

JAERI-M

88-219

ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の
低線出力(第1回)照射及び照射後試験

1988年11月

前多 厚^{*}・ 笹山 龍雄・ 岩井 孝・ 相沢 作衛
大和田 功・ 相沢 雅夫・ 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.

ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低線出力
(第1回) 照射及び照射後試験

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

前多 厚^{*}・笹山 龍雄・岩井 孝・相沢 作衛⁺
大和田 功⁺・相沢 雅夫⁺⁺・大道 敏彦・半田 宗男

(1988年10月3日受理)

化学量論組成の異ったウラン・プルトニウム混合炭化物燃料 (U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} を充填した 2 本の燃料ピンを 1 体のキャップセル、1CF-37H に組込んで、JRR-2 を用いて 420 w/cm の線出力で 1.0 at.% 燃焼度まで照射した。約 1 年間冷却した後照射キャップセルを燃料試験施設へ搬入して、 β ・ γ セルにおいて非破壊試験を、不活性ガス雰囲気に置換できる 2 つの α ・ γ セルで破壊検査を実施した。

低線出力及び低燃焼度であったため燃料ピンの寸法変化は観測されなかった。 (U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ピンからの FP ガス放出量はそれぞれ 0.44 % 及び 0.09 % で、照射時の燃料中心温度が約 1000 °C であることから、反跳及びノックアウト機構による放出と推測した。体積スエリング率は 1.3 ~ 1.6 % で、これまで文献に報告されている 1000 °C 以下の自由スエリング率と一致した。開気孔率は (U, Pu) C_{1.0} 燃料で 1.3 %, (U, Pu) C_{1.1} 燃料で 0.45 % であり、FP ガス放出挙動と符合している。燃料ペレット中の気孔及び結晶粒度の成長は、 (U, Pu) C_{1.0} 燃料の半径方向断面の中央部及び中間部のみで観測された。この結果は、照射下における (U, Pu) C_{1.0} 燃料中の U, Pu 及び C の自己拡散速度が (U, Pu) C_{1.1} 燃料に比べて大きいという燃料の基本特性から説明できる。燃料と被覆材の化学的相互作用は炭化物燃料ではステンレス鋼被覆材への浸炭現象であるが、 (U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料で被覆管内壁の腐食厚さは、それぞれ 10 ~ 15 μm 及び 15 ~ 25 μm で、浸炭を支配する燃料の炭素ポテンシャルの大きさと合致している。

以上述べたように我が国で初めてウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの 1.0 at.% 燃焼度までの照射健全性を実証することに成功した。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根 2-4

+ 実用燃料試験室

++ 研究炉管理部

* 科学技術庁

Post irradiation examinations of uranium-plutonium mixed carbide fuels
irradiated at low linear power rate

Atsushi MAEDA^{*}, Tatsuo SASAYAMA, Takashi IWAI, Sakuei AIZAWA⁺
Isao OHWADA⁺, Masao AIZAWA⁺⁺, Toshihiko OHMICHI and Muneo HANDA

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

(Received October 3, 1988)

Two pins containing uranium-plutonium carbide fuels which are different in stoichiometry, i.e. $(U,Pu)C_{1.0}$ and $(U,Pu)C_{1.1}$, were constructed into a capsule, ICF-37H, and were irradiated in JRR-2 up to 1.0 at % burnup at the linear heat rate of 420 W/cm. After being cooled for about one year, the irradiated capsule was transferred to the Reactor Fuel Examination Facility where the non-destructive examinations of the fuel pins in the $\beta - \gamma$ cells and the destructive ones in two $\alpha - \gamma$ inert gas atmosphere cells were carried out.

Dimensional changes of the fuel pins were not observed because of the irradiation at the low linear power rate and to the low burnup. The release rates of fission gas were low enough, 0.44 % from $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin and 0.09 % from $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin, which is reasonable because of the low central temperature of fuel pellets, about 1000 °C and is estimated that the release is mainly governed by recoil and knock-out mechanisms. Volume swelling of the fuels was observed to be in the range of 1.3~1.6 % which agreed with values of free swelling reported for carbide fuels below 1000 °C. Respective open porosities of $(U,Pu)C_{1.0}$ and $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel were 1.3 % and 0.45 %, being in accordance with the release behavior of fission gas. Metallographic observation of the

+ Department of Reactor Fuel Examination

++ Department of Reserach Reactor Operation

* Nuclear Material Regulation Division

radial sections of pellets showed the increase of pore size and crystal grain size in the center and middle region of $(U,Pu)C_{1.0}$ pellets. This was explained from the basic property of carbide fuels that U, Pu and C diffuse faster in the $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel than in the $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel during irradiation. The chemical interaction between fuel pellets and claddings in the carbide fuels is the penetration of carbon in the fuels to stainless steel tubes. The depth of corrosion layer in inner sides of cladding tubes ranged $10\sim 15 \mu m$ in the $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel and $15\sim 25 \mu m$ in the $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel, which is correlative with the carbon potential of fuels possibly affecting the amount of carbon penetration.

As described above, the first irradiation experiment of uranium-plutonium mixed carbide fuel in Japan has been completed in success and the irradiation behaviors of the carbide fuel pins up to a burnup of 1.0 at.% was certified.

Keywords: Uranium-Plutonium Mixed Carbide, Post-irradiation Examination, Alpha-gamma Inert Gas Atmosphere Cell

目 次

1. まえがき	1
2. ウラン・プルトニウム混合炭化物及び窒化物 燃料の照射試験の現状及び計画	3
3. 照射用燃料ピン及びキャップセルの設計並びに製作	5
3.1 混合炭化物燃料ピン	5
3.2 キャップセル, 1 CF-37 H	5
4. JRR-2による照射	12
5. 照射後試験	14
5.1 燃料試験施設	14
5.2 照射後試験計画書	15
5.3 照射後試験の方法, 結果及び考察	15
5.3.1 キャップセルの搬入	15
5.3.2 キャップセルの外観検査	15
5.3.3 キャップセルのX線透過撮影	16
5.3.4 キャップセルの放射線測定	16
5.3.5 外筒解体及び中性子束モニタの回収	16
5.3.6 中性子束モニタの搬出及び中性子照射量	17
5.3.7 内筒外観検査	17
5.3.8 内筒解体及びNaK処理	17
5.3.9 燃料ピンの外観検査	18
5.3.10 燃料ピンの放射線測定	18
5.3.11 燃料ピンのX線透過撮影	18
5.3.12 燃料ピンの移送	19
5.3.13 燃料ピンの重量測定	19
5.3.14 燃料ピンのγ線スキャニング	19
5.3.15 燃料ピンの寸法及び曲り測定	20
5.3.16 パンクチャ試験	21
5.3.17 FPガスの組成分析及び放出率	22
5.3.18 燃料ピンの粗切断	23
5.3.19 燃料ピンへの樹脂注入	23
5.3.20 燃料ピンの細切断	23
5.3.21 燃料ピンからの脱ミート	23
5.3.22 燃料ペレットの密度測定	24
5.3.23 燃料ペレットの開気孔率測定	24

5.3.24 燃料ペレット等の金相試験前処理	24
5.3.25 燃料ペレットのマクロ写真撮影	25
5.3.26 燃料ペレットの気孔分布測定	25
5.3.27 燃料ペレットの金相写真撮影	26
5.3.28 燃料ペレットの結晶粒度測定	26
5.3.29 燃料ペレットのモザイク写真撮影	26
5.3.30 燃料ペレットのオートラジオグラフ分析	26
5.3.31 燃料ペレットのマイクロ α 線スキャニング	27
5.3.32 被覆管の金相写真撮影	27
5.3.33 被覆管の腐食厚さ	28
5.3.34 被覆管の結晶粒度測定	28
5.3.35 被覆管の硬度測定	29
6.まとめ	105
7.あとがき	108
参考文献	109

JAERI-M 88-219 正誤表

頁	行	誤	正
V	上から7行目	1CF-37 H	ICF-37 H
3	タイトル	窒化物	窒化物
3	下から2行目	動熱団	動燃団

Contents

1. Introduction	1
2. Irradiation program of uranium-plutonium mixed carbide and nitride fuels	3
3. Design and preparation of fuel pins and capsule	5
3.1 Mixed carbide fuel pins	5
3.2 Capsule, ICF-37H	5
4. Irradiation at JRR-2	12
5. Post-irradiation examination	14
5.1 Reactor Fuel Examination Facility	14
5.2 Scheme of post-irradiation examination	15
5.3 Methods, results and discussion	15
5.3.1 Transportation of capsule into cell	15
5.3.2 Appearance of capsule	15
5.3.3 X-ray radiograph of capsule	16
5.3.4 Radiation rate measurement of capsule	16
5.3.5 Disassembly of outer tube of capsule and recovery of neutron fluence monitors	16
5.3.6 Determination of neutron irradiation dose	17
5.3.7 Appearance of inner tube of capsule	17
5.3.8 Disassembly of the inner tube and treatment of NaK	17
5.3.9 Appearance of fuel pins	18
5.3.10 Radiation rate measurement of fuel pins	18
5.3.11 X-ray radiograph of fuel pins	18
5.3.12 Movement of fuel pins to α - γ cell	19
5.3.13 Measurement of fuel pin weight	19
5.3.14 Gamma-scanning of fuel pins	19
5.3.15 Profilometry of fuel pins	20
5.3.16 Puncture test	21
5.3.17 Analysis of FP gas	22
5.3.18 Cutting of fuel pins	23
5.3.19 Filling of resin into fuel pins	23
5.3.20 Sectioning of fuel pins	23
5.3.21 Removal of fuel pellets from pins	23
5.3.22 Density of fuel pellets	24
5.3.23 Open porosity of pellets	24
5.3.24 Preparation of specimens for metallography	24

5.3.25 Macroscopic photography of radial cross-section of pellets	25
5.3.26 Pore distribution in pellets	25
5.3.27 Microscopic photography of pellets	26
5.3.28 Grain size of fuel	26
5.3.29 Mosaic microscopic photography of pellets	26
5.3.30 Auto radiography of pellets	26
5.3.31 Micro gamma scanning of pellets	27
5.3.32 Metallography of cladding tubes	27
5.3.33 Corrosion depth of cladding tubes	28
5.3.34 Grain size of cladding	28
5.3.35 Hardness of cladding tubes	29
6. Summary	105
7. Conclusion	108
References	109

List of Tables

- Table 2.1 Irradiation program of helium bonded mixed carbide and nitride fuels in JAERI
- Table 3.1 Fuel design characteristics (ICF-37H capsule)
- Table 4.1 Irradiation history of ICF-37H capsule in JRR-2
- Table 5.1 Method and results of the radiation rate measurement for ICF-37H capsule
- Table 5.2 Neutron fluence of ICF-37H capsule measured by fluence monitors
- Table 5.3 Method and results of the radiation rate measurement for fuel pins
- Table 5.4 Axial length of $(U, Pu)C_{1.0}$ and $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pins
- Table 5.5 Results of puncture tests
- Table 5.6 Determination of the composition and volume of FP gas
- Table 5.7 Density and porosity of fuel pellets
- Table 5.8 List of sample names for measurements
- Table 5.9 Results of analysis of pore distribution for $(U, Pu)C_{1.0}$ fuel pellet
- Table 5.10 Results of analysis of pore distribution for $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pellet
- Table 5.11 Results of grain size measurement for fuel pellets
- Table 5.12 Results of grain size measurement for pin claddings
- Table 5.13 Results of micro vickers hardness of pin claddings

List of Figures .

- Fig.3.1 Mixed carbide fuel pin for irradiation test
- Fig.3.2 Cross section of ICF-37H capsule
- Fig.3.3 Relation between radial temperature distribution and linear heat rate of fuel pin
- Fig.3.4 Structure of ICF-37H capsule
- Fig.4.1 Temperature record of ICF-37H capsule under irradiation
- Fig.5.1 Layout of RFEF (Reactor Fuel Examination Facility) functional area (1st floor)
- Fig.5.2 Layout of the alpha-gamma cell facility of RFEF (1st floor)
- Fig.5.3 Longitudinal cross section of the alpha-gamma cell facility of RFEF
- Fig.5.4 Layout of device in the alpha-gamma concrete cell No.1
- Fig.5.5 Layout of device in the alpha-gamma concrete cell No.2 and lead cells
- Fig.5.6 Flow sheet of post-irradiation examination for uranium-plutonium mixed carbide fuel
- Fig.5.7 Post-irradiation examination program in the alpha-gamma cell line
- Fig.5.8 Apparatus for X-ray radiography of capsule
- Fig.5.9 X-ray radiography of the fuel pins
- Fig.5.10 Apparatus for gamma ray scanning of the fuel pins
- Fig.5.11 Gamma ray spectrum at the center of the fuel stack of $(U, Pu)C_{1.0}$ pin
- Fig.5.12 Gamma ray spectrum at the center of the fuel stack of $(U, Pu)C_{1.1}$ pin
- Fig.5.13 Gamma ray spectrum at upper thermal insulator UC pellet of $(U, Pu)C_{1.0}$ pin
- Fig.5.14 Gamma ray spectrum at upper thermal insulator UC pellet of $(U, Pu)C_{1.1}$ pin
- Fig.5.15 Gamma ray spectrum at plenum of $(U, Pu)C_{1.1}$ pin
- Fig.5.16 Axial distribution of gross gamma ray for $(U, Pu)C_{1.0}$ and $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pins

Fig.5.17 Distribution of ^{137}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ and $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pins

Fig.5.18 Distribution of ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{95}Nb and ^{134}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin

Fig.5.19 Distribution of ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{95}Nb and ^{134}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin

Fig.5.20 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin at 0°

Fig.5.21 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin at 45°

Fig.5.22 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin at 90°

Fig.5.23 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin at 135°

Fig.5.24 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin at 0°

Fig.5.25 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin at 45°

Fig.5.26 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin at 90°

Fig.5.27 Results of measurements of diameter and bowing for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin at 135°

Fig.5.28 Apparatus for puncture test

Fig.5.29 Sectioning for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ pin

Fig.5.30 Sectioning for $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ pin

Fig.5.31 Pore distribution of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pellet

Fig.5.32 Pore distribution of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pellet

Fig.5.33 Gamma ray spectrum at center of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pellet section

Fig.5.34 Gamma ray spectrum at center of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pellet section

Fig.5.35 Micro gamma scanning of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pellet

Fig.5.36 Micro gamma scanning of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pellet

Fig.5.37 Hardness of pin cladding

List of Photographs

- Photo.3.1 External view and X-ray radiograph of the carbide fuel pins
- Photo.3.2 External view of ICF-37H capsule
- Photo.5.1 Loading of ICF-37H capsule to RFEF
- Photo.5.2 Appearance of ICF-37H capsule after irradiation
- Photo.5.3 X-ray radiograph of ICF-37H capsule
- Photo.5.4 Disassembly of ICF-37H capsule
- Photo.5.5 Appearance of the inner tube of the ICF-37H capsule
- Photo.5.6 (U,Pu)C_{1.0} fuel pin (ICF-37-1)
- Photo.5.7 (U,Pu)C_{1.1} fuel pin (ICF-37-2)
- Photo.5.8 X-ray radiograph of fuel pins
- Photo.5.9 Removal of fuel and the fuel pellet fragments
- Photo.5.10 Sectional photograph of (U,Pu)C_{1.0} fuel pin
- Photo.5.11 Sectional photograph of (U,Pu)C_{1.1} fuel pin
- Photo.5.12 Microphotographs for the center, intermediate and outer parts
of fuel pellets
- Photo.5.13 Microstructure of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet
- Photo.5.14 Microstructure of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet
- Photo.5.15 Microstructure of unirradiated fuel pellets
- Photo.5.16 Mosaic photograph of (U,Pu)C_{1.0} fuel pin
- Photo.5.17 Mosaic photograph of (U,Pu)C_{1.1} fuel pin
- Photo.5.18 Alpha and beta-gamma radiograph of fuel pellets
- Photo.5.19 Macro- and microstructures of (U,Pu)C_{1.0} fuel pin cladding
- Photo.5.20 Macro- and microstructures of (U,Pu)C_{1.1} fuel pin cladding
- Photo.5.21 Macro- and microstructures of unirradiated cladding
- Photo.5.22 Traces of vickers hardness measurement for cladding

1. まえがき

ウラン・プルトニウム混合炭化物及び窒化物燃料は、現在高速炉用標準燃料として使用されている混合酸化物燃料に比べて、核分裂性物質密度が33～38%，また熱伝導度が3～5倍も大きく、高速炉燃料として潜在的に優れた特性を有している。このため、これらの燃料を装荷した高速炉は、酸化物燃料の約半分に相当する10年前後の短い燃料倍増時間を達成することができる。

混合炭化物及び窒化物燃料は、効果的に除熱することが可能であり、ステンレス鋼被覆管の温度を酸化物燃料と同様に650°C以下に保持して、9～10 mm外径の太径の燃料ピンを採用することにより、800～1000 W/cmの高線出力を達成することができる。これに対して、混合酸化物燃料ピンの外径及び線出力は、除熱の制約から6～7 mm（スーパーフェニックス炉の酸化物燃料ピンの外径は8.5 mmであるが中空型ペレットを使用している）の細径で、線出力も400～500 W/cmに限定されている。炭化物及び窒化物燃料も酸化物とほぼ同一の燃焼度を達成できるので、これらの燃料ピンは、細径の酸化物燃料に比べてピン当たり約2倍のエネルギーを取出すことができ、燃料サイクル費を大幅に低減できる。さらに、燃焼に伴う燃料欠損反応度、 $\Delta k/k$ が小さく安全な原子炉を実現できる等短い燃料倍増時間に加えて経済性及び安全性の観点から近年再評価されている¹⁾。

フランスは1984年にスイスの連邦原子炉研究所（EIR）で開催されたIAEA主催の高速炉燃料諮問委員会において、炭化物燃料を直接硝酸に溶解した場合、ショウ酸プルトニウムが形成され、この錯塩はTBP有機相にはほとんど抽出されず、ピューレックス法を適用するためには光化学反応等で分解させる工程が必要であることから開発目標を炭化物燃料から窒化物燃料へ変更することを発表した²⁾。一方、西独は炭化物燃料の照射実績及び窒化物燃料に比べて照射クリープ速度が大きく燃料と被覆材の機械的相互作用を緩和できることから炭化物燃料の開発を継続している。

フランス及び西独の窒化物及び炭化物燃料路線に対して、米国は1960～70年におけるEBR-IIのU-Fs合金の8～10 at.%燃焼度までの照射健全性の実証を基礎に、基礎研究として1984年から金属燃料（U-Pu-Zr合金）と高温化学再処理法（溶融塩抽出と電解製練）を組合せた革新的高速炉燃料サイクルに着手した。これに伴って、設計、安全解析及び主要原子炉構成部品の製作をほぼ終了していた同国の混合酸化物燃料炉心高速原型炉の建設は断念された³⁾。

さて、我が国における炭・窒化物燃料の研究開発の場として、昭和49年原研大洗研究所に燃料研究棟が建設された⁴⁾。同棟ではこれまでに目的とした組成、組織、密度及び形状を有した混合炭化物燃料ペレットの調製技術を確立したのに続いて⁵⁾、化学分析、X線分析、金相試験、蒸発性不純物ガス定量等の特性試験についても独自な技術開発を終了している⁶⁾。さらに、昭和57年には化学量論組成の異った燃料を用いた2本の照射用短尺燃料ピンの製作に成功し、翌58年にはこれらの燃料ピンを東海研究所に輸送してキャップセルに組込んでJRR-2インコアにおいて低線出力、420 W/cmで照射を開始し、59年7月までの6サイクル、燃焼度約1 at.%まで照射を行った。約1年間同炉の燃料貯蔵ボンドで冷却した後燃料試験施設へ運搬した。60年7月から

照射後試験に着手し、62年3月に全試験を終了した。これにより我が国で初めてウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の照射健全性を実証することができた。

本報告書は、この第1回照射の化学量論組成の異った混合炭化物燃料を用いた2本の短尺燃料ピンの照射後試験を中心に、照射キャップセルの設計及び製作並びにキャップセルによる照射等について取りまとめたものである。なお、照射した2本の燃料ピンの製作についてはすでに詳しい報告書があるので参考されることを願う⁷⁾。

2. ウラン・プルトニウム混合炭化物及び窒化物燃料の照射試験の現状及び計画

前章では、低出力（第1回）照射混合炭化物燃料ピンの製作、照射及び照射後試験の経緯について紹介したが、この照射に統いておおよそ1キャップセル／年の割合で線出力及び燃焼度を徐々に上昇させた照射及び燃料母材中に大きな気孔を分散させた熱安定型燃料などJRR-2、2回及びJMTR 3回の合計5回の混合炭化物燃料の照射を実施または計画中である。混合炭化物燃料の照射の現状をまとめてTable 2.1に示す。

第1回混合炭化物燃料の照射は、高速原型炉、もんじゅ用に開発された外径6.5 mmの細径の316オーステナイト系ステンレス鋼被覆管を用いたために線出力は420 W/cmに制約された。このため、第2回照射以降は1981年サンフランシスコで開催されたPNC-DOE高速炉燃料・材料会議を経由して米国の新型燃料開発プログラム⁸⁾で使用されている大型高速実験炉、FETF第4炉心用に開発された316ステンレス鋼を用いて製作された外径9.40 mmの太径の被覆管を入手して用いている。第2回照射は、第1回と同様にJRR-2インコアで10サイクル照射し、燃焼度は16at.%と第1回をわずかに上回ったに過ぎないが、線出力は650 W/cmまで上昇させることができた。また、本照射では燃料と被覆管の機械的相互作用(FCMI)を緩和することができる低密度燃料ペレット(83～84%T.D.)を採用した。統いて、原子炉をJMTRに代えて、第3回及び第4回照射は、同様に低密度ペレットを用いて、それぞれ3 at.%及び6 at.%燃焼度を目標に昭和61年に照射に着手した。後者では低密度ペレットに加えて、さらにFCMIを低減できるチャンファ型ペレットを採用した。この他、第1回から第4回までの照射では、燃料と被覆材の化学的相互作用(炭化物燃料の場合は被覆管への炭素の移行)と燃料の化学量論性の関係を明らかにする目的で、化学量論組成、(U,Pu)C_{1.0}及び第2相の(U,Pu)₂C₃を20%含んだ超化学量論組成、(U,Pu)C_{1.1}の燃料ペレットを充填した燃料ピンを製作して、これを上下に重ねた状態で1体のキャップセルに組込んで照射している。燃料ピン内の燃料ペレットのスタック長は、熱計算において縦方向の熱の損失をほぼ無視できる100 mmを採用している。第5回照射用の熱安定混合炭化物燃料ピンの製作は、昭和62年度に終了しており、63年度内にキャップセルに組込みJMTRで照射を開始する予定である。

炭化物燃料の照射に統いて、混合窒化物燃料のJMTRによる照射を計画している。昭和61年度から、まず水素-窒素混合ガス気流中で炭素熱還元反応を行い、窒化物燃料を調製する実験を始めた。原料物質の炭素と二酸化ウラン及びプルトニウムの混合比及び1773Kでの加熱時間を変数とした実験を行い、ほぼ目標とした混合窒化物燃料の製造条件を確立した⁹⁾。また、昭和62年度に焼結性に関する試験も進め、照射用燃料ペレットの製造条件の検討もすでに終了している。窒化物燃料の照射は2回を予定しており、照射試験は炭化物燃料の最後の2回に相当するものを行う。

JRR-2及びJMTRの照射実績をもとに、昭和67年度を目標に高速実験炉、常陽による炭化物及び窒化物燃料ピンの照射を動熱団との共同研究として実施する予定である。以上に述べた窒化物燃料のJMTR照射及び常陽による照射計画を合せてTable 2.1に示す。

Table 2.1 Irradiation program of helium bonded mixed carbide and nitride fuels in JAERI

Irradiation test No.	Irradiation objective	Fuel pellet			Fuel pin			Irradiation			PIE Year	
		Fuel composition	density (%Ti)	Characteristic	Outer dia. (mm)	No. of pin	Stack length (mm)	Reactor	Year	Linear power (W/cm)	Burnup (MWd/kg)	
1	Lower linear power	(U,Pu)C _{1.0}	90	High density	6.5	2	96	JRR-2	1983~1984	420	10	1986
	Lower burnup	(U,Pu)C _{1.1}	93	Small diameter								
2	Medium linear power	(U,Pu)C _{1.0}	83	Low density	9.4	2	60	JRR-2	1985~1986	640	13	1987
	Low burnup	(U,Pu)C _{1.1}	84	Large diameter								
3	Medium linear power	(U,Pu)C _{1.0}	84	Low density	9.4	2	100	JMTR	1986~1988	600	30	1989
	Medium burnup	(U,Pu)C _{1.1}	81	Large diameter								
4	Medium linear power	(U,Pu)C _{1.0}	82	Low density	9.4	2	100	JMTR	1986~1989	650	60	1990
	High burnup	(U,Pu)C _{1.1}	82	Large diameter Chamferd pellets								
5	High linear power	(U,Pu)C _{1.05}	85	Low density	9.4	1	200	JMTR	1988~1991	800	60	1991
	High burnup			Large diameter Thermally stable pellets								
6	Medium linear power	(U,Pu)N _{1.0}	80	Low density	9.4	2	100	JMTR	1989~1992	650	60	
	High burnup		1 85	Large diameter								
7	High linear power	(U,Pu)N _{1.0}	80	Low density	9.4	2	100	JMTR	1990~1993	800	60	
	High burnup		1 85	Large diameter Thermally stable pellets								
8	High linear power	(U,Pu)C _{1.0}	80	Low density	9.4	5	500	JOYO	1992~1994	800	80	
	High burnup	(U,Pu)C _{1.1}	85	Large diameter Thermally stable pellets								
	Fast reactor irradiation	(U,Pu)N _{1.0}										

3. 照射用燃料ピン及びキャプセルの設計並びに製作

3.1 混合炭化物燃料ピン⁷⁾

照射した2本の混合炭化物燃料ピンの形状は同一であり、その寸法をFig. 3.1に示す。外径寸法は6.50 mmで、全長は185 mmである。2本の燃料ピンは、上下に重ね合せた状態で照射キャプセル、ICF-37 Hに組み込まれた。化学量論組成及び超化学量論組成の混合炭化物燃料ペレットを充填した燃料ピンをそれぞれICF-37-1及びICF-37-2と以後呼称する。2本の燃料ピンの特性をまとめてTable 3.1に示す。燃料ペレットのC/U+Pu比は1.00及び1.09であり、Pu/U+Pu比は両者ほぼ同一で0.205及び0.204である。ペレット密度は、それぞれ90及び93%T.D.である。燃料ペレットの(U,Pu)Cスタック長は両者ともに95.8 mmで上下に1個ずつの断熱用ウラン炭化物ペレットが装荷されている。被覆管材質は、20%冷間加工した316ステンレス鋼でその厚さは、0.46～0.47 mmである。燃料ペレットと被覆管との熱媒体は1気圧に充填したヘリウムガスであり、その間隙は直径で0.16及び0.17 mmである。

照射前試験として、燃料ピンのX線透過撮影を行い、上下端栓の溶接部等に欠陥がないことを確認した。X線透過像及び燃料ピン構成部品をPhoto. 3.1に示す。

3.2 キャプセル、ICF-37 H

キャプセルの設計及び製作は、研究炉管理部研究炉利用課及び技術部工作課により行われた。JRR-2インコア用のキャプセルの外径は40 mmと定められており、プルトニウム系燃料の場合は外筒及び内筒の2重構造が安全上必要とされている。さらに、被覆材温度は、ステンレス鋼のクリープ強度（最大許容温度、650 °C）及び実用燃料の被覆材温度（650～400 °C）等から考えて500 °C前後に保持する必要がある。一方、炭化物燃料の特性を十分に生かすためには、出来るだけ高線出力（最大1000 W/cm）で照射したいという要望があった。これらを満足させるため、燃料ピンとキャプセル間の熱媒体には熱伝導性に優れたNa K合金を使用すること、内筒は温度の点からステンレス鋼を用いるが、外筒はステンレス鋼よりも熱伝導の良いアルミニウムを用いること、内筒と外筒間の熱媒体であるアルミニウムは内筒と共に引きにより成型加工を行うこと及びこの熱媒体と外筒の間隙は照射後に解体が可能な限界値である直径で0.1 mmを採用することとした。

