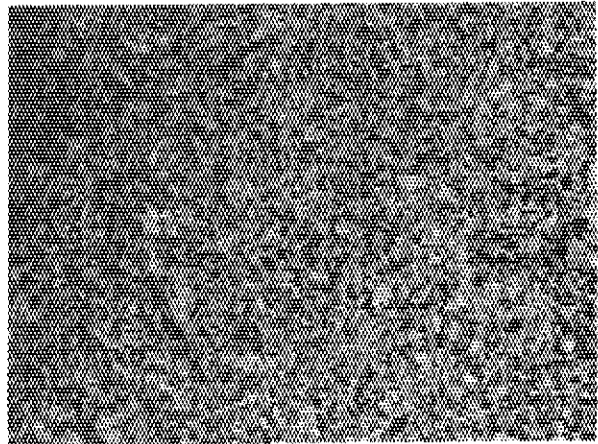
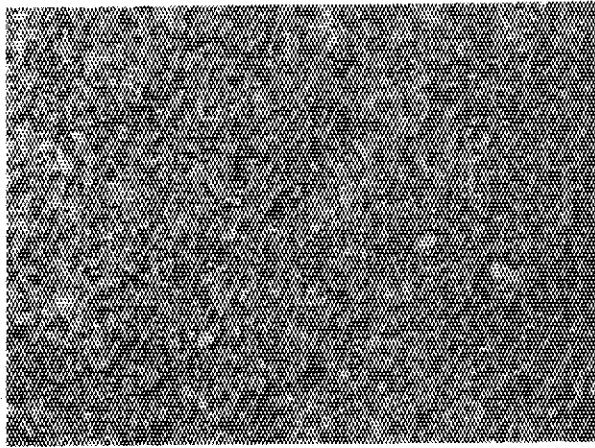
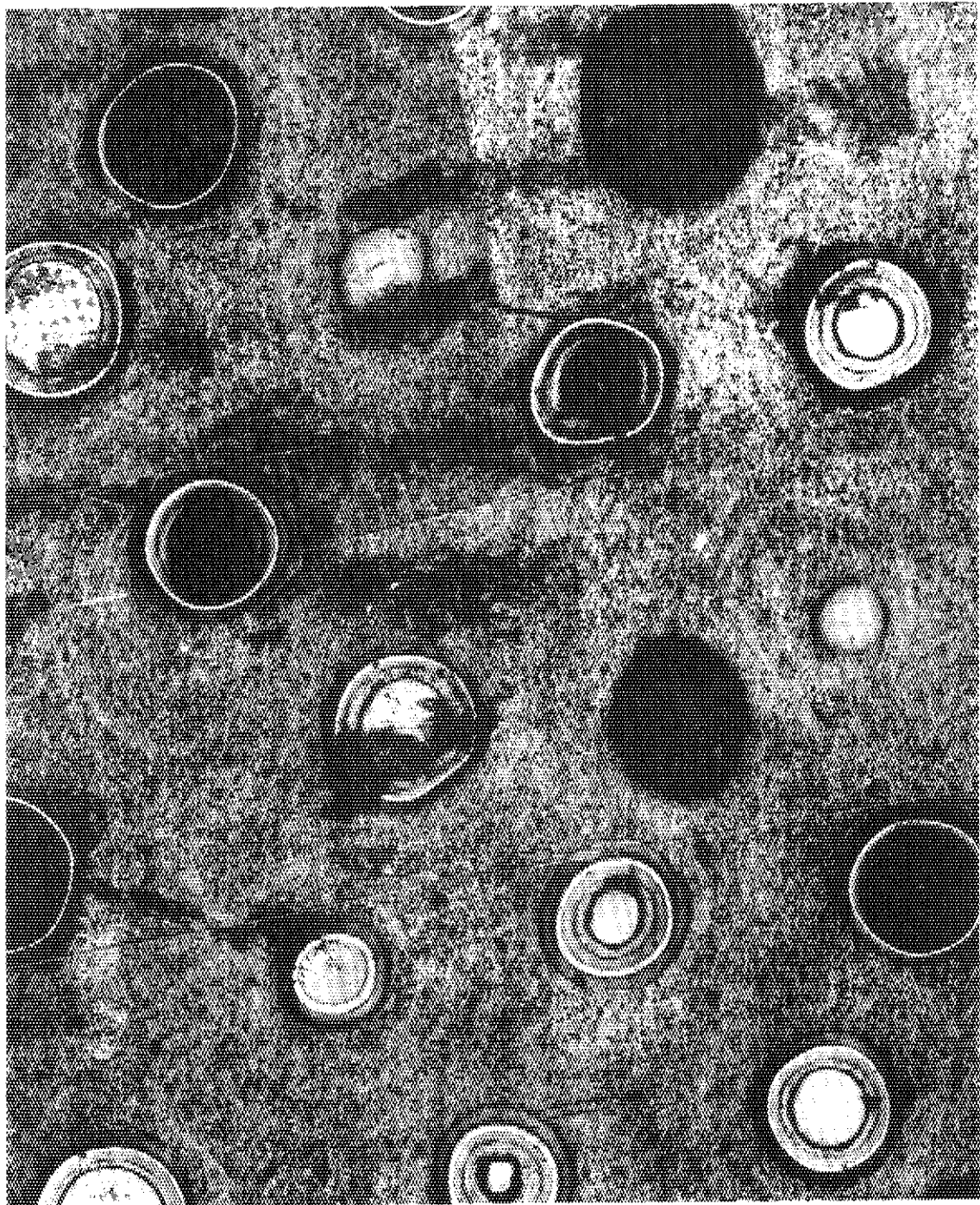


Fig. 8 Cross section of graphite/
carbon matrix of 74KYOP 1
Graphite powder : Natural
graphite and petroleum
coke graphite (4 : 1)
Binder content : 10%

Fig. 9 Cross section of graphite/
carbon matrix of 74KYOP 2
Graphite powder : Natural
graphite and petroleum
coke graphite (4 : 1)
Binder content : 20%



0.5mm

Fig. 10 Cross section of fuel compact of 73KYONF 2
Graphite powder : Natural graphite and petroleum
 coke graphite (4 : 1)
Binder content : 20%

