

JAERI-M

86-094

高出力照射試験用ウラン・プルトニウム
混合炭化物燃料ピンの製作

1986年7月

荒井 康夫・岩井 孝・前多 厚・笹山 龍雄
塩沢 憲一・井上 明彦・鈴木 康文^{*}・福島 稔
大道 敏彦・半田 宗男

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1986

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 山田軽印刷所

高出力照射試験用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

荒井康夫・岩井 孝・前多 厚・笛山龍雄

塩沢憲一・井上明彦・鈴木康文*

福島 奨・大道敏彦・半田宗男

(1986年6月6日受理)

高速炉用新型燃料の健全性評価の一環として、高出力照射試験用のウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピン2本を製作した。燃料としては化学量論的組成及び超化学量論的組成の低密度混合炭化物ペレットを、また被覆管には米国エネルギー省より入手した316相当のステンレス鋼製を用いた。本報告書では燃料ピンの設計から燃料ペレットの製造、燃料ピンの製作までの過程及び燃料ペレット、燃料ピンに関して行った各種試験について記述する。

Fabrication of Uranium-Plutonium Mixed Carbide Fuel Pins
for High Power Irradiation Tests

Yasuo ARAI, Takashi IWAI, Atsushi MAEDA, Tatsuo SASAYAMA
Kenichi SHIOZAWA, Akihiko INOUE, Yasufumi SUZUKI*
Susumu FUKUSHIMA, Toshihiko OHMICHI and Muneo HANDA

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 6, 1986)

Two uranium-plutonium mixed carbide fuel pins were fabricated for high power irradiation tests. Near stoichiometric and hyper-stoichiometric mixed carbide pellets with low densities were used as fuel materials, and 316-type stainless steel cladding tubes received from DOE were adopted. In this paper, the design of fuel pins and the procedure of fuel preparation and pin fabrication are described, together with several examinations regarding both fuel pellets and pins.

Keywords : Uranium-Plutonium Mixed Carbide Fuel, Fuel Pins, Fuel Pellets, Cladding Tubes, Irradiation Tests

* Nuclear Material Regulation Division, Science and Technology Agency

目 次

| | |
|--------------------------|----|
| 1. まえがき | 1 |
| 2. 混合炭化物燃料ペレット並びに燃料ピンの設計 | 1 |
| 2.1 燃料ペレット | 1 |
| 2.2 燃料ピン | 2 |
| 3. 混合炭化物燃料ペレットの製造 | 2 |
| 3.1 ペレットの仕様 | 2 |
| 3.2 原料物質 | 2 |
| 3.3 ペレットの製造 | 3 |
| 3.4 円周研削 | 3 |
| 3.5 特性試験 | 3 |
| 4. 燃料ピンの製作 | 5 |
| 4.1 燃料ピンの構成部品 | 5 |
| 4.2 燃料ピンの製作 | 5 |
| 4.3 燃料ピンの検査 | 7 |
| 5. あとがき | 7 |
| 謝 詞 | 8 |
| 参考 文 献 | 8 |
| 付 錄 | 18 |

Contents

| | |
|---|----|
| 1. Introduction | 1 |
| 2. Mixed carbide fuel pellets and design of fuel pins | 1 |
| 2.1 Fuel pellets | 1 |
| 2.2 Fuel pins | 2 |
| 3. Preparation of mixed carbide fuel pellets | 2 |
| 3.1 Specification of fuel pellets | 2 |
| 3.2 Raw materials | 2 |
| 3.3 Preparation of fuel pellets | 3 |
| 3.4 Centerless grinding | 3 |
| 3.5 Characterization of fuel pellets | 3 |
| 4. Fabrication of mixed carbide fuel pins | 5 |
| 4.1 Components of fuel pins | 5 |
| 4.2 Fabrication of fuel pins | 5 |
| 4.3 Inspection of fuel pins | 7 |
| 5. Summary | 7 |
| References | 8 |
| Appendix | 18 |

1. まえがき

ウラン・プルトニウム混合炭化物は、優れた核的、熱的特性から高速炉用新型燃料として注目され、米国をはじめ世界各国で研究開発が進められてきた¹⁾。また世界初の混合炭化物燃料炉心の高速実験炉が、印度において昭和60年秋に臨界に達するなど、ますます有望な新型燃料として位置づけられている。

我が国においても高速炉用新型燃料の健全性を確立する目的で建設された原研大洗研究所燃料研究棟において、炭化物系燃料の調製や物性測定等の研究が順調に進められている²⁾。さらに、先に報告したように、JRR-2で照射した我が国初の混合炭化物燃料ピンの製作に成功した³⁾。

本報告は、昭和60年7月よりJRR-2で照射を行ってきた高出力照射試験用のウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作について、その結果をまとめたものである。高出力照射試験用の混合炭化物燃料ピンにおいては、燃料ペレットの化学組成等は第1回照射用燃料ピンと同一としたが、燃料ピンの外径を6.5 mmから9.4 mmに変更し、炭化物燃料の特性をより生かすための最適寸法⁴⁾に近いものとした。さらに、酸化物燃料に比較して劣ると報告されている対スウェーリング性に起因する燃料と被覆材の間の機械的相互作用を緩和するために、理論密度の80～85%の低密度燃料ペレットを採用した⁵⁾。

さらに本年度以降には、本報告に述べる燃料ピンの製作経験やJRR-2での照射実績をふまえて、JMTRを利用しての中燃焼度照射、高燃焼度照射、熱安定型ペレットを採用した混合炭化物燃料ピンのキャップセル照射等が計画されている。

本報告の末尾に、JRR-2での照射に際し、東海研究所研究炉管理部研究炉利用課に提出した燃料ペレット及び燃料ピンの検査要領及び結果を付録として示す。

2. 混合炭化物燃料ペレット並びに燃料ピンの設計

2.1 燃料ペレット

照射用混合炭化物燃料ペレットはC/(U+Pu)（原子比）の異なる二種類の組成（化学量論的組成の(U, Pu)C_{1.0}及び超化学量論的組成の(U, Pu)C_{1.1}）のものを2本の燃料ピンにそれぞれ充填した後、同一キャップセル(ICF-47H)に組込み照射することとした。プルトニウム富化度は二種類の燃料ペレットとも20%を採用し、ウランは天然ウランを用いることとした。またペレットの密度については理論密度の80～85%のものを調製目標とした。

1. まえがき

ウラン・プルトニウム混合炭化物は、優れた核的、熱的特性から高速炉用新型燃料として注目され、米国をはじめ世界各国で研究開発が進められてきた¹⁾。また世界初の混合炭化物燃料炉心の高速実験炉が、印度において昭和60年秋に臨界に達するなど、ますます有望な新型燃料として位置づけられている。

我が国においても高速炉用新型燃料の健全性を確立する目的で建設された原研大洗研究所燃料研究棟において、炭化物系燃料の調製や物性測定等の研究が順調に進められている²⁾。さらに、先に報告したように、JRR-2で照射した我が国初の混合炭化物燃料ピンの製作に成功した³⁾。

本報告は、昭和60年7月よりJRR-2で照射を行ってきた高出力照射試験用のウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作について、その結果をまとめたものである。高出力照射試験用の混合炭化物燃料ピンにおいては、燃料ペレットの化学組成等は第1回照射用燃料ピンと同一としたが、燃料ピンの外径を6.5 mmから9.4 mmに変更し、炭化物燃料の特性をより生かすための最適寸法⁴⁾に近いものとした。さらに、酸化物燃料に比較して劣ると報告されている対スウェーリング性に起因する燃料と被覆材の間の機械的相互作用を緩和するために、理論密度の80～85%の低密度燃料ペレットを採用した⁵⁾。

さらに本年度以降には、本報告に述べる燃料ピンの製作経験やJRR-2での照射実績をふまえて、JMTRを利用しての中燃焼度照射、高燃焼度照射、熱安定型ペレットを採用した混合炭化物燃料ピンのキャップセル照射等が計画されている。

本報告の末尾に、JRR-2での照射に際し、東海研究所研究炉管理部研究炉利用課に提出した燃料ペレット及び燃料ピンの検査要領及び結果を付録として示す。

2. 混合炭化物燃料ペレット並びに燃料ピンの設計

2.1 燃料ペレット

照射用混合炭化物燃料ペレットはC/(U+Pu)（原子比）の異なる二種類の組成（化学量論的組成の(U, Pu)C_{1.0}及び超化学量論的組成の(U, Pu)C_{1.1}）のものを2本の燃料ピンにそれぞれ充填した後、同一キャップセル(ICF-47H)に組込み照射することとした。プルトニウム富化度は二種類の燃料ペレットとも20%を採用し、ウランは天然ウランを用いることとした。またペレットの密度については理論密度の80～85%のものを調製目標とした。

2.2 燃料ピン

Fig.1に混合炭化物燃料ピンの図面を示す。被覆管は、米国エネルギー省より入手した外径9.40mm、内径8.38mm（肉厚0.51mm）の寸法を有する316相当のステンレス鋼製を用いることとした。この被覆管はFFTの第Ⅳ炉心に採用されたものである。被覆管内面と燃料ペレット外表面との間隙は0.075mmとした。従って燃料ペレットの直径は8.23mmとなる。Fig.1に示したように混合炭化物ペレットスタックの両端には同じ外径寸法を有するUC断熱ペレットを配置する。燃料ピン内部空間にはヘリウムガスを充填し、ピン両端にSUS316L製の端栓を溶接する。また上部端栓側には燃料ペレットのピン内位置固定のためのインコネルX製のスプリングを挿入した。燃料ピンの全長は端栓部を含めて170mmとした。

