

JAERI - M
83-232

被覆燃料粒子の照射挙動試験 (V)
(73F-13AキャプセルによるJMTR照射)

1984年1月

福田 幸朔・鹿志村 悟・小川 徹
湊 和生・井川 勝市・岩本 多實
石本 清

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。
入手の間合わせは、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、お申しこしてください。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, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷機

被覆燃料粒子の照射挙動試験 (V)
(73F-13A 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
福田幸朔・鹿志村悟・小川徹・湊和生
井川勝市・岩本多實・石本清⁺

(1983年12月19日受理)

49年度に試作された多目的高温ガス実験炉予備設計仕様の被覆燃料粒子をはじめ、同年度に英国で予備設計仕様に基づいて製造された被覆燃料粒子、第1次OGL-1燃料用被覆粒子、およびZrC被覆粒子を73F-13AキャプセルによりJMTR燃料領域で照射した。この照射試験では、高速中性子照射量は最高 $3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 29 \text{ fJ}$)、燃焼率は最大5.3% FIMA、及び照射温度は最高1630°C(ピーク温度、1730°C)に達した。照射後試験では、外観、X線ラジオグラフィ、金相についての検査、酸浸出率測定、FPインベントリー測定、金属FP放出率測定、EPMA(XMA)による被覆粒子内の金属FP移行の観察、被覆粒子内のFPインベントリー測定、および照射済被覆粒子の破壊強度測定などを行った。この試験の結果、49年度試作被覆粒子は、燃焼率4%、高速中性子照射量、 $2.7 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 29 \text{ fJ}$)、最高照射温度1380°C、までの照射では、健全であった。国産被覆粒子と英国製被覆粒子の照射健全性の比較では、照射温度が1380°Cまたはそれ以下の温度では、ほとんど差は認められなかった。しかし、照射温度が1600°Cを越えると、英国製被覆粒子では、国産被覆粒子に比べて、被覆破損が著しく増加し、明らかに国産被覆粒子の方が良好な耐照射性を示した。金属FP放出測定結果では、1380°C以下の照射温度では、 ^{106}Ru 、 ^{137}Cs および ^{134}Cs 放出率は、 10^{-5} のオーダーあるいはそれ以下であり、1600°Cを越えると10%以上の ^{137}Cs が放出されていると推定された。また、1600°Cを越えた49年度被覆粒子には、PdがSiC層の内側に一様に蓄積しているのが確認された。

+) 研究炉管理部

IRRADIATION BEHAVIORS OF COATED FUEL PARTICLES (V)
(Irradiation by JMTR 73F-13A capsule)

Kousaku FUKUDA, Satoru KASHIMURA, Toru OGAWA, Kazuo MINATO,
Katsuichi IKAWA, Kazumi IWAMOTO, Kiyoshi ISHIMOTO⁺

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received December 19, 1983)

The TRISO coated fuel particles prepared correspondingly to VHTR preliminary design in FY1974, the coated particles imported from England which had been prepared also under VHTR design, the coated particles for 1st OGL-1 fuel assembly, and ZrC coated particles were irradiated in the fuel zone of JMTR by 73F-13A capsule. Irradiation of these coated particles was attained up to 3×10^{21} n/cm² ($E > 29$ fJ) of fast neutron fluence, up to 5.3 %FIMA of burnup, and up to 1630 ° C of temperature (peak temperature 1730 ° C).

In the post-irradiation examination, inspection to surface appearance of the coated particles, X-ray microradiography, ceramography, acid-leaching experiment, measurements on fission product inventory in the coated particles and on the fractional releases of metallic fission products, EPMA(XMA) observation on segregation of the metallic fission products in the coated particles, and measurement on crushing strength of the irradiated coated particles. It was found in PIE that the coated particles prepared in FY1974 were intact by irradiation up to 2.7×10^{21} n/cm² ($E > 29$ fJ) of the fast neutron fluence, 4 %FIMA of burnup and 1380 ° C of max. temperature. Both of the domestic coated particles and the imported ones kept their integrities under irradiation below 1380 ° C. Above 1600 ° C, on the other hand, the domestic particles did not fail so remarkably as the imported ones. By the measurement on the releases of the metallic fission products, the fractional releases of ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs and ¹⁰⁶Ru were around -5 orders of magnitude or less, whereas ¹³⁷Cs release was estimated over 0.1 above 1600 ° C. In the coated particles irradiated above 1600 ° C, accumulation of palladium was found at inner surface of SiC coating layer by EPMA.

Keywords: Irradiation, Coated Fuel Particles, VHTR, PIE, Failure Fraction
Metallic Fission Product, Palladium, Temperature Dependence

⁺ Department of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI

目 次

| | |
|--------------------------------|----|
| 1. 緒 言 | 1 |
| 2. キャプセル | 2 |
| 2.1 キャプセル全体構造 | 2 |
| 2.2 内部キャプセル | 2 |
| 3. 被覆燃料粒子 | 3 |
| 4. 照 射 | 4 |
| 4.1 照射孔および照射時間 | 4 |
| 4.2 照射温度 | 4 |
| 4.3 中性子照射量 | 5 |
| 4.4 燃焼率およびPu核分裂割合 | 5 |
| 5. 照射後試験 | 6 |
| 5.1 照射後試験の概要 | 6 |
| 5.2 外観, 金相およびX線ラジオグラフィ検査 | 6 |
| 5.3 FPインベントリー測定 | 9 |
| 5.4 酸浸出試験 | 9 |
| 5.5 金属FPの放出 | 10 |
| 5.6 EPMAによる被覆粒子内の観察 | 11 |
| 5.6.1 被覆層中のパラジウム | 11 |
| 5.6.2 燃料核移動 | 11 |
| 6. 考 察 | 13 |
| 6.1 被覆粒子破損 | 13 |
| 6.2 被覆粒子照射特性 | 15 |
| 7. 結 論 | 16 |
| 謝 辞 | 17 |
| 参考文献 | 18 |

CONTENTS

| | | |
|-----|---|----|
| 1. | Introduction | 1 |
| 2. | Capsule | 2 |
| 2.1 | Capsule configuration | 2 |
| 2.2 | Inner capsule | 2 |
| 3. | Coated fuel particles | 3 |
| 4. | Irradiation | 4 |
| 4.1 | Irradiation hole and duration | 4 |
| 4.2 | Irradiation temperature | 4 |
| 4.3 | Neutron fluence | 5 |
| 4.4 | Burnup and Pu fission | 5 |
| 5. | Post irradiation examination | 6 |
| 5.1 | Outline | 6 |
| 5.2 | Surface appearance inspection, ceramography and X-ray microradiography | 6 |
| 5.3 | Measurement on fission product inventory | 9 |
| 5.4 | Acid-leaching experiment | 9 |
| 5.5 | Release of metallic fission product | 10 |
| 5.6 | Observation of fission product segregation by EPMA ... | 11 |
| 5.7 | Crushing strength of coated particles | 12 |
| 6. | Discussion | 13 |
| 6.1 | Coating failure | 13 |
| 6.2 | Irradiation performance | 15 |
| 7. | Conclusion | 16 |
| | Acknowledgement | 17 |
| | References | 18 |

List of tables

- Table 1 Characteristics of coated particles irradiated in 73F-13A capsule.
- Table 2 Irradiation conditions of the coated particles.
- Table 3 Failure fraction of irradiated coated particles inspected by surface appearance and X-ray micro-radiography.
- Table 4 Fission product inventory in the coated particles irradiated by 73F-13A capsule.
- Table 5 Results of acid-leaching experiment.
- Table 6 Fractional releases of metal fission products.
- Table 7 Estimation of ^{137}Cs release for the particles contained in holders No.3 and 4.
- Table 8 Calculated Pd amount.
- Table 9 Summary of coating failure.

List of figures

- Fig. 1 Configuration of 73F-13A capsule.
- Fig. 2 Parts and constructed appearance of 73F-13A capsule.
- Fig. 3 Configuration of an inner capsule.
- Fig. 4 Ceramographs of unirradiated domestic particles and imported ones.
- Fig. 5 Fuel temperature during irradiation.
- Fig. 6 Distribution of neutron fluence through axial direction of the capsule.
- Fig. 7 Distribution of calculated thermal neutron flux in a radial direction of the capsule.
- Fig. 8 Flow diagram of the post-irradiation examination.
- Fig. 9(A) Overall sectional view of 750C1-1B.
- Fig. 9(B) Typical ceramographs of 750C1-1B.
- Fig. 9(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 750C1-1B.

- Fig. 10(A) Overall sectional view of 74UC1-2A.
 Fig. 10(B) Typical ceramographs of 74UC1-2A.
 Fig. 10(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74UC1-2A.
 Fig. 11(A) Overall sectional view of 74FC1-2B.
 Fig. 11(B) Typical ceramographs of 74FC1-2B.
 Fig. 11(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1-2B.
 Fig. 12(A) Overall sectional view of 74FC1-3A.
 Fig. 12(B) Typical ceramographs of 74FC1-3A.
 Fig. 12(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1-3A.
 Fig. 13(A) Overall sectional view of 74UC1-3B.
 Fig. 13(B) Typical ceramographs of 74UC1-3B.
 Fig. 13(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74UC1-3B.
 Fig. 14(A) Overall sectional view of 74FC1-5A.
 Fig. 14(B) Typical ceramographs of 74FC1-5A.
 Fig. 14(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1-5A.
 Fig. 15(A) Overall sectional view of 74FC1H-5B.
 Fig. 15(B) Typical ceramographs of 74FC1H-5B.
 Fig. 15(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1H-5B.
 Fig. 16(A) Overall sectional view of 75OC1-6A.
 Fig. 16(B) Typical ceramographs of 75OC1-6A.
 Fig. 16(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 75OC1-6A.
 Fig. 17(A) Overall sectional view of 74FCP1-6B.
 Fig. 17(B) Typical ceramographs of 74FCP1-6B.
 Fig. 17(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FCP1-6B.
 Fig. 18 Fission product inventory of the coated particles.
 Fig. 19 Palladium accumulation at inner surface of SiC layer.
 Fig. 20 Observation on cooler side of amoeba particle.
 (a) Back-scattered electron, (b) U-M_α, (c) C-K_α and
 (d) O-K_α images.
 Fig. 21 Carbon inclusion (a) in-pores and (b) along grain boundaries
 of UO₂ kernel. (a) 74FC1-3A, (b) 74UC1-3B.
 Fig. 22 Load-deflection curves of unirradiated and irradiated
 74FC1 particles.

- Fig. 23 Crushing strength of unirradiated and irradiated 74FC1 particles.
- Fig. 24 Crushing strength of unirradiated and irradiated 74UC1 particles.
- Fig. 25 Change of crushing load as a function of fast neutron
fluence.
- Fig. 26 Failure fraction of coated particles irradiated over 1600°C.
- Fig. 27 ¹³⁷Cs in-pile fractional release from TRISO coated particles.

1. 緒 言

多目的高温ガス実験炉（以下、実験炉と略す）の設計は、昭和45年に試験的に始められ、昭和46年には予備設計が終了し、さらに、昭和50年には第1次概念設計（Mk-III設計）が完了した。一方、これと併行して、実験炉用被覆粒子燃料の照射試験も、JRR-2に設置していたHWL-1水ループを使って昭和45年に始められ⁽¹⁾、昭和46年には、JMTRを使って、その照射性能試験が本格的に進められた。

昭和50年における予備設計からMk-III設計への変更にともない、照射試験に供した被覆粒子燃料の仕様も変った。予備設計仕様では、燃料核（ UO_2 ）直径は500 μm 、被覆粒子直径780 μm であり、現在、使用されているMk-III設計仕様被覆粒子に比べると、小粒な粒子であった。現在までにJMTR照射試験結果については、以下の報告書にまとめている。

1. 70F-4A キャプセル JAERI-M 6480 (1976)⁽²⁾
2. 71F-7A キャプセル JAERI-M 6717 (1976)⁽³⁾
3. 72F-6A, 72F-7A キャプセル JAERI-M 8949 (1980)⁽⁴⁾
4. 73F-12A キャプセル JAERI-M 9644 (1981)⁽⁵⁾

本報告は、昭和52年から昭和53年にかけてJMTR燃料領域孔で照射した73F-13Aキャプセルに関するもので、このキャプセルには、49年度に試作した予備設計TRISO被覆粒子を中心に、OGL-1燃料用被覆粒子やZrC被覆粒子などを装荷した。73F-13Aキャプセルによる照射試験の目的は以下のとおりである。

- (1) 49年度試作TRISO被覆粒子の照射健全性を調べる。
- (2) 予備設計仕様に基づいて英国で調製したTRISO被覆粒子と同仕様の国産被覆粒子の照射性能を比較する。
- (3) 第1次OGL-1燃料用に調製したTRISO被覆粒子を高い高速中性子束下で照射し、高速中性子照射量が低い第1次OGL-1燃料体の照射挙動と比較する。
- (4) 1800 $^{\circ}\text{C}$ での被覆粒子炉外加熱が照射挙動にどのような影響を及ぼすかを調べる。
- (5) ZrC被覆粒子の照射性能を調べる。

(1)~(4)までは実験炉用被覆粒子の照射性能を評価することを目的としているが、(5)は改良燃料の照射挙動に関するものであり、本報告では詳細には記述せず、別途、報告される。

このキャプセルの照射は、K-6孔で6サイクルにわたって行われ、高速中性子照射量は最大 $3.1 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)、燃焼率は5.3% FIMAに達するものであり、従来の被覆粒子燃料についてのJMTR照射試験の中では最も厳しい照射条件であった。昭和53年7月にはこのキャプセルの照射は終了したが、52年に核燃料物質の運搬に係わる法規の改正が行われ、これに適合する新しいBM型輸送容器が55年3月に完成し、大洗研究所から東海研究所へのキャプセルの輸送が55年10月に行われたため⁽⁶⁾、照射後試験の開始が大幅に遅れた。

照射後試験では、従来の試験項目に加えて、新たにXMA（大洗研究所ホットラボ）による被覆粒子内での金属FPの移行挙動、および照射下での被覆粒子からの金属FPの放出挙動を調べると

もに、燃焼度の測定方法および照射済被覆粒子の酸浸出の方法を変え、照射挙動についてのデータの信頼性向上を図った。

2. キャプセル

2.1 キャプセル全体構造

73F-13A キャプセルの全体の構造をFig. 1に、またこの部品と組立後のキャプセル写真を Fig. 2に示す。このキャプセルはすでに報告した73F-12A キャプセル⁽⁴⁾と同一構造を有している。Fig. 1に示すように、本キャプセルでは3段の内部キャプセルからなり、それぞれの内部キャプセルには被覆粒子装荷用の孔を有する黒鉛ホルダーを2個有している。上段内部キャプセルの被覆粒子装荷孔は炉中心から上方141mmと238mmの間に位置し、中段内部キャプセルの装荷孔は下方3mmと94mm、下段内部キャプセルは下方204mmと298mmの間に位置している。キャプセル外筒はSUS 304で、その内側にはA ϕ 熱媒体があり、この中に中性子フルーエンス・モニター及びクロメル熱電対が配されている。また、各内部キャプセル中心部にはW・Re熱電対が挿入されており、被覆粒子温度はこの熱電対により制御される。

2.2 内部キャプセル

Fig. 3に73F-13Aキャプセルの内部構造を示す。上、中、下段内部キャプセルとも同一構造であり、燃料温度制御のため、これらは二重管構造になっている。外筒はSUS 304、内筒はNb-1%Zrであり、温度制御はこのギャップのHe真空度を変化させ、ギャップの熱伝達を調整することにより行われる。内部キャプセルに保持されている被覆粒子装荷用の黒鉛ホルダーは18 ϕ 、50 ℓ mmの大きさで、各黒鉛ホルダーには上面および下面から互い違いにそれぞれ4本の穴(23 ϕ mm \times 40 ℓ mm)がけられている。キャプセル軸方向に対して上面からの穴をA、下面からの穴をBと区別する。これは、AおよびBの穴には異った被覆粒子が装荷されるためである。各内部キャプセルに装荷されている2個の黒鉛ホルダーのうち、上部に位置する黒鉛ホルダーの中央部に燃料温度測定用の穴がけられ、この中にW・Re熱電対が挿入されている。2個の黒鉛ホルダーはMo筒に収納され、これがNb-1%Zr内部キャプセルに入っている。Mo筒は熱媒体の役目を有するとともに、黒鉛ホルダーの温度を均一に保つための均熱材でもある。上述したように、黒鉛ホルダーには2種類の被覆粒子が装荷されるため、1個の内部キャプセルには4種類の被覆粒子が収納される。黒鉛ホルダーの両端にはZrO₂断熱材、Zr酵素ゲッター、Zr反射板、およびZr酵素ゲッターの順に配され、軸方向の熱の逃げを防止し、エンドプラグ(Nb-1%Zr)の温度上昇をくい止めている。

もに、燃焼度の測定方法および照射済被覆粒子の酸浸出の方法を変え、照射挙動についてのデータの信頼性向上を図った。

2. キャプセル

2.1 キャプセル全体構造

73F-13A キャプセルの全体の構造をFig. 1に、またこの部品と組立後のキャプセル写真をFig. 2に示す。このキャプセルはすでに報告した73F-12A キャプセル⁽⁴⁾と同一構造を有している。Fig. 1に示すように、本キャプセルでは3段の内部キャプセルからなり、それぞれの内部キャプセルには被覆粒子装荷用の孔を有する黒鉛ホルダーを2個有している。上段内部キャプセルの被覆粒子装荷孔は炉中心から上方141mmと238mmの間に位置し、中段内部キャプセルの装荷孔は下方3mmと94mm、下段内部キャプセルは下方204mmと298mmの間に位置している。キャプセル外筒はSUS 304で、その内側にはA 熱媒体があり、この中に中性子フルーエンス・モニター及びクロメル熱電対が配されている。また、各内部キャプセル中心部にはW・Re 熱電対が挿入されており、被覆粒子温度はこの熱電対により制御される。

2.2 内部キャプセル

Fig. 3に73F-13Aキャプセルの内部構造を示す。上、中、下段内部キャプセルとも同一構造であり、燃料温度制御のため、これらは二重管構造になっている。外筒はSUS 304、内筒はNb-1%Zrであり、温度制御はこのギャップのHe真空度を変化させ、ギャップの熱伝達を調整することにより行われる。内部キャプセルに保持されている被覆粒子装荷用の黒鉛ホルダーは 18^ϕ 、 50^l mmの大きさで、各黒鉛ホルダーには上面および下面から互い違いにそれぞれ4本の穴(23^ϕ mm \times 40^l mm)がつけられている。キャプセル軸方向に対して上面からの穴をA、下面からの穴をBと区別する。これは、AおよびBの穴には異なる被覆粒子が装荷されるためである。各内部キャプセルに装荷されている2個の黒鉛ホルダーのうち、上部に位置する黒鉛ホルダーの中央部に燃料温度測定用の穴がつけられ、この中にW・Re熱電対が挿入されている。2個の黒鉛ホルダーはMo筒に収納され、これがNb-1%Zr内部キャプセルに入っている。Mo筒は熱媒体の役目を有するとともに、黒鉛ホルダーの温度を均一に保つための均熱材でもある。上述したように、黒鉛ホルダーには2種類の被覆粒子が装荷されるため、1個の内部キャプセルには4種類の被覆粒子が収納される。黒鉛ホルダーの両端にはZrO₂断熱材、Zr酵素ゲッター、Zr反射板、およびZr酵素ゲッターの順に配され、軸方向の熱の逃げを防止し、エンドプラグ(Nb-1%Zr)の温度上昇をくい止めている。

3. 被覆燃料粒子

73 Fig-13A キャプセルで照射した被覆燃料粒子の特徴をTable 1にまとめている。このキャプセルには標準粒子として74FC1(49年度試作粒子)を中心に、49年度試作燃料コンパクト装荷用被覆粒子としての74FCP1, また49年度に英国RFL(Reactor Fuel Element Laboratories)において実験炉予備設計仕様に基づいて試作した74UC1, さらにOGL-1第1次燃料体装荷用として試作した75OC1などのTRISO被覆粒子が主に装荷されている。この表で、5B黒鉛ホルダー孔に装荷されている74FC1Hは、照射前に74FC1を1800°Cで1時間、真空加熱した被覆粒子で、燃料コンパクトに焼成する際に被覆粒子が受ける熱処理が照射に及ぼす影響を調べることを目的としている。また1A, 4A, 4Bには、74FC2(BISO被覆粒子)にZrC被覆を施した粒子が装荷されているが、この特性の詳細については別途報告する。73F-13Aキャプセルに装荷した被覆粒子の燃料核は、全て UO_2 であり、その濃縮度については、75OC1を除いて8%eUである。75OC1は、OGL-1での熱中性子束が低いこともあり、1000°Cの出口ヘリウム循環ガスを得るのに必要な熱出力に到達するため、12%eUと多少高くなっている。

74UC1を除く被覆粒子の燃料核は、硝酸ウラン($UO_2(NO_3)_2$)液(ゾル)をアンモニア(NH_3 及び NH_4OH)中でゲル化した後、乾燥、焼成する方法(ゾル・ゲル法)によって製造されたが、74UC1の燃料核は、 H_2 雰囲気中1650°C粉末冶金法によって製造された。⁽⁷⁾ 国産および英国製未照射被覆粒子の代表的な金相をFig. 4に示す。この写真に見られるように、燃料核製造法の違いのため、74UC1の燃料核には、その中央部分に小さな気孔が存在し、他の被覆粒子燃料核とは様子が異なっている。

第1層PyC(バッファ層)は、いずれの被覆粒子でもアセチレン(C_2H_2)から蒸着され、その密度は $1.09 \sim 1.19 \text{ g/cm}^3$ (理論密度の約50%)と多孔質の層である。

第2層と第4層はともにプロピレン(C_3H_6)から蒸着されたLTI-PyC(Low Temperature Isotropic PyC)であり、結晶子径が 35 \AA 以下と小さいことが特徴である。PyC結晶方位の異方性を示すOAF(Optical Anisotropy Factor)は1.02以下であり、これらのPyCは等方性であるとみてよい。

第3層のSiCはメチルトリクロロシラン(CH_3SiCl_3)から蒸着された。国産粒子のSiC密度はいずれも 3.20 g/cm^3 以上であるが、74UC1のSiC密度はこれらより若干小さい。

1種類の被覆燃料粒子重量は1gから1.7gであり、被覆粒子数で約1000~1700粒である。キャプセル全体の被覆粒子装荷量は18.51gで、ウラン量で10.66gである。

4. 照 射

73F-13A キャプセルに装荷した被覆粒子の照射条件をTable 2にまとめている。キャプセル内では同種の被覆粒子が異った場所で照射されており、被覆粒子の照射結果の説明で混乱をまねく恐れがあるので、以後の被覆粒子の記号には被覆粒子名と黒鉛ホルダーの穴の番号とを併記する。このキャプセルの照射条件の詳細を以下に示す。

4.1 照射孔および照射時間

73F-13A キャプセルはJMTR K-6 孔(燃料領域孔)で# 38サイクル(昭和52年1月12日～)から# 44サイクル(～昭和53年7月8日)まで6サイクル(# 41サイクルは運転中止)わたって照射された。この間の全照射時間は2669.1h(111.2efpd)*であり、照射時間としては従来の被覆粒子用JMTR キャプセルの中で最も長い。

4.2 照射温度

73F-13A キャプセル各内筒中央部の照射温度履歴をFig. 5に示す。Fig. 5の〔1〕には熱電対指示による温度変化を示すが、# 39サイクル中に下段内筒のNo3熱電対指示が異常をきたし、これによる温度が信頼出来なくなった。また# 40サイクルの前半が終了する直前に中段内筒のNo2熱電対が断線した。このキャプセルの温度制御はNo2熱電対によって行われていたため、# 40サイクル後半以降は、真空温度制御系のヘリウムをダンプ状態**にして照射が続行された。さらに、# 40サイクル後半で、上段内筒のNo1熱電対指示に異常と思われる部分が現われたため、この熱電対温度も信頼出来なくなった。

このように、全ての被覆粒子温度測定用熱電対が故障したため、全照射期間を通じての照射温度を何らかの方法で決定する必要が生じた。Fig. 5の〔2〕には正常な状態での熱電対指示および熱計算をもとに推定した照射温度の変化を示す。また、Table 2にも各照射サイクル毎の照射温度を示している。Fig. 5に示したように、# 39～# 40サイクル前半にかけての下段内筒温度は、No3熱電対異常のため、# 38サイクルでのNo2熱電対温度をそのまま使った。# 40サイクル後半以降での照射温度は、全てのW・Re熱電対故障のため、熱計算によって推定した温度⁽⁸⁾を採用した。Fig. 5〔2〕の照射温度に見られるように、照射期間の前半(1210時間)には高温で照射され、特に中段内筒温度は1500℃以上に保持されていたものと思われる。その中で# 39サイクルには約1時間にわたって1700℃以上の超高温に曝された。しかし、後半では、ダンプ状態での運転のため、照射温度は低く、中段内筒温度でも～1000℃であった。

* effective full power daysの略

** ダンプ状態とは、内筒二重管間の真空温度制御用ギャップにヘリウムを充満し、この間の熱伝達を良くして照射温度を低下させる状態をいう。

4.3 中性子照射量

A 熱媒体には、高速中性子照射量測定用として、Fe モニタ・ワイヤー、熱中性子照射量測定用として Co モニタ・ワイヤーが装荷されており、これらは照射後試験でキャプセル本体から取出され、材料試験炉部計画課において、それぞれの中性子照射量が測定された。キャプセル軸方向での高速中性子および熱中性子照射量の分布を Fig. 6 に示す。また、この図には、キャプセル内での各々の黒鉛ホルダーの位置を対比して示しており、これより各被覆粒子試料の中性子照射量を求めた。熱中性子照射量については、Fig. 7 に示すように、被覆粒子領域と中性子フルーエンス・モニターでの場所とで異っており、前者での熱中性子束は後者の約 88% であるので、Table 2 に示す被覆粒子の熱中性子照射量を、フルーエンス・モニターによる測定値の 0.88 倍とした。

この表に示したように、最大の熱中性子照射量は No 4 黒鉛ホルダー (ZrC142-4A, ZrC145-4B) 部分で、 $2.36 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ であった。一方、高速中性子照射量もこの黒鉛ホルダー部分で最大となり、 $3.09 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) であった。

4.4 燃焼率および Pu 核分裂割合

本キャプセルで照射した被覆粒子の燃焼率およびその中に占める ^{239}Pu 核分裂の割合を、全被覆粒子試料について測定し、その結果を Table 2 に示す。

その測定方法は以下のとおりである。燃焼率測定は健全粒子の γ スペクトロメトリーによつた。硝酸浸出後の粒子を各種約 100 粒採取し、まず X 線ラジオグラフを撮った。同ラジオグラフ上で UO_2 核が残留している粒子の数を確認し、製造時の寸法・密度データから各測定試料の U 量を算出した。 γ スペクトルからの FP 核種の定量計算は、SPECTRAN-F コードによつた。燃焼率計算の入力として用いたのは、 $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$, ^{137}Cs , $^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$ の 3 種の系列である。Pu 核分裂割合 (% Pu fission) は、 ^{106}Ru , ^{144}Ce に照射中の崩壊を補正し、比 $^{106}\text{Ru}/^{144}\text{Ce}$ から評価した。評価法の詳細は文献(9)を参照されたい。

なお、No 3, 4 の黒鉛ホルダー中の 4 試料 (74FC1, 74UC1, ZrC142, ZrC145) について測定された ^{137}Cs 量は、 ^{106}Ru および ^{144}Ce 量から予測される量を著しく下回り、相当量の ^{137}Cs の放出が疑われた。したがって、これらの試料の燃焼率については、 $^{106}\text{Ru}/^{144}\text{Ce}$ から求められる Pu 核分裂割合を基礎に推定した。⁽⁹⁾

5. 照射後試験

5.1 照射後試験の概要

大洗研究所から東海研究所ホットラボに搬入した照射済73F-13Aキャプセルの解体は昭和55年11月から始められ、このキャプセルから取出した被覆粒子の照射後試験が開始された。Fig. 8に照射後試験の流れ図として示す。

5.2 外観，金相およびX線ラジオグラフィ検査

外観，金相およびX線ラジオグラフィ検査は全ての装荷被覆粒子について行った。Fig. 8に示すように外観検査には300粒毎に4つに区分けされた被覆粒子，1200粒を供し，その表面を20倍と40倍の被覆粒子検査用ペレスコープ（島津製作所，型式M-150）で観察した。

金相検査は鉛セルラインNo.5からNo.12で行われた。この検査には以下に記すような新しい研磨方法¹⁰⁾が採用された。被覆粒子約50粒をエポキシ系樹脂に埋込み，一定の面まで研磨した後，真空容器中で研磨面から再び樹脂を注入してやり，被覆粒子の内部を固定して，研磨を続行する方法である。このような研磨法の改良により，従来の方法によるものに比べて著しく鮮明な金相が観察出来るようになった。この観察にはTELATOM型金属顕微鏡（Reichert GmbH AUSTRIA）を使って行われた。

外観検査を終えた後，これに供した被覆粒子はX線ラジオグラフィ検査にまわされ，X線マイクロラジオグラフィ装置¹¹⁾で全被覆粒子のX線撮影を行った。外観検査およびX線ラジオグラフィ検査による被覆粒子破損率の結果をTable 3にまとめている。

以下には，上記三つの試験で得られた被覆粒子の照射挙動を，各被覆粒子毎に示す。

75OC1-1B (Fig. 9) [照射条件：1200°C，3.6% FIMA， $1.9 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]*

OGL-1第1次燃料体用に調製したこの被覆粒子は，Table 1に示したように12% eUの濃度を有しており，上段内筒に装荷されていたにもかかわらず，燃焼率は3.6% FIMAと高い値を示した。Fig. 9(A)の全体の金相に見られるように，特に著しい照射変化は認められない。いくつかの粒子には，バッファ層の一部が第2層PyC層（IPyC層と略す）から剥離している様子が見られるか，このような剥離は被覆層貫通破損に到るとは考えられない⁽¹²⁾。Fig. 9(B)（写真2および4）に見られるSiC層中の欠陥は恐らく製造時に入ったものと考えられる。Fig. 9(B)

（写真5および6）は，それぞれ偏光および白色光下での同一視野の金相を示す。偏光視野のバッファ層では，外側半分が白色に輝き，結晶化が進んでいる様子が窮えるが，燃焼率の低いOGL-1での照射被覆粒子では⁽¹²⁾，燃料核に接するバッファ層の半分の領域が白色に輝いており，これとは反対の現象を示した。Table 3に示したように，外観，X線ラジオグラフィでは

* 照射条件では，最高照射温度，燃焼率および高速中性子照射量（ $E > 0.18 \text{ MeV}$ ）の順に示す。

1粒も異状な被覆粒子は認められず、健全な状態を保っていたと言える。

74 UC1-2 A (Fig. 10) [照射条件: 1200°C, 3.28% FIMA, 2.22×10^{21} n/cm²]

金相の全体視野を Fig. 10 (A) に示す。この中には裸の燃料核が見られるが、他の被覆粒子断面には特に大きな異状は認められない。3章で記したように 74 UC1 は英国粒子で、その燃料核は焼結法で調製されたものであり、他の燃料核の製法とは異っている。Fig. 4 に示した未照射 74 FC1 に比べて、ここに見られる燃料核は全体的に収縮の傾向が見られ、バッファ層の高密度化による収縮と相共なって、燃料核とバッファ層の間にギャップが出ている様子が見られる。