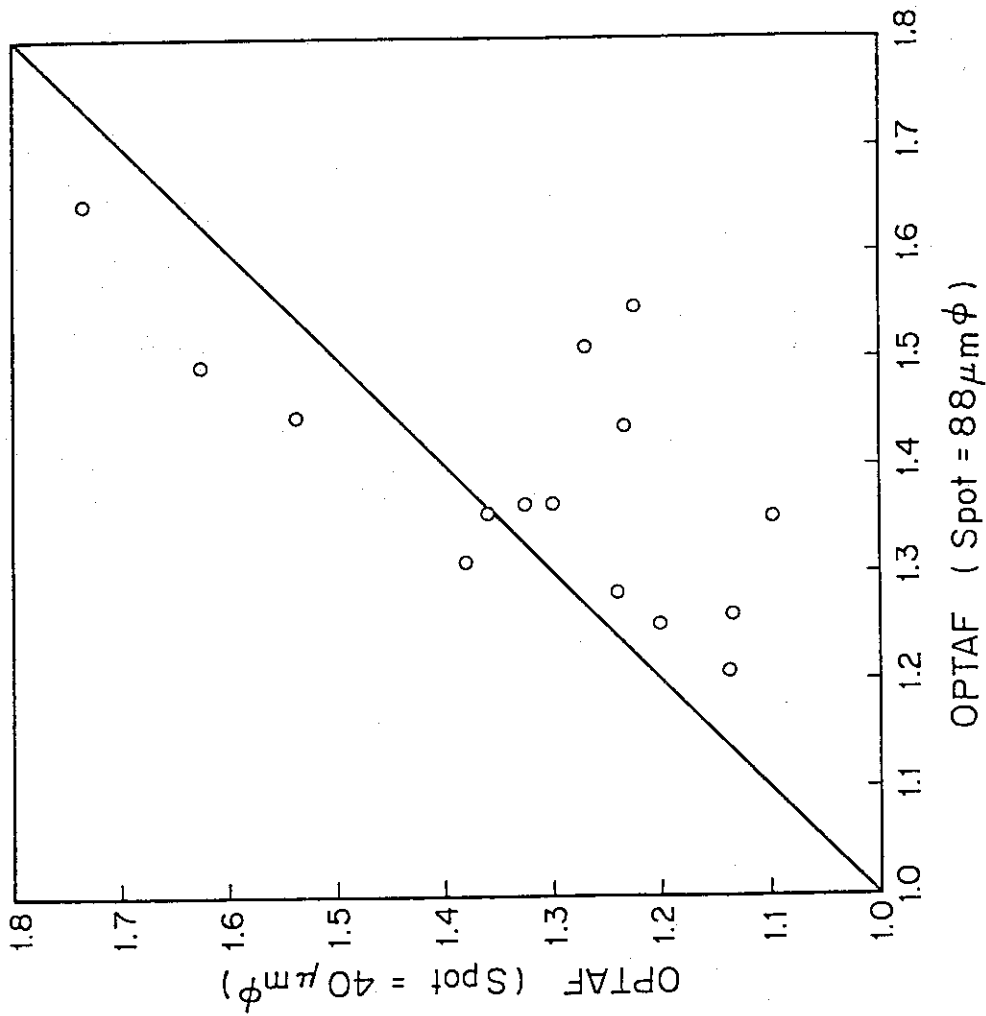


Fig. 11 Correlation of OPTAF in spot size of 40 and 88 μm

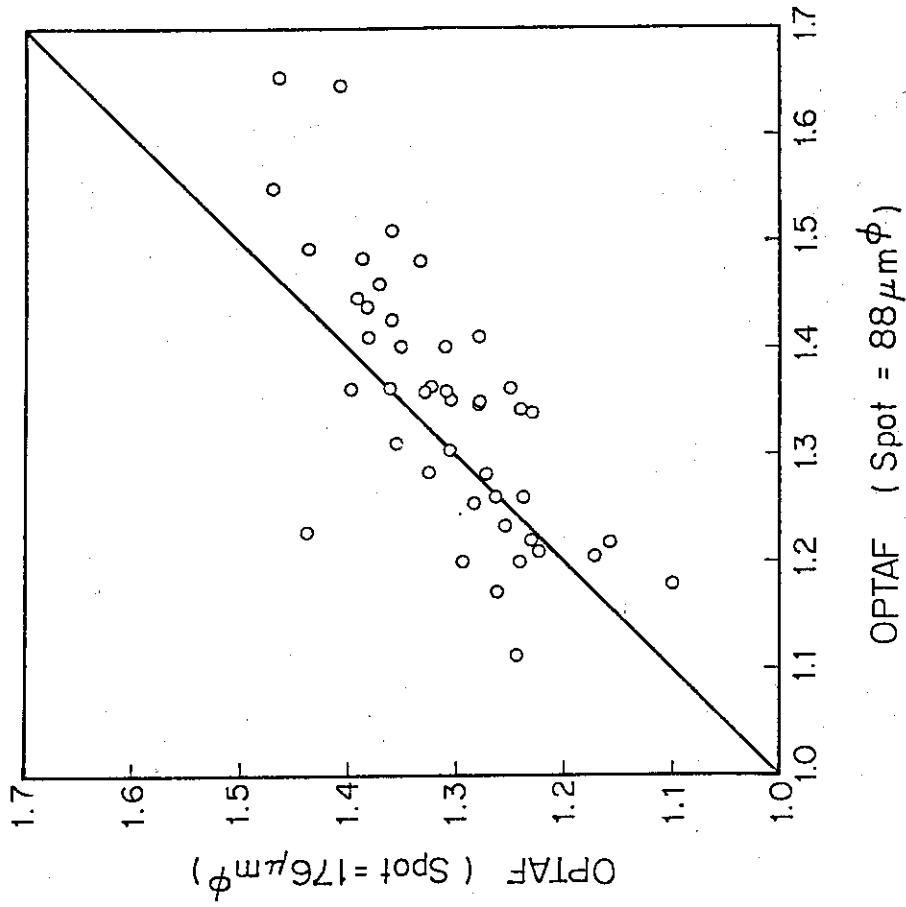


Fig. 12 Correlation of OPTAF in spot size of 88 and 176 μm

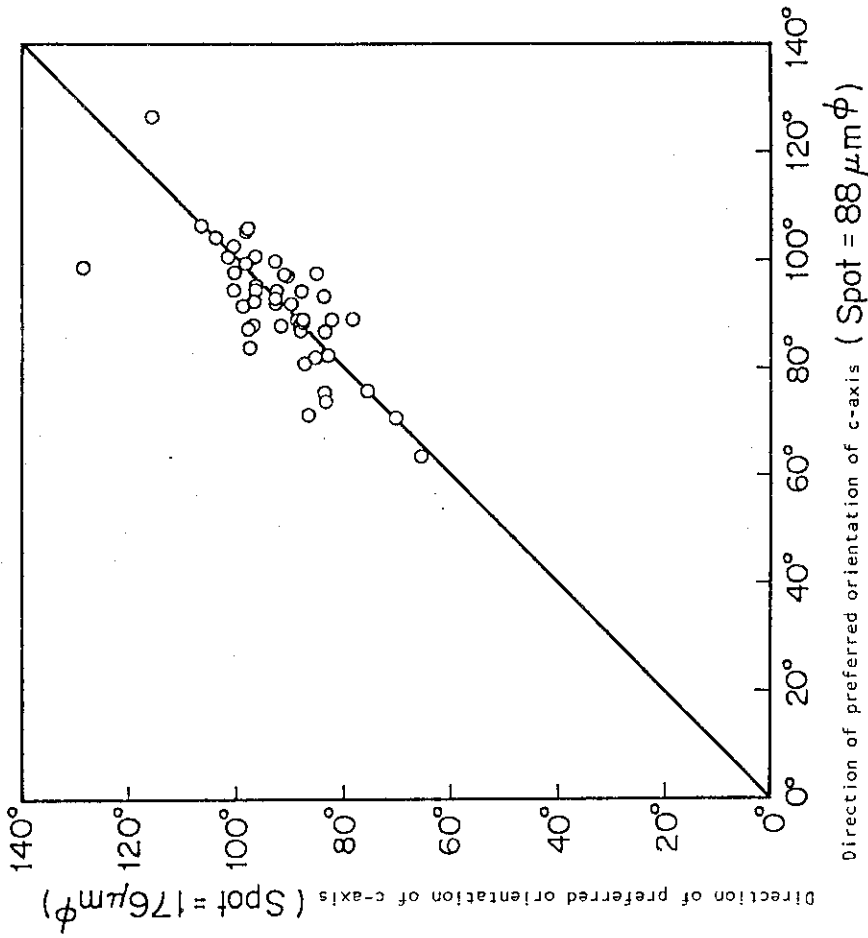


Fig. 14 Correlation of preferred orientation in spot size of 88 and 176 μm