燃料ピンは化学量論的組成及び超化学量論的組成の混合炭化物ペレットについて1本ずつ製作され、キャップセル組立ての際に上下に接続される。キャップセルの構造については先に報告した第1回の照射の場合と同一である。Fig.2にキャップセルの径方向断面の概略図を示す。

3. 混合炭化物燃料ペレットの製造

3.1 ペレットの仕様

高出力照射試験用の混合炭化物燃料ペレットの仕様を以下に示す。

| | |
|--------|---|
| ペレット寸法 | 直徑8.23mm×高さ約8mm |
| 密 度 | 理論密度の80～85% (10.9～11.6 g/cm ³) |
| Pu 富化度 | Pu/(U+Pu) = 0.2 (原子比) |
| 組 成 | (1) C/(U+Pu) = 1.0 化学量論的組成 (2) C/(U+Pu) = 1.1 超化学量論的組成 |

3.2 原料物質

原料物質としては二酸化ウラン(UO₂)、二酸化プルトニウム(PuO₂)及び黒鉛粉末を用いた。UO₂粉末はSpencer Chemical Co.製、黒鉛粉末はGraphitwerk Kropfmühl製の原子炉級天然黒鉛を用いた。これらの主な特性については先に報告した³⁾。

原料として使用したPuO₂粉末の主な特性をTable 1に示す。同位体組成中の²⁴¹Puは半減期約14年でベータ崩壊し、その結果²⁴¹Amが生成蓄積する。²⁴¹Amから放出される60KeVのγ線による粉末取扱時における局部被ばくは無視できないほど大きい。このため原料のPuO₂については燃料ペレットの製造前にイオン交換法によるPuの精製(Amの除去)を行うことにした。イオン交換法を用いたPuの精製については指針として述べられており⁶⁾、その手順を参考とした。今回は、Dowex 1-X8 (Dow Chemical Co. 製) イオン交換樹脂を用いてPuO₂約72g(Pu約63

2.2 燃料ピン

Fig.1に混合炭化物燃料ピンの図面を示す。被覆管は、米国エネルギー省より入手した外径9.40 mm、内径8.38 mm（肉厚0.51 mm）の寸法を有する316相当のステンレス鋼製を用いることとした。この被覆管は FFTF の第Ⅳ炉心に採用されたものである。被覆管内面と燃料ペレット外表面との間隙は0.075 mmとした。従って燃料ペレットの直径は8.23 mmとなる。Fig.1に示したように混合炭化物ペレットスタックの両端には同じ外径寸法を有するUC断熱ペレットを配置する。燃料ピン内部空間にはヘリウムガスを充填し、ピン両端にSUS 316L 製の端栓を溶接する。また上部端栓側には燃料ペレットのピン内位置固定のためのインコネルX 製のスプリングを挿入した。燃料ピンの全長は端栓部を含めて170 mmとした。

燃料ピンは化学量論的組成及び超化学量論的組成の混合炭化物ペレットについて1本ずつ製作され、キャップセル組立ての際に上下に接続される。キャップセルの構造については先に報告した第1回の照射の場合と同一である。Fig.2にキャップセルの径方向断面の概略図を示す。

3. 混合炭化物燃料ペレットの製造

3.1 ペレットの仕様

高出力照射試験用の混合炭化物燃料ペレットの仕様を以下に示す。

| | |
|--------|---|
| ペレット寸法 | 直径8.23 mm × 高さ約8 mm |
| 密 度 | 理論密度の80～85% (10.9～11.6 g/cm ³) |
| Pu 富化度 | Pu/(U+Pu) = 0.2 (原子比) |
| 組 成 | (1) C/(U+Pu) = 1.0 化学量論的組成 (2) C/(U+Pu) = 1.1 超化学量論的組成 |

3.2 原料物質

原料物質としては二酸化ウラン(UO₂)、二酸化プルトニウム(PuO₂)及び黒鉛粉末を用いた。UO₂粉末はSpencer Chemical Co. 製、黒鉛粉末はGraphitwerk Kropfmühl 製の原子炉級天然黒鉛を用いた。これらの主な特性については先に報告した³⁾。

原料として使用したPuO₂粉末の主な特性をTable 1に示す。同位体組成中の²⁴¹Puは半減期約14年でベータ崩壊し、その結果²⁴¹Amが生成蓄積する。²⁴¹Amから放出される60 KeVのγ線による粉末取扱時における局部被ばくは無視できないほど大きい。このため原料のPuO₂については燃料ペレットの製造前にイオン交換法によるPuの精製(Amの除去)を行うことにした。イオン交換法を用いたPuの精製については指針として述べられており⁶⁾、その手順を参考とした。今回は、Dowex 1-X8 (Dow Chemical Co. 製) イオン交換樹脂を用いてPuO₂約72 g (Pu約63

g) の精製を行った。

精製後の PuO_2 中の Pu の同位体比は ^{238}Pu 0.13 %, ^{239}Pu 75.58 %, ^{240}Pu 20.65 %, ^{241}Pu 2.96 %, ^{242}Pu 0.68 % と推定された。精製作業による Pu の回収率は約 93 % であった。

3.3 ペレットの製造

混合炭化物燃料ペレットの製造は、第 1 回の照射試験用試料の製造時と同様に、著者らがこれまでに得た知見をもとにして作業工程を進めた⁷⁾。各工程についての詳細な説明は先の報告を参照されたい³⁾。二種類の組成の混合炭化物ペレットは炭素熱還元、粉末成型法によって製造した。

今回の高出力照射試験用の混合炭化物ペレットの場合は、燃料ピンの外径が太くなつたことに伴いペレットの直径も太くなつたこと及び低密度ペレットの製造を目標としたことから、粉末の成型、焼結の工程については第 1 回の照射試験用試料の製造とは異なつた条件のもとで行った。円周研削後の燃料ペレットの直径が 8.23 mm に規定されていることから、焼結後のペレットの直径が 8.4 ~ 8.6 mm となるように配慮して、直径 9.3 mm の成型用の金型を用いた。また焼結後のペレットの高さが約 8 mm となるように、ペレット 1 個分の混合炭化物の重量を約 5 g に調整した。成型の圧力は従来通り約 300 MPa とした。

焼結はアルゴンガス気流中で行った。焼結ペレットの密度を調整する方法としては、1) 焼結温度を調整する、2) 粉末の粒度や活性度を調整する、3) 気泡形成のための蒸発性有機物を添加する、などがあるが、今回は工程が比較的容易でしかも再現性のある結果の得られやすい、焼結温度を調整する方法を選択した。実際の作業においては、本焼結に先立ち、仕様に定められた密度を有する健全なペレットを製造するための条件を確認するために、グリーンペレット 3 個を用いた試焼結を先行試験の形で実施した。今回の燃料ペレットの場合、二種類の組成の試料とも、焼結温度を 1680 ~ 1690 °C とした。これは高密度の混合炭化物ペレット製造の際の焼結温度と比較して、約 60 ~ 70 °C 低い。

今回の照射用混合炭化物燃料ペレット製造のフローシートを Fig. 3 に示す。

3.4 円周研削

燃料ペレットの円周研削は湿式のセンタレスグラインダを用いて行った。研削時には混合炭化物試料の酸化防止のために水分溶解度の低い研削油を循環させるとともに、アルゴンガスのフラッシングも合わせて行った。焼結ペレットの直径を 8.23 mm まで段階的に研削した。円周研削終了後、速やかに寸法の確認を行い、アセトンを溶媒にした超音波洗浄、さらに高真空 (10^{-6} Torr) 下約 1200 °C に加熱して脱脂、乾燥を行った。

3.5 特性試験

製造した二種類の組成の燃料ペレットについて、化学分析（炭素及び酸素含有量、Pu/(U+Pu) 比）、X 線回折、密度測定、金相試験、高温放出ガスの定量などの特性試験を実施した。こ

これらの特性試験の方法については、先に報告した第1回の照射試験用燃料ペレットの際の方法と同一である。Table 2に、今回製造した燃料ペレットの特性をまとめて示す。またFig. 4及びFig. 5には化学量論的組成、超化学量論的組成の混合炭化物燃料ペレットのX線回折像を、Fig. 6及びFig. 7には金相写真を示す。

Table 2に示した様に燃料ペレット中のPu/(U+Pu)比は、2種類の組成の試料とともに0.194であった。この値は原料酸化物の混合比0.20にほぼ一致しており、このことから燃料の製造工程中のPuの蒸発による損失が極めて少なかったことを示唆している。燃料ペレット中の酸素含有量は化学量論的組成の試料については0.25wt.%、超化学量論的組成の試料については0.16wt.%と、炭素熱還元法で調製した混合炭化物としては低い値に抑えることができた。後者の方が酸素含有量が少ないのは、酸化物に対して添加した炭素量が多く、炭素熱還元時に酸素がより容易にCOガスとして除去されやすいためと思われる。また燃料ペレット中の炭素含有量は化学量論的組成の試料については4.66wt.%、超化学量論的組成の試料については5.09wt.%であり、それに酸素の固溶を考慮して加えた炭素当量(Ceq.)はそれぞれ4.85wt.%、5.21wt.%であった。この場合のCeq./(U+Pu)(原子比)はそれぞれ1.00、1.10で、この値は燃料ペレットの仕様に合致するものであった。