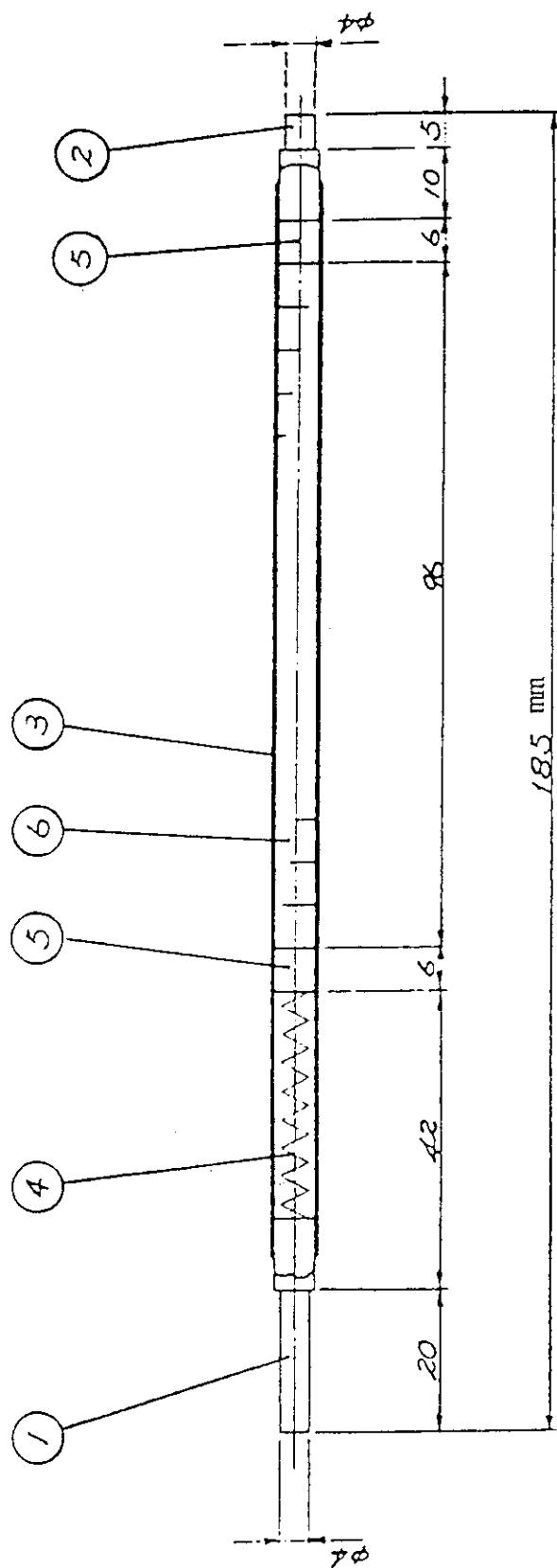
以上に述べた条件で設計したキャプセルの断面の寸法をFig. 3.2に示す。次に同図に示した構造で燃料ピンの線出力をパラメータにしてキャプセル各部分の温度について計算した結果をFig. 3.3に示す。得られた結果から被覆管温度を550 °C以下に保持すると仮定すると可能な線出力は550 W/cmであり、太径の燃料ピンを採用しない限り被覆管温度を低く保った状態で高線出力で照射することはむずかしいことが判明した。今回の照射は我が国で初めての混合炭化物燃料の照射であることを考慮して、ピーク線出力550 W/cm、平均線出力420 W/cmで照射することにし

た。燃料中心温度は約 1000 °Cで被覆管内壁の温度は約 450 °Cである。

ICF-37 H キャプセルの組立図を Fig. 3.4 に示す。外径 1.0 mm のステンレス鋼被覆のクロメルーアルメル熱電対 7 本が設置されており、この内 3 本は NaK 熱媒体中に挿入されており、残りの 4 本は内外筒の間のアルミニウム熱媒体中に設置されている。NaK 中に設けた 2 本の熱電対は炭化物燃料スタックの中央部に、残り 1 本は NaK 充填レベルの直下に設けられており NaK 熱媒体のもれ検出用である。また、中性子束モニタが燃料スタックの中央部 2 ケ所に設置されている。ICF-37 H キャプセルの構成部品及完成したキャプセルの本体部を Photo. 3.2 に示す。

Table 3.1 Fuel design characteristics
(ICF-37H capsule fuels)

Fuel pin	ICF-37-1	ICF-37-2
Pin length (mm)	184.9	184.9
Mixed carbide fuel length (mm)	95.8	95.8
Outer diameter (mm)	6.49	6.49
Weight (g)	47.42	48.43
Fuel pellet		
Material	(U,Pu)C	(U,Pu)C
C/(U+Pu) ratio	1.00	1.09
Pu/(U+Pu) ratio	0.205	0.204
Pellet diameter (mm)	5.397	8.2
Pellet density (%T.D.)	90	93
Cladding		
Clad material	20%CW SUS316	20%CW SUS316
Clad thickness (mm)	0.47	0.46
Pellet-clad diametral gap (mm)	0.16	0.17
Pellet-clad bonding material	Helium	Helium



No.	Items	Materials	Dimension
1	Upper endplug	SUS	316L
2	Lower endplug	SUS	316L
3	Cladding tube	SUS	316
4	Spring	Inconel	$6.50\phi \times 5.56\phi$
5	Thermal insulator pellet	UC	$5.40\phi \times 6l$
6	Fuel pellet	(U, Pu)C	$5.40\phi \times 6l$

Fig. 3.1 Mixed carbide fuel pin for irradiation test

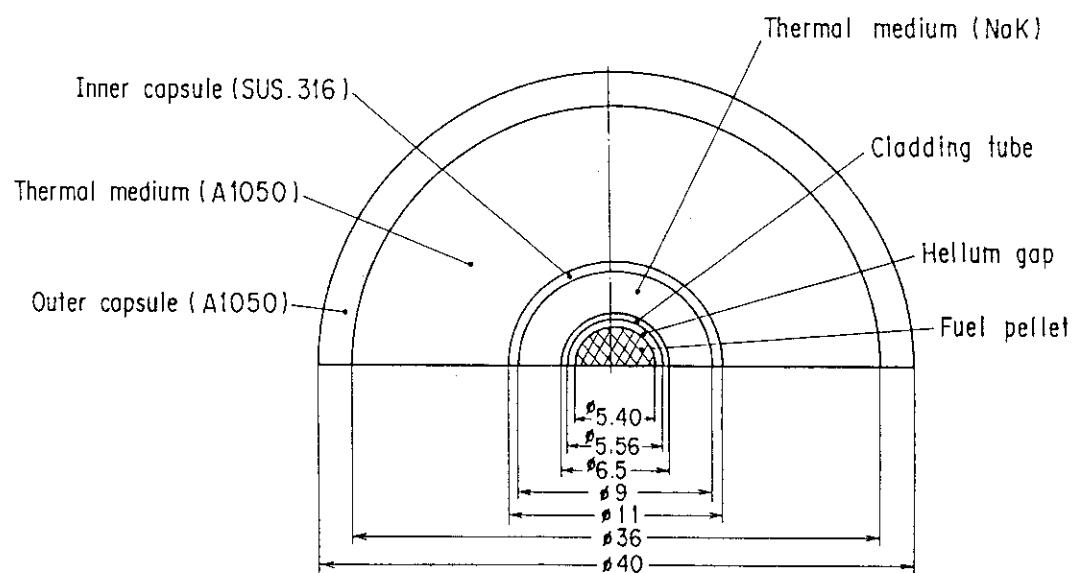


Fig.3.2 Cross section of ICF-37H capsule

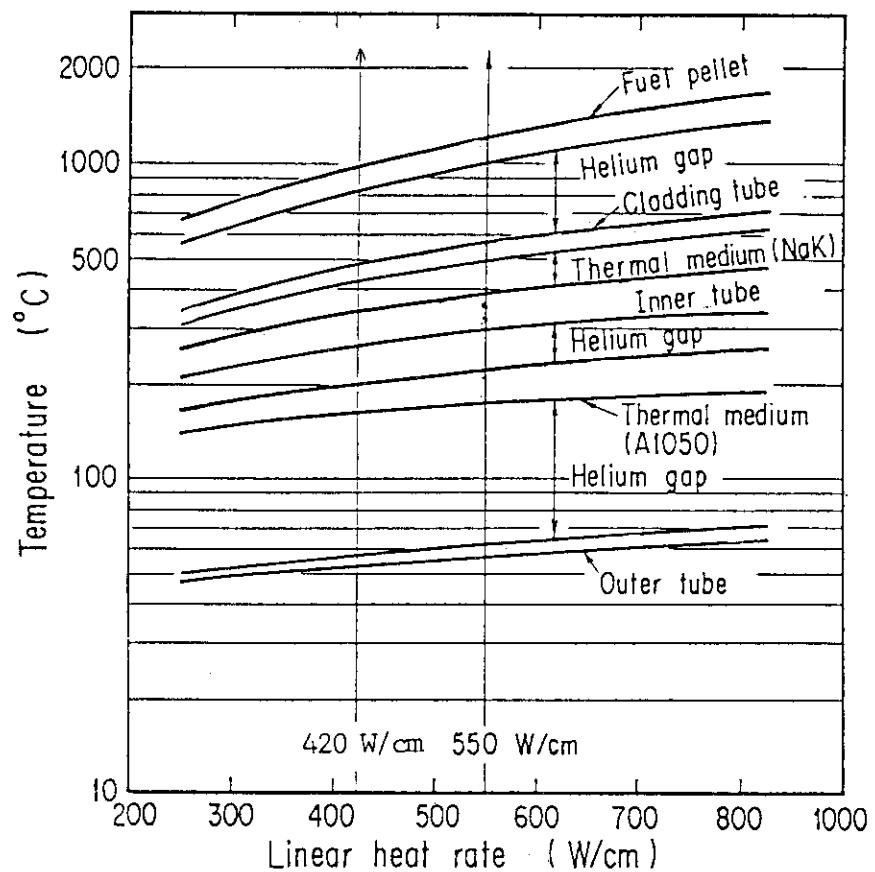
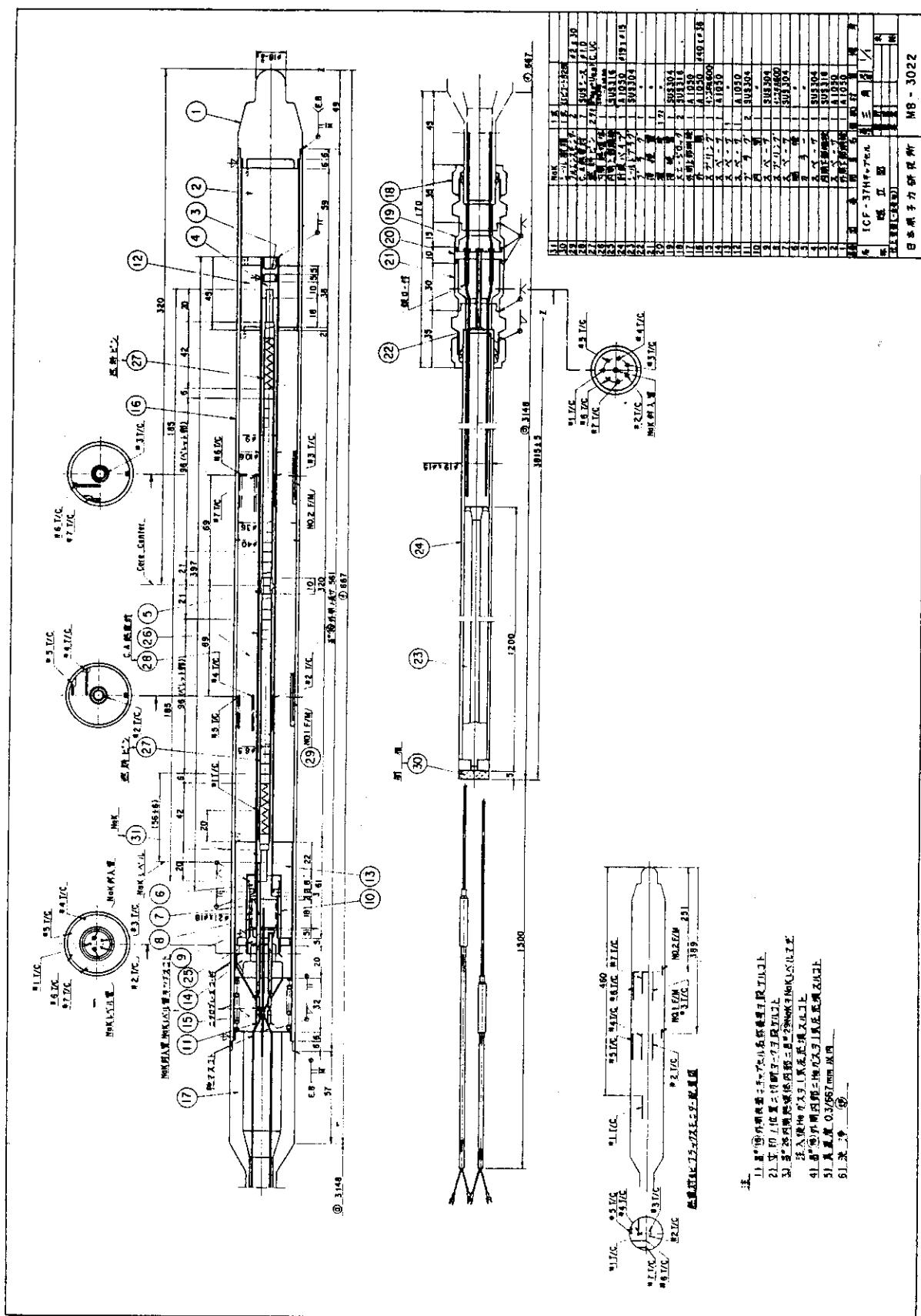
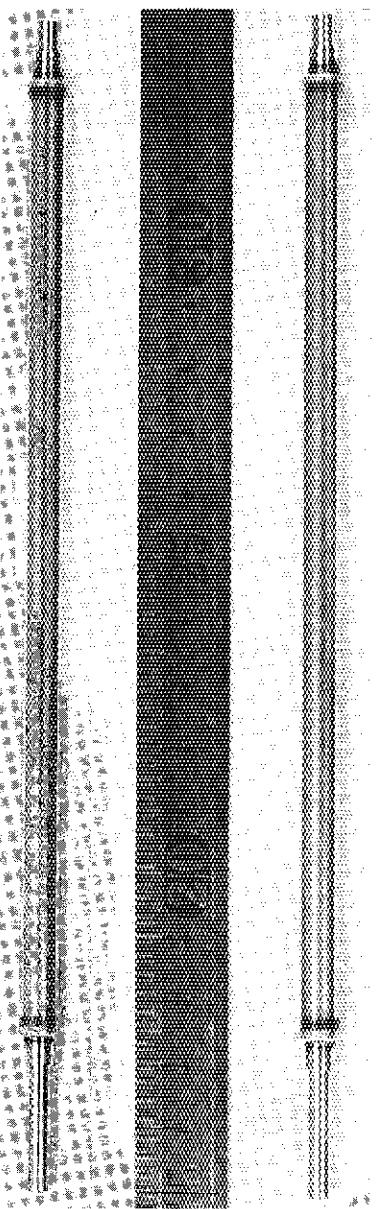
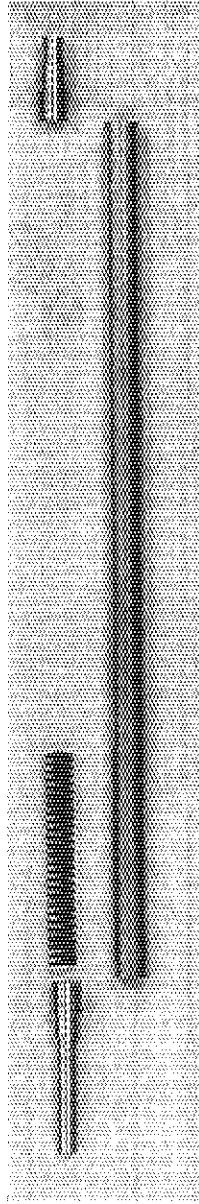


Fig.3.3 Relation between radial temperature distribution and linear heat rate of fuel pin

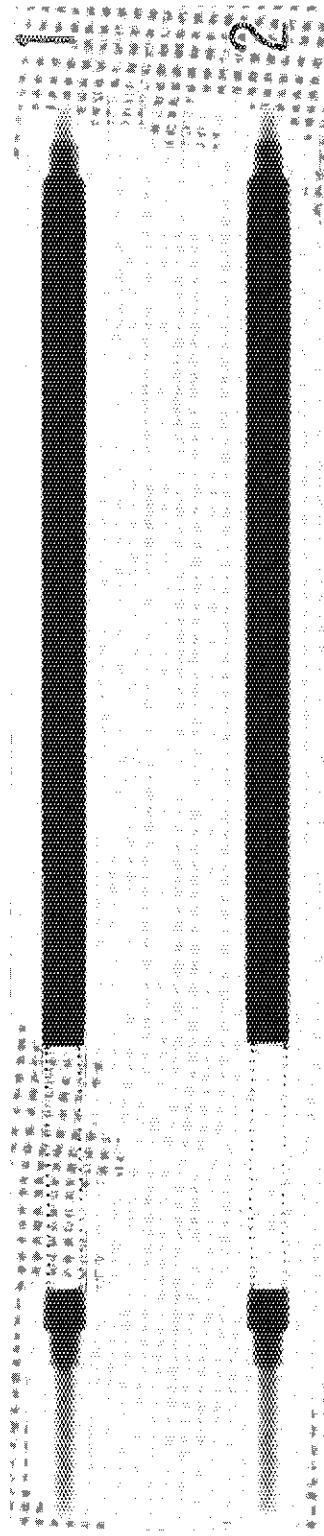




Fuel pin

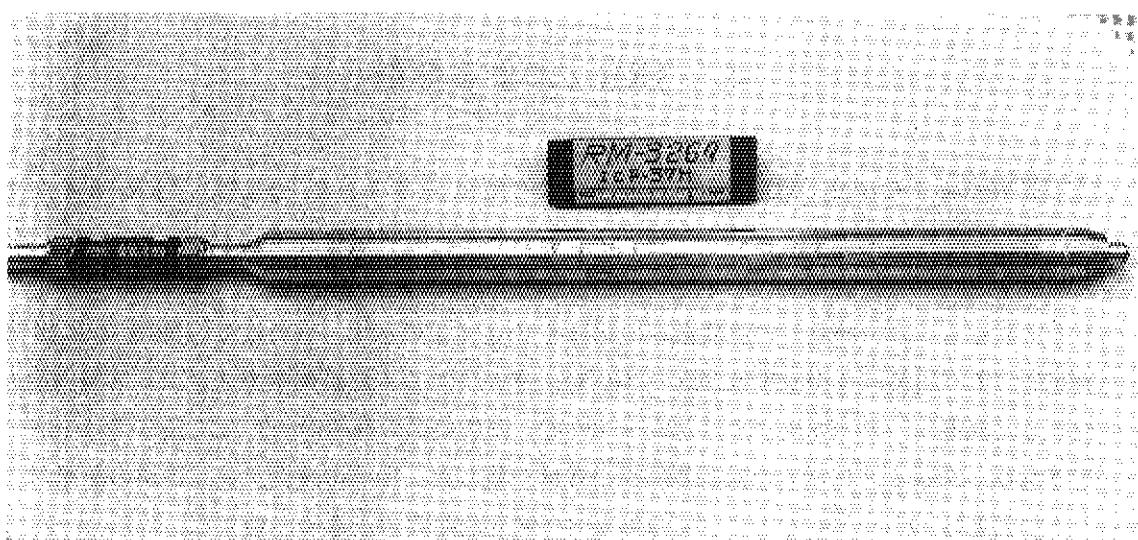


Component parts

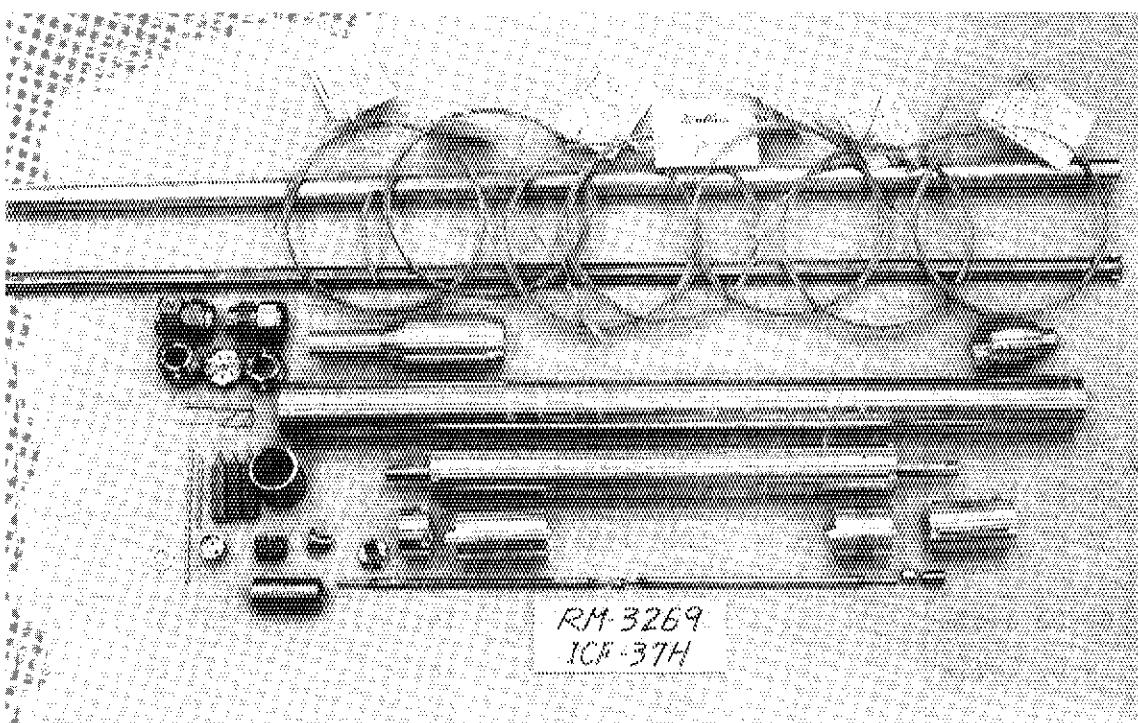


X-ray radiograph of fuel pins

Photo. 3.1 External view and X-ray radiograph of the carbide fuel pins



Fuel capsule



Component parts

Photo.3.2 External view of ICF-37H capsule

4. JRR-2による照射

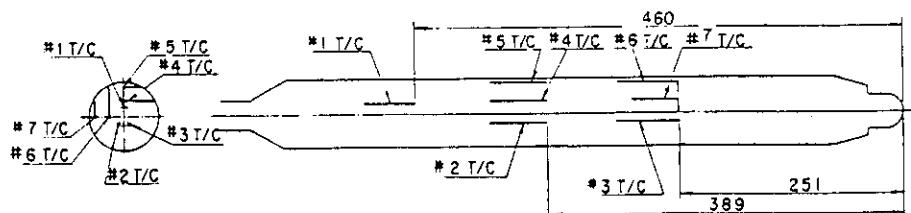
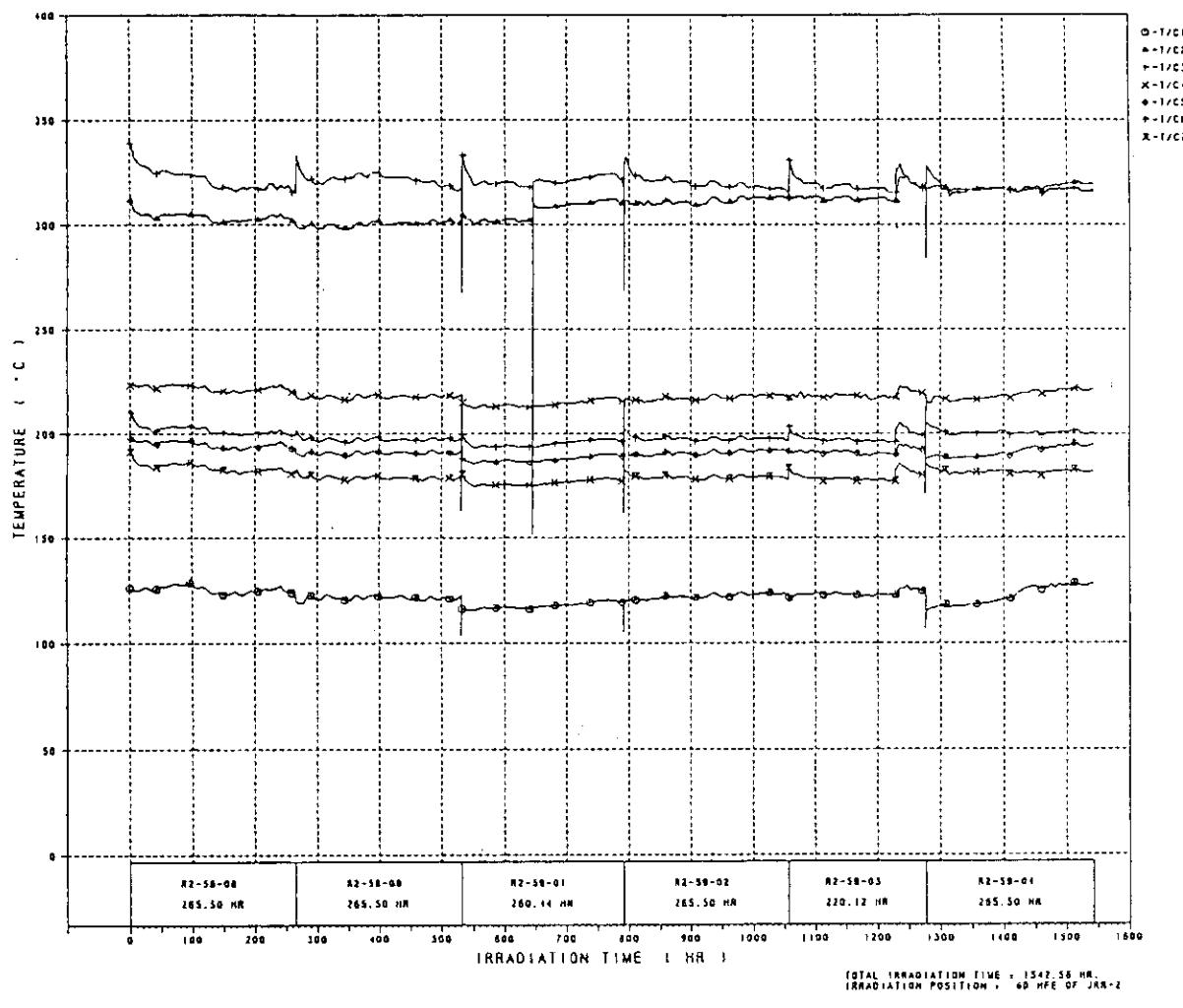
ICF-37 H キャプセルは、昭和 58 年 11 月 7 日より昭和 59 年 7 月 27 日まで、JRR-2 インコア 6 D 実験孔において 6 サイクル（64.275 日）照射された。照射履歴を Table 4.1 に示す。全照射時間は 1542.6 時間である。

照射中における 7 本の熱電対の温度指示の記録を Fig. 4.1 に示す。燃料近くの NaK 中に設置した熱電対、T/C2 及び 3 の温度は 300 ~ 340 °C、アルミニウム熱媒体中でステンレス鋼内筒近くに設置した熱電対、T/C4 及び 6 は 200 ~ 230 °C、同中央部の熱電対、T/C5 及び 7 は 180 ~ 190 °C であり、Fig. 3.3 に示した熱計算結果とほぼ一致した。NaK の液面チェック用の熱電対、T/C 1 の温度は 120 ~ 130 °C とすべての熱電対が照射全期間中正常に作動した。ただ、一度だけ熱電対、T/C 1 の温度指示が昭和 59 年 7 月 2 日、18 時 28 分にアラーム設定値の 550 °C 及び原子炉スクラム設定値 600 °C を超えた温度を指示し原子炉がスクラムした。原因について調査した結果全熱電対の線間抵抗及び絶縁抵抗値とも正常であり、記録計の電気的ノイズによるものと判断され、記録計を新品に交換した後原子炉の運転が再開された。

Table 4.1 Irradiation history of ICF-37H capsule in JRR-2

Irradiation cycle			Irradiation time(hr)
58-08 cycle	1983.11. 7 15:00	1983.11.18 16:30	265.5
58-09 cycle	11.28 15:00	12. 9 16:30	265.5
59-01 cycle	1984. 5.14 15:00	1984. 5.19 8:59	114.0
	5.19 10:30	5.25 13:00	146.5
59-02 cycle	6. 4 15:00	6.15 16:30	265.5
59-03 cycle	6.25 15:00	7. 2 18:38	171.6
	7. 4 16:01	7. 6 16:30	48.5
59-04 cycle	7.16 15:30	7.27 16:30	265.5

Total irradiation time 1542.6 hrs



POSITION OF THE THERMOCOUPLES IN THE ICF-37H CAPSULE

Fig. 4.1 Temperature record of ICF-37H capsule under irradiation

5. 照射後試験

照射後試験は、東海研究所の燃料試験施設に依頼して昭和61年度に行った。同施設は昭和49年に建設に着手し、54年12月に完工したもので、発電炉（軽水炉及びATR炉）用の燃料集合体1体をそのまま搬入して試験を行うことができる我が国唯一の大型照射後試験施設である。同時にプルトニウム系燃料の照射後試験を行うために不活性ガス（アルゴン）雰囲気の二つの α ・ γ コンクリートセル及び金相用鉛セル等が付設されている。本章では、はじめに燃料試験施設の概要について説明し、続いて、混合炭化物燃料の照射後試験計画書及び照射後試験データについて述べる。

5.1 燃料試験施設^{10, 11)}

燃料試験施設のコンクリートセル、鉛セル等の配置をFig. 5.1に示す。各セルの主要試験項目は次のとおりである。

- (1) β ・ γ コンクリート, №.1セル
集合体、燃料棒の外観検査等（寸法測定、重量測定、放射能測定、 γ スキャニング）
- (2) β ・ γ コンクリート, №.2セル
燃料棒、キャップセルのX線検査等（X線、リークテスト、渦電流探傷、穿孔ガスの捕集分析）
- (3) β ・ γ コンクリート, №.3セル
集合体解体、燃料棒引抜、集合体再組立、NaK処理、SCC試験
- (4) β ・ γ コンクリート, №.4セル
試料の測定等（重量測定、密度測定、引張試験、バースト試験）
- (5) β ・ γ コンクリート, №.5セル
燃料棒の切断等試料作成（マイクロサンプリング、樹脂注入埋込み、残留ガス分析）
- (6) β ・ γ コンクリート, №.6セル
試料の研磨、観察等（研磨、腐蝕、レプリカ膜採取、マクロ観察、オートラジオグラフィー）
- (7) β ・ γ 鉛セル（№.1～№.4）
顕微鏡観察等（金属顕微鏡、マイクロ γ スキャニング、モザイク写真、微少硬度測定）
- (8) α ・ γ コンクリート, №.1セル
外観検査、重量測定、寸法測定、 γ スキャニング、穿孔ガス捕集試験、マイクロ γ スキャニング、密度測定
- (9) α ・ γ コンクリート, №.2セル
試料作製、Na, NaK処理、オートラジオグラフィー、レプリカ膜採取、金相前処理、試料の搬出入