Fig. 10 (B) (写真 5 および 6) では燃料核とバッファ層とが接している部分を拡大しているが、偏光視野でも特に異状は認められない。Fig. 10 (C) (写真 3 ~ 6) に示した X線ラジオグラフィでは、バッファ層収縮と燃料核収縮によると思われるギャップがほとんど全ての被覆粒子に認められる。外観、X線検査でも被覆粒子破損は認められなかった。

74 FC1-2 B (Fig. 11) [照射条件: 1200°C, 3.21% FIMA, 2.22×10^{21} n/cm²]

Fig. 11 (A) に全体の金相写真を示すが、バッファ層の剥離以外には特に異状は認められなかった。この被覆粒子では、燃料核が収縮していると思われる傾向は見られない。Fig. 11 (B) (写真 2) に見られるバッファ層の剥離は、バッファ層自身の高密度化のための収縮から来るもので、燃料核とバッファ層とが反応したために生じたものではないであろうと思われる。Fig. 11 (B) (写真 5 および 6) では、バッファ層が収縮し、IPyC層よりうすくなっている。また、Fig. 11 (C) に示すように、外観や X線ラジオグラフィでも特に異状は認められず、これらの破損率は 0 (Table 3) である。

74 UC1-2 A と 74 FC1-2 B とはまったく同じ条件で照射されているが、2 A, 2 B での照射条件では、これらの被覆粒子の照射挙動には明確な差は認められなかった。

74 FC1-3 A (Fig. 12) [照射条件: 1630°C (ピーク温度 1730°C), 4.4% FIMA, 3.05×10^{21} n/cm²]

3 A および 3 B に挿入した被覆粒子は、従来の照射試料の中では、燃焼率および高速中性子照射量とも最も高い値にまで照射された。Fig. 12 (A) に見られる 74 FC1-3 A の全体の金相写真では、裸の燃料核が 1 粒認められているほか、外部 PyC 層 (OPyC 層と略す) のみの被覆層片が 2 個みられる。しかし、この OPyC 層片は、恐らく、金相の研磨時に SiC 層から内側の部分が抜け落ちたものと考えられ、OPyC 層片に特に異状が見られないことから、この被覆粒子も全被覆破損には至っていないものと推察される。また、ほとんど全ての粒子内にはアメーバ効果の発生が見られる。燃料核は、74 UC1-2 A とは異って、明らかにスウェリングの傾向が見られ、バッファ層の収縮にもかかわらず、バッファ層/燃料核の間のギャップは認められない。

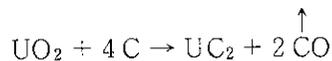
Fig. 12 (B) の写真 5 および 6 はアメーバ効果による炭素析出領域を白色光および偏光で観察した部分である。白色光下での観察では、炭素析出領域は他の相より高密度化している様子が見られる。一方、偏光視野では、炭素析出領域の中央部が白く輝いているのが見られ、この領域で結晶化が進んでいるものと思われる。Fig. 12 (C) の写真 6 に見られる X線ラジオグラフィでは、この析出領域で X線の透過が小さく、ウランが存在していることを示している。この析出領域における原子の移行については、後述する EPMA 観察 (5.6) でさらに詳しく述べる。

Fig. 12 (C) 写真 2 に示したように、外観検査では 1200 粒中 1 粒の被覆破損が見られたが、X

線ラジオグラフィでは3粒の破損が認められた。Fig. 2 (C) 写真5ではアメーバ効果で核が移動し、被覆層をつき破っている状態が見られるが、X線ラジオグラフィで観察された3粒の破損粒子ともアメーバ効果によるものである。

74 UC1-3 B (Fig. 13) [照射条件: 1630°C(ピーク温度 1730°C), 5.3% FIMA, 3.09×10^{21} n/cm²]

Fig. 13 (A) に示した金相の全体写真では、28粒の中で被覆層が明らかに貫通破損を起していると思われる被覆粒子が5粒認められるが(この他、2粒子の燃料核が抜け落ちているが、これは前述したように、研磨中に生じたものと思われる)、これらが全てアメーバ効果による破損であるかどうかはわからない。Fig. 13 (B) 写真2ではアメーバ効果発生のため、燃料核がバッファ層を侵食しながら、移動している現象が見られる。しかし、写真3や4では、被覆層が貫通破損を起しているためであるかもしれないが、燃料核は粒子中央部に位置し、バッファ層が全周周りにわたって消滅しており、核移動方向と研磨角度との関係を考慮に入れても、アメーバ効果とは多少異った現象のようである。SiC層については、OPyC層とIPyC層が健全である領域ではSiC層には分解などの異状は見られないが、OPyC層が消失している部分では(写真5および6)、燃料核物質と反応を起し著しい劣化が見られる。SiC層が高温において分解する現象であれば、OPyCおよびIPy層が健全であってもSiC劣化が進行する⁽¹³⁾。74 UC1-3Bの被覆破損としては、アメーバ効果で被覆が劣化し、被覆にガス透過性が生じ、



の反応に従って周囲のバッファ層炭素を侵食して燃料核が炭化され、さらにUC₂がSiC層と反応して、余剰の粒内圧力でいっきに全被覆破損に至るものと推察される。

UC/SiCの反応では1600°C以上でSiCが分解されることが報告されている⁽¹⁴⁾。Fig. 13 (C) の写真1, 2では粒子内部からガスが噴出したと思われる破損を示しており、その破損部分は熔融状態を示している。また写真6のX線ラジオグラフでも破損部分がふくれ上がり、この部分が熔融状態であったことを示している。この破損については、後で、そのプロセスを推察している。

74 UC1-3Bは73F-13A キャプセル装荷被覆粒子の中で最も破損が大きく、Table 3 に示すごとく、X線ラジオグラフィ検査でも14%の被覆粒子が全被覆破損を起していた。これは、まったく同一の照射条件であった74 FC1-3A に比べて約50倍も高い破損率であった。

74 FC1-5 A (Fig. 14) [照射条件: 1380°C, 3.93% FIMA, 2.73×10^{21} n/cm²]

Fig. 14 (A) に示す金相の全体写真には燃料核やSiC層から内側の部分が抜け落ちている粒子が10粒見られるが、これらは前述したように粒子破損のためではない。この被覆粒子にはバッファ層の収縮による剥離以外には特に異状は認められず、上記の照射条件では健全性を保ったと言える。またFig. 14 (C) に示したように、外観やX線検査でも粒子破損はまったく認められなかった。

74 FC1H-5 B (Fig. 15) [照射条件: 1380°C, 3.88% FIMA, 2.73×10^{21} n/cm²]

被覆粒子も照射条件も74 FC1-5 A とまったく同じであるが、この被覆粒子は照射前に1800°Cで1時間の熱処理を受けている。Fig. 15 (A) に見られるように、燃料核に亀裂が発生していること以外には異状は認められない。Fig. 15 (B) 写真4ではこの亀裂は結晶粒界に沿って起って

いるようである。この亀裂発生の原因としては次のような事が考えられる。熱処理により燃料核中の微小な気孔や原子空孔が結晶粒界に集まり、粒界が機械的に弱くなっているところに、スウェリングにより燃料核に応力が生じ、その結果、粒界に沿って亀裂が起ったものとみられる。

Fig. 15 (C) に示すように、外観検査や X線ラジオグラフィでは裸の燃料核が一粒見られた。

75 OC 1-6 A (Fig. 16) [照射条件: 1380°C, 4.32% FI MA, 2.42×10^{21} n/cm²]

先に述べた 75 OC 1-1 B より温度、燃焼率および高速中性子照射量とも若干高い所まで照射されたが、Fig. 16 (A) の金相の全体写真に見られるように、被覆層破損はまったく生じていない。この被覆粒子にも他と同様にバッファ層の収縮による剥離が見られる (Fig. 16 (B) 写真 1 および 2, Fig. 16 (C) 写真 4 および 5)。また、Fig. 16 B 写真 6 に示すように、75 OC 1-1 B (Fig. 9 (B) 写真 4) とまったく同様の欠陥が SiC 層中に見られるが、これも製造時に入った欠陥とみられる。

74 FCP 1-6 B (Fig. 17) [照射条件: 1380°C, 3.15% FI MA, 2.42×10^{21} n/cm²]

74 FC 1 と製造バッチは異なるが同一種類のこの被覆粒子も Fig. 17 (A) の全体の金相写真に見られるように、粒子の破損は認められず、また他の国産の被覆粒子に比べてバッファ層の亀裂も少ない。Fig. 17 (B) 写真 5 および 6 では径方向での亀裂が生じているのが見られるが、いずれもバッファ層で止まっており IPyC 層へは入っていない。Fig. 17 (B) 写真 4 では OPyC 層に欠損部から微細な亀裂が走っているのが認められるが、これが照射によるものかどうかはわからない。外観および金相検査では粒子破損は認められず、健全であった。

5.3 FP インベントリー測定

照射済被覆燃料粒子中の FP インベントリーは、燃焼率、酸浸出率および FP 放出率の算出の基本になる重要な測定で、従来のキャプセル照射ではこの試験は行っていなかった。

測定では、酸浸出を終えた被覆粒子の中から 100 粒を区分けし、X線ラジオグラフィによりこれらの粒子のうち健全な粒子の数をかぞえたのち、 γ 線スペクトロメータでその中の FP インベントリーを測定した。Fig. 18 には、インベントリーの中のいくつかの FP 量をキャプセル軸方向に対しプロットしている。FP 量は熱中性子分布に対応して変化しているが、¹³⁴Cs と ¹⁵⁴Eu は核分裂後に安定な ¹³³Cs や ¹⁵³Eu になったのち (n, γ) 反応によって放射化されて生成するため、中性子照射量依存性が大きく、他の FP 分布に比べて変化が大きい。また、¹⁴⁴Ce と ¹⁴⁴Pr とは放射平衡にあるため、それらの存在量は同じであるはずだが、測定結果では、¹⁴⁴Pr 量が ¹⁴⁴Ce 量の約 2 倍も多く存在していた。しかし、これは ¹⁴⁴Ce の測定 γ 線エネルギーが 133 KeV と低いと、測定試料の形状効果や自己吸収などにより、¹⁴⁴Ce 量を実際より少なく評価しているものと思われる。73 F-13 A キャプセル装荷被覆粒子中の FP インベントリーを Table 4 にまとめている。

5.4 酸浸出試験

酸浸出試験には金相や XMA 用の被覆粒子を除いた全ての被覆粒子が用いられた (Fig. 8 参照)。

200 ml の 7 モル . 硝酸溶液中に被覆粒子を入れ、130 °C で 8 時間の浸出を行った。浸出後、この液から 0.2 ~ 1 ml を分取し、 γ 線スペクトロメータでその中の FP 量を測定した。一方、浸出率を算出するために必要な被覆粒子中の FP 量は 5.3 で記した FP インベントリー測定結果および ORIGEN 計算コードで計算した結果を使った。Table 5 には種々の核種で求めた酸浸出率をまとめている。

インベントリー測定結果から求めた ^{144}Ce 浸出率は、前述 (5.3 FP インベントリー測定) したように、被覆粒子中の ^{144}Ce 量を少なく評価しているため、他の FP による浸出率より高い値が出ている。インベントリー測定から求めた ^{134}Cs 、 ^{137}Cs および ^{144}Pr の浸出率、および ORIGEN 計算で求めた ^{137}Cs の浸出率は共に非常に近い値を示し、また ORIGEN 計算で求めた ^{144}Ce および ^{144}Pr 浸出率も上記の浸出率からは大きくは違ってはいない。特に、No. 2 黒鉛ホルダーに装荷していた 74 FC 1-3 A や 74 UC 1-3 B などは、外観や X 線ラジオグラフィ検査で記したように被覆破損がかなり認められるため、Cs が飛散している場合はかなり大きいと思われるが、Cs の浸出率は ^{144}Pr とあまり変わっていない。これについては次のように考えられる。Fig. 5 の温度履歴にみられるように、No. 2 黒鉛ホルダーが 1600 °C 以上の高温に保持されたのは照射の前半であり、後半には 1000 °C 前後の低い温度に保たれていた。このため、照射の前半でかなりの割合で Cs の飛散が生じたと思われる破損被覆粒子にも、照射の後半で Cs が再び蓄積され、浸出率が ^{144}Pr などとあまり変わらない値を示したものと考えられる。なお、Cs の飛散については 5.5 で詳しく記す。 ^{95}Zr については、照射終了から測定に至るまでの放射能冷却期間が約 4 年間もあり、この間に消滅して、測定が出来なかった。

このような種々の問題を考えると FP インベントリー測定から求められる酸浸出率には ^{144}Pr が最も適していると思われる。 ^{144}Pr 浸出率と X 線ラジオグラフィによる破損率 (Table 3) を比較してみると、粒子破損が認められた 74 FC 1-3 A、74 UC 1-3 B および 74 FC 1H-5 B においては、それらの比率は非常に良い一致を示している。

5.5 金属 FP の放出

Table 6 には、照射後の黒鉛ホルダーの γ 線スペクトロメトリーから得た金属 FP 放出分率を示した。ただし、No. 3 および 4 の黒鉛ホルダーについては、放射能が強すぎて測定できなかった。それ以外の No. 1, 2, 5, 6 の黒鉛ホルダーの放射能のほとんどは、 ^{60}Co であり、金属 FP としては、 ^{106}Ru 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs が検出された。これら金属 FP の放出分率は、測定したいずれの黒鉛ホルダーについても $\sim 10^{-5}$ にすぎなかった。既述のとおり、各黒鉛ホルダーには 2 種類の被覆燃料粒子が装荷されていたので、ここに示した放出分率は各 2 種の被覆燃料粒子についての平均値である。

Cs と異なり Ru は、高融点金属であり、照射 UO_2 中では 4 d 遷移金属合金相の一成分として低い蒸気圧を有する。したがって、 UO_2 核からの放出は、Cs に比べると著しく小さい。にもかかわらず、Table 6 において Ru と Cs の放出分率がともに $\sim 10^{-5}$ となっていることは、主たる FP 放出源が破損粒子ではなく、被覆層の汚染ウランであることを示すものと考えられる。ただし、表中で Ru の放出分率が Cs のその 2 ~ 3 倍となっているのは、被覆粒子から放出された

Cs のある割合が、さらに黒鉛ホルダー外に放出されたためであろう。

既に 5.4 で述べたように、No. 3, 4 の黒鉛ホルダー中の 4 試料については、FP インベントリ一測定の結果、 ^{137}Cs の相当量の放出が凝われた。そこで、 ^{106}Ru , ^{144}Ce 生成量から ^{137}Cs 生成量を推定し、実測された ^{137}Cs の量と比較した (Table 7)⁽⁹⁾。計算値と実測値との差が貫通破損粒子以外の粒子からの ^{137}Cs 放出量に対応していると考えられる。したがって、これらの試料からの ^{137}Cs 放出分率の推定値は、同表の最終列に示すようなものとなる。このように高い放出分率は、相当数の粒子に照射中に第 3 層 (SiC あるいは ZrC) 破損が生じたことを示している。その原因の一部は、5.2 に見られた著しいアマーバ効果の発生であり、また高温での SiC 層の分解である)。

ZrC 被覆粒子については、ZrC 142-4 A と ZrC 145-4 B とでは健全性に大きな差があることが分かる。ZrC 142 の ZrC 層は金相上で微小な気孔を多く含んでいた。また、同粒子が ZrC 層の外側にシール層を有していなかったことも、同粒子の高い破損率に結びついたものと考えられる。一方、ZrC 145 は照射条件の苛酷さを考えるなら、かなり高い耐照射性能を示したと言って良いであろう。

5.6 EPMA による被覆粒子内の観察

5.6.1 被覆層中のパラジウム

大洗研ホットラボの EPMA を用いて、被覆層中のパラジウム (Pd) の挙動を調べた。観察した試料は、74 FC 1-3 A, 74 FC 1-5 A, および 74 FC 1H-5 B の 3 種類である。これらの試料のパラジウム生成量の計算値を、Table 8 に示す。パラジウムは、SiC 層を腐食する FP として、近年、その観察例が数多く報告されている⁽¹⁵⁾。

観察した試料のうち、被覆層中にパラジウムが認められたのは、3 A の試料だけであった。パラジウムが認められた付近の 2 次電子像および Pb-L α 線による面分析写真を Fig. 19 に示す。パラジウムは、SiC 層内面に蓄積していることがわかる。パラジウムが SiC 層と反応を起こし、SiC 層の内部まで進入しているという証拠は、見つからなかった。Fig. 19 に示した粒子は、アマーバ効果を起こしており、パラジウムの SiC 層内面における蓄積は、粒子の低温側に限られていた。一方、アマーバ効果を起こしていない健全な粒子においても、パラジウムが SiC 層内面に蓄積しているのが認められた。しかし、この場合は、パラジウムの蓄積位置と粒子内の温度勾配との関係は明らかでない。

5.6.2 燃料核移動

Fig. 20 にアマーバ粒子 (74 FC 1-3 A) の低温側から得た、後方散乱電子線像、および U, C, O の特性 X 線像を示す。アマーバ効果は被覆層の高温側から低温側に炭素が輸送され、それに伴い燃料核が高温側に移動する現象である。図では、低温側の炭素析出相中に、核移動の跡を示す微小粒子の分布が見られる。U, O 特性 X 線像から、これらの微小粒子は UO_2 と考えられる。

Fig. 21 には、 UO_2 核気孔中および粒界に沿った炭素の析出を示す。以上の観察結果、すなわち、炭素析出相中の UO_2 微小粒子の分布、および UO_2 核気孔中、粒界沿いの炭素析出物の存在は、

炭素輸送機構として、CO/CO₂ ガスの気相輸送モデルよりも、UO₂ 母相中の炭素の熱拡散機構を示唆するものである。

5.7 被覆粒子の破壊強度測定

照射済および未照射の被覆粒子の破壊強度を測定し、照射前後の破壊強度を比較した。用いた破壊強度測定装置⁽¹⁶⁾は、ホットセル内に設置されており、強度測定は遠隔操作によって行われた。被覆粒子の破壊強度は、被覆粒子を平行な2平面の間に置き、被覆粒子に圧縮荷重を加えるとき、被覆層が破壊する荷重と定義される。ここでは、荷重および変位を連続的に測定・記録した。用いた被覆粒子試料は、未照射および照射済(2B, 3A, および5A)の74FC1粒子、ならびに、未照射および照射済(3B)の74UC1粒子である。試料数は、それぞれ20粒子であった。

破壊強度測定の荷重-変位曲線を、2Bおよび未照射の74FC1粒子を代表例として、Fig. 22に示す。未照射粒子と照射済粒子とでは、曲線の形が異なっているのがわかる。未照射粒子の場合、荷重は、破壊荷重到達後に、すみやかに基線まで戻る。一方、照射済粒子の場合、荷重は、破壊荷重到達後に、減少-増加を何回も繰り返し、徐々に基線まで戻る。この荷重-変位曲線の形の相異は、被覆粒子の破壊機構が照射によって変化したためではないかと考えられる。

破壊強度の測定結果のワイブル分布を、74FC1粒子についてはFig. 23に、74UC1粒子についてはFig. 24に、それぞれ示す。これらからわかるように、被覆粒子の破壊強度は、照射によって減少した。50%破壊確率強度の照射による減少率と高速中性子照射量との関係をFig. 25に示す。破壊強度は、高速中性子照射量の増加にともない減少していることがわかる。

被覆粒子の破壊強度の照射による減少を考察するために、個々の被覆層の強度変化に目を向けてみる。Kaae⁽¹⁷⁾によると、プロパンを原料としたPyCの照射による強度変化は認められなかった。また、SiCに関しては、Sheldon⁽¹⁸⁾が550°Cの照射温度で 5×10^{26} n/m² (DNE)の照射を受けたSiC層の強度は14%減少したと報告しているが、一方、Price⁽¹⁹⁾によると、1020°Cの照射温度で 2.8×10^{25} n/m²の照射を受けたSiCの強度変化は、認められなかった。このように、被覆層の照射による強度変化のデータは少ないが、これらから判断する限り、被覆粒子の破壊強度減少の原因を被覆層の強度減少にだけ帰することはできない。一方、照射済粒子の金相写真に見られるように、バッファ層が燃料核または内側PyC層から剥離しているものがある。これは高速中性子照射によるPyCの収縮のためと考えられるが、この被覆層の剥離が、Fig. 22に示したような破壊機構の変化および被覆粒子の破壊強度の減少に関与しているのではないかと考えられる。なお、詳細については、他の文献⁽²⁰⁾を参照されたい。

6. 考 察

73F-13A キャプセルでは、#39 サイクルにおいて、中段内筒に装荷した被覆粒子が、短時間ではあるが、1700℃以上の超高温に保たれたこと、および照射の前半では比較的高温で、後半では、温度制御用の熱電対の断線のため、1000℃以下の低い温度であったこと、などが照射の特徴であった。このように照射温度の大幅な変動のため、実験炉通常状態を対象にした被覆粒子の照射健全性を議論するには、必ずしも十分ではないが、超高温挙動やFP挙動の面からも、73F-13A キャプセルによる被覆粒子の挙動を評価する。

6.1 被覆粒子破損

高温ガス炉燃料の照射挙動の中で被覆粒子破損は、FP放出の直接の原因となるため、最も重要視されている燃料特性である。Table 9には、照射後試験で明らかになった三つの方法によるTRISO被覆粒子の破損率をまとめている。上段内筒に収納していた74UC1-2Aでは、X線ラジオグラフィ外観検査および酸浸出のいずれの方法によっても、被覆破損は認められないが、Fig. 10(A)にみられるように、金相検査では、被覆層のない燃料核が存在しており、被覆破損の発生を示している。もし、この被覆破損が照射中に起こったものであれば、この燃料核は炭化され、また、酸浸出試験において溶解し、浸出率は高い値($\sim 1 \times 10^{-3}$)を示すはずである。したがって、ここにみられる燃料核は、照射後試験のハンドリング中に被覆層が破損したためであると考えられる。これらの試験結果から、上段内筒で照射した3種類のTRISO粒子には照射による破損は起こらなかったと結論づけられる。

中段内筒では、74FC1-3Aと74UC1-3Bがまったく同じ条件で照射されたが、Table 9に示すように、どの試験によっても、国産である74FC1-3Aの破損率は、英国製である74UC1-3Bのそれに比べて、はるかに低いことがわかる。また、このように破損率が高い場合、三つの異なった試験方法での結果は、比較的良く一致している。(ただし、74UC1-3Bの外観破損率だけは、他に比べて、多少、低めに出ている。)

非常に高い温度における被覆粒子破損の原因として、アメーバ効果や被覆層の気密性の喪失などが考えられる。Fig. 12(C)やFig. 13(C)に示したように、これらの被覆粒子には、アメーバ効果で被覆が破損している様子が見られるが、特に74UC1の場合、Fig. 13(A)、(B)および(C)に示す金相やX線ラジオグラフでは、燃料核が粒子の中央にありながら、被覆が破損している粒子がいくつか見られる。Fig. 13(B)の写真5に見られるように、反応層の内側には小さな気孔が発生しており、SiCが分解し始めている様子が見られる。この試料粒子におけるSiCの分解は、XMA測定によっても確かめられた。つまり、IPyCには多量のSiが検出されており、SiCが分解している事を示唆している。このようなSiCの分解は、SiC層破損の場合と同じように、実質上、BISO粒子と同じような機能になり、粒子によっては、Homan等⁽²¹⁾が指摘するように、気密性の喪失につながる。つまり、ここでは、次のようなプロセスが考えられる。SiCの

分解により被覆層の気密性が失われると、燃料核はバッファー層の炭素と反応して、炭化され、ウランは被覆層へ拡散する。SiCに達すると、Ferguson等⁽¹⁴⁾によると、1600°C以上ではU-Si-Cの三元系溶融体となり、SiCの一部を溶かしてしまう。特に、SiCの溶解が極所的に生ずると、粒子内の残留圧で、いっきにOPyC層を突き破って外部へ吹き出してしまふ。高温照射では、アマーバ効果による破損以外に、このような破損プロセスが考えられるが、このことはFig. 3(B)の写真1および2に示した吹き出しによる破損の様子や、写真5に示した吹き出し破損を生じた粒子では、燃料核移動がほとんど生じていない、ことから、その可能性が示される。

従来のキャプセル照射試験で、1600°C以上の高温で照射された被覆粒子の破損率(X線ラジオグラフィ、外観検査及び酸浸出試験)をFig. 26にまとめている。この図には、各被覆粒子試料の照射温度履歴も含めている。英国製74 UC1-4Bを除いては、最高照射温度が1730°C以下においては、国産被覆粒子の破損率は1%以下であるが、それ以上の温度では急激に破損率が増加するようである。この破損率を、CHST(Core Heat-up Simulation Test)^{*(22)}の結果と比較してみると、1800°Cでの国産粒子破損率は、高燃焼率照射を受けた米国TRISO粒子とほぼ同程度であったが(CHSTでは 2.7×10^{-2})、それ以下の温度では、国産粒子の破損率の方が米国粒子に比べて低い傾向が見られた。

下段内筒では、実験炉通常時ノミナル最高温度に対応した照射を受けているが、Table 9に示したように、この内筒で照射された被覆粒子の破損率は低く、非常に良好な照射性を示した。74 FC1H-5Bでは、外観やX線ラジオグラフィで1粒子の破損が見られ、また酸浸出率でも、若干、高い値を示したが、実験炉設計による目標最高破損率 5×10^{-3} よりは、はるかに低い。3章でも記したように、この被覆粒子は照射前に1800°Cで炉外加熱を受けているが、この熱処理が破損率を高めたかどうかはわからない。

第1次 OGL-1 燃料用粒子である75 OC1-1Bや75 OC1-6Aの酸浸出率と実際に照射した第1次 OGL-1 燃料コンパクトの酸浸出率の比較を、それらの照射条件と共に以下に示す。

| | 試料名 | 照射温度(°C) | 燃 焼 率 (% FIMA) | 高速中性子量 $\times 10^{21}(n/cm^2)$ | 酸浸出率 |
|-------------------------|------------------------|----------|-------------------|------------------------------------|----------------------|
| 73F-13A キャプセル 照 射 | 75 OC1-1B | 1380-750 | 3.6 | 1.9 | 4.4×10^{-5} |
| | 75 OC1-6A | 1200-650 | 4.3 | 2.7 | 6.1×10^{-5} |
| 第 1 次 OGL-1 照 射 | 75 OP2-1 (No.2ピン上端) | 1011 | 0.4 | 0.08 | 2.5×10^{-7} |
| | 75 OP3-1 (No.2ピン中央) | 1354 | 0.5 | 0.1 | 3.6×10^{-5} |
| | 75 OP3-9 (No.2ピン下端) | 1085 | 0.1 | 0.03 | 4.3×10^{-5} |

この表から、73F-13Aキャプセル照射量は、第1次OGL-1照射量に比べて非常に大きいにもかかわらず、それらの酸浸出率は、ほとんど同じであり、逆に言えば、OGL-1では、さら

* 米国GACで行われた照射後被覆粒子の高温炉外加熱実験で、1100~2700°Cまで加熱し、⁸⁵Kr放射率を被覆粒子破損率と見做して、超高温での破損を調べた。

に照射量を上げても、これらの被覆粒子の健全性は保たれることが予想される。

6.2 被覆粒子照射特性

金属 FP 放出については、6 個の黒鉛容器のうち、実験室で測定可能な上段および下段内筒の 4 個の黒鉛容器について、その中に吸着している金属 FP の測定を行ったが、 ^{106}Ru 、 ^{137}Cs および ^{134}Cs の放出率はいずれも 10^{-5} のオーダー、またはそれ以下であり、良好な FP 保持能を示した。これらの FP 放出率と Table 9 に示した酸浸出による破損率とはよく一致している。Fig. 27 には、ここで測定した ^{137}Cs 放出率を諸外国で測定された放出率^(23,24) (in-pile fractional release) と比較している。この図から、被覆粒子破損がなければ、Cs 放出率は照射時間の長短にかかわらず、ある一つの傾向を示すことが認められる。

EPMA による被覆粒子内の観察は、この一連のキャプセル照射試験では、初めて行ったものである。特に、粒子内での Pd/SiC 反応は、近年、注目されている現象であり、多くの研究が行われている。73F-13A キャプセルでは、74FC1-3A の SiC 内面に Pd 蓄積が見られたが、Pd が SiC 層と反応しているかどうかは確認できなかった。この試料は、照射の前半においては、 1500°C 以上の高温に保たれており、Tiegs⁽¹⁵⁾ によって与えられた Pd による SiC の腐食速度式をこの照射条件にあてはめると、約 $7.5\ \mu\text{m}$ (照射の前半のみ腐食が生ずると仮定) SiC が腐食されていることになる。おそらく、この試料のどこかでは Pd による局所的な反応が起っていると思われるが、大部分は、Fig. 19 に示したような一様な分布であり、現象的には GA による観察結果⁽²⁵⁾ と似ている。EPMA による Pd 反応の観察については、この試料が最初のものであり、十分な観察が行えなかったが、今後さらに照射試料についての観察を進めていく。

7. 結 論

予備設計仕様による49年度試作 TRISO 被覆粒子を主に、英国製 TRISO 被覆粒子、OGL-1 用被覆粒子、ZrC 被覆粒子を JMTR 燃料領域で111日間の照射した。照射の前半では、キャプセル中段内筒で1400°C以上の高温に保たれたが、後半では1100°C以下の低い温度であった。このキャプセルによる照射では、最大燃焼率は5% FIMAを越え、また高速中性子照射量も 3×10^{21} n/cm² (E > 29 fJ)を越えていた。この照射試験では、以下の結論が得られた。

- (1) 燃焼率、 $\sim 3\%$ FIMA、高速中性子照射量、 $\sim 2 \times 10^{21}$ n/cm²、照射温度、最高1200°Cで照射した第1次 OGL-1 用被覆粒子、英国製粒子、49年度被覆粒子には被覆破損は起らなかった。
- (2) 燃焼率、4~5% FIMA、高速中性子照射量、 3×10^{21} n/cm²、照射温度、最高1630°C (極大値1730°C)の条件下での照射では、49年度試作国産粒子は、同年度試作英国製粒子に比べてはるかに低い破損率を示し、国産粒子の方が優れた照射健全性を示した。
- (3) 超高温下での照射では、アメーバ効果による被覆破損と共に、SiC層の分解後、被覆粒子の気密性が失われ、移行して来たUがSiCと反応し、低融点化合物つくることにより、いっきに被覆粒子が破裂するという破損シーケンスが考えられる。
- (4) 燃焼率、3~4% FIMA、高速中性子照射量、 $2 \sim 3 \times 10^{21}$ n/cm²、照射温度、最高1380°Cで照射した下段内筒の試料(49年度試作被覆粒子、英国製粒子、第1次 OGL-1 燃料被覆粒子)には、ほとんど破損が生じなかった。
- (5) 同上の照射条件で、照射前に1800°Cで熱処理を受けた49年度試作被覆粒子には、若干の被覆破損が見られたが、これが熱処理によるものかどうかはわからなかった。
- (6) このキャプセルで照射した第1次 OGL-1 燃料被覆粒子の破損率と照射条件がこれよりはるかに緩やかな OGL-1 で照射した燃料コンパクト中のこの被覆粒子の破損率とは、ほとんど同じであり、OGL-1 では、さらに高速中性子を高めて照射しても被覆破損は起らないであろうということが予想される。
- (7) 上段、下段内筒装荷の被覆粒子からの金属 FP (¹⁰⁶Ru, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs) 放出率は 10^{-5} のオーダーあるいはそれ以下であった。
- (8) 中段内筒に装荷した49年度試作被覆粒子や英国製粒子からは10%以上の¹³⁷Csが放出されていると推定される。
- (9) 中段内筒に装荷した49年度試作被覆粒子には、SiC層の内側にPdの蓄積が生じた。
- (10) アメーバ効果を起した中段内筒に装荷した49年度試作粒子では、低温側に析出した炭素相の中に微小なウランが存在していたが、これはUO₂と考えられる。
- (11) UO₂核気孔中には炭素の析出が見られたが、このことから、アメーバ効果に対し、燃料核中で炭素の熱拡散機構が考えられる。
- (12) 被覆粒子の破壊強度は、高速中性子照射量の増加とともに減少した。これは、バッファー層が照射収縮のため、1PyC層や燃料核から剥離し、粒子破壊機構が変化するためであると考えられる。

謝 辞

本キャプセルの照射試験を実施するにあたって、多くの方の御協力を賜った事に対し、特に次の課室の諸兄に謝意を表します。

(1) キャプセル設計, 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,
東海研究所技術部工作課

(2) 照射後試験

東海研究所ホットラボ管理室
大洗研究所ホットラボ課

特に、本キャプセルの照射後試験に従事され、厩大なデータを出された東海研ホットラボ管理室、およびキャプセル設計で努力された大洗研照射一課の諸氏には深く感謝します。また、本試験を遂行するにあたって御激励を賜わった前燃料工学部長下川純一氏に謝意を表します。

参 考 文 献

- (1) 岩本多實, 他, JAERI-M 5876 (1974).
- (2) 岩本多實, 他, JAERI-M 6717 (1976).
- (3) 岩本多實, 他, JAERI-M 8552 (1979).
- (4) 福田幸朔, 他, JAERI-M 8949 (1980).
- (5) 福田幸朔, 他, JAERI-M 9644 (1981).
- (6) 福田幸朔, 他, 未公開報告書 (1981).
- (7) Allen, P.L., "Manufacture of enriched UO₂ coated particles for JAERI" (未公開報告書) (1976).
- (8) 材料試験炉部計画課, "照射試験実績記録" (未公開データ) (1978).
- (9) 小川徹, 他, JAERI-M 83-152 (1983)
- (10) 高橋五志夫, "高温ガス炉燃料照射後試験技術", 日本原子力学会分科会 (1981).
- (11) 鹿志村悟, 他, JAERI-M 6332 (1975).
- (12) Fukuda, K., et al., J. Nucl. Sci. Technol., 20, 584 (1983).
- (13) Naoumidis, A., Jül-1465 (1977).
- (14) Ferguson, I.F., Walker, D.E.Y., J. Chem. Soc., (A), 35 (1970).
- (15) Tiegs, T.N., ORNL/TM-7203 (1980).
- (16) 研究炉管理部, JAERI-M 5845 (1974).
- (17) Kaae, J.L., J. Nucl. Mater., 46, 121 (1973).
- (18) Sheldon, B.E., AERE-R 8025 (1975).
- (19) Price, R.J., Nucl. Technol., 35, 320 (1977).
- (20) Minato, K., et al., J. Nucl. Mater., J. Nucl. Mater., 119, 326 (1983).
- (21) Homan, F.J., et al., "Fission Product Retention in HTGR Fuels"
(第3回日米高温ガス炉安全性セミナー; 1982年6月BNL).
- (22) Goodin, D.T., J. Am. Ceram. Soc., 65, 238 (1982).
- (23) Adams, C.C., et al., GA-9383 (1969).
- (24) Zoller, P., Jül-1324 (1976).
- (25) General Atomic Company Report, GA-15606 (1979).