Fig. 4及びFig. 5に示したX線回折像から、化学量論的組成の混合炭化物燃料ペレットについては(U,Pu)C単相、超化学量論的組成のものについては(U,Pu)C及び(U,Pu)₂C₃の2相であることがわかる。この結果は、化学分析の結果と良く一致している。(U,Pu)C相の格子定数は、化学量論的組成、超化学量論的組成の試料とも0.4964 nmであり、この値は(U_{0.8}Pu_{0.2})Cの格子定数の報告値とよく一致している。超化学量論的組成の試料中の(U,Pu)₂C₃の格子定数は0.8098 nmであった。格子定数の値からは、(U,Pu)C相への酸素の固溶の影響や二相間での極だったウラン、プルトニウムの偏析の影響は見られなかった。

燃料ペレットの密度については化学量論的組成、超化学量論的組成の試料とも11.3 g/cm³であった。この値はそれぞれ理論密度の83%、84%に相当し、燃料ペレットの密度の仕様に合致するものである。今回の製造工程で得られた燃料ペレットの密度は、ペレット間のばらつきも少なく、また異なったバッチでの再現性も良好であった。

燃料ペレットの高温放出ガスは真空抽出法(抽出温度1600℃)により定量した。高温放出ガスの組成としては水素と一酸化炭素が主成分であり、値としては化学量論的組成、超化学量論的組成の燃料ペレット共に300 μl·atm/g以下であった。この値は例えば米国における酸化物燃料に対する規定値よりも高いが、その原因としては高温放出ガスの抽出温度が燃料ペレットの円周研削後の脱脂乾燥の際の温度(1200℃)よりも高かったためと推定される。しかし今回の照射用燃料ピンは十分なプレナムが設けられており、燃料としての健全性には大きな支障はないと判断した。

Fig. 6及びFig. 7にそれぞれ示した化学量論的組成、超化学量論的組成の混合炭化物燃料ペレットの金相写真は、先に述べた化学分析及びX線回折の結果とよく合致している。すなわちFig. 6は(U,Pu)C単相を示し、Fig. 7では(U,Pu)C相に加えて写真では白く見える(U,Pu)₂C₃相が析出している。結晶粒の大きさは化学量論的組成の試料の方が大きく、焼結温度がほぼ同一であるにもかかわらず、超化学量論的組成の試料では第二相の析出によって結晶粒の成

長が妨げられていることがわかる。

以上述べた混合炭化物ペレットの製造及び特性試験用試料の作成は高純度アルゴンガス雰囲気グローブボックス中で、また各特性試験については空気雰囲気グローブボックス中で行った。

4. 燃料ピンの製作

4.1 燃料ピンの構成部品

4.1.1 燃料ペレット及び断熱ペレット

混合炭化物燃料ペレットの化学組成や密度等の特性は前述のとおりである。断熱ペレットにはC/U(原子比) 1.30, 89%理論密度のUCペレットを使用した。

4.1.2 被覆管

今回使用した被覆管は前述したように米国エネルギー省より入手したもので、その材質は20%冷間加工の316相当ステンレス鋼である。使用に先立ち渦電流探傷試験を行い、無欠陥であることを確認した。この被覆管の寸法は外径9.40 mm(0.37インチ), 内径8.38 mm(0.33インチ)である。また、長尺物(2.32 m(91.41インチ))であるため、135 mmに切り出して使用した。

4.1.3 端栓

上下部端栓は日立金属(株)製SUS316Lを加工して製作した。上部端栓は照射後試験における取扱いを考慮した構造とした。

4.1.4 スプリング

今回使用したスプリングはインコネルX製で、その自由長は60 mmである。装荷時には49 mmに圧縮されて、約330 g重の力で燃料ペレットなどを押しつける。燃料ペレット及び断熱ペレットの重量は燃料ピン1本あたり約46 gであり、このスプリングの押付荷重によりピン内のペレットを所定の位置に十分保持できる。

4.2 燃料ピンの製作

燃料ピンはFig.8に示す工程にしたがって製作した。この工程自体は第1回照射試験用燃料ピン製作の工程と同一である。組立前の被覆管、上下部端栓及びスプリングの外観をFig.9に示す。これらの材料はアセトン中で超音波洗浄した上で真空中で脱気して使用した。

長が妨げられていることがわかる。

以上述べた混合炭化物ペレットの製造及び特性試験用試料の作成は高純度アルゴンガス雰囲気グローブボックス中で、また各特性試験については空気雰囲気グローブボックス中で行った。

4. 燃料ピンの製作

4.1 燃料ピンの構成部品

4.1.1 燃料ペレット及び断熱ペレット

混合炭化物燃料ペレットの化学組成や密度等の特性は前述のとおりである。断熱ペレットにはC/U(原子比) 1.30, 89%理論密度のUCペレットを使用した。

4.1.2 被覆管

今回使用した被覆管は前述したように米国エネルギー省より入手したもので、その材質は20%冷間加工の316相当ステンレス鋼である。使用に先立ち渦電流探傷試験を行い、無欠陥であることを確認した。この被覆管の寸法は外径9.40 mm(0.37インチ), 内径8.38 mm(0.33インチ)である。また、長尺物(2.32 m(91.41インチ))であるため、135 mmに切り出して使用した。

4.1.3 端栓

上下部端栓は日立金属(株)製SUS316Lを加工して製作した。上部端栓は照射後試験における取扱いを考慮した構造とした。

4.1.4 スプリング

今回使用したスプリングはインコネルX製で、その自由長は60 mmである。装荷時には49 mmに圧縮されて、約330 g重の力で燃料ペレットなどを押しつける。燃料ペレット及び断熱ペレットの重量は燃料ピン1本あたり約46 gであり、このスプリングの押付荷重によりピン内のペレットを所定の位置に十分保持できる。

4.2 燃料ピンの製作

燃料ピンはFig.8に示す工程にしたがって製作した。この工程自体は第1回照射試験用燃料ピン製作の工程と同一である。組立前の被覆管、上下部端栓及びスプリングの外観をFig.9に示す。これらの材料はアセトン中で超音波洗浄した上で真空中で脱気して使用した。

4.2.1 下部端栓の溶接

下部端栓の溶接作業時には、溶接装置を格納するグローブボックスをOnce through方式によってヘリウムガス雰囲気に置換した。溶接条件は次のとおりである。

| | |
|----------|----------------|
| 起動電流 | 13 A, 1.5秒 |
| 溶接電流 I | 8 A, 3.5秒 |
| 溶接電流 II | 15 A, 6.0秒 |
| クレータ電流 | 15 ~ 3 A, 3.0秒 |
| トーチ角度 | 15° |
| ポジショナ回転数 | 20 R.P.M. |
| アーク・ギャップ | 0.3 mm |

4.2.2 ペレットの充填

被覆管に燃料ペレット及び断熱ペレットを充填する作業は、溶接用のグローブボックスに接続された充填用のグローブボックスにおいて行った。このグローブボックスはペレットの充填時に被覆管の管口部及び外表面をプルトニウムで汚染させないで作業ができるように低汚染領域と高汚染領域に仕切られている。燃料ペレットなどはスタック長の調整を行ってからステンレス鋼管に溶封した状態で高汚染領域に、一方、下部端栓を溶接した被覆管は管口マスクを装着してから熱収縮チューブで外表面を保護した状態で低汚染領域に搬入した。高汚染領域から燃料ペレット及び断熱ペレットをグローブボックス内の仕切り壁に設けた貫通孔を通して被覆管内に挿入した。挿入後、管口マスク及び被覆管内側を除染した上で管口マスクを取り除いた。被覆管を低汚染領域に引き抜き、直ちにスプリングを挿入し、さらに上部端栓を圧入した。これらの作業が完了してから熱収縮チューブを除去して溶接工程に移った。以上の作業はグローブボックスをOnce through方式でヘリウムガス雰囲気に置換して行った。

4.2.3 上部端栓の溶接

上部端栓の溶接も溶接用のグローブボックスをヘリウムガスで置換した雰囲気内で実施した。溶接条件は次のとおりである。

| | |
|----------|----------------|
| 起動電流 | 13 A, 1.5秒 |
| 溶接電流 I | 8.5 A, 3.5秒 |
| 溶接電流 II | 16 A, 6.0秒 |
| クレータ電流 | 16 ~ 3 A, 3.0秒 |
| トーチ角度 | 15° |
| ポジショナ回転数 | 20 R.P.M. |
| アーク・ギャップ | 0.3 mm |
| 上部端栓押圧 | 300 g 重 |

完成した燃料ピンの外観をFig. 10に示す。

4.3 燃料ピンの検査

4.3.1 外観検査

溶接部にわずかな着色が観察されたが、傷あるいはピンホールなどの有害な欠陥はみとめられなかった。

4.3.2 寸法検査

燃料ピンの寸法については、ノギスを用いてその長さを測定した。その結果は、2本の燃料ピンとも 169.9 mm であった。

4.3.3 表面汚染度検査

溶接した燃料ピンについて、除染用のグローブボックス内において除染を行ってから ZnS(Ag) シンチレーション型検査計により表面汚染度の検査を行ったが、有意の汚染はみとめられなかつた。さらに、グローブボックス外に搬出し、ガスフロー型比例計数装置で精密な検査を行い、表面汚染度の基準 ($20 \text{ dpm} / 100 \text{ cm}^2$ 以下) を満足していることを確認した。

4.3.4 ヘリウムリーク検査

燃料ピンの気密検査はピン内部に封入したヘリウムの漏洩率をヘリウムリークディテクタにより測定することによって行った。標準リークを用いて求めた検出感度は $2 \times 10^{-10} \text{ atm} \cdot \text{cc} / \text{s}$ である。本検査の結果、2本の燃料ピンの漏洩率は検出感度以下であった。これは JRR-2 で定められている基準値 ($1 \times 10^{-8} \text{ atm} \cdot \text{cc} / \text{s}$) よりも十分低い値である。