5. 照射後試験

照射後試験は、東海研究所の燃料試験施設に依頼して昭和61年度に行った。同施設は昭和49年に建設に着手し、54年12月に完工したもので、発電炉（軽水炉及びATR炉）用の燃料集合体1体をそのまま搬入して試験を行うことができる我が国唯一の大型照射後試験施設である。同時にプルトニウム系燃料の照射後試験を行うために不活性ガス（アルゴン）雰囲気の二つの α ・ γ コンクリートセル及び金相用鉛セル等が付設されている。本章では、はじめに燃料試験施設の概要について説明し、続いて、混合炭化物燃料の照射後試験計画書及び照射後試験データについて述べる。

5.1 燃料試験施設^{10, 11)}

燃料試験施設のコンクリートセル、鉛セル等の配置をFig. 5.1に示す。各セルの主要試験項目は次のとおりである。

- (1) β ・ γ コンクリート, №1セル
集合体、燃料棒の外観検査等（寸法測定、重量測定、放射能測定、 γ スキャニング）
- (2) β ・ γ コンクリート, №2セル
燃料棒、キャップセルのX線検査等（X線、リークテスト、渦電流探傷、穿孔ガスの捕集分析）
- (3) β ・ γ コンクリート, №3セル
集合体解体、燃料棒引抜、集合体再組立、NaK処理、SCC試験
- (4) β ・ γ コンクリート, №4セル
試料の測定等（重量測定、密度測定、引張試験、バースト試験）
- (5) β ・ γ コンクリート, №5セル
燃料棒の切断等試料作成（マイクロサンプリング、樹脂注入埋込み、残留ガス分析）
- (6) β ・ γ コンクリート, №6セル
試料の研磨、観察等（研磨、腐蝕、レプリカ膜採取、マクロ観察、オートラジオグラフィー）
- (7) β ・ γ 鉛セル (№1～№4)
顕微鏡観察等（金属顕微鏡、マイクロ γ スキャニング、モザイク写真、微少硬度測定）
- (8) α ・ γ コンクリート, №1セル
外観検査、重量測定、寸法測定、 γ スキャニング、穿孔ガス捕集試験、マイクロ γ スキャニング、密度測定
- (9) α ・ γ コンクリート, №2セル
試料作製、Na, NaK処理、オートラジオグラフィー、レプリカ膜採取、金相前処理、試料の搬出入

(10) α ・ γ 鉛セル (No. 1～No. 2)

顕微鏡観察, モザイク写真撮影

混合炭化物燃料ピンの非破壊検査は, β ・ γ セルNo. 1から6までと α ・ γ No. 1セルを用いて行い, 破壊検査は α ・ γ セルNo. 1及び2において行った。

次に, α ・ γ セル周辺の配置の平面図及び断面図をそれぞれFig. 5.2 及び Fig. 5.3 に示す。 α ・ γ コンクリートセルの壁の厚さは操作側では重コンクリート 1.0 m で, セルNo. 1 に4台及びセルNo. 2 に6台の気密型マニプレータが付設されている。天井にはセル内の試験機器の修理等を行うためにメインテナンスボックスが, また地階にはアルゴンガス精製循環装置が設置されている。この α ・ γ セルに搬入できる燃料ピンの最大長さは 39 cm である。二つの α ・ γ コンクリートセル内における照射後試験装置の配置を Fig. 5.4 及び Fig. 5.5 に示す。

5.2 照射後試験計画書

照射後試験に先立ち, 関連課室と協議して照射後試験計画書を作成した¹²⁾。試験内容は, キャプセルのセルへの搬入から被覆管結晶粒度測定まで 35 の項目から構成されている。

内筒の解体, 燃料ピンの粗切断及び細切断等により試料の分割が行われるが, 分割で生じた試料に新たに試料番号を設けそれ以後の作業での混乱を防止した。照射後試験のフローと合せて試料番号等を Fig. 5.6 に示す。また, 上に述べた試験の行われた場所とセルの雰囲気を Fig. 5.7 に示す。セル雰囲気としては作業番号 15 の寸法検査までは空気雰囲気で, 作業番号 16 の燃料ピンガスパンクチャ試験から作業番号 23 の燃料ペレット開気孔率測定までを精製した循環アルゴンガス雰囲気 (酸素 20 ~ 60 ppm, 水分 30 ~ 80 ppm) 中で行った。それ以降はアルゴンガスの精製を中止して循環アルゴンガス雰囲気 (酸素 300 ~ 600 ppm, 水分 200 ~ 800 ppm) 中で作業を進めた。

5.3 照射後試験の方法, 結果及び考察

照射後試験の各作業項目についてその方法及び得られた結果について述べる。

5.3.1 キャプセルの搬入

JRR-2 炉心内照射孔 (インコア 6 D 実験孔) で照射の終了した ICF-37H キャプセルは, 約 1 年間, 同炉冷却ポンドに保管後, 燃料試験施設に搬入した。同キャプセルは, 輸送容器 II 型 7 番 (JRR-2 インコアキャスク) に格納し, 車輌に積載し, 構内輸送を行った。輸送容器を燃料試験施設ローディングエリアへ搬入後, クレーンにて吊り込み, サービスエリアを通り, β ・ γ コンクリート No. 4 セルの天井 γ ゲートに設置した。容器内キャプセルはトップローディングにより, 同セルへ搬入した。セルへの搬入時状況を Photo. 5.1 に示す。

5.3.2 キャプセルの外観検査

搬入した ICF-37H キャプセルの表面の変色, 変形等について目視検査を行った後, キャプ

セル刻印側面を 0° とし、 90° ごとに4側面から写真撮影を行った。キャップセルの外観をPhoto. 5.2に示す。

キャップセル表面には、上部 90° 方向にクサビ状の、また上部 180° 方向に長方形の傷が認められた以外に異常はなかった。これらの傷は、JRR-2炉心内照射孔における炉心燃料との接触により生じたものであり、通常、炉心内照射後キャップセル表面によく見られるものである。

5.3.3 キャップセルのX線透過撮影

X線透過撮影は、 β ・ γ コンクリートセルNo.2内で行った。X線撮影装置の概略をFig.5.8に示す。キャップセルの移動とフィルムの送り速度が連動しており、X線発生源はセル内に、フィルム駆動部はセル外に設けられている。X線撮影の方向はキャップセル番号が刻印された場所を 0° として、 0° 及び 90° の2方向について撮影した。撮影条件は次に示すとおりである。

X線管電圧	380 KV
X線管電流	4 mA
フィルム～キャップセル移動速度	6.3 mm/min
X線管焦点～被写体間距離	1300 mm
被写体～フィルム間距離	300 mm
撮影倍率	
径方向	1.23
軸方向	1.0

キャップセルX線透過像をPhoto. 5.3に示す。写真より炭化物燃料ピンを初めキャップセル内部構造物が健全であることが確認された。

5.3.4 キャップセルの放射線測定

キャップセルの γ 線量率の測定は、 β ・ γ コンクリートセルNo.2において、550型ラドコン線量計を用いてキャップセルからの距離及びキャップセルの軸方向の分布について行った。前者では γ 線測定プローブをキャップセルの中央位置（キャップセル下端より32cmの高さ）に固定しキャップセルを水平に移動させた。後者の測定ではキャップセルとプローブの距離を20cmに固定し、キャップセル中央位置をゼロとしてキャップセルを上下に移動させた。測定時のジオメトリ及び測定結果をTable 5.1に示す。なお、キャップセルをセル内に搬入しない状態でのセル内のバックグラウンドは36 mR/hrであった。

5.3.5 外筒解体及び中性子束モニタの回収

本作業は、 β ・ γ コンクリートセルNo.3において行った。作業の手順は次に示すとおりである。（Fig.3.4 ICF-37Hキャップセル構造参照のこと）

- 1) 外筒下部端栓部の直上に示した↓の場所をダイヤモンド切断機で切断し、外筒下部端栓部①を分離した。
- 2) 外筒上部端栓部の直上に示した↓の場所を切断した。
- 3) スペーサ②及び⑩を取出した。

- 4) スプリング ⑯を取出した。但しこの時点でスペーサ 14 は取出すことは出来なかった。又、熱電対のリード線は切断しなかった。
- 5) 内筒熱媒体を外筒より取り出す手順であったが、内筒熱媒体が下部へ 100 mm 程ずれ込み、それ以上は押し出し引抜きとも不可能であった。
- 6) 外筒を下部端栓より 75 mm の位置で廻し切りを行った。
- 7) 廻し切りを行った結果、内筒熱媒体を外筒から引抜くことができた。
- 8) 内筒熱媒体を外筒から引抜きながら中性子束モニタ 2 個を回収した。
- 9) 内筒熱媒体を外筒から完全に引抜いた時点でスペーサ品番 ⑬, ⑭を取出した。
- 10) 最後に熱電対のリード線を切断した。

外筒と内筒熱媒体がともにアルミニウム製である上に両者の間隙が非常に小さかったために作業番号 6)を追加することにより外筒を解体することができた。外筒の解体状況を Photo.5.4 の(a)に示す。

5.3.6 中性子束モニタの搬出及び中性子照射量

ICF-37H キャップセルの積算中性子照射量を求めるために、内筒外表面の燃料スタックの中央位置に組込んで照射した中性子束モニタ 2 個を外筒解体時に回収した。簡単に除染を行った後小型ポリエチレン製の棒ピンに充填し、鉛コンテナーに格納した。モニタの γ 線量率は、棒ピン表面で 15 ~ 20 mR/hr, 30 cm 離れた位置で約 0.3 mR/hr, 60 cm で約 0.07 mR/hr であった。回収したモニタは、車輌で研究炉利用課の実験室に運び、昭和 62 年 1 月まで冷却した後、放射能の測定を行いキャップセルの中性子照射量を算出した。

使用した中性子束モニタの材質は、熱中性子束及び高速中性子束用に、それぞれ Al-Co 合金及び Al-Ni 合金を用いた。合金組成及び装荷した重量を Table 5.2(a) に、測定結果及び算出した積算中性子照射量を Table 5.2(b) に示す。

5.3.7 内筒外観検査

外筒より取出した内筒の表面をアルコールでふきとり、中性子束モニタ取付部を 0° と定めて、約 90° ごとに 4 側面について写真撮影を行った。内筒の外観を Photo.5.5 に示す。取出し作業時に内筒熱媒体表面に若干の傷を生じたほかは、変色、変形等の有害な欠陥は認められず、外観は良好であった。

5.3.8 内筒解体及びNaK処理

内筒解体は、 β ・ γ コンクリートセル No.3 で NaK キャップセル開封装置を使用して次の手順で行った。

- 1) 第 3.4 図、ICF-37H キャップセル組立図の内筒上部端栓の直上に示した↓の場所をケロシン中に切断した。
- 2) 内筒上部端栓の一部分が取り出せなかつたため、再度端栓⑥とスペーサ⑦の間に切断した。切断位置は上部端栓部より約 38 mm 離れた場所である。
- 3) 燃料ピン 2 本及び NaK をケロシン中に取出した。前者は処理槽に移動した。

4) NaKはn-ブタノール約1.5ℓで少しづつ反応させて処理した。

内筒解体及びNaK処理の実施状況をPhoto.5.4の(b)及び(c)に示す。内筒切断は写真(c)に示すように内筒を傾けた状態でケロシン中でパイプカッタを用いて行った。取り出した燃料ピンの識別は上部端栓部に設けたマークにより行ったが、その識別は容易でなかった。燃料ピンは化学量論組成、(U,Pu)C_{1.0}ペレットを充填したものをICF-37-1、超化学量論組成、(U,Pu)C_{1.1}を充填したものをICF-37-2と呼称した。(Fig.5.6参照のこと)以上でキャップセルの解体作業を終了し、続いてキャップセルから取出した燃料ピンの照射後試験について述べる。

5.3.9 燃料ピンの外観検査

燃料ピン2本の外観観察は、 β ・ γ コンクリートセルNo.6において燃料ピンをマクロ観察装置のステージにセットし、ステージを移動させて、燃料ピンの全面について行った。マクロ観察装置の仕様を以下に示す。

観察倍率 ; $\times 2.5$

撮影倍率 ; $\times 5$, $\times 10$

写真撮影 ; 70 mmカメラ, 4" × 5" カメラ

照 明 ; 200 W 超高圧水銀灯

外観については、上記観察装置により、4" × 5" シートフィルムによる連続スポット撮影を行った。撮影倍率は5倍とし、燃料ピンを90°ごと4方向よりピン全体が9枚の連続スポット写真となるように撮影した。燃料ピンICF-37-1及びICF-37-2の外観をそれぞれPhoto.5.6及びPhoto.5.7に示す。

燃料ピンの表面状態は金属光沢を有していた。また、ICF-37-2ピンには部分的にシミが観察された。両ピンとも、製造時についたと思われる軸方向の直線的な傷及び照射後試験ハンドリング時についたと思われる白色の傷が全方向に観察された。また、燃料ピンの変色は、被覆管と端栓の溶接部近傍に熱影響によるものが観察された。全体として燃料ピンはほぼ製造時の外観を保っていることが判った。

5.3.10 燃料ピンの放射線測定

燃料ピンの放射線測定は、5.3.4項のキャップセルの放射線測定とほぼ同様な手順で行った。燃料ピンの中央位置に放射線測定用プローブを設置して、燃料ピンを移動させて γ 線量率を測定した。得られた結果をTable 5.3に示す。表から分るように2本の燃料ピンの放射線量率はほぼ同一であった。

5.3.11 燃料ピンのX線透過撮影

燃料ピンのX線透過撮影は、5.3.3項で述べたキャップセルのX線透過撮影と同様な方法で行った。撮影条件も、X線発生管の電圧を370 KVとした以外は同一である。撮影は、燃料ピン方向が刻印されている面を0°として0°及び90°の2方向について行った。2本の燃料ピンのX線透過像をPhoto.5.8に示す。得られたX線透過像から求めた燃料ピン寸法をFig.5.9に示す。寸法は、0°及び90°で測定した結果は同一であった。両燃料ピンともペレット-被覆管ギャップ

はほとんど認められなかった。また、ペレット個数は双方とも 14 個であることを確認した。ペレットの形状については、ICF-37-1 ピンは上部から 5 番目のペレットに欠けが認められた。また上部から 13 番目、すなわち UC 断熱ペレット横の (U, Pu) C ペレットに割れが認められ、ギャップにペレット片が見られた。一方、ICF-37-2 ピンでは、上部から 11 番目のペレットに割れが認められ、また、上部より 11 番目と 12 番目のペレット間に約 0.3 mm の比較的大きなギャップが認められた。

5.3.12 燃料ピンの移送

β ・ γ コンクリートセル No. 6 の背面に設けられているパデラックキャスクを用いて、 α ・ γ コンクリートセル No. 2 へ X 線透過撮影の終了した燃料ピン 2 本を搬入した。

5.3.13 燃料ピンの重量測定

燃料ピン表面を測定前にエチルアルコールにより拭き取り、洗浄したのち、上皿電子天秤（メトラー社製、PL 1200 型）により測定した。測定精度は ± 0.01 g である。測定重量は、(U, Pu)C_{1.0} 及び (U, Pu)C_{1.1} 燃料ピンについて、それぞれ、47.50 g 及び 48.52 g であった。照射前のピン製作時において、各ピンはそれぞれ、47.42 g 及び 48.43 g であった。両燃料ピンとも、約 0.1 g の重量増加がみられた。この原因としては、燃料ピン表面への付着物及び表面の酸化等が考えられる。

5.3.14 燃料ピンの γ 線スキャニング

燃料ピンの軸方向について γ 線スキャニングを行うとともに、いくつかの定点において γ 線スペクトル分析を行った。 γ 線スキャニングに使用した装置の配置を Fig. 5.10 に示す。 α ・ γ コンクリートセル No. 1 のしゃへい壁に設けた貫通孔内にコリメータ及び半導体検出器を設置し、得られた信号をキャンベラ製の波高分析装置 (Co-60 の 1.33 MeV の γ 線に対する測定効率 24.4 %, 分解能 (FWHM) 2.03 KeV) に導入して解析を行った。全 γ 線に加えて、代表的な FP 元素である ¹⁰⁶Rh (622 keV), ¹³⁷Cs (662 keV), ¹⁴⁴Pr (695 keV), ⁹⁵Nb (765 keV) 及び ¹³⁴Cs (795 keV) についても γ 線スキャニングを行った。 γ 線スペクトル分析を行う定点として選んだ場所は次のとおりである。

燃料ピン	測定部位	上下位置 (mm)
(U, Pu)C _{1.0}	a. (U, Pu) C ペレット部中央部	69.00
	b. (U, Pu) C ペレット部最上部	120.34
	c. 上部 UC 断熱ペレット部	124.00
	d. プレナム部	142.00
	e. 上部端栓下端部	155.00
(U, Pu)C _{1.1}	a. (U, Pu) C ペレット部中央部	69.00
	b. (U, Pu) C ペレット部最上部	117.86
	c. 上部 UC 断熱ペレット部	121.00
	d. プレナム部	140.00

はじめに、この定点の γ 線スペクトル分析結果について説明する。 $(U, Pu) C_{1.0}$ 及び $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料スタック長の中央部（下部端栓先端から 69 mm）の γ 線スペクトルを Fig. 5.11 及び Fig. 5.12 に示す。両者の放射線強度及び存在する核種にはほとんど差異はなく、代表的な FP 元素である Cs, Pr, Zr, Nb, Rh, Sb 等の顕著なピークが見られる。

次に断熱用上部 UC ペレット（プレナム側）部の γ 線スペクトルを Fig. 5.13{ $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料ピン}及び Fig. 5.14{ $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ピン}に示す。両スペクトルは強度及びパターンともほぼ同一であるが、天然ウランの UC ペレットであるために Fig. 5.11 及び Fig. 5.12 の $(U, Pu) C$ ペレット部に比べて大幅に放射能強度は低くなっている。UC ペレットではほぼ ^{235}U の核分裂が主体を占めている。両者の核分裂収率曲線の相違は質量数 100 ~ 110 の核分裂生成物の生成が ^{239}Pu の方が ^{235}U に比べて約 1 ~ 2 柄大きいことである。例えば、質量数 106 の場合、 ^{239}Pu の収率は 4 % であるのに対して、 ^{235}U では 0.4 % である。これに対して、質量数 130 ~ 140 の両者収率はほぼ等しい。この点に着目して、Fig. 5.11 ~ Fig. 5.14 の γ 線のカウント数（ピーク高さ）から $^{106}Rh / ^{137}Cs$ 比を算出すると、 $(U, Pu) C_{1.0}$ 及び $(U, Pu) C_{1.1}$ のスペクトルでは両者ともに 1.3 であるのに対して、UC ペレット部では $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料ピンでは 0.26、 $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ピンでは 0.53 であり、明らかに ^{239}Pu の核分裂の方が ^{106}Rh の収率が大きいことを示している。

プレナム部について得られた γ 線スペクトルは、2 本のピンについてほとんど相違が見られないので、代表として $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ピンのデータを Fig. 5.15 に示す。主要ピークは ^{54}Mn , ^{60}Co で、わずかに FP 元素である ^{106}Rh 及び ^{137}Cs のピークがみられる。この結果は、照射時の燃料中心温度が約 1000 °C と低いことから燃料中からの FP の拡散放出が小さく、従ってプレナムへの移動もほとんどなかったものと推定される。

続いて、燃料ピンの軸方向の γ 線スキャニングについて述べる。グロス γ 線量率を 2 本の燃料ピンについて Fig. 5.16 に示す。両燃料ピンの放射線強度はほぼ同等で、プレナム部の γ 線強度は定点の γ 線スペクトル測定と一致して非常に弱い。上・下端栓部に 2 ~ 3 のピークが見られるが、これは上・下端栓材の放射化によるもので、その重量の相異により生じたものである。2 本の燃料ピンのグロス γ 線の軸方向の分布で相違していることは $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料ピンの下部端栓側で UC 断熱ペレットと $(U, Pu) C$ ペレットの境界にエッジ効果によるピークがないことである。この原因は、Photo. 5.8 に示した燃料ピンの X 線透過像から分るように、外筒から内筒を取出す時の機械的衝撃でこの部分の $(U, Pu) C$ ペレットの分離が発生し、この分離に伴う燃料母材の欠損のためにエッジ効果が現われなかったものと思われる。

$(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ピンでは端の $(U, Pu) C$ ペレットは健全であるが、数番目のペレットに割れが生じたことに伴う γ 線強度の落ち込みが見られる。

2 本の燃料ピンの軸方向の ^{137}Cs の分布を Fig. 5.17 に示す。傾向はグロス γ 線の分布とほぼ同一である。 ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{95}Nb 及び ^{134}Cs の軸方向の分布を Fig. 5.18 及び Fig. 5.19 に示す。放射線強度の大小はあるが特別に変った現象はこれらの図には見られない。

5.3.15 燃料ピンの寸法及び曲り測定

燃料ピン全長等の軸方向の長さ測定は、ノギスを用いて行った。精度は士 0.1mm である。燃料

ピンの直径及び曲りは被覆管の表面についてプロファイルメトリにより行った。測定精度は、直径で±0.005 mm, 曲りで±0.05 mmである。直径測定は0.5 mm間隔で行った。

2本の燃料ピンの軸方向の長さについて測定した結果をTable 5.4に示す。照射前における両燃料ピンの全長は184.9 mmであり、照射後の測定値185.0 mmは測定誤差内で一致している。

(U, Pu) C_{1.0}及び(U, Pu) C_{1.1}燃料ピンについて、0°, 45°, 90°及び135°の方向について測定した直径及び曲りのデータをFig. 5.20からFig. 5.27までに示す。これらの図面には照射前に測定した直径及び曲りについての測定結果も合せて示す。

直径については、照射前後のデータについて一部分測定精度の±0.05 mmを少し超えた変化もみられるが、結論として、1.0 at. %燃焼度では、ステンレス鋼被覆材の照射によるスエーリング、プレナムに蓄積したFPガス圧力及び燃料と被覆材の機械的相互作用による被覆管のクリープ変形等はほとんど起っていないと結論づけることができる。

(U, Pu) C_{1.0}燃料ピンの曲りは、測定誤差範囲内であったが、(U, Pu) C_{1.1}燃料ピンでは、方位角90°及び135°で-0.15 mm程度が測定された。2本の燃料ピンの最大曲りの値、方位角及び軸方向位置を求めた結果を次に示す。方位角の設定方法についてはTable 5.4に記載した。

	(U, Pu) C _{1.0} 燃料ピン	(U, Pu) C _{1.1} 燃料ピン
最大曲りの軸方向位置	62 mm	68 mm
最大曲りの値	0.009 mm	0.163 mm
最大曲りの方位角	159°	341°

両燃料ピンともに最大曲りの軸方向位置は、上部端栓先端から62及び68 mmとほぼ同一場所で発生している。この位置はプレナム側から(U, Pu) Cペレットで数個離れた部分で(U, Pu) Cスタック長の3分の1程度の場所であるが(Fig. 5.27等参照のこと)，これは燃料ピン全長の中央と見ることが出来る。これはキャップセル内で燃料ピンにかかる機械的応力によるものと推定される。

5.3.16 パンクチャ試験

前項までは燃料ピンの非破壊検査であったが、パンクチャ試験では、燃料ピンに穿孔して燃料ピン内のFPガスを捕集してその体積を測定する。FPガス組成分析については次項で述べる。

(1) パンクチャ試験装置

試験装置のガス配管系統をFig. 5.28に示す。 α ・ γ コンクリートセルNo.1内に穿孔機構部、集中配管部、圧力計P₁が設置されており、セル外にガス捕集部及び排気系が設けられている。

(2) 測定系のリーク率

燃料ピンを穿孔機構部に装着した後、測定系の真空引きを行い、圧力が 1.3×10^{-2} Pa以下になることを確認する。続いて、リーク試験として測定系にHeガスを約 2.8×10^5 Paまで充填し、1時間後に圧力を測定し、測定系のリーク率を 1.4×10^{-1} Pa・cm³/sec以下に保持する。

(3) 穿孔前空隙容積測定

燃料ピンを穿孔機構部に装着した後、測定系の空隙容積の測定を行った。穿孔前の空隙容積

は約 75 m¹であった。

(4) 穿孔試験

穿孔方法は、電動モータによる圧入方式である。穿孔位置は、プレナム部で、上部端栓上面より 46 mm の位置とした。穿孔前に、測定系を真空排気した後、Fig. 5.28 のバルブ 1 及びバルブ 3 を閉、バルブ 2 を開の状態で穿孔した。集中配管部に設置した圧力計 P₁ によりガス平衡圧力を測定した。測定精度は $\pm 1 \times 10^2$ Pa であった。

(5) ガス捕集試験

1) (U, Pu) C_{1.0} 燃料ピンの場合

Fig. 5.28 におけるバルブ 3 を開とし、穿孔後のガスをガス捕集配管部に導き、捕集容器 1 (150 cm³) に捕集した。

捕集容器 1 内ガス圧力は、全平衡ガス圧力が低かったため測定できなかった。

2) (U, Pu) C_{1.1} 燃料ピンの場合

本燃料ピンについては、2 本の捕集容器 2, 3 にガスを捕集した。

捕集容器 2 (150 cm³) については、(U, Pu) C_{1.0} 燃料ピンの場合と同様の方法で行った。捕集容器 3 (40 cm³) については、ガス捕集配管部にテプラーポンプを増設しガス捕集を行った。

(6) 燃料ピン内部空隙容積の測定

ガス捕集試験終了後、(3)の穿孔前空隙容積測定と同様な手順で燃料ピン内部空隙容積の測定を行い、両者の差から計算で求めた。空隙容積が既知な模擬燃料ピンにより得られた燃料ピン内部空隙容積の測定精度は、 ± 0.1 cm³ であった。

2 本の燃料ピンについて得られたパンクチャ試験データをまとめて Table 5.5 に示す。同表に示したように燃料ピン内の全ガス量は、(U, Pu) C_{1.0} 燃料ピンで 0.89 cm³, (U, Pu) C_{1.1} 燃料ピンで 0.78 cm³ であった。

5.3.17 FP ガスの組成分析及び放出率

パンクチャ試験で捕集したガスを島津製作所製 GCMS-2091 型のガスクロマト質量分析計によりその組成分析を行った。得られた結果を Table 5.6 に示す。酸素及び窒素は、ガス捕集系のもれによるものであるが、アルゴンガスが (U, Pu) C_{1.0} 燃料ピンで 0.93 vol.%, (U, Pu) C_{1.1} 燃料ピンで 2.2 vol. % 含まれている。このアルゴンガスは燃料ピン内に含まれていたもので、燃料ピン製作時における溶接グローブボックスのヘリウム雰囲気の作成方法に関連していると思われる。すなわち、ヘリウム雰囲気の作成は、はじめにアルゴンガスを長時間ワススルーさせることにより系の水分、酸素及び窒素濃度を減少させたのち、ヘリウムに切換えることにより行った¹³⁾。燃料ピン内のアルゴンガスは、ピン内を回転ポンプで排気した後、グローブボックス雰囲気のヘリウムガスを充填したが、このとき少量のアルゴンガスが燃料ピン内に残存したものと思われる。

Xe/Kr 比は (U, Pu) C_{1.0} 燃料ピンで 14.8, (U, Pu) C_{1.1} 燃料ピンで 20.4 であり ORIGEN コードにより計算した生成量の比率 16.3 に近い値であった。クリプトン及びキセノンの同位体組成は、両燃料ピンほぼ同一であった。

このガス組成に Table 5.5 に示した捕集ガス量を乗じることにより、燃料ピン中のクリプトン

+ キセノンの体積を計算した。 $(U, Pu)C_{1.0}$ 燃料ピンで 0.046 cm^3 (STP) 及び $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料ピンで 0.010 cm^3 であった。ORIGEN コードで計算した燃料ピン中に生成された FP ガス量で除して得られる FP ガス放出率は前者で 0.44 %, 後者で 0.09 % と非常に小さい値であった。これは、燃料の中心温度が約 1000°C と低いことから判断して、FP ガス放出機構としては、拡散の寄与は小さく、反跳及びノックアウトによって支配されていると推定される。

5.3.18 燃料ピンの粗切断

金相試験に供する試料を作製するために、精製したアルゴンガスを循環させた α ・ γ コンクリートセル No. 2 内で燃料ピンを乾式法により粗切断を行った。使用した砥石はボラゾンホイールで、直径は 125 mm, 厚さは 0.4 mm であり、切断位置の精度は $\pm 0.5 \text{ mm}$ である。2 本の燃料ピンの粗切断位置を Fig. 5.29 及び Fig. 5.30 に示す。第 1 回目の切断位置は上部端栓側の UC 断熱ペレットと $(U, Pu)C$ ペレットの境界である。第 2 回目の切断は $(U, Pu)C$ ペレットの上部より 4 個目ぐらいの位置に相当する。燃料密度、被覆管硬度測定に使用する試料を 371A { $(U, Pu)C_{1.0}$ 燃料ピン} 及び 372A { $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料ピン}, 樹脂注入を行って金相試験に供する下部端栓側の試料を 371B 及び 372B と命名した。(Fig. 5.6 参照のこと) また、下部端栓から 16 mm の位置に樹脂注入時のガス抜き用スリットを切込んだ。

5.3.19 燃料ピンへの樹脂注入

試料 371B 及び 372B にポリエステル樹脂を最大加圧 7 kg/cm^2 , 加圧時間 1~5 分の条件で注入した。ポリエステル樹脂の配合は、主剤 100 に対して硬化剤 0.6 とした。