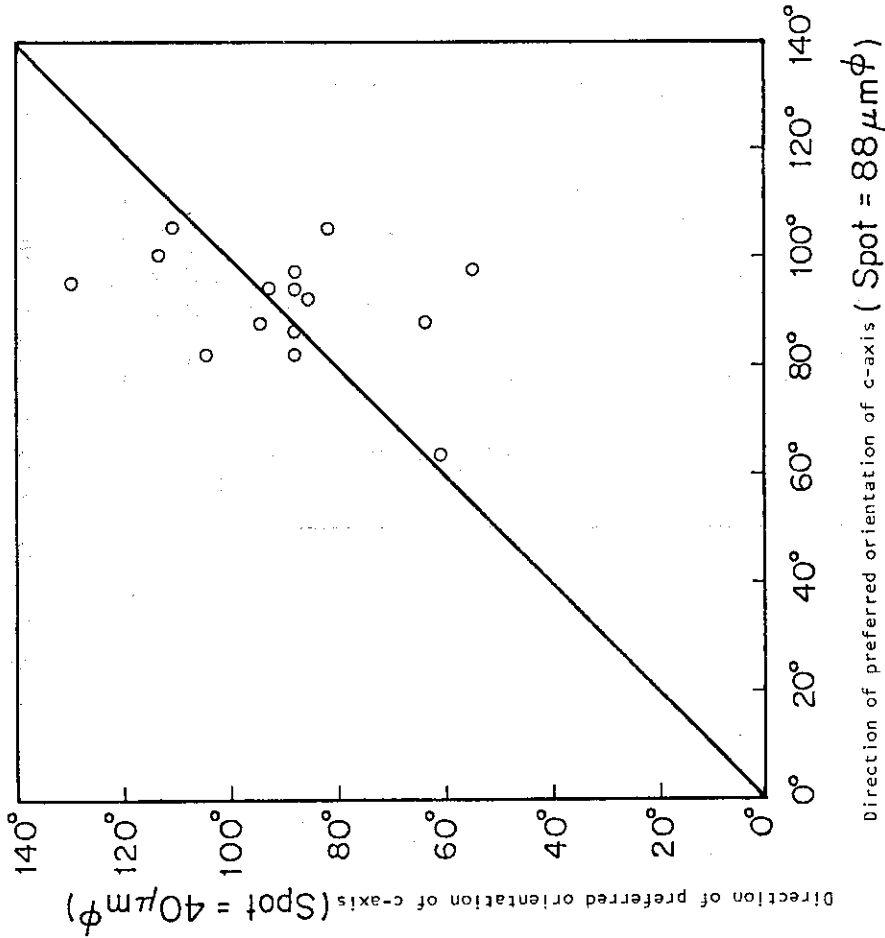


Fig. 13 Correlation of preferred orientation in spot size of 40 and 88 μm

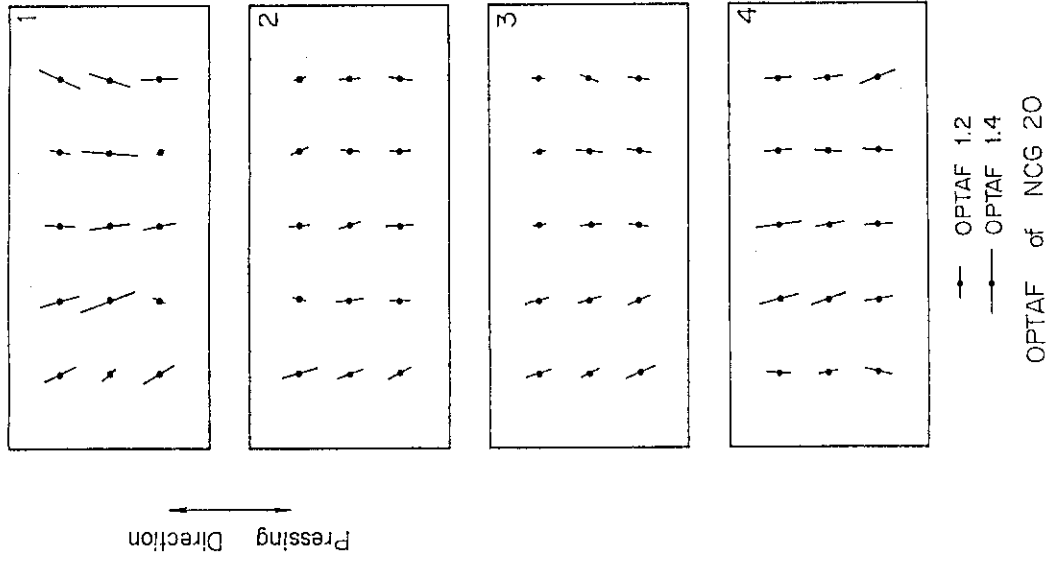


Fig. 15 Orientation of graphite powder in 73KYONI matrix

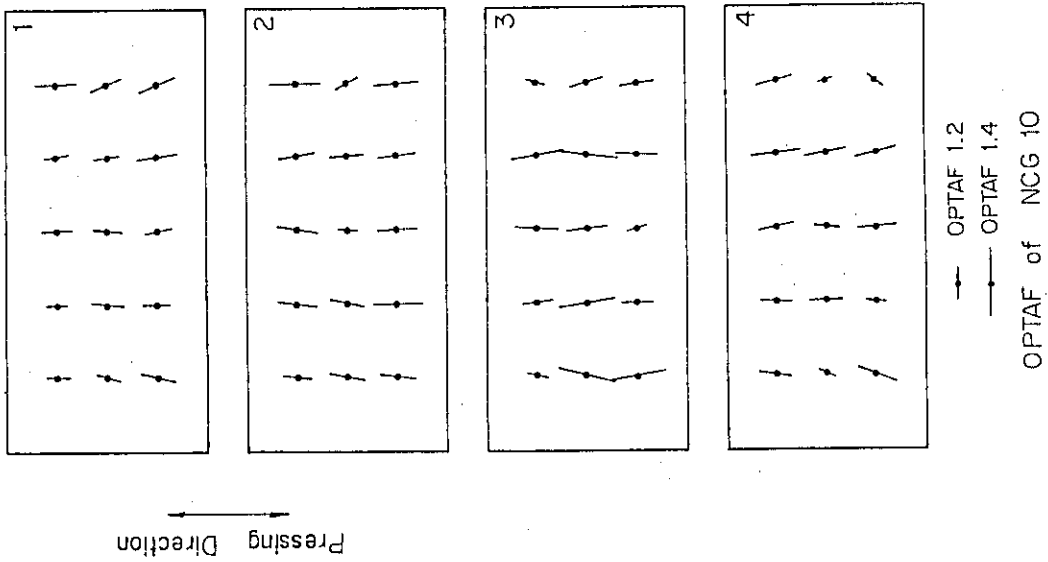


Fig. 16 Orientation of graphite powder in 73KYON2 matrix