4.3.5 X線透過試験

燃料ピンの全体及び溶接部について X 線透過試験を行った。その結果、燃料ペレット、断熱ペレット及びスプリングは燃料ピン内で正常に位置しており、また上下端栓の溶接部にも欠陥は観測されなかつた。

4.3.6 溶接部の金相試験

燃料ピンの溶接において溶接部の溶け込みが十分に得られていることを確認するために、2本の燃料ピンのほかに模擬ピンを同一条件下で製作し、溶接部断面の金相試験を行った。その結果、十分な溶け込みが得られていることを確認することができた。

5. あとがき

昭和60年7月より JRR-2 で照射を行ってきた高出力照射用混合炭化物燃料ピンを組込んだ ICF-47H キャップセルは、本年4月に無事照射を終了した。現在は実用燃料試験室で予定されて

4.3 燃料ピンの検査

4.3.1 外観検査

溶接部にわずかな着色が観察されたが、傷あるいはピンホールなどの有害な欠陥はみとめられなかった。

4.3.2 寸法検査

燃料ピンの寸法については、ノギスを用いてその長さを測定した。その結果は、2本の燃料ピンとも 169.9 mm であった。

4.3.3 表面汚染度検査

溶接した燃料ピンについて、除染用のグローブボックス内において除染を行ってから ZnS(Ag)シンチレーション型検査計により表面汚染度の検査を行ったが、有意の汚染はみとめられなかつた。さらに、グローブボックス外に搬出し、ガスフロー型比例計数装置で精密な検査を行い、表面汚染度の基準 ($20 \text{ dpm} / 100 \text{ cm}^2$ 以下) を満足していることを確認した。

4.3.4 ヘリウムリーク検査

燃料ピンの気密検査はピン内部に封入したヘリウムの漏洩率をヘリウムリークディテクタにより測定することによって行った。標準リークを用いて求めた検出感度は $2 \times 10^{-10} \text{ atm} \cdot \text{cc} / \text{s}$ である。本検査の結果、2本の燃料ピンの漏洩率は検出感度以下であった。これは JRR-2 で定められている基準値 ($1 \times 10^{-8} \text{ atm} \cdot \text{cc} / \text{s}$) よりも十分低い値である。

4.3.5 X線透過試験

燃料ピンの全体及び溶接部について X 線透過試験を行った。その結果、燃料ペレット、断熱ペレット及びスプリングは燃料ピン内で正常に位置しており、また上下端栓の溶接部にも欠陥は観測されなかつた。

4.3.6 溶接部の金相試験

燃料ピンの溶接において溶接部の溶け込みが十分に得られていることを確認するために、2本の燃料ピンのほかに模擬ピンを同一条件下で製作し、溶接部断面の金相試験を行った。その結果、十分な溶け込みが得られていることを確認することができた。

5. あとがき

昭和60年7月より JRR-2 で照射を行ってきた高出力照射用混合炭化物燃料ピンを組込んだ ICF-47H キャプセルは、本年4月に無事照射を終了した。現在は実用燃料試験室で予定されて

いる照射後試験に備えて冷却中である。本燃料ピンは本稿中でも述べたように燃料としての特性が十分に把握されているものであり、今後、高速炉用新型燃料としての混合炭化物燃料の健全性確立のため、照射後試験の成果が大いに期待される。

謝　　辞

本燃料ピンの製作にあたり、大洗研究所管理部プルトニウム技術開発室及び放射線管理課、材料試験炉部照射第3課、東海研究所研究炉管理部研究炉利用課、実用燃料試験室、技術部工作課の諸氏に多大なご支援をいただいたことに心から感謝の意を表する。また、貴重な助言やご意見をいただいた岩本多実前燃料工学部長、近藤達男燃料工学部長、柴是行燃料工学部次長に厚くお礼を申し上げる。

参　考　文　献

- 1) G. W. Cunningham : Trans. Am. Nucl. Soc., 19, 83 (1974).
- 2) 半田宗男, 他: 原子力誌, 26(1), 2 (1984).
- 3) 半田宗男, 他: JAERI-M 83-206 (1983).
- 4) R. C. Noyes, et al. : Nucl. Technol., 26, 460 (1976).
- 5) R. J. Herbst, et al. : LA-9259-MS (1982).
- 6) 渡辺賢寿: 原子力誌, 11, 687 (1969).
- 7) Y. Suzuki, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 18, 61 (1981).

いる照射後試験に備えて冷却中である。本燃料ピンは本稿中でも述べたように燃料としての特性が十分に把握されているものであり、今後、高速炉用新型燃料としての混合炭化物燃料の健全性確立のため、照射後試験の成果が大いに期待される。

謝　　辞

本燃料ピンの製作にあたり、大洗研究所管理部プルトニウム技術開発室及び放射線管理課、材料試験炉部照射第3課、東海研究所研究炉管理部研究炉利用課、実用燃料試験室、技術部工作課の諸氏に多大なご支援をいただいたことに心から感謝の意を表する。また、貴重な助言やご意見をいただいた岩本多実前燃料工学部長、近藤達男燃料工学部長、柴是行燃料工学部次長に厚くお礼を申し上げる。

参　考　文　献

- 1) G. W. Cunningham : Trans. Am. Nucl. Soc., 19, 83 (1974).
- 2) 半田宗男, 他: 原子力誌, 26(1), 2 (1984).
- 3) 半田宗男, 他: JAERI-M 83-206 (1983).
- 4) R. C. Noyes, et al. : Nucl. Technol., 26, 460 (1976).
- 5) R. J. Herbst, et al. : LA-9259-MS (1982).
- 6) 渡辺賢寿: 原子力誌, 11, 687 (1969).
- 7) Y. Suzuki, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 18, 61 (1981).

いる照射後試験に備えて冷却中である。本燃料ピンは本稿中でも述べたように燃料としての特性が十分に把握されているものであり、今後、高速炉用新型燃料としての混合炭化物燃料の健全性確立のため、照射後試験の成果が大いに期待される。

謝　　辞

本燃料ピンの製作にあたり、大洗研究所管理部プルトニウム技術開発室及び放射線管理課、材料試験炉部照射第3課、東海研究所研究炉管理部研究炉利用課、実用燃料試験室、技術部工作課の諸氏に多大なご支援をいただいたことに心から感謝の意を表する。また、貴重な助言やご意見をいただいた岩本多実前燃料工学部長、近藤達男燃料工学部長、柴是行燃料工学部次長に厚くお礼を申し上げる。

参　考　文　献

- 1) G. W. Cunningham : Trans. Am. Nucl. Soc., 19, 83 (1974).
- 2) 半田宗男, 他: 原子力誌, 26(1), 2 (1984).
- 3) 半田宗男, 他: JAERI-M 83-206 (1983).
- 4) R. C. Noyes, et al. : Nucl. Technol., 26, 460 (1976).
- 5) R. J. Herbst, et al. : LA-9259-MS (1982).
- 6) 渡辺賢寿: 原子力誌, 11, 687 (1969).
- 7) Y. Suzuki, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 18, 61 (1981).

Table 1 Characteristics of plutonium dioxide powder

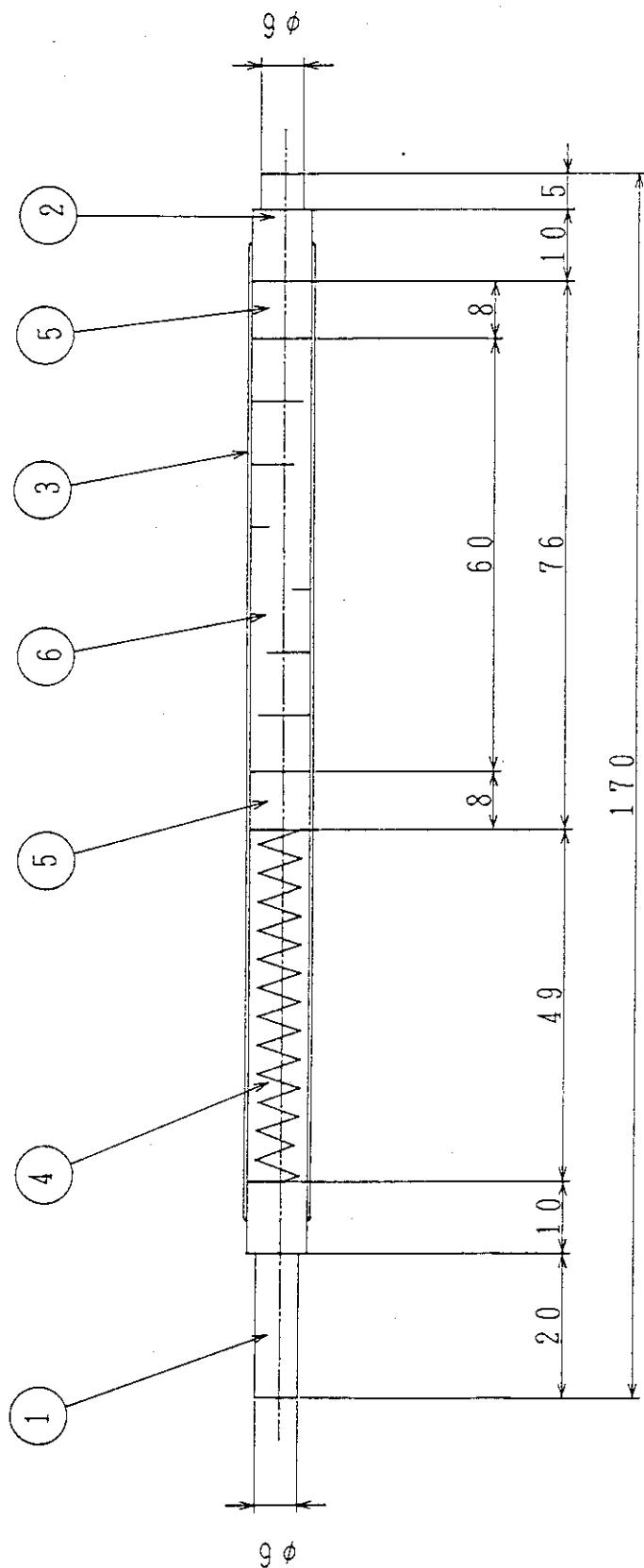
| | | | |
|---|--------|--------|--|
| Plutonium content (wt.%) | 87.06 | | |
| Isotopic composition of plutonium (at.%)* | Pu 238 | 0.13 | |
| | Pu 239 | 75.24 | |
| | Pu 240 | 20.56 | |
| | Pu 241 | 3.39 | |
| | Pu 242 | 0.68 | |
| Impurities (ppm) | Al <10 | Ni 30 | |
| | Ca 140 | N <50 | |
| | C 65 | Si 20 | |
| | Cr <10 | Cl <10 | |
| | Fe 85 | F <10 | |