5.3.20 燃料ピンの細切断

樹脂注入を行った燃料ピン下部端栓側試料 (371B 及び 372B) について、金相試験等のために径方向 (横断面試料) 及び軸方向 (縦断面試料) の細切断を湿式法により行った。細切断位置及び新たに設けた試料番号を Fig. 5.29 及び Fig. 5.30 に示す。各試料について実施する試験項目は Fig. 5.6 に詳しく表示されている。

5.3.21 燃料ピンからの脱ミート

脱ミートは、被覆管を V 型アングルに固定し、ミート部を押し出すスクリュウ方式で行った。脱ミートはほとんど抵抗なく、スムーズに行われた。これは、燃焼度が低いために燃料ペレットと被覆管の間にまだ間隙が残っていることを示しており、この結果は、5.3.15 項の燃料ピンの寸法測定において燃料と被覆管の機械的相互作用 (FCMI) が観測されなかったことと一致している。

密度測定には、脱ミートしたペレットの内、中央の 2 個を選択した。押し出された燃料ペレットの表面は、黒色であったが、m-キシリソ液の洗浄により銀白色に変った。脱ミートの実施状況及び密度測定に供したペレットの破片 (371A で 13 個, 372A で 9 個) を Photo. 5.9 に示す。密度測定用試料に 371AP 及び 372AP, 被覆管の硬度測定試料に 371AC 及び 372AC の試料番号をつけた。

5.3.22 燃料ペレットの密度測定

密度測定は、m-キシレンを置換液に用いた液浸法により行った。試料重量測定精度は±0.0002 g, 密度測定精度は±0.01 g/cm³である。得られた結果をTable 5.7に示す。照射に伴う燃料ペレットの理論密度の減少は、(U, Pu) C_{1.0}燃料ペレットで1.3%, (U, Pu) C_{1.1}燃料ピンは少し大きくて1.6%であった。(この値から体積変化($\Delta V/V$)を計算すると、それぞれほぼ1.3%および1.6%となる) 5.3.27項の金相試験で明らかのように両燃料ピンとともに1at.%燃焼度ではまだ燃料と被覆管の間隙が残っていることから、この密度減少は、(U, Pu) C 燃料ペレットの自由スエリング(free swelling, 燃料被覆管等により機械的に拘束されない状態下でのスエリング)によって引起されたものである。(U, Pu) C 燃料ペレットの自由体積スエリング($\Delta V/V$)は、燃料中心温度、ペレットの密度等により大きく左右されるが、KFKのW. Dienst^{14, 15}によれば1000 °C以下の自由スエリングは、1at.%燃焼度当り、1.2~1.7%, 1050~1400 °Cで2.5%, 1400~1600 °Cで3.5%と推定されており、今回得られたデータと一致している。

5.3.23 燃料ペレットの開気孔率測定

前項の液浸法により密度を測定した燃料ペレットを真空乾燥を4時間行った後、水銀ピクノメータ法により開気孔率の測定を行った。水銀加圧力は 1.33×10^5 Paで、燃料密度を求め、m-キシレン法で得た密度からこの値を減することにより開気孔率を計算した。本法による試料密度の測定精度は、±0.01 g/cm³であり、開気孔率の測定精度は、燃料の理論密度で±0.1%である。得られた結果をTable 5.7に示す。

セラミックの開気孔率は、一般的に密度が95%T.D.に達するとほとんど零になるとと言われている¹⁶⁾。密度88.7%T.D.の(U, Pu) C_{1.0}燃料で開気孔率1.31%, 91.4%T.D.の(U, Pu) C_{1.1}燃料ペレットで0.45%である。これらの値は低温のFPガス放出率に直接的に影響するはずである。この観点からTable 5.6に示した2本の燃料ピンからのFPガス放出率を眺めてみると開気孔率の大きい(U, Pu) C_{1.0}燃料が(U, Pu) C_{1.1}燃料よりも約4倍も大きな値が得られており両者の関係は符合している。

5.3.24 燃料ペレット等の金相試験前処理

細切断した燃料ペレットを、金相試験、マイクロラ線分析等の各種試験に供するために、樹脂埋込み、研磨及びエッティング等を行った。

燃料ペレットを埋込み管(アクリル製)のほぼ中心に、ポリエチル樹脂で固定した。面出し研磨、粗研磨には耐水研磨紙を使用した。仕上げ研磨工程では、バフ及びダイヤモンドペースト等を使用した。鏡面仕上げした金相試料について、液浸法による化学エッティングを行った。使用したエッティング液は、下記のとおりである。

燃料ペレット試料

HNO₃ : H₂O : CH₃COOH = 2.5 : 1 : 1 の混合液

断熱ペレット試料

HNO₃ : H₂O : CH₃COOH = 1 : 1 : 1 の混合液

被覆管試料

HNO₃ : HCl : H₂O = 1 : 1 : 1 の混合液

研磨した燃料ペレットの試料名、金相試験等に使用した試料名をまとめて Table 5.8 に示す。試料名と試料採取位置の関係については Fig. 5.29 及び Fig. 5.30 に詳しく表示した。

5.3.25 燃料ペレットのマクロ写真撮影

燃料ピンの軸及び縦方向の研磨断面を倍率約 5 倍の P 型ペリスコープを用いて観察するとともに、フィルムの大きさ 4×5 インチのカメラでマクロ写真を撮影して、クラックの発生状況、燃料ペレットと被覆管の間隙の有無等燃料ピンのマクロ的健全性について調べた。 $(U, Pu) C_{1.0}$ 及び $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ピンの燃料スタック中央部の軸及び縦方向の断面を Photo. 5.10 及び Photo. 5.11 に示す。両者ともに燃料ペレットは約 10 個の破片に割れており、軸方向断面では直径方向に数本のクラックを生じている。燃料中心温度が約 1000°C と低いことから燃料中心部においても焼結はほとんど起っていない。縦断面におけるクラックの様相は $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料ペレットはほぼ等しい大きさの立方体に近い形状の塊であるのに対して、 $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ペレットでは縦方向に大きなクラックがあり、このクラックに沿って水平方向に多数のクラックが発生している。従って、破片は半円状の円板のような形状をしていると推定される。

5.3.26 燃料ペレットの気孔分布測定

前項で述べたマクロ写真撮影に続いて、燃料ペレットの研磨面を遠隔操作型万能顕微鏡を用いて、燃料ペレット中央部、中間部及び外周部について倍率 400 倍でミクロ写真撮影を行った。

$(U, Pu) C_{1.0}$ 及び $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ペレットの各部の撮影結果を Photo. 5.11 に示す。得られた写真について、Photo. 5.12 に示した枠内について画像解析を行い、気孔の大きさ及び数を求めた。使用した画像解析装置の線分解能は 0.1 mm でありその精度は 0.4% である。なお、画像解析は写真を用いて行ったため、研磨時の面だれ及び印画紙焼付時の倍率誤差は含まれていない。得られた結果を Table 5.9 $\{(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料 $\}$ 及び Table 5.10 $\{(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料 $\}$ に示す。これらの表には照射前の燃料ペレットについて同様な測定を行った結果も合せて示した。

Table 5.9 及び Table 5.10 に示した結果を棒グラフで表示して Fig. 5.31 及び Fig. 5.32 に示す。照射前後における気泡の分布は、 $0 \sim 9.9\text{ }\mu\text{m}^2$ の小さな気泡の存在量に大きな変化がみられる。

$(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料については上に述べたデータの採取法から判断して、照射前後において気泡分布に大きな変動は起っていないと考えられる。一方、 $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料については、明らかに中央部及び中間部において $0 \sim 9.9\text{ }\mu\text{m}^2$ の気泡が大幅に消滅していることを示しており、照射下における気泡の挙動は両者の間に大きな相違が見られる。

一般的に気泡の消滅 (Densification) は、燃料内における拡散速度の遅い元素に支配される。炭化物燃料中では炭素の拡散速度は U 及び Pu に比べて桁も大きいので¹⁷⁾、気泡の消滅は U 及び Pu の拡散に左右される。C/U+Pu 及び Pu の拡散に着目してみると $(U, Pu) C_{1.0}$ は $(U, Pu) C_{1.1}$ よりも 5 ~ 10 倍大きな拡散係数が報告されている¹⁷⁾。以上は熱拡散に関するデータであるが、照射下においてはもう一つの拡散機構である照射に誘発された、温度に依存しない拡散を考慮しなければならない。今回観測された結果が、熱拡散によるものか、照射誘発拡散によるものかを判断することは困難である。また照射誘発拡散が、 $(U, Pu) C_{1.0}$ で $(U, Pu) C_{1.1}$ より大きいという結果もない。しかし、両者の拡散が複合されて、今回の観測結果を生み出した

ことは間違いないと考えられ、今後の解析課題として重要な意味をもつ。以上に述べたように $(U, Pu) C_{1.0}$ と $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ペレットにおける気泡の挙動の相違は、拡散の基本データで解釈することが出来よう。

5.3.27 燃料ペレットの金相写真撮影

$(U, Pu) C_{1.0}$ 及び $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料ペレットの研磨面についてエッチングを行い、中央部、中間部及び外周部の組織写真撮影を倍率 100 倍で行った。代表的な各部の組織を Photo. 5.13 及び Photo. 5.14 に示す。また、照射前の各々の燃料の組織を Photo. 5.15 に合せて示す。照射前の $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料の組織で白く見える粒が $(U, Pu)_2 C_3$ 相で存在量は約 20 % である。照射した燃料組織も外周部及び中間部は大きな変化は観測されない。しかし、 $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料の中央部は明らかに粒径が大きくなっていることが分る。これに対して $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料の中央部の粒径の変化は小さく、結晶粒の成長についても両者には顕著な相違がみられる。

5.3.28 燃料ペレットの結晶粒度測定

Photo. 5.13 及び Photo. 5.14 の画像解析を行い結晶粒度の測定を行った結果を Table 5.11 に示す。同表から分るように $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料ペレット中央部の結晶粒の直径は、外周部等に比べて約 35 % も大きな値を有している。この結晶粒の成長の相違も前項で述べた燃料中の U 及び Pu の拡散に関する基礎データでその挙動を解釈することができる。

5.3.29 燃料ペレットのモザイク写真撮影

燃料ペレット断面の全体的な組織変化、割れの状況等を詳しく調べるために局所的な写真約 110 枚より構成された倍率 100 倍のモザイク写真を作成した (Photo. 5.16 及び Photo. 5.17)。5.3.25 項のマクロ写真に比較して全体像をミクロ的に観察することができる。白黒のコントラストが局所的に生じているが、これはエッチングの偏りによるもので燃料組織の変化を示しているものではない。

両燃料ペレットの断面とともに、直角方向に大きな割れが 1 本生じており、この割れに対して直角方向に 2 番目の割れが発生している。この割れの状況は照射初期における代表的な様相であり、かつ、前にも説明したようにペレット中央部においても割れが消滅する兆候は見られず、燃料中心温度が約 1000 °C と低いことを反映している。 $(U, Pu) C_{1.0}$ 燃料の中央部で気孔の消滅、結晶粒の成長等のミクロ的な組織変化は起っているが、割れの消滅、気泡の発生及び移行等のマクロ的組織変化は観測されていない。燃料ペレットと被覆管の間には相当大きな間隙がまだ残っており、5.3.13 項の燃料ピンの外径寸法変化のないことと符合している。

5.3.30 燃料ペレットのオートラジオグラフ分析

α オートラジオグラフは KODAK 社製 CN-85 B 型のニトロセルローズフィルムをニッケル (厚さ 7.5 μm) 及びマイラ (同 4 μm) 薄膜で二重に包み、燃料ペレットに約 1 kg の荷重をかけて両者を密着させて行った。 β ・ γ オートラジオグラフには KODAK 社製 HRP 型乾板を用いて、アルミニウム箔 (厚さ 15 μm) 及びマイラ薄膜 (同 4 μm) に包んで露光させた。得られ

た結果を Photo. 5.18 に示す。

α オーラジオグラフは、燃料ペレット中の TRU (主に Pu) の分布状況を表わしているが写真から分るように、(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ともに均一に分散しており偏析はみられない。 β ・ γ ラジオグラフは、主に FP 元素分布を示しているが、(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ペレットとともに、明らかに中央部領域の濃度が薄くなっている。これは次項で述べるマイクロガンマ線測定の定量的な結果と一致しているが、燃料中心温度が約 1000 °C と低いことから考えて FP 元素が拡散等で外周部に移行したのではなく、熱中性子照射であるために中央部で中性子束が減衰していることが原因である。

5.3.31 燃料ペレットのマイクロ γ 線スキャニング

燃料ペレットの径方向の断面について定点の γ 線スペクトル分析を行うとともに、0.5 mm ピッチで全面のマイクロ γ 線スキャニングを行った。使用した装置は 5.3.14 項の燃料ピンの γ 線スキャニングに用いたものと同一で、位置精度は ± 1 mm である。全面スキャニングのデータは燃料ペレットの中心を原点に選び X Y 軸で表示する。

(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料の径方向断面の中心部の γ 線スペクトルを Fig. 5.33 及び Fig. 5.34 に示す。両 γ 線スペクトルはほぼ一致しており有意な差は見いだせない。Fig. 5.11 及び Fig. 5.12 に示した (U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ピンについて (U, Pu) C 燃料スタック中央部で測定した γ 線スペクトルと比較しても後者にステンレス鋼被覆管からの ⁶⁰Co からの γ 線が含まれている以外は γ 線スペクトルの形は一致している。

全面マイクロ γ 線スキャニングは代表的な FP である ¹⁰⁶Rh (622 keV), ¹³⁷Cs (662 keV), ¹⁴⁴Pr (695 keV), ⁹⁵Nb (765 keV) 及び ¹³⁴Cs (795 keV) について行った。(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ペレットに関する結果を Fig. 5.35 及び Fig. 5.36 に示す。(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ペレットの両方について測定したすべての FP 元素の分布は燃料ペレット中心部においてへこみがみられる。X 軸上の FP の分布で ¹⁴⁴Pr, ⁹⁵Nb 等に複雑なピークが現われているがこれは放射能強度が弱いことに伴う統計的な変動であると思われる。左右のピークのバランスのとれた ¹⁰⁶Rh の分布で山と谷の比率は、そのまま熱中性子束の減衰の割合を示していると考えられる。(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料ペレットでの比率はそれぞれ 0.57 及び 0.52 であり、中心部の熱中性子束は外周部に比べて大巾に低下しているといえる。熱群輸送計算コード THERMOS による核計算ではこの比率は 0.35 と推定されており、両者の相違はマイクロスキャニング時における幾何学的条件、試料厚さ等がもたらす誤差によるものと推定される。

5.3.32 被覆管の金相写真撮影

燃料とステンレス鋼被覆材の化学的相互作用を調べるために 5.3.24 項に述べた金相試験前処理を行った被覆管 (371AC 及び 372AC) 及び燃料要素試料 (371B2 及び 372B2) (これらの試料番号と燃料要素の位置関係については、Fig. 5.29 及び Fig. 5.30 参照のこと) について 150 倍のマクロ写真及び 400 倍のマイクロ写真撮影を行った。得られた結果はほぼ同一であったので代表例としてここでは後者の 371B2 { (U, Pu) C_{1.0} 燃料 } 及び 372B2 { (U, Pu) C_{1.1} 燃料 } の金相を Photo. 5.19 及び Photo. 5.20 に、また比較のために撮影した未照射の被覆管の金相を

Photo. 5.21 にそれぞれ示す。

5.3.33 被覆管の腐食厚さ

今回使用したステンレス鋼被覆管は、我が国の高速原型炉「もんじゅ」用に開発されたもので、20%冷間加工した316ステンレス鋼である。Photo.5.21 から分るように、結晶粒の大きさ等被覆内側及び表面とともにその組織はほぼ同一である。

一方、照射した被覆管の内壁は、 $(U, Pu)C_{1.0}$ 燃料で約 $10 \sim 15 \mu m$ 、 $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料で約 $15 \sim 25 \mu m$ の巾で結晶粒が非常に小さくなっている。炭化物燃料と被覆材の化学的相互作用(FCCI)は、これまでに行われた炉外加熱実験等から燃料からステンレス鋼被覆管への炭素の移行(浸炭現象)であることが分っている¹⁹⁾。この浸炭を支配する熱力学量は、燃料及びステンレス鋼の炭素ボテンシャルであるが、これまで $(U, Pu)C_{1+x}$ 燃料について被覆管の温度領域($400 \sim 650^\circ C$)で炭素ボテンシャルを実測した結果は報告されていない。しかし、 $(U, Pu)C_{1+x}$ 燃料の生成自由エネルギー等を用いて計算した結果によると、800 Kにおける微量の $(U, Pu)_2C_3$ を含んだ $(U, Pu)C$ 及び $(U, Pu)_2C_3$ の炭素ボテンシャルは、前者で $-5 \sim -15 \text{ kcal/g-atom C}$ 、後者で $+2 \sim +3 \text{ kcal/g-atom C}$ と推定されている。また、ステンレス鋼中で最も安定な炭化物である $Cr_{23}C_6$ の炭素ボテンシャルは $-13 \sim -18 \text{ kcal/g-atom C}$ と報告されている^{20, 21)}。従って、 $(U, Pu)C_{1.0}$ 及び $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料ともに熱力学的にはステンレス鋼への炭素の移行が起り、特に $(U, Pu)C_{1.0}$ よりも $(U, Pu)_2C_3$ を 20% 含んだ $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料の方が炭素ボテンシャルが高いため厳しい条件下にあると推測される。

Photo. 5.19 及び Photo. 5.20において被覆管内壁で微細化した結晶粒の領域は、上述した浸炭が起った部分と考えるの妥当であろう。 $(U, Pu)C_{1.0}$ 及び $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料の浸炭の度合いは、両者の炭素ボテンシャルから予測される結果と一致している。しかし、両燃料とも被覆管の腐食(浸炭)厚さは $25 \mu m$ 以下に限定されており、この程度の腐食は燃料ピンの健全性の評価上は問題とならない。今回の結果は燃焼度が 1 at. % と低いときのものであり今後高燃焼度における FCCI について評価しなければならないが、 $(U, Pu)C$ 燃料ピンにおいて、浸炭は熱力学的には進行する反応であるが、その速度が遅いと推測されており、さらに $(U, Pu)O_2$ 燃料のように燃料と被覆管の間隙に拡散した FP (Cs, Te, I) 等により化学的相互作用が加速される現象は、 $(U, Pu)C$ 燃料の酸素ボテンシャルが低いことから判断して起らないとされている。照射に伴う燃料の C/M (ここで M は、U+Pu に加えて燃料母材中に固溶した FP 元素を含む) の変化も、酸化物の O/M が増大して FCCI を加速するのに対して、減少することが熱力学計算で明らかにされており²²⁾、この観点からも $(U, Pu)C$ 燃料の FCCI は、酸化物よりも問題は少ないであろうと考えられている。

5.3.34 被覆管の結晶粒度測定

結晶粒度は、ステンレス鋼の引張強さ、耐力、伸び等の機械的性質に大きな影響を与えるので重要な特性の一つである。5.3.32 項で撮影したマイクロ写真を画像解析して結晶粒の大きさを測定した。未照射の試料についても同様な測定を行った。結晶粒の測定結果を Table. 5.12 に示す。未照射試料の結晶粒度 $12 \mu m$ に比べて、 $(U, Pu)C_{1.0}$ 及び $(U, Pu)C_{1.1}$ 燃料被覆管 (371 AC

及び 372AC) は $10 \sim 11 \mu\text{m}$ と少し小さい結晶粒径が得られている。被覆管の結晶粒径は、ASTM 粒度番号 No. 6 よりも細粒とされており、製品粒度は No. 9 ($20 \mu\text{m}$) 程度となっている²³⁾。 「もんじゅ」用被覆管の結晶粒径は $10 \mu\text{m}$ (ASTM No. 11) とさらに小さなものを用いていることになる。上述の照射前後における粒子径の変化 -1~-- $2 \mu\text{m}$ は有意な差とみなすよりも、測定条件、試料の不均一性等に起因していると考えてよいであろう。

5.3.35 被覆管の硬度測定

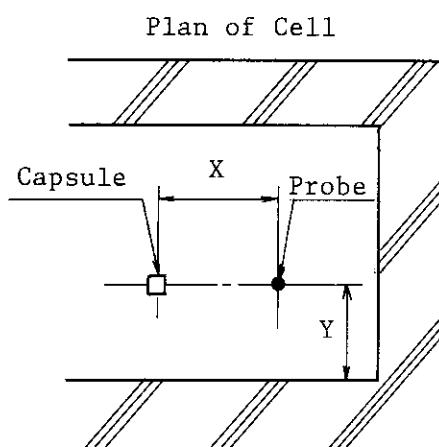
室温において被覆管の硬度と炭素含有量の関係は、炭素含有量が 0.7% 以下においてはほぼ比例する。従って、被覆管厚さの半径方向について、その硬度の分布を測定することにより被覆管への浸炭現象について間接的に知見を得ることが期待される²⁴⁾。

硬度測定は、マイクロビックス法を採用して、 $3 \mu\text{m}$ 仕上げのステンレス鋼被覆管 (371AC 及び 372AC) について、試験荷重 400 g 、荷重保持時間 15 秒の条件で行った。各被覆管について、1ヶ所の測定点で半径方向の 5ヶ所について測定し、また、円周方向の位置を 90° ずらして 4ヶ所、合計 20 点の硬度を調べた。代表的な圧こん部跡を Photo. 5.22 に示す。半径方向の距離が同一な測定点 4ヶ所について平均して求めたビックス硬度を Table 5.13 に、また、Photo. 5.22 に示した位置番号を横軸にとって図示した結果を Fig. 5.37 に示す。照射によって被覆管のビックス硬度は $15 \sim 20$ 程度増大している。この値は測定誤差範囲を超えており、Table 5.13 に示したように被覆管の最も内側の測定点 1 における $(U, Pu) C_{1.0}$ 及び $(U, Pu) C_{1.1}$ 燃料がほぼ同一値であることから判断して燃料からの被覆管への浸炭が原因ではないと判断される。この照射による被覆管の硬度増大は、中性子照射による照射損傷に伴うもので、被覆管温度が $450 \sim 500^\circ\text{C}$ であることから点欠陥はアニールされ、欠陥の集合体のボイド、積層欠陥周辺に生じる転位ループの生成によるものと思われる²⁵⁾。

Table 5.1 Method and results of the radiation rate measurement for ICH-37H capsule

(a)

Distance (cm)			Dose Rate (R/hr)
X	Y	Z	
20	60	0	139.7
"	"	"	79.9
50	"	"	41.0
75	"	"	19.9
100	"	"	11.8
125	"	"	7.6
150	"	"	5.3
200	"	"	3.2
250	"	"	2.0



(b)

Distance (cm)			Dose Rate (R/hr)
X	Y	Z	
20	60	+50	80.6
"	"	+40	105.1
"	"	+30	118.4
"	"	+20	128.9
"	"	+10	138.2
"	"	0	139.7
"	"	-10	119.5
"	"	-20	87.1
"	"	-30	54.7
"	"	-40	34.2

Sectional Plan of Cell

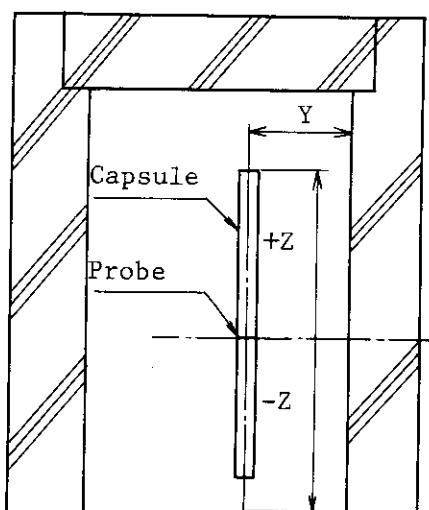


Table 5.2 Neutron fluence of ICF-37H capsule measured by fluence monitors

(a) Specifications of the fluence monitors

Position	Fuel pin	Weight of Al-Co monitor (mg)	Weight of Al-Ni monitor (mg)
upper site	(U,Pu)C _{1.1}	5.05	2.54
lower site	(U,Pu)C _{1.0}	5.51	2.80

* Composition of monitor: Al-0.024 wt% Co
 Al-0.501 wt% Ni

(b) Results of measurement

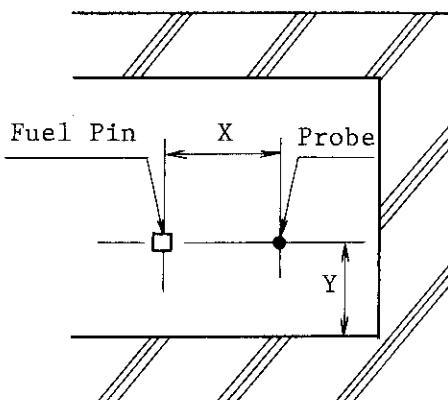
Position	Fuel pin	Monitor nuclide	Objective nuclear reaction	Date	Counts (dps)	Fluence (cm ⁻²)
upper site	Al-Co	60Co	59Co(n,r) ⁶⁰ Co (thermal n)	1987.1.5	4.349×10 ⁵	5.41×10 ²⁰ (thermal)
	Al-Ni	58Co	58Ni(n,p) ⁵⁸ Co (fast n)	1987.1.5	8.691	0.93×10 ²⁰ (fast)
lower site	Al-Co	60Co	59Co(n,r) ⁶⁰ Co (thermal n)	1987.1.5	4.793×10 ⁵	5.42×10 ²⁰ (thermal)
	Al-Ni	58Co	58Ni(n,p) ⁵⁸ Co (fast n)	1987.1.5	17.75	1.73×10 ²⁰ (fast)

Table 5.3 Method and results of the radiation rate measurement for fuel pins

ICF-37-1 [(U,Pu)C_{1.0} fuel pin]

Distance (cm)			Dose Rate
X	Y	Z	(R/hr)
25	60	12	29.7
50	"	"	7.96
75	"	"	3.68
100	"	"	2.13
150	"	"	1.02

Plan of Cell



ICF-37-2 [(U,Pu)C_{1.1} fuel pin]

Distance (cm)			Dose Rate
X	Y	Z	(R/hr)
25	60	12	30.6
50	"	"	8.04
75	"	"	3.65
100	"	"	2.10
150	"	"	1.02

Sectional Plan of Cell

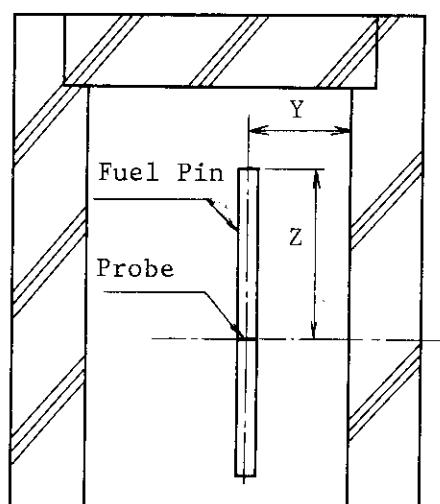
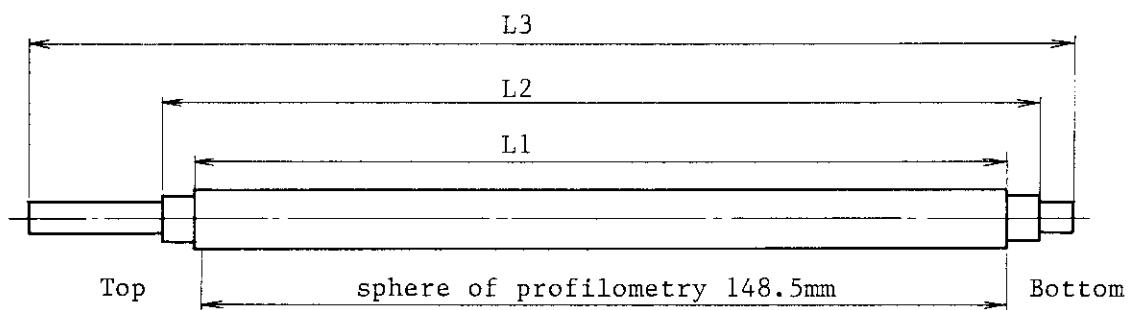


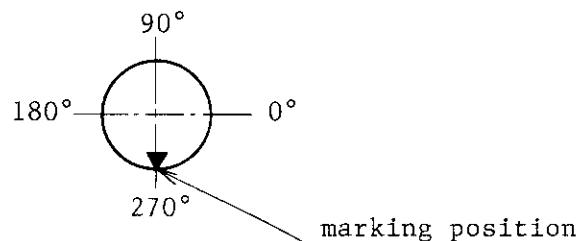
Table 5.4 Axial length of $(U,Pu)C_{1.0}$ and $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pins

Fuel pin	L_1 (mm)	L_2 (mm)	L_3 (mm)
$(U,Pu)C_{1.0}$	151.0	160.0	185.0
$(U,Pu)C_{1.1}$	151.0	159.9	185.0

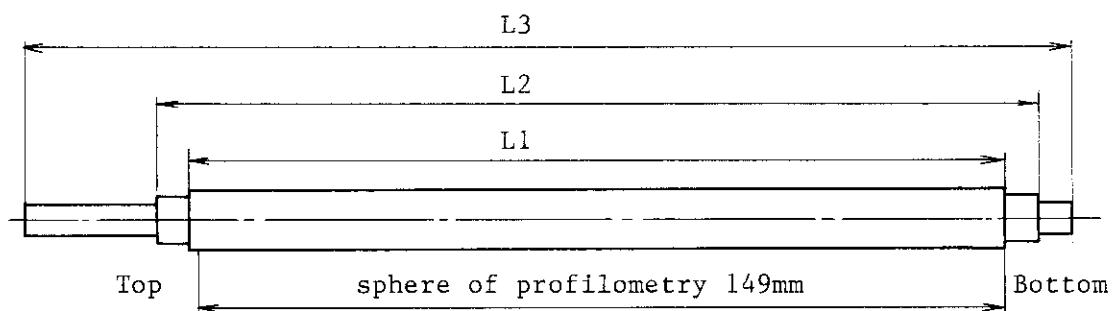
$(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin



Direction angle (looking from the upper plug side)



$(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin



Direction angle (looking from the upper plug side)

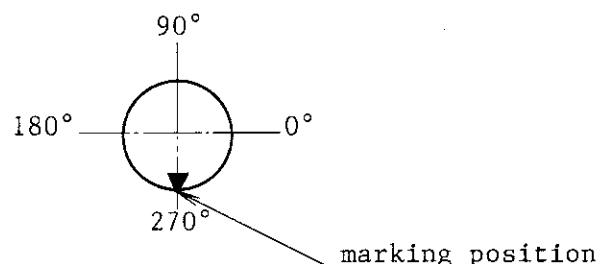


Table 5.5 Results of puncture tests

Fuel pin No.	(U,Pu)C _{1.0} pin (ICF-37-1)	(U,Pu)C _{1.1} pin (ICF-37-2)
Void volume before puncturing	74.64 cm ³	74.77 cm ³
Void volume after puncturing	75.37 cm ³	75.56 cm ³
Void volume in fuel pin	0.73 cm ³	0.79 cm ³
Pressure indication before puncturing	6.4 ×10 ⁻³ Pa	6.7 ×10 ⁻³ Pa
Equilibrated gas pressure	8.3 ×10 ² Pa	7.2 ×10 ² Pa
Pressure in fuel pin	1.377×10 ⁵ Pa	1.101×10 ⁵ Pa
Temperature at puncturing	31.0 °C	28.0 °C
Total gas volume	0.89 cm ³	0.78 cm ³

1) Leak rate of measuring system : 1.4×10^{-1} Pa.cm³/sec

2) Void volume data are shown the average of six times measurements.