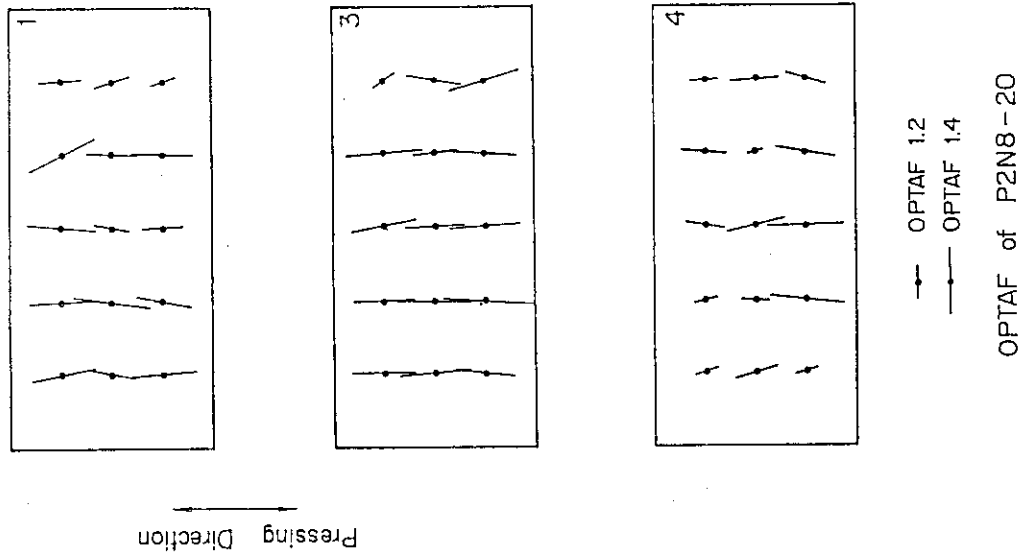


Fig. 17 Orientation of graphite powder in 73KYOP 1 matrix

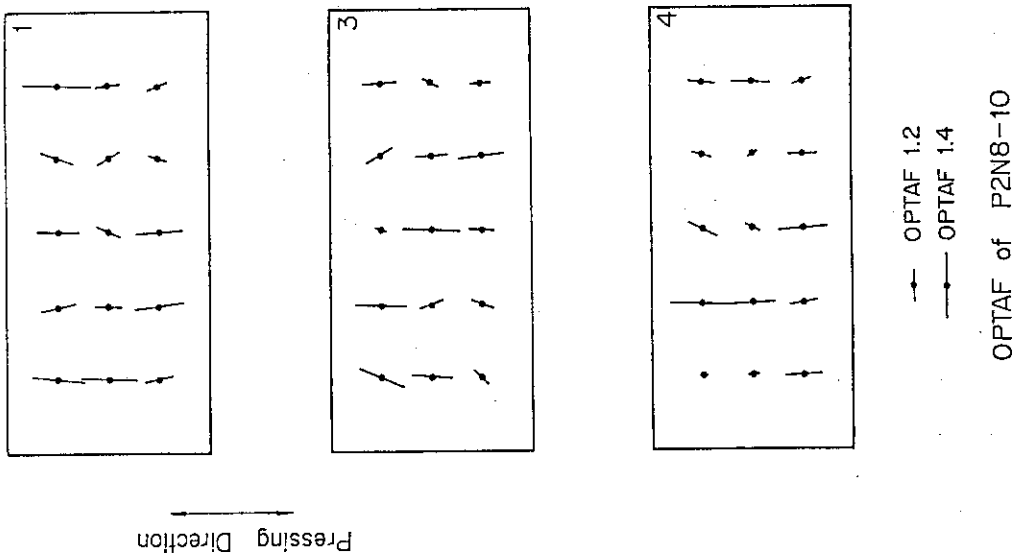


Fig. 18 Orientation of graphite powder in 73KYOP 2 matrix

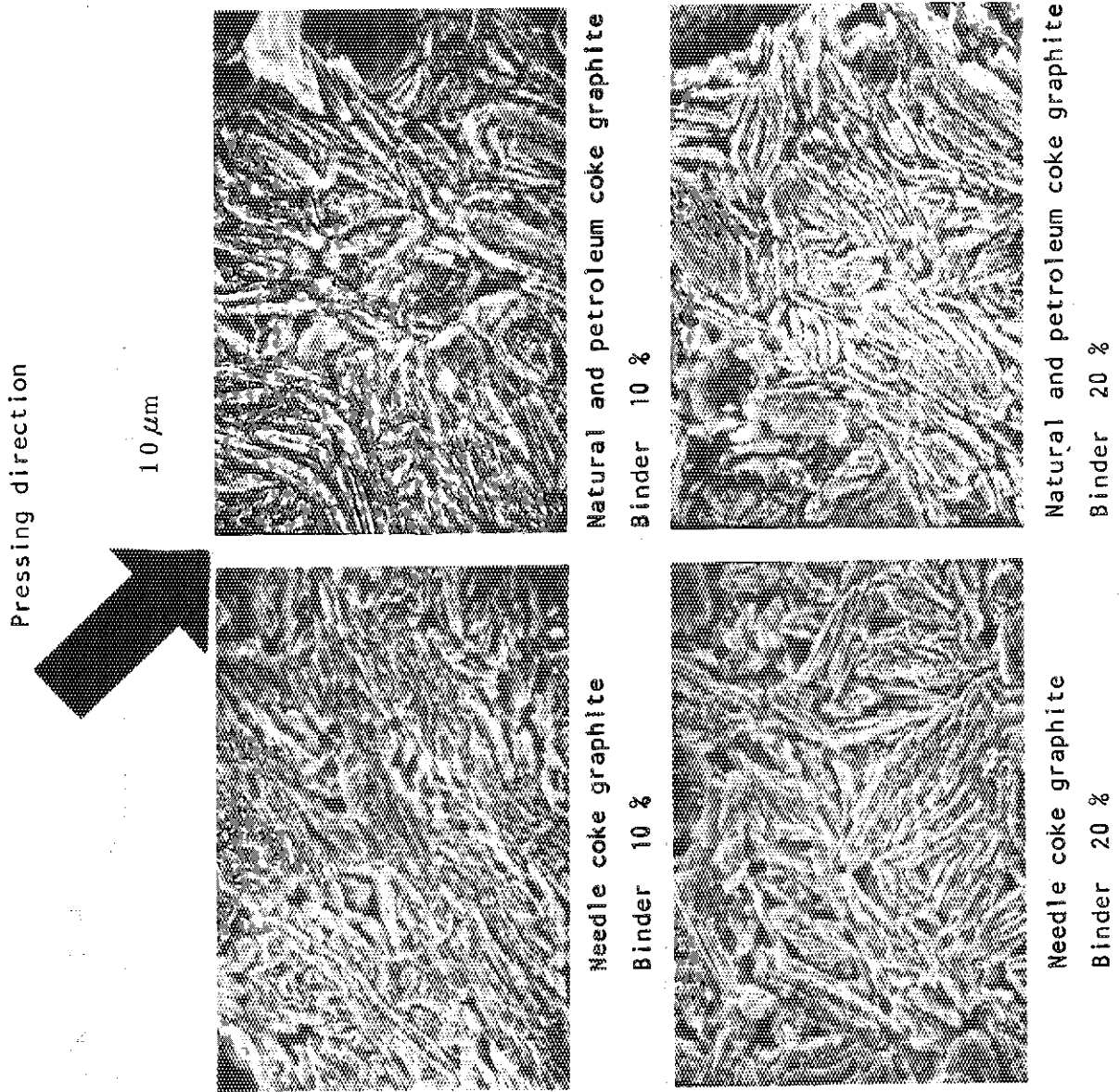
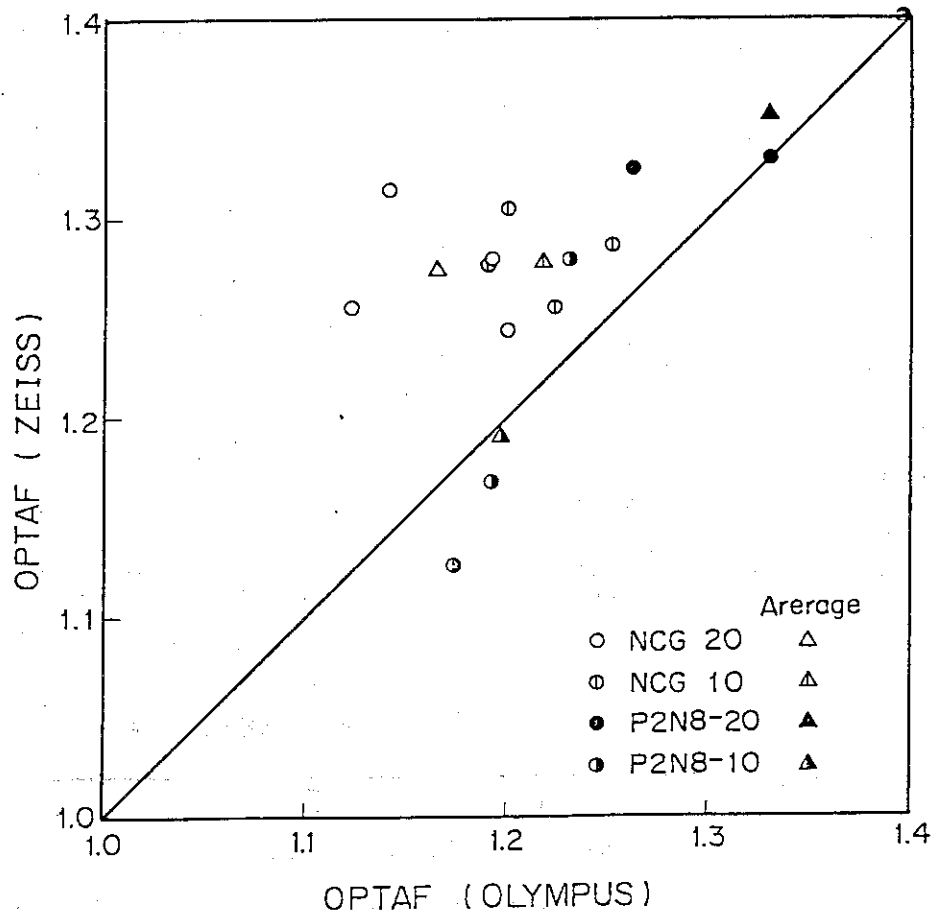