* analyzed date; February, 1980

Table 2 Characteristics of mixed carbide pellets for irradiation tests

| | (U,Pu)C _{1.0} | (U,Pu)C _{1.1} |
|---|------------------------|---|
| Chemical composition | | |
| Pu/(U+Pu) (at. ratio) | 0.194 | 0.194 |
| Carbon content (wt.%) | 4.66 | 5.09 |
| Oxygen content (wt.%) | 0.25 | 0.16 |
| X-ray diffraction analysis | | |
| Phases | (U,Pu)C | (U,Pu)C, (U,Pu) ₂ C ₃ |
| Lattice parameter (nm) | 0.4964 | 0.4964 0.8098 |
| Bulk density (g/cm ³) | 11.3 | 11.3 |
| (% TD*) | 83 | 84 |
| Amounts of outgassing (μl·atm/g at 1600°C) | <300 | <300 |

* theoretical density



| No. | Items | Materials |
|-----|-----------------------------|-----------|
| 1 | Upper endplug | SUS 316L |
| 2 | Lower endplug | SUS 316L |
| 3 | Cladding tube | SUS 316 |
| 4 | Spring | Inconel-X |
| 5 | Thermal insulator pellet | UC |
| 6 | Fuel pellet (U,Pu)C | |

Fig. 1 Structure of mixed carbide fuel pin

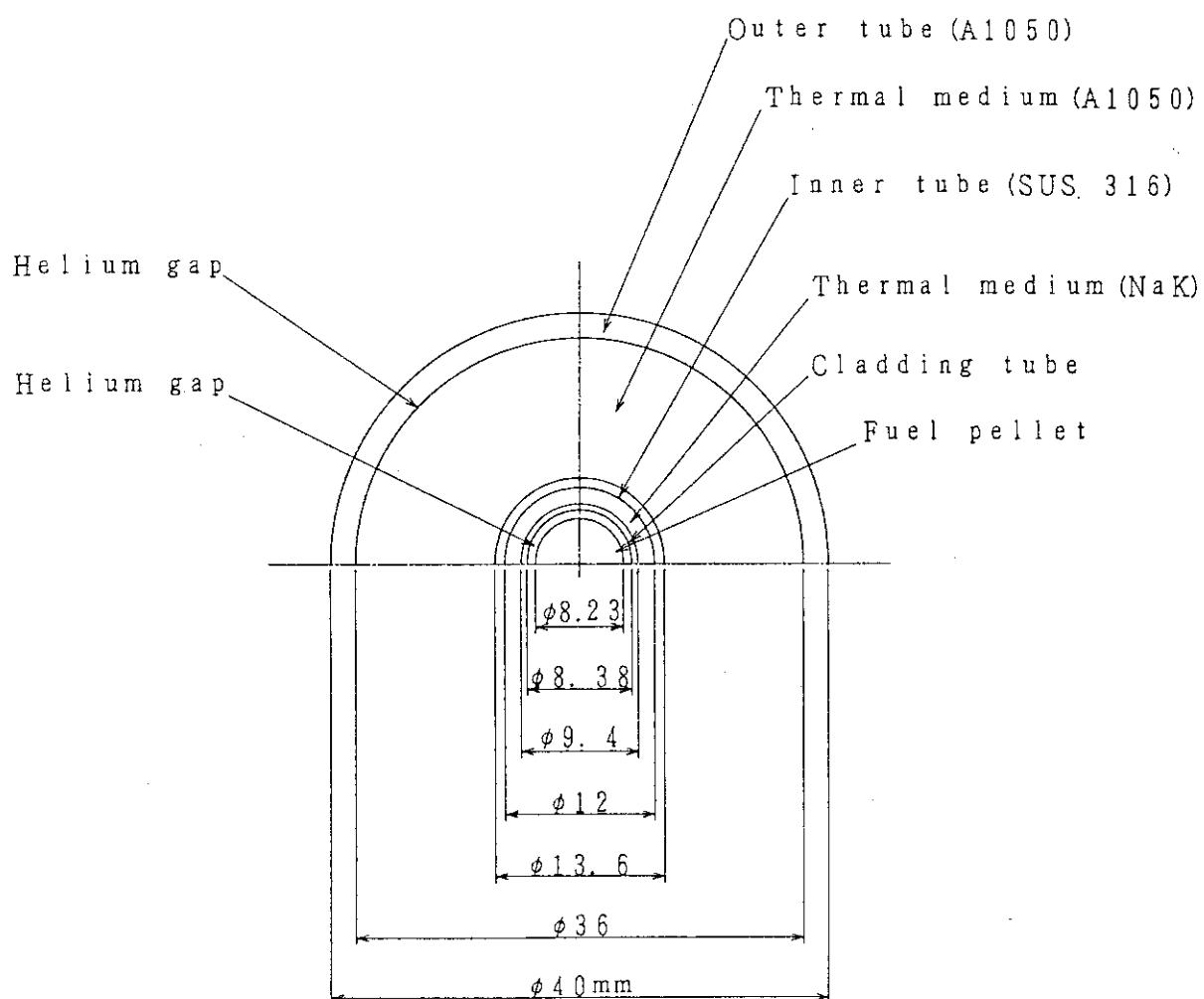


Fig. 2 Radial cross section of irradiated capsule

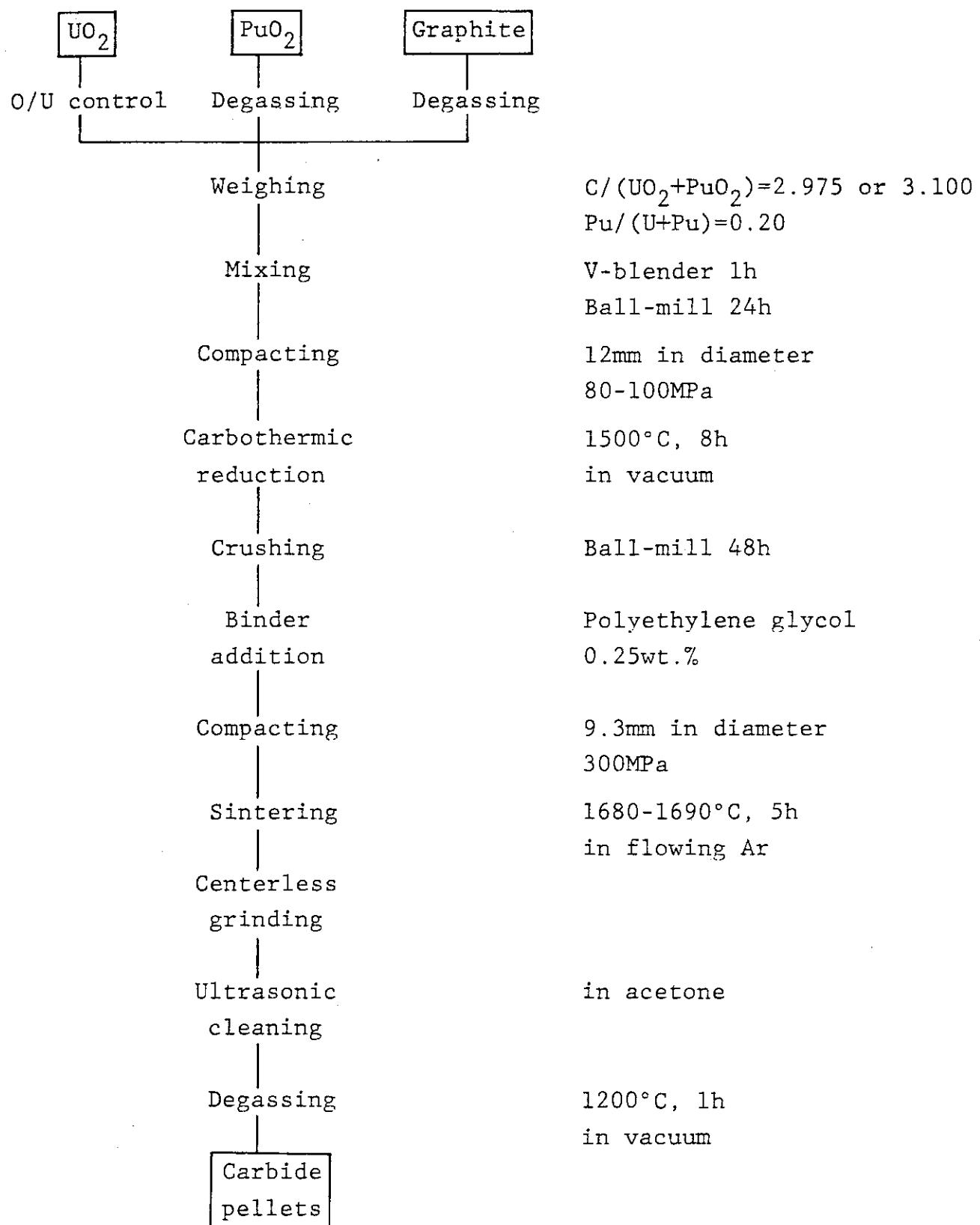


Fig. 3 Flow sheet for the preparation of mixed carbide pellets for irradiation tests