Table 5.6 Determination of the composition and volume of FP gas

Fuel pin		(U,Pu)C _{1.0} pin (ICF-37-1)	(U,Pu)C _{1.1} pin (ICF-37-2)	
Gas composition (vol.%)	He	Base	Base	
	N ₂	2.1	0.51	
	O ₂	0.40	0.10	
	Ar	0.93	2.2	
	Kr	0.33	0.054	
	Xe	4.9	1.1	
Xe/Kr ratio		14.8	20.4	
FP gas isotope ratio (%)	Kr	83-Kr	17.7	
		84-Kr	27.9	
		85-Kr	6.6	
		86-Kr	47.9	
	Xe	131-Xe	12.9	
		132-Xe	18.5	
		134-Xe	26.2	
		136-Xe	42.3	
Collected volume(Kr+Xe)(STP.cm ³)		0.046	0.010	
Produced volume*(Kr+Xe)(STP.cm ³)		10.49	10.82	
FP gas release rate (%)		0.44	0.09	

* Calculated using ORIGEN code

Table 5.7 Density and porosity of fuel pellets

Sample	371AP [(U,Pu)C _{1.0}]	372AP [(U,Pu)C _{1.1}]
Number of pellet fragments	13	9
Weight of sample	4.7306 g	4.5457 g
Archimedes' method (m-xylene)	Period of dipping	10 min
	Temp. of the liquid	24.0 °C
	Density of the liquid	0.859 g/cm ³
	Weight of sample	4.3951 g
	Volume of sample	0.3977 cm ³
	Density fo sample	12.07 g/cm ³ 88.7 %T.D.
Picometer method (mercury)	Density of sample	11.89 g/cm ³ 87.43 %T.D.
	Open porosity	1.31 %
	Closed porosity	11.26 %
		0.45 %
		8.59 %

Table 5.8 List of sample names for measurements

Test	Sample name
Pretreatment for metallography	371B1, 371B2, 371B3 371B5, 371AC, 371B4 372B1, 372B2, 372B3 372B5, 372AC, 372B4
Macro photography (as polished)	371B1, 371B2, 371B4 372B1, 372B2, 372B4
Microscopic photography	371B1, 371B2, 371B5 372B1, 372B2, 372B5 371AC, 372AC, 372B4
Mosaic microscopic photography	371B2, 372B2
Porosity measurement	371B2, 372B2
Grain size measurement	371B2, 372B2
Micro γ -scanning	371B3, 372B3
α Auto radiography	371B3, 372B3
$\beta.\gamma$ Auto radiography	371B3, 372B3

Table 5.9 Results of analysis of pore distribution
for (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet

371B2, (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (After irradiation)

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm ²)	Number of pores		
	Out	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	412	215	144
10.0 ~ 19.9	5	23	19
20.0 ~ 29.9	4	3	11
30.0 ~ 39.9	1	2	5
40.0 ~ 49.9	0	1	1
50.0 ~ 59.9	0	0	4
60.0 ~ 69.9	1	0	1
70.0 ~ 79.9	1	1	0
80.0 ~ 89.9	1		0
90.0 ~ 99.9	1		0
100.0 ~ 109.9	0		0
110.0 ~ 119.9	0		0
120.0 ~ 129.9	0		0
130.0 ~ 139.9	0		0
140.0 ~ 149.9	0		0
150.0 ~ 159.9	0		0
160.0 ~ 169.9	0		0
170.0 ~ 179.9	0		0
180.0 ~ 189.9	0		0
190.0 ~ 199.9	0		0
200.0 ~ 209.9	0		1
210.0 ~ 219.9	0		
220.0 ~ 229.9	1		
Total pore number	427	245	186

(U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (As fabricated)

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm ²)	Number of pores		
	Out	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	406	364	376
10.0 ~ 19.9	16	23	23
20.0 ~ 29.9	6	8	8
30.0 ~ 39.9	2	2	3
40.0 ~ 49.9	0	4	4
50.0 ~ 59.9	1	2	2
60.0 ~ 69.9		0	0
70.0 ~ 79.9		1	0
80.0 ~ 89.9		2	0
90.0 ~ 99.9		0	1
100.0 ~ 109.9		1	0
110.0 ~ 119.9			1
Total pore number	431	407	418

Table 5.10 Results of analysis of pore distribution
for (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet372B2, (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (After irradiation)

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm 2)	Number of pores		
	Out	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	334	299	357
10.0 ~ 19.9	7	24	26
20.0 ~ 29.9	1	4	11
30.0 ~ 39.9	1	3	1
40.0 ~ 49.9		1	1
Total pore number	343	331	396

(U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (As fabricated)

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm 2)	Number of pores		
	Out	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	241	293	318
10.0 ~ 19.9	16	19	26
20.0 ~ 29.9	4	9	5
30.0 ~ 39.9	3	5	5
40.0 ~ 49.9	3	3	4
50.0 ~ 59.9	3	0	0
60.0 ~ 69.9	2	0	0
70.0 ~ 79.9	1	0	1
80.0 ~ 89.9	0	0	
90.0 ~ 99.9	3	0	
100.0 ~ 109.9	1	0	
110.0 ~ 119.9		0	
120.0 ~ 129.9		0	
130.0 ~ 139.9		0	
140.0 ~ 149.9		1	
Total pore number	277	330	359

Table 5.11 Results of grain size measurement for fuel pellets

Sample		Position	Average grain diameter(μm)
Fuel pellet	371B2 (U,Pu)C _{1.0}	Out	10.62
		Intermediate	10.53
		Center	14.29
	372B2 (U,Pu)C _{1.1}	Out	7.88
		Intermediate	7.47
		Center	7.30

Table 5.12 Results of grain size measurement for pin claddings

Sample		Position	Average grain diameter(μm)
Pin cladding	371AC	Outer	10.58
		Inner	9.97
	372AC	Outer	11.03
		Inner	10.65
	Unirradiated	Outer	12.83
		Intermediate	12.83
		Inner	12.44

Table 5.13 Results of micro vickers hardness of pin claddings

Sample	Position	Micro vickers hardness (Hv)				
		0°	90°	180°	270°	Average value
Unirradiated	1	286	258	258	258	265±12
	2	280	255	259	265	265±10
	3	264	256	260	253	258± 4
	4	254	263	261	261	260± 3
	5	276	252	255	268	263±10
371AC (U,Pu)C _{1.0} fuel pin	1	283	275	280	280	280± 3
	2	277	271	277	282	277± 4
	3	278	276	280	269	276± 4
	4	275	280	282	289	282± 5
	5	294	287	280	291	288± 5
372AC (U,Pu)C _{1.1} fuel pin	1	297	279	271	275	281±10
	2	278	264	276	293	278±10
	3	283	280	272	274	277± 4
	4	285	275	267	297	281±11
	5	286	267	297	287	284±11

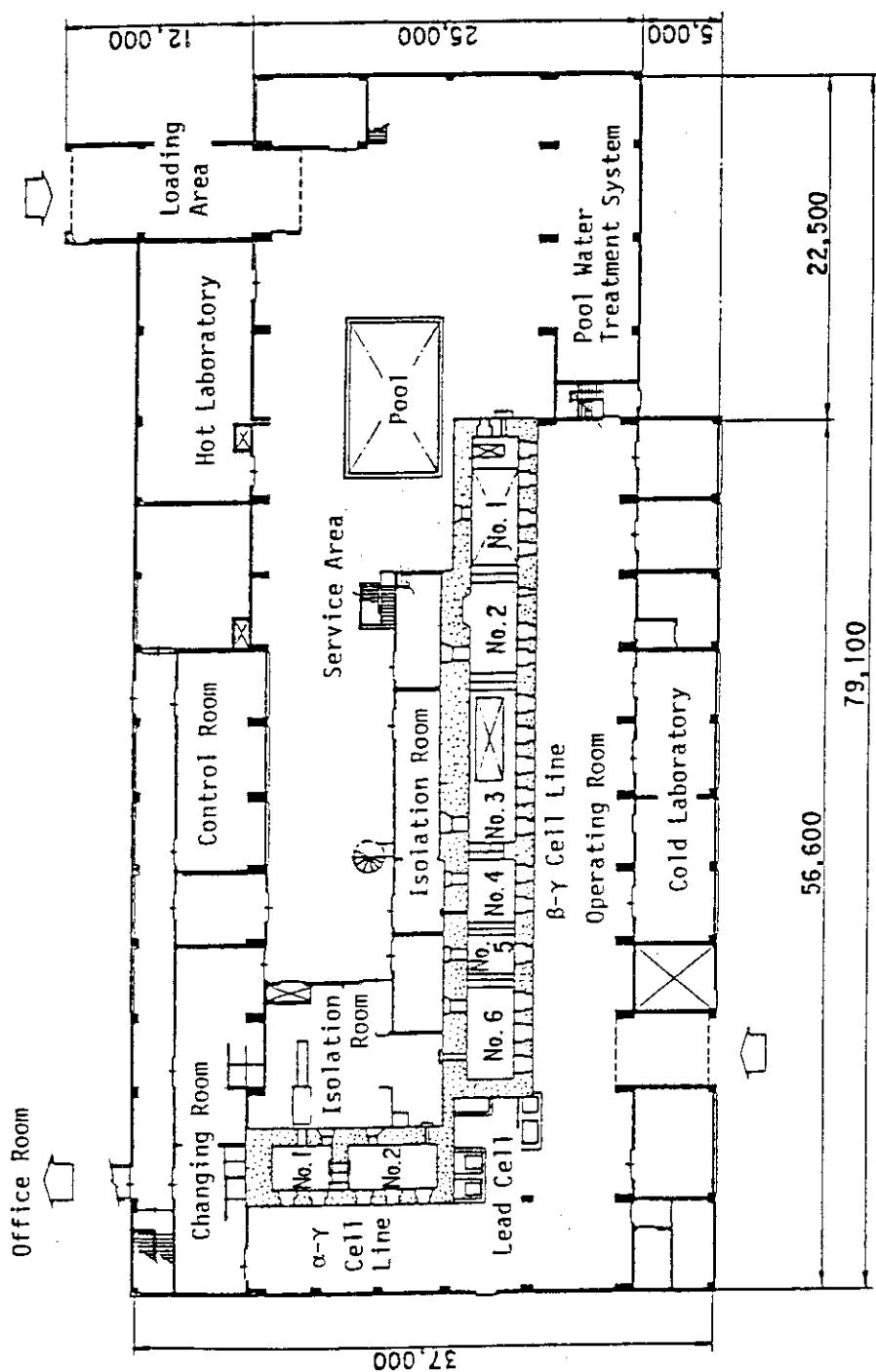


Fig. 5.1 Layout of RFFF (Reactor Fuel Examination Facility) functional area (1st floor)

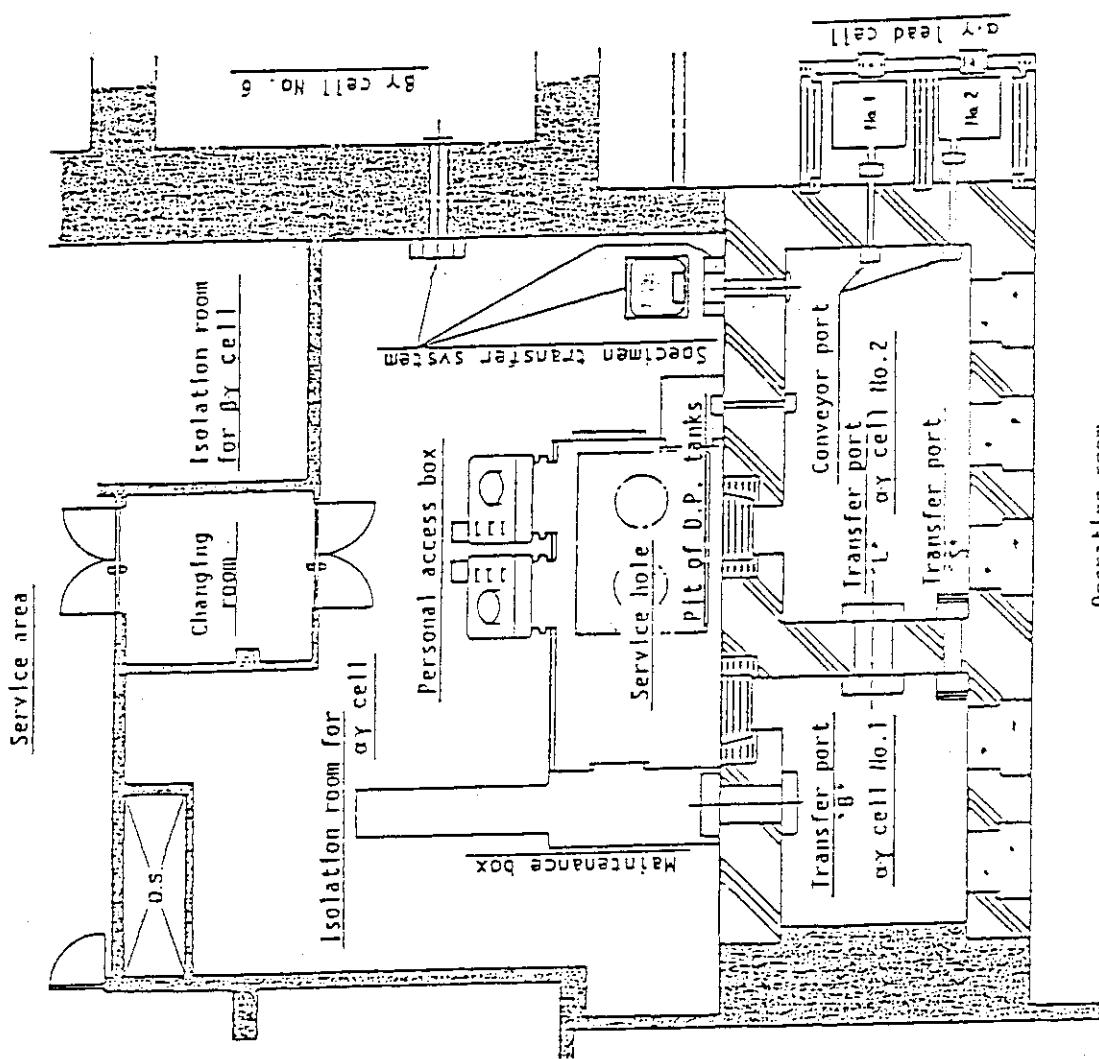


Fig. 5.2 Layout of the alpha-gamma cell facility of RFFR (1st floor)

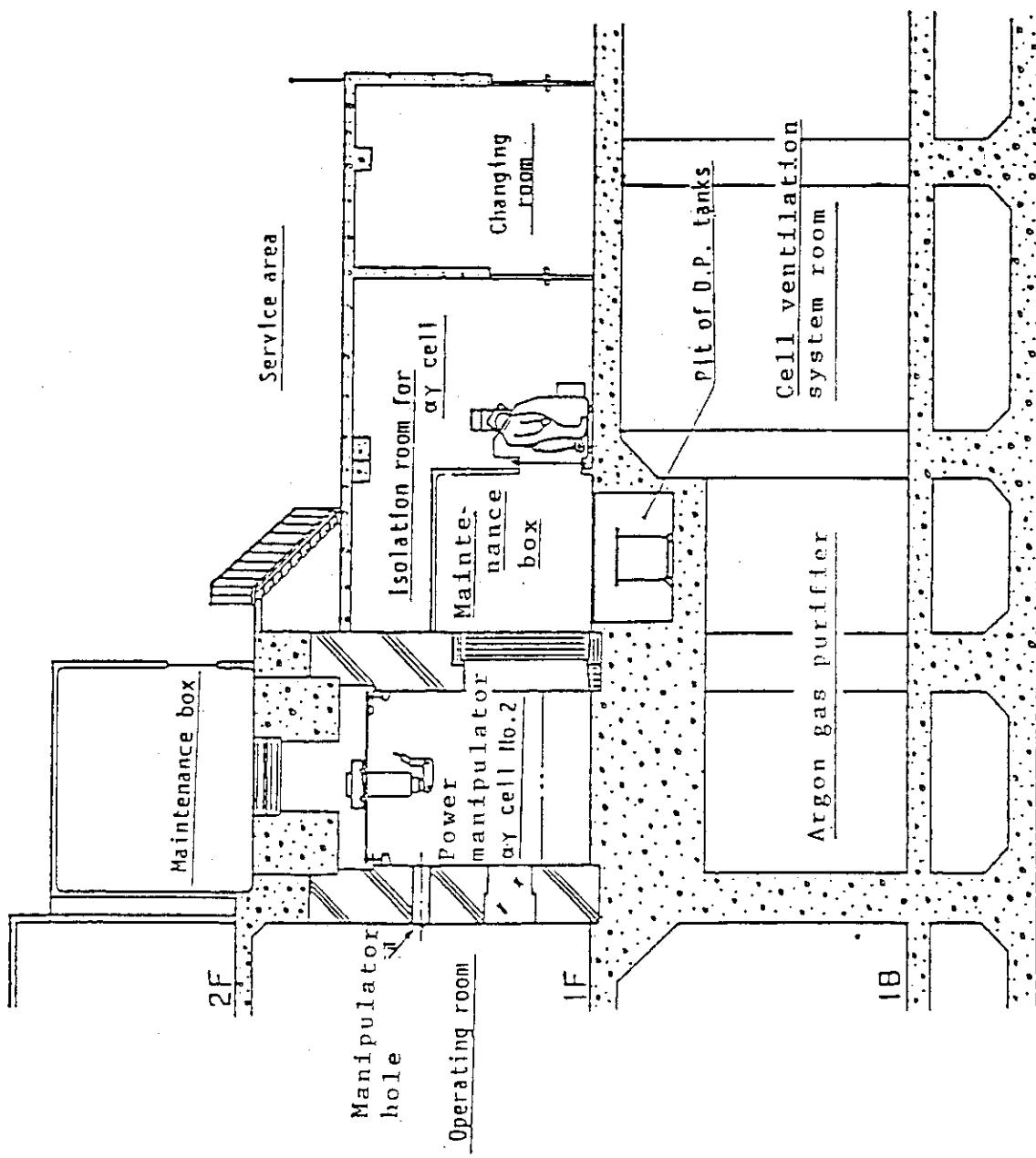


Fig. 5.3 Longitudinal cross section of the alpha-gamma cell facility of RREF

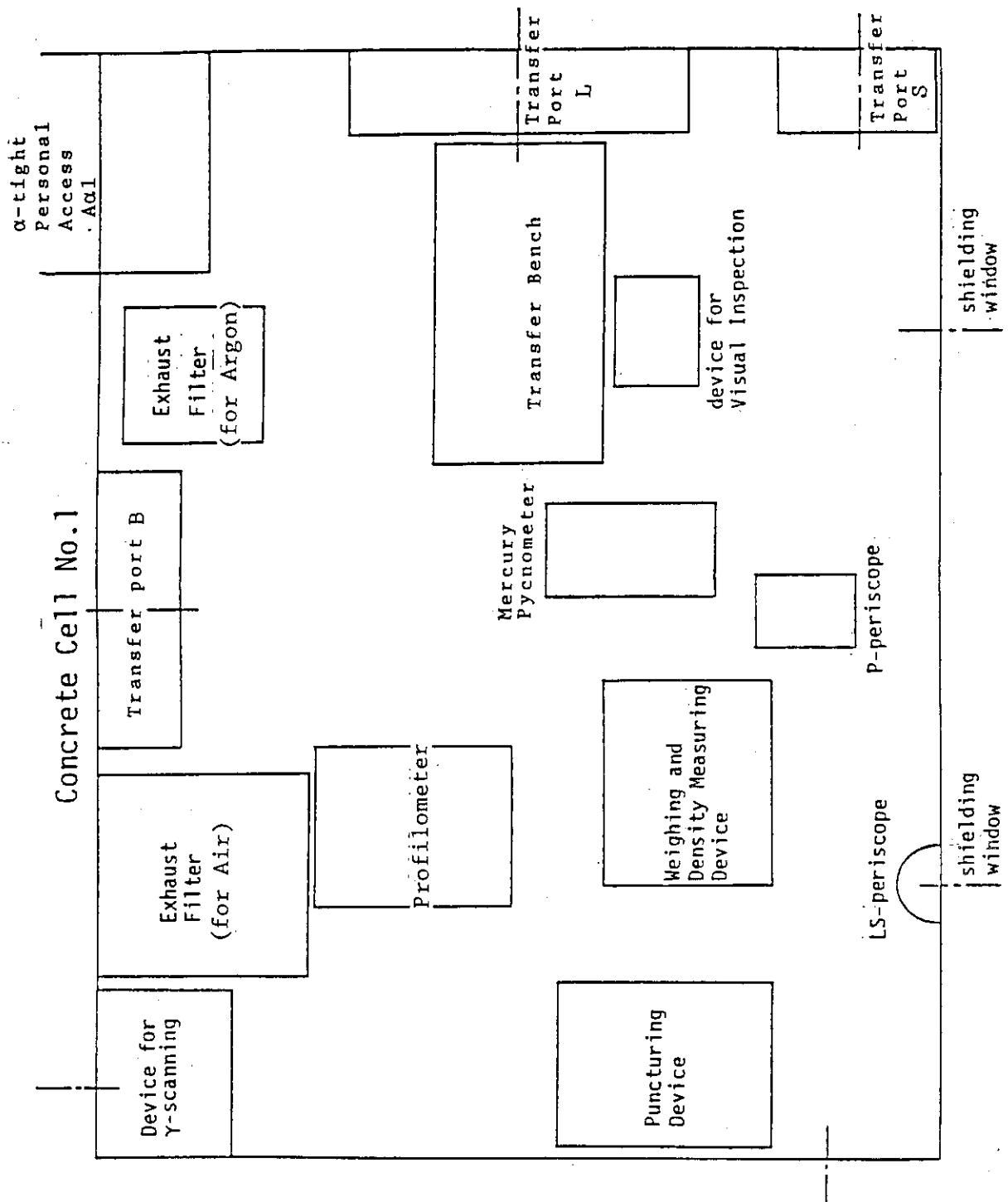


Fig. 5.4 Layout of device in the alpha-gamma concrete cell No. 1

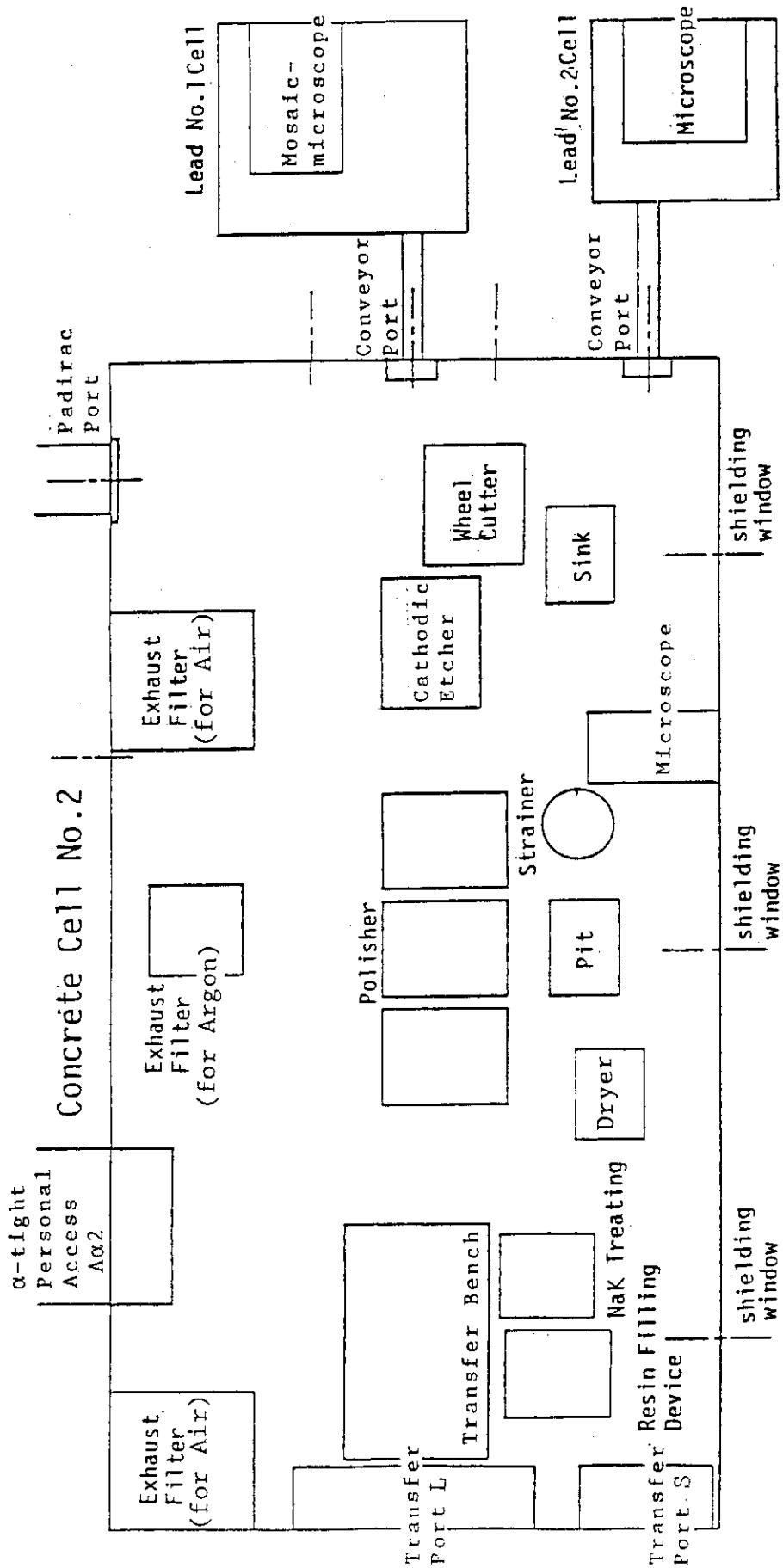


Fig. 5.5 Layout of device in the alpha-gamma concrete cell No. 2 and lead cells

Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
①	Irradiation capsule Transportation of the capsule into the cell	1	1 CF - 37H Capsule
② ③ ④ ⑤ ⑥ ⑦ ⑧	Inspection of the capsule appearance X-ray radiograph Radiation rate measurement Disassembly of outer tube and recovery of neutron fluence monitors Determination of neutron irradiation dose Inspection of the inner tube appearance Disassembly of inner tube and treatment of Nak	1 1 1 1 1 1 1	(U,Pu) C _{1.1} fuel pin (1CF-37-2)
⑨ ⑩ ⑪	Carbide fuel pins Inspection of fuel pins appearance Radiation rate measurement X-ray radiograph	2 2 2	(U,Pu) C _{1.0} fuel pin (1CF-37-1)

Fig. 5.6 Flow sheet of post-irradiation examination for uranium-plutonium mixed carbide fuel

Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
(12)	Carbide fuel pins		
(13)	Movement of fuel pins	4	(372 AC)
(14)	Measurement of fuel pin weight	2	(371 AC)
(15)	γ -scanning	2	
(16)	Profilometry	2	
(17)	Puncture test	2	
(18)	Analysis of FP gas	2	
(19)	Cutting	2	
(20)	Filling of resin	2	
(21)	Sectioning of fuel pins	4	
(22)	Removal of fuel	4	
(23)	Fuel pellets		
	Measurement of density	2	372B1 372B2 372B3 372B5
	Measurement of open porosity	2	371B5

Fig. 5.6 (continued)