Fig. 19 Cross section of graphite/carbon matrices



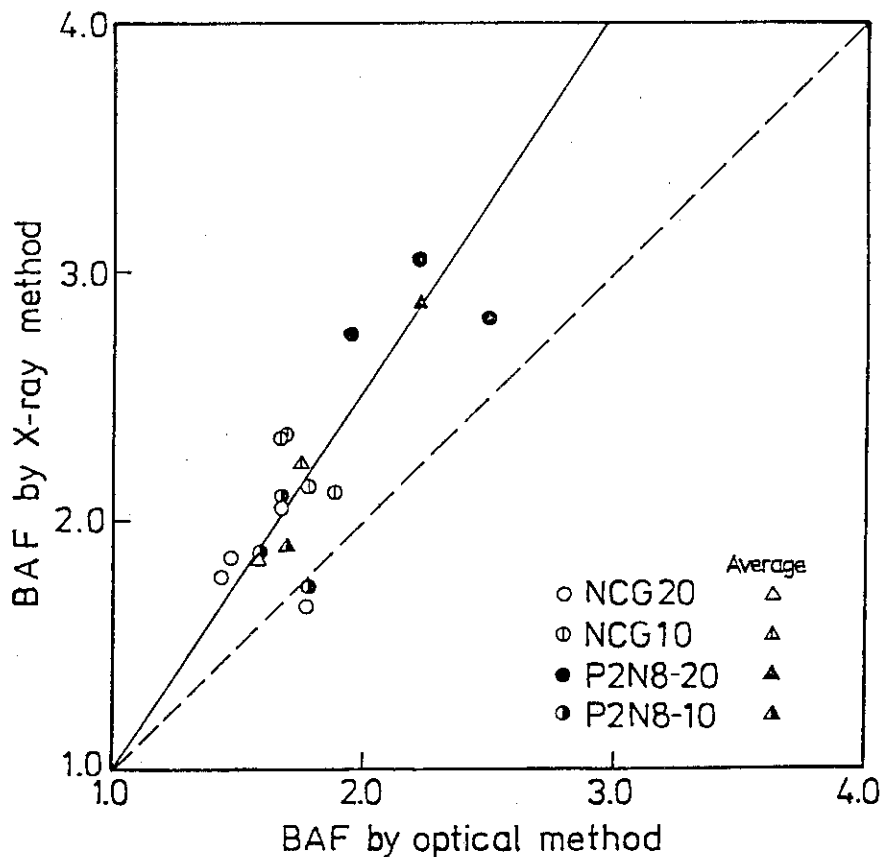


Fig. 22 Correlation of BAF obtained optical and X-ray diffractive method

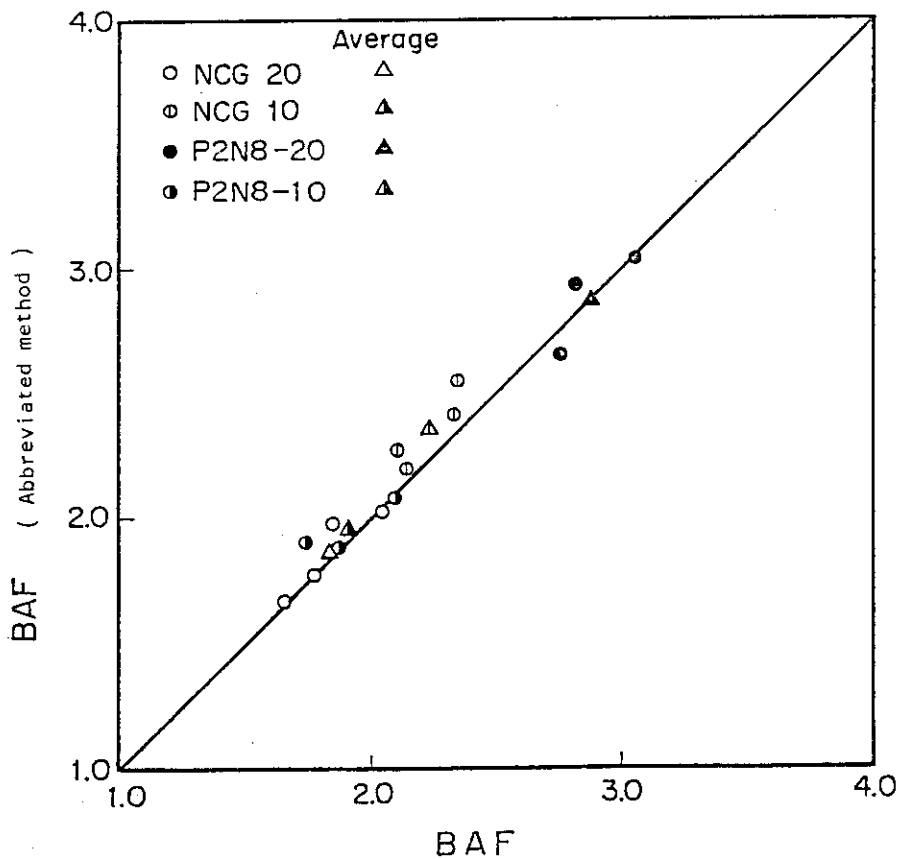


Fig. 23 Correlation of BAF by Bacons and abbreviated method

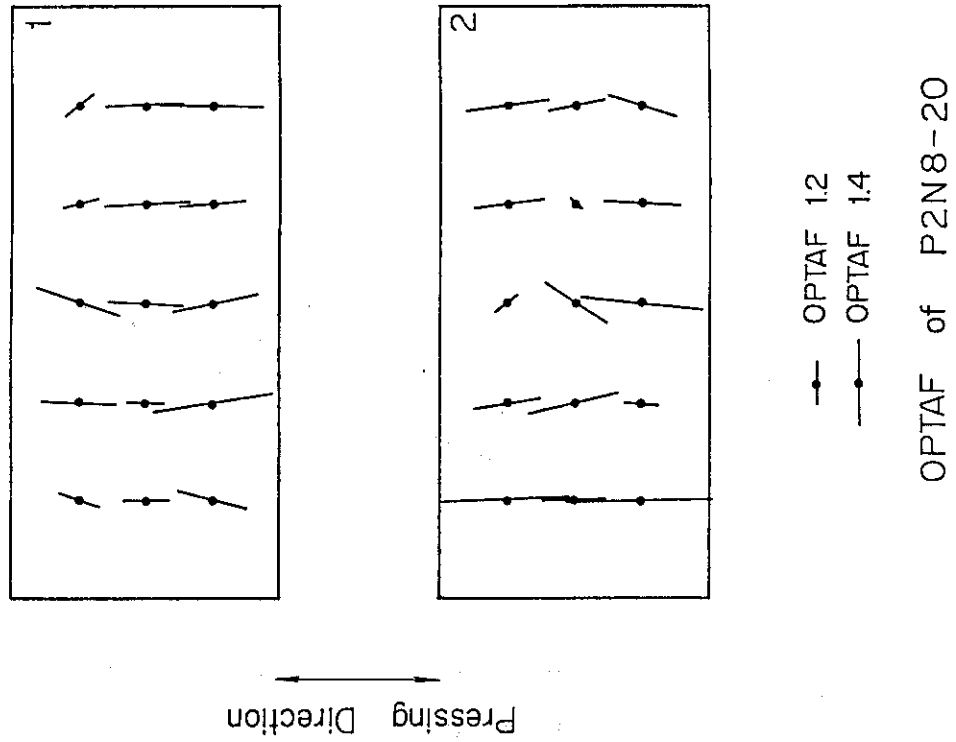


