

JAERI-M  
84-199

被覆燃料粒子の照射挙動試験 (VI)  
(74F-1AキャップセルによるJMTR照射)

1984年11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）で複写による実費領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 Division, Department  
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 日立高速印刷株式会社

被覆燃料粒子の照射挙動試験（VI）  
(74F-1A キャップセルによる 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<sup>+</sup>

(1984年10月15日受理)

多目的高温ガス実験炉の予備設計仕様に基づいて48年度・49年度に試作した被覆粒子及び49年度に予備設計仕様に基づいて英国で調製した被覆粒子を74F-1A キャップセルで JMTR 反射体領域孔において照射した。この照射試験では、被覆粒子に対する高重中性子照射量が最高  $0.96 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 29 \text{ fJ}$ )、その燃焼率が最高 2.5%FIMA であったが、被覆粒子温度は所期の温度よりかなり低く、最高 1140°C であった。照射後試験では、外観、X線ラジオグラフィ、断面組織観察、酸浸出及び被覆粒子破損などの試験により、被覆粒子の照射性能を調べた。48年度試作被覆粒子は、この照射ではほぼ健全性を示したが、プロピレン蒸着最外  $P_y C$  層を有する49年度試作被覆粒子では、若干、最外  $P_y C$  層が強度的に不安定であった。また、英國製被覆粒子の照射性能は、国産被覆粒子より劣っていた。また被覆粒子の圧縮破壊強度は、この照射により約67%低下した。

<sup>+</sup> 研究炉管理部

Irradiation Behaviors of Coated Fuel Particles (VI)  
(Irradiation by JMTR 74F-1A Capsule)

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

Department of Fuels and Materials Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received October 15, 1984)

TRISO coated fuel particles fabricated in the specifications of the VHTR preliminarily design in FY 1973 and 1974, and the TRISO particles imported from England, which had been fabricated in the same specifications, were irradiated by 74F-1A capsule in JMTR reflector region. In this irradiation experiment the maximum fast neutron fluence was  $0.96 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 29\text{fJ}$ ) and the maximum fuel burnup, 2.5 %FIMA, but the maximum fuel temperature was 1140°C, which was very low, compared with the designed temperature. In the postirradiation examination the irradiation performance of the coated fuel particles was examined by the surface inspection, X-ray microradiography, ceramography, the acid-leaching and the crushing strength measurement. From the results it was concluded that the coated fuel particles fabricated in FY 1973 exhibited relatively good performance in this irradiation. The coated fuel particles fabricated in 1974, which possessed the propylene derived PyC, behaved in the manner that the outermost PyC layer was mechanically unstable. The imported particles did not good performance. The crushing strength of the coated fuel particles reduced about 67% by irradiation.

**Keywords:** Coated Fuel Particles, Irradiation, JMTR, Post Irradiation Examination, Irradiation Performance, Burnup  
Fuel Temperature, PyC

---

+ ) Department of Research Reactor Operation

## 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 .....	2
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 .....	4
4.4 燃焼率および線出力 .....	5
5. 照射後試験 .....	5
5.1 外観, 断面組織およびX線ラジオグラフィ検査 .....	5
5.2 酸浸出試験 .....	9
5.3 被覆粒子の破壊強度測定 .....	9
6. 考 察 .....	10
7. 結 論 .....	12
謝 辞 .....	12
参考文献 .....	12

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Capsule .....	2
2.1 Capsule configuration .....	2
2.2 Inner capsule .....	2
3. Coated fuel particles .....	2
4. Irradiation .....	4
4.1 Irradiation hole and irradiation time .....	4
4.2 Irradiation temperature .....	4
4.3 Neutron fluence .....	4
4.4 Burnup and linear heat rate .....	5
5. Postirradiation examination .....	5
5.1 Surface inspection, ceramography and X-ray microradiography .....	5
5.2 Acid leaching examination .....	9
5.3 Crushing strength of coated particles .....	9
6. Discussion .....	10
7. Conclusions .....	12
Acknowledgement .....	12
References .....	12

## 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年に始められ、46年には予備設計が終り、昭和50年には第1次概念設計（Mk-III設計）が完了した。さらに、現在では、これらの設計を基に詳細設計が進められている。

一方、実験炉用被覆粒子燃料の照射試験では、JRR-2に設置していたHWL-1およびEFTL-2水ループを使って昭和45年にUC<sub>2</sub>核被覆粒子の照射が試験的に開始され<sup>(1)</sup>、昭和46年にはJMTRを使って、被覆粒子照射健全性試験が本格的に始められた。

昭和50年に予備設計から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<sub>2</sub>)直径が500 μm、被覆粒子直径が780 μmであったが、現在のMk-III設計仕様に準じた被覆粒子はこれより若干大きい。本報告で取扱う被覆粒子は予備設計仕様に準じたものであり、予備設計仕様被覆粒子の照射試験としては、このシリーズでの最後の報告である。従来の予備設計仕様被覆粒子照射試験については、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) <sup>(2)</sup>
(2) 71F-7A キャプセル	JAERI-M 6717	(1976) <sup>(3)</sup>
(3) 72F-6A, 72F-7A キャプセル	JAERI-M 8949	(1980) <sup>(4)</sup>
(4) 73F-12A キャプセル	JAERI-M 9644	(1981) <sup>(5)</sup>
(5) 73F-13A キャプセル	JAERI-M 83-232(1984)	<sup>(6)</sup>

本報告は昭和51年から52年にかけてJMTR反射体領域で照射した74F-1Aキャプセルによる照射に関するものである。74F-1Aキャプセルでは、48年度および49年度に試作した予備設計TRISO被覆粒子を照射したものであり、上記キャプセルの中で73F-13Aキャプセルに次いで照射期間が長いのが特徴である。74F-1Aキャプセルの照射試験目的は以下のとおりである。

- (1) 48年度および49年度試作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) 低密度UO<sub>2</sub>核と標準密度UO<sub>2</sub>核の照射挙動の比較。
- (4) プロパン(C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>)およびプロピレン(C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>)から蒸着した高密度P<sub>y</sub>C層を有する被覆粒子の照射挙動の比較。

照射は昭和52年6月に終了したが、同年に核燃料物質の運搬に係わる法律改正が行われたため、照射後試験を行う東海研ホットラボへの搬入が大幅に遅れた。昭和55年3月には新しい法律に適合するBM型輸送容器(JMHL-78Y15T)が完成し、同年4月15日に大洗研究所ホットラボから東海研ホットラボに搬入し、照射後試験が開始された。<sup>(7)</sup>

## 2. キャプセル

### 2.1 キャプセル全体構造

74F-1A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。Fig. 1に示すように、本キャプセルは3段の内部キャプセルから成り、それぞれの内部キャプセルは被覆粒子装荷用の孔を有する黒鉛ホルダーを2個内蔵している。上段内部キャプセルの被覆粒子装荷用黒鉛ホルダーは炉中心から141mmと238mmの間に位置し、中段内部キャプセルの黒鉛ホルダーは下方、3mmと94mmの間、下段内部キャプセルでは下方204mmと298mmの間に位置している。キャプセル外筒はSUS 304で、その内側はAl熱媒体で構成され、熱媒体中に中性子フルユーエンス・モニターおよびAC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測定される。

### 2.2 内部キャプセル

74F-1Aキャプセルの内部構造をFig. 3に示す。上、中、下段の内部キャプセルとも同一構造であるが、下段内部キャプセルだけは燃料温度計測熱電対が下側から挿入されている。内部キャプセルの外筒は二重になっており、外側がSUS 304、内側がNb-1%Zr材から成っており、この間のHe圧を調整することにより、熱伝達を変化させ、燃料温度を制御することが出来る。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 $18\phi$ 、50ℓmm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(2.3φmm×40ℓmm)があけられており、被覆粒子はこれらの穴に保持される。キャッ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、Bの穴には異った被覆粒子が装荷されるためである。黒鉛ホルダーは2個を1組としてM<sub>0</sub>筒に挿入され、その両端には、ZrO<sub>2</sub>熱遮蔽板およびZr反射板が配されており、軸方向での熱の逃げを防いでいる。この内部キャプセルが72F-6Aおよび73F-12A、-13Aキャプセルと異なる点は、Zr反射板を押え付けるスプリング(INC600)がZrペローズに变成了ことである。上述したように、1個の内部キャプセルには2個の黒鉛ホルダーが装荷されているため、1個の内部キャプセルには4種類、キャップセル全体では12種類の被覆粒子燃料が照射される。

## 3. 被覆燃料粒子

Table 1には74F-1Aキャップセルで照射した被覆燃料粒子の特徴をまとめており、またFig. 4にはこれらの被覆燃料粒子の製造プロセスをまとめている。この表に示す73FC1は48年度

## 2. キャプセル

### 2.1 キャプセル全体構造

74F-1Aキャッ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ップセル写真をFig. 2に示す。Fig. 1に示すように、本キャップセルは3段の内部キャップセルから成り、それぞれの内部キャップセルは被覆粒子装荷用の孔を有する黒鉛ホルダーを2個内蔵している。上段内部キャップセルの被覆粒子装荷用黒鉛ホルダーは炉中心から141mmと238mmの間に位置し、中段内部キャップセルの黒鉛ホルダーは下方、3mmと94mmの間、下段内部キャップセルでは下方204mmと298mmの間に位置している。キャップセル外筒はSUS 304で、その内側はAl熱媒体で構成され、熱媒体中に中性子フルユーエンス・モニターおよびAC熱電対が配されている。また、各内部キャップセル中心部には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測定される。

### 2.2 内部キャップセル

74F-1Aキャップセルの内部構造をFig. 3に示す。上、中、下段の内部キャップセルとも同一構造であるが、下段内部キャップセルだけは燃料温度計測熱電対が下側から挿入されている。内部キャップセルの外筒は二重になっており、外側がSUS 304、内側がNb-1%Zr材から成っており、この間のHe圧を調整することにより、熱伝達を変化させ、燃料温度を制御することが出来る。内部キャッ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 $18\phi$ 、50ℓmm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（ $2.3\phi$ mm×40ℓmm）があけられており、被覆粒子はこれらの穴に保持される。キャッ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、Bの穴には異った被覆粒子が装荷されるためである。黒鉛ホルダーは2個を1組としてM<sub>0</sub>筒に挿入され、その両端には、ZrO<sub>2</sub>熱遮蔽板およびZr反射板が配されており、軸方向での熱の逃げを防いでいる。この内部キャップセルが72F-6Aおよび73F-12A、-13Aキャップセルと異なる点は、Zr反射板を押え付けるスプリング(INC600)がZrベローズに変わったことである。上述したように、1個の内部キャップセルには2個の黒鉛ホルダーが装荷されているため、1個の内部キャップセルには4種類、キャップセル全体では12種類の被覆粒子燃料が照射される。

## 3. 被覆燃料粒子

Table 1には74F-1Aキャップセルで照射した被覆燃料粒子の特徴をまとめており、またFig. 4にはこれらの被覆燃料粒子の製造プロセスをまとめている。この表に示す73FC1は48年度

試作の標準の予備設計粒子であり、また 73FC3 および 73FC4 も 48 年度試作粒子ではあるが、前者の場合、標準粒子の燃料核密度に比べてかなり低い密度 (90.45%TD) であり、一方、後者はその高密度  $P_yC$  層が従来のプロパンからプロピレン蒸着に変った粒子である。74FCP-1 は 49 年度に燃料コンパクト装荷用に製造した予備設計被覆粒子であり、73FC4 と同様に高密度  $P_yC$  層はプロピレンから蒸着されている。このように、48~49 年度にかけては、高密度  $P_yC$  の蒸着ガスをプロパンからプロピレンに切換えた時期であった。この理由としては、プロパンの熱分解が吸熱反応であるのに対し、プロピレンのそれは発熱反応であることに対する経済的なメリットを見込んだためである。<sup>(8)</sup> 74UC1 は予備設計仕様に準拠して 49 年度に英国 (Spring-fields) で製造されたものである。<sup>(9)</sup>

Table 1 に示すように、74F-1A キャプセルで照射した被覆粒子の濃縮度は全て、8%eU である。Fig. 4 に示すように、国産被覆粒子の燃料核はゾル・ゲル法で作られているのに対し、74UC1 (英国被覆粒子) の燃料核は粉末冶金法によって作られている。その燃料核の違いを Fig. 5 に示す。Fig. 5 には未照射国産被覆粒子と英国被覆粒子 (74UC1) の断面組織を示しているが、国産粒子の燃料核では小さな気孔が核内に均一に分散しているのに対し、74UC1 では燃料核中央部に大きな気孔が存在しているのが特徴である。

被覆層については、第 1 層  $P_yC$  (バッファー層) は、ど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  $1.11\sim1.04 \text{ g/cm}^3$  (理論密度の約 50%) であり、多孔質である。第 2 層と第 4 層はプロパン ( $C_3H_8$ ) またはプロピレン ( $C_3H_6$ ) から蒸着されている。これらの蒸着は  $\sim 1500^\circ\text{C}$  以下の温度で行われたものであり、メタン ( $CH_4$ ) のように高温蒸着 ( $2000\sim1650^\circ\text{C}$ ) で得られる  $P_yC$  に対して、これらは LTI- $P_yC$  (Low Temperature Isotropic  $P_yC$ ) と呼ばれている。高温蒸着  $P_yC$  (HTI- $P_yC$ , High Temperature Isotropic  $P_yC$ ) と LTI- $P_yC$  の違いは、それらの蒸着温度以外に、微細結晶粒径や結晶構造などに見られる。LTI- $P_yC$  の粒径 ( $L_c$ ) は通常  $\sim 40\text{\AA}$  以下であるのに対し、HTI- $P_yC$  のそれは  $100\text{\AA}$  以上である。<sup>(10)</sup> イバー構造を結晶質の層がとり囲んだ球形の構造をしている。したがって、これらの両  $P_yC$  の照射挙動も大きく異なるが、BISO 被覆には FP 放出抑制の観点から HTI- $P_yC$  が使われるが、TRISO 被覆には LTI- $P_yC$  が適している。第 3 層  $SiC$  はメチルトリクロロシラン ( $CH_3SiCl_3$ ) から蒸着されており、それらの密度は、いずれも理論密度 ( $= 3.2138 \text{ g/cm}^3$ )<sup>(11)</sup> に近い  $3.20 \text{ g/cm}^3$  である。

Table 1 に示したように、74F-1A キャプセルには 5 種類の被覆粒子を 12 個の異った位置で照射するものであり、これらの被覆粒子は照射後においては 12 種類の異った試料と見做される。この以降には、被覆粒子名と試料ホルダーの孔の番号を結び付けたものを試料名とする。1 ホルダー孔内の被覆粒子重量は  $2.1\sim2.2 \text{ g}$  であり、被覆粒子数にして 2000~2200 粒である。キャップセル全体では、被覆粒子重量は  $25.3 \text{ g}$  が装荷されており、全ウラン量で  $15 \text{ g}$  である。

## 4. 照 射

### 4.1 照射孔および照射時間

74F-1Aキャップセルは JMTR反射体領域にあるM-6孔( Be 反射体第一層)で#36サイクル(昭和51年4月5日開始)から#40サイクル(昭和52年6月7日終了)まで5サイクルにわたって照射された。この期間の全照射期間は 2432.4h (101.4 efpd)であり、照射時間としては、73F-13A キャップセルに次いで長いものである。

### 4.2 照射温度

74F-1Aキャップセルの燃料照射温度の変化を Fig. 6 に、また50MW運転時の真空温度制御時の各サイクル毎の平均温度を Table 2 に示す。これらに見られるように、燃料の照射温度は全般的に低く、最も高い温度でも中段内部キャップセルの#37サイクルで 1140°C (50MW時真空状態平均)であった。#36サイクルにおいては、前半サイクルで 40MW の原子炉運転および真空運転制御をダンプ状態<sup>\*</sup>に保った後、真空状態にしたため、燃料温度が複雑に変化した。また、後半サイクルでも途中で炉が停止したため、照射温度の変化は多少、複雑である。#37サイクル以降は、ほとんど変動なく温度はほぼ一定を保っている。全期間を通じての照射温度を明確に示すことはむずかしいが、Fig. 6 の照射温度を平均化することにより、この期間の照射温度を以下のように決定した。

上段内部キャップセル被覆粒子温度 ..... 900°C

中段内部キャップセル被覆粒子温度 ..... 1050°C

下段内部キャップセル被覆粒子温度 ..... 1000°C

### 4.3 中性子照射量

各内部キャップセルと同じ位置の Aℓ 熱媒体には高速中性子照射量測定用として Feモニター・ワイヤー、熱中性子照射量測定用として Coモニター・ワイヤーが装荷されており、これらは照射後試験でキャップセル本体から取出され、材料試験炉部計画課において、中性子照射量が測定された。熱中性子照射量は、<sup>59</sup>Co (n, γ)<sup>60</sup>Co 反応により生成する<sup>60</sup>Co量から、また高速中性子照射量は<sup>54</sup>Fe (n, γ)<sup>54</sup>Mn 反応により生成する<sup>54</sup>Mn量から、それぞれの中性子照射量を求めた。キャップセル軸方向での高速中性子照射量および熱中性子照射量の測定結果を Fig. 7 に示す。しかし、このキャップセルは、反射体で照射されているため、モニター・ワイヤー位置での中性子束と、燃料位置での中性子束とは同じではない。熱中性子の場合、この照射孔が炉心のすぐ外

---

\* ダンプ状態とは、内部キャップセル外筒 2重管の間に He を満し、内部キャップセルの熱伝達を良くして、燃料温度を最も下げた状態をいう。

側にあるため、反射体からの中性子反射により、熱中性子分布は比較的平たんであるが、高速中性子の場合は、この場所において急激な勾配がついている。そこで、燃料位置での高速中性子照射量を知るためにモニター・ワイヤーで測定した値を補正しなければならない。この補正是中性子拡散計算コード、CITATION を使って計画課<sup>(12)</sup>によって行われた。その結果、燃料位置での高速中性子照射量はモニター・ワイヤー位置での値の 75.7% であった。この方法で補正した高速中性子照射量も Fig. 7 に示している。

#### 4.4 燃焼率および線出力

74F-1A キャップセルで照射した被覆粒子の燃焼率の測定は行われなかったので、以下の方法によってそれを求めた。

73F-13A<sup>(6)</sup> および 74F-9J キャップセル<sup>(13)</sup> では 8%eU の被覆粒子を照射し、それらの燃焼率および熱中性子照射量が測定されている。その燃焼率および熱中性子照射量の関係を Fig. 8 に示すが、この関係をもとに、個々の被覆粒子に対して測定された熱中性子照射量から燃焼率を推定した。その結果を Table 2 にまとめている。中段内部キャップセルでの被覆燃料粒子の燃焼率は 2.5%FIMA で、最も高く、上、下段内部キャップセルは互にほとんど同じで、2.1~2.3% FIMA であった。

キャップセルの線出力は、#36 サイクルで最高 181w/cm であったが、照射が進行するにつれて次第に減少し、照射終了直前の #40 サイクルでは 102w/cm にまで低下した。各サイクルでの最大線出力（温度から計算）は以下のとおりである。

# 36 サイクル	.....	181 w/cm
# 37 サイクル	.....	156 w/cm
# 38 サイクル	.....	130 w/cm
# 39 サイクル	.....	120 w/cm
# 40 サイクル	.....	102 w/cm

### 5. 照射後試験

昭和54年4月15日に大洗研究所ホットラボから東海研究所ホットラボに搬入した 74F-1A キャップセルの照射後試験は同年4月から始められた。Fig. 9 に、74F-1A キャップセルの照射後試験を流れ図として示している。

#### 5.1 外観、断面組織および X 線ラジオグラフィ検査

外観、断面組織および X 線ラジオグラフィ検査は、全ての被覆粒子試料について行った。Fig. 9 に示すように、外観検査では、300粒毎に4つに分けられた被覆粒子、約 1200 粒を 20 倍と 40 倍の被覆粒子検査用のペリスコープ（島津製作所、型式 M-150）で観察した。外観検査を