Working No.	Examination Item	Number	Flow of examination
(24)	Fuel pellets		
(24)	Preparation for metallography	10	371AC 371B1 371B2 371B3 371B5
(25)	Optical inspection and macroscopic photography	4	372AC 372B1 372B2 372B3 372B5
(26)	Measurement of pore distribution	2	
(27)	Optical inspection and microscopic photography	6	
(28)	Measurement of grain size	2	
(29)	Mosaic microscopic photography	2	
(30)	Auto radiography	2	
(31)	Micro γ -scanning	2	
	Cladding		
(32)	Metallography and microscopic photography	2	
(33)	Measurement of depth of corrosion	4	
(34)	Measurement of grain size	2	
(35)	Measurement of hardness	2	

Fig. 5.6 (continued)

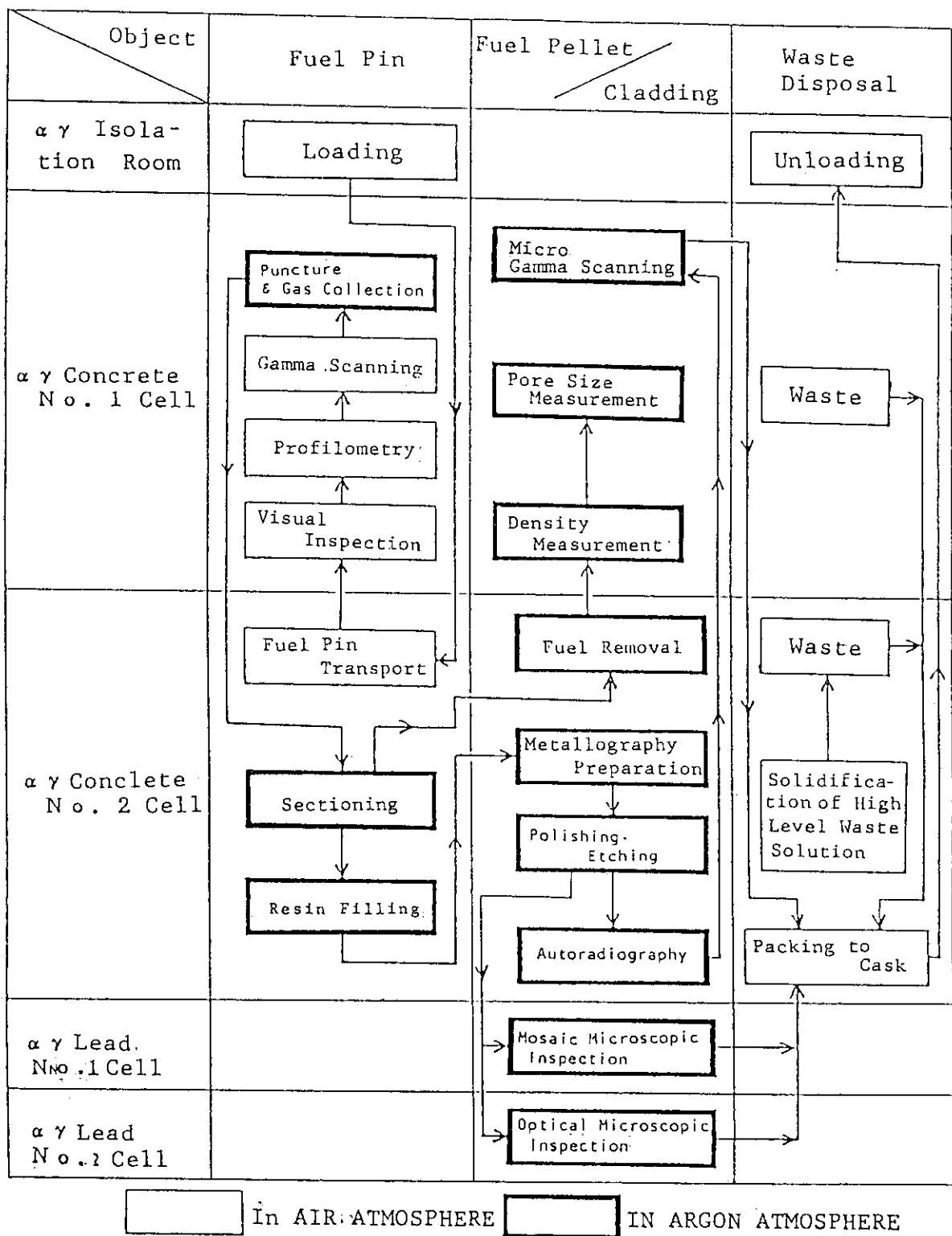
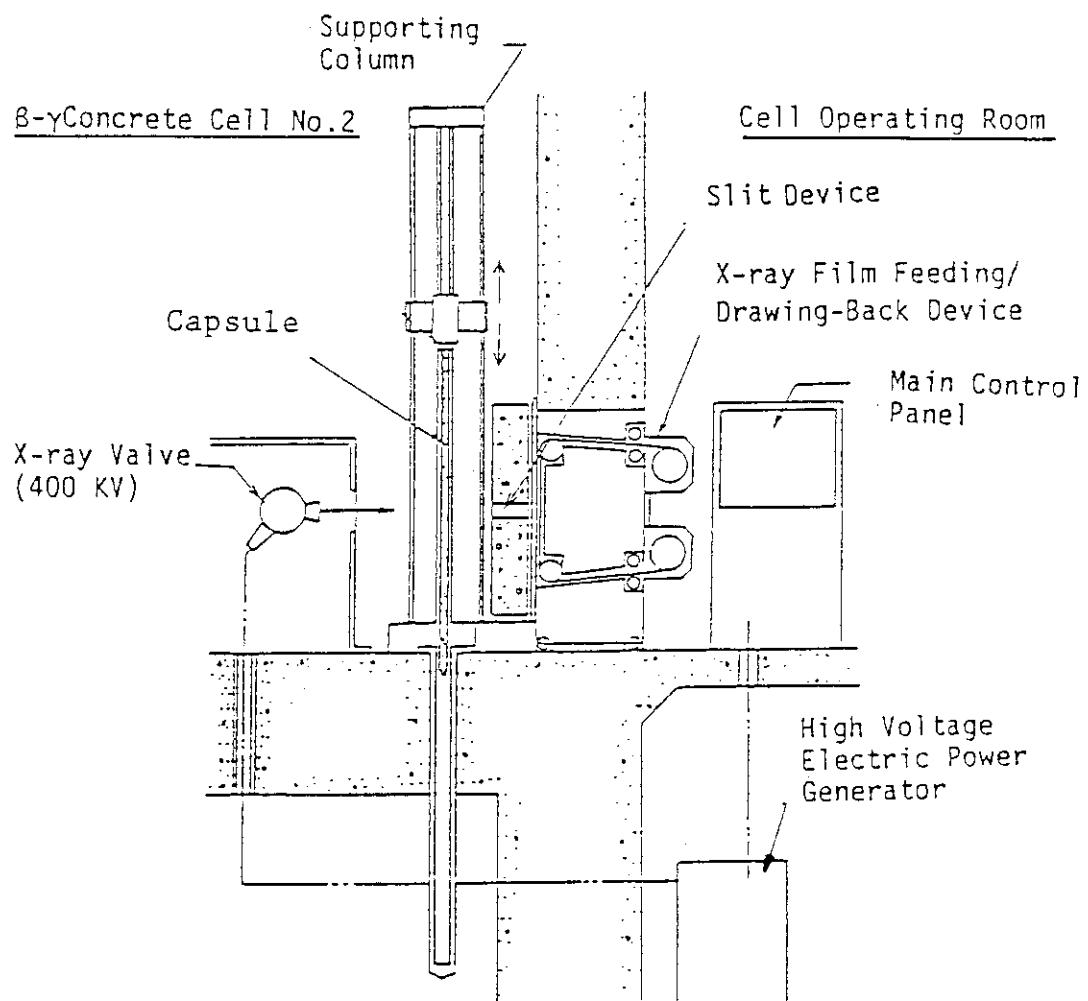
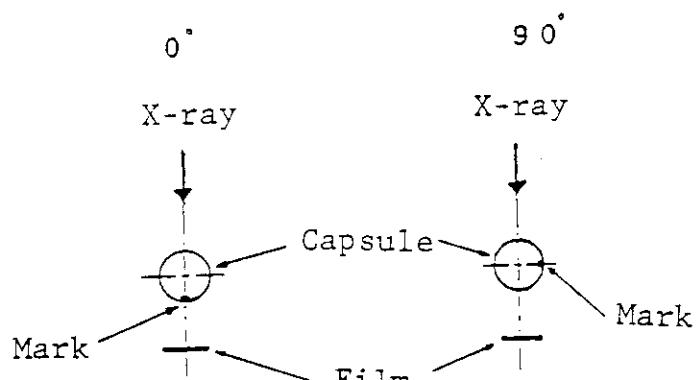


Fig. 5.7 Post-irradiation examination program in the alpha-gamma cell line

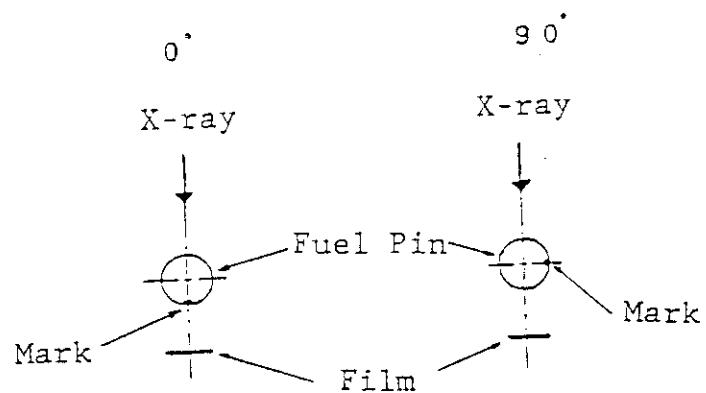
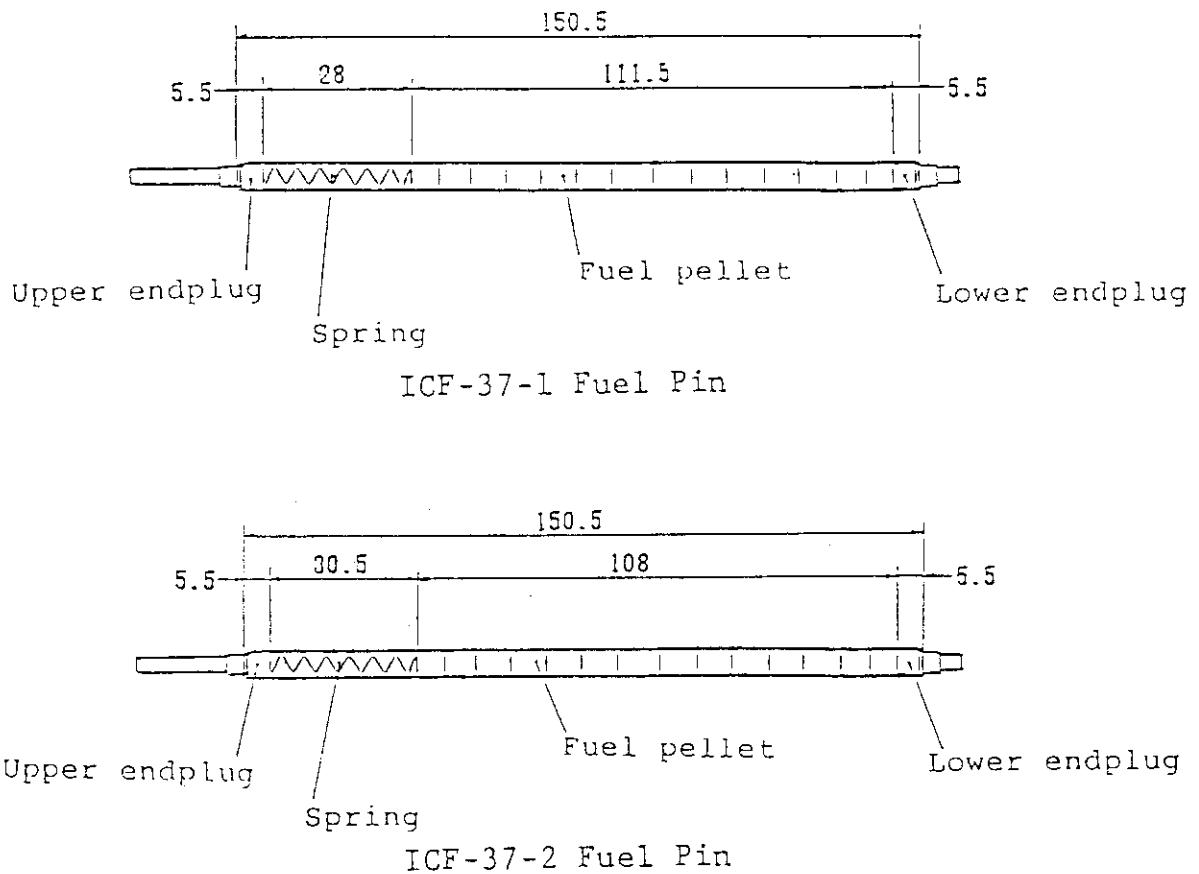


X-ray Radiographing Apparatus



Direction of X-ray Radiography

Fig. 5.8 Apparatus for X-ray radiography of capsule



Direction of X-ray Radiography

Fig. 5.9 X-ray radiography of the fuel pins

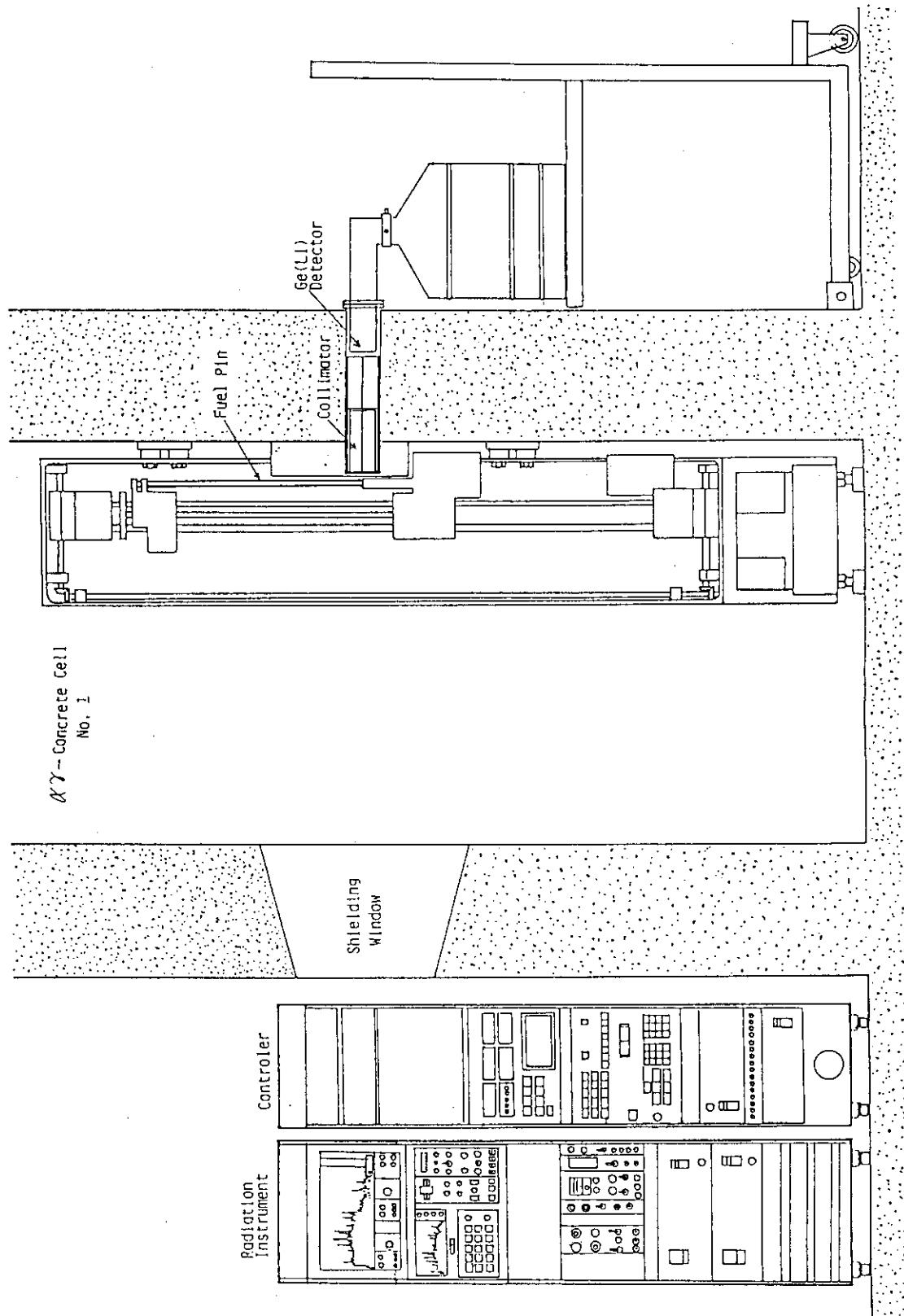


Fig. 5.10 Apparatus for gamma ray scanning of the fuel pins

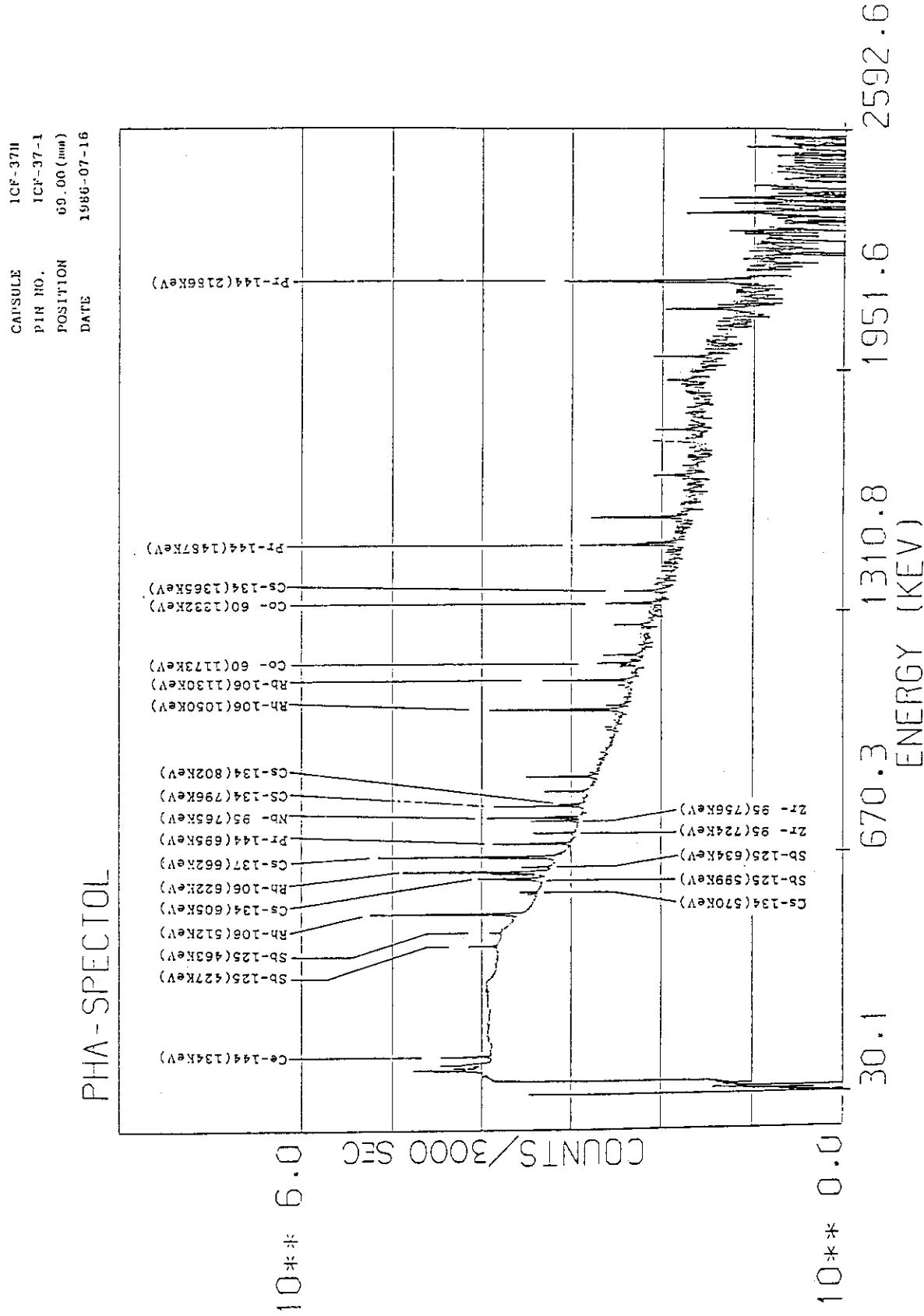
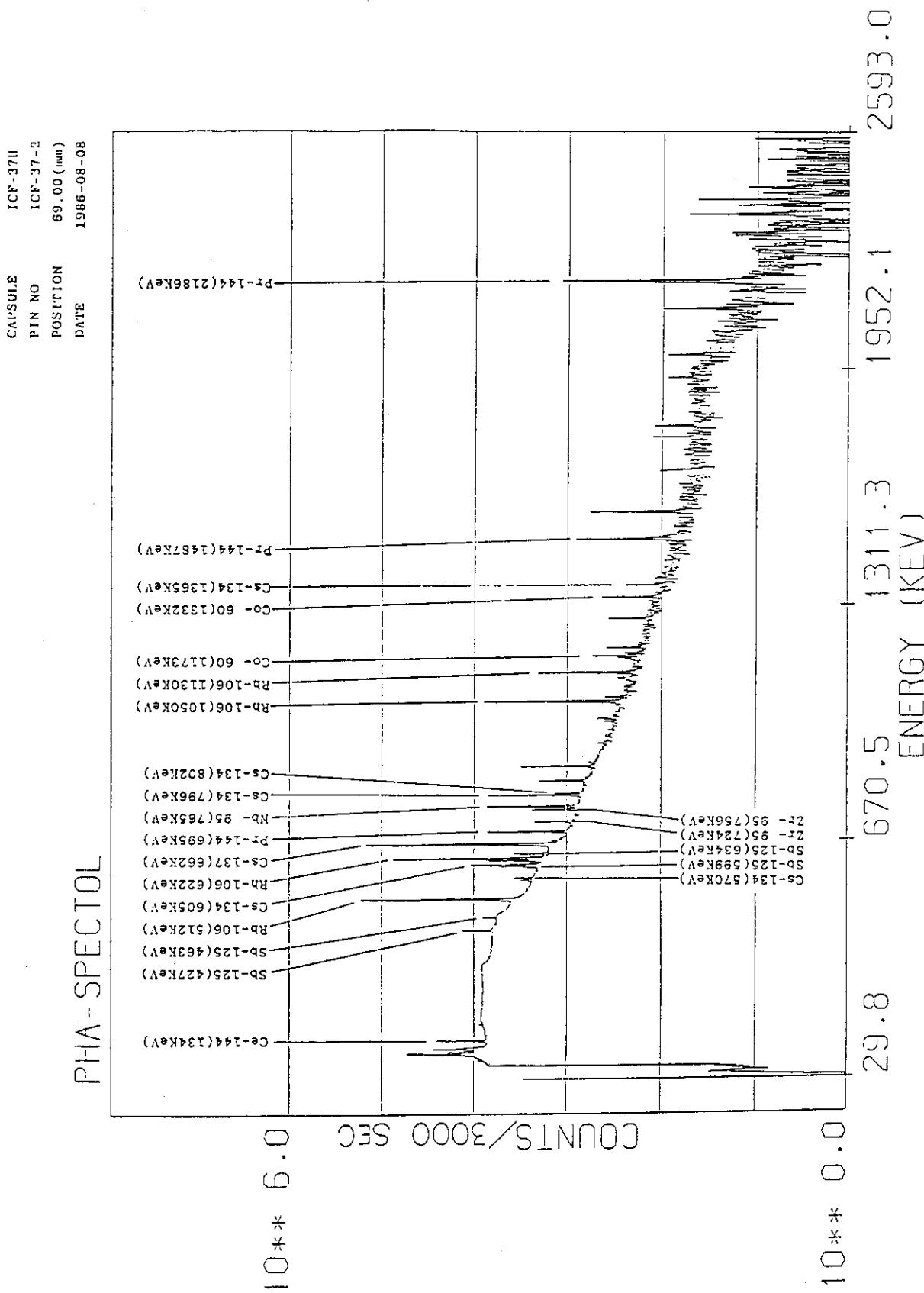
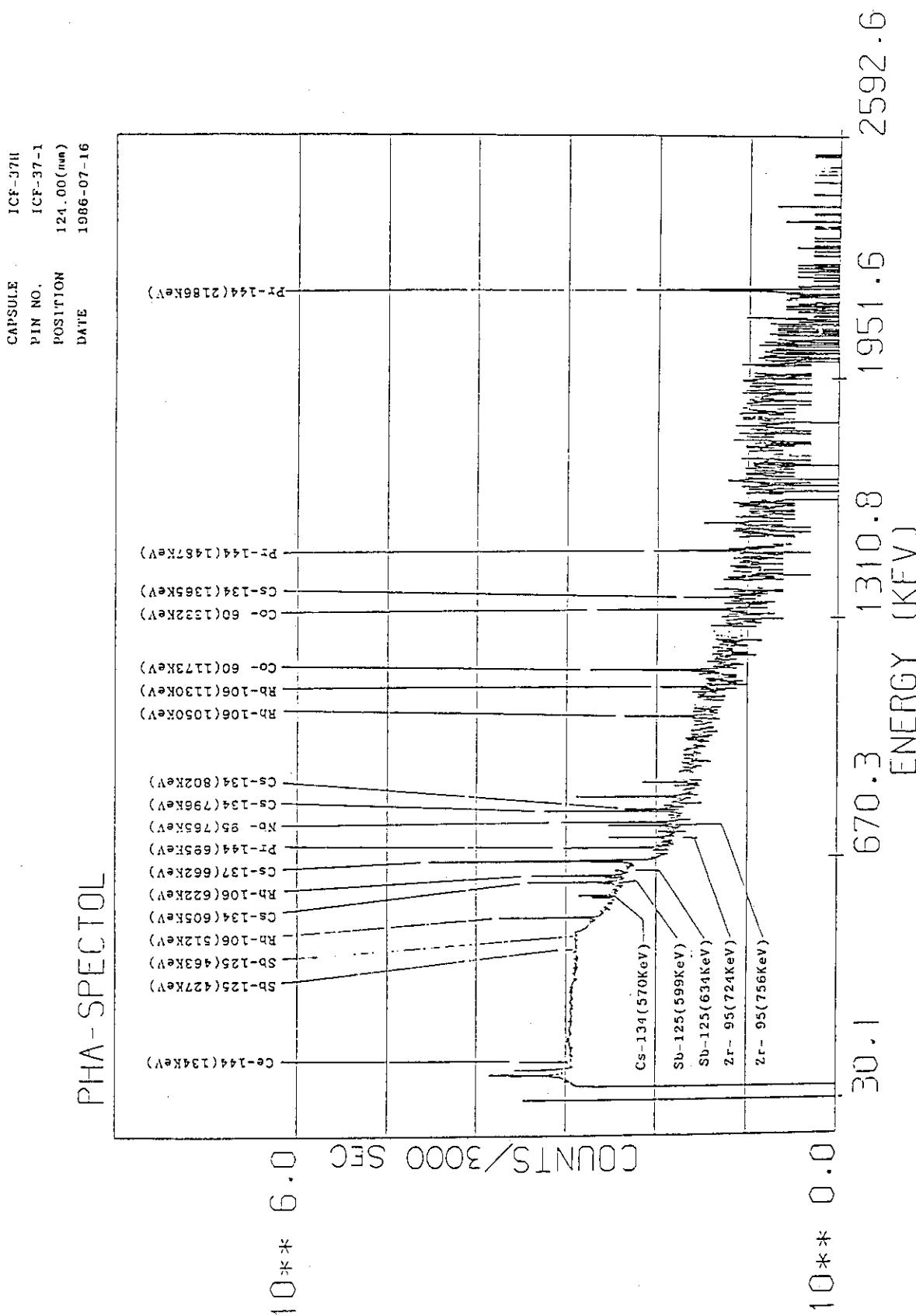
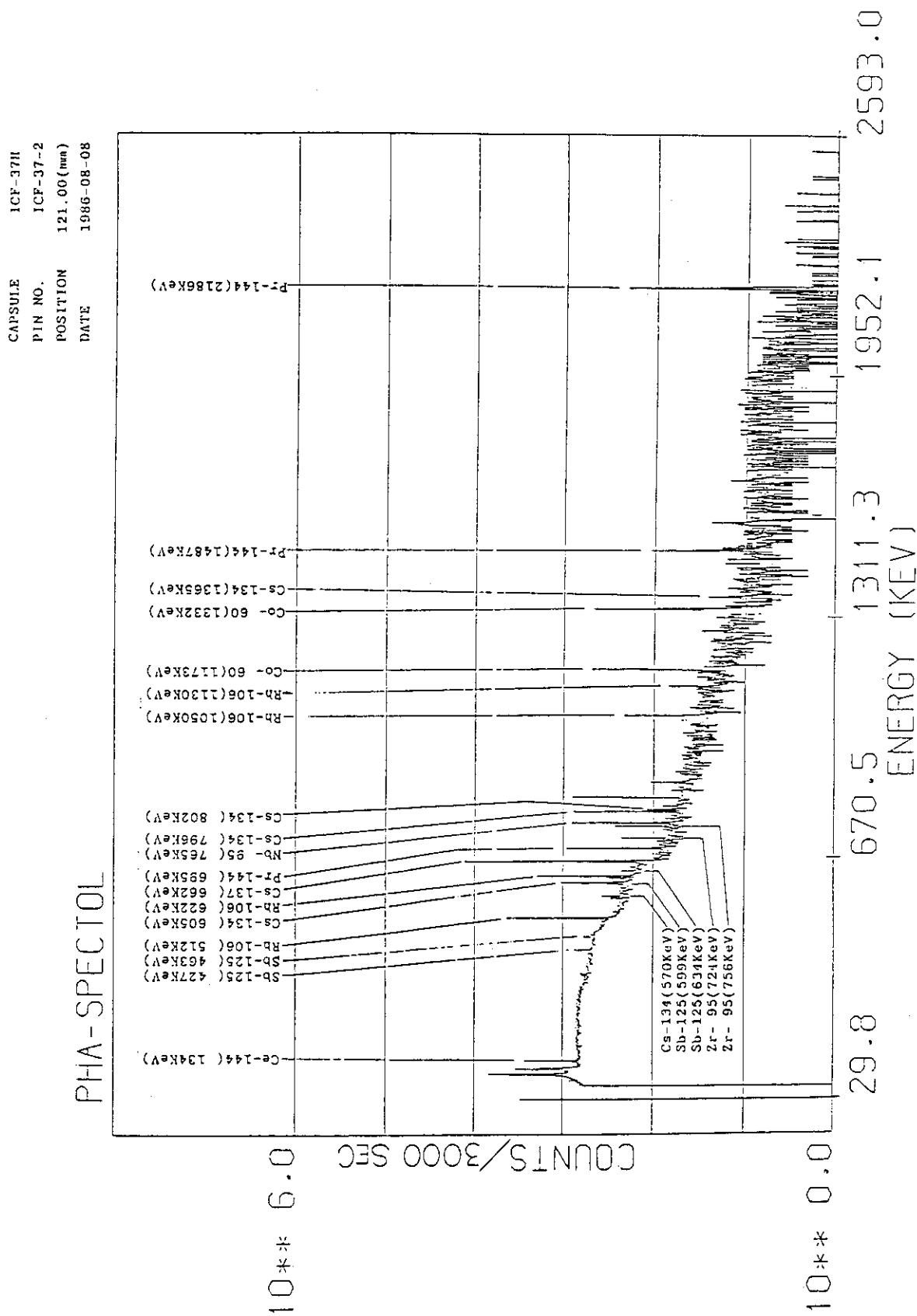
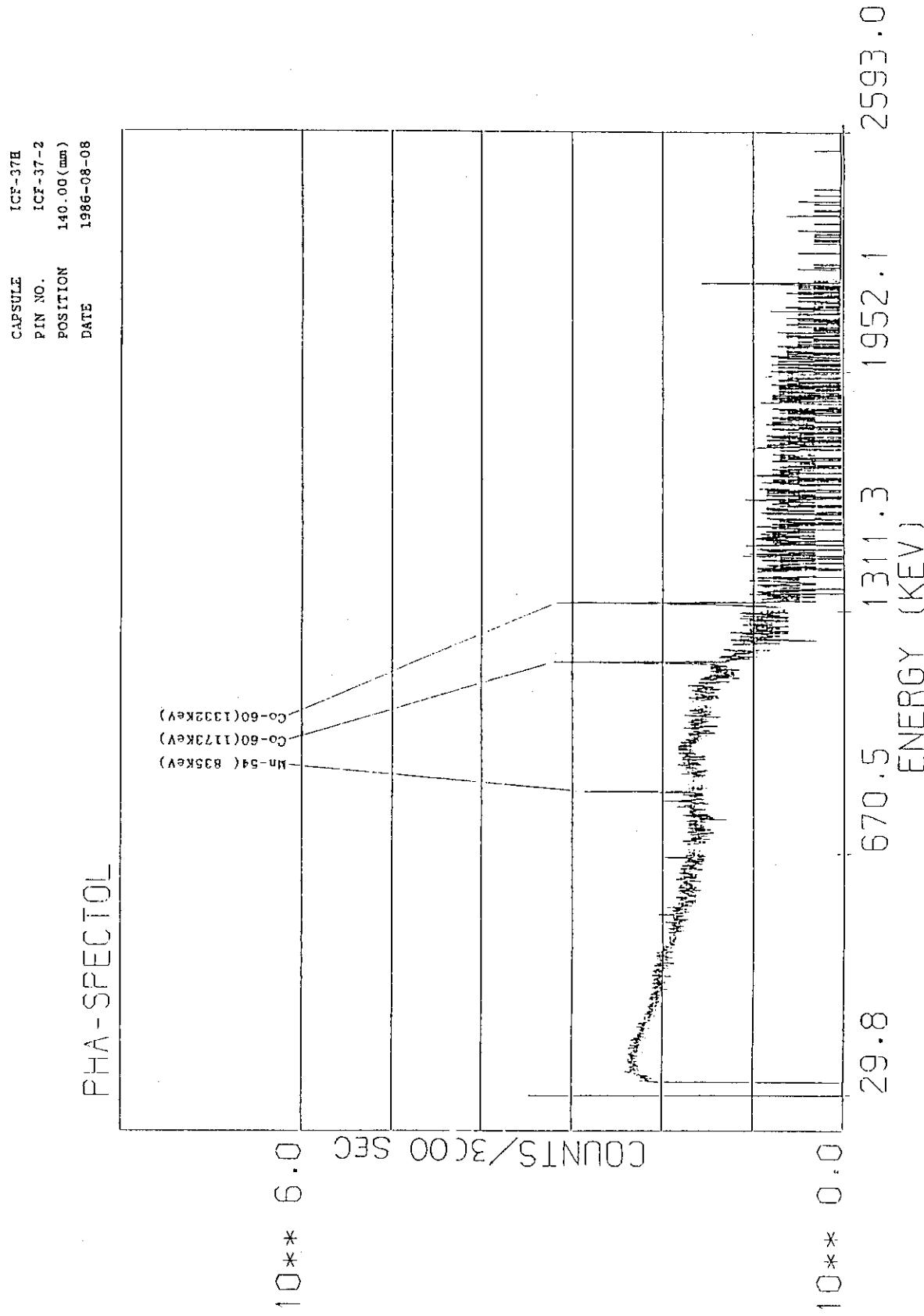