Table 1 Characteristics of coated parricles irradiated in 73F-13 A capsule.

| 黒鉛ホルダ-番号 | 被覆燃料粒子 | | | | | | | | | | | | キャプセル全体 |
|----------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | | |
| 被覆燃料核 | A | B | A | B | A | B | A | B | A | B | A | B | 74FCP1 |
| | ZrC145 | 75OC1 | 74UC1 | 74FC1 | 74FC1 | 74UC1 | ZrC142 | ZrC145 | 74FC1 | 74FC1 | 75OC1 | 74FC1 | |
| 組成 | UO ₂ |
| O/U比 | 2.00 | 2.01 | 2.00 | 2.01 | 2.01 | 2.00 | 2.00 | 2.00 | 2.01 | 2.01 | 2.01 | 2.01 | 2.01 |
| ²³⁵ U濃縮度(%) | 7.953 | 11.95 | 8.035 | 7.953 | 7.99 | 8.035 | 7.953 | 7.953 | 7.99 | 7.99 | 11.95 | 7.953 | 7.953 |
| 平均直径(μm) | 514.8 | 517.3 | 495.0 | 493.1 | 493.1 | 495.0 | 514.8 | 514.8 | 493.1 | 493.1 | 517.3 | 508.8 | 508.8 |
| 燃料核密度(%T.D.) | 96.6 | 94.9 | 96.0 | 96.6 | 96.6 | 96.0 | 96.6 | 96.6 | 96.6 | 96.6 | 94.9 | 96.6 | 96.6 |
| 第1層厚さ(μm) | 43.1 | 42.7 | 40.7 | 43.3 | 43.3 | 40.7 | 43.1 | 43.1 | 43.3 | 43.3 | 42.7 | 39.6 | 39.6 |
| PyC密度(g/cm ³) | 1.185 | 1.175 | 1.09 | 1.09 | 1.09 | 1.09 | 1.185 | 1.185 | 1.09 | 1.09 | 1.175 | 1.10 | 1.10 |
| 厚さ(μm) | 27.9 | 32.2 | 30.8 | 31.7 | 31.7 | 30.8 | 27.9 | 27.9 | 31.7 | 31.7 | 32.3 | 27.9 | 27.9 |
| 第2層密度(g/cm ³) | 1.807 | 1.820 | 1.83 | 1.804 | 1.804 | 1.83 | 1.807 | 1.807 | 1.804 | 1.804 | 1.820 | 1.835 | 1.835 |
| PyC OAF | 0.991 | 1.007 | 1.02 | 1.001 | 1.001 | 1.02 | 0.991 | 0.991 | 1.001 | 1.001 | 1.007 | 0.997 | 0.997 |
| 結晶子径(μm) | 23.72 | 24.3 | 28.0 | 28.0 | 28.0 | — | 23.72 | 23.72 | 28.0 | 28.0 | 24.3 | 28.11 | 28.11 |
| 第3層厚さ(μm) | — | 25.7 | 27.4 | 27.9 | 27.9 | 27.4 | — | — | — | — | 25.7 | 29.0 | 29.0 |
| 密度(g/cm ³) | — | 3.204 | 3.195 | 3.204 | 3.204 | 3.195 | — | — | — | — | 3.204 | 3.199 | 3.199 |
| C/Si | — | 1.02 | 1.017* | 1.015 | 1.015 | 1.017* | — | — | — | — | 1.02 | 1.035 | 1.035 |
| 第4層厚さ(μm) | 46.4 | 46.4 | 44.2 | 42.3 | 42.3 | 44.2 | — | — | — | — | 46.4 | 47.6 | 47.6 |
| 密度(g/cm ³) | 1.826 | 1.826 | 1.83 | 1.798 | 1.798 | 1.83 | — | — | — | — | 1.826 | 1.813 | 1.813 |
| PyC OAF | 0.9915 | 1.02 | 1.02 | 0.985 | 0.985 | 1.02 | — | — | — | — | 0.9915 | 1.003 | 1.003 |
| 結晶子径(Å) | 29.7 | 29.7 | 23.5* | 31.2 | 31.2 | 23.5* | — | — | — | — | 29.7 | 27.20 | 27.20 |
| 被覆粒子直径(μm) | ~760 | 791.6 | 790.0 | 765.3 | 765.3 | 790.0 | ~740 | ~760 | 765.3 | 765.3 | 791.6 | 771.3 | 771.3 |
| 被覆粒子密度(g/cm ³) | — | 4.45 | 3.99 | 4.41 | 4.41 | 3.99 | — | — | — | — | 4.45 | 4.5 | 4.5 |
| 被覆粒子装荷重量(g) | 1.6680 | 1.0106 | 1.6458 | 1.7053 | 1.7051 | 1.6463 | 1.4780 | 1.6690 | 1.7055 | 1.705 | 1.0100 | 1.5615 | 1.5615 |
| 装荷 ²³⁵ U量(g) | 0.9424 | 0.6250 | 0.9332 | 0.9430 | 0.9429 | 0.9334 | 0.9429 | 0.9430 | 0.9431 | 0.9430 | 0.6247 | 0.9430 | 0.9430 |
| 装荷 ²³⁵ U量(g) | 0.0750 | 0.0747 | 0.0748 | 0.0753 | 0.0753 | 0.0750 | 0.0750 | 0.0750 | 0.0754 | 0.0753 | 0.0746 | 0.0750 | 0.0750 |
| 被覆粒子1g中のウラン量(g) | 0.565 | 0.619 | 0.567 | 0.553 | 0.553 | 0.567 | 0.638 | 0.565 | 0.553 | 0.553 | 0.619 | 0.604 | 0.604 |

* 国内で測定した値
 ** 1800°C, 1h 加熱後のLc

Table 2 Irradiation conditions of coated fuel particles in 73F-13 A capsule.

| 内筒番号 | I | | | | | | II | | | | | | III | | | | | | | | |
|--|-------------------|---|-------|-------|-------|-------|--------|--------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|--|
| | 1 | | 2 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | | 3 | | 4 | | 5 | | 6 | | |
| 黒鉛試料容器番号 | 1A | 1B | 2A | 2B | 3A | 3B | 4A | 4B | 5A | 5B | 6A | 6B | 74FCI | 74FCI | 74FCIH | 75OCI | 74FCI | 75OCI | 74FCI | 75OCI | |
| 試料容器粒子名 | ZrC145 | 75OC1 | 74UC1 | 74FC1 | 74FC1 | 74UC1 | ZrC142 | ZrC145 | 74FC1 | 74UC1 | ZrC145 | 74FCI | 74FCI | 74FCI | 74FCI | 75OCI | 74FCI | 75OCI | 74FCI | 75OCI | |
| 燃料 | 2.54 | 3.55 | 3.28 | 3.21 | 4.4 | 5.3 | 4.8 | 4.1 | 3.93 | 3.88 | 4.32 | 3.15 | 4.4 | 5.3 | 4.8 | 4.1 | 3.93 | 3.88 | 4.32 | 3.15 | |
| 燃焼率 | 15 | 8 | 18 | 19 | 26 | 32 | 34 | 27 | 23 | 22 | 12 | 19 | 26 | 32 | 34 | 27 | 23 | 22 | 12 | 19 | |
| 燃焼率 (% FIMA) | 15 | 8 | 18 | 19 | 26 | 32 | 34 | 27 | 23 | 22 | 12 | 19 | 26 | 32 | 34 | 27 | 23 | 22 | 12 | 19 | |
| ^{239}Pu 核分裂割合 (%) | 15 | 8 | 18 | 19 | 26 | 32 | 34 | 27 | 23 | 22 | 12 | 19 | 26 | 32 | 34 | 27 | 23 | 22 | 12 | 19 | |
| 高速中性子照射量 ($\text{n}/\text{cm}^2, E > 0.18 \text{ MeV}$) $\times 10^{21}$ | 1.86 | | 2.22 | | 3.05 | | 3.09 | | 2.73 | | 2.42 | | 3.05 | | 3.09 | | 2.73 | | 2.42 | | |
| 熱中性子照射量 ($\text{n}/\text{cm}^2, E < 0.683 \text{ eV}$) $\times 10^{21}$ | 1.48 | | 1.85 | | 2.62 | | 2.68 | | 2.25 | | 1.90 | | 2.62 | | 2.68 | | 2.25 | | 1.90 | | |
| 照射温度 ($^{\circ}\text{C}$) | # 38 サイクル (前半) | 1190 | | | | 1500 | | | | | | | 1380 | | | | | | | | |
| | # 38 サイクル (後半) | 1200 | | | | 1440 | | | | | | | 1380 | | | | | | | | |
| | # 39 サイクル (前半) | 1150 | | | | 1620 | | | | | | | 1380* | | | | | | | | |
| | # 39 サイクル (後半) | 1200 | | | | 1630 | | | | | | | 1380* | | | | | | | | |
| | # 40 サイクル (前半) | 1170 | | | | 1630 | | | | | | | 1380* | | | | | | | | |
| | # 40 サイクル (後半) | 800* | | | | 1090 | | | | | | | 890* | | | | | | | | |
| 照射温度 ($^{\circ}\text{C}$) | # 42 サイクル (前半) | 750* | | | | 1020* | | | | | | 830* | | | | | | | | | |
| | # 42 サイクル (後半) | 750* | | | | 1020* | | | | | | 830* | | | | | | | | | |
| | # 43 サイクル (前半) | 700* | | | | 990* | | | | | | 780* | | | | | | | | | |
| | # 43 サイクル (後半) | — | | | | — | | | | | | — | | | | | | | | | |
| 照射温度 ($^{\circ}\text{C}$) | # 44 サイクル (前半) | 650* | | | | 960* | | | | | | 750* | | | | | | | | | |
| | # 44 サイクル (後半) | 650* | | | | 960* | | | | | | 750* | | | | | | | | | |
| 照射期間 (実効照射時間, h) | # 38 サイクル | 昭和 52 年 1 月 12 日 ~ 52 年 2 月 6 日 (520.5) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | # 39 サイクル | 52 年 3 月 8 日 ~ 52 年 3 月 29 日 (426.4) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | # 40 サイクル | 52 年 5 月 13 日 ~ 52 年 6 月 7 日 (508.9) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | # 42 サイクル | 52 年 12 月 13 日 ~ 53 年 1 月 26 日 (473.8) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | # 43 サイクル | 53 年 2 月 25 日 ~ 53 年 3 月 13 日 (230.1) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | # 44 サイクル | 53 年 6 月 12 日 ~ 53 年 7 月 8 日 (509.4) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 全照射時間 (efpd) | 2669.1 h (111.2) | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |

Table 3 Failure fraction of irradiated coated particles inspected by surface appearance and X-ray microradiography

| | Inspected number | F ₁ | 95% confidence limits of F ₁ | F ₂ | 95% confidence limits of F ₂ |
|-----------|------------------|----------------------|---|----------------------|---|
| 750C1-1B | 600 | 0 | 0 ~ 6.13×10 ⁻³ | 0 | 0 ~ 6.13×10 ⁻³ |
| 74UC1-2A | 1200 | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ |
| 74FC1-2B | 1200 | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ |
| 74FC1-3A | 1200 | 2.5×10 ⁻³ | 5.16×10 ⁻⁴ ~ 7.29×10 ⁻³ | 8.3×10 ⁻⁴ | 2.10×10 ⁻⁵ ~ 4.64×10 ⁻³ |
| 74UC1-3B | 1200 | 1.4×10 ⁻¹ | 0.122 ~ 0.162 | 7.5×10 ⁻² | 0.061 ~ 0.091 |
| 74FC1-5A | 1200 | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ |
| 74FC1H-5B | 1200 | 8.3×10 ⁻⁴ | 2.10×10 ⁻⁵ ~ 4.64×10 ⁻³ | 8.3×10 ⁻⁴ | 2.10×10 ⁻⁵ ~ 4.64×10 ⁻³ |
| 750C1-6A | 600 | 0 | 0 ~ 6.13×10 ⁻³ | 0 | 0 ~ 6.13×10 ⁻³ |
| 74FCP1-6B | 1200 | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ | 0 | 0 ~ 3.07×10 ⁻³ |

F₁ : Failure fraction by X-ray microradiography

F₂ : Failure fraction by surface inspection

Table 4 Fission product inventory in the coated fuel particles irradiated by 73F-13A capsule

| | ^{144}Ce | ^{134}Cs | ^{137}Cs | ^{154}Eu | ^{155}Eu | ^{144}Pr | ^{106}Rh | ^{125}Sb | ^{95}Zr |
|-------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| ZrCl45 (1A) | 2.30×10^4 | 1.09×10^4 | 8.48×10^4 | 1.03×10^3 | 7.21×10^2 | 4.47×10^4 | 1.78×10^4 | 1.83×10^3 | 1.03×10^2 |
| 750Cl (1B) | 2.91×10^4 | 1.29×10^4 | 9.88×10^4 | 1.21×10^3 | 7.77×10^2 | 5.24×10^4 | 1.71×10^4 | 2.00×10^3 | 1.18×10^2 |
| 74UCl (2A) | 2.73×10^4 | 1.36×10^4 | 8.86×10^4 | 1.31×10^3 | 8.00×10^2 | 4.52×10^4 | 2.09×10^4 | 2.09×10^3 | 1.31×10^2 |
| 74FC1 (2B) | 2.60×10^4 | 1.47×10^4 | 9.54×10^4 | 1.44×10^3 | 8.93×10^2 | 4.75×10^4 | 2.21×10^4 | 2.21×10^3 | 1.22×10^2 |
| 74FC1 (3A) | 3.42×10^4 | 2.23×10^4 | 1.10×10^5 | 2.52×10^3 | 1.21×10^3 | 6.17×10^4 | 3.71×10^4 | 3.06×10^3 | 2.3×10^2 |
| 74UC1 (3B) | 4.55×10^4 | 2.51×10^4 | 1.21×10^5 | 2.33×10^3 | 1.13×10^3 | 6.89×10^4 | 4.98×10^4 | 3.26×10^3 | 2.00×10^2 |
| ZrCl42 (4A) | 4.15×10^4 | 1.70×10^4 | 9.86×10^4 | 2.72×10^3 | 1.36×10^3 | 7.38×10^4 | 5.59×10^4 | 4.52×10^3 | 3.60×10^2 |
| ZrCl45 (4B) | 3.57×10^4 | 2.96×10^4 | 1.33×10^5 | 2.82×10^3 | 1.34×10^3 | 6.39×10^4 | 3.96×10^4 | 3.28×10^3 | 2.82×10^2 |
| 74FC1 (5A) | 3.20×10^4 | 2.23×10^4 | 1.17×10^5 | 2.16×10^3 | 1.17×10^3 | 5.52×10^4 | 3.06×10^4 | 2.73×10^3 | 2.28×10^2 |
| 74FC1H (5B) | 3.31×10^4 | 2.26×10^4 | 1.17×10^5 | 2.14×10^3 | 1.18×10^3 | 5.77×10^4 | 3.08×10^4 | 2.65×10^3 | 1.81×10^2 |
| 750Cl (6A) | 3.68×10^4 | 1.99×10^4 | 1.21×10^5 | 1.85×10^3 | 1.04×10^3 | 6.14×10^4 | 2.40×10^4 | 2.54×10^3 | 2.17×10^2 |
| 74FCPI (6B) | 2.48×10^4 | 1.50×10^4 | 9.11×10^4 | 1.44×10^3 | 8.13×10^2 | 4.62×10^4 | 2.22×10^4 | 2.11×10^3 | 1.39×10^2 |

 $\mu\text{Ci/g}$ ウラン (昭和57年7月23日現在)

Table 5 Results of acid-leaching experiment

| No. | Name of coated particles | ^{144}Ce | | ^{106}Rh | | ^{134}Cs | | ^{137}Cs | | ^{144}Pr | |
|-----|--------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| | | cal.* | meas.* | cal. | meas. | cal. | meas. | cal. | meas. | cal. | meas. |
| 1 | ZrCl45-1A | - | - | 8.1×10^{-5} | 1.1×10^{-4} | 1.2×10^{-5} | 2.6×10^{-5} | 5.8×10^{-6} | 7.4×10^{-6} | - | - |
| 2 | 750C1-1B | 1.5×10^{-5} | 7.1×10^{-5} | 1.2×10^{-4} | 1.8×10^{-4} | 2.1×10^{-5} | 5.5×10^{-5} | 2.8×10^{-5} | 4.4×10^{-5} | - | - |
| 3 | 74UC1-2A | - | - | 4.9×10^{-5} | 6.4×10^{-5} | 1.1×10^{-5} | 2.6×10^{-5} | 6.8×10^{-6} | 9.6×10^{-6} | - | - |
| 4 | 74FC1-2B | 4.0×10^{-6} | 1.7×10^{-5} | 6.0×10^{-5} | 7.5×10^{-5} | 6.9×10^{-5} | 1.5×10^{-4} | 1.1×10^{-4} | 1.5×10^{-4} | 6.7×10^{-5} | 1.6×10^{-4} |
| 5 | 74FC1-3A | 1.7×10^{-3} | 5.9×10^{-3} | 1.9×10^{-3} | 1.9×10^{-3} | 8.5×10^{-4} | 2.1×10^{-3} | 2.1×10^{-3} | 2.9×10^{-3} | 1.5×10^{-3} | 3.0×10^{-3} |
| 6 | 74UC1-3B | 8.5×10^{-2} | 2.5×10^{-1} | 6.8×10^{-2} | 5.2×10^{-2} | 3.7×10^{-2} | 8.0×10^{-2} | 9.5×10^{-2} | 1.2×10^{-1} | 7.7×10^{-2} | 1.5×10^{-1} |
| 7 | ZrCl42-4A | 8.1×10^{-2} | 2.6×10^{-1} | 7.8×10^{-2} | 5.6×10^{-2} | 3.6×10^{-2} | 1.2×10^{-1} | 8.1×10^{-2} | 1.3×10^{-1} | 6.4×10^{-2} | 1.2×10^{-1} |
| 8 | ZrCl45-4B | 1.7×10^{-2} | 6.4×10^{-2} | 1.9×10^{-2} | 1.9×10^{-2} | 7.0×10^{-3} | 1.4×10^{-2} | 1.7×10^{-2} | 1.9×10^{-2} | 1.7×10^{-2} | 3.5×10^{-2} |
| 9 | 74FC1-5A | - | - | 3.7×10^{-5} | 5.7×10^{-5} | - | - | 5.4×10^{-6} | 6.6×10^{-6} | - | - |
| 10 | 74FC1H-5B | 4.3×10^{-4} | 1.6×10^{-3} | 4.7×10^{-4} | 5.2×10^{-4} | 4.2×10^{-4} | 8.2×10^{-4} | 6.6×10^{-4} | 8.1×10^{-4} | 4.4×10^{-4} | 9.4×10^{-4} |
| 11 | 750C1-6A | - | - | - | - | - | - | 4.0×10^{-5} | 6.1×10^{-5} | - | - |
| 12 | 74FCP1-6B | 4.1×10^{-6} | 1.8×10^{-5} | 4.0×10^{-5} | 5.1×10^{-5} | 1.1×10^{-5} | 2.6×10^{-5} | 7.5×10^{-6} | 1.0×10^{-5} | - | - |

* cal. ; FP inventory in the coated particles was calculated.

meas. ; FP inventory in the coated particles was measured.

Table 6 Fractional releases of metal fission products.

| Holder No. | 1 | 2 | 5 | 6 |
|------------|----------------------|--------------------|--------------------|----------------------|
| Ru106 | 3×10^{-5} | 5×10^{-5} | 2×10^{-5} | 2×10^{-5} |
| Cs134 | 1×10^{-5} | 2×10^{-5} | 1×10^{-5} | 1×10^{-5} |
| Cs137 | $< 1 \times 10^{-5}$ | 1×10^{-5} | 1×10^{-5} | $< 1 \times 10^{-5}$ |

Table 7 Estimation of ^{137}Cs release for the particles contained in holders No.3 and 4.

| Holder | Sample | Tmax(°C) | %FIMA | $\text{Cs}_{\text{cal.}}^{137}$ (Ci/gU) | $\text{Cs}_{\text{obs.}}^{137}$ (Ci/gU) * | $(\text{Cs}_{\text{cal.}}^{137} - \text{Cs}_{\text{obs.}}^{137}) / \text{Cs}_{\text{cal.}}^{137}$ |
|--------|--------|----------|-------|---|---|---|
| 1 | 74PC1 | 1650 | 4.4 | 0.137 | 0.114 | 0.17 |
| | 74UC1 | 1650 | 5.3 | 0.165 | 0.137 | 0.17 |
| 2 | ZrCl42 | 1650 | 4.8 | 0.148 | 0.091 | 0.39 |
| | ZrCl45 | 1650 | 4.1 | 0.126 | 0.123 | 0.02 |

* Observed value for the particles retaining whole UO_2 kernels after acid leaching.

Table 8 Calculated Pd amount

| Sample | ²³⁵ U enrichment (%) | Burnup (%FIMA) | Pu fission (%) | Pd amount (atoms/particle) | Pd amount (atoms/cm ² -SiC) |
|-----------|---------------------------------|----------------|----------------|----------------------------|--|
| 74FC1-3A | 8 | 4.4 | 26 | 3.6×10^{15} | 2.8×10^{17} |
| 74FC1-5A | 8 | 3.93 | 23 | 2.9×10^{15} | 2.3×10^{17} |
| 74FC1H-5B | 8 | 3.88 | 22 | 2.8×10^{15} | 2.2×10^{17} |

Table 9 Summary of coating failure

| 被覆粒子 | X線ラジオグラフィによる破損率 (95%信頼限界) | 外観検査による破損率 (95%信頼限界) | 酸浸出による破損率(浸出核種) | 備考 |
|-----------|--|--|---|---------|
| 75OC1-1B | $0 \sim 6.1 \times 10^{-3}$ | $0 \sim 6.1 \times 10^{-3}$ | 4.4×10^{-5} (¹³⁷ Cs) | |
| 74UC1-2A | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | 9.6×10^{-6} (¹³⁷ Cs) | |
| 74FC1-2B | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | 1.6×10^{-4} (¹⁴⁴ Pr) | |
| 74FC1-3A | $5.2 \times 10^{-4} \sim 7.3 \times 10^{-3}$ | $2.1 \times 10^{-5} \sim 4.6 \times 10^{-3}$ | 3.0×10^{-3} (¹⁴⁴ Pr) | 異常状態に対 |
| 74UC1-3B | $1.2 \times 10^{-1} \sim 1.6 \times 10^{-1}$ | $6.1 \times 10^{-2} \sim 9.1 \times 10^{-2}$ | 1.5×10^{-1} (¹⁴⁴ Pr) | 応した照射 |
| 74FC1-5A | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | 6.6×10^{-6} (¹³⁷ Cs) | 通常時ノミナル |
| 74FC1-5B | $2.1 \times 10^{-5} \sim 4.6 \times 10^{-3}$ | $2.1 \times 10^{-5} \sim 4.6 \times 10^{-3}$ | 8.1×10^{-4} (¹³⁷ Cs) | 最高温度に対 |
| 75OC1-6A | $0 \sim 6.1 \times 10^{-3}$ | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | 6.1×10^{-5} (¹³⁷ Cs) | した照射 |
| 74FCP1-6B | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | $0 \sim 3.1 \times 10^{-3}$ | 1.0×10^{-5} (¹³⁷ Cs) | |

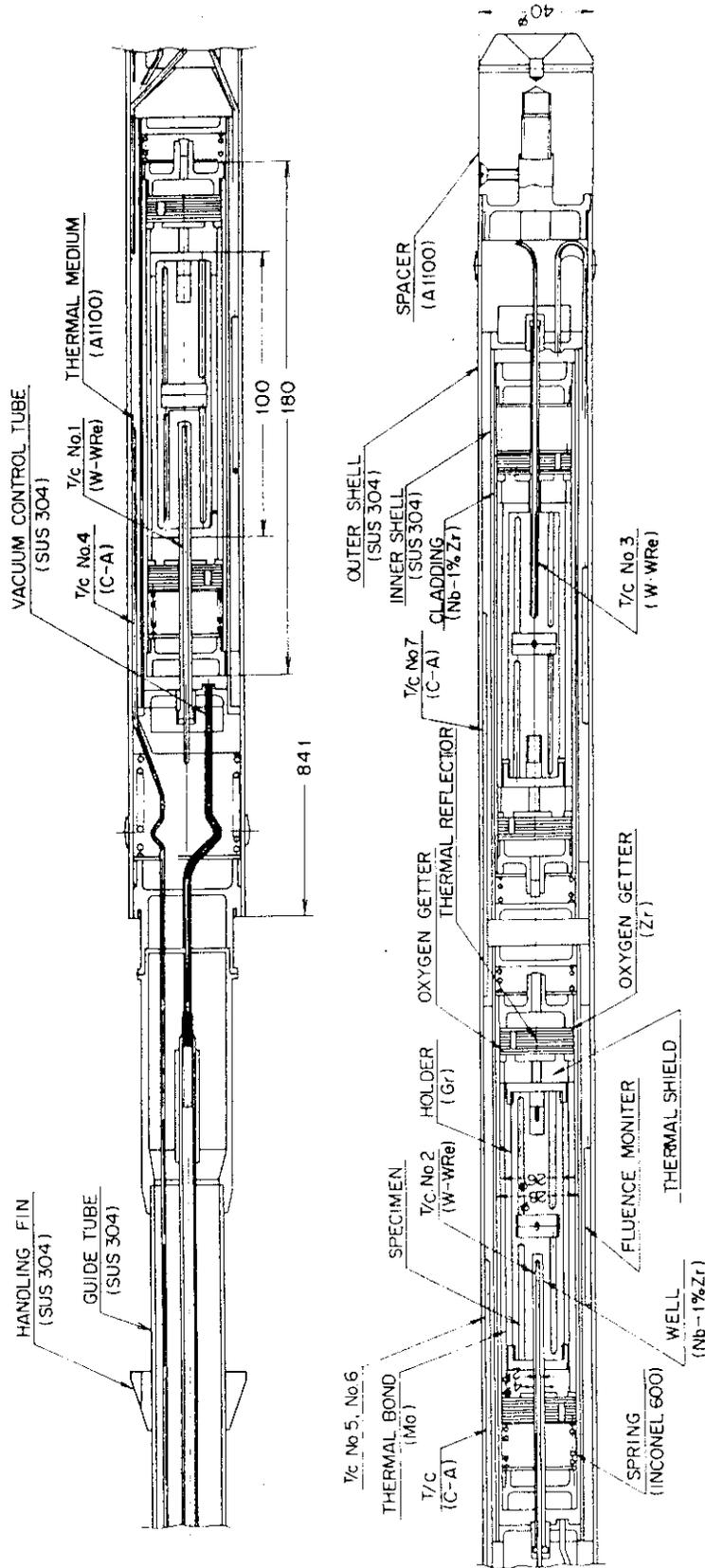


Fig. 1 Configuration of 73F-13A capsule.