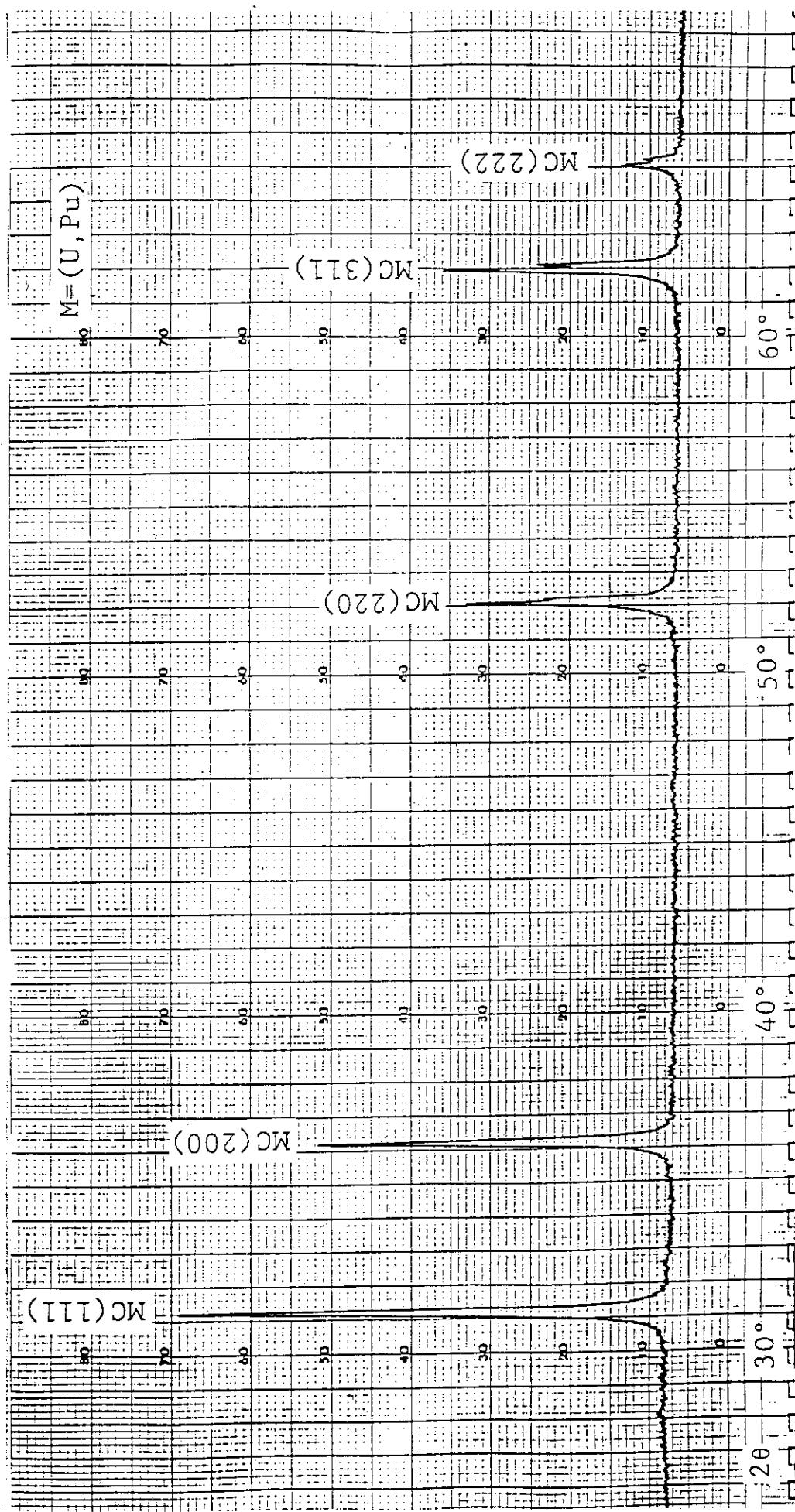


Fig. 4 X-ray diffraction Pattern of near stoichiometric mixed carbide pellet

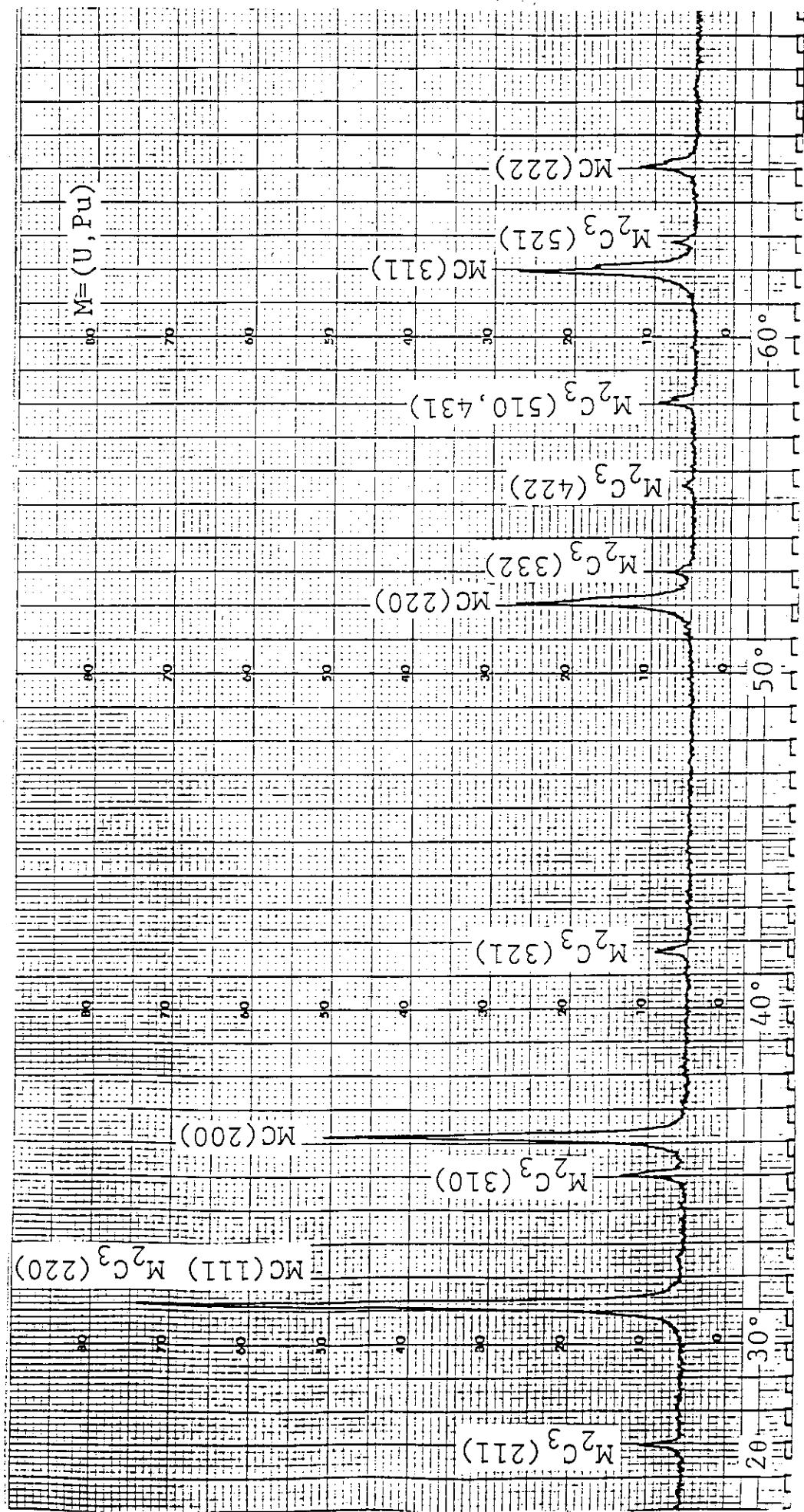


Fig. 5 X-ray diffraction pattern of hyperstoichiometric mixed carbide pellet

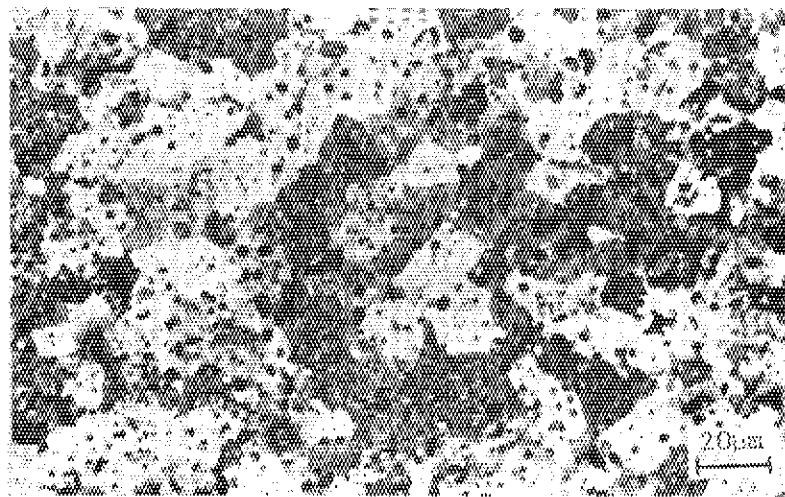


Fig. 6 Microstructure of near stoichiometric mixed carbide pellet

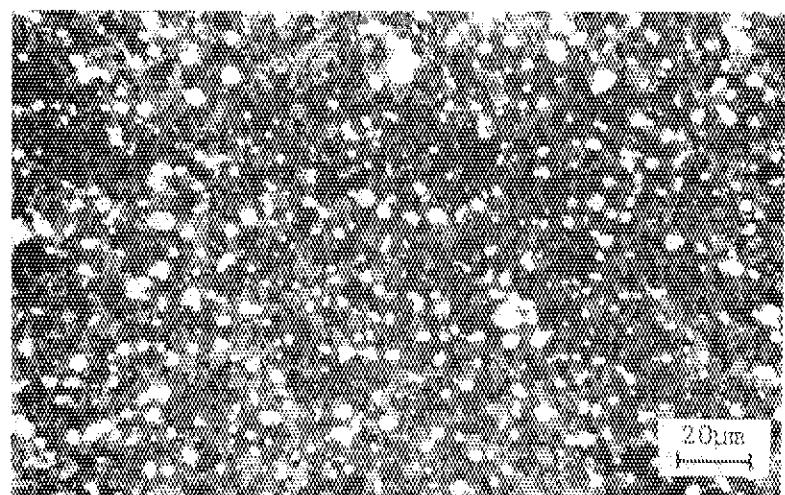


Fig. 7 Microstructure of hyperstoichiometric mixed carbide pellet

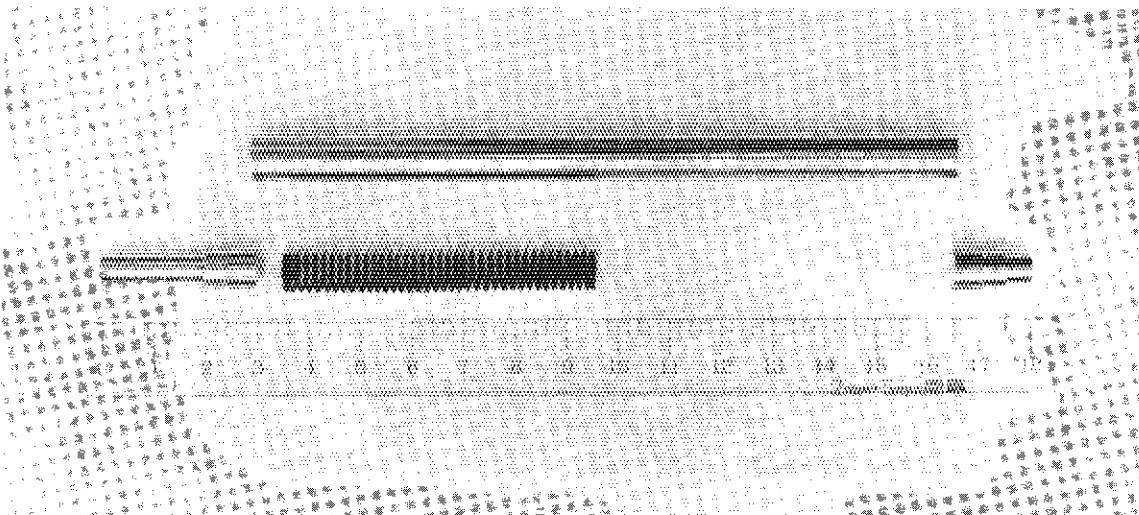