Fig. 5.11 Gamma ray spectrum at the center of the fuel stack of $(U, Pu)C_1$ o pin

Fig. 5.12 Gamma ray spectrum at the center of the fuel stack of $(\text{U}, \text{Pu})\text{Cu}$ pin

Fig. 5.13 Gamma ray spectrum at upper thermal insulator UC pellet of $(U, Pu)C_1$, \circ pin

Fig. 5.14 Gamma ray spectrum at upper thermal insulator UC pellet of $(U, Pu)C_{1.1}$ pin

Fig. 5.15 Gamma ray spectrum at plenum of (U,Pu)C₁₁ pin

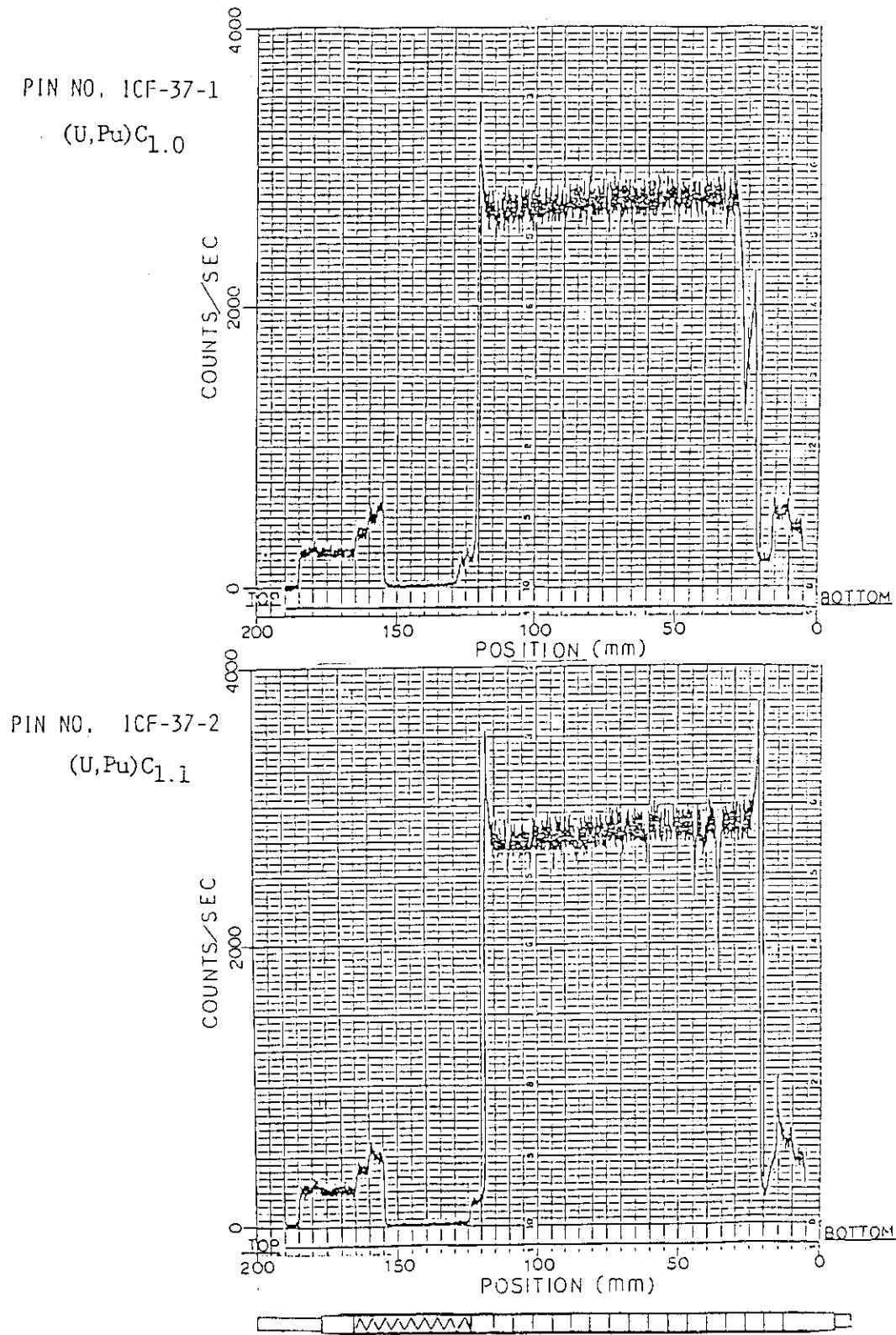
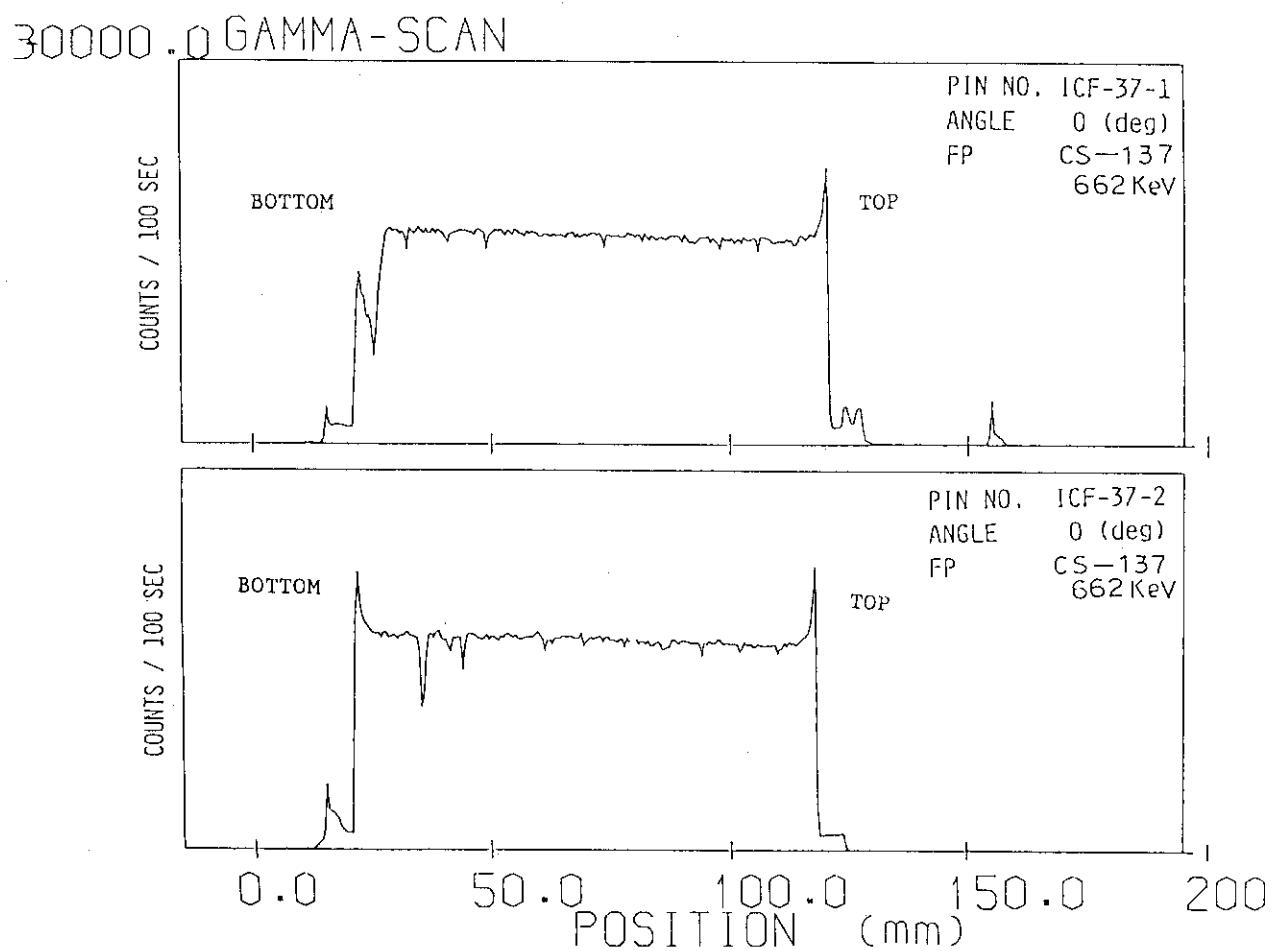


Fig. 5.16 Axial distribution of gross gamma ray for $(U,Pu)C_{1.0}$ and $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pins

Fig. 5.17 Distribution of ^{137}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ and $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pins

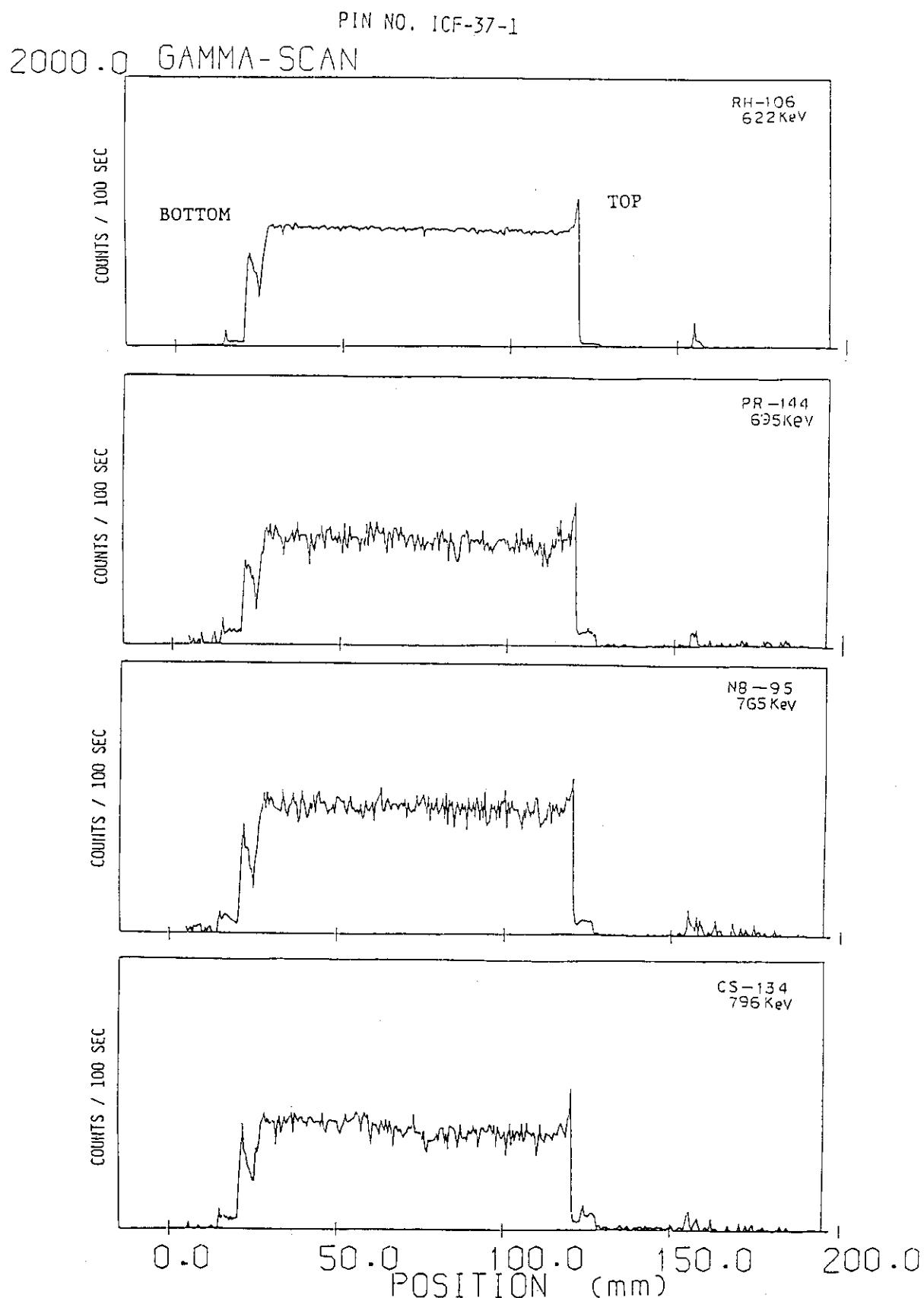
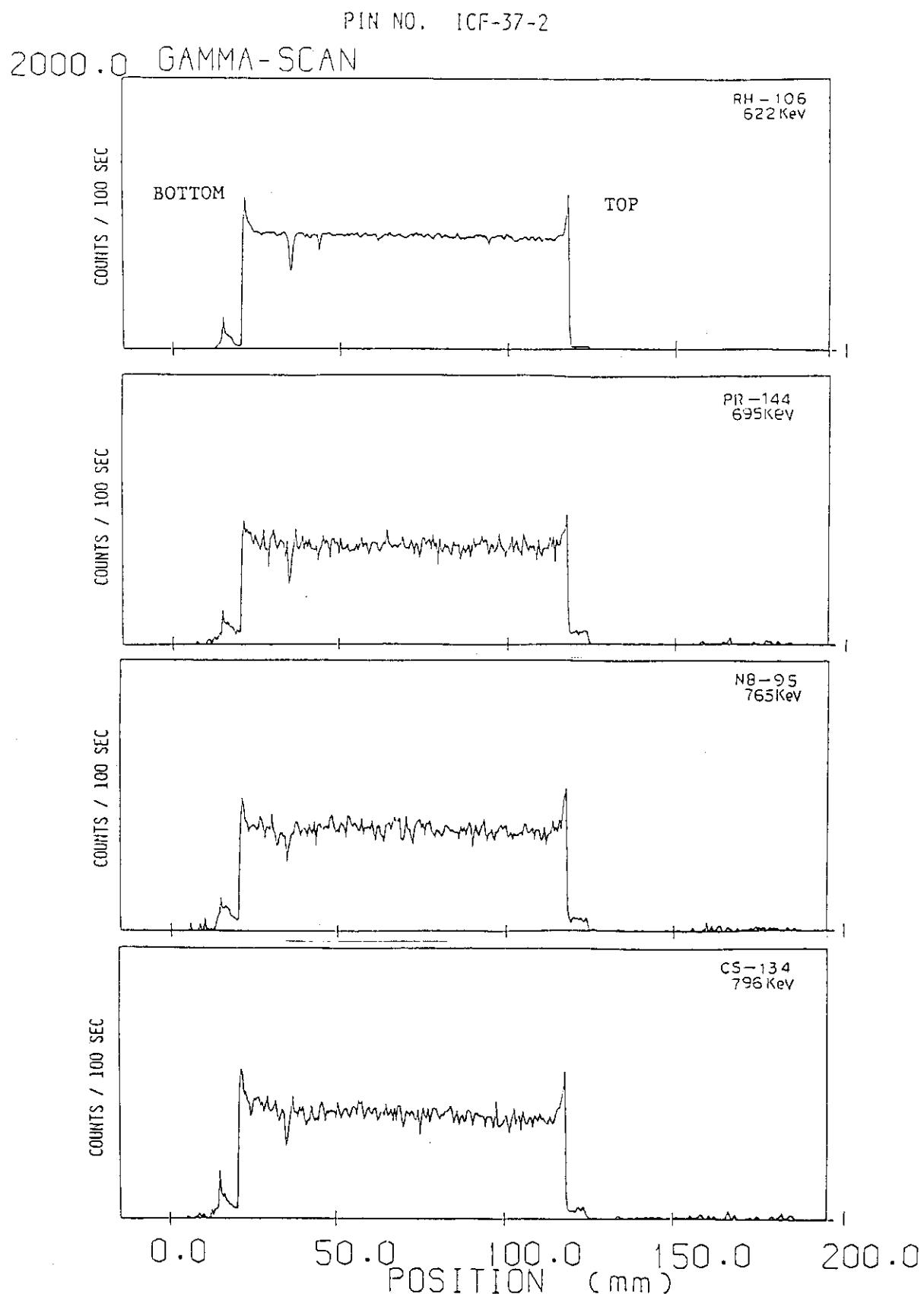
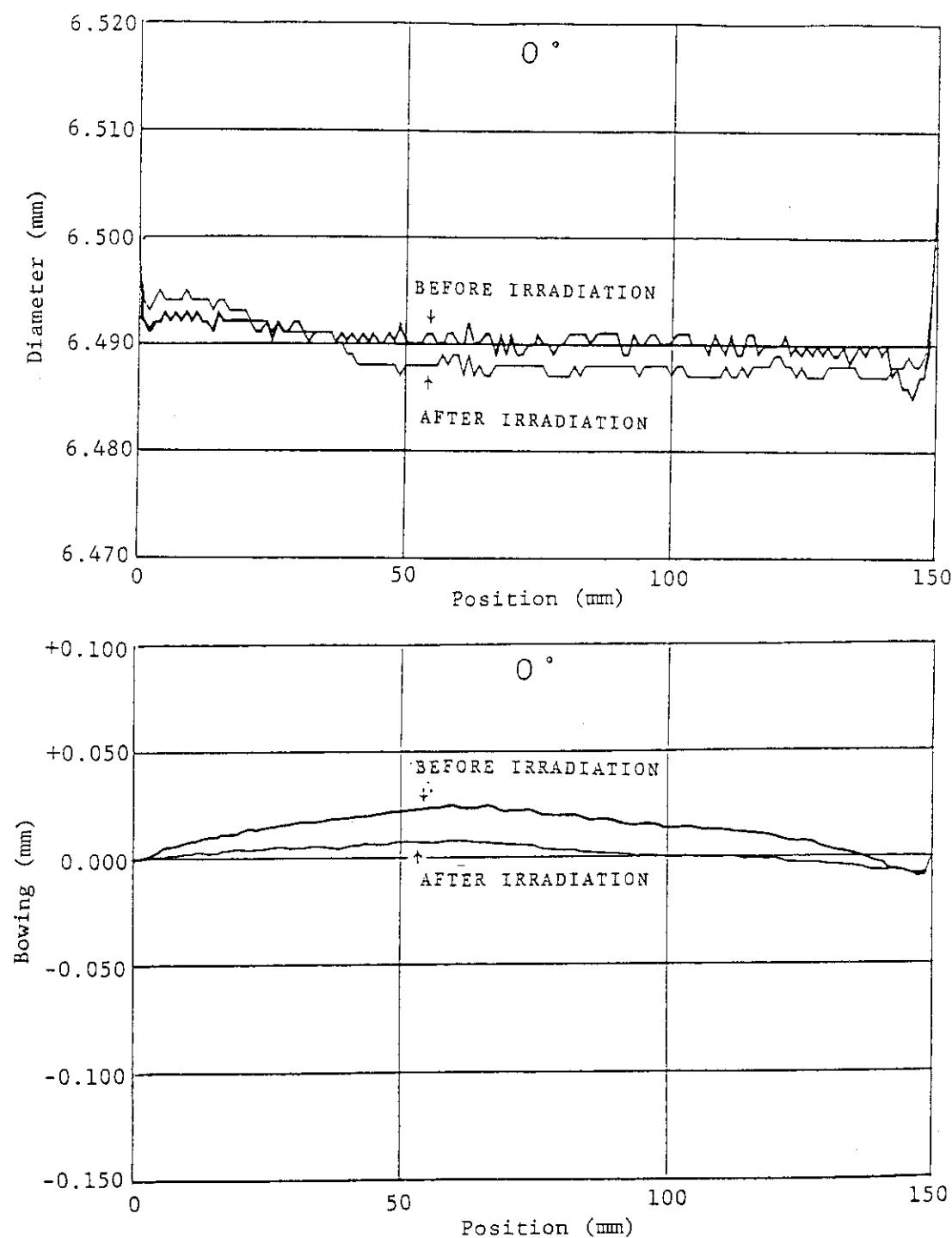


Fig. 5.18 Distribution of ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{95}Nb and ^{134}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin

Fig. 5.19 Distribution of ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{95}Nb and ^{134}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin



(U,Pu)C_{1.0} FUEL PIN (ICF-37-1)



Fig. 5.20 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin at 0°

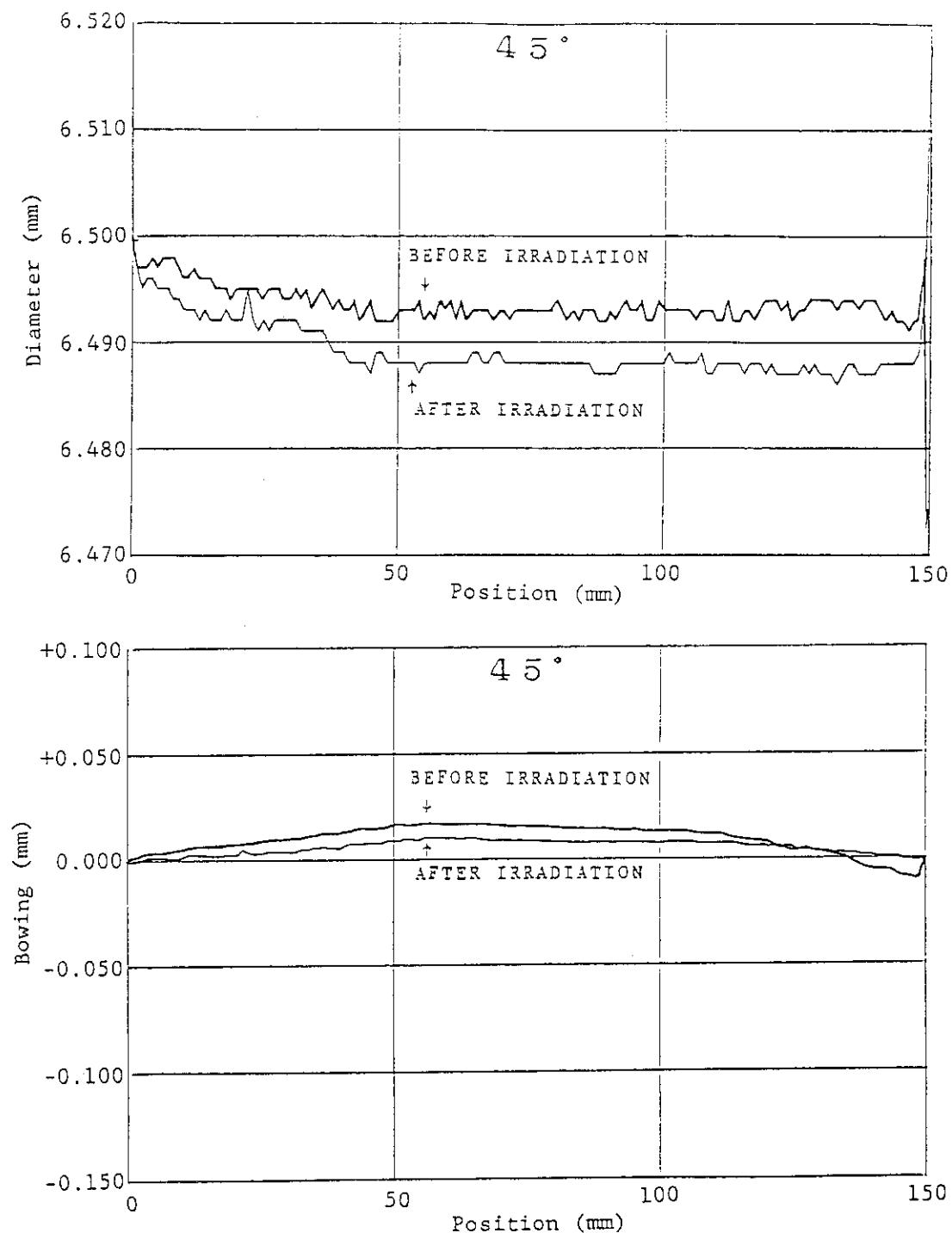
(U,Pu)C_{1.0} FUEL PIN (ICF-37-1)

Fig. 5.21 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin at 45°

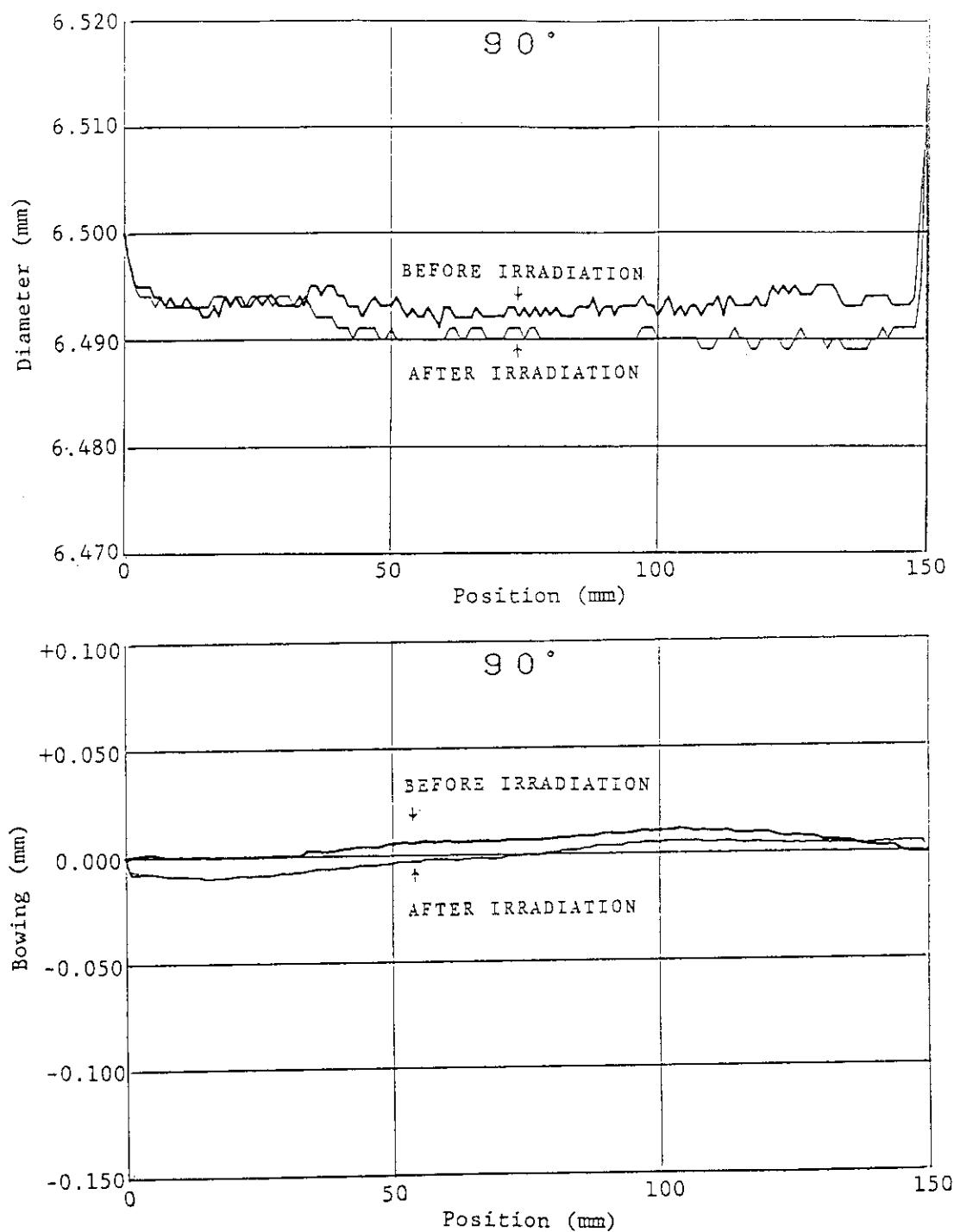
(U,Pu)C_{1.0} FUEL PIN (ICF-37-1)

Fig. 5.22 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin at 90°

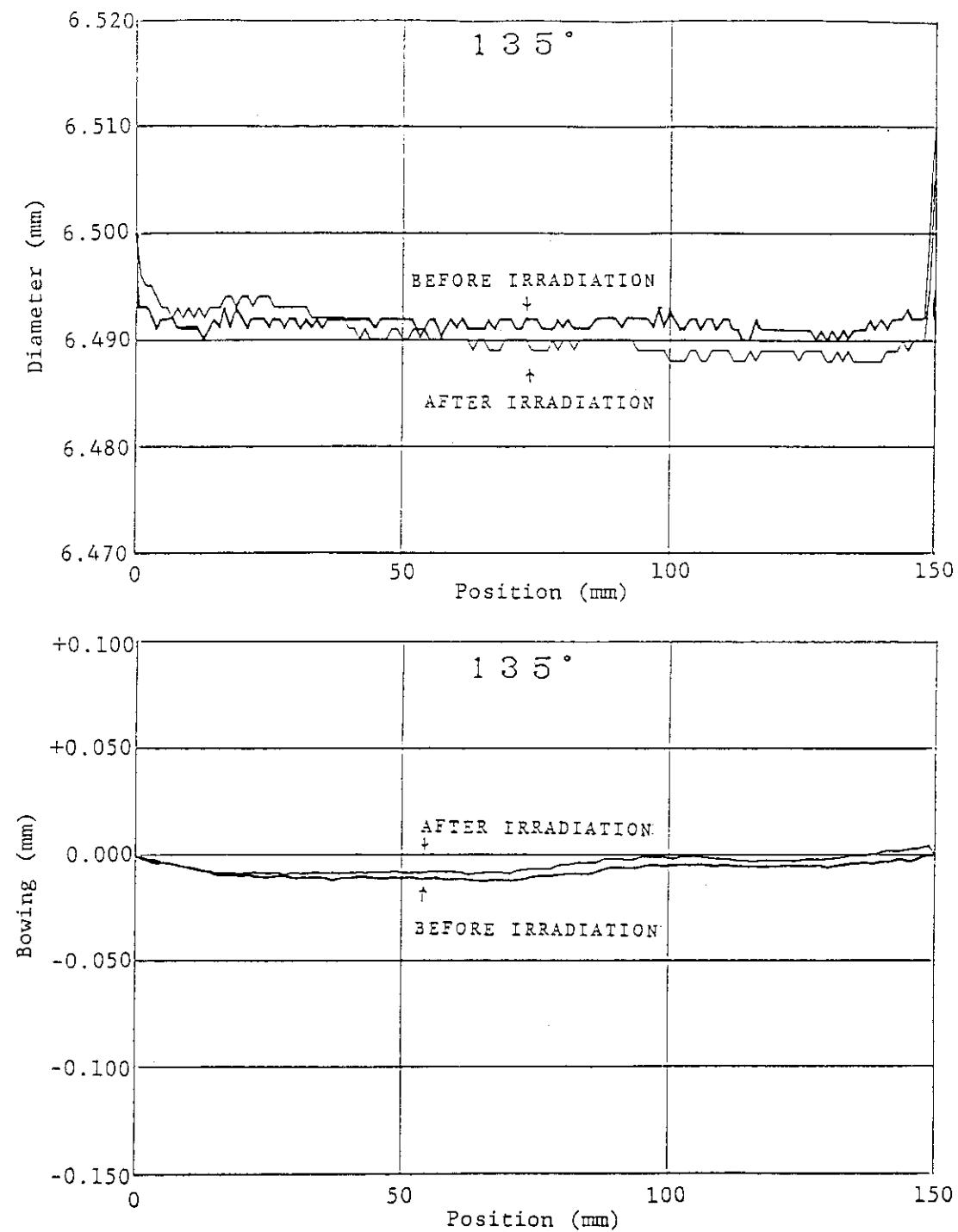
(U,Pu)C_{1.0} FUEL PIN (ICF-37-1)

Fig. 5.23 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin at 135°

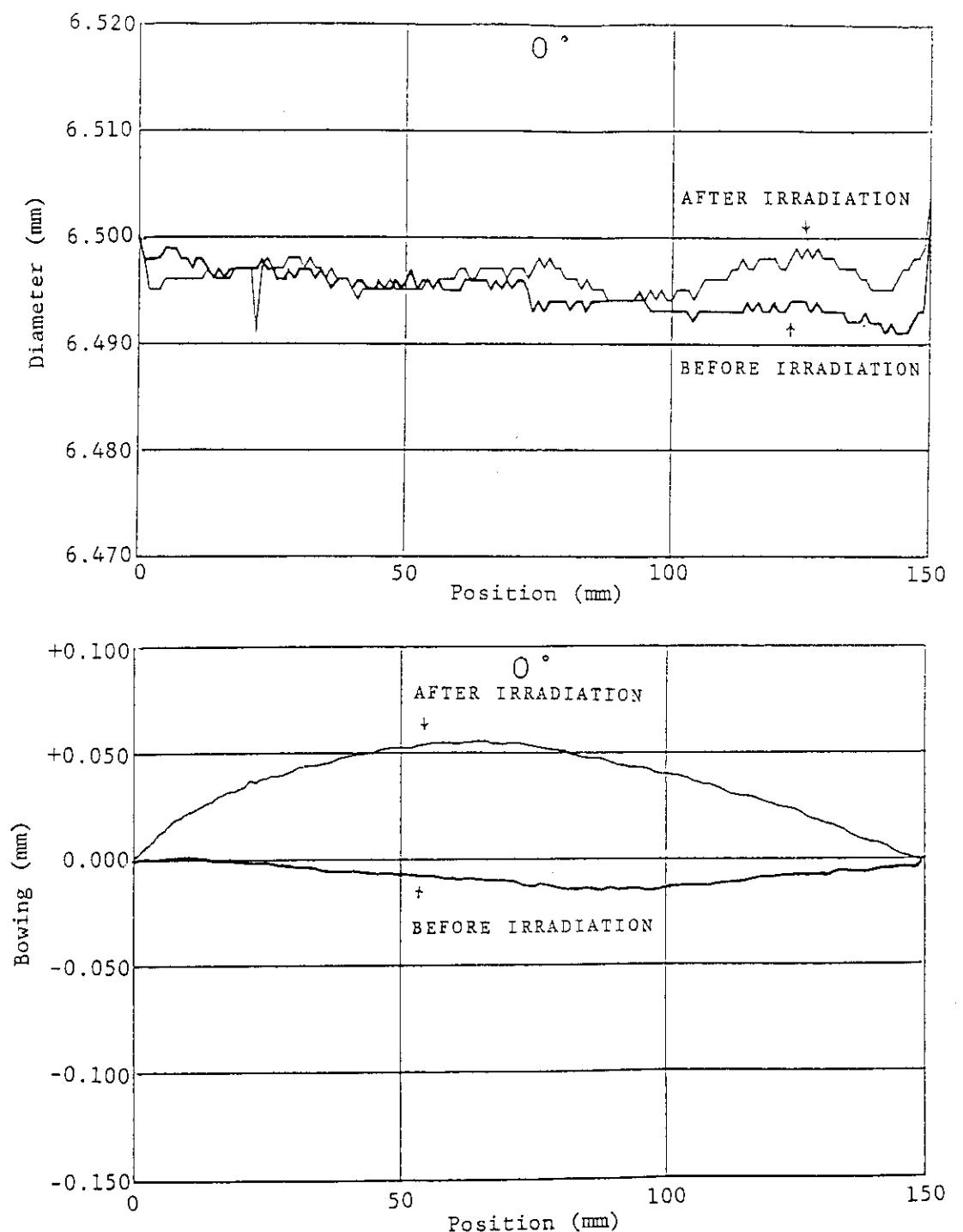
(U,Pu)C_{1.1} FUEL PIN (ICF-37-2)

Fig. 5.24 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin at 0°

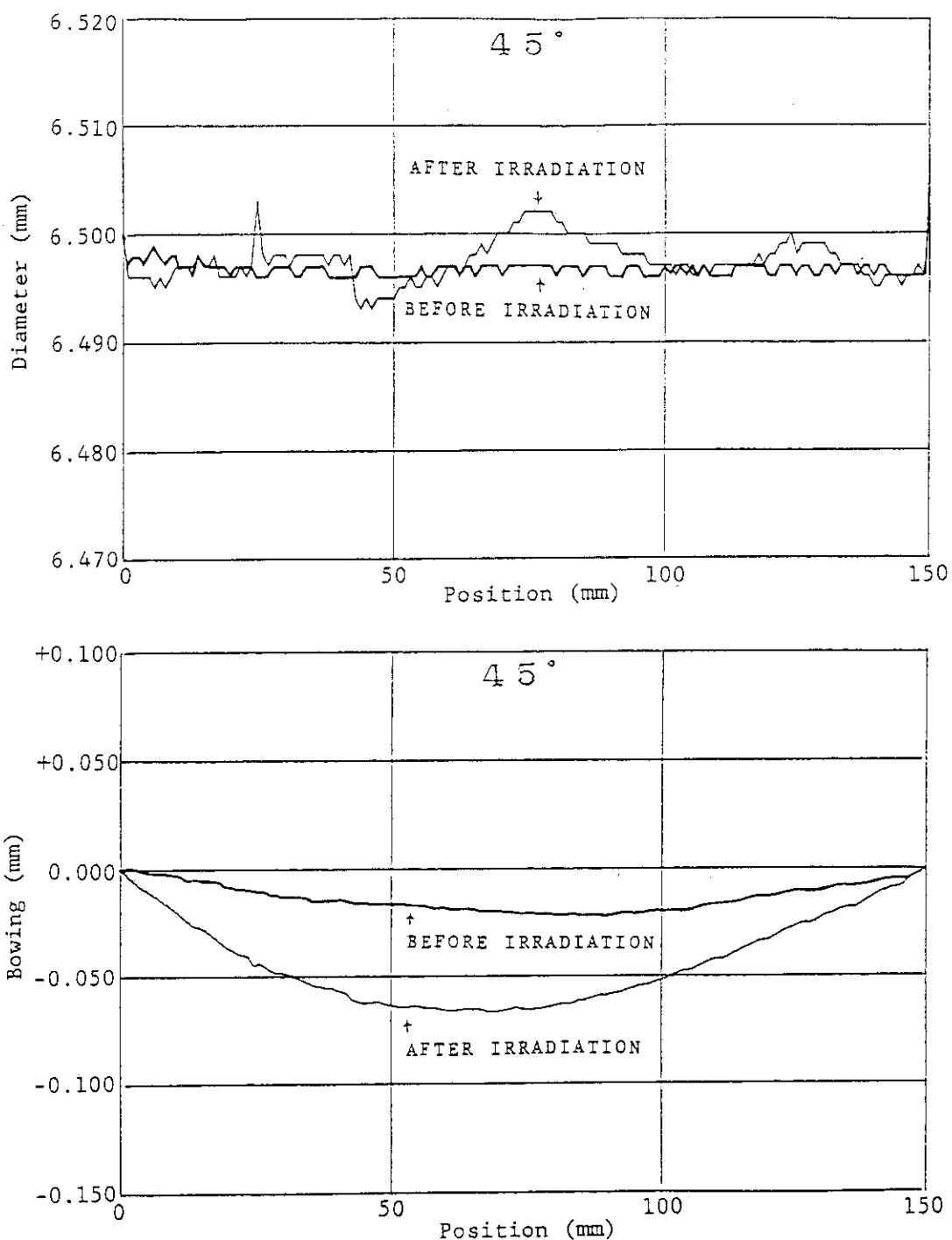
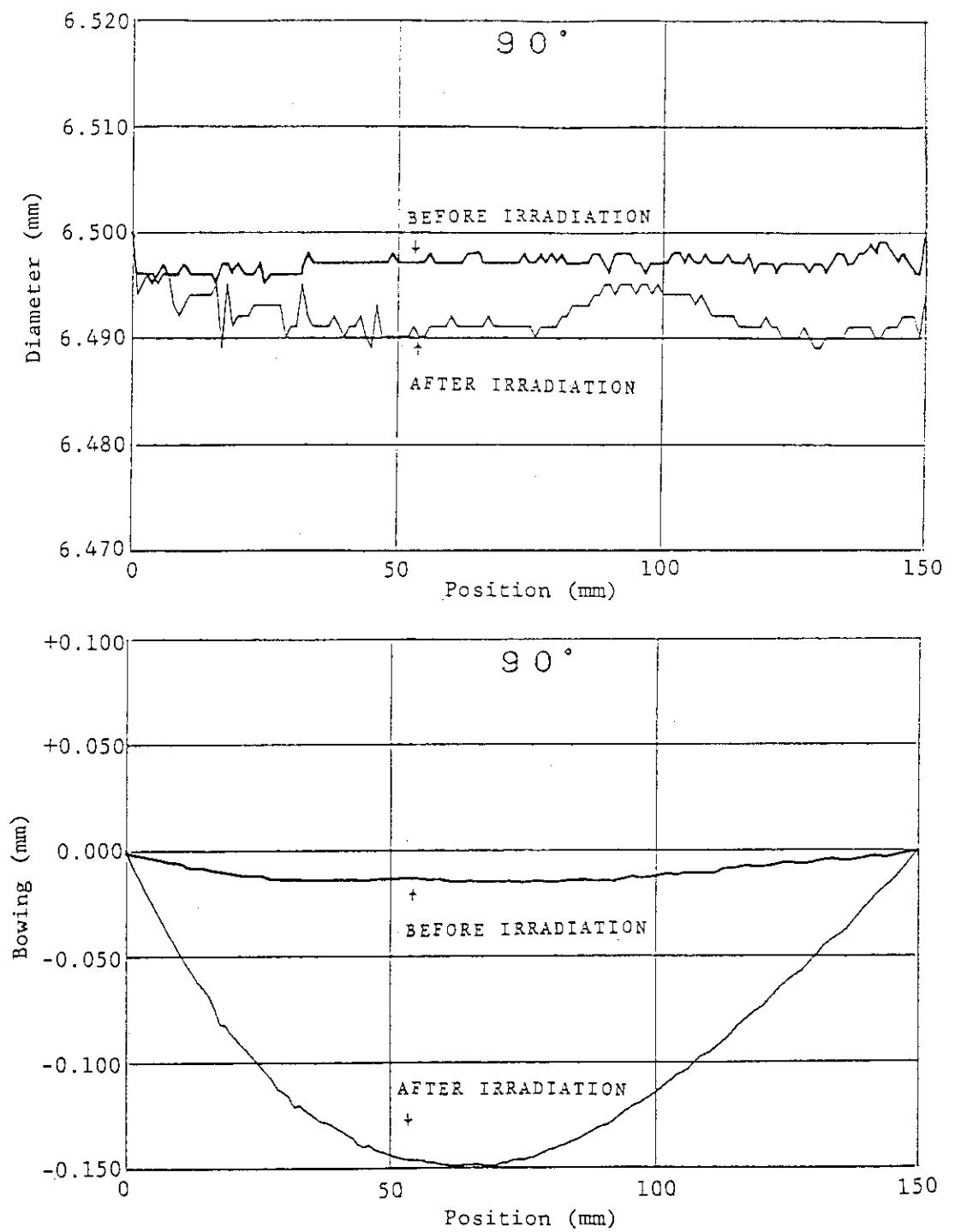
(U,Pu)C_{1.1} FUEL PIN (ICF-37-2)

Fig. 5.25 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin at 45°



(U,Pu)C_{1.1} FUEL PIN (ICF-37-2)



Fig. 5.26 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin at 90°

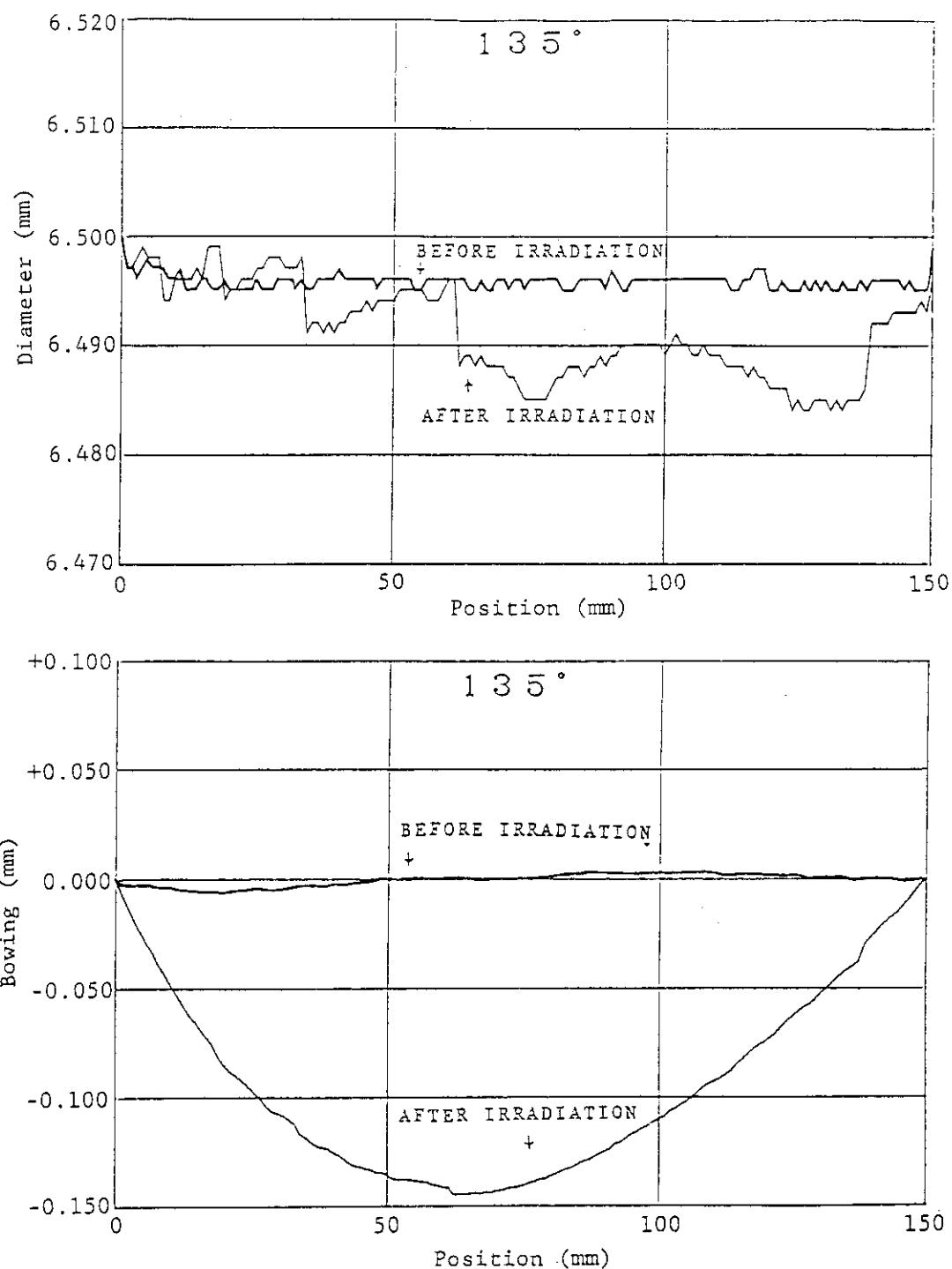
(U,Pu)C_{1.1} FUEL PIN (ICF-37-2)

Fig. 5.27 Results of measurements of diameter and bowing for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin at 135°

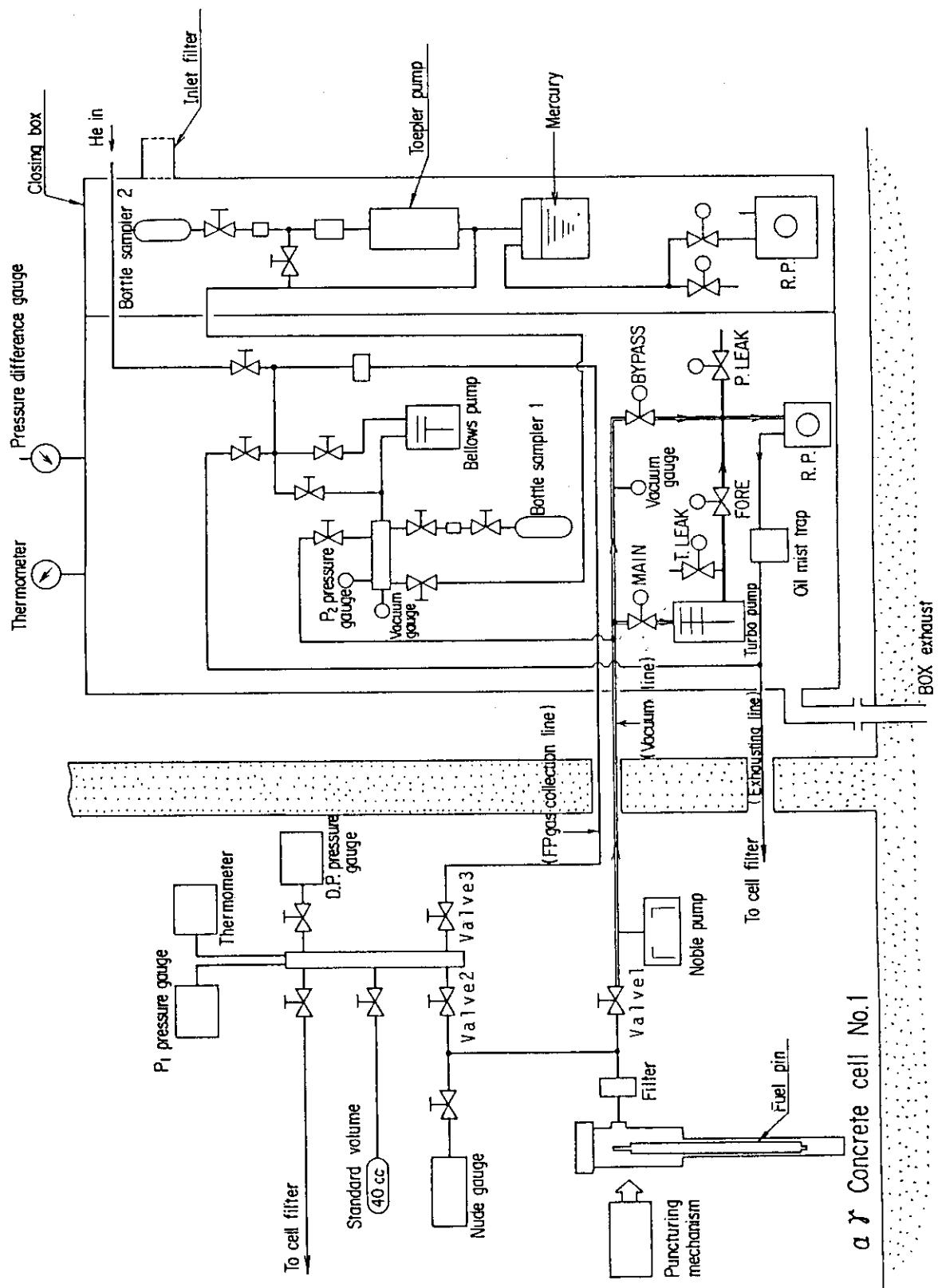
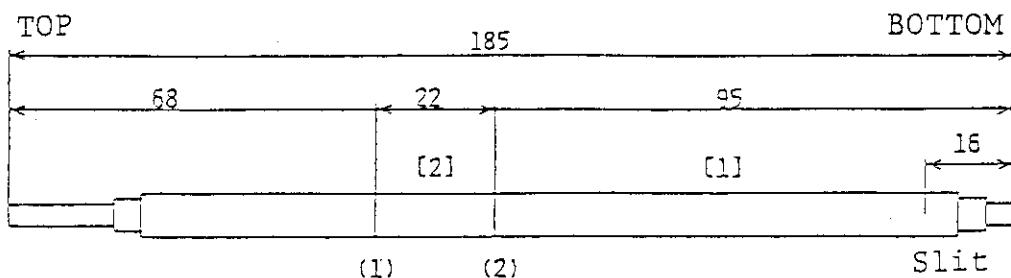


Fig. 5.28 Apparatus for puncture test

I C F - 3 7 - 1

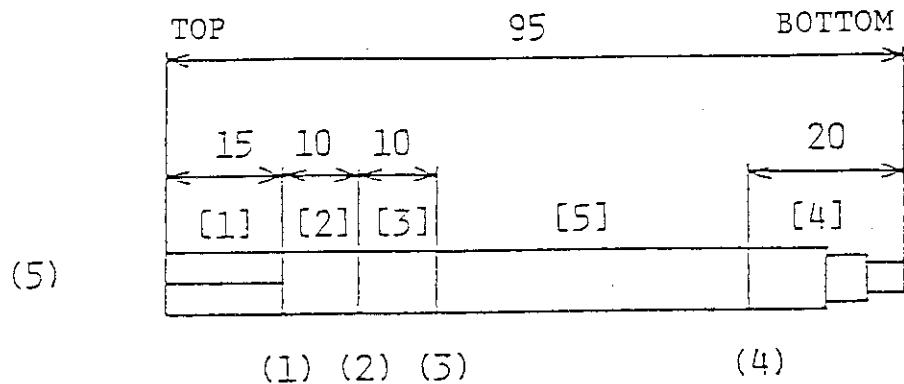


Sample name 371A 371B

Pellet 371AP

Cladding 371AC

3 7 1 B



Sample name [1] 371B1

[2] 371B2

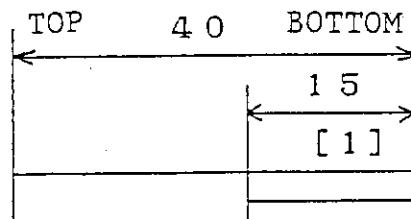
[3] 371B3

[4] 371B5

Part [5] in 371B

() : Sectioning position