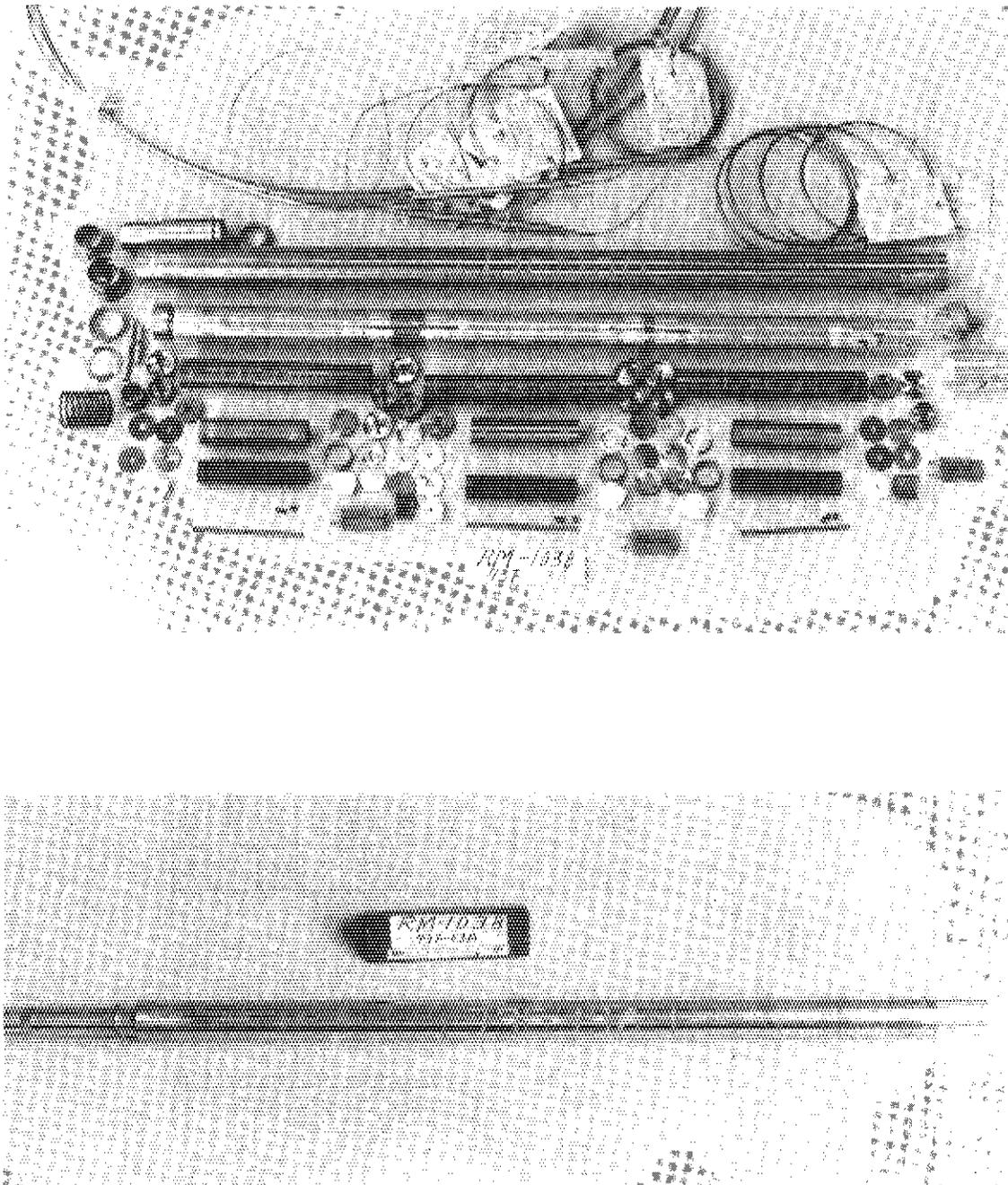


Fig. 2 Parts and constructed appearance of 73F-13A capsule.

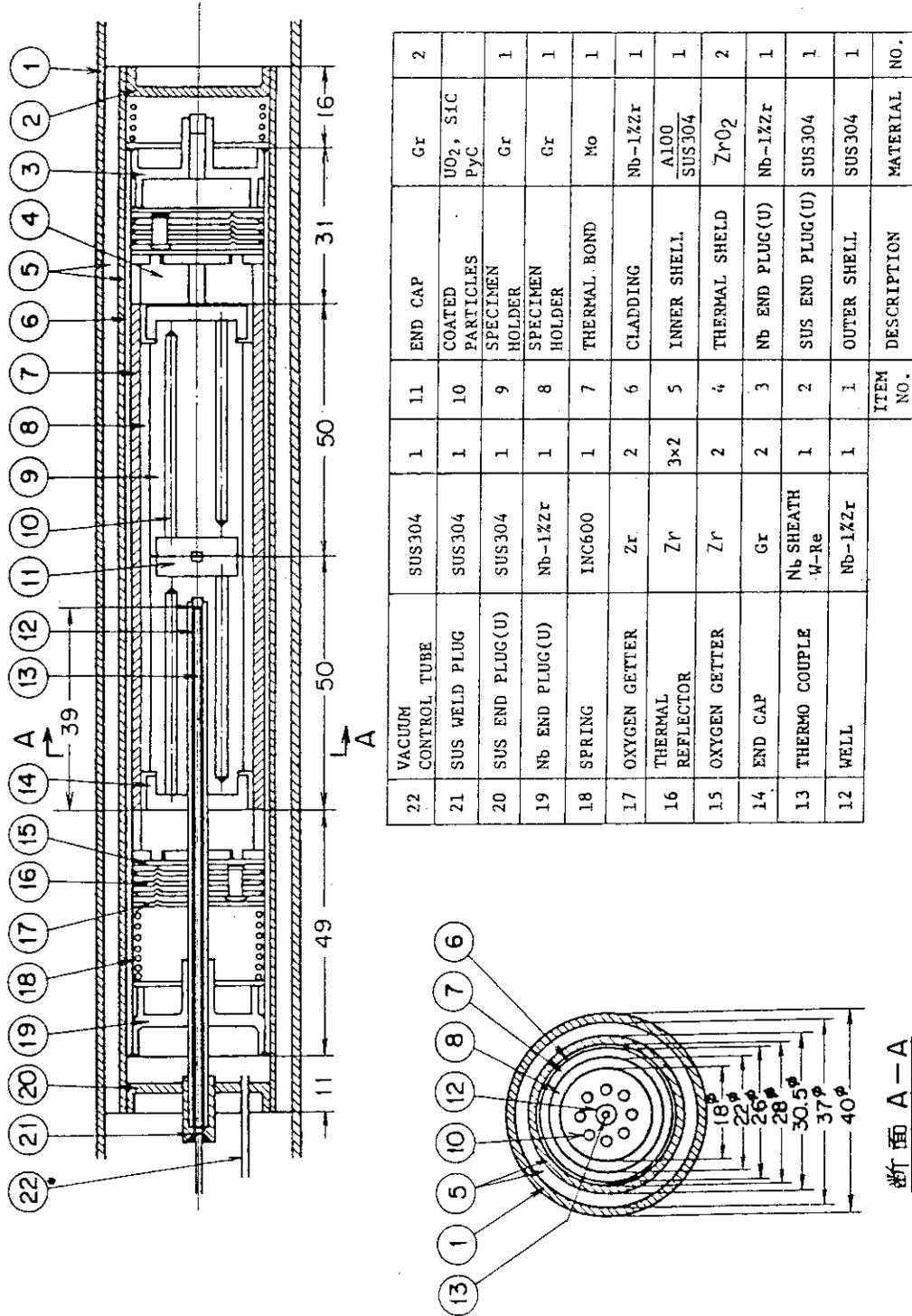


Fig. 3 Configuration of an inner capsule.

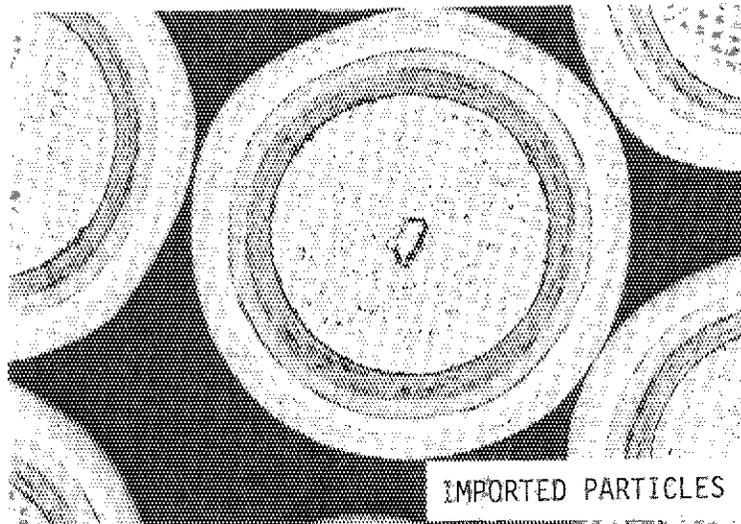
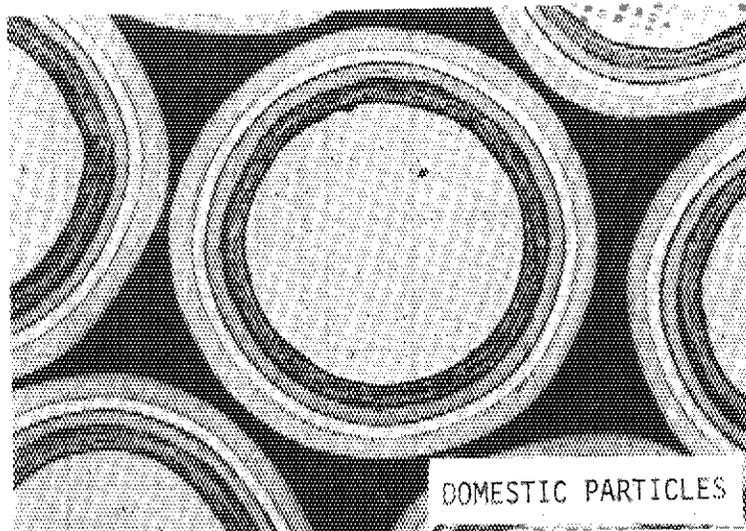


Fig. 4 Ceramographs of unirradiated domestic particles and imported ones.

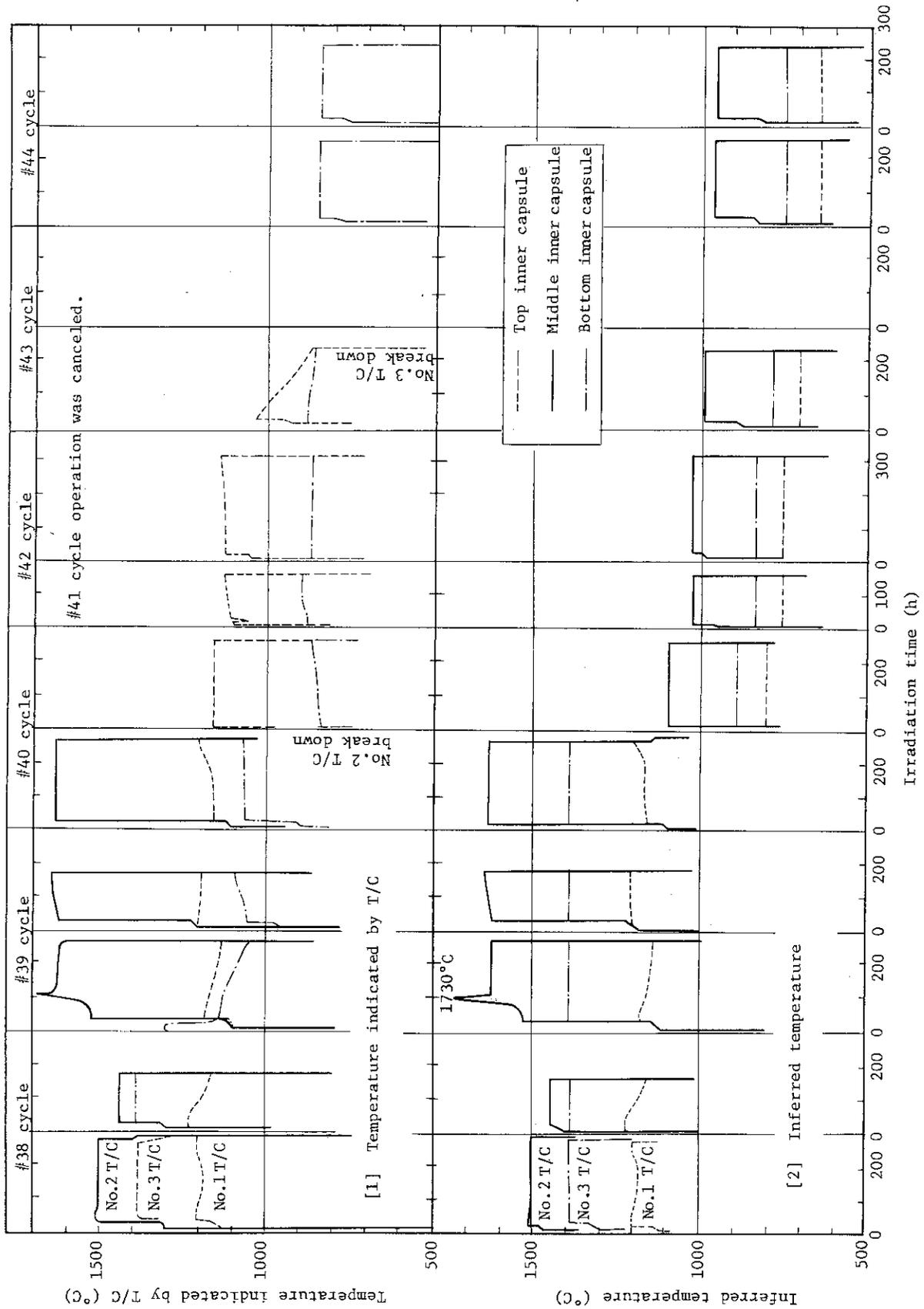


Fig. 5 Fuel temperature during irradiation

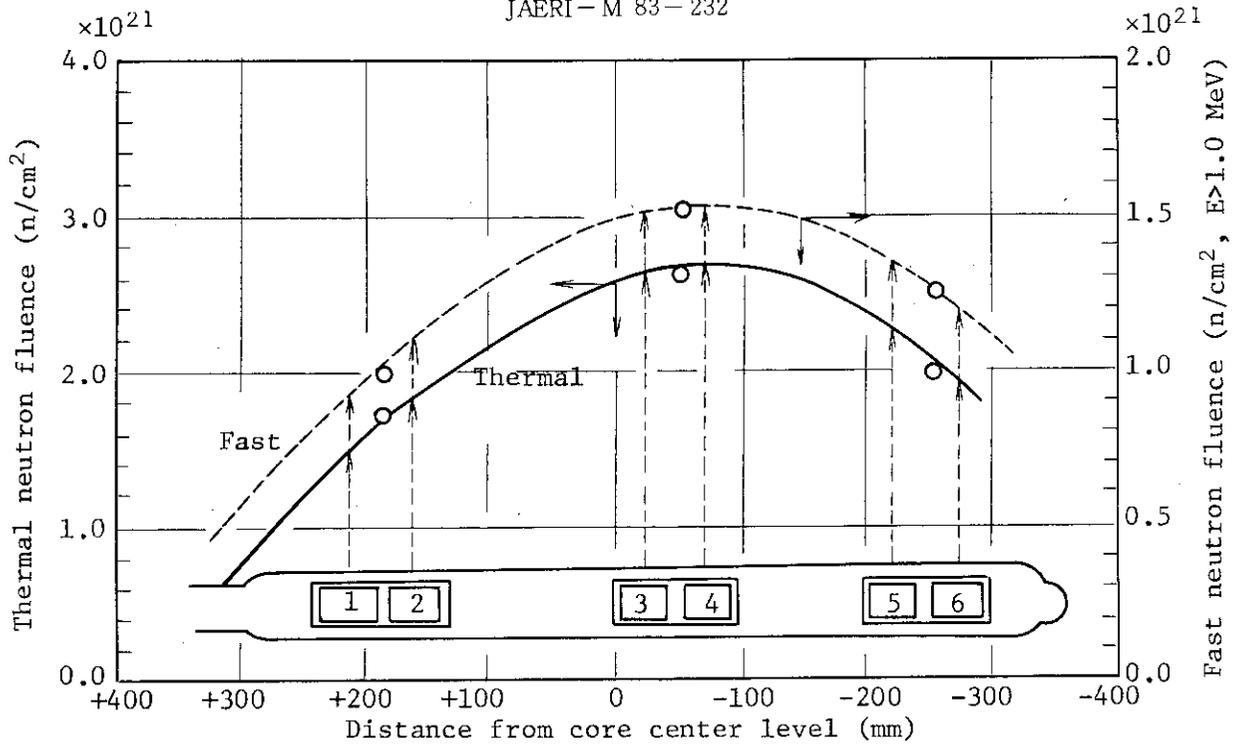


Fig. 6 Distribution of neutron fluence through axial direction of the capsule

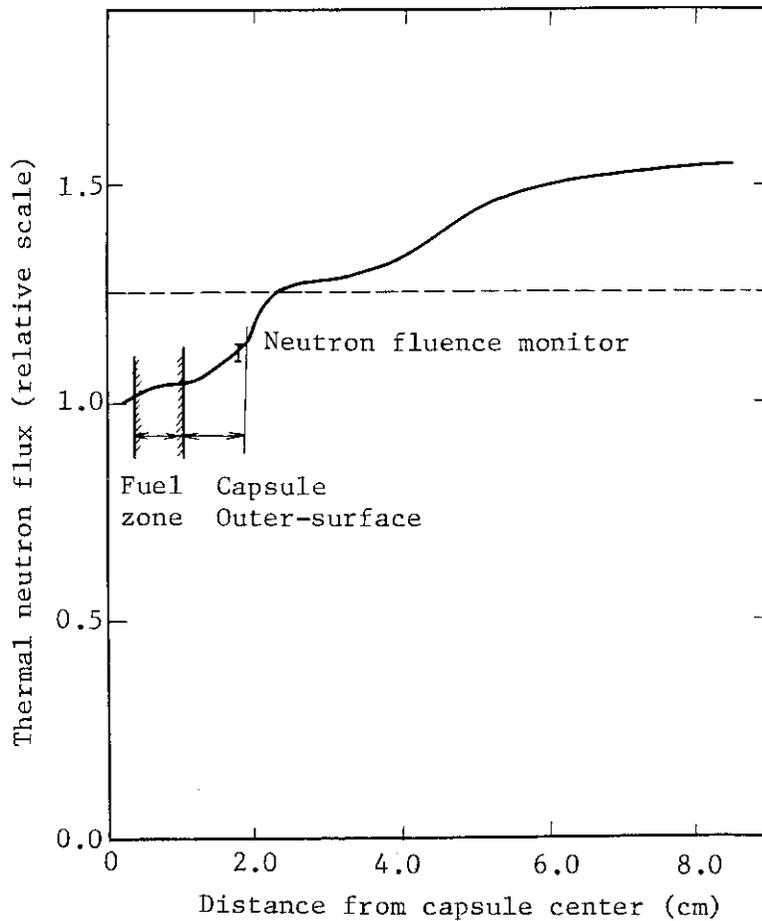


Fig. 7 Distribution of calculated thermal neutron flux in a radial direction of the capsule

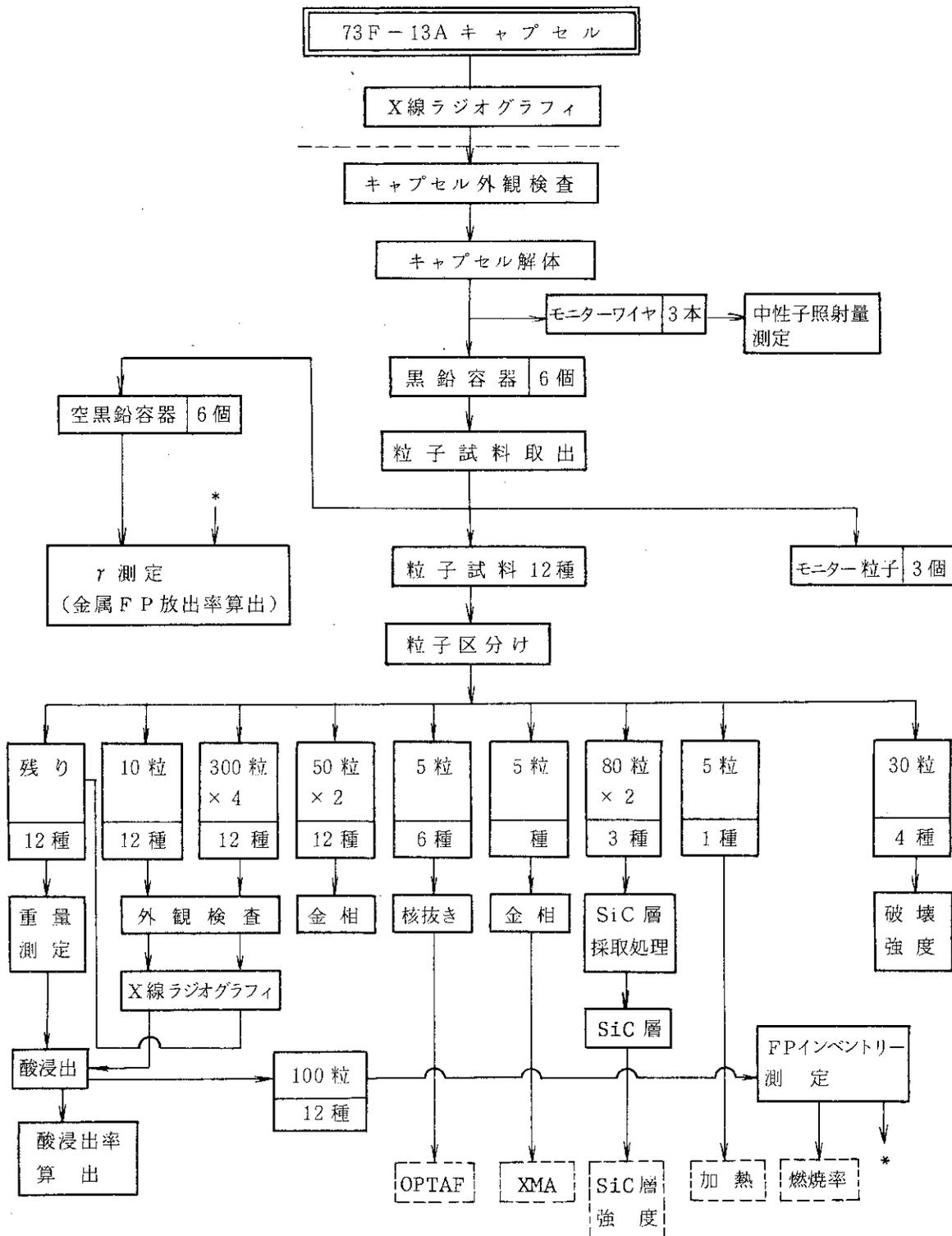


Fig. 8 Flow diagram of the post-irradiation examination

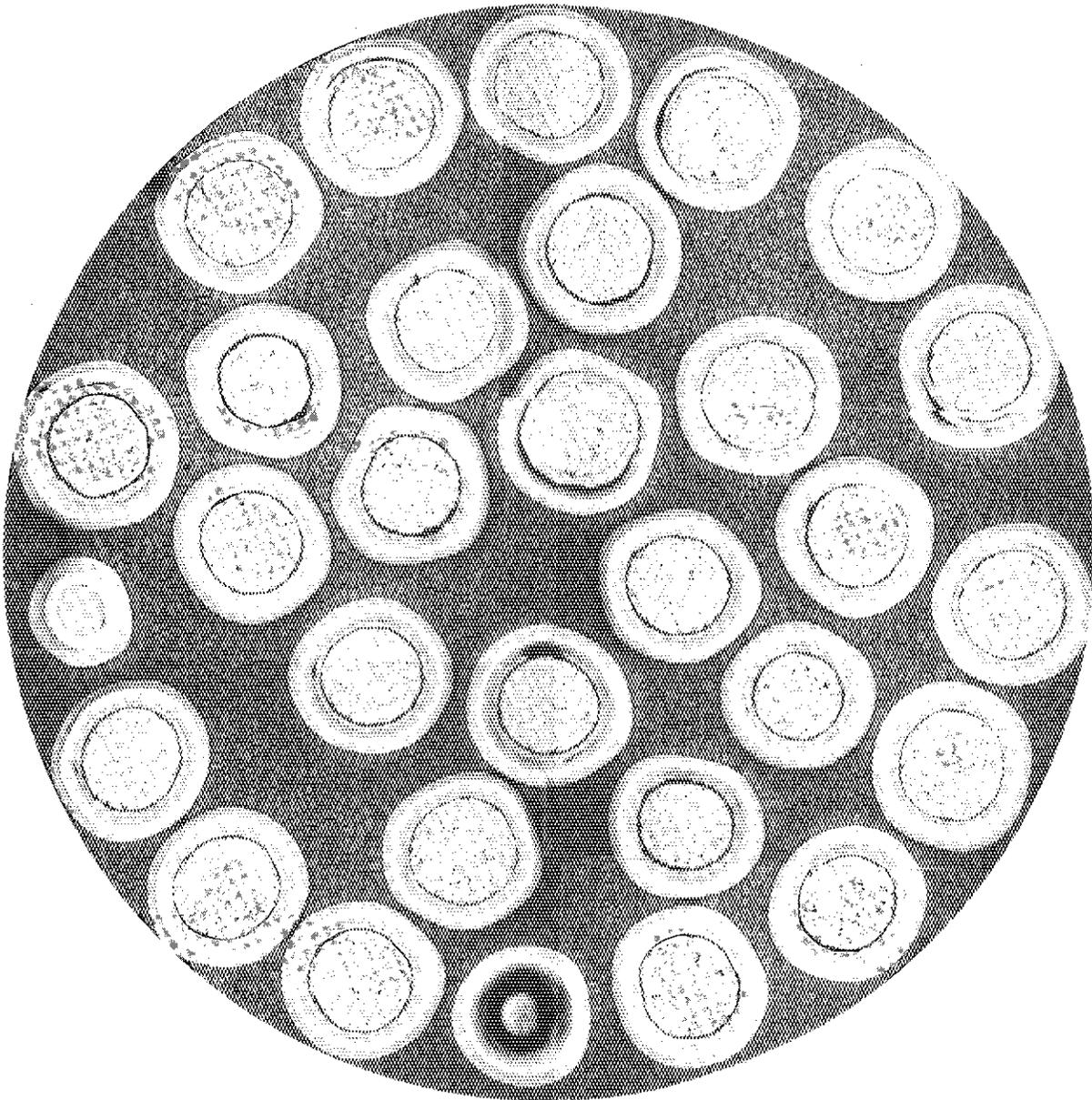


Fig. 9(A) Overall sectional view of 750C1-1B.

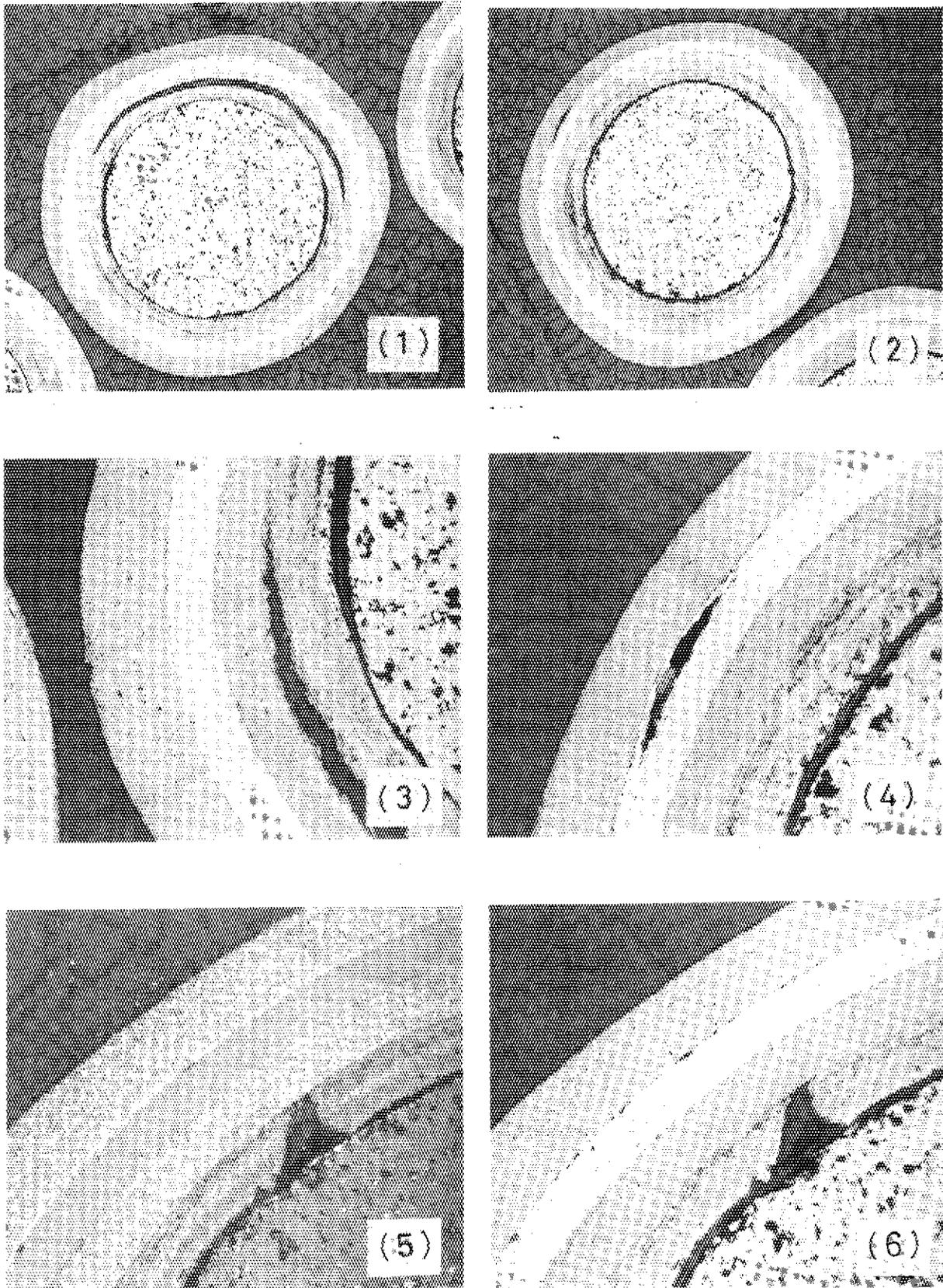


Fig. 9(B) Typical ceramographs of 750C1-1B.