Fig. 25 Orientation of graphite powder in 74KYOP2 matrix

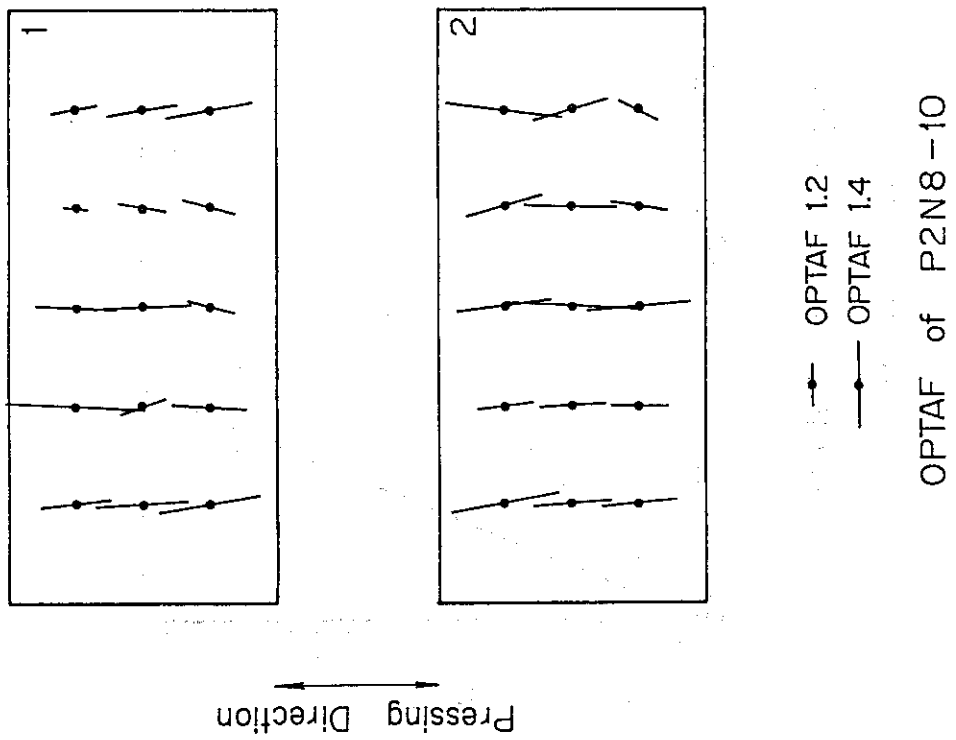


Fig. 24 Orientation of graphite powder in 74KYOP1 matrix

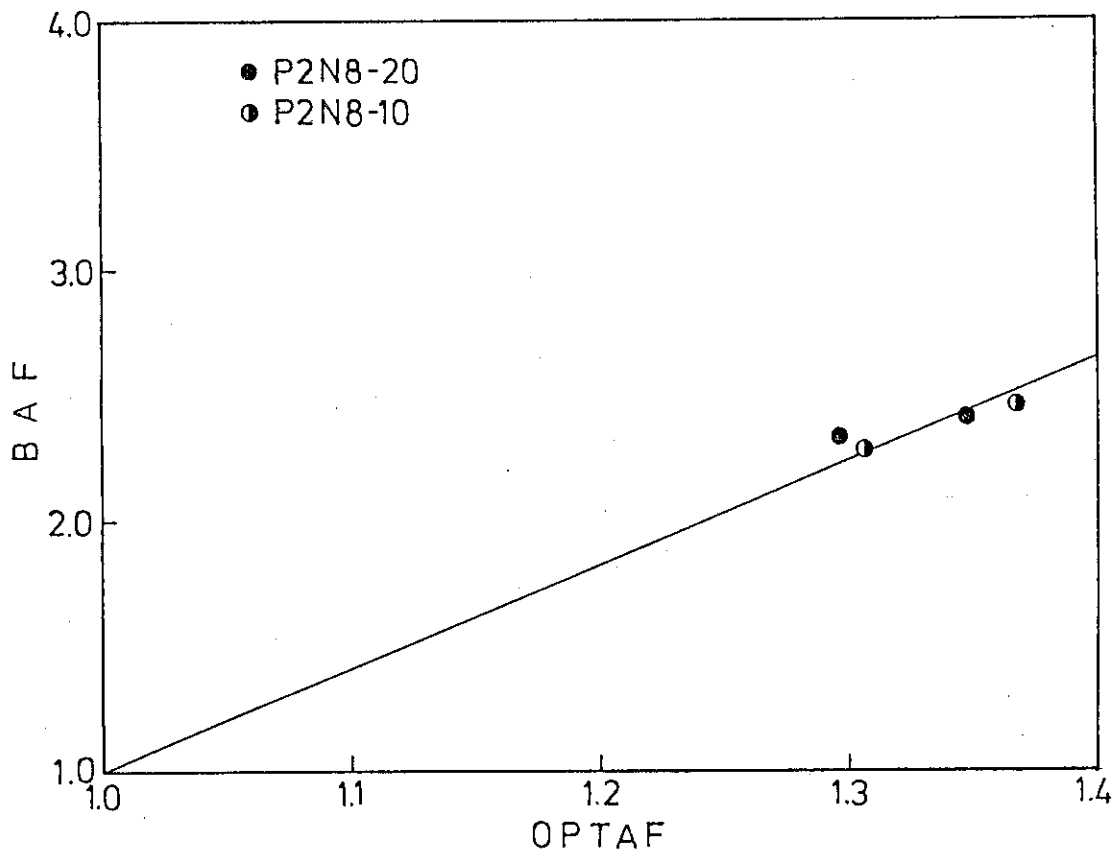


Fig. 26 Correlation of BAF and OPTAF of 74KYOP1 and 74KYOP2 matrix

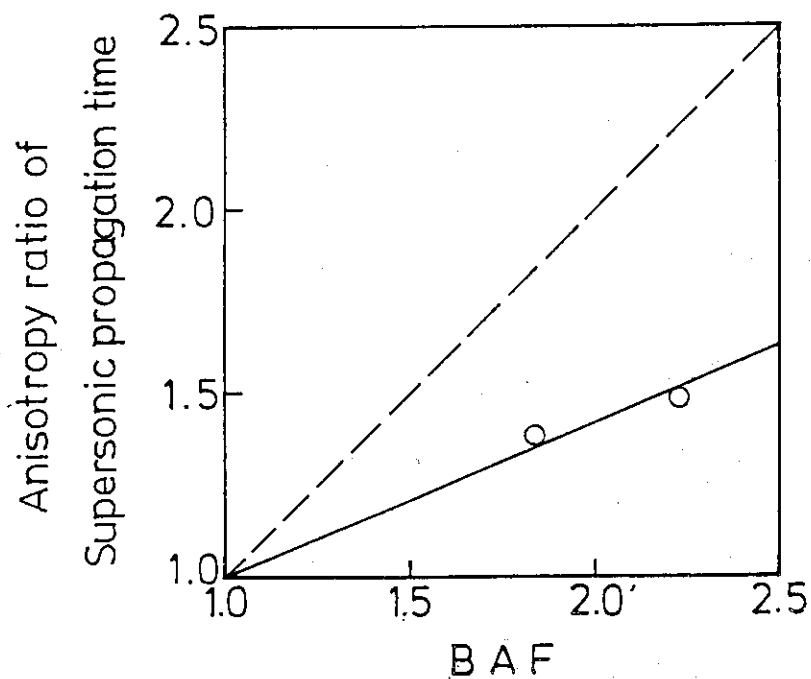