側にあるため、反射体からの中性子反射により、熱中性子分布は比較的平たんであるが、高速中性子の場合は、この場所において急激な勾配がついている。そこで、燃料位置での高速中性子照射量を知るためにモニター・ワイヤーで測定した値を補正しなければならない。この補正是中性子拡散計算コード、CITATION を使って計画課<sup>(12)</sup>によって行われた。その結果、燃料位置での高速中性子照射量はモニター・ワイヤー位置での値の 75.7% であった。この方法で補正した高速中性子照射量も Fig. 7 に示している。

#### 4.4 燃焼率および線出力

74F-1A キャップセルで照射した被覆粒子の燃焼率の測定は行われなかったので、以下の方法によってそれを求めた。

73F-13A<sup>(6)</sup> および 74F-9J キャップセル<sup>(13)</sup> では 8%eU の被覆粒子を照射し、それらの燃焼率および熱中性子照射量が測定されている。その燃焼率および熱中性子照射量の関係を Fig. 8 に示すが、この関係をもとに、個々の被覆粒子に対して測定された熱中性子照射量から燃焼率を推定した。その結果を Table 2 にまとめている。中段内部キャップセルでの被覆燃料粒子の燃焼率は 2.5%FIMA で、最も高く、上、下段内部キャップセルは互にほとんど同じで、2.1~2.3% FIMA であった。

キャップセルの線出力は、#36 サイクルで最高 181w/cm であったが、照射が進行するにつれて次第に減少し、照射終了直前の #40 サイクルでは 102w/cm にまで低下した。各サイクルでの最大線出力（温度から計算）は以下のとおりである。

# 36 サイクル	.....	181 w/cm
# 37 サイクル	.....	156 w/cm
# 38 サイクル	.....	130 w/cm
# 39 サイクル	.....	120 w/cm
# 40 サイクル	.....	102 w/cm

### 5. 照射後試験

昭和54年4月15日に大洗研究所ホットラボから東海研究所ホットラボに搬入した 74F-1A キャップセルの照射後試験は同年4月から始められた。Fig. 9 に、74F-1A キャップセルの照射後試験を流れ図として示している。

#### 5.1 外観、断面組織および X 線ラジオグラフィ検査

外観、断面組織および X 線ラジオグラフィ検査は、全ての被覆粒子試料について行った。Fig. 9 に示すように、外観検査では、300粒毎に4つに分けられた被覆粒子、約 1200 粒を 20 倍と 40 倍の被覆粒子検査用のペリスコープ（島津製作所、型式 M-150）で観察した。外観検査を

終えた被覆粒子は、X線マイクログラフィ装置でX線撮影を行い被覆粒子の内部破損状況を調べた。外観およびX線ラジオグラフィ検査による被覆粒子破損率は、Table 3にまとめている。

別途、区分けされた被覆粒子、30粒は、それらの赤道面まで研磨され、断面組織観察が行われた。以下には、個々の被覆粒子試料についての検査結果を記す。

74UC1-1A (Fig.10) [ 照射条件 : 900°C, 2.1% FIMA,  $0.53 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ] \*

外観検査では、Fig.10 写真[1]、[2]に示すように、照射による異常は認められなかつたが、断面組織(写真[3]、[4])では、 $S_1C$ 層の内面部分で若干、腐食されたような状態が見られた。しかし、X線ラジオグラフィでは特別な異常は認められなかつた。Table 3に示すように、外観検査、X線ラジオグラフィ検査とも95%信頼限界の最大破損率は $3.4 \times 10^{-3}$ であった。

74FCP1-1B (Fig.11) [ 照射条件 : 900°C, 2.1% FIMA,  $0.53 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ]

第3章でも示したように、この被覆粒子はプロピレン蒸着 $P_yC$ で被覆された初期のものである。外観検査では、最外 $P_yC$ 層表面の変色(写真1)や表面の滑らかさを失った粒子(写真2)が見られたが、表面からのクラックは認められなかつた。一方、断面組織観察では、観察を行つた全ての被覆粒子の最外 $P_yC$ 層にクラックが発生しているのが見られた(写真3、4)。しかしこれらのクラックは外観検査で明らかなように、照射によって直接発生したものではなく、研磨時に入ったものである。照射中には、特に初期には急激な $P_yC$ の収縮により、第2、第4(最外) $P_yC$ 層に引張応力が発生する。照射終了時に、この引張応力は残留し、研磨の際にクラックを発生させる原因となるが、このような研磨クラックの発生は、最外 $P_yC$ 層が照射に対して不安定であることを示すものである。X線ラジオグラフィでは写真5、6に示すように、燃料核中のウランが第一層(バッファー層)全体に広がっている様子を呈した被覆粒子が1180粒のうち2粒見つかった。このような被覆粒子は、被覆層が完全に割れたものではなく、従つて、後に示すように酸浸出ではその割れを検出できないが、被覆層の気密性は失われているものであると考えられる。これらの被覆粒子ではFPガスや比較的長半減期のFPガスを親核種に持つ金属FP( $^{134}\text{Cs}$ )の存在比率は著しく減少しているはずであり、このような破損はORNLで使われているIMGA\*\*<sup>(14)</sup>では検出できるものである。Table 3に示すように、外観では1粒の破損も検出されなかつたが、X線ラジオグラフィでは95%信頼限界に於ては、 $2.19 \times 10^{-4} \sim 6.51 \times 10^{-3}$ の破損率である。

73FC3-2A (Fig.12) [ 照射条件 : 900°C, 2.2% FIMA,  $0.64 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ]

写真1、2に示すように、外観では異常は認められなかつた。この被覆粒子の特徴は燃料核密度が73FC1(予備設計標準粒子)に比べて低いことである。このため、写真3、4に見られる燃料核中の気孔密度は他の被覆粒子に比べると若干、高いようであるが、燃料核の著しい照射変化は認められなかつた。X線ラジオグラフィでは、写真5に示すように製造時に生じた異常な粒子が見られたが、破損した被覆粒子は認められなかつた。

\*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( $E > 2.9 \text{ fJ}$ )の順に示す。

\*\* IMGA= Irradiated Microsphere Gamma Analyzer

73FC4-2B (Fig.13) [ 照射条件 : 900°C, 2.2%FIMA,  $0.64 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ]

第3章で記した様に、この被覆粒子の高密度  $P_yC$  層はプロピレンから蒸着されたこと以外は標準予備設計粒子と同じである。前述した 74FCP1 と同じ仕様であるが、外観検査では表面の異常は認められず、また断面組織に於ても 74FCP1-1B に見られたような最外  $P_yC$  層にクラックは発生しなかった。74FCP1-1B にクラックが発生し、この被覆粒子に発生しなかったことの原因については、明言は出来ないが、恐らく最外  $P_yC$  層の密度の違いから来るものと思われる。つまり、密度が低い  $P_yC$  ほど照射初期には急激に密度の増加が起るため、<sup>(15)</sup> 照射条件が同じであれば、前に述べた残留応力は、低密度  $P_yC$  ほど、大きいと思われる。この場合、Table 3 に示した 74FCP1 と 73FC4 の最外層  $P_yC$  密度を比べると、後者の方が若干、大きく、従って、ほとんど照射条件が同じである 74FCP1-1B に比べると 73FC4 では残留応力が少ないものとみられる。

また、X線ラジオグラフィ検査においては、特別な異常は認められなかった。

74UC1-3A (Fig.14) [ 照射条件 : 1050°C, 2.5%FIMA,  $0.95 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ]

外観検査では、表面にクラックが発生している粒子が検査個数 905 粒のうち 6 粒あり、著しい外観破損を示した。断面組織観察では、74UC1-1A と同じく、 $S_iC$  層の内面が腐食されている。また、写真 4 に示すように、恐らく、第 2 層（内部  $P_yC$  層）に発生したと思われるクラックが燃料核にまで及んでいる粒子も見られ、この粒子では特に  $S_iC$  層内面の腐食が著しい。しかし、X線ラジオグラフィでは、著しい外観の破損を示したわりには、被覆層を貫通した破損は見られなかった。Table 3 に示したように、外観破損率は  $2.44 \times 10^{-3} \sim 1.44 \times 10^{-2}$  であった。

74FCP1-3B (Fig. 15) [ 照射条件 : 1050°C, 2.5%FIMA,  $0.95 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ]

外観検査では最外  $P_yC$  層が破損している粒子が 1 粒（写真 2）見つかった以外は、その表面は健全であった。しかし、断面組織観察では 74FCP1-1B と同じく、最外  $P_yC$  層に研磨クラックの発生が見られ、この層が不安定であることを示している。X線ラジオグラフィでは、破損した被覆粒子は 1 粒も検出されなかった。Table 3 に示すようにこの外観破損率は  $2.3 \times 10^{-5} \sim 5.07 \times 10^{-3}$  であった。

73FC4-4A (Fig. 16) [ 照射条件 : 1050°C, 2.5%FIMA,  $0.96 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ]

外観検査では、1 粒の破損が見られたが、他は若干の変色が見られたものの、ほぼ健全であった。断面組織観察では燃料核の収縮にともなってバッファー層（第 1 層）の部分的な剥離が見られたが、粒内には異状な変化は見られず、健全であった。X線ラジオグラフィでも異状は認められなかった。

73FC1-4B (Fig. 17) [ 照射条件 : 1050°C, 2.5%FIMA,  $0.96 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ]

73FC1 は予備設計仕様の標準被覆粒子である。外観では特別な異状は認められなかったが、断面組織観察では、74FC4-4A と同じように燃料核の収縮にともなうバッファー層の部分的

な剥離を呈する被覆粒子（写真3）が見られた。X線ラジオグラフィ観察では、破損粒子は検出できなかったが、写真5に示すようにバッファー層と内部P<sub>y</sub>C層（第2層）の間に重金属原子からなる異種物質が現われているのが認められた。以前、実施した照射済被覆粒子燃料のXMA観察では、<sup>(16)</sup> 上記の被覆層間に、Te及びCeが蓄積している被覆粒子が認められた。しかし、写真5に見られる析出状態は、TeやCeの存在状態とは多少異っており、したがって、この析出物は、ウラン化合物のような他の物質ではないかと思われる。

74UC1-5A (Fig.18) [ 照射条件 : 1000°C, 2.3%FIMA,  $0.79 \times 10^{21} n/cm^2$  ]

外観では顕著な変化は見られなかつたが、断面組織の観察では、内部P<sub>y</sub>C層とS<sub>i</sub>C層の間に空隙が出き、74UC1-3Aと同じように、S<sub>i</sub>C内面が腐食されている様子を呈する被覆粒子が見られた。しかし、外観やX線ラジオグラフィ検査においては、破損した粒子は1粒も見られなかつた。

74FCP1-5B (Fig.19) [ 照射条件 : 1000°C, 2.3%FIMA,  $0.79 \times 10^{21} n/cm^2$  ]

プロピレンで蒸着された最外P<sub>y</sub>C層を有するこの被覆粒子の外観検査では、74FCP1-1Bと同じように、写真1, 2に示すように、表面の滑らかさを失った粒子表面凹凸が2~3粒見られた。また、断面組織では、観察したほとんど全ての被覆粒子の最外層にクラックが発生していた。外観で見られた表面凹凸はP<sub>y</sub>Cが部分的に収縮したものではないかと考えられるが、これを立証するデータはない。しかし、研磨による最外層P<sub>y</sub>Cのクラック発生が残留応力が大きいことを示唆していることから、このP<sub>y</sub>Cの収縮が他の粒子に比べて大きく、表面が凹凸になることも有り得ると思われる。断面組織やX線ラジオグラフィ観察では、この他の異状は見られなかつた。

73FC1-6A (Fig.20) [ 照射条件 : 1000°C, 2.1%FIMA,  $0.71 \times 10^{21} n/cm^2$  ]

外観では、特に異状は認められず、また、断面組織でもバッファー層の収縮による亀裂発生以外には、特に異状は見られなかつた。写真4に示した断面組織で観察されたバッファー層の亀裂は、写真5に示したX線ラジオグラフィでも認められ、この亀裂が照射によって発生していることが示されているが、この亀裂は被覆粒子の健全性に直接影響は及ぼさないものと考えられる。

73FC3-6B (Fig.21) [ 照射条件 : 1000°C, 2.1%FIMA,  $0.71 \times 10^{21} n/cm^2$  ]

この被覆粒子の燃料核密度は90.45%TDであり、他の標準粒子のそれ(95%TD)に比べると若干、低密度になっているが、断面組織観察では、顕著な燃料核の変化は見られず、他の被覆粒子の燃料核とほとんど同じ挙動を示した。被覆層については、外観、断面組織、X線ラジオグラフィのいずれの検査においても破損は認められなかつた。

## 5.2 酸浸出試験

照射済被覆粒子の酸浸出には、Fig. 9に示すように、断面組織観察や破壊強度測定のために使用する被覆粒子および酸浸出率を算出する時の粒子内のFP存在量(分母)を測定するための被覆粒子を除いた全てが供された。酸浸出用の被覆粒子を6 mol/l 硝酸中で1時間煮沸した後、被覆粒子と浸出液を分離し、浸出液の全 $\gamma$ 線強度を測定した。この浸出液の放射能が検出感度以上の場合には、別に分けていた約10粒の全 $\gamma$ 線量を測定し、これを浸出被覆粒子量と等価な $\gamma$ 線量に換算し、先に測定した浸出後の $\gamma$ 線量との比から浸出率(破損判定値、R値)を求めた。その結果を、Table 4に示す。この表に示すように、中段、下段の内部キャップセルにあった一部の被覆粒子の酸浸出率は検出感度以上であったが、74UC1-3Aは他に比べて約1ケタほど高い値を示した。74UC1-3Aについては、別にウラン浸出率の測定を行った。つまり、上述した浸出液の一部と再照射し、この中の $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$ 平衡の $^{140}\text{La}$ 量を測定することにより、浸出液中のウラン量を求めた。一方、浸出率を算出する際の分母になる被覆粒子中のウランは製造値を採用した。この詳細については、文献<sup>(1)</sup>に示している。このウラン浸出率は $1.5 \times 10^{-3}$ であり、前述の方法で行った浸出率に比べて約10倍高い値を示した。このような大きな違いは恐らく前述の浸出液の全 $\gamma$ 線量測定が鉛セルの中で行われたため、測定の誤差が大きかったことによるものと思われる。そのため、74F-1Aキャップセル以降に実施した被覆粒子の酸浸出はウラン浸出法またはこれに類似した方法で行うこととした。Table 3に示した外観およびX線ラジオグラフィ検査による74UC1-3Aの破損率と比較してみると、前者の値は $6.6 \times 10^{-3}$ とウラン浸出率とオーダ的には一致していた。一方、X線ラジオグラフィによる破損率は0であり、大きく異っている。このくい違いについては、次のように考えられる。Fig. 9に示した試験の流れに見られるように、X線ラジオグラフィ検査は酸浸出試験前に行っていたり、被覆層が貫通して破損していてもX線ラジオグラフィでは、例えば照射温度が低かったなどの特殊な条件のために、被覆粒子内部では破損の形態が見られず、健全な粒子と見まちがえている可能性がある。ウラン浸出率と比較してみると、外観でみた破損粒子の大部分は、貫通した被覆破損であると考えられる。

以後のキャップセルの照射後試験では、上述したような疑いを避けるため、被覆粒子のX線ラジオグラフィは酸浸出後に行うこととした。

## 5.3 被覆粒子の破壊強度測定

ホットセル内に設置されている破壊強度測定装置<sup>(18)</sup>を用いて、照射済および未照射被覆粒子の破壊強度を測定した。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。強度測定を行なった被覆粒子試料は、照射済(3A)および未照射の74UC1粒子、ならびに、照射済(3B)および未照射の74FCP1粒子である。試料数は、それぞれ20粒子であった。

破壊強度測定結果のワイブル分布を、74UC1粒子についてはFig. 22に、74FCP1粒子についてはFig. 23に、それぞれ示す。74UC1粒子の場合、照射済および未照射粒子の50%破壊確率強

度は、それぞれ、1.98kg および 2.96kg であった。74FCP1粒子の場合、同様に、1.96kg および 2.98kg であった。2種類の照射済および未照射粒子とともに、50%破壊確率強度は、それほど等しかった。これらからわかるように、照射によって、被覆粒子の破壊強度は減少し、破壊強度のはらつきは増大した。この傾向は、他のキャップセルの照射後試験での結果<sup>(6)</sup>と同様である。ここで用いた2種類の照射済粒子（3A および 3B）の50%破壊確率強度がほぼ等しかったのは、Table 2 に示したように、両方の粒子の照射履歴がほぼ同一であるためと考えられる。

ここでの限られたデータだけからは詳しい考察を行なえないが、被覆粒子の破壊強度の減少は、高速中性子照射による  $P_yC$  の収縮のために、被覆層間が剥離することが関与していると考えられる。なお、詳細については、他の文献を参照されたい。<sup>(19)</sup>

## 6. 考 察

74F-1Aキャップセルは従来のキャップセル照射に比べて照射時間は比較的長かったが、Table 2 にみられるように照射温度が最高で 1140°C とかなり低いものであった。燃焼率及び高速中性子照射量はそれぞれ最高  $0.96 \times 10^{21} n/cm^2$ 、2.5%FIMA であり、現在進められている多目的高温ガス実験炉における最高燃焼条件を満たしてはいる。このような照射条件下での被覆粒子の健全性については、Table 3 に示すように、48年度試作被覆粒子（73FC1, 73FC3, 73FC4）は、73FC4-4A の表面に亀裂の発生が見られた以外は、ほとんど異状は認められず、まず健全であったと言えよう。48年度試作被覆粒子は 73F-12A キャップセルにおいても照射が行われたが、この時は照射温度が最高 1800°C 以上と高かったため、外観破損率及び X 線ラジオグラフィによる破損率とともに  $10^{-2}$  以上の大きな値を示した。また、73FC1については 74F-9J スイープガスキャップセルでも照射されたが、<sup>(13)</sup> 最高 1100°C の照射に対して外観および X 線ラジオグラフィによる破損率は 0 であった。以上の事から、48年度試作被覆粒子は、少くとも 1140°C までの実験炉の燃焼条件下では、健全性を保つものと思われる。一方、49年度試作被覆粒子については、74F-1A キャップセルでは 74FC1 および英国製である 74UC1 が照射された。74FC P1 は最外  $P_yC$  層をプロピレンで蒸着した被覆粒子で、73FC4 に続く第 2 回目の試作である。しかし、74FCP1 は断面組織に見られたように、最外  $P_yC$  層に多数の研磨クラックが発生しており、引張応力の残留にともなう被覆層の不安定さが目立った。74UC1 についても、74UC 1-3A の外観で見られたように、被覆破損が大きく、研磨クラックも発生していた。このような被覆層の不安定さの原因を調べるために、上記 2 未照射試料粒子の最外  $P_yC$  層について透過電子顕微鏡（TEM）による観察を行った。その結果を Fig. 24 に示す。 $P_yC$  の微細構造については、Pollmann 等<sup>(20)</sup> が調べているが、その主なものは、モザイク構造、ファイバー構造および層構造に分けられる。モザイク構造は微細構造がモザイク状に現われるもので、~1500°C 以下の温度で蒸着した高密度等方性  $P_yC$  (LTI- $P_yC$ ) に特有な構造である。また、ファイバー構造はリボンあるいはファイバー状の炭素纖維からなり、纖維間には多くの空孔が含まれているため、低密度の  $P_yC$  に特有なものである。一方、層構造は、~1500°C 以上の温度で蒸着した HTI

度は、それぞれ、1.98kg および 2.96kg であった。74FCP1粒子の場合、同様に、1.96kg および 2.98kg であった。2種類の照射済および未照射粒子とともに、50%破壊確率強度は、それほど等しかった。これらからわかるように、照射によって、被覆粒子の破壊強度は減少し、破壊強度のはらつきは増大した。この傾向は、他のキャップセルの照射後試験での結果<sup>(6)</sup>と同様である。ここで用いた2種類の照射済粒子（3A および 3B）の50%破壊確率強度がほぼ等しかったのは、Table 2 に示したように、両方の粒子の照射履歴がほぼ同一であるためと考えられる。