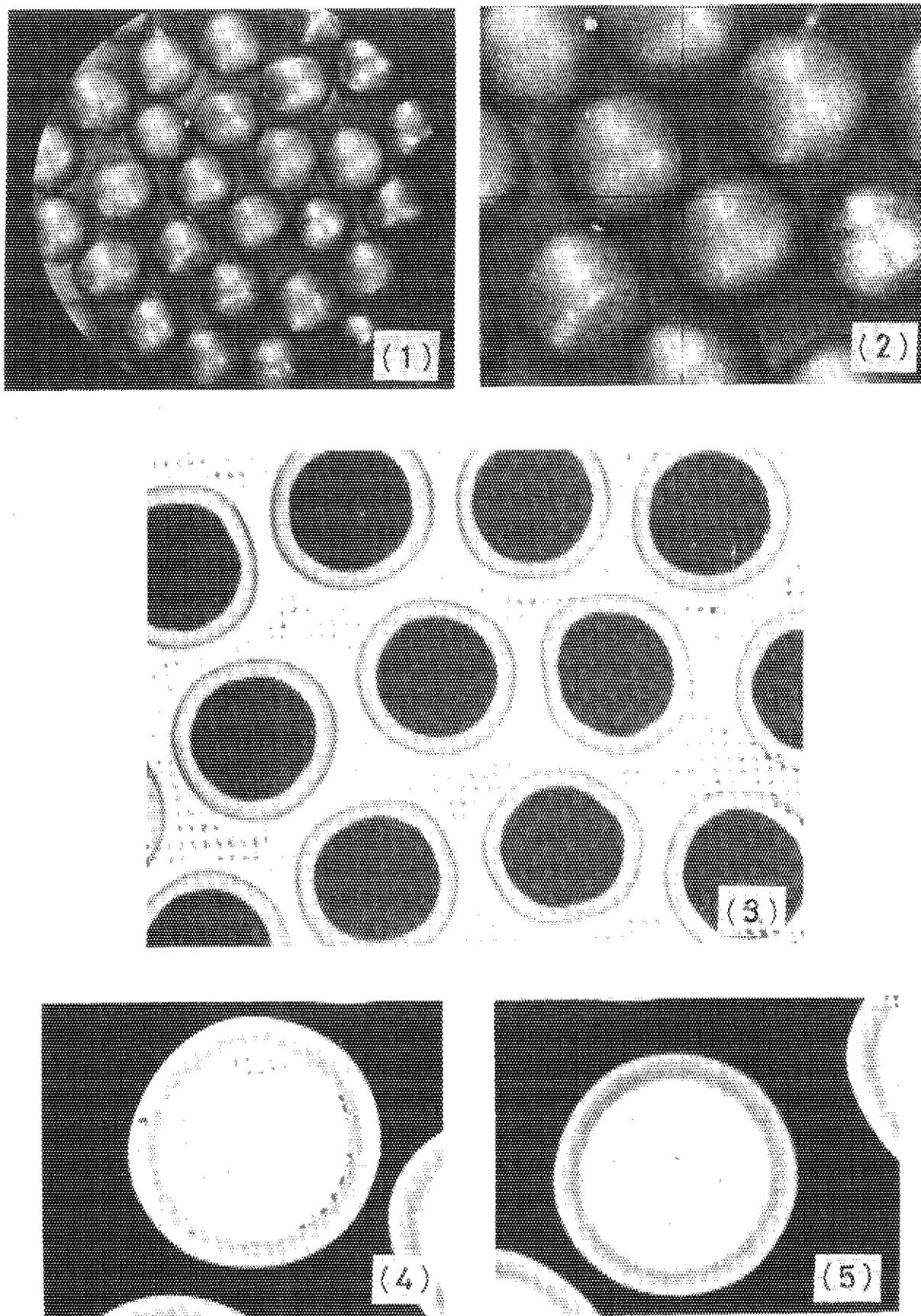


Fig. 9(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 750C1-1B.

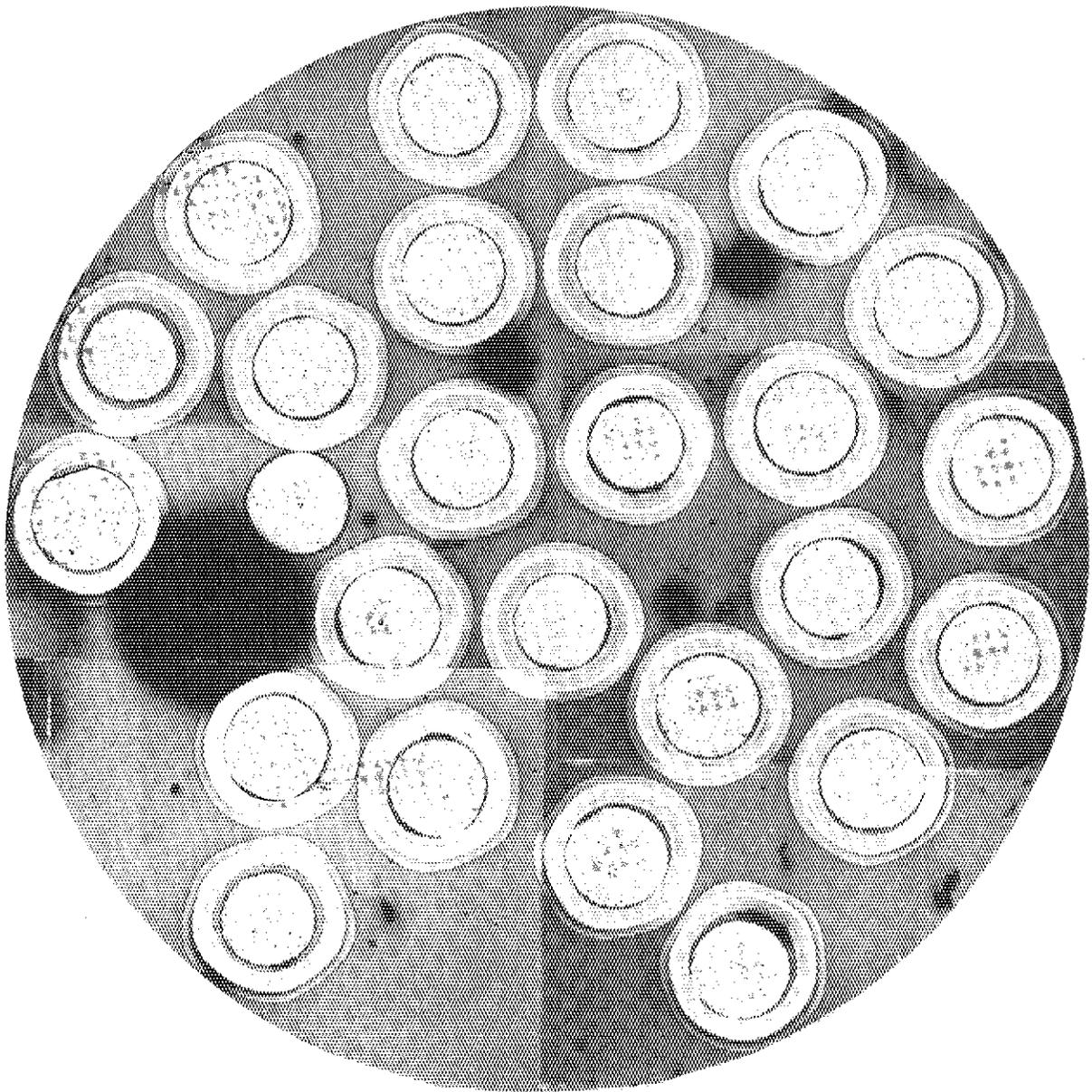


Fig. 10(A) Overall sectional view of 74UC1-2A.

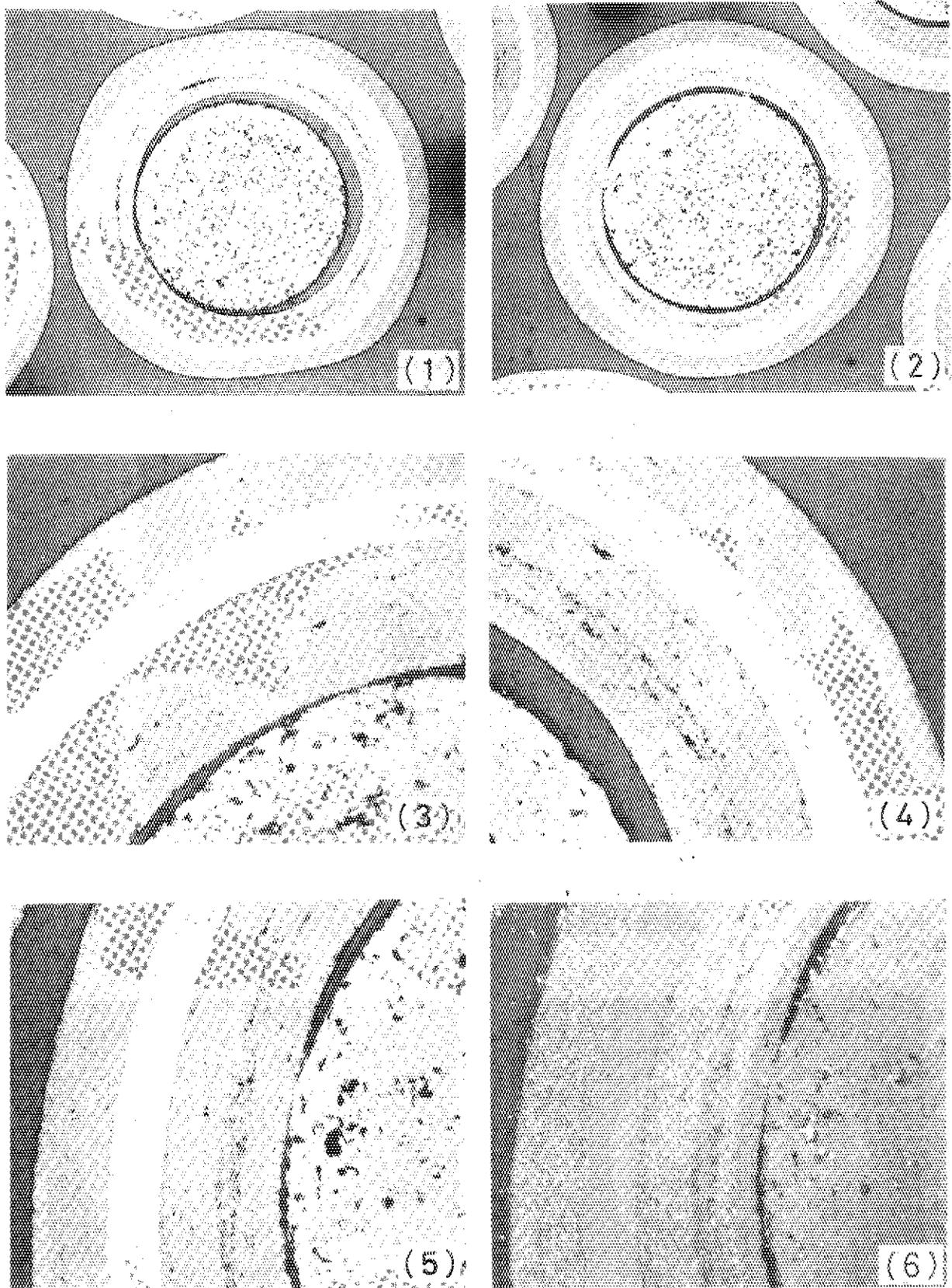


Fig. 10(B) Typical ceramographs of 74UC1-2A.

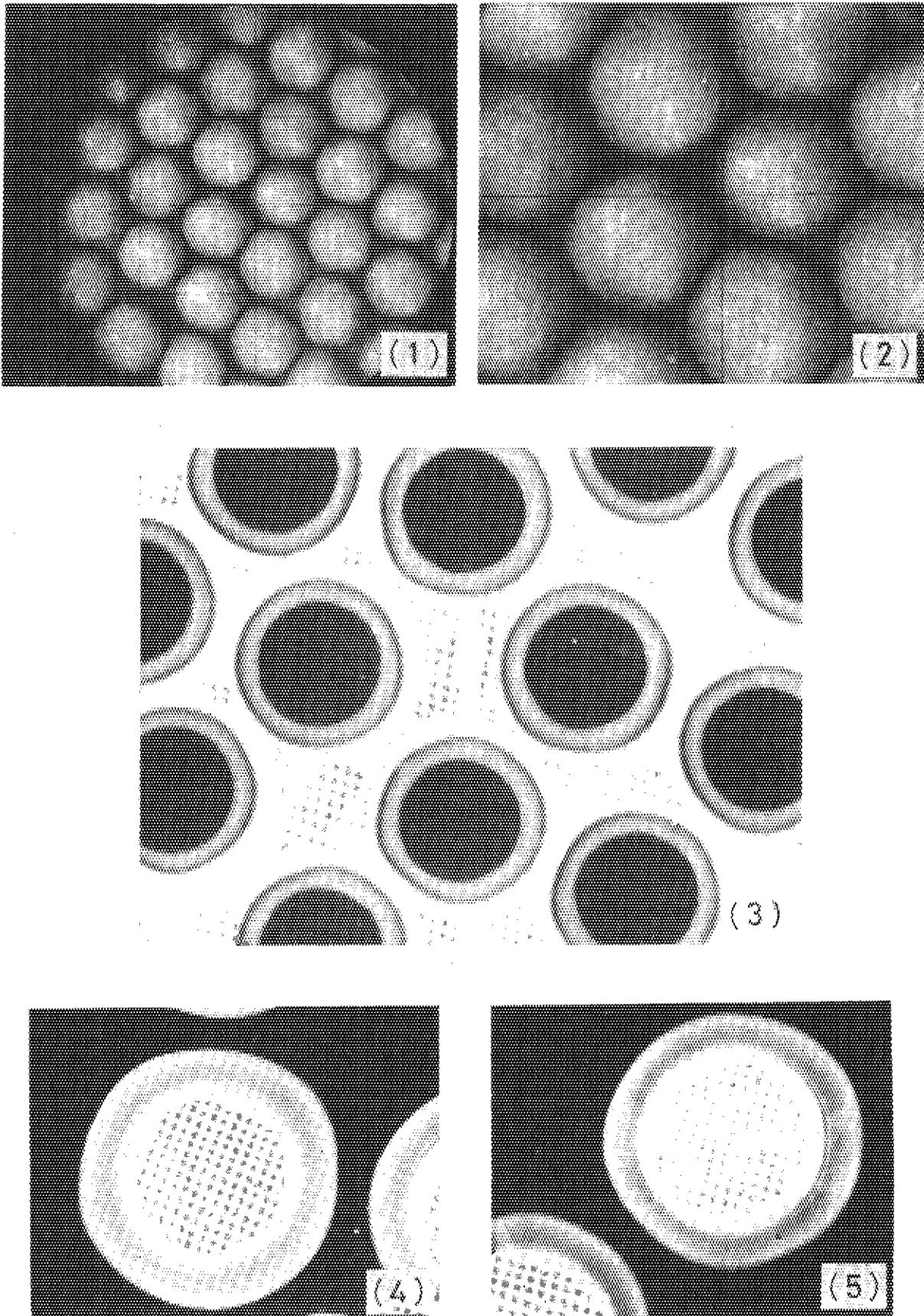


Fig. 10(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74UC1-2A.

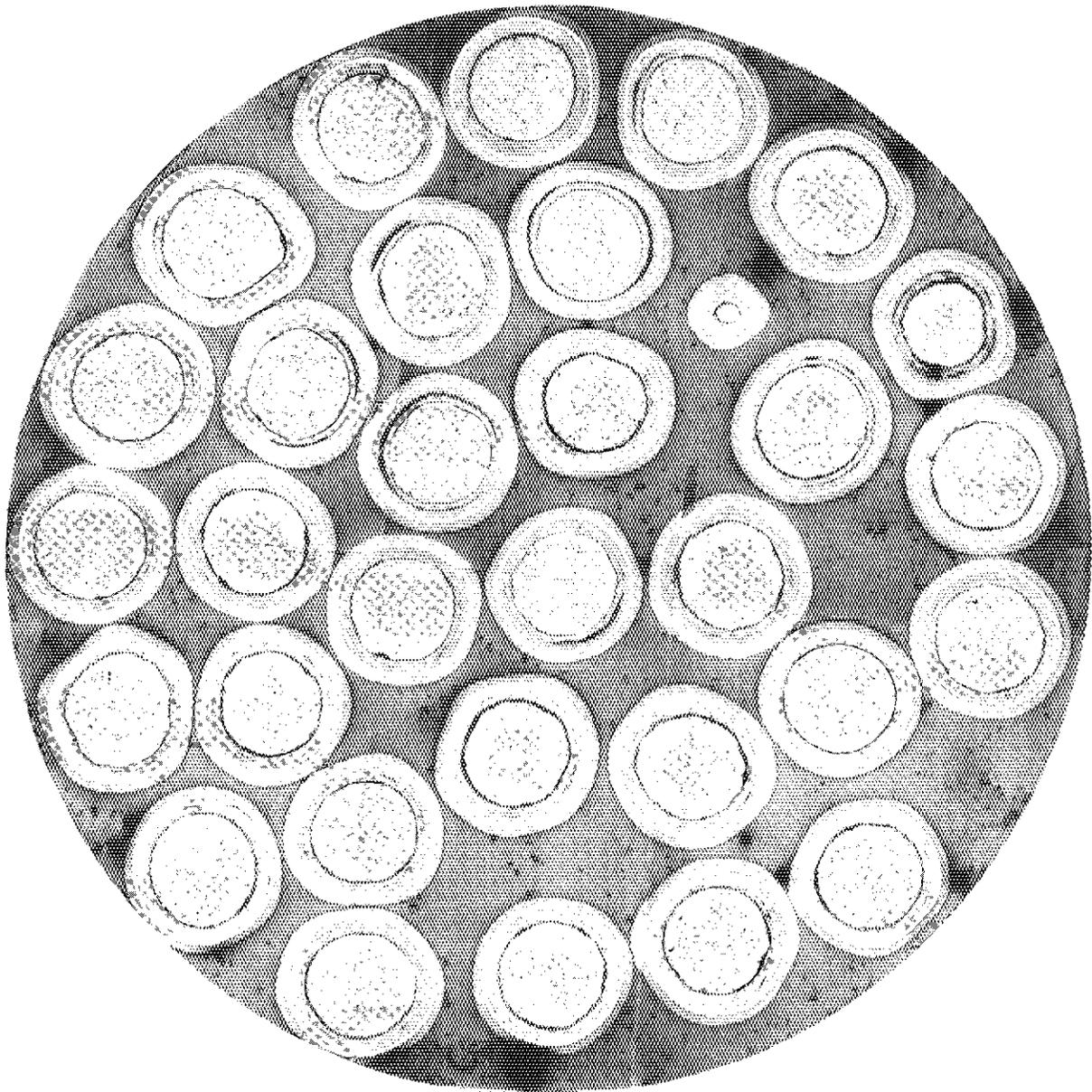


Fig. 11(A) Overall sectional view of 74FC1-2B.

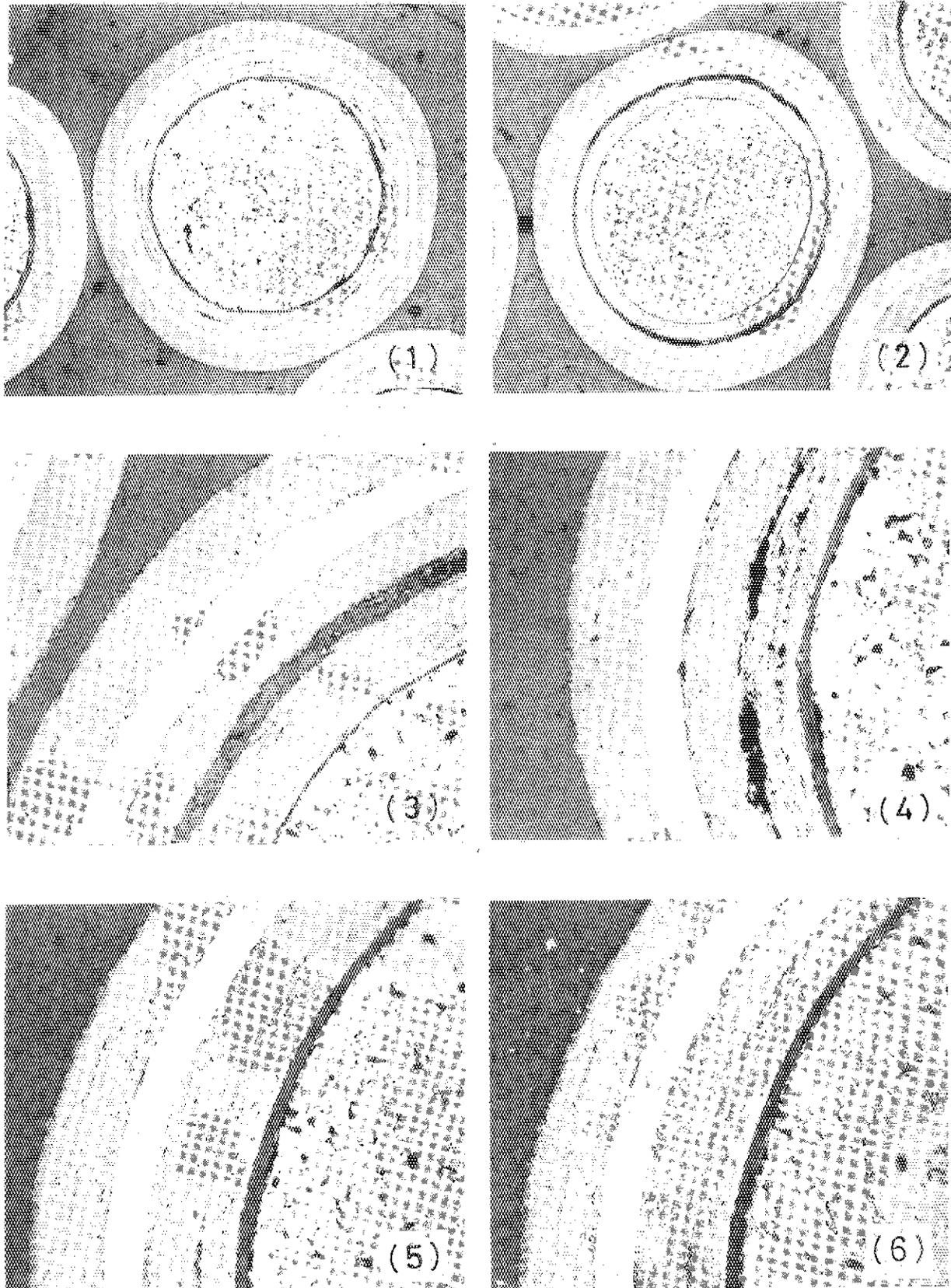


Fig. 11(B) Typical ceramographs of 74FC1-2B.

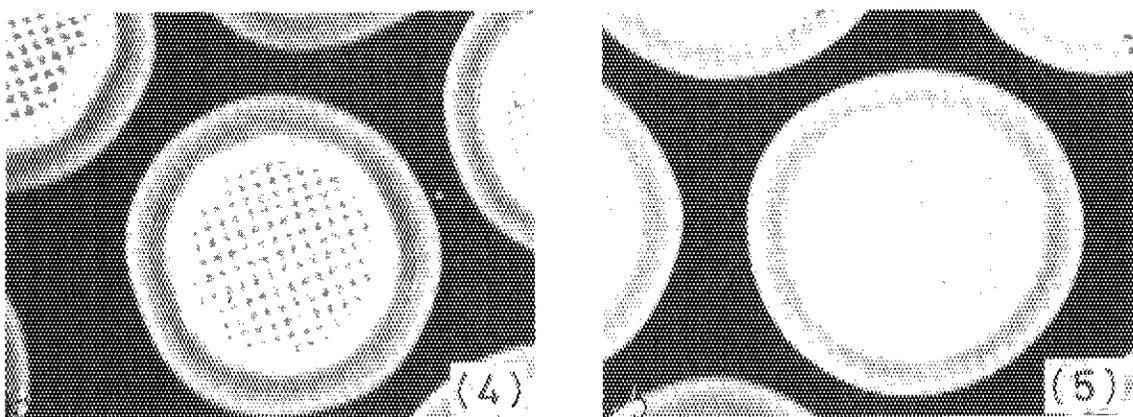
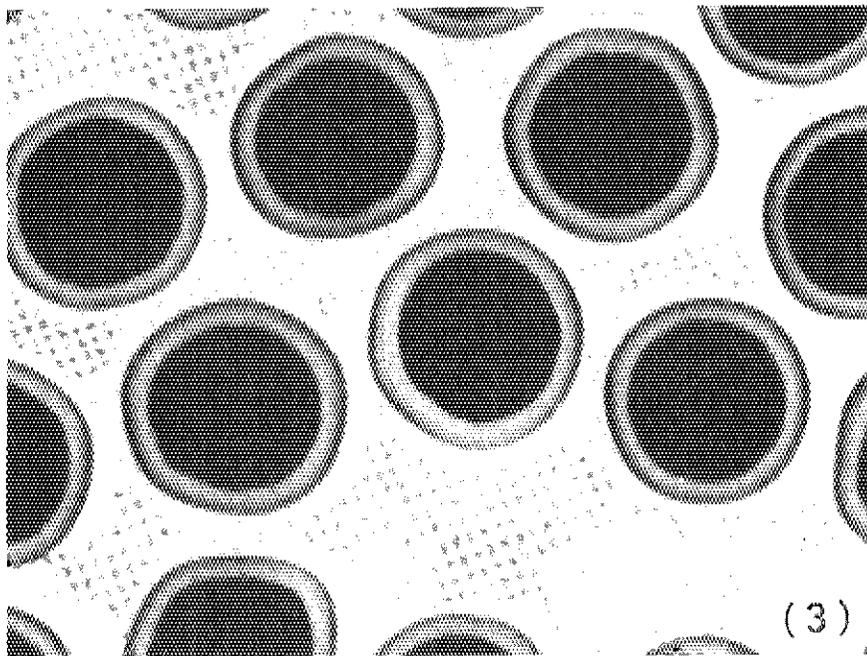
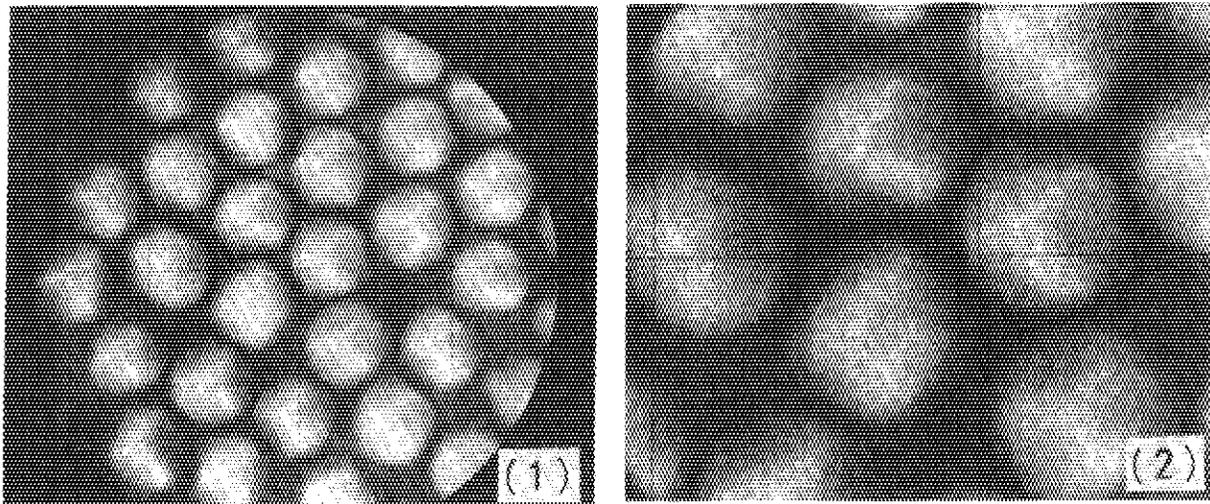


Fig. 11(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1-2B.

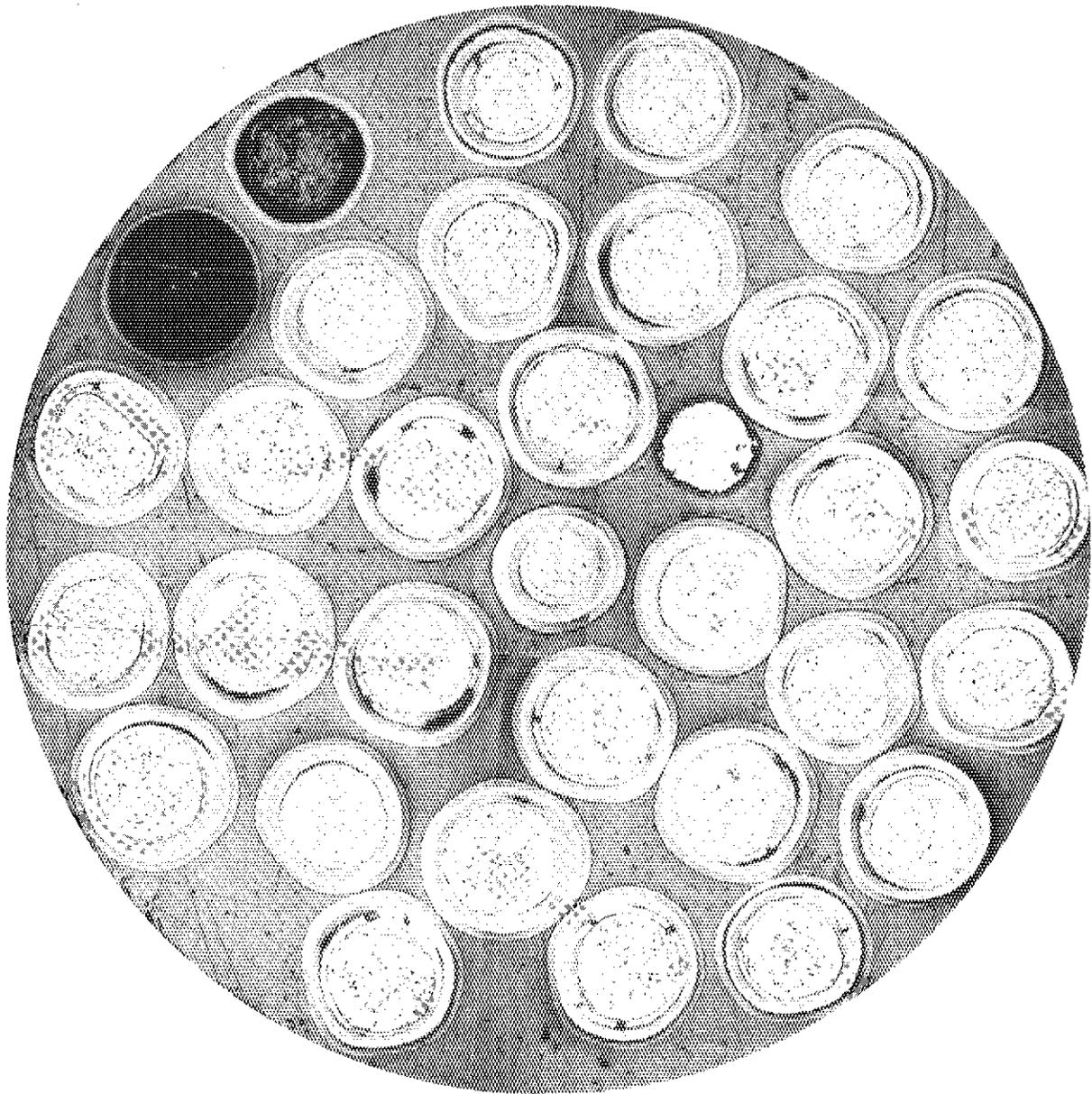


Fig. 12(A) Overall sectional view of 74FC1-3A.

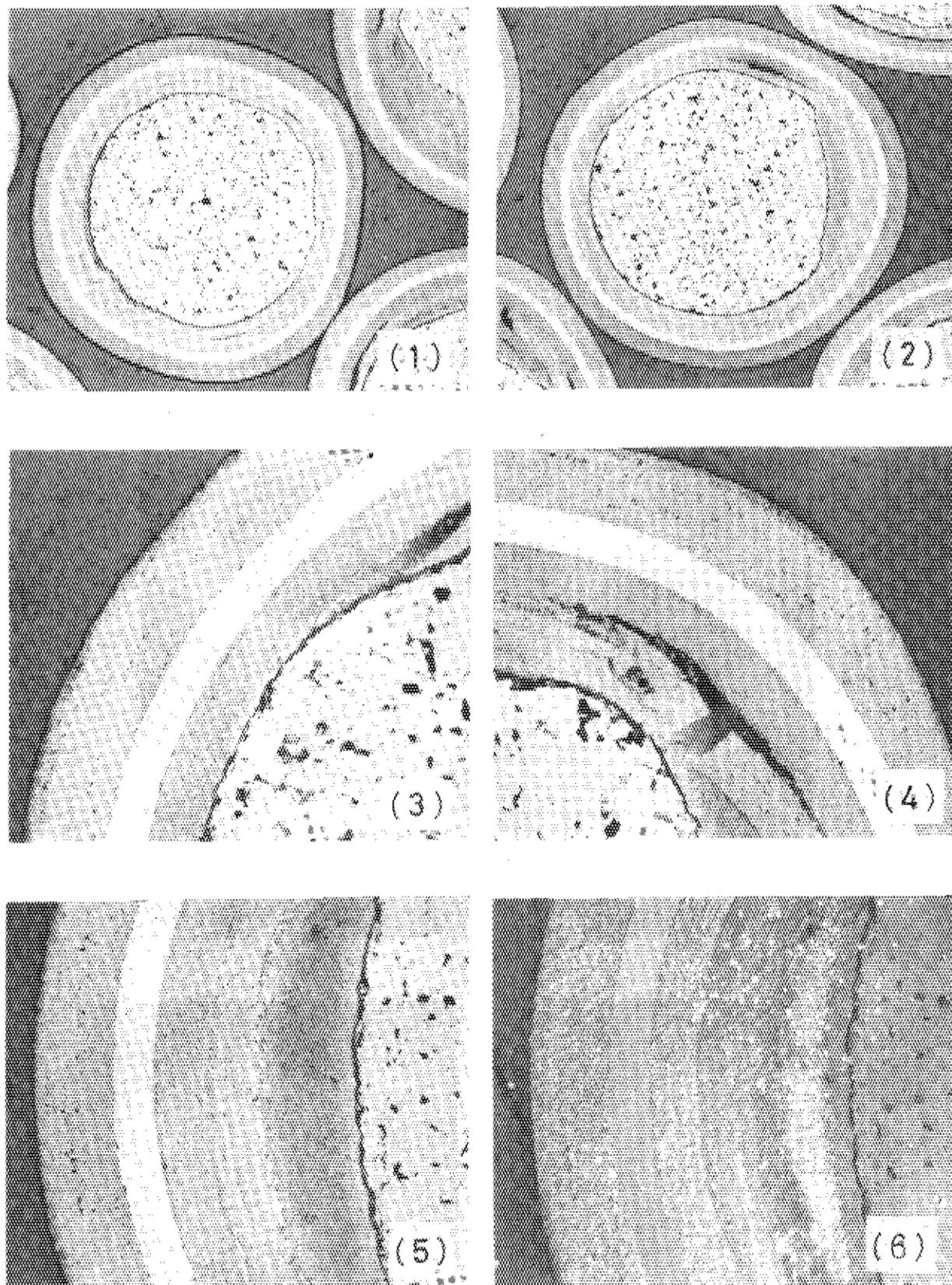


Fig. 12(B) Typical ceramographs of 74FC1-3A.

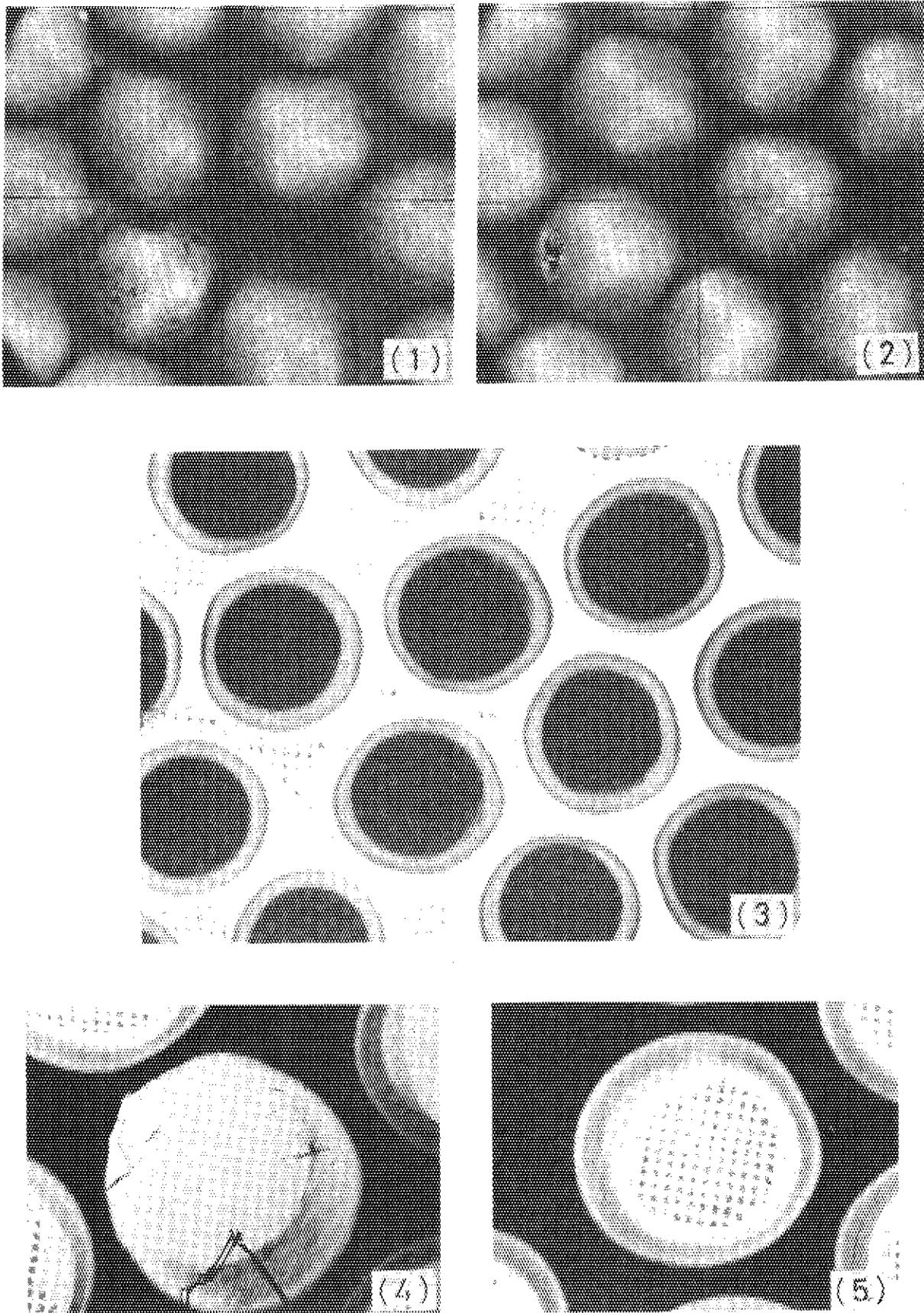


Fig. 12(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1-3A.

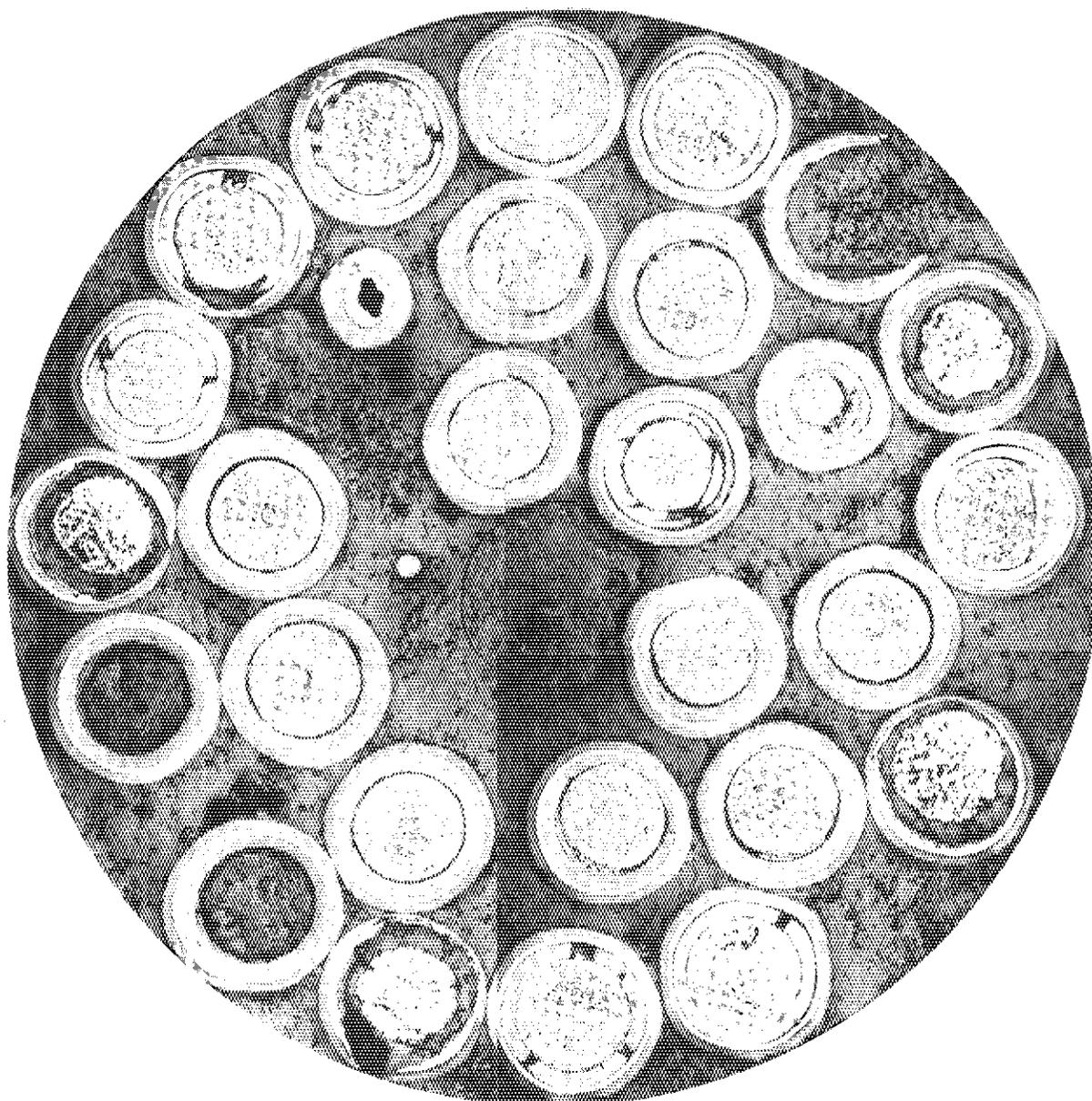


Fig. 13(A) Overall sectional view of 74UC1-3B.

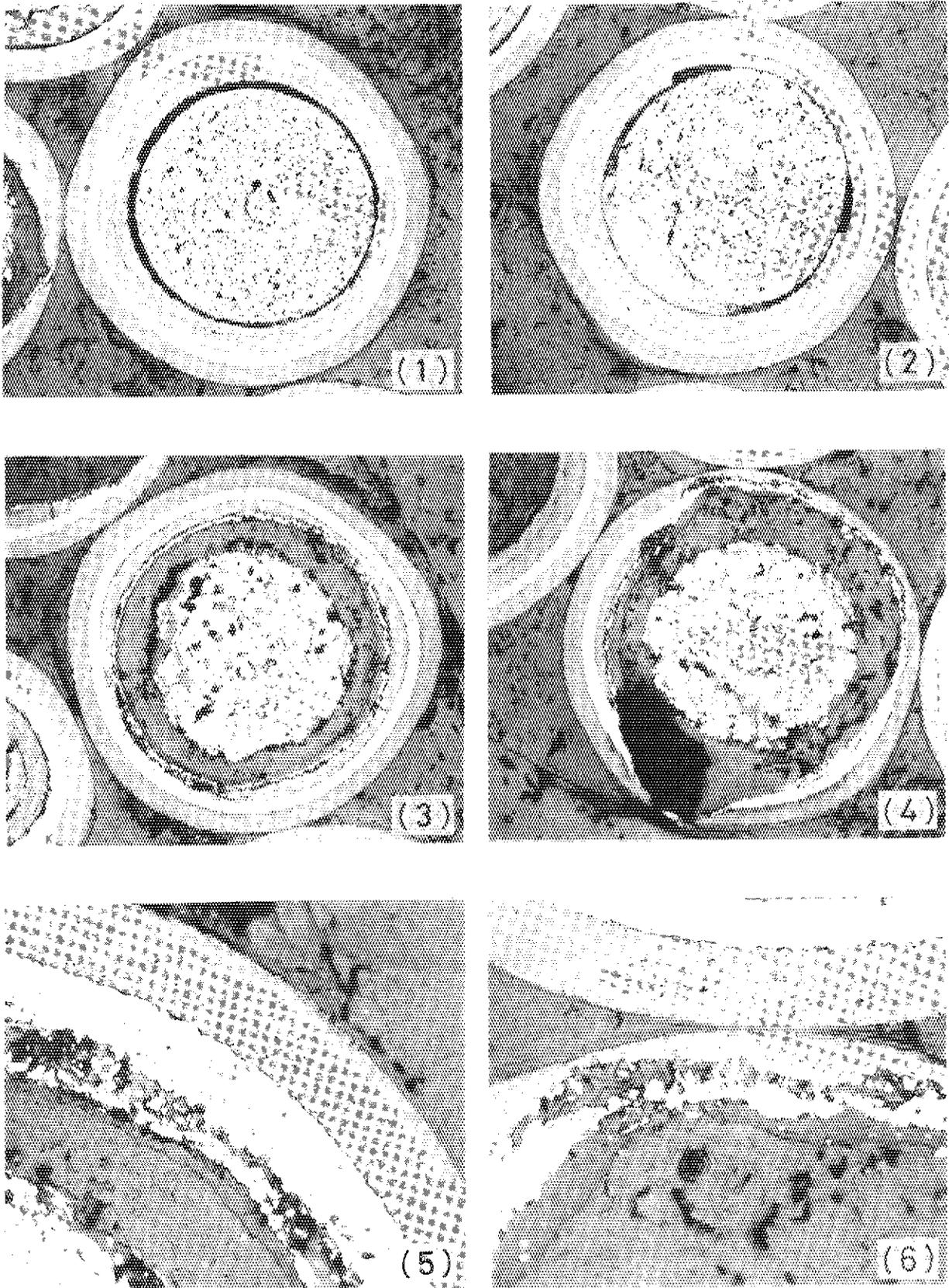


Fig. 13(B) Typical ceramographs of 74UC1-3B.

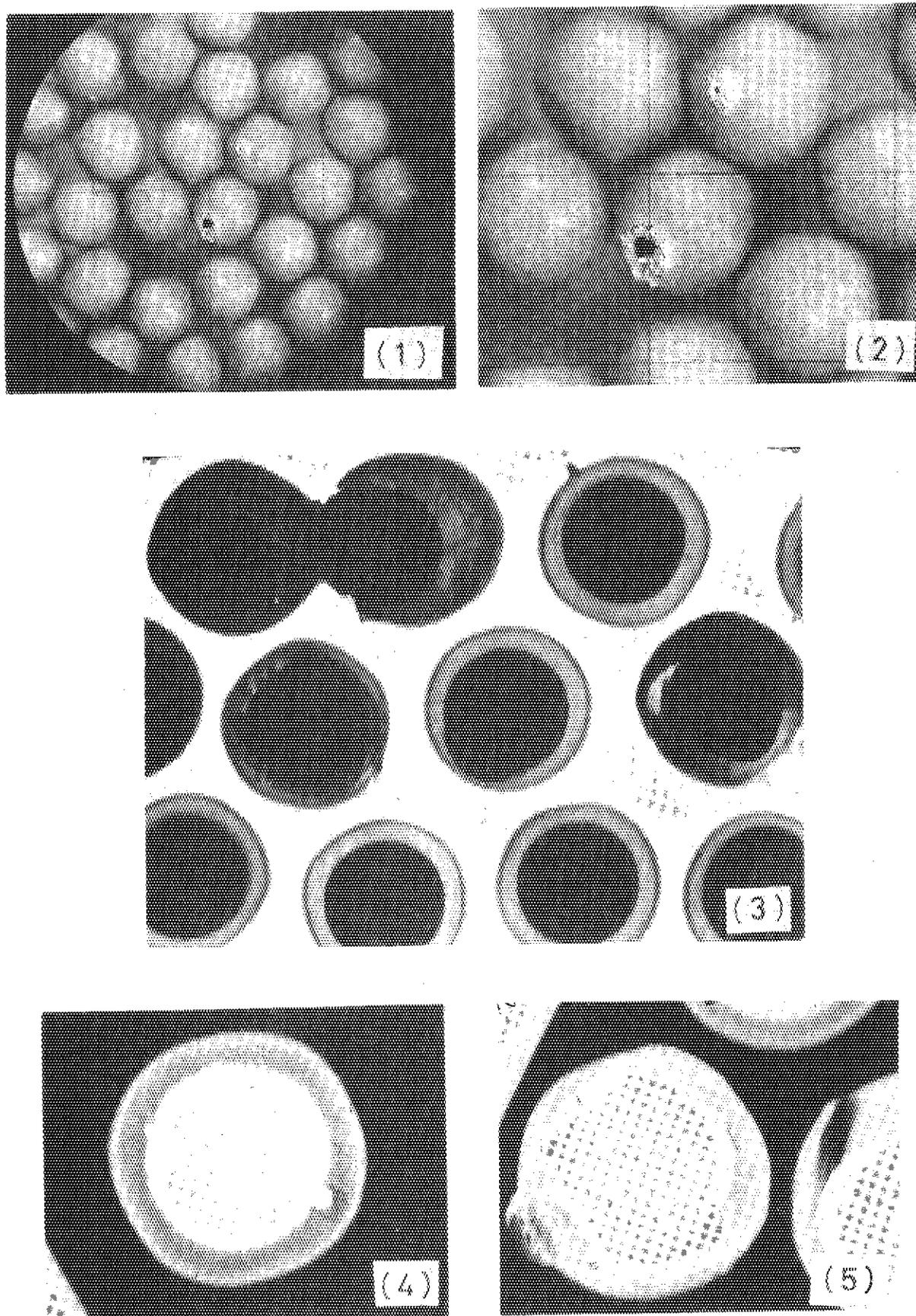


Fig. 13(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74UC1-3B.

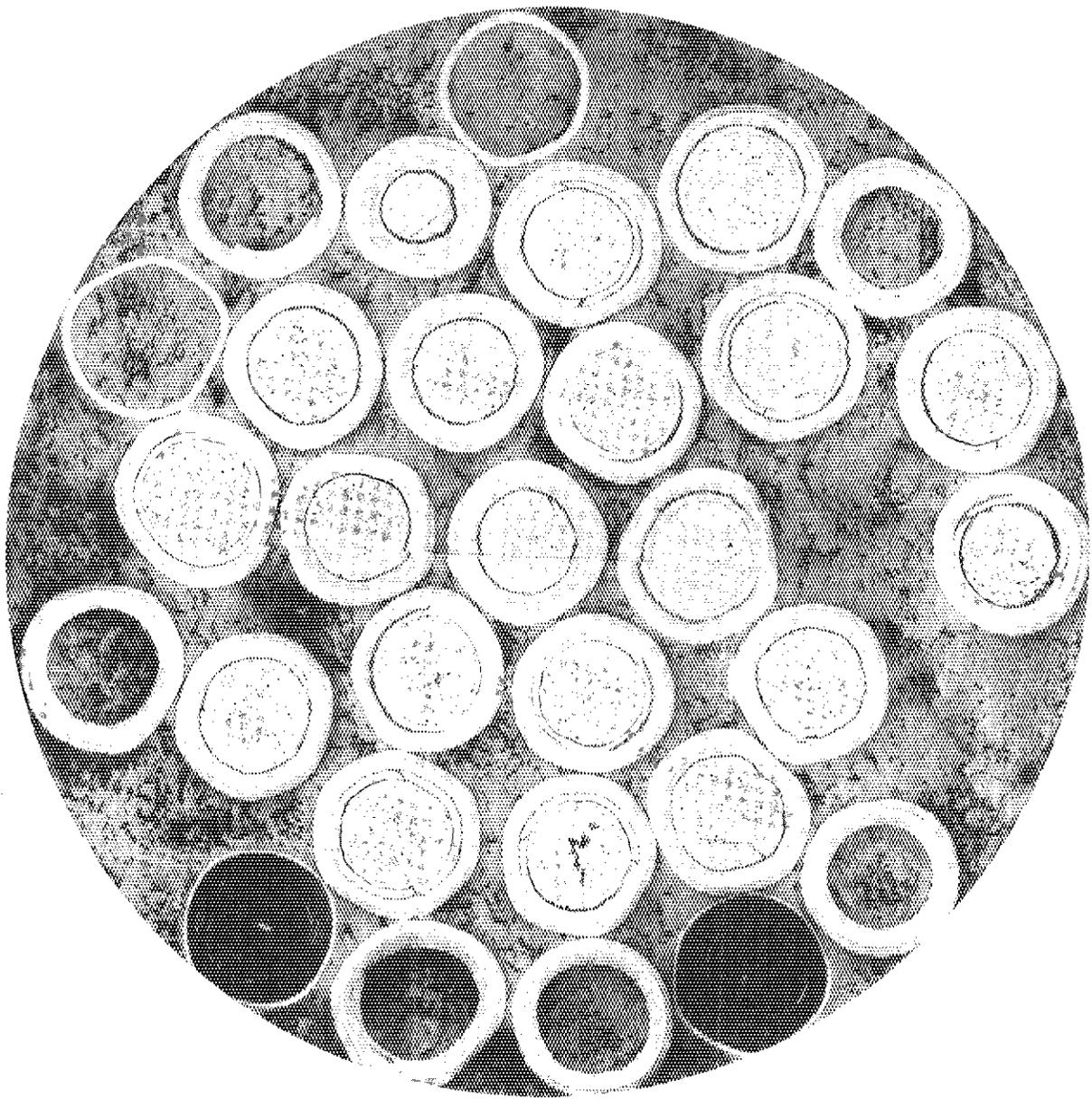


Fig. 14(A) Overall sectional view of 74FC1-5A.

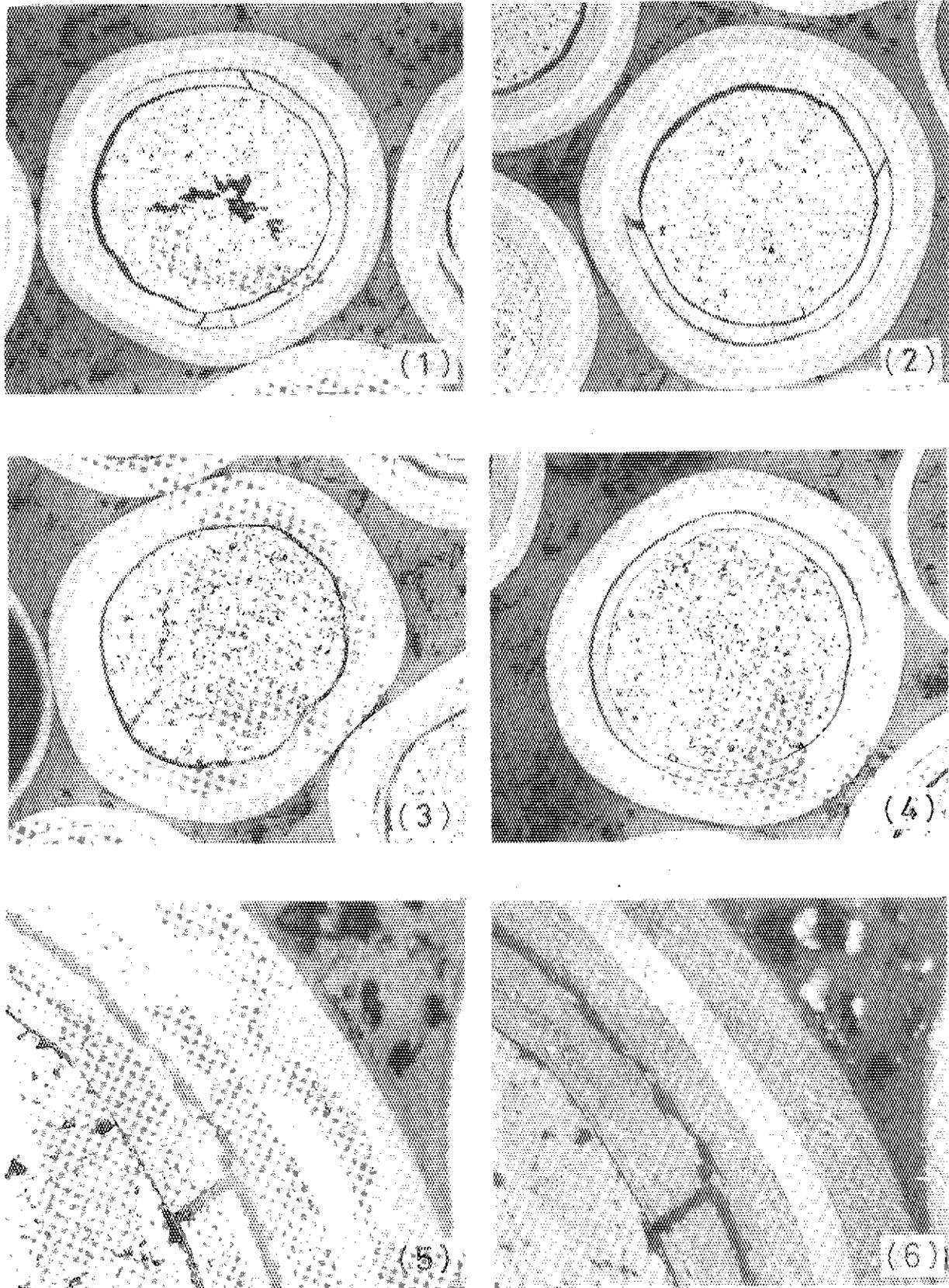


Fig. 14(B) Typical ceramographs of 74FC1-5A.

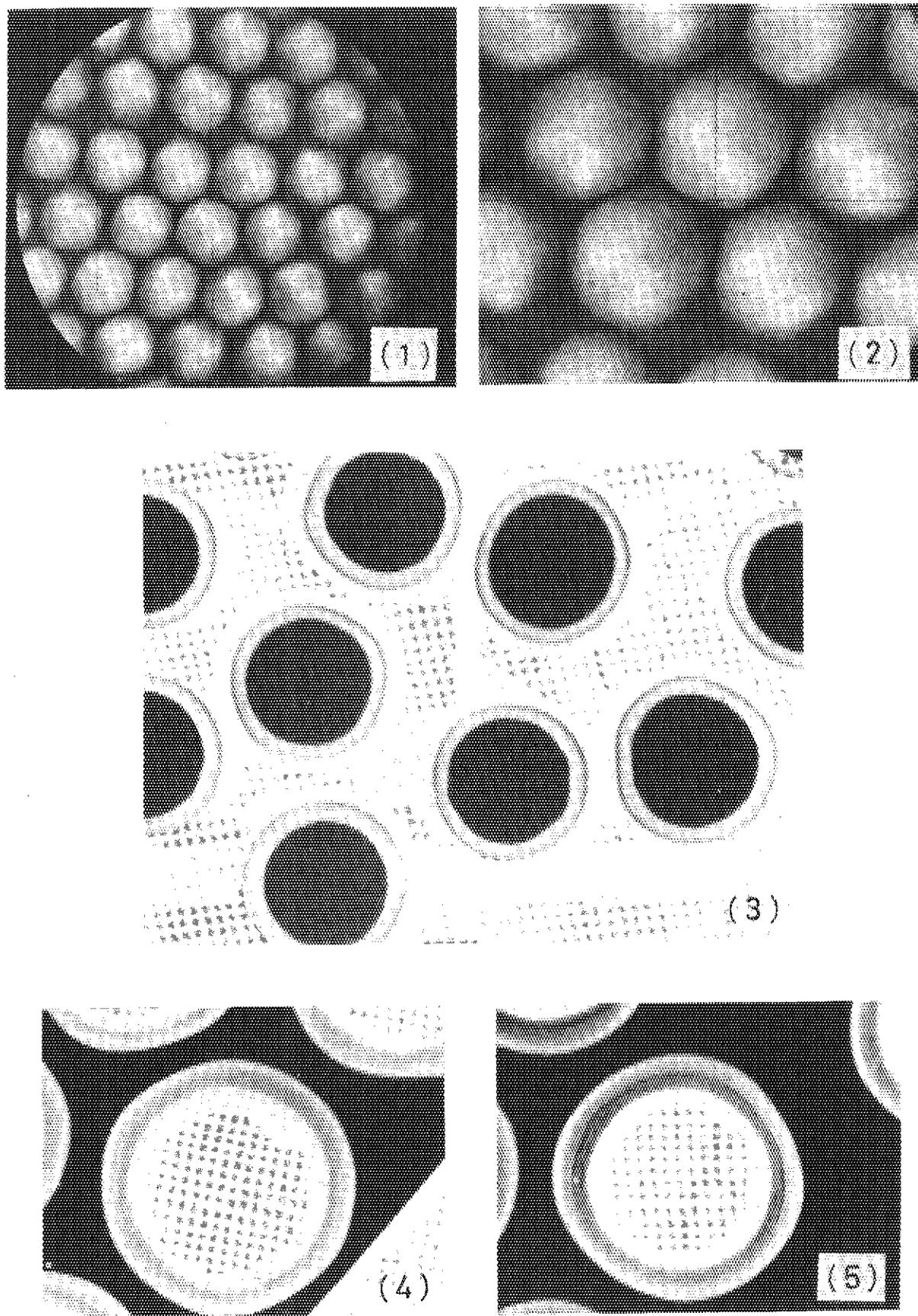


Fig. 14(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1-5A.

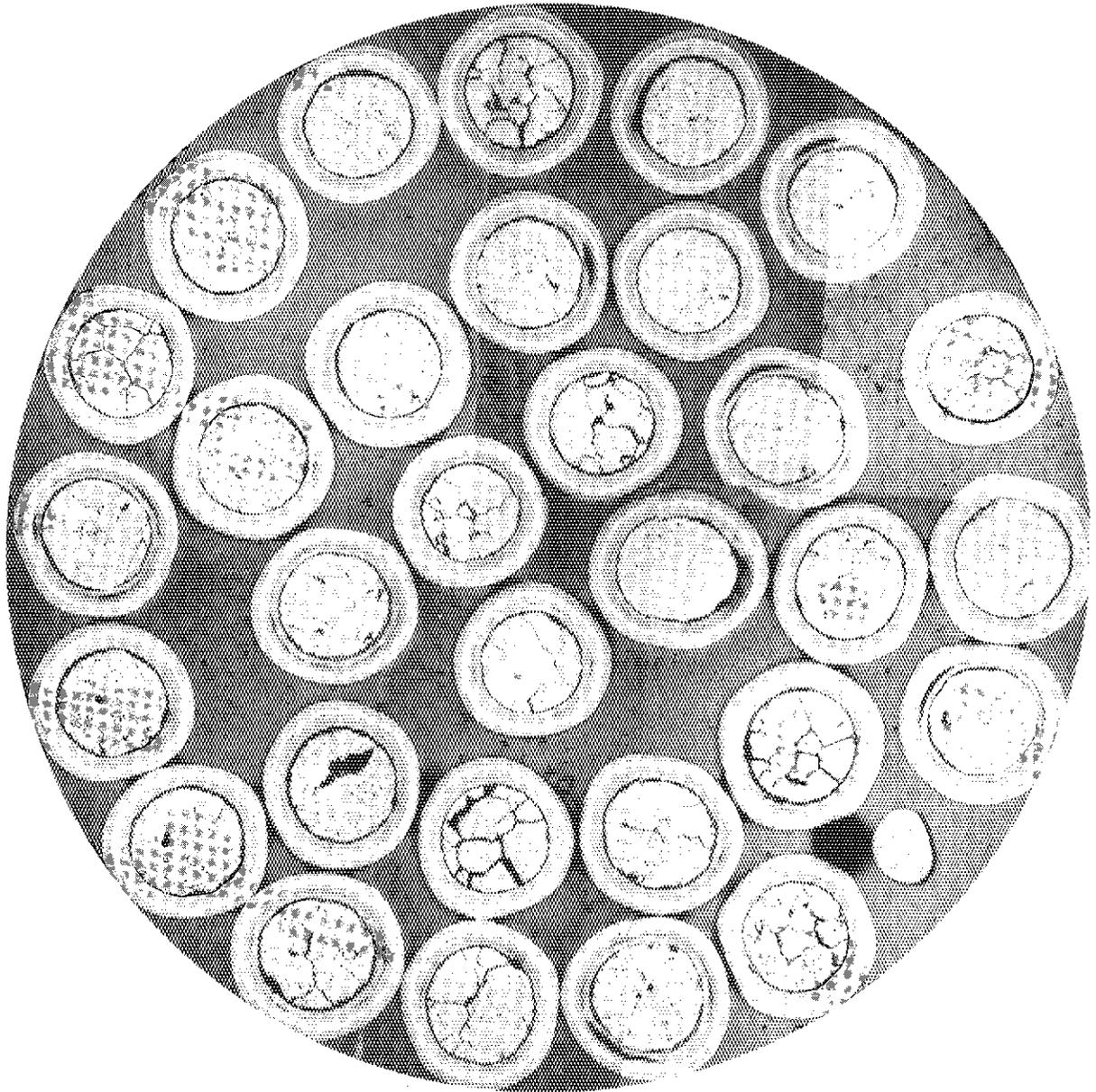


Fig. 15(A) Overall sectional view of 74FC1H-5B.