Fig. 27 Correlation between anisotropy ratio of supersonic propagation time and BAF of graphite/carbon matrices

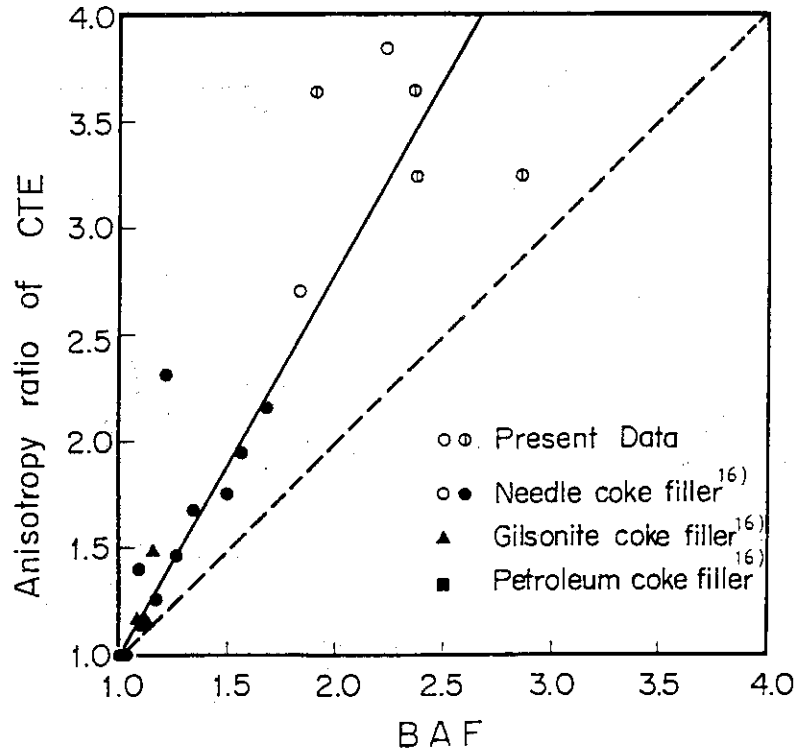


Fig. 28 Correlation between anisotropy ratio of CTE and BAF of graphite and matrices

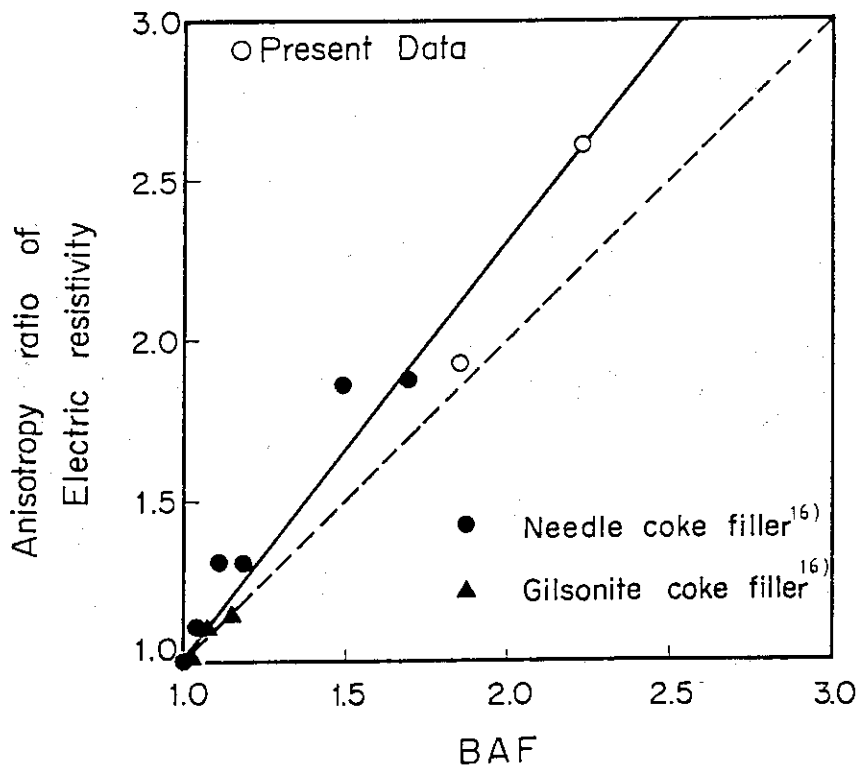


Fig. 29 Correlation between anisotropy ratio of electric resistivity and BAF of graphite and matrices