ここでの限られたデータだけからは詳しい考察を行なえないが、被覆粒子の破壊強度の減少は、高速中性子照射による  $P_yC$  の収縮のために、被覆層間が剥離することが関与していると考えられる。なお、詳細については、他の文献を参照されたい。<sup>(19)</sup>

## 6. 考 察

74F-1A キャップセルは従来のキャップセル照射に比べて照射時間は比較的長かったが、Table 2 にみられるように照射温度が最高で 1140°C とかなり低いものであった。燃焼率及び高速中性子照射量はそれぞれ最高  $0.96 \times 10^{21} n/cm^2$ 、2.5%FIMA であり、現在進められている多目的高温ガス実験炉における最高燃焼条件を満たしてはいる。このような照射条件下での被覆粒子の健全性については、Table 3 に示すように、48年度試作被覆粒子（73FC1, 73FC3, 73FC4）は、73FC4-4A の表面に亀裂の発生が見られた以外は、ほとんど異状は認められず、まず健全であったと言えよう。48年度試作被覆粒子は 73F-12A キャップセルにおいても照射が行われたが<sup>(5)</sup>、この時は照射温度が最高 1800°C 以上と高かったため、外観破損率及び X 線ラジオグラフィによる破損率とともに  $10^{-2}$  以上の大きな値を示した。また、73FC1 については 74F-9J スイープガスキャップセルでも照射されたが<sup>(13)</sup>、最高 1100°C の照射に対して外観および X 線ラジオグラフィによる破損率は 0 であった。以上の事から、48年度試作被覆粒子は、少くとも 1140°C までの実験炉の燃焼条件下では、健全性を保つものと思われる。一方、49年度試作被覆粒子については、74F-1A キャップセルでは 74FC1 および英国製である 74UC1 が照射された。74FC P1 は最外  $P_yC$  層をプロピレンで蒸着した被覆粒子で、73FC4 に続く第2回目の試作である。しかし、74FCP1 は断面組織に見られたように、最外  $P_yC$  層に多数の研磨クラックが発生しており、引張応力の残留にともなう被覆層の不安定さが目立った。74UC1 についても、74UC 1-3A の外観で見られたように、被覆破損が大きく、研磨クラックも発生していた。このような被覆層の不安定さの原因を調べるために、上記 2 未照射試料粒子の最外  $P_yC$  層について透過電子顕微鏡（TEM）による観察を行った。その結果を Fig. 24 に示す。 $P_yC$  の微細構造については、Pollmann 等<sup>(20)</sup> が調べているが、その主なものは、モザイク構造、ファイバー構造および層構造に分けられる。モザイク構造は微細構造がモザイク状に現われるもので、~1500°C 以下の温度で蒸着した高密度等方性  $P_yC$  (LTI- $P_yC$ ) に特有な構造である。また、ファイバー構造はリボンあるいはファイバー状の炭素纖維からなり、纖維間には多くの空孔が含まれているため、低密度の  $P_yC$  に特有なものである。一方、層構造は、~1500°C 以上の温度で蒸着した HTI

$-P_yC$  に特有な微細構造であり、(002)結晶面が蒸着の際の球形生長殻 (Growth feature) の表面に平行に発達する。Fig. 24に示した微細構造はモザイク構造を呈しているが<sup>(15,20)</sup>、74UC1の場合、通常のモザイクが  $1\text{ }\mu\text{m}$  程度であるのに対し、これは  $5\text{ }\mu\text{m}$  以上もの大きなモザイクから成っており、その中に微細結晶 ( $L_c \approx 30\text{ \AA}$ ) と思われる斑点が見られる。一方、74FCP1の  $P_yC$  は  $1\text{ }\mu\text{m}$  程度の大きさのモザイクから成っているが、ファイバー状の構造が若干認められる。照射後の  $P_yC$  微細構造の観察はここでは行っていないが、Pollmann 等<sup>(20)</sup>の観察では照射による最も大きな微細構造変化はファイバー構造が消滅し、層状の結晶構造に変化することであり、この際にかなりの高密度化 (densification) とともに収縮が起きる。また、モザイク構造の  $P_yC$  では、結晶化とともにモザイク内部にクラックが発生する。これらの事実を考慮すると、74FCP1の最外  $P_yC$  層は、ファイバー構造の混入により、内部での大きな収縮が起り、他の試料粒子の最外  $P_yC$  層より大きな引張応力が残留した為と考えられる。ファイバー構造混入の原因是、蒸着の際に温度が予想以上に低かったか、あるいは  $C_3H_6$  ガス濃度が不足していたものと考えられる。一方、74UC1の  $P_yC$  については、Fig. 24に示したように大きなモザイク構造を示しているが、モザイクが大きいため、モザイク内部の結晶化にともなって発生する応力の緩和が他の小さなモザイクに比べて、より困難となり、モザイク内部での亀裂発生が大きくなつたものと考えられる。このような亀裂発生は 74UC1 の最外  $P_yC$  層の強度を低下させ、この層におけるクラック発生の大きな原因になったものとみられる。

国産被覆粒子と輸入被覆粒子 (74UC1)に対する性能比較評価の一環として、最大外観破損率と高速中性子照射量との関係を調べ、それを Fig. 25 に示す。このデータは 74F-1A キャップセルとともに、前回報告した 73F-13A キャップセル照射<sup>(6)</sup>による被覆粒子に基づくものである。この図では、最大外観破損率のみを示しているので、破損率が 0 の場合は図示していないが、両者の比較でも明確なように、英國製である 74UC1 の外観は国産粒子に比べて 10 倍以上の破損を示し、また照射量が多くなるに従って、その差は開く傾向が見られる。この結果から、74UC1 は国産粒子に比べて照射安定性において劣っていると言える。同じ結論は、73F-13A キャップセルで照射した超高温 (最高  $1810^\circ\text{C}$ ) での試験でも得られた。

プロパンとプロピレン蒸着  $P_yC$  の差については、先に記した 74UC1 や 74FCP1 の最外  $P_yC$  層のように照射中の破損や、研磨によるクラックの発生が見られたが、これはプロピレン蒸着ガスを使ったためであるとは考えられない。74F-1A キャップセル以降の被覆粒子最外層は全てプロピレンから蒸着しているが、照射において、このような大きな破損の発生は見られない。Pollmann 等<sup>(21)</sup>によると、蒸着ガスが異っても、生成  $P_yC$  は特に異った微細構造を有しないと報告しているし、また同じ微細構造であれば、蒸着ガスが異った  $P_yC$  でも照射下の挙動は同じであるとの報告<sup>(21)</sup>も見られる。このような事実を考慮すると、特にプロピレンから得られる  $P_yC$  (73FC4, 74FCP1, 74UC1 の最外  $P_yC$  層) は外観破損率は高かったけれど、これが本質的にプロパンから得られたものに比べて劣っているとは結論づけられない。

## 7. 結論

74F-1A キャプセルによる予備設計被覆粒子（48年度及び49年度試作粒子）の照射では、燃焼率および高速中性子照射量とも現在、進められている実験炉での最高照射条件を上回ったが、燃料温度は 1140°C と所期の温度（最高 1600°C）よりかなり低いものであった。この照射試験では、以下の結論が得られた。

- (1) 48年度試作予備設計仕様被覆粒子は、1140°C までは実験炉の燃焼条件下で健全性を保つものと考えられる。
- (2) 49年度に試作したプロピレン蒸着最外  $P_yC$  を有する被覆粒子では、照射によって発生した残留引張応力のため、最外  $P_yC$  層が強度的に不安定さを示した。しかし、この不安定さは、プロピレン蒸着が原因ではなく、蒸着プロセスにおいて、予想されなかった事態（たとえば、蒸着温度が低かったか、 $C_3H_6$  ガス濃度が不足していた、など）が生じたためと思われる。
- (3) 49年度に予備設計仕様に基づいて英国で調製された被覆粒子は、48～49年度に製造された国産の被覆粒子に比べて、照射健全性においてかなり劣っていた。
- (4) 低密度  $UO_2$  核と標準密度  $UO_2$  核の照射挙動比較ではこの照射試験においては、その差はほとんど認められなかった。
- (5) 49年度試作被覆粒子の破壊強度はこの照射により約67%程度の低下を示した。

## 謝辞

本キャプセルの照射試験を実施するにあたって、多くの方々の御協力を賜った事に対し、特に次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、二課、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、厖大なデータを出された東海研ホットラボ管理室、キャプセル設計で努力された大洗研照射一課の諸氏、また、 $P_yC$  の透過電子顕微鏡観察で協力を賜った材料物性研究室の深井勝磨氏には深く感謝します。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、"JRR-2 水ループ照射装置 (EFTL-2 及び HWL-1) による  $UC_2$  核被覆粒子の照射試験", JAERI-M 5876(1974).

## 7. 結論

74F-1A キャプセルによる予備設計被覆粒子（48年度及び49年度試作粒子）の照射では、燃焼率および高速中性子照射量とも現在、進められている実験炉での最高照射条件を上回ったが、燃料温度は 1140°C と所期の温度（最高 1600°C）よりかなり低いものであった。この照射試験では、以下の結論が得られた。

- (1) 48年度試作予備設計仕様被覆粒子は、1140°C までは実験炉の燃焼条件下で健全性を保つものと考えられる。
- (2) 49年度に試作したプロピレン蒸着最外  $P_yC$  を有する被覆粒子では、照射によって発生した残留引張応力のため、最外  $P_yC$  層が強度的に不安定さを示した。しかし、この不安定さは、プロピレン蒸着が原因ではなく、蒸着プロセスにおいて、予想されなかった事態（たとえば、蒸着温度が低かったか、 $C_3H_6$  ガス濃度が不足していた、など）が生じたためと思われる。
- (3) 49年度に予備設計仕様に基づいて英国で調製された被覆粒子は、48～49年度に製造された国産の被覆粒子に比べて、照射健全性においてかなり劣っていた。
- (4) 低密度  $UO_2$  核と標準密度  $UO_2$  核の照射挙動比較ではこの照射試験においては、その差はほとんど認められなかった。
- (5) 49年度試作被覆粒子の破壊強度はこの照射により約67%程度の低下を示した。

## 謝辞

本キャプセルの照射試験を実施するにあたって、多くの方々の御協力を賜った事に対し、特に次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、二課、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、厖大なデータを出された東海研ホットラボ管理室、キャプセル設計で努力された大洗研照射一課の諸氏、また、 $P_yC$  の透過電子顕微鏡観察で協力を賜った材料物性研究室の深井勝磨氏には深く感謝します。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、"JRR-2 水ループ照射装置 (EFTL-2 及び HWL-1) による  $UC_2$  核被覆粒子の照射試験", JAERI-M 5876(1974).

## 7. 結論

74F-1A キャプセルによる予備設計被覆粒子（48年度及び49年度試作粒子）の照射では、燃焼率および高速中性子照射量とも現在、進められている実験炉での最高照射条件を上回ったが、燃料温度は 1140°C と所期の温度（最高 1600°C）よりかなり低いものであった。この照射試験では、以下の結論が得られた。

- (1) 48年度試作予備設計仕様被覆粒子は、1140°C までは実験炉の燃焼条件下で健全性を保つものと考えられる。
- (2) 49年度に試作したプロピレン蒸着最外  $P_yC$  を有する被覆粒子では、照射によって発生した残留引張応力のため、最外  $P_yC$  層が強度的に不安定さを示した。しかし、この不安定さは、プロピレン蒸着が原因ではなく、蒸着プロセスにおいて、予想されなかった事態（たとえば、蒸着温度が低かったか、 $C_3H_6$  ガス濃度が不足していた、など）が生じたためと思われる。
- (3) 49年度に予備設計仕様に基づいて英国で調製された被覆粒子は、48～49年度に製造された国産の被覆粒子に比べて、照射健全性においてかなり劣っていた。
- (4) 低密度  $UO_2$  核と標準密度  $UO_2$  核の照射挙動比較ではこの照射試験においては、その差はほとんど認められなかった。
- (5) 49年度試作被覆粒子の破壊強度はこの照射により約67%程度の低下を示した。

## 謝 辞

本キャプセルの照射試験を実施するにあたって、多くの方々の御協力を賜った事に対し、特に次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、二課、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、厖大なデータを出された東海研ホットラボ管理室、キャプセル設計で努力された大洗研照射一課の諸氏、また、 $P_yC$  の透過電子顕微鏡観察で協力を賜った材料物性研究室の深井勝磨氏には深く感謝します。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、"JRR-2 水ループ照射装置 (EFTL-2 及び HWL-1) による  $UC_2$  核被覆粒子の照射試験", JAERI-M 5876(1974).

- (2) 岩本多實, 他, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(I), (70F-4Aキャップセルによる JMTR 照射)”, JAERI-M 6480(1976).
- (3) 岩本多實, 他, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(II), (71F-7Aキャップセルによる JMTR 照射)”, JAERI-M 6717(1976).
- (4) 福田幸朔, 他, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(III), (72F-6A 及び 72F-7Aキャップセルによる JMTR 照射)”, JAERI-M 8949(1980).
- (5) 福田幸朔, 他, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(IV), (73F-12A キャップセルによる JMTR 照射)”, JAERI-M 9644(1981).
- (6) 福田幸朔, 他, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(V), (73F-13A キャップセルによる JMTR 照射)”, JAERI-M 83-232(1984).
- (7) 福田幸朔, 他, “JMTR 照射済多目的高温ガス炉燃料の輸送”(未公開報告書)
- (8) T.G.Godfrey, et al., “Coated Particale Fuels,” ORNL-4324(1968).
- (9) P.L.Allen, “Manufacture of enriched UO<sub>2</sub> coated particle fuels for JAERI”, (unpublished report)(1976).
- (10) E.Pollmann, et al., “Transmission Electron Microscopy of Pyrocarbon Coatings,” Nucl. Technol., 35, 301(1977).
- (11) L.H.Ford, et al., “Fludized-bed Pyrolytic Silicon Carbide,” Special Ceramics 5, 1 (1970).
- (12) 計画課, “74F-1A, 75F-4Aキャップセル中心の中性子照射量”, (1984)(未公開資料)
- (13) 福田幸朔, 他, “被覆粒子燃料のスイープガスキャップセル照射試験(I), (74F-9Jキャップセルによる照射)”, JAERI-M 84-054(1984).
- (14) K.H.Valentine, “Irradiated Microsphere Gamma Analyzer System,” HTGR Base-Technology Program, p 446-450, ORNL-5108(1975).
- (15) J.L.Kaae, “Irradiation-Induced Microstructural Changes in Isotropic Pyrolytic Carbons,” J.Nucl. Mater., 57, 82(1975).
- (16) K.Minato, et al., “Electron Probe Micro-analysis of Irradiated TRISO-coated UO<sub>2</sub> Particles (II)”, JAERI-M 84-002(1984).
- (17) K.Fukuda, et al., “Detection of Failed Coated Particles in HTGR Fuels by Acid Leaching,” J.Nucl. Sci. Technol., 18 887(1981).
- (18) 原子炉管理部, “研究炉・ホットラボの運転と技術管理(昭和48年度)”, JAERI-M 5845(1974).
- (19) K.Minato, et al., “Crushing Strength of Irradiated TRISO Coated Fuel Particle,” J.Nucl., Mater., 119 326(1983).
- (20) E.Pollmann, et al., “Transmission Electron Microscopy of Pyrocarbon Coatings,” Nucl. Technol., 35 301(1977).
- (21) J.I.Kaae, et al., “Dimensional Changes Induced in Poorly Crystalline Isotropic Carkons by Irradiation,” Carbon 10 561(1972).

Table 1 Characteristics of coated fuel particles irradiated in 74F-1A capsule.

内部キャラプセル		上段		中段		下段		全体	
黒鉛ホルダ一番号		1	A	B	A	B	A	B	B
被覆粒子名	74UC1	74FCP1	73FC3	73FC4	74UC1	74FCP1	73FC4	74UC1	74FCP1
組成	UO <sub>2</sub>								
O/U比	2.00	2.006	2.004	2.006	2.00	2.006	2.006	2.00	2.006
燃料核平均直径(μm)	8.035	9.953	8.127	8.127	8.035	7.953	8.127	8.035	7.953
燃料核密度(%TD)	96.0	96.6	90.45	95.3	96.0	96.6	95.3	96.0	96.6
第1層厚さ(μm)	40.7	39.6	36.7	36.1	40.7	39.6	36.1	42.6	39.6
PyC蒸着ガス密度(g/cm <sup>3</sup> )	1.09	1.10	1.04	1.10	1.09	1.10	1.10	1.11	1.10
第2層BAF結晶子径Lc(Å)	1.02*	1.04	1.04	1.05	1.02*	1.04	1.05	1.04	1.02*
PyC蒸着ガス厚さ(μm)	—	28.1	25.5	27.1	—	28.1	27.1	27.8	—
第3層SiC蒸着ガス密度(g/cm <sup>3</sup> )	3.195	3.199	3.195	3.196	3.195	3.199	3.196	3.195	3.199
第4層BAF結晶子径Lc(Å)	44.2	47.6	43.9	46.8	44.2	47.6	46.8	41.7	44.2
PyC蒸着ガス厚さ(μm)	1.83	1.82	1.834	1.839	1.83	1.82	1.839	1.84	1.834
被覆粒子装荷量(g)	2.1986	2.0642	2.0708	2.0743	2.1978	2.0642	2.0746	2.1123	2.0638
装荷ワラン量(g)	1.2466	1.2468	1.2466	1.2467	1.2466	1.2468	1.2465	1.2465	1.2462
装荷 <sup>235</sup> U量(g)	0.1002	0.0992	0.1013	0.1013	0.1001	0.0992	0.1013	0.0991	0.0991
被覆粒子lg中のウラン量(g)	0.567	0.6044	0.602	0.601	0.567	0.604	0.601	0.590	0.590

\* OAF値

\*\* MTS=メタルトリクロロシリラン(CH3SiCl3)

Table 2 Irradiation data of 74F-1A Capsule

内 部 キ ャ ブ セ ル		上 段				中 段				下 段			
黒 鉛 試 料 容 器 器 番 号	孔 名	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B
試 料 容 器 孔 名	74UC1 74FCP4 73FC3 73FC4 74UC1 74FCP1 73FC4 73FC1 74UC1 74FCP1 73FC1 74UC1 74FCP1 73FC3												
燃 燃 率 (%) FIMA)*	2.1			2.2		2.5		2.5		2.3		2.1	
高速中性子照射量 ( $n/cm^2$ , $E > 0.29fJ \times 10^{21}$ )	0.5 3			0.6 4		0.9 5		0.9 6		0.7 9		0.7 1	
熱中性子照射量 ( $n/cm^2$ , $E < 1.09 \times 10^{-4}fJ \times 10^{21}$ )	1.0 5			1.1 4		1.3 6		1.3 6		1.2 0		1.1 0	
# 36 サイクル	9 2 0			1 1 4 0				1 1 4 0				1 0 5 0	
# 37 サイクル	9 0 0			1 0 8 0				1 0 8 0				1 0 2 0	
# 38 サイクル	9 0 0			1 0 7 0				1 0 7 0				1 0 1 0	
# 39 サイクル	8 8 0			1 0 6 0				1 0 6 0				1 0 1 0	
# 40 サイクル	8 6 0			1 0 2 0				1 0 2 0				9 9 0	
照 射 温 度** (°C)													
# 36 サイクル													
# 37 サイクル													
# 38 サイクル													
# 39 サイクル													
# 40 サイクル													
全 照 射 時 間 (efpd)													

\* 热中性子照射量をもとに、74F-9J, 73F-13A キャブセル実測燃焼率から推定。

\*\* 50MW 真空引き運転時の T/C 指示平均温度

Table 3 外観およびX線ラジオグラフィ検査による被覆粒子破損率

	外観検査			X線ラジオグラフィ検査		
	検粒子数	破粒子数	平均破損率	検粒子数	破粒子数	平均粒子数
74UC1 -1A	1082	0	0	~3.41×10 <sup>-3</sup>	1092	0
74FCP1 -1B	1082	0	0	~3.41×10 <sup>-3</sup>	1108	2
73FC3 -2A	1123	0	0	~3.28×10 <sup>-3</sup>	1143	0
73FC4 -2B	1212	0	0	~3.04×10 <sup>-3</sup>	1222	0
74UC1 -3A	905	6	6.6×10 <sup>-3</sup>	2.44×10 <sup>-3</sup> ~ 1.44×10 <sup>-2</sup>	945	0
74FCP1 -3B	1098	1	9.1×10 <sup>-4</sup>	2.30×10 <sup>-5</sup> ~ 5.07×10 <sup>-3</sup>	1130	0
73FC4 -4A	1197	1	8.4×10 <sup>-4</sup>	2.11×10 <sup>-5</sup> ~ 4.65×10 <sup>-3</sup>	1207	0
73FC1 -4B	996	0	0	~3.70×10 <sup>-3</sup>	1006	0
74UC1 -5A	941	0	0	~3.92×10 <sup>-3</sup>	951	0
74FCP1 -5B	1110	0	0	~3.32×10 <sup>-3</sup>	1130	0
73FC1 -6A	1204	0	0	~3.06×10 <sup>-3</sup>	1214	0
73FC3 -6B	1197	0	0	~3.08×10 <sup>-3</sup>	1207	0

Table 4 74F-1A キャップセルで照射した試料の酸浸出試験結果

内半 部ガ セル	試料位置	試料記号	浸出液線量率 <sup>(a)</sup> (mR/h)	全粒子線量率 <sup>(b)</sup> (mR/h)	破損判定値 <sup>*1</sup> R 値	破損率 <sup>*2</sup>
上 段	1	A	74 UC 1	検出感度以下	57550	—
		B	74 FCP 1	"	479090	—
	2	A	73 FC 3	"	340560	—
		B	73 FC 4	"	436410	—
中 段	3	A	74 UC 1	55	291950	$1.88 \times 10^{-4}$
		B	74 FCP 1	検出感度以下	308500	—
	4	A	73 FC 4	8	549110	$1.46 \times 10^{-5}$
		B	73 FC 1	18	556520	$3.23 \times 10^{-5}$
下 段	5	A	74 UC 1	検出感度以下	473240	—
		B	74 FCP 1	"	419140	—
	6	A	73 FC 1	6	321680	$1.87 \times 10^{-5}$
		B	73 FC 3	24	332310	$7.22 \times 10^{-5}$

\* 1. R 値 (破損判定値) =  $\frac{a}{b}$  ( $1 \times 10^{-4}$  以上を破損と判定する)

\* 2. 破損率 =  $\frac{\text{浸出液中の U 量}}{\text{酸浸出試験を行った粒子の全 U 量}}$

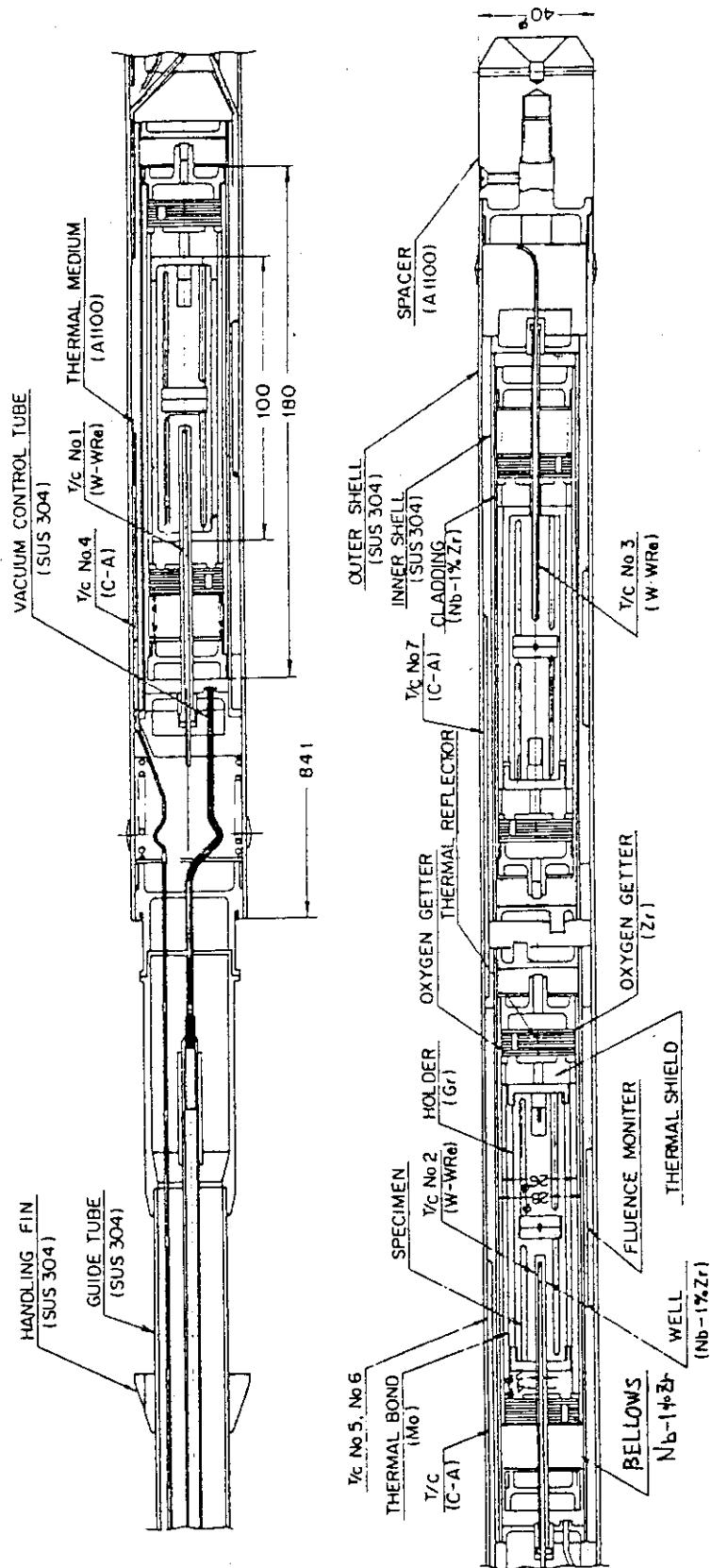
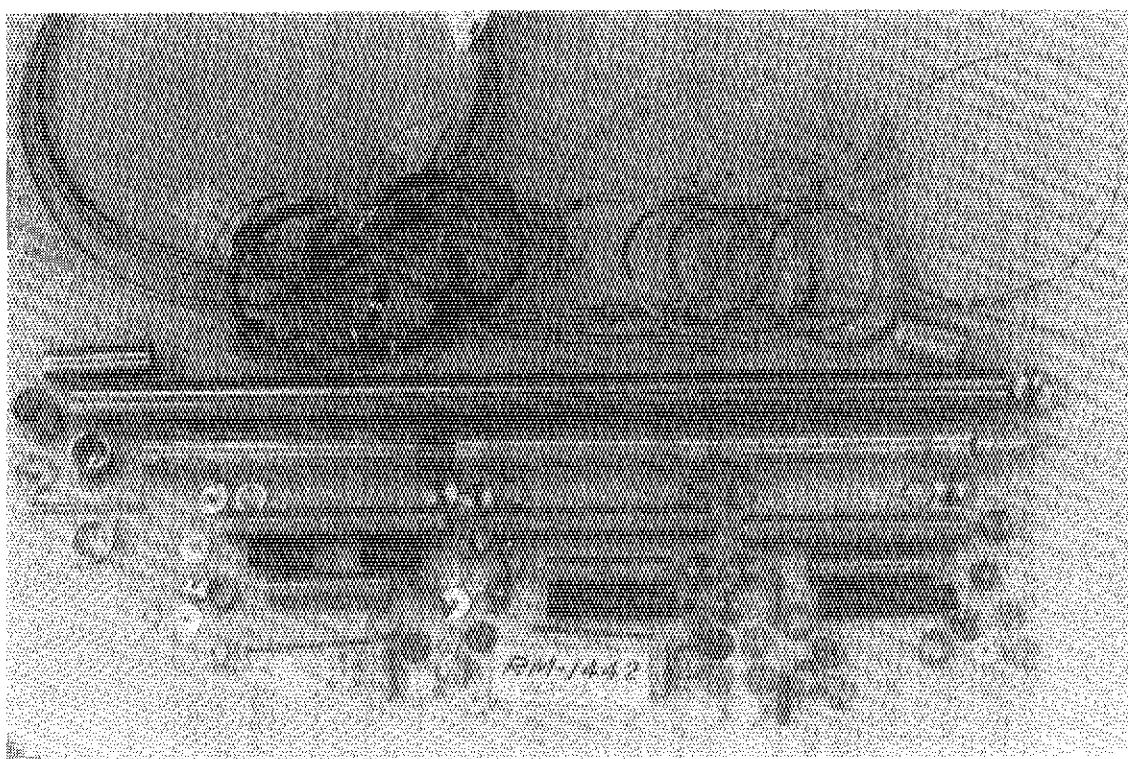
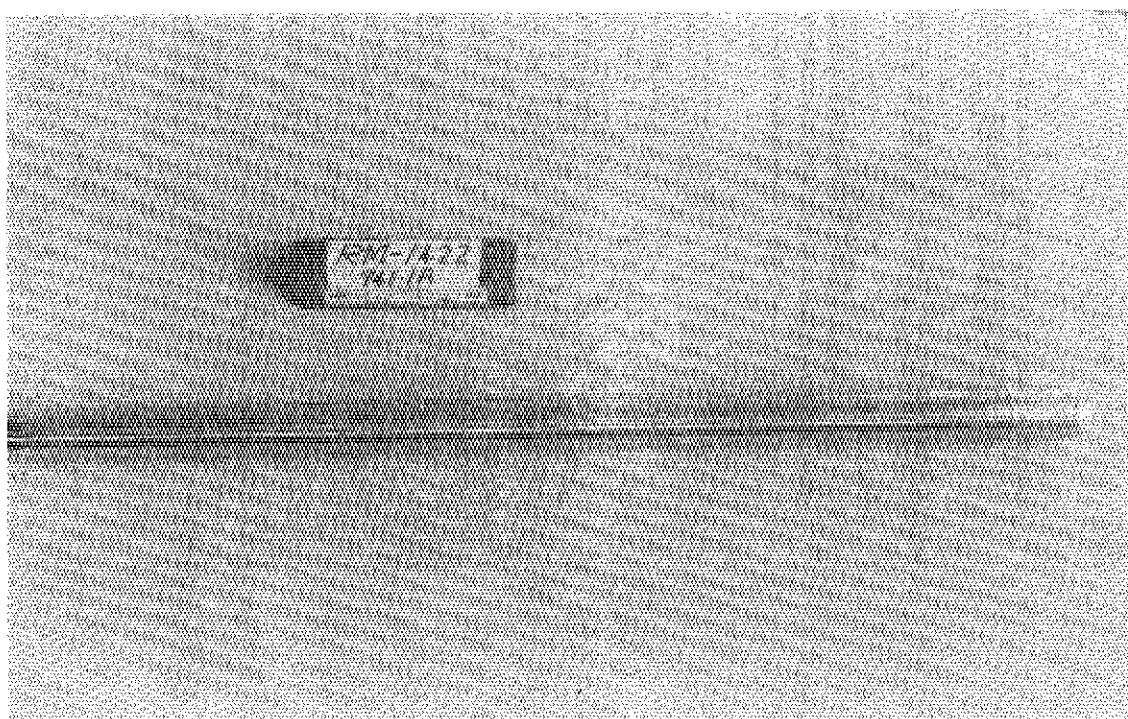


Fig. 1 Structure of 74F-1A capsule.



Before assembly



After assembly

Fig. 2 Appearance of 74F-1A capsule

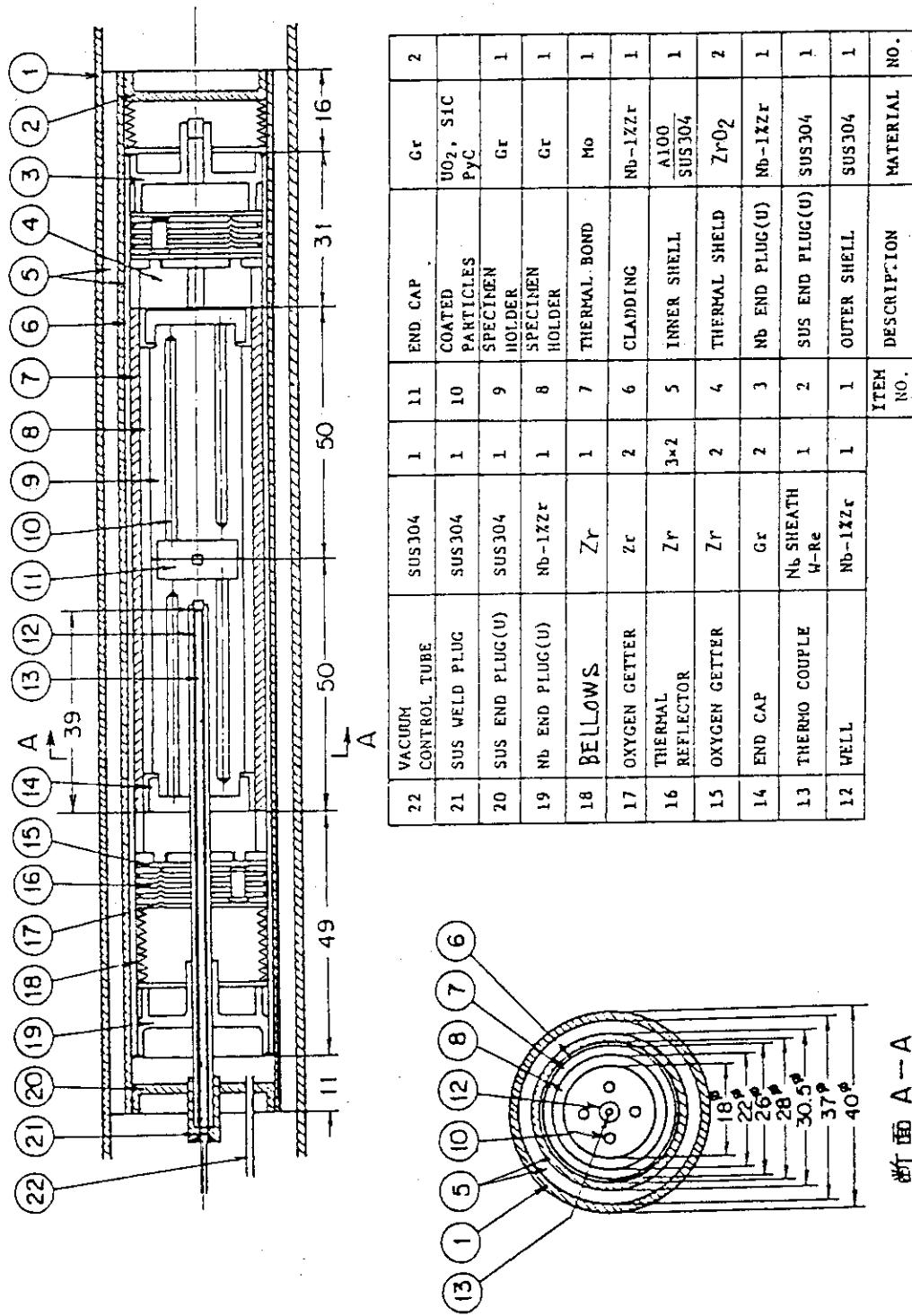


Fig. 3 Inner capsule of 74F-1A capsule.

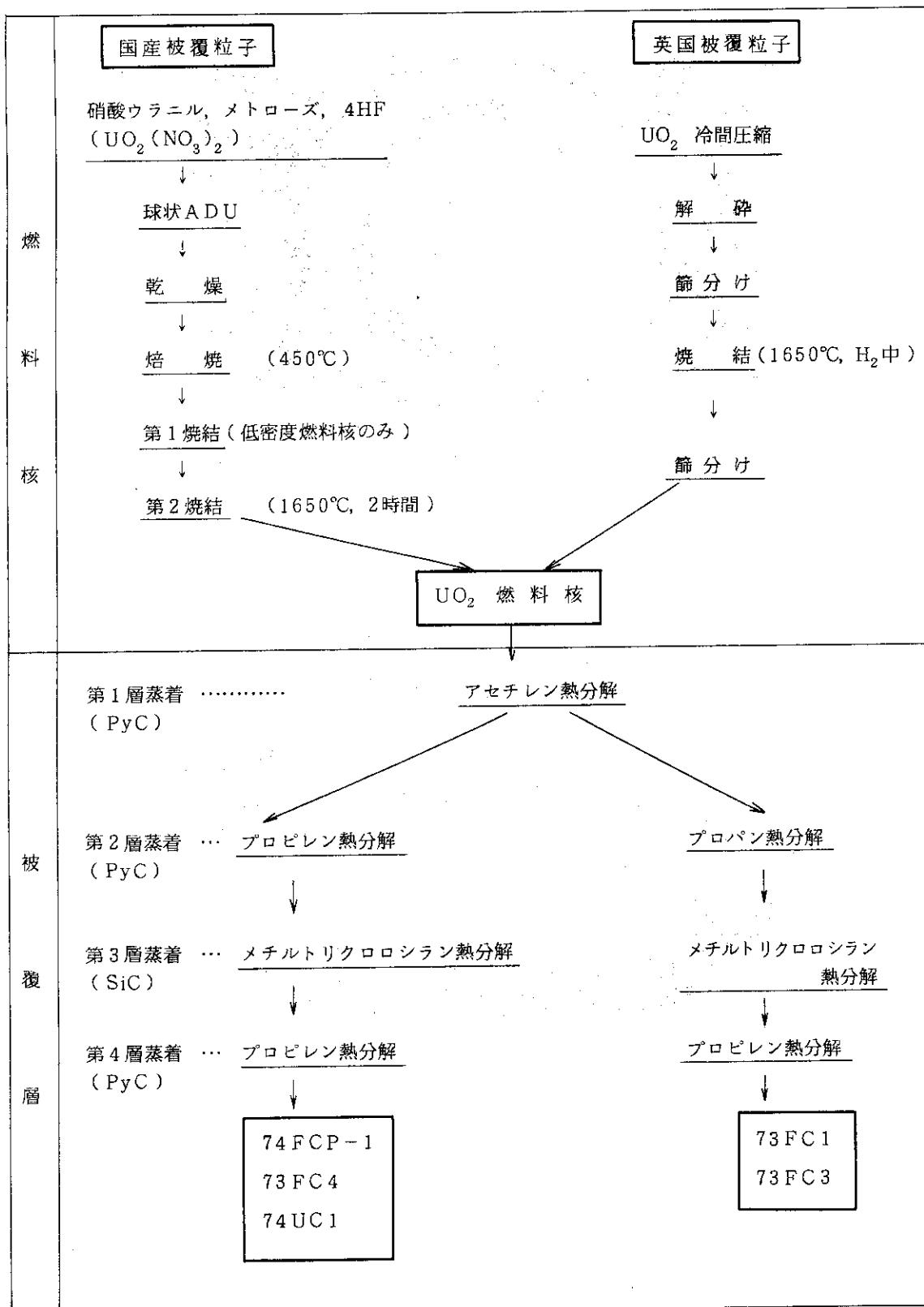


Fig. 4 Preparation of coated particles

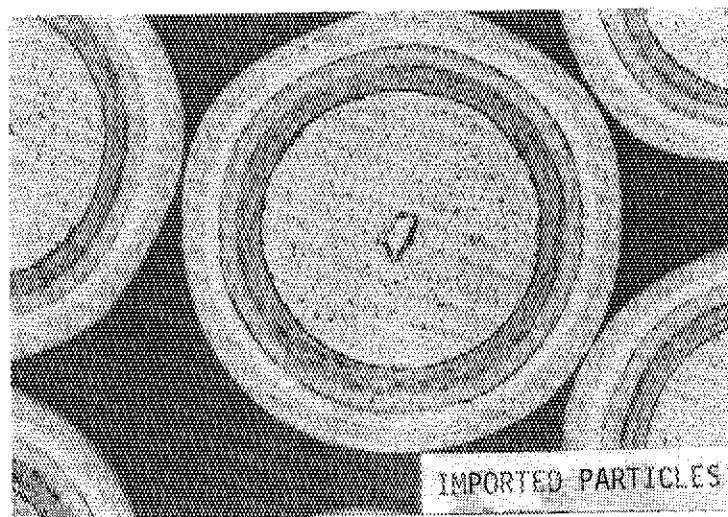
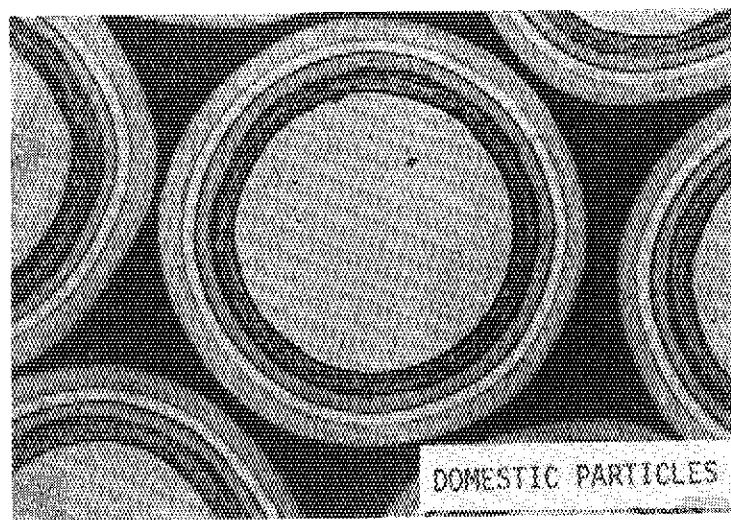


Fig. 5 Ceramographs of unirradiated domestic particles  
and imported ones.

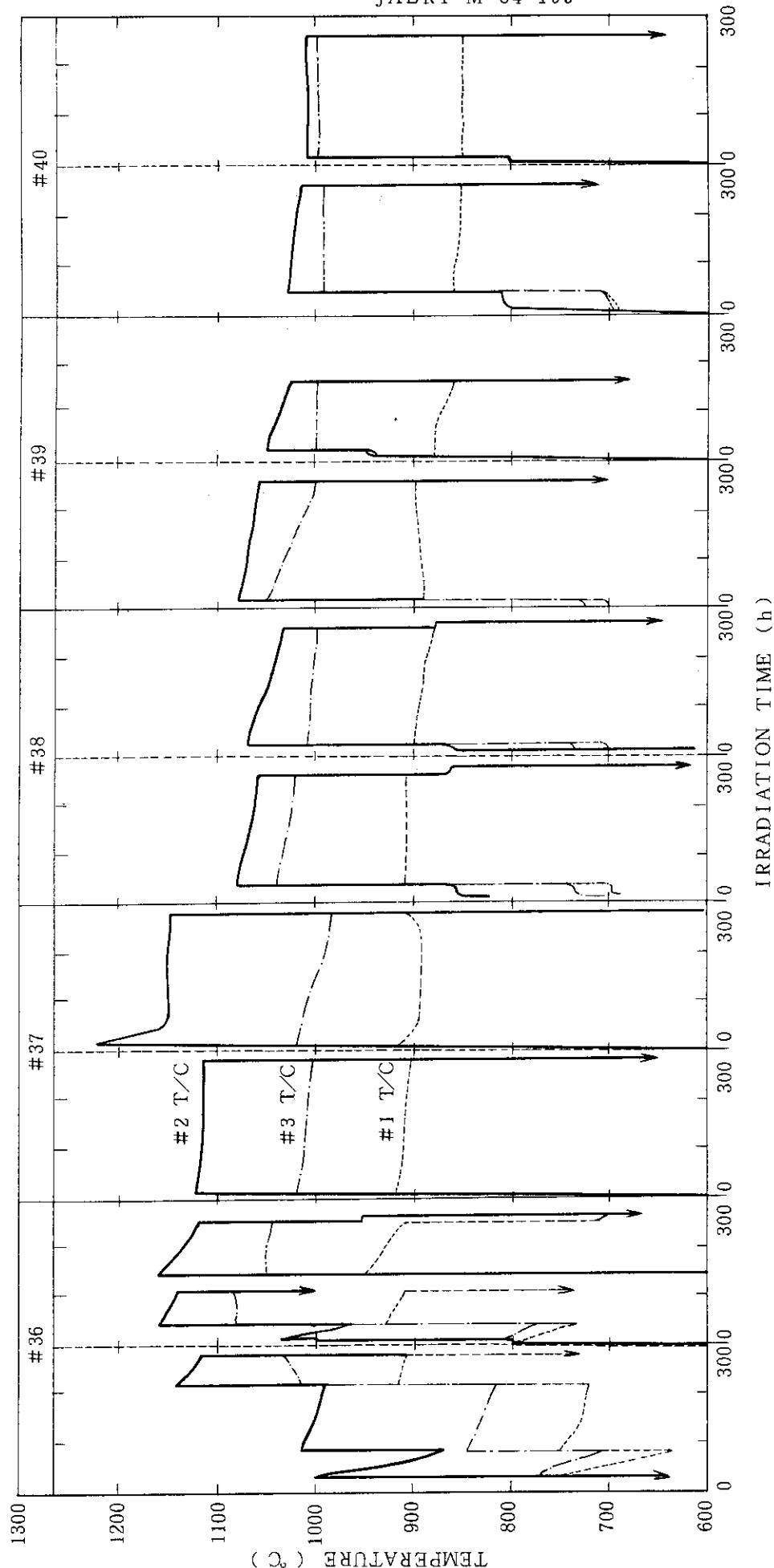


Fig. 6 Fuel temperature of 74F-1A capsule

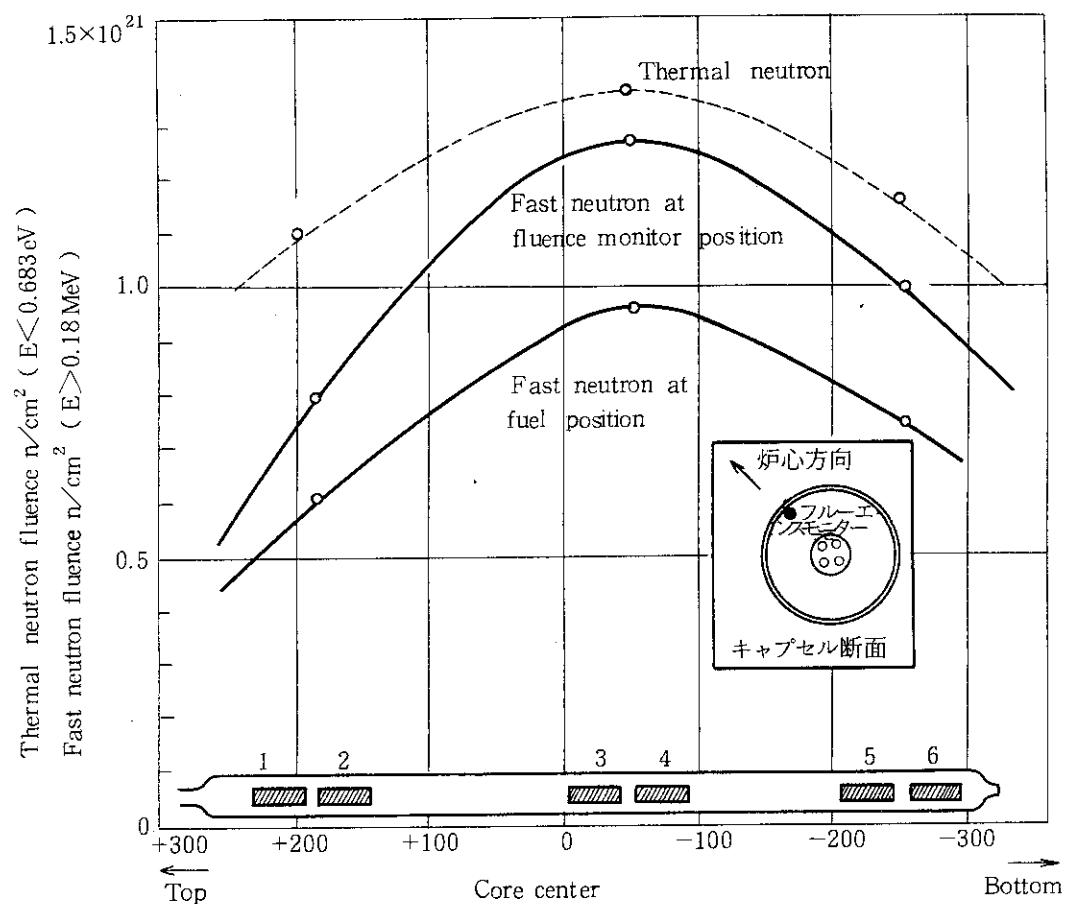


Fig. 7 Profile of neutron fluences in an axial direction of the capsule

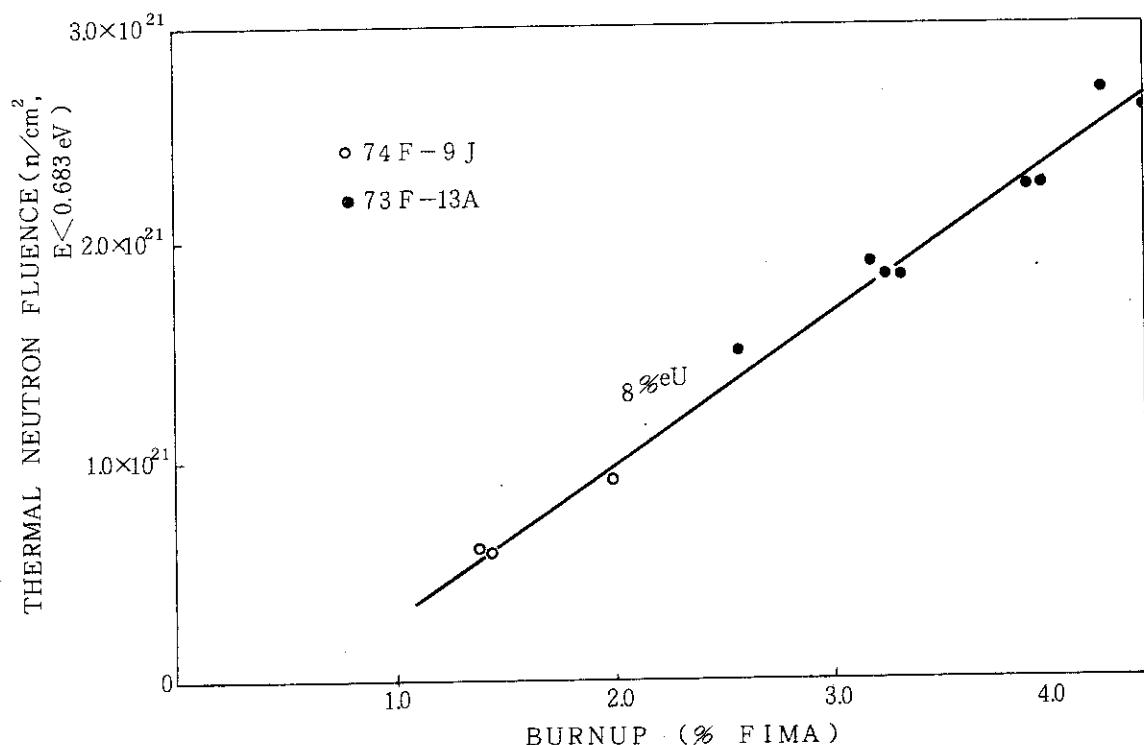


Fig. 8 Relation between thermal neutron fluence and burnup

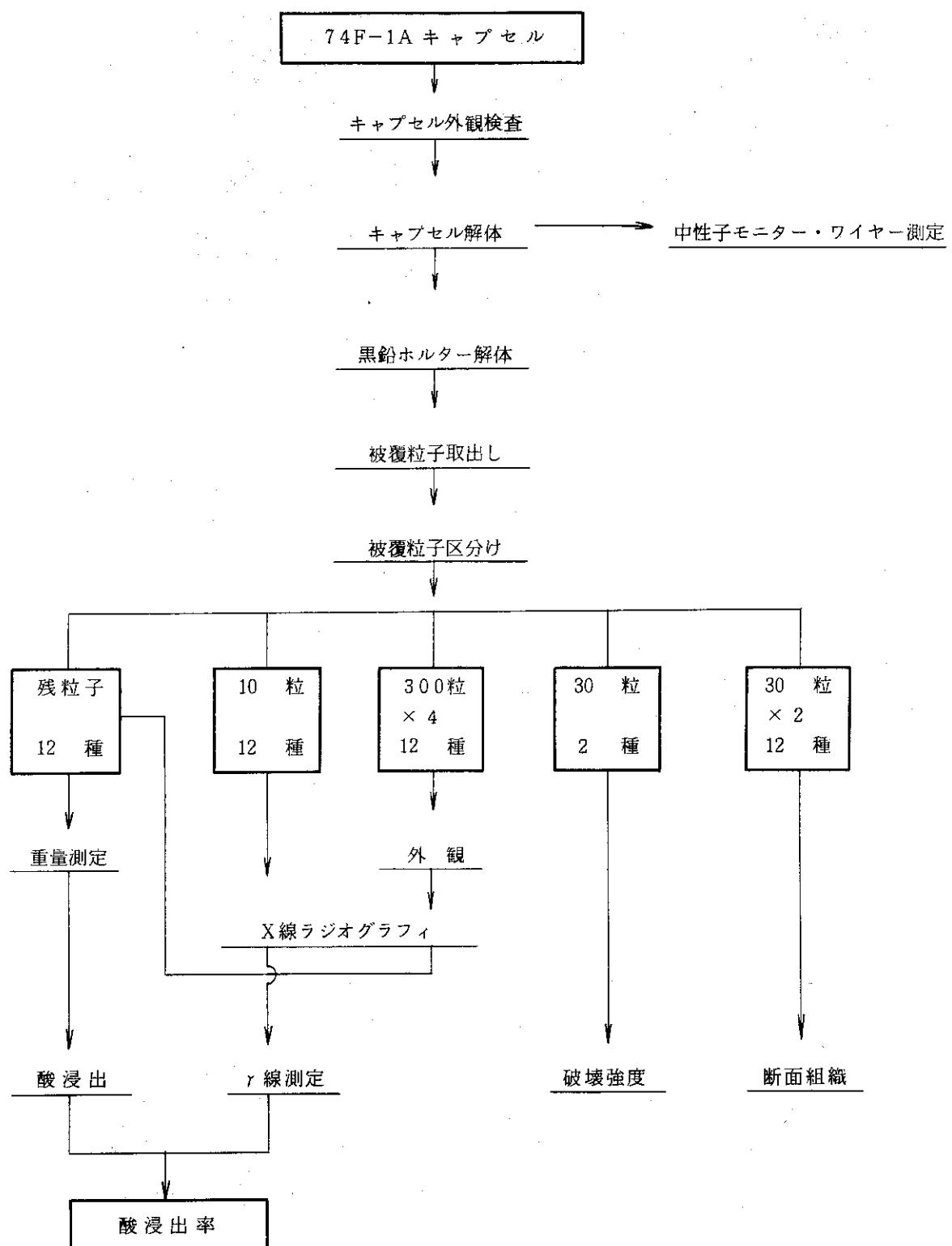
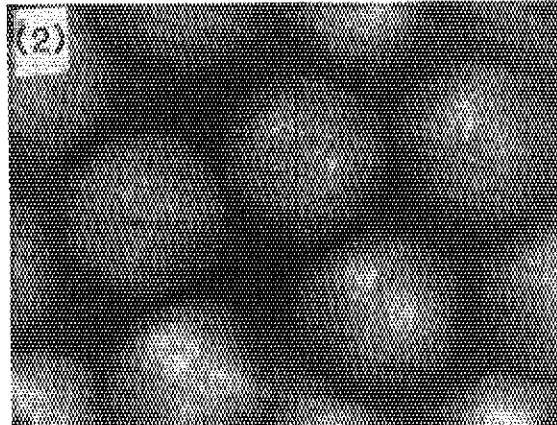
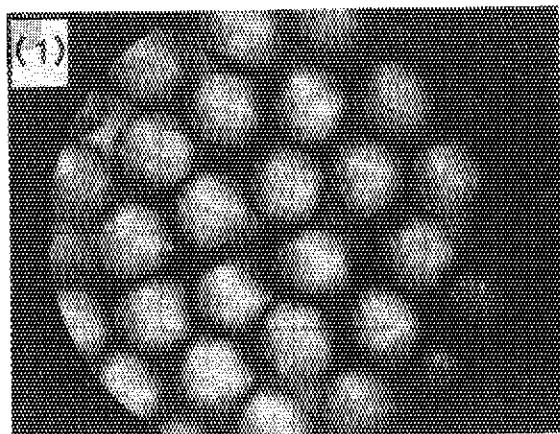
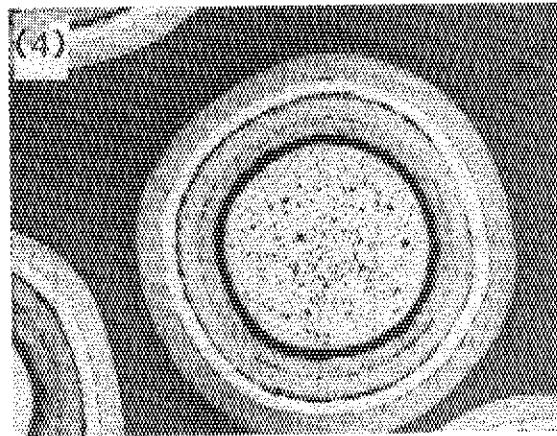
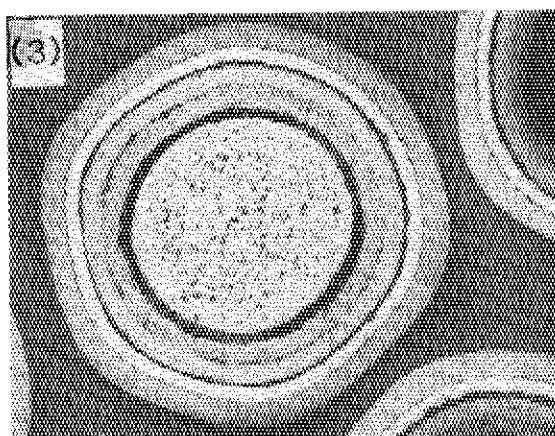


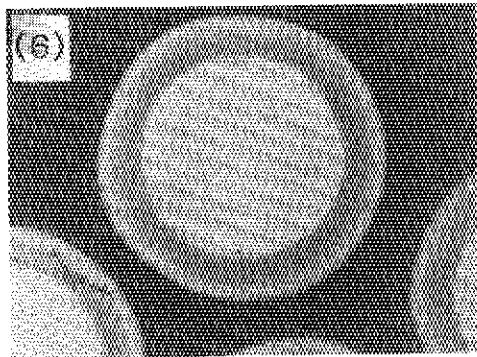
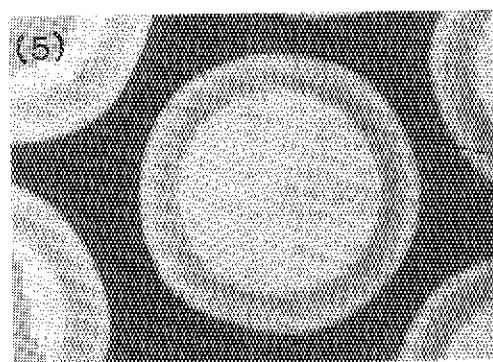
Fig. 9 Flow diagram of post-irradiation examination of 74F-1A capsule.



surface appearance

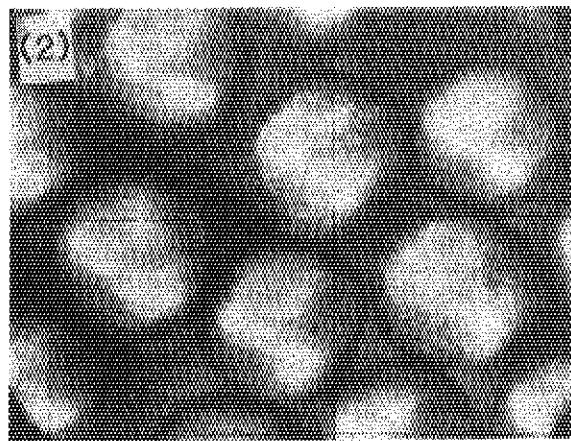
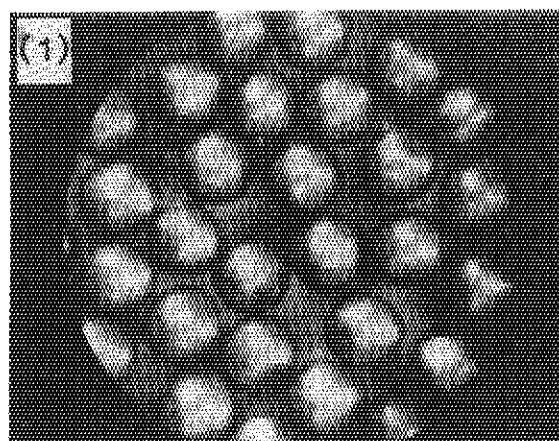


ceramographs

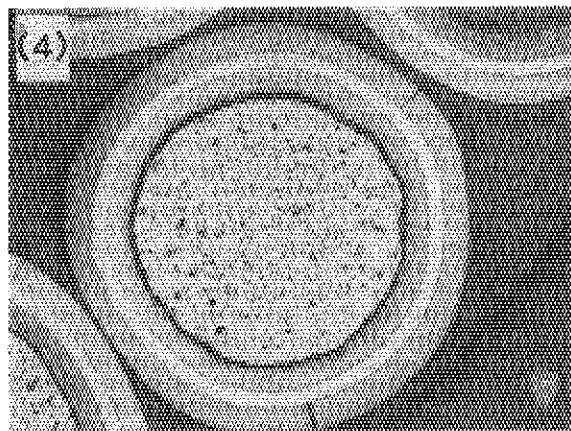
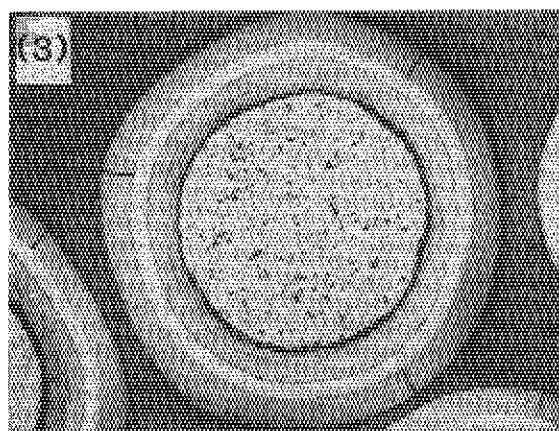


X-ray microradiographs

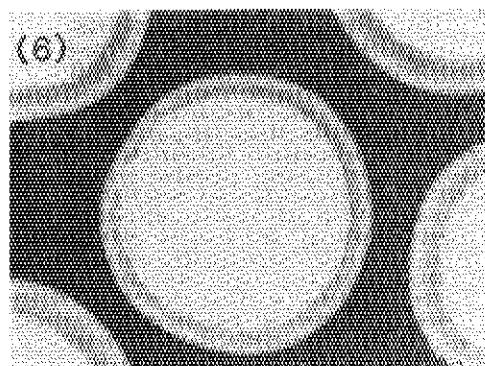
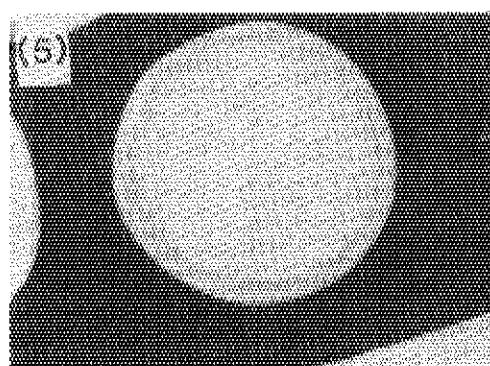
Fig. 10 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 74UC1-1A



surface appearance

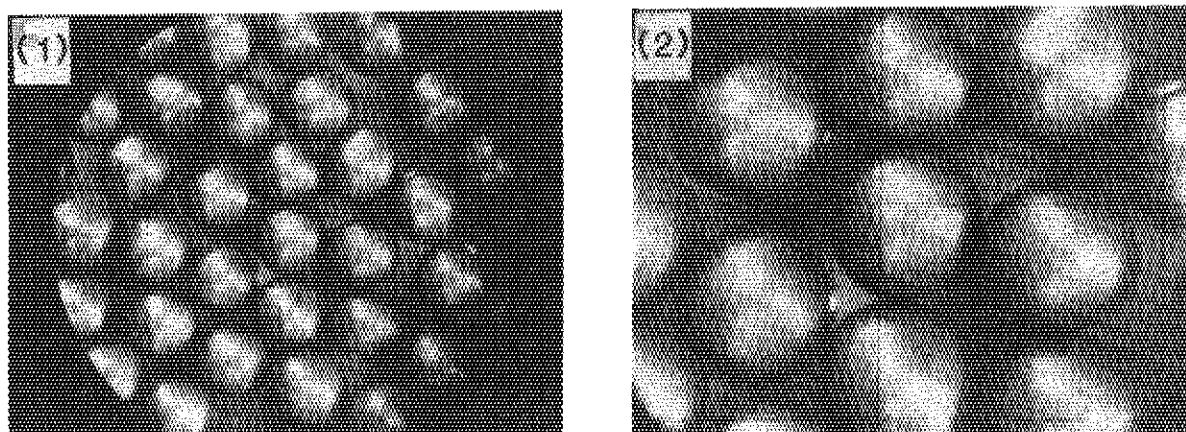


ceramographs

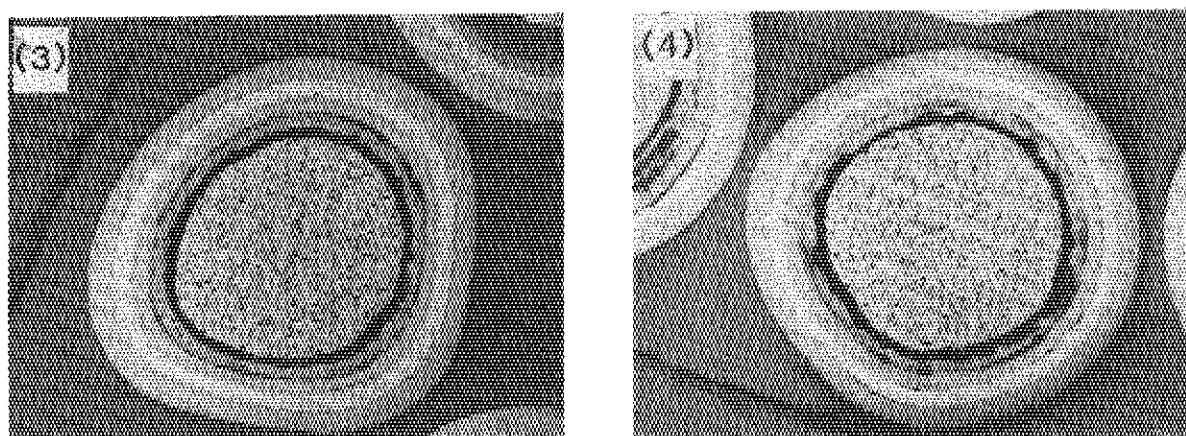


X-ray microradiographs

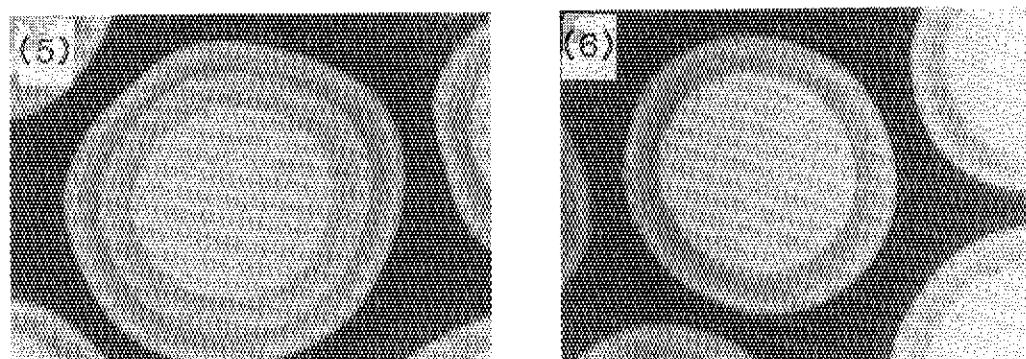
Fig. 11 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 74FCP1-1B



surface appearance

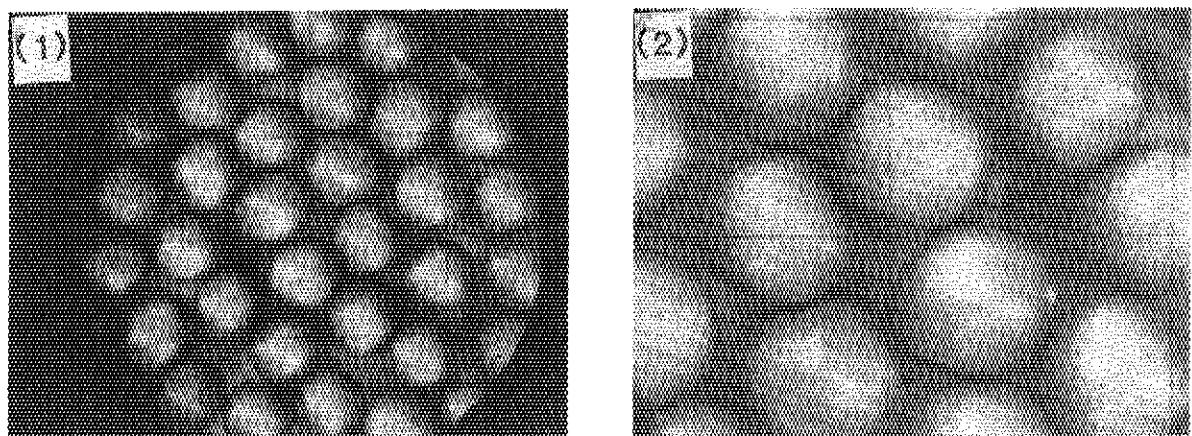


ceramographs

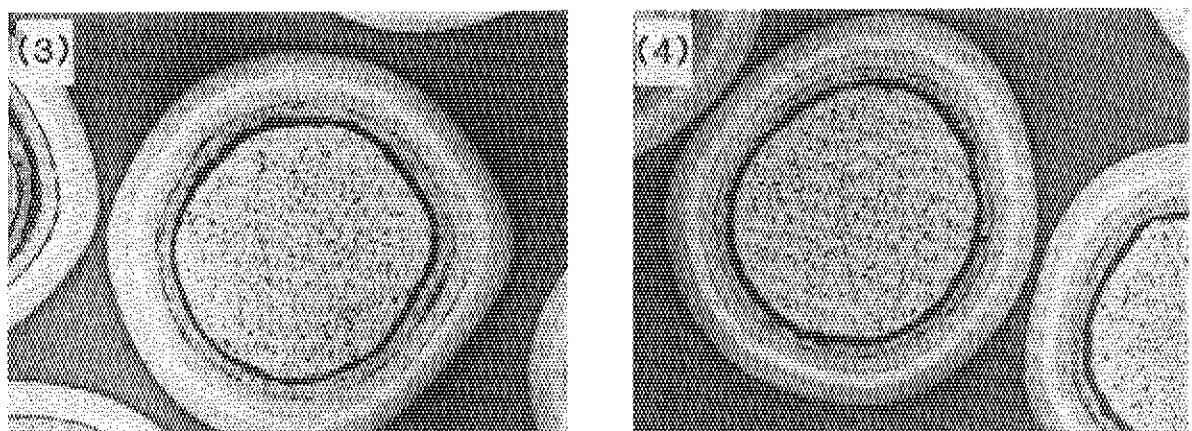


X-ray microradiographs

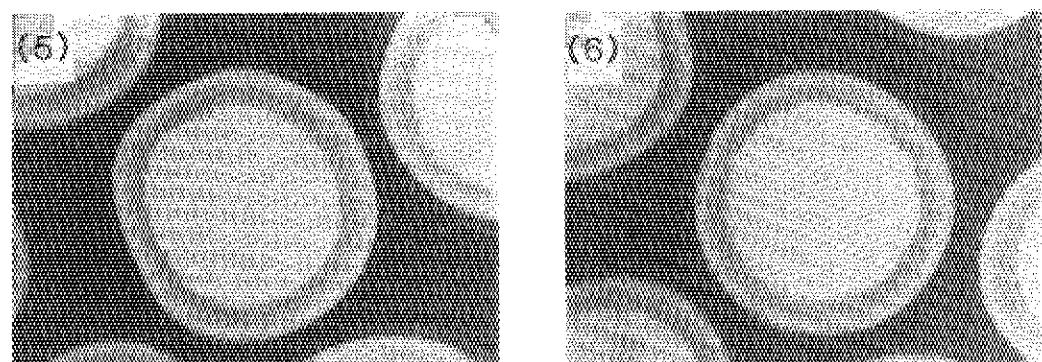
Fig. 12 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 73FC3-2A



surface appearance

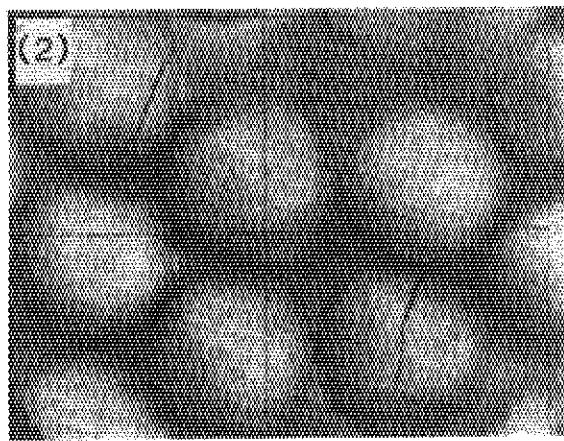
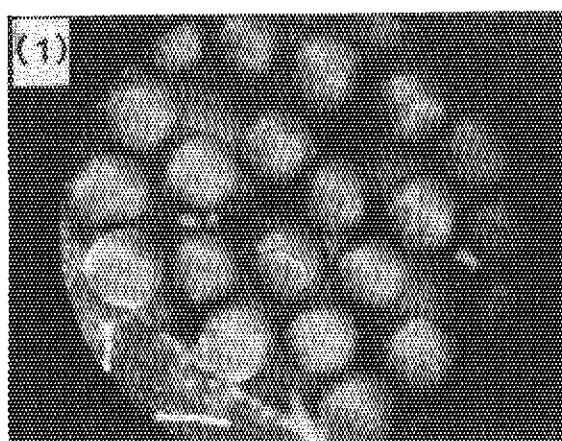


ceramographs

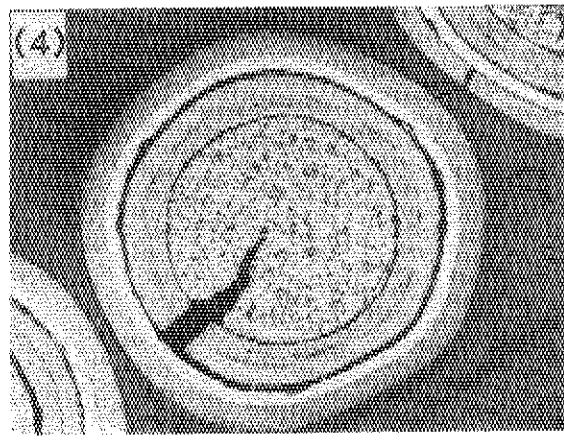
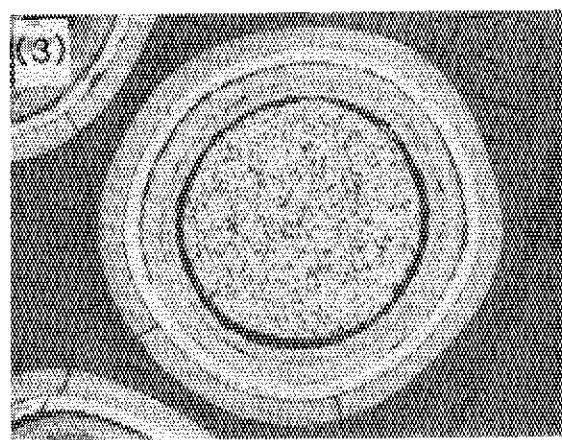


X-ray microradiographs

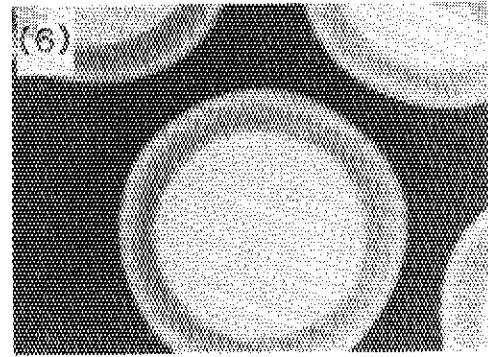
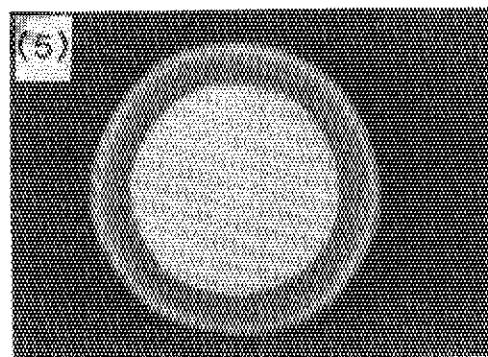
Fig. 13 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 73FC4-2B



surface appearance



ceramographs



X-ray microradiographs

Fig. 14 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 74UC1-3A

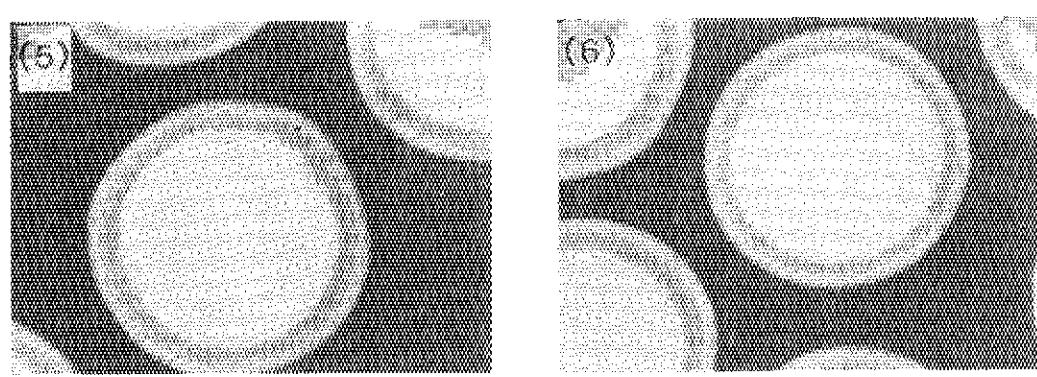
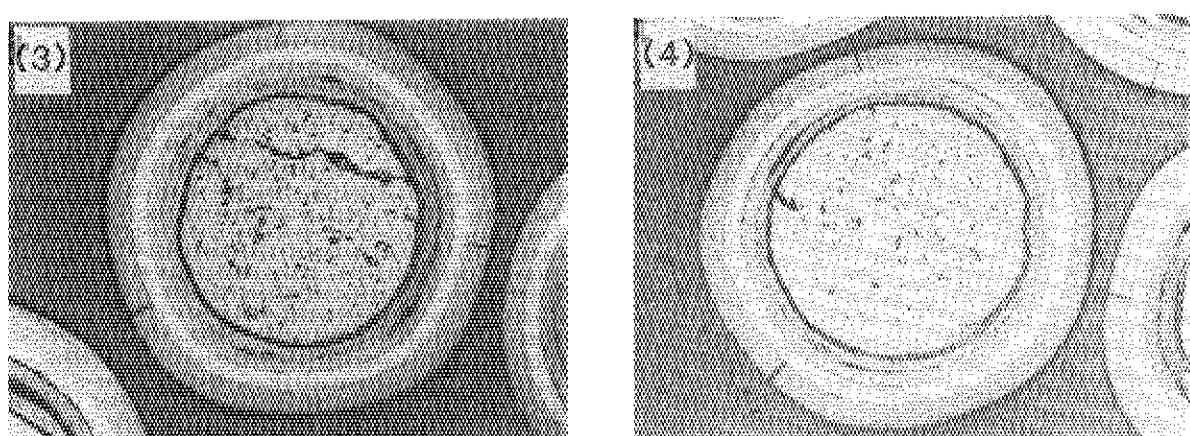
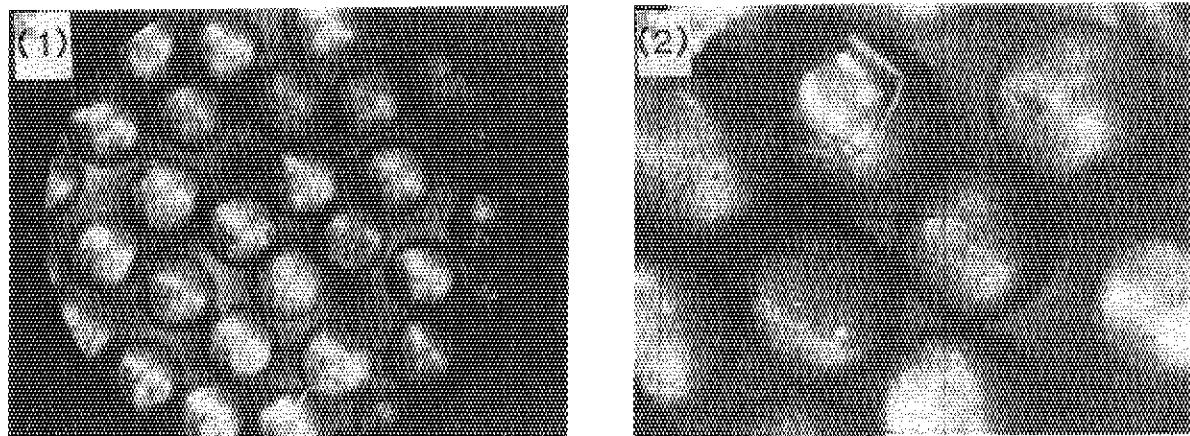
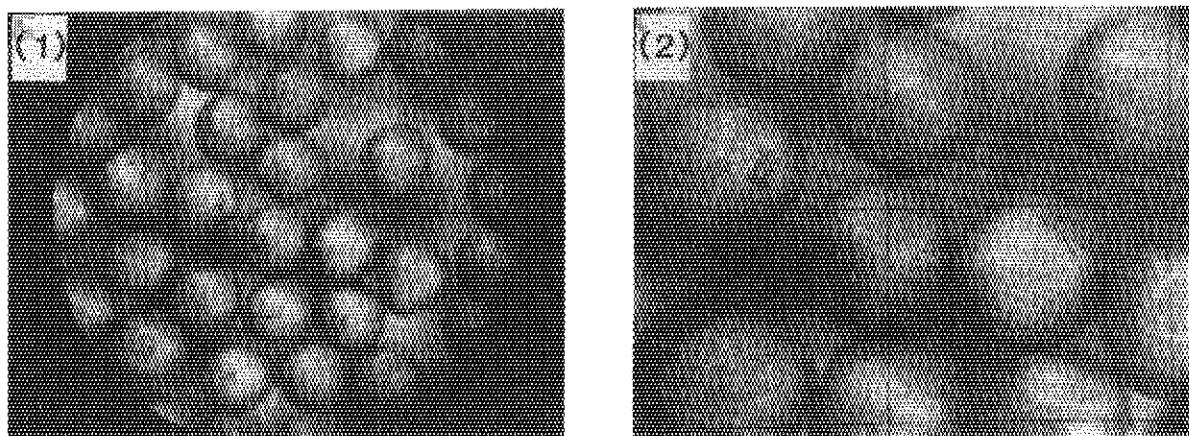
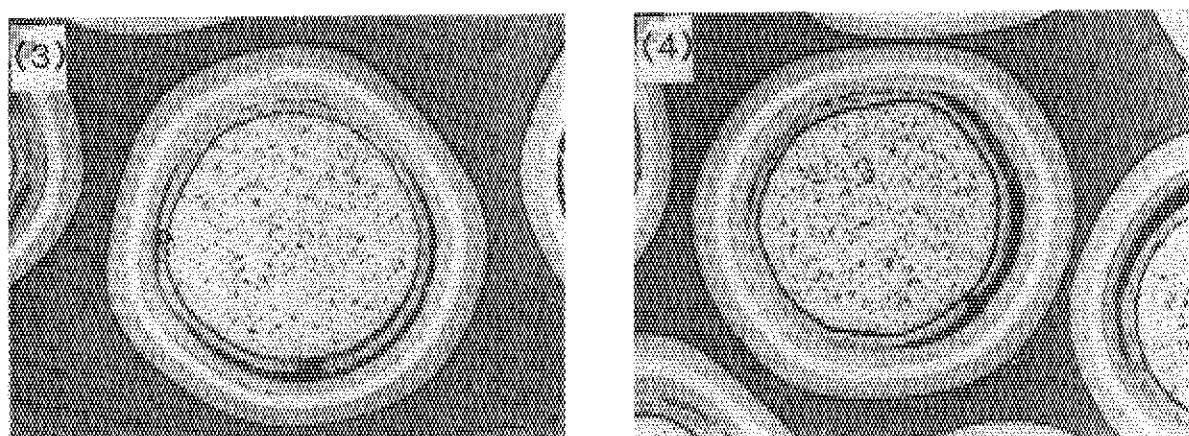


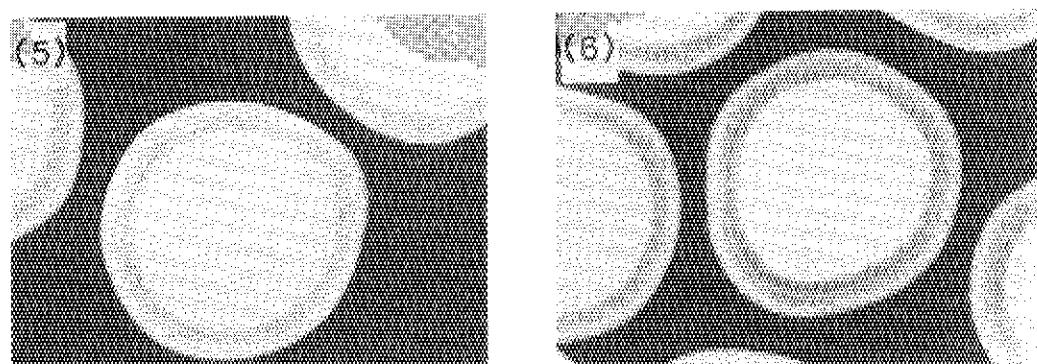
Fig. 15 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 74FCP1-3B



surface appearance



ceramographs



X-ray microradiographs

Fig. 16 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 73FC4-4A

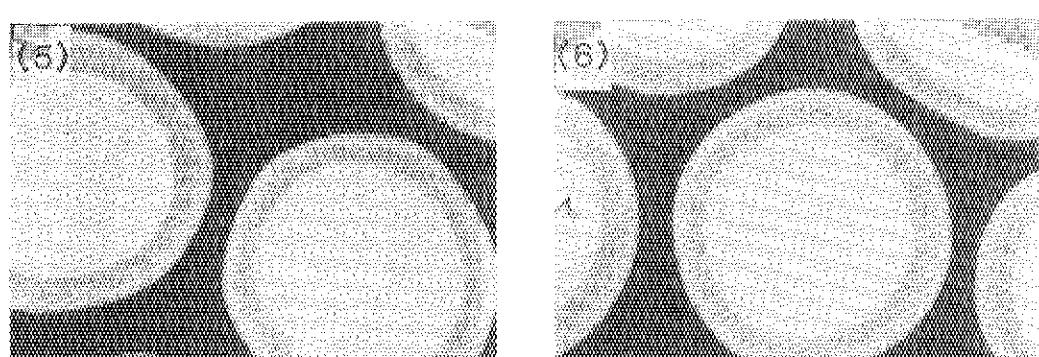
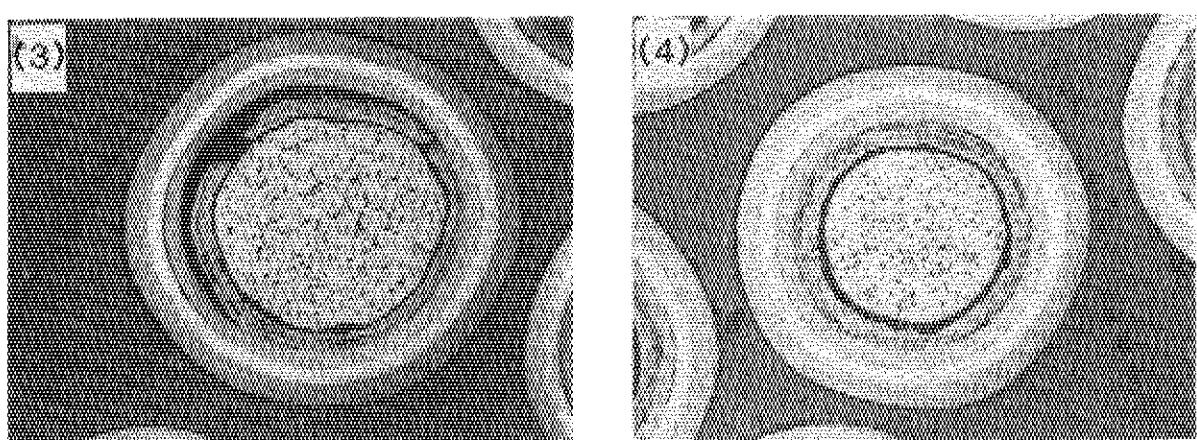
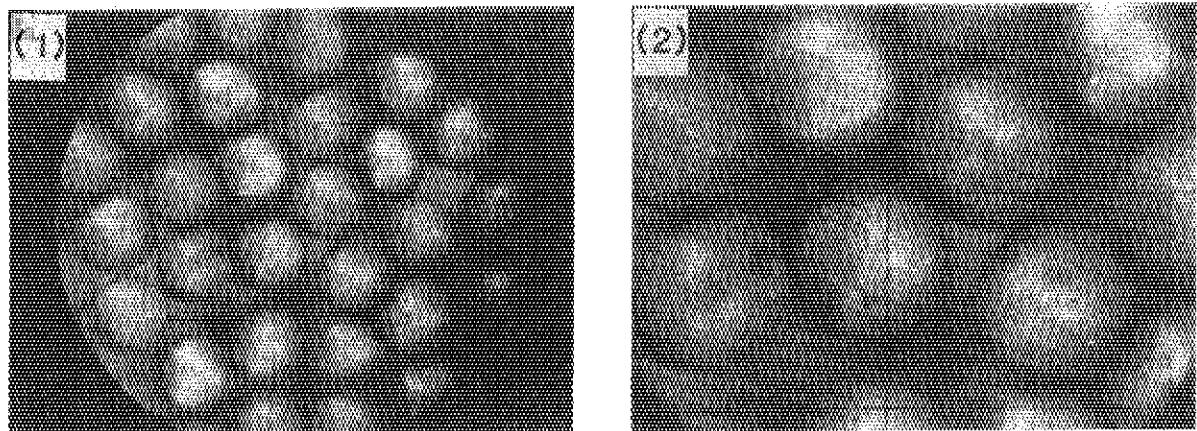
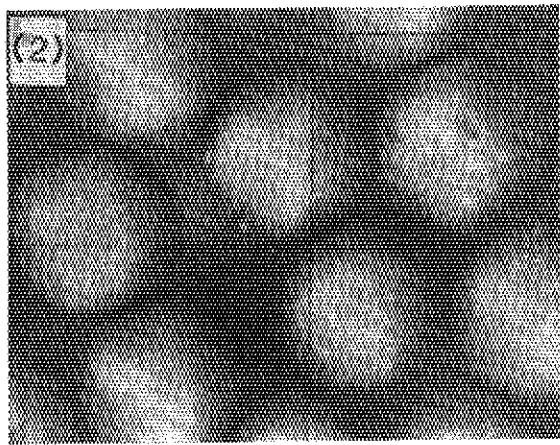
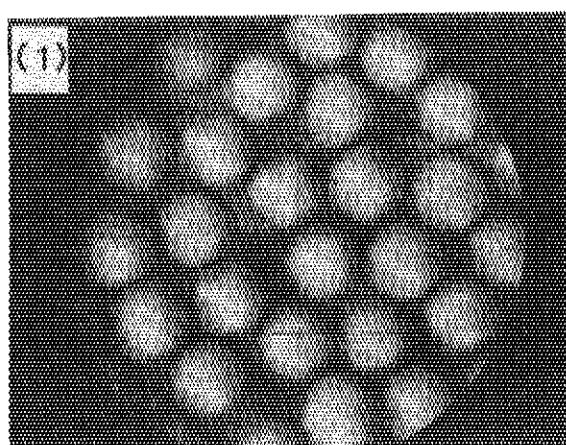
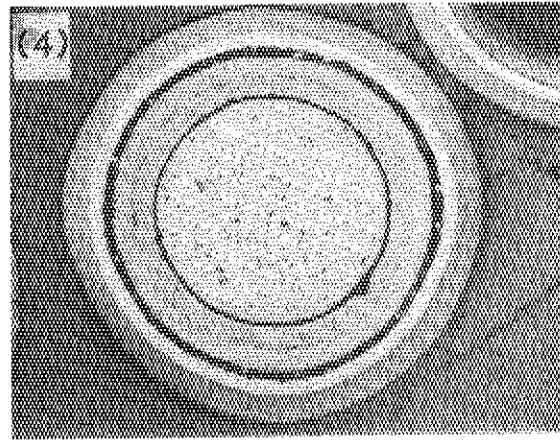
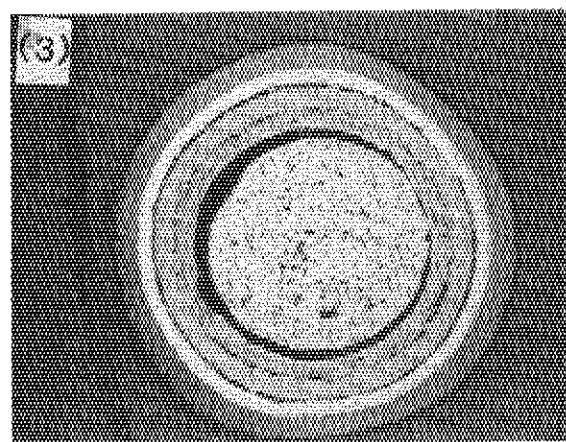


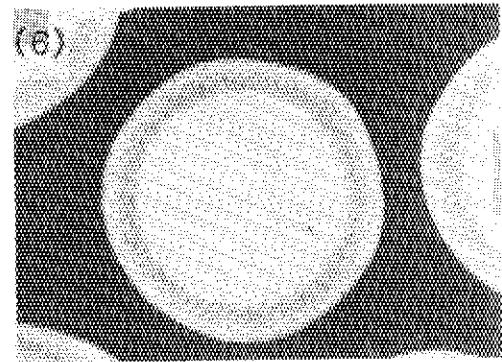
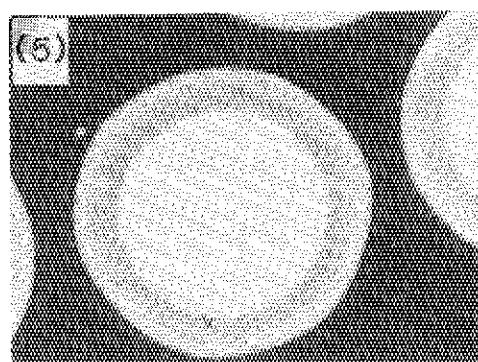
Fig. 17 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 73FC1-4B



surface appearance

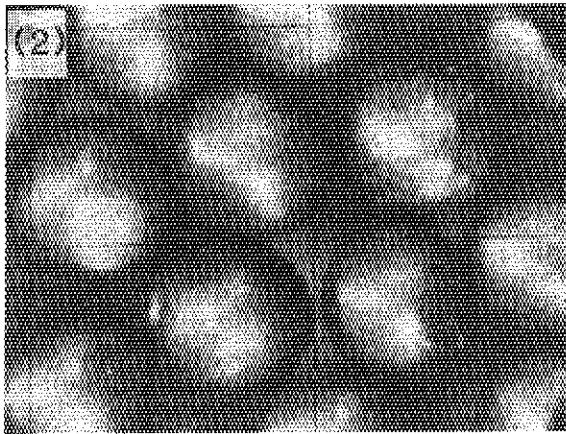
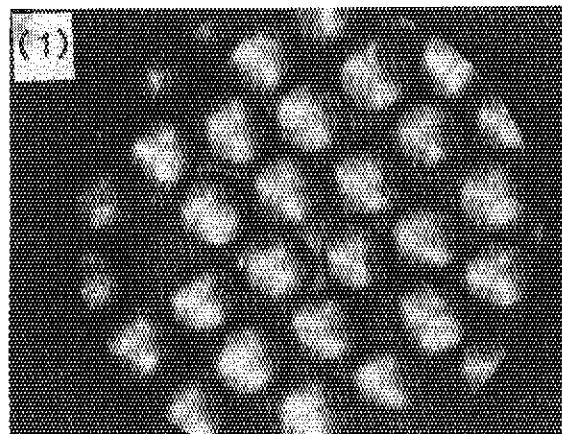


ceramographs

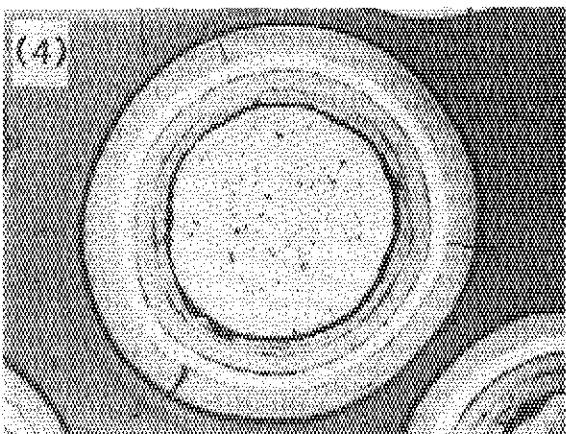
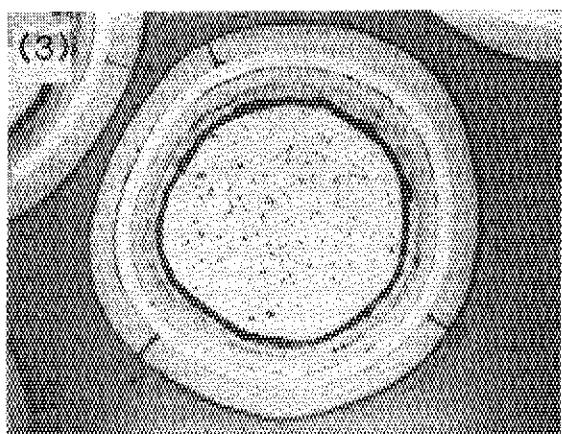


X-ray microradiographs

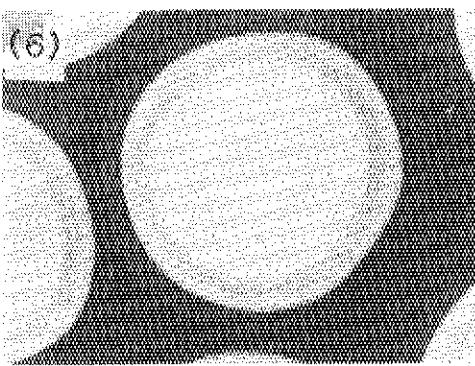
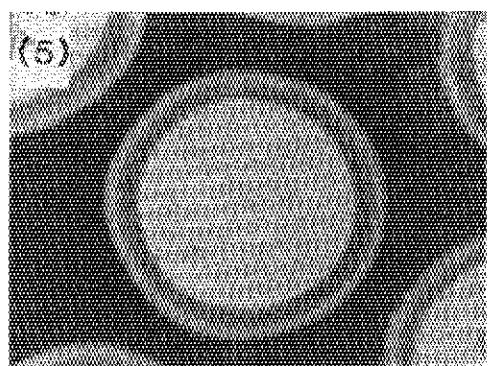
Fig. 18 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 74UC1-5A



surface appearance

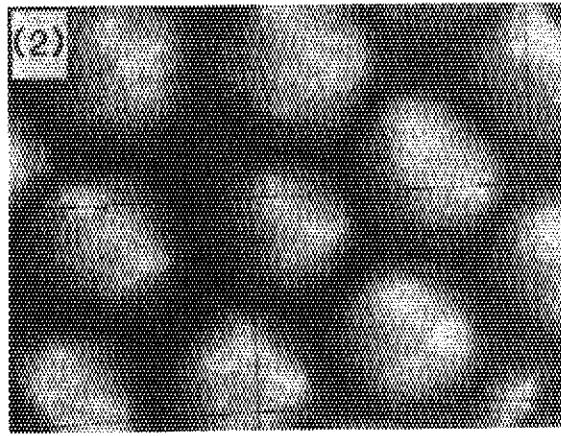
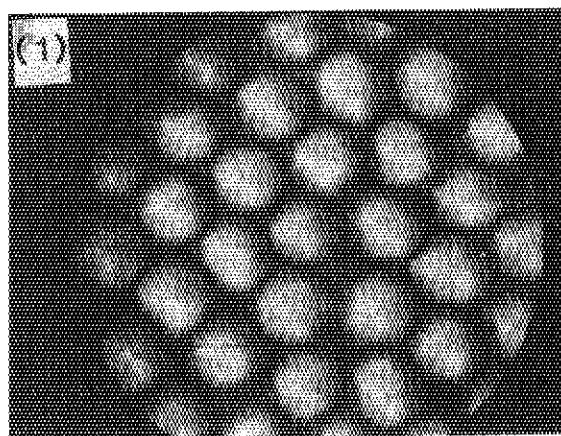


ceramographs

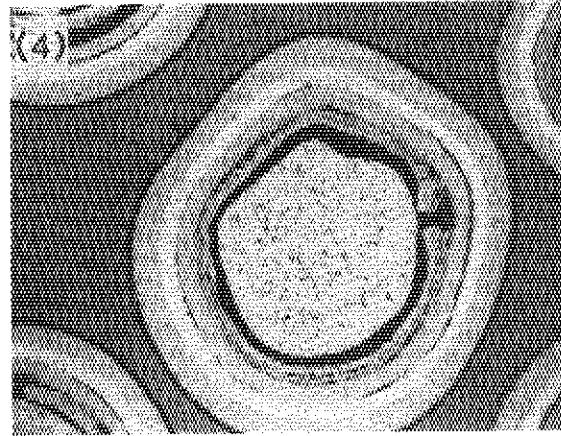
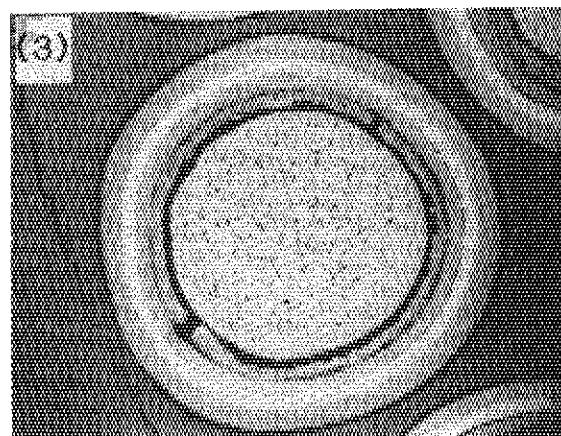


X-ray microradiographs

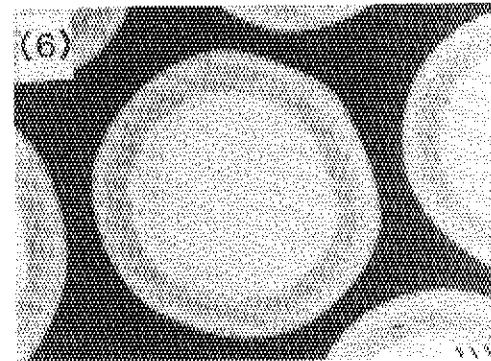
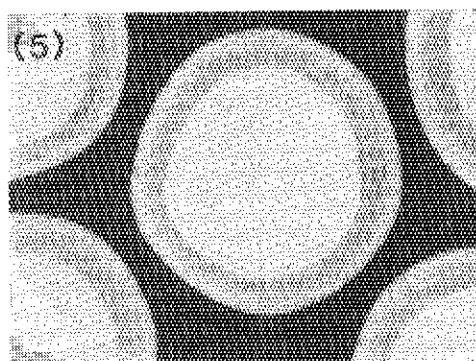
Fig. 19 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 74FCP1-5B



surface appearance

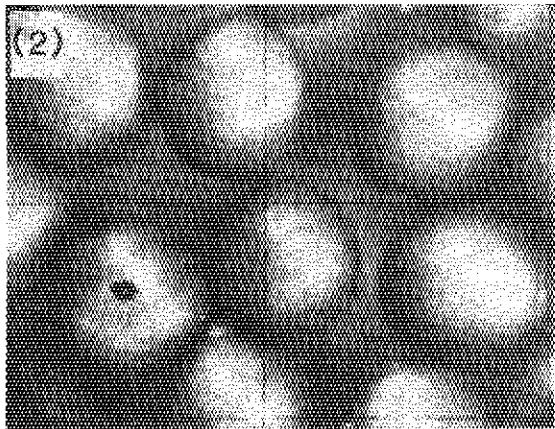
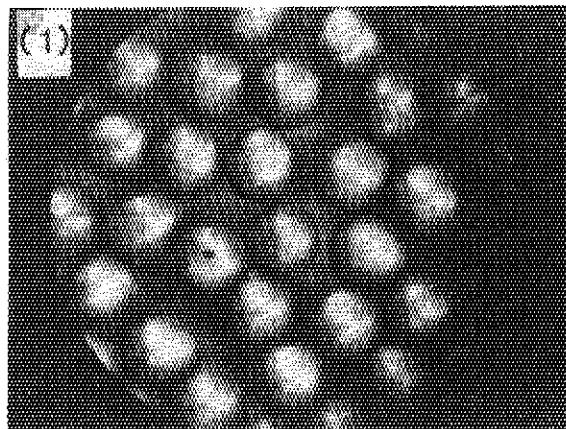


ceramographs

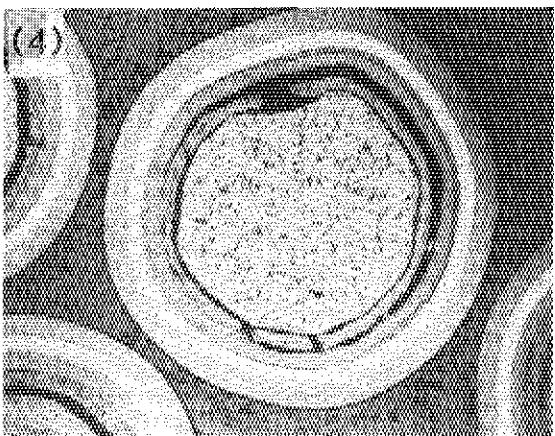
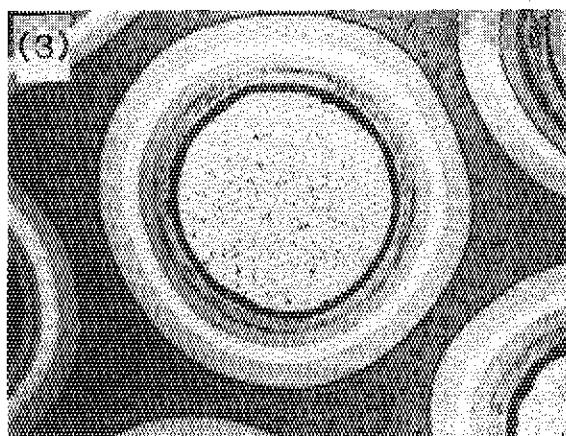


X-ray microradiographs

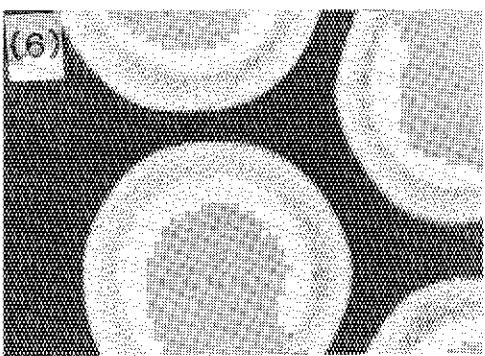
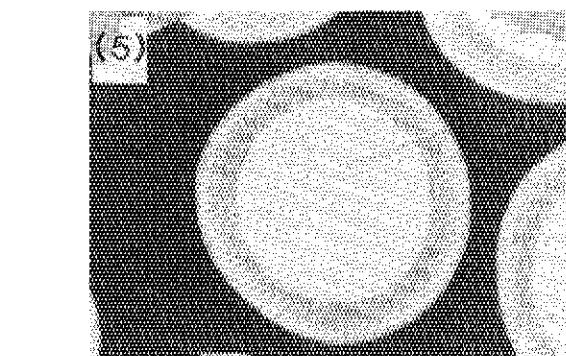
Fig. 20 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 73FC1-6A



surface appearance



ceramographs



X-ray microradiographs

Fig. 21 Surface appearance, ceramographs and X-ray microradiographs of 73FC3-6B

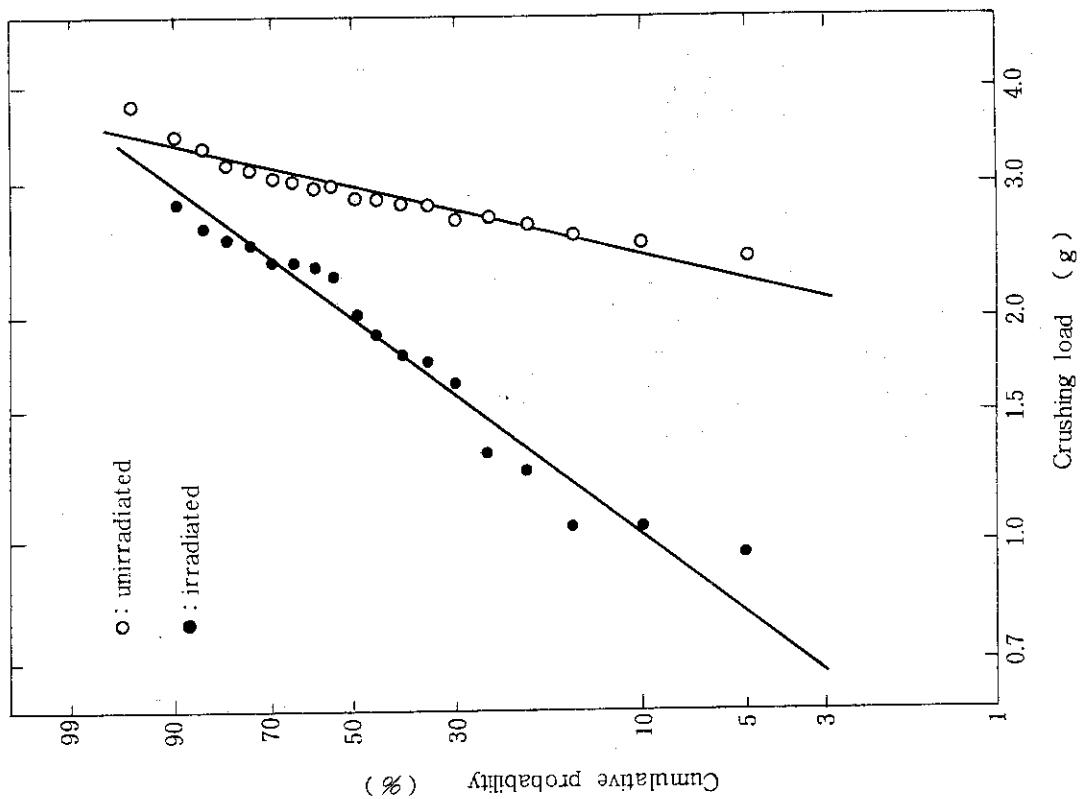


Fig. 23 Crushing strength of unirradiated and irradiated 74UC1 particles

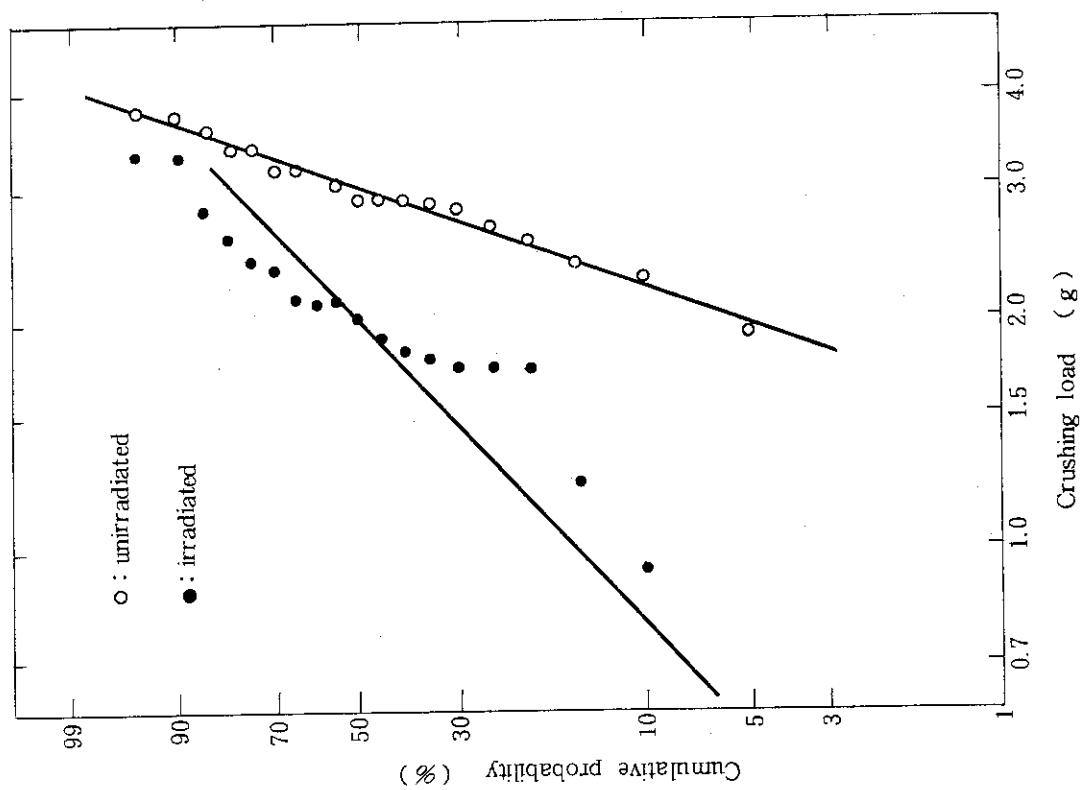


Fig. 22 Crushing strength of unirradiation and irradiated 74FCP1 particles

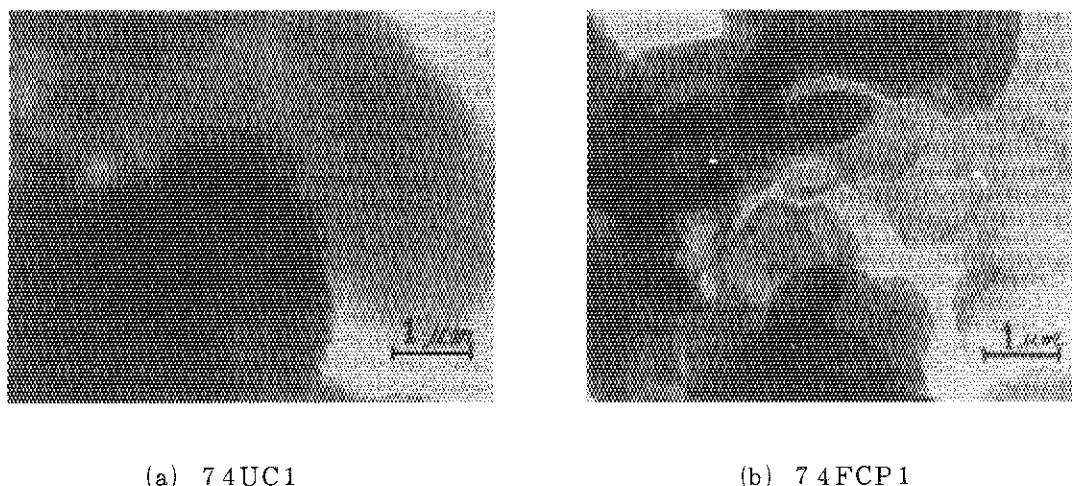


Fig. 24 Microstructure of OLTI-Py (Outer Low Temperature PyC) observed by TEM

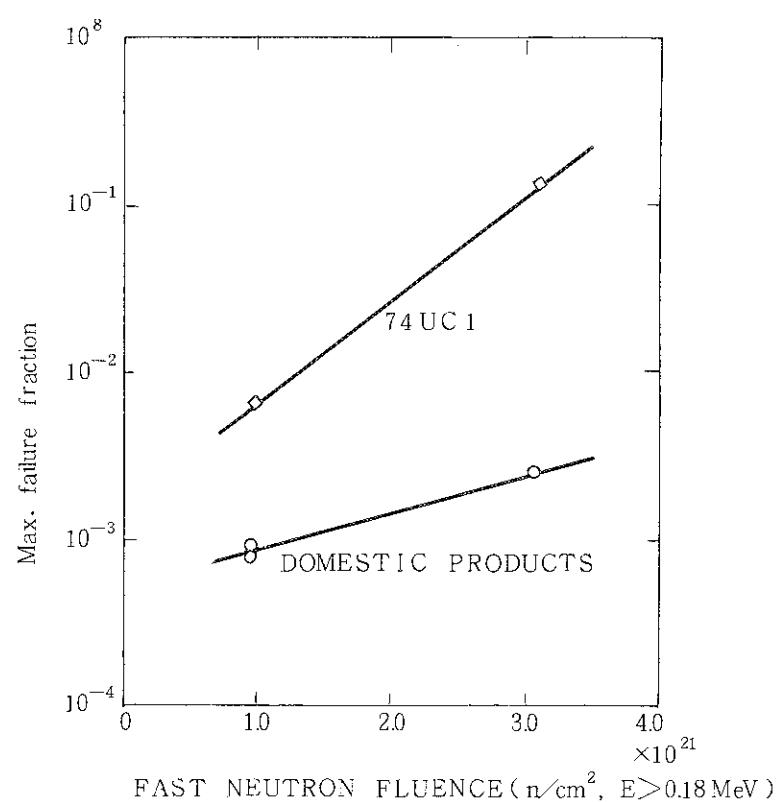


Fig. 25 Max. failure fraction by surface inspection vs. fast neutron fluence.