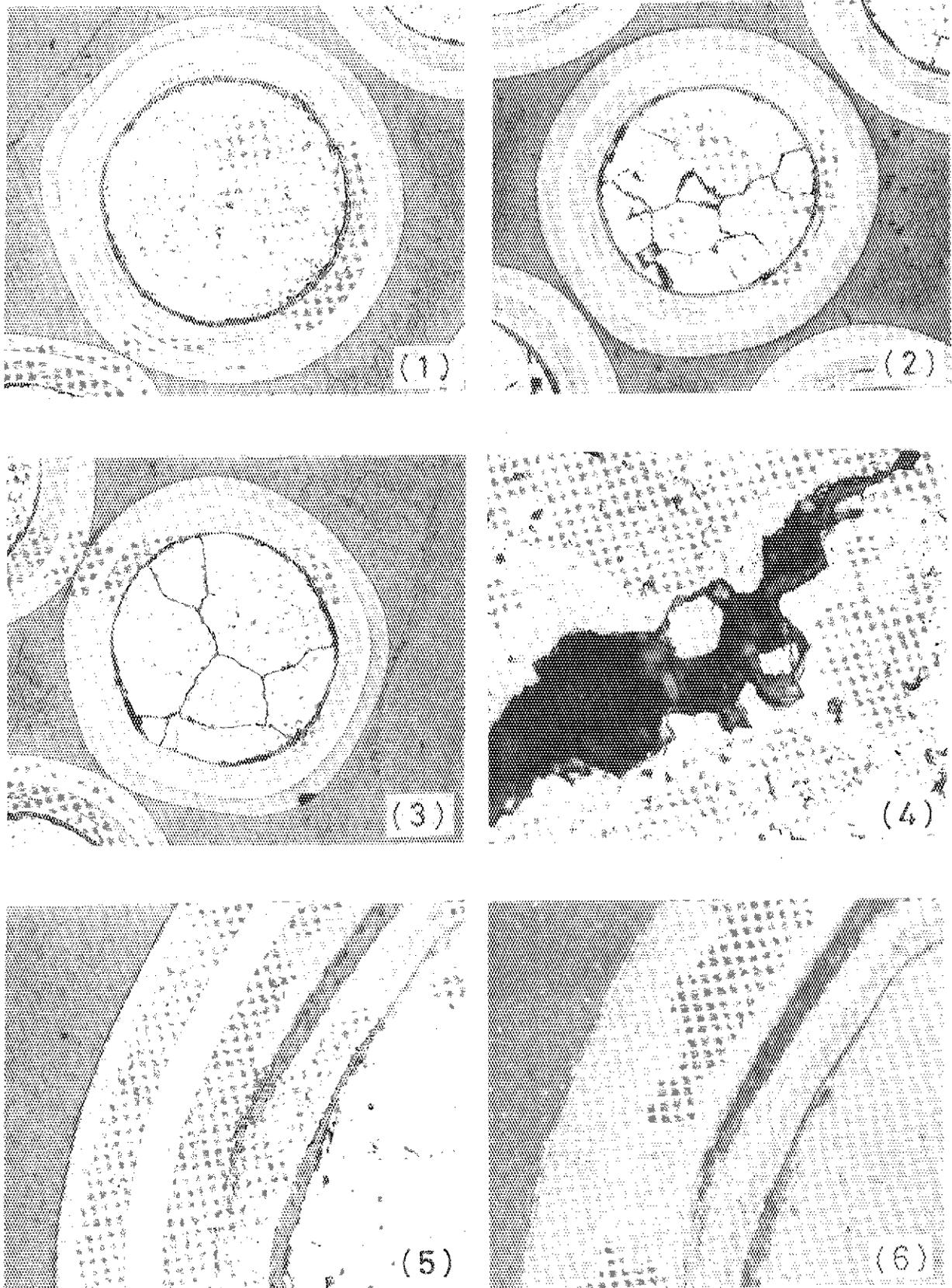


Fig. 15(B) Typical ceramographs of 74FC1H-5B.

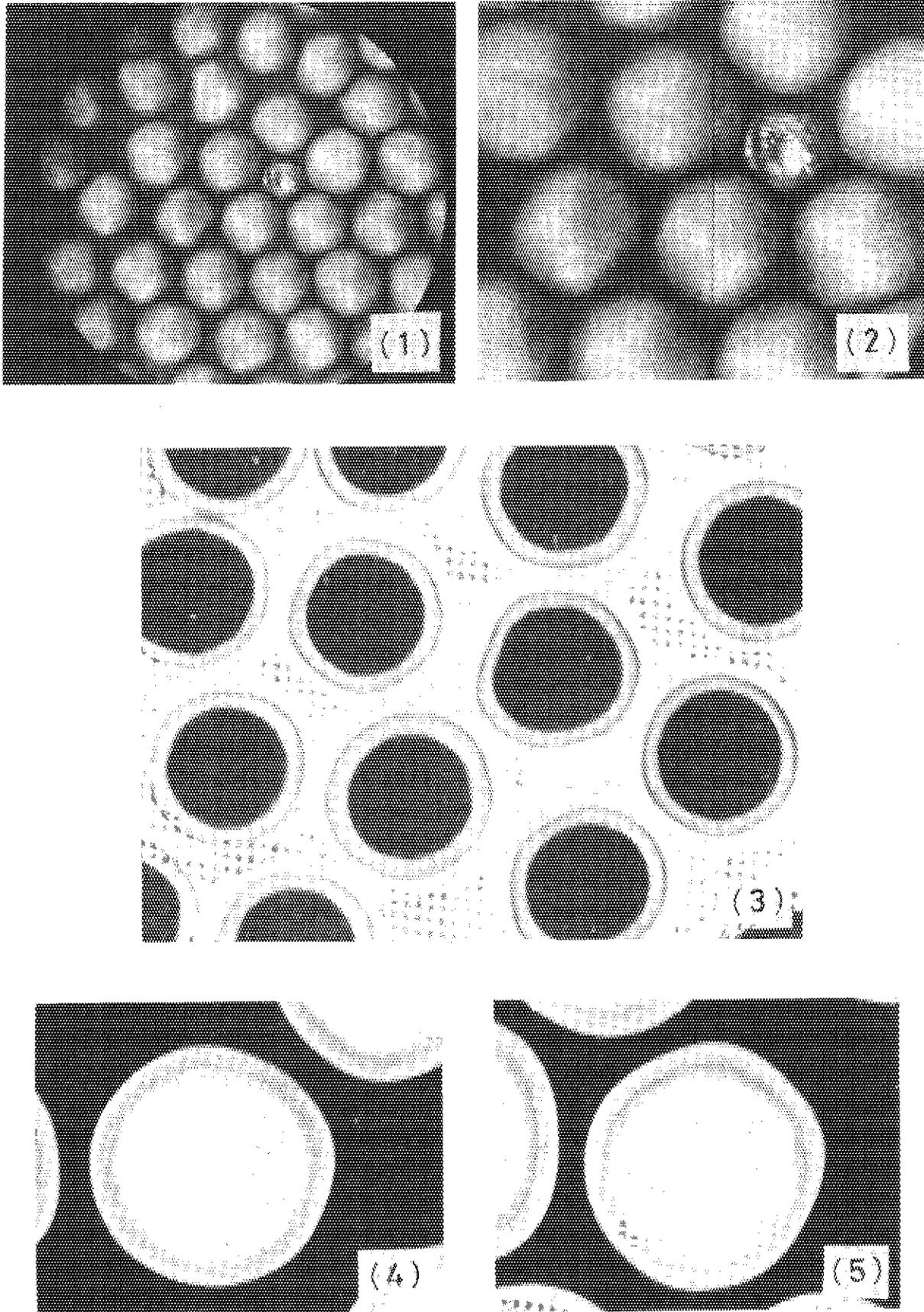


Fig. 15(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FC1H-5B.

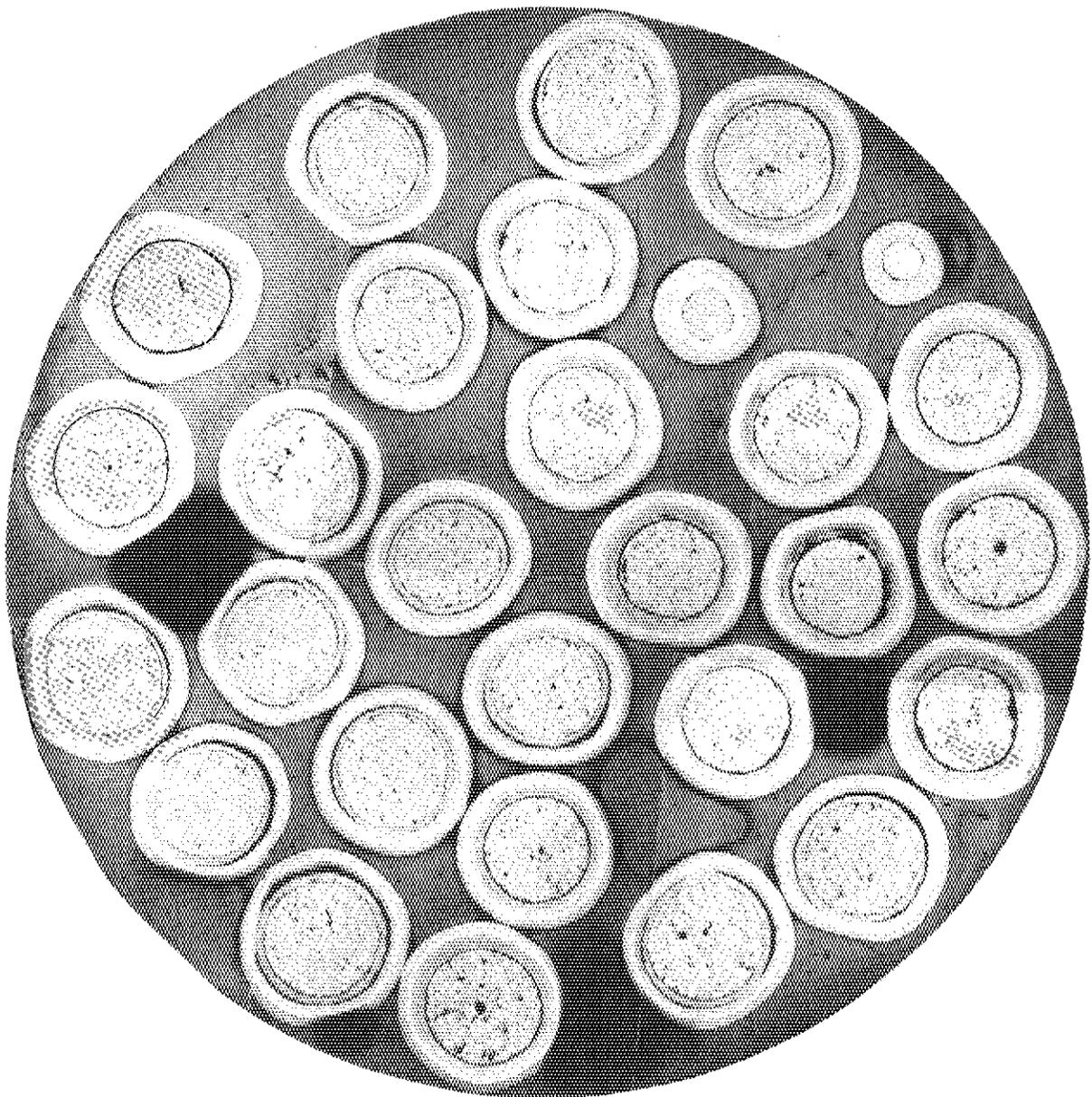


Fig. 16(A) Overall sectional view of 750C1-6A.

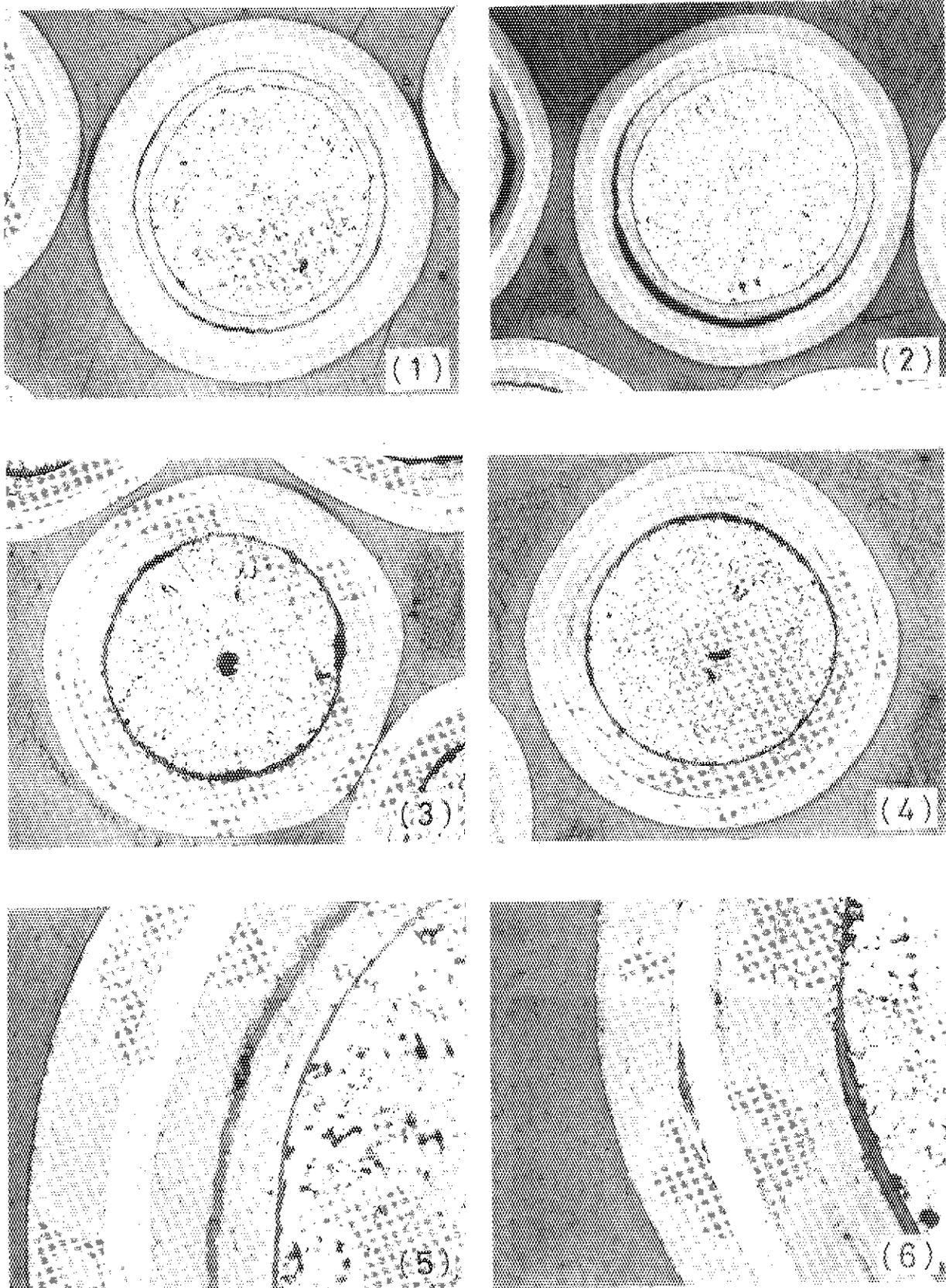


Fig. 16(B) Typical ceramographs of 750C1-6A.

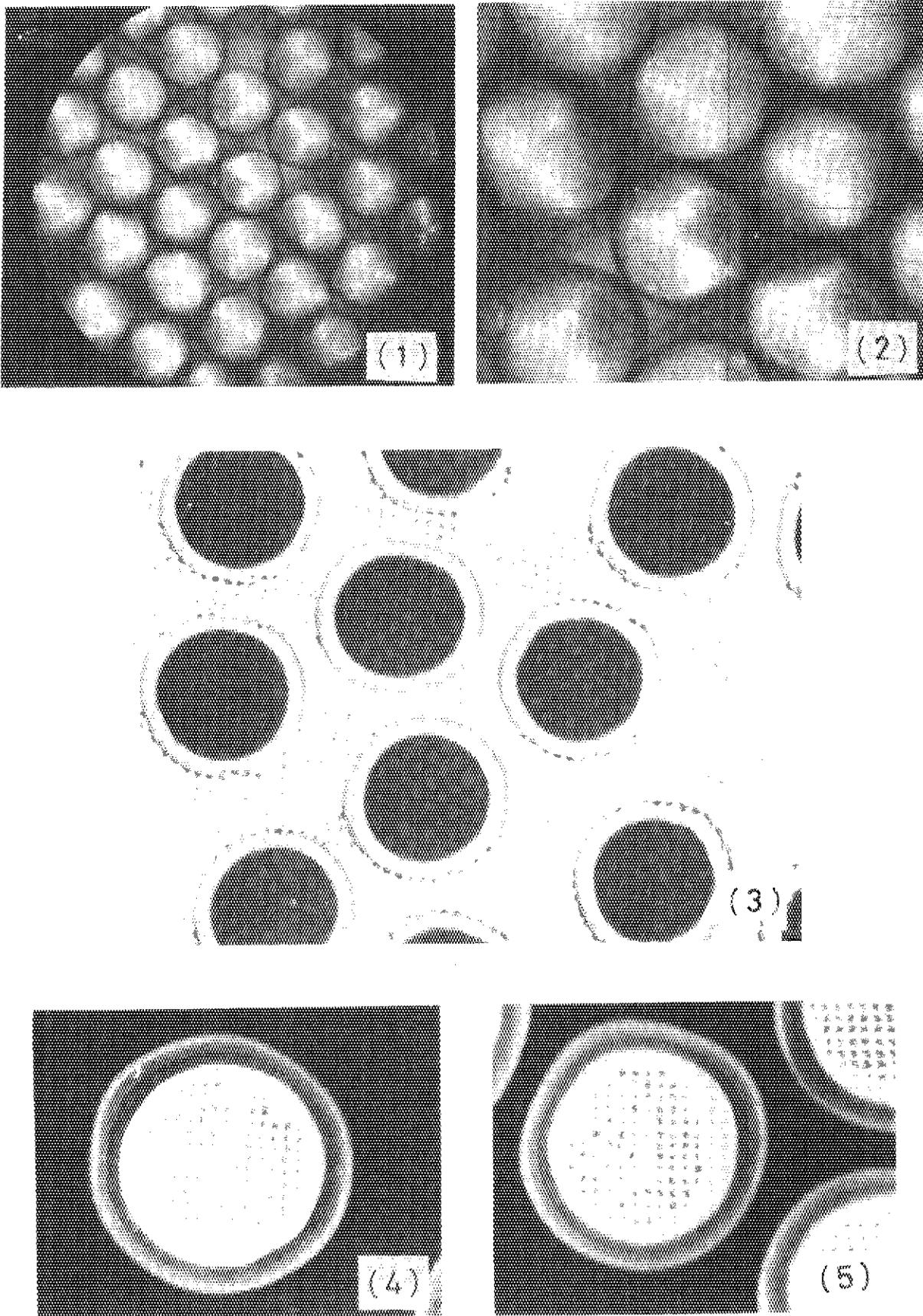


Fig. 16(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 750C1-6A.

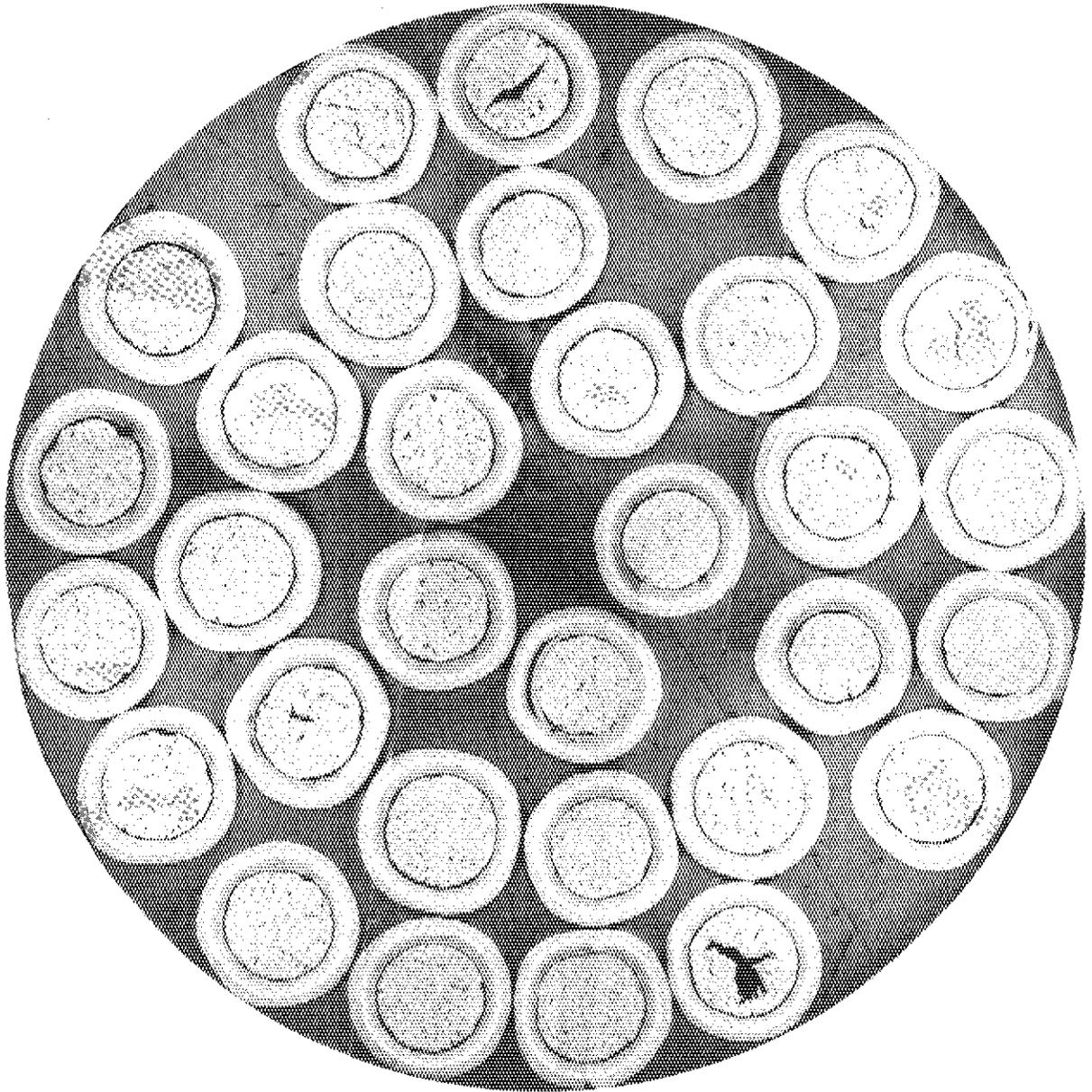


Fig. 17(A) Overall sectional view of 74FCP1-6B.

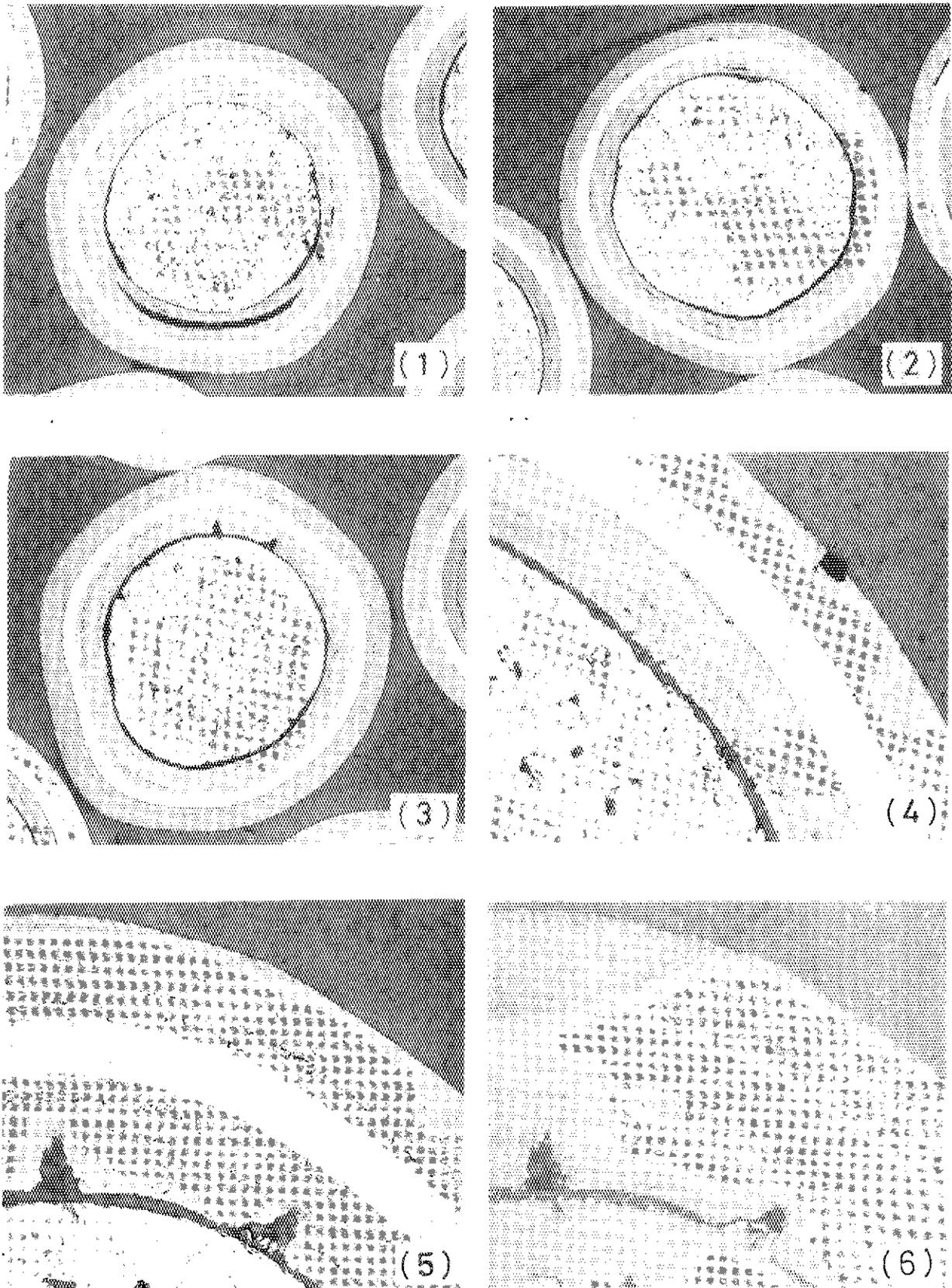


Fig. 17(B) Typical ceramographs of 74FCP1-6B.

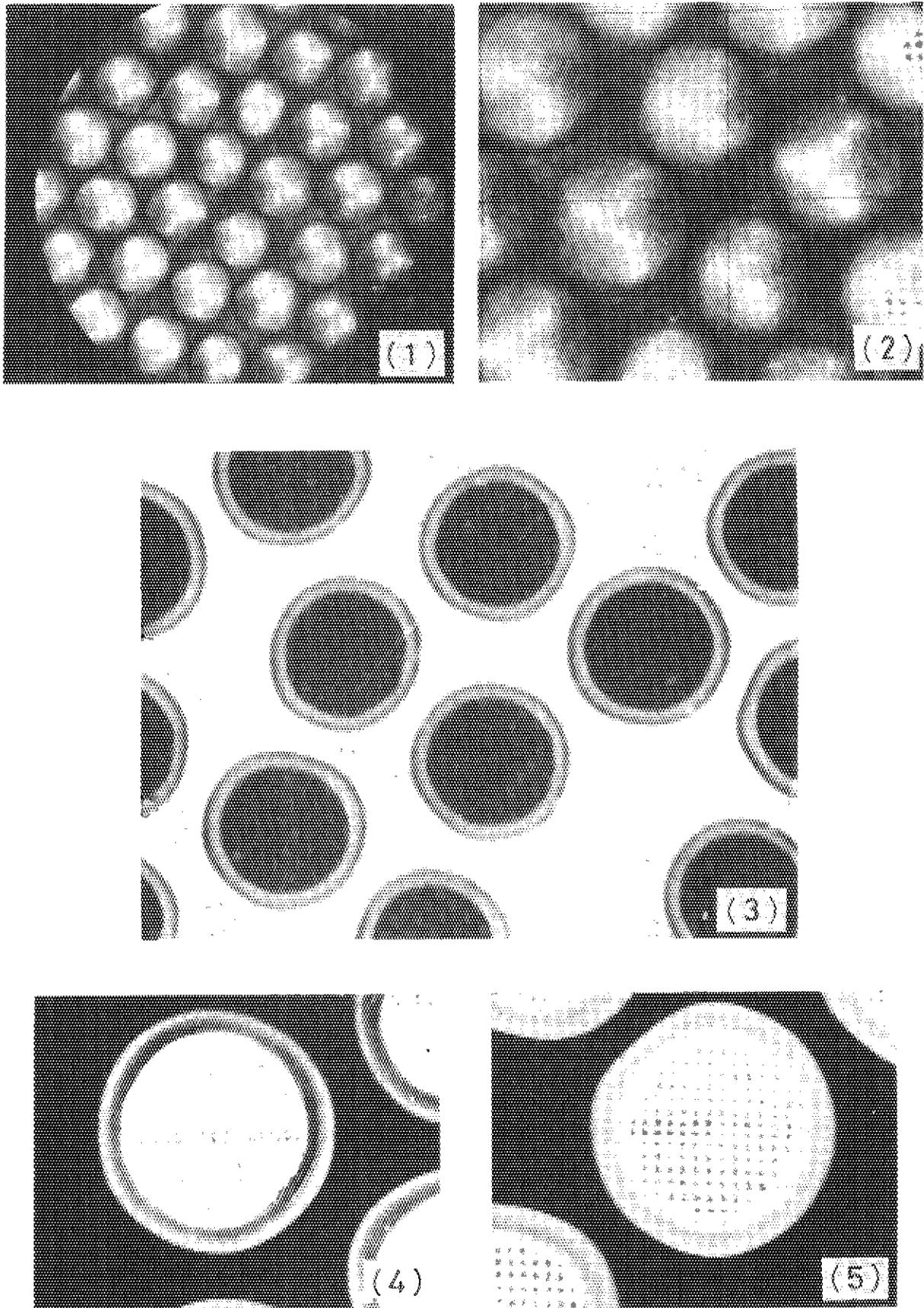


Fig. 17(C) Surface appearance and X-ray microradiographs of 74FCP1-6B.

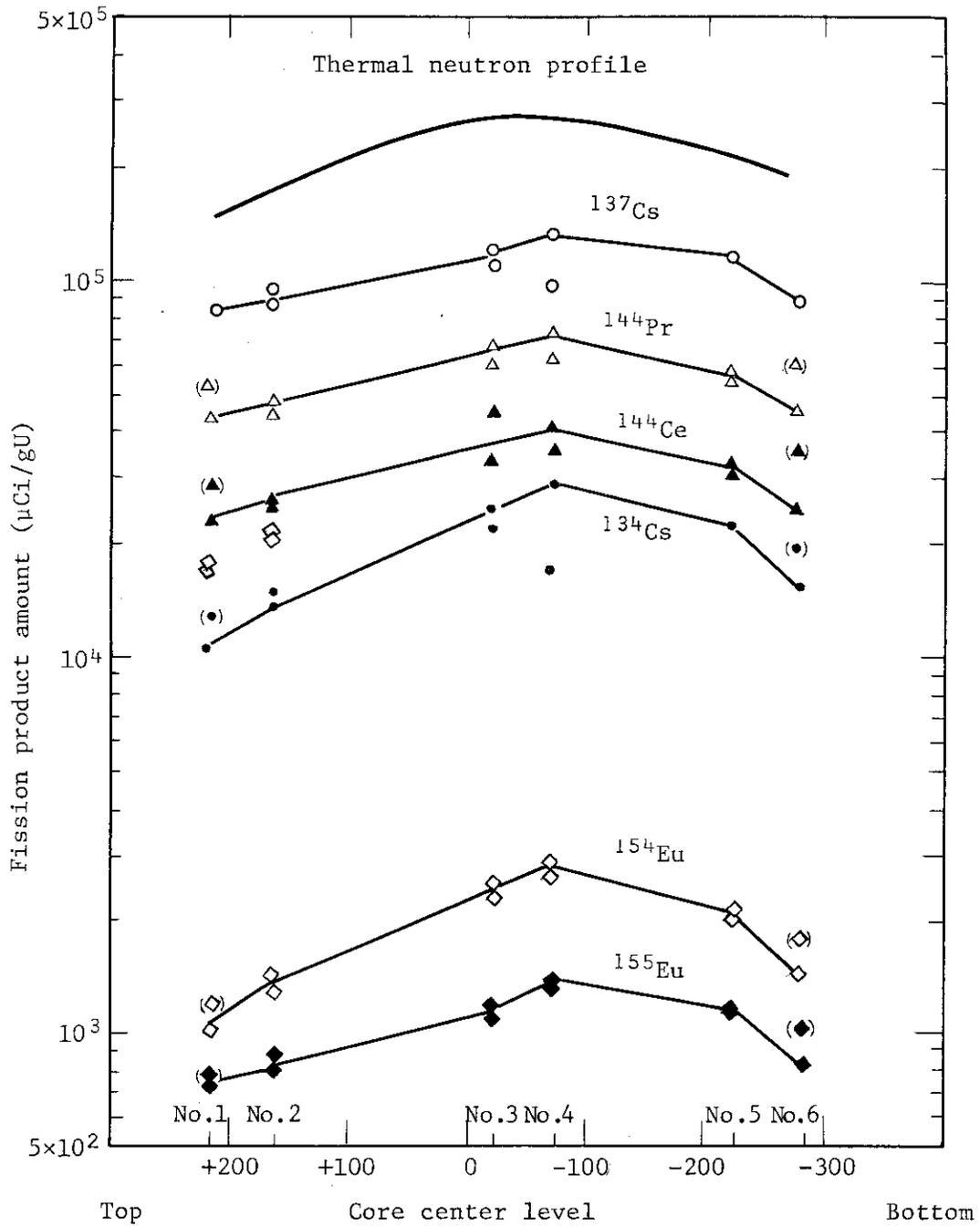


Fig. 18 Fission product inventory of the coated particles

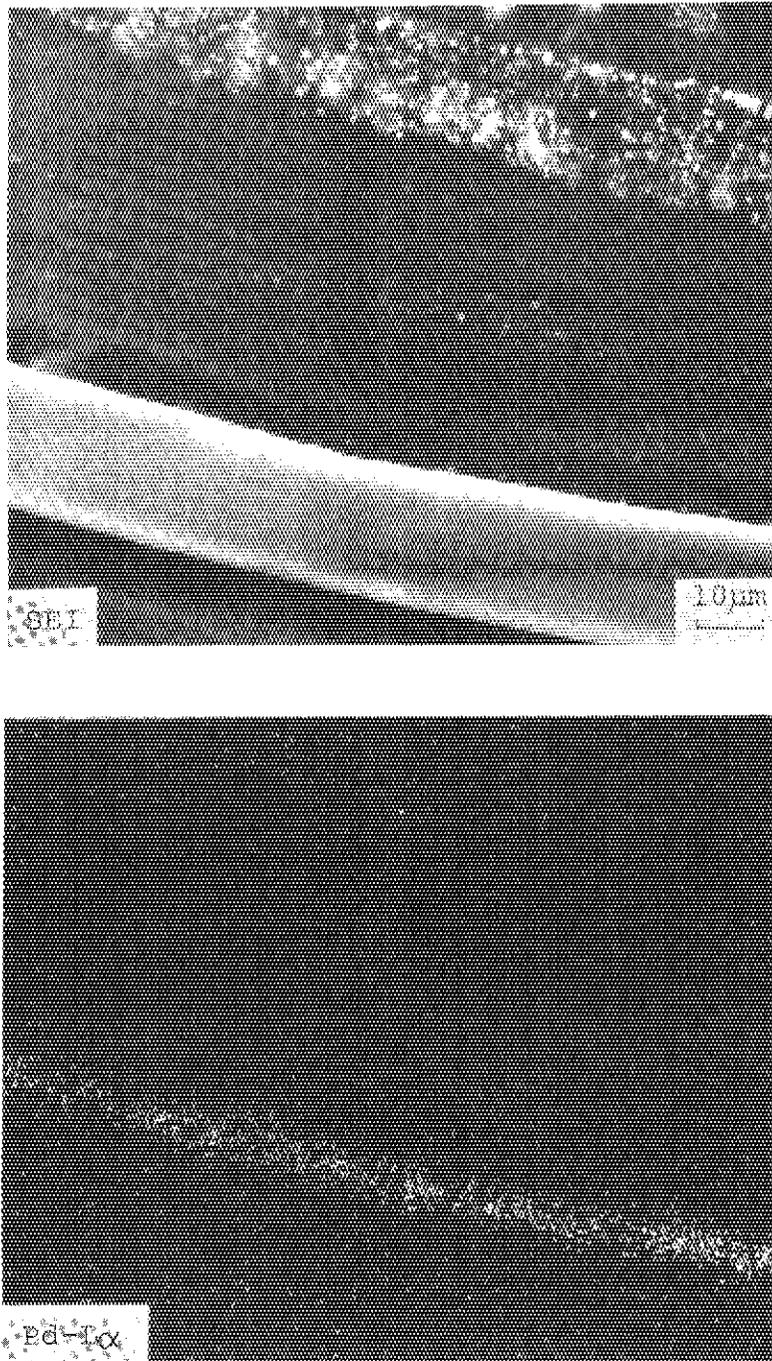


Fig. 19 Palladium accumulation at inner surface of SiC layer.

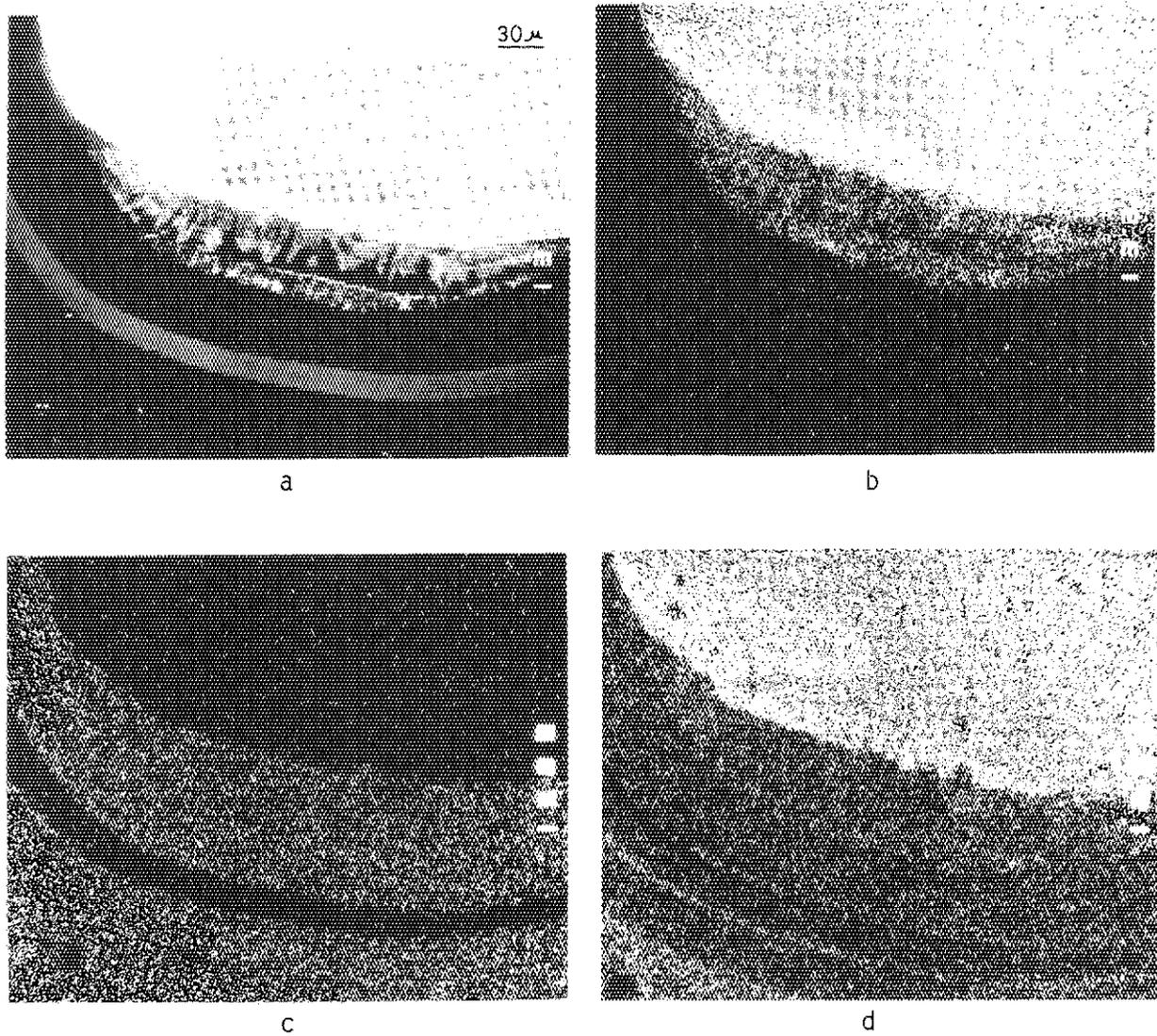
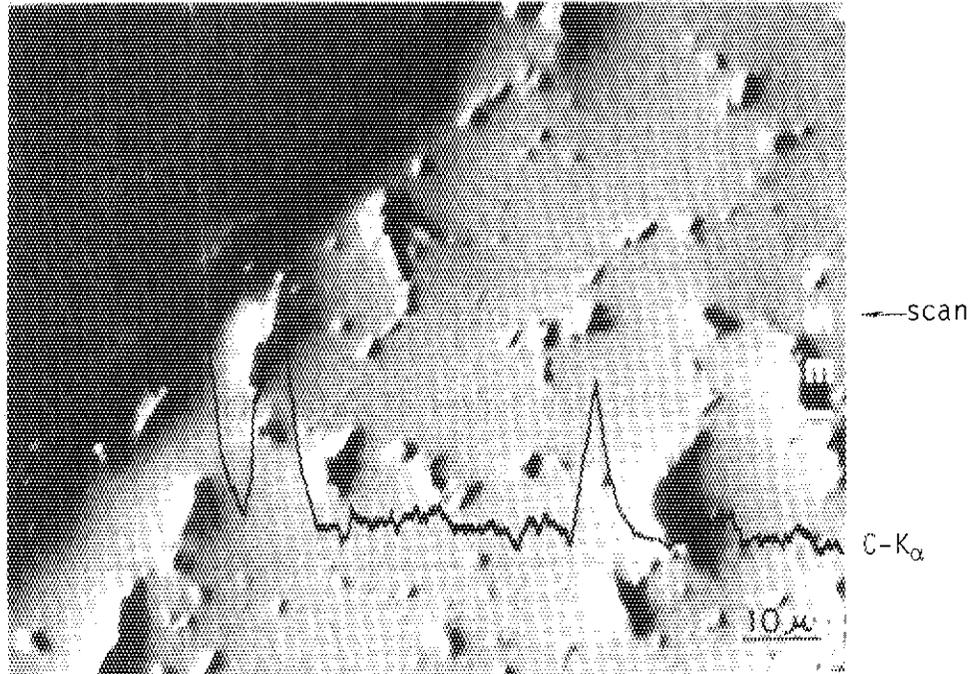
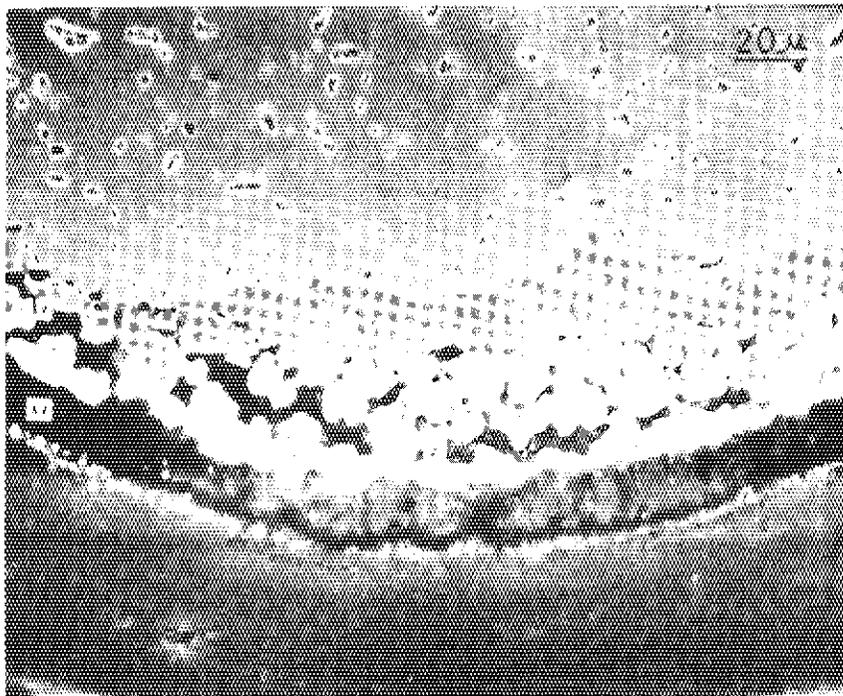


Fig. 20 Observation on cooler side of amoeba particle.
(a) Back-scattered electron, (b) U-M α , (c) C-K α and
(d) O-K α images.



a



b

Fig. 21 Carbon inclusion (a) in-pores and (b) along grain boundaries of UO_2 kernel. (a) 74FC1-3A, (b) 74UC1-3B.

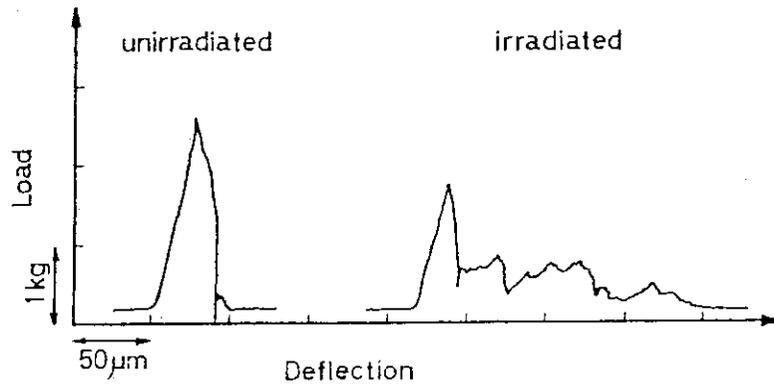


Fig. 22 Load-deflection curves of unirradiated and irradiated 74FC1 particles.

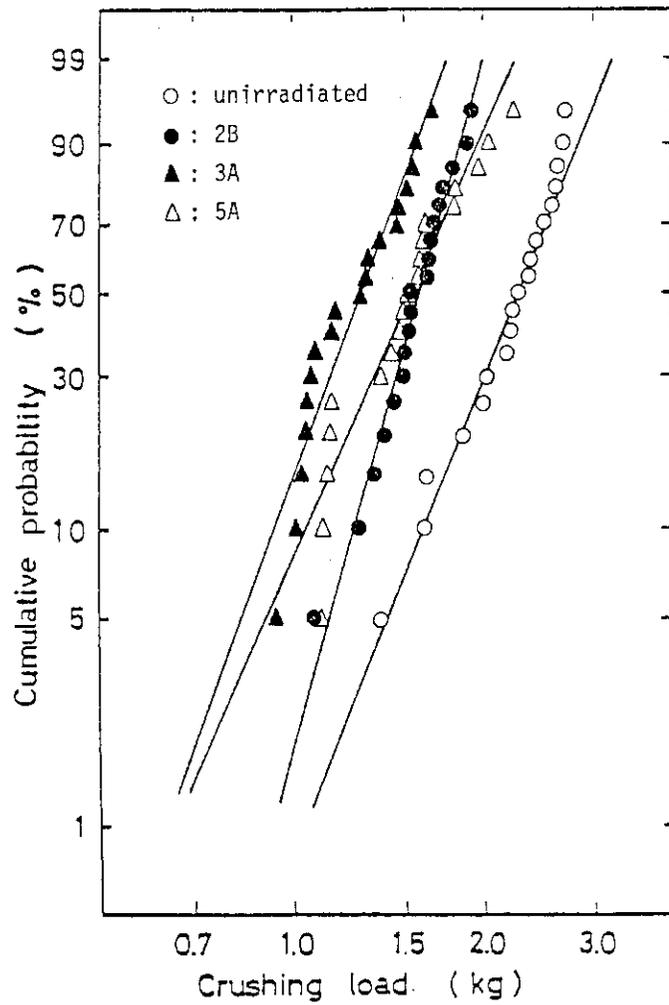


Fig. 23 Crushing strength of unirradiated and irradiated 74FC1 particles.

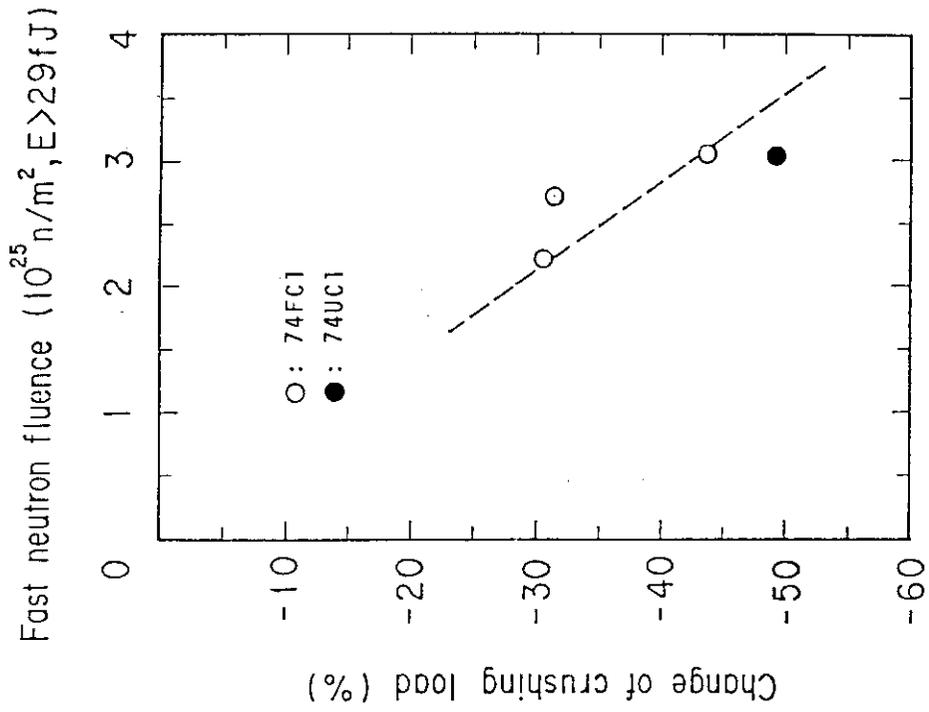


Fig. 25 Change of crushing load as a function of fast neutron fluence.

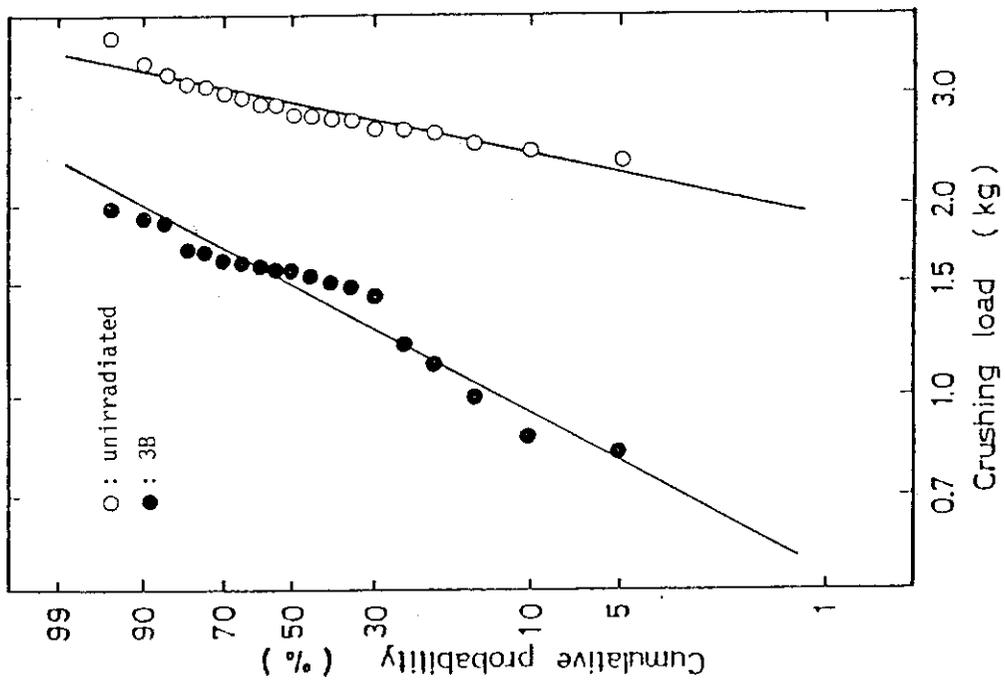


Fig. 24 Crushing strength of unirradiated and irradiated 74UCT particles.

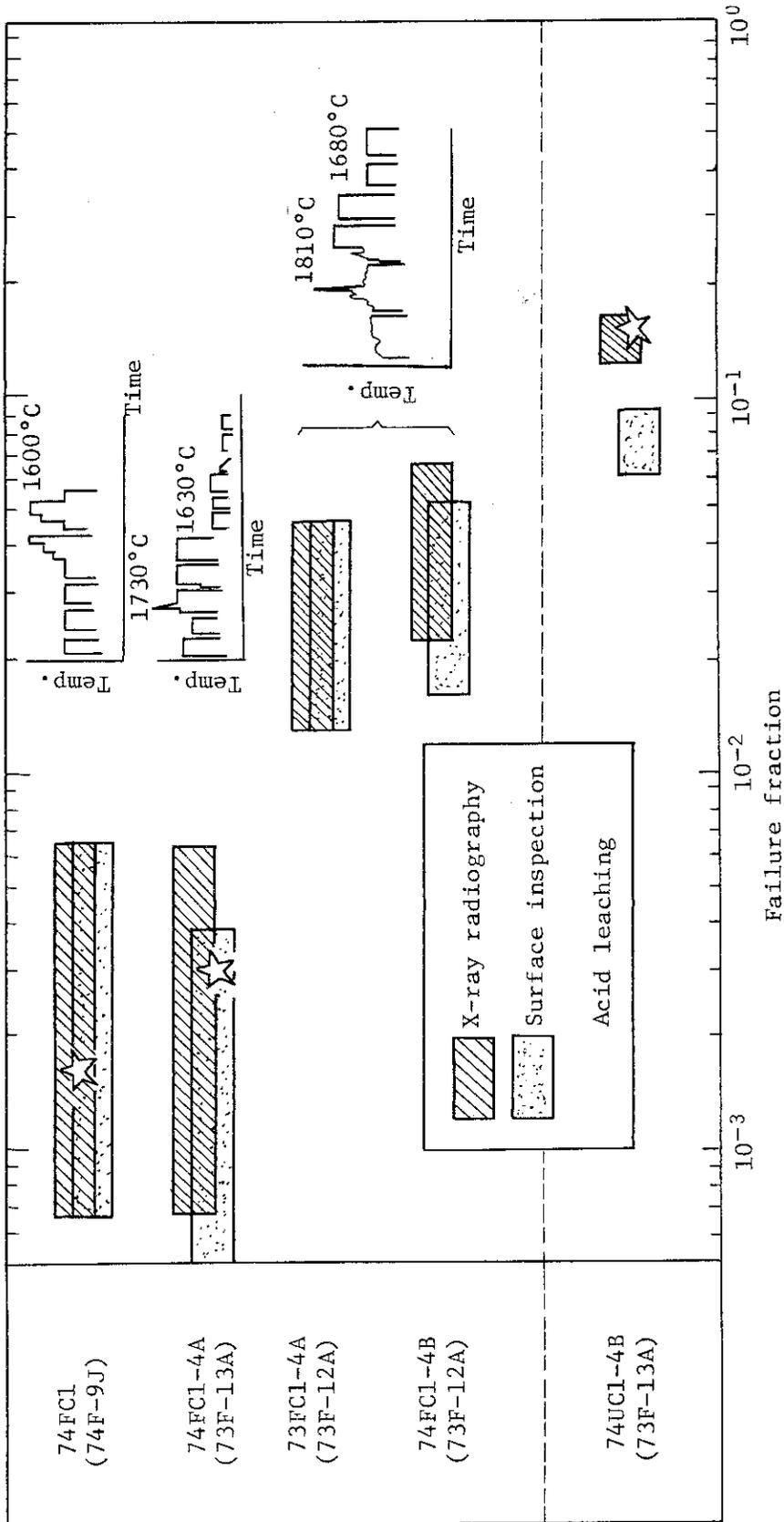


Fig. 26 Failure fraction of coated fuel particles irradiated over 1600 °C

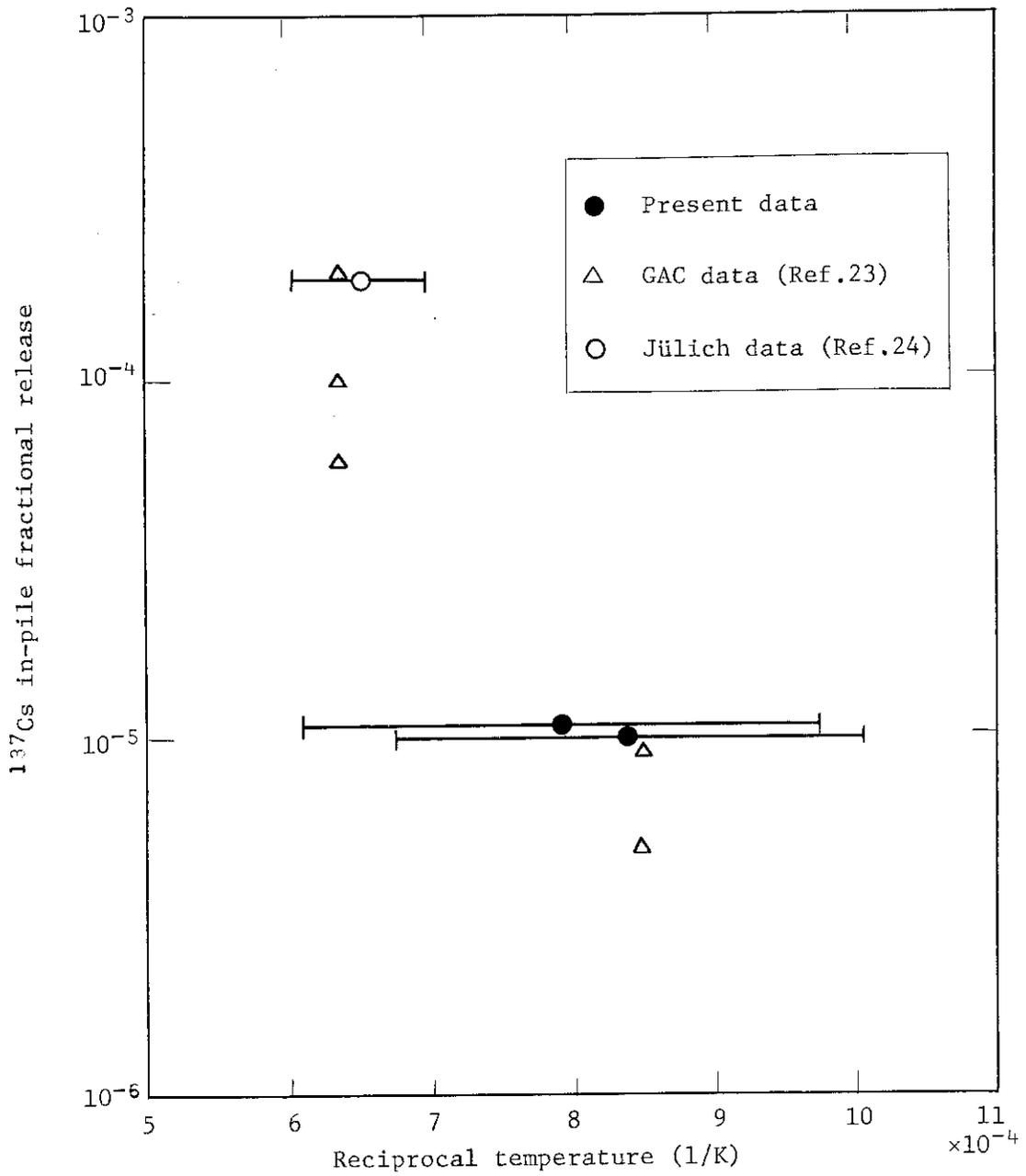


Fig. 27 ¹³⁷Cs in-pile fractional release from TRISO coated particle