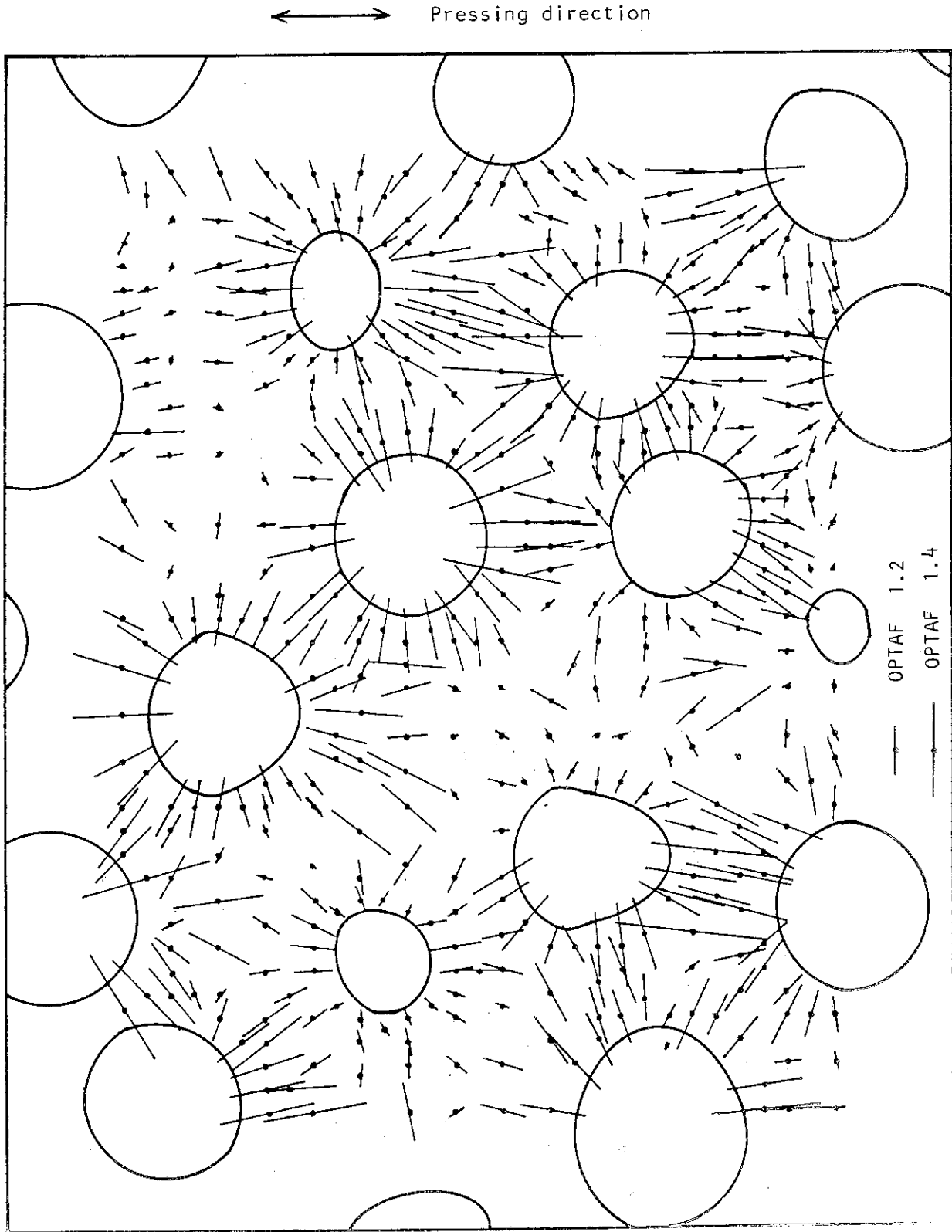


Fig. 30 Orientation of graphite powder in 73KYONF2 fuel compact

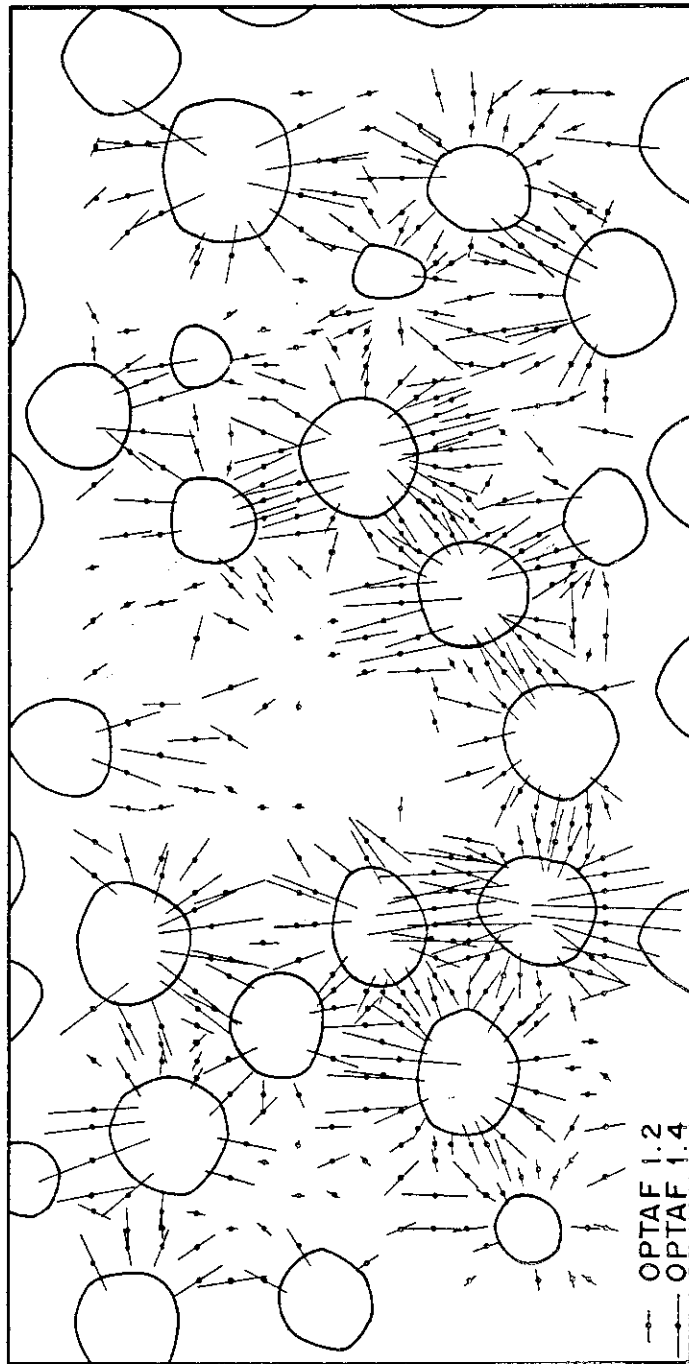


Fig. 31 Orientation of graphite powder in 73KYONF2 fuel compact