Fig. 8 External appearance of cladding tube, upper and lower endplugs and spring before assembling

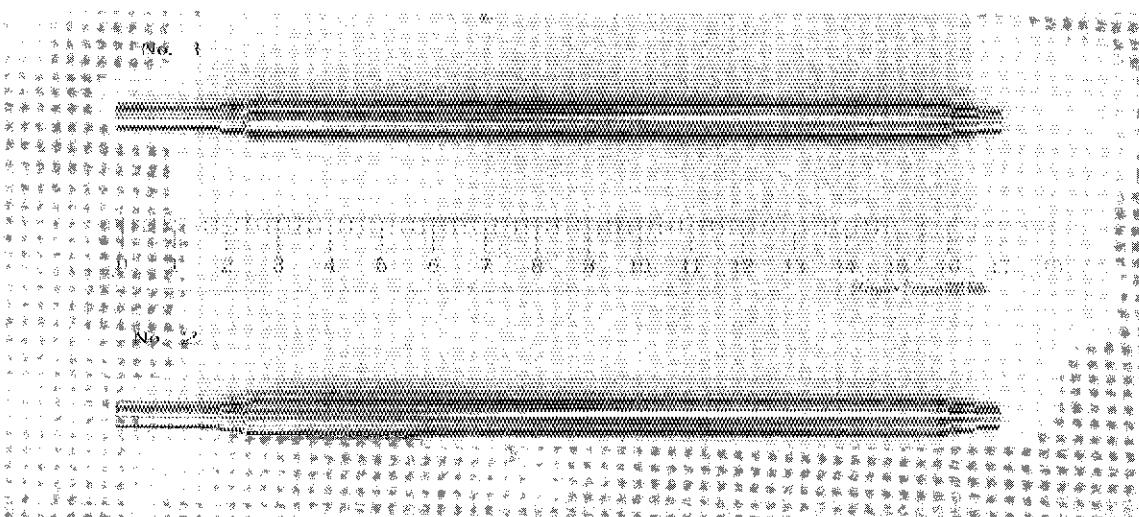


Fig. 10 External appearance of completed fuel pins

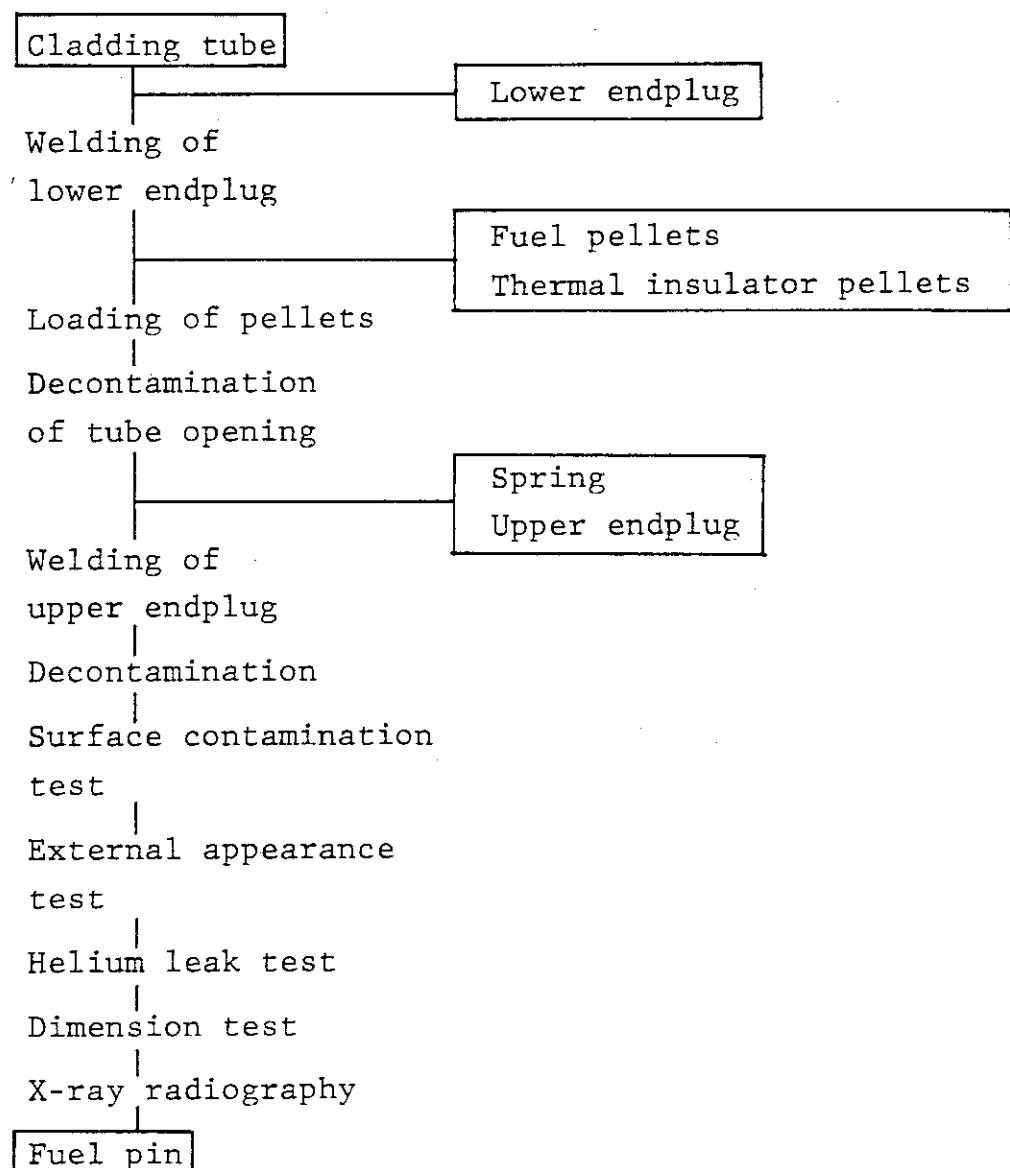


Fig. 9 Flow sheet for the fabrication of mixed carbide fuel pins

録

付

I C F - 47 HIRAKIYA プセノレ用
ウラン・プルトニウム混合炭化ヒツ物燃料
ペレシット及び燃料ビーンの検査報告書

1. 単品検査

- * (U, Pu) C_{1.0} 純成ペレット充填の燃料ビン...No.1と称す
- * (U, Pu) C_{1.1} 純成ペレット充填の燃料ビン...No.2と称す

区分 : I U C 断熱ペレット

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|---|---|-----------------------------------|--------------------------------------|--------------|
| 1. 純成検査 (1)U濃縮度 (2)C/U比 (3)不純物分析 (4)恒温放出ガスの定量 | 天然ウラン 1. 0~1. 3 | 高周波炉熱重量法 不活性ガス溶出重量法 高温真空抽出法 | C/U=1. 30 酸素 ≤ 30 μℓ/g at 1600°C | 他元素については行わざ。 |
| 2. 尺法検査 (1)外高さ (2)高密度 (3) (4) | 8. 23±0. 01 mm 8. 0 ±0. 1 mm 85~95% T. D. | マイクロメータ ノギス 直示天秤法 寸法重量法 | 測定結果報告 89% T. D. | |
| 3. 重量検査 (1)天然ウラン | | 直示天秤及び C/M比より算出 | No.1 ピン 10. 19 g No.2 ピン 10. 40 g | |

図表：II (U, Pu) C 燃料ベレシット

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|---|---|--|---|----|
| 1. 組成検査 | | | | |
| (1) U濃縮度 (2) C / (U+Pu) 比 | 天然ウラン №1ピン 1.00±0.05 №2ピン 1.10±0.05 | 高周波加熱電量法 電位差滴定法 | №1ピン C/M=1.00 №2ピン C/M=1.10 №1ピン 0.190 №2ピン 0.190 | |
| (3) Pu / (U+Pu) 比 (4) Pu同位体比 (5) 不純物分析 (6) 高温放出ガスの定量 | 0.20±0.01 | 質量分析法 不活性ガス溶融電量法 高温真空抽出法 | Pu-239=75.2%, Pu-240=20.6%, Pu-241=3.4%, その他0.8% 酸素 №1ピン 2500 ppm №2ピン 1600 ppm $\leq 300 \mu \text{g/g}$ at 1600°C | |
| 2. 尺法検査 | | | | |
| (1) 外径 (2) 高さ (3) 重量 (4) 密度 | 8.23±0.01 mm 約8.5 mm | マイクロメータ ノギス 直示天秤法 寸法重量法 | 測定結果報告 | |
| 3. 重量検査 | | | | |
| (1) 天然ウラン (2) プルトニウム | | 直示天秤法及び C/M比より算出 直示天秤法及び C/M比より算出 | №1ピン 27.69 g №2ピン 27.68 g №1ピン 6.50 g №2ピン 6.49 g | |

図表 II (U, Pu)C 燃料ベレット (続き)

| | | | |
|---------|--------------------------------------|------------|-------------------|
| 4. 外観検査 | *ペレットに有害な割れピットのないこと。 *表面は清浄であること。 | 目視 外観写真 | 良 |
| 5. 相織検査 | 光学顕微鏡 | 写真提出 | 本文 Fig. 6 及び 7 参照 |

図表 III 被覆管

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|---------|---|--------------------------------------|--|----------------------------|
| 1. 組成検査 | SUS-316相当 | 試験成績書提出 | 試験成績書提出 | |
| 2. 尺寸検査 | 9. 40±0. 02 mm φ 8. 38±0. 02 mm φ 0. 51±0. 02 mm 1.35. 0±0. 1 mm | マイクロメータ マイクロメータ マイクロメータ ノギス | No. 1 ピン 9. 39 mm φ No. 2 ピン 9. 40 mm φ No. 1 ピン 8. 37 mm φ No. 2 ピン 8. 38 mm φ No. 1 ピン 0. 51 mm No. 2 ピン 0. 51 mm No. 1 ピン 1.35. 0 mm No. 2 ピン 1.35. 0 mm | 外径、内径、肉厚、とともに、 管口部両端のみ。 |
| 3. 重量検査 | | 直示天秤法 | No. 1 ピン 1.5. 29 g No. 2 ピン 1.5. 30 g | |
| 4. 外観検査 | *表面は清浄であること。 *有害な欠陥が認められないこと。 | 目視 | No. 1 ピン 良 No. 2 ピン 良 | |
| 5. 欠陥検査 | | 超音波探傷法 | 試験成績書提出 | |

図4: IV 上 - 下部端栓

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|---------|---------------------------------|--------------|--|----|
| 1. 組成検査 | SUS-316L | ミルシート確認 | ミルシート提出 | |
| 2. 寸法検査 | 図面記載通り | マイクロメータ又はノギス | 測定図面提出 | |
| 3. 重量検査 | | 直示天秤法 | No.1ピン 上部端栓 8.51g No.2ピン 下部端栓 5.15g 上部端栓 8.50g 下部端栓 5.16g | |
| 4. 外観検査 | *表面は清潔であること *有害な欠陥が認められないこと。 | 目視 | No.1ピン 良 No.2ピン 良 | |

図5: Vスプリング

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|--|------------------------------|------------------------------|---------------------------------|---|
| 1. 組成検査 | インコネルX | ミルシート確認 | ミルシート提出 | |
| 2. 寸法検査 | φ7.0mm φ0.8mm | ノギス | φ7.0mm φ0.8mm | バネ定数の値 (kg/mm) $K = \frac{G \cdot d^4}{8 \cdot n \cdot D^3}$ |
| (1)コイル中心径 (2)線径 (3)有効巻数 (4)自由長 (5)バネ定数 | 3.7 6.0mm 0.0303 kg/mm | 3.7 6.0mm 0.0303 kg/mm | n = 37 6.0mm 0.0303 kg/mm | より算出。但し G: 機械性係数(1.33X)の場合 7,500 kg/mm ² d: コイル線径 n: 有効巻数 D: コイル中心径 |
| 3. 重量検査 | | 直示天秤法 | No.1ピン スプリング No.2ピン スプリング | 3.50g 3.49g |

2. 組立途中検査

図ナメ： I ベレシストスタック長

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|------------------------------|---------|--------|----------------------------------|----|
| 1. (U, Pu) C 燃料 ペレットスタック長 | 60±1 mm | ノギス | No.1ピン 59.8 mm No.2ピン 59.9 mm | |
| 2. 全スタック長 (燃熱UCペレットを含む) | 76±1 mm | ノギス | No.1ピン 75.8 mm No.2ピン 75.9 mm | |

図ナメ： II ベレシスト重量

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|-----------|------|-----------------------------|---|----|
| 1. 天然ウラン | | 直示天秤及び C/U, C/M比より 算出 | No.1ピン 37.88 g No.2ピン 38.08 g 計 75.96 g | |
| 2. プルトニウム | | | No.1ピン 6.50 g No.2ピン 6.49 g 計 12.99 g | |

図ナメ： III 組立途中の写真

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|-----------|--------|--------|--------|-------------|
| 1. 構成部材写真 | 寸法判別可能 | 写真撮影 | 写真提出 | 本文Fig. 8 参照 |

3. 標準ビニンの完成度検査区分：I 洗拂式試験

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|------------|--------------------------------|--------|----------------------------------|--------------------------------------|
| 1. Heリーフ試験 | 1×10^{-8} atm.cc/S 以下 | ベルジヤ一法 | No.1 ピン 検出感度以下 No.2 ピン 検出感度以下 | 2×10^{-10} atm.cc/S 検出感度 |

区分：II 表面汚染度検査

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|----------|--|--------|----------------------------------|---|
| 1. 表面汚染度 | $20 \text{ dpm} / 100 \text{ cm}^2$ 以下 | スミヤ法 | No.1 ピン 検出感度以下 No.2 ピン 検出感度以下 | $20 \text{ dpm} / 100 \text{ cm}^2$ 検出感度 |

区分：III 穴詰法検査

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|----------|------------------------|--------|--|----|
| 1. 直立後全長 | $170 \pm 1 \text{ mm}$ | ノギス | No.1 ピン 169. 9 mm No.2 ピン 169. 9 mm | |

図表 IV 真直度検査

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|-----------|--------|----------|------------------------------------|----|
| 1. 直立後真直度 | 1／全長mm | プロフィロメータ | No.1ビン 0.01／133 No.2ビン 0.01／133 | |

図表 V 重量検査

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|-----------|------|--------|--------------------------------|----|
| 1. 直立後全重量 | | 直示天秤法 | No.1ビン 78.61g No.2ビン 78.93g | |

図表 VI 溶接部X線検査

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|--------------|--------------|--------|------------|----|
| 1. 上・下部端栓溶接部 | J I S Z 3106 | X線透過法 | | |
| 2. 全体X線透過程 | 1級以上 | | 合格 写真提出 | |

図表 VII 外観検査

| 項目 | 品質規格 | 試験検査方法 | 試験検査記録 | 備考 |
|----|---|--------|--------|---------------|
| | *表面に欠陥がないこと **十分に清浄であること ***溶接部に割れ傷等で有害な ものがないこと | 目視 | 良 | 本文 Fig. 10 参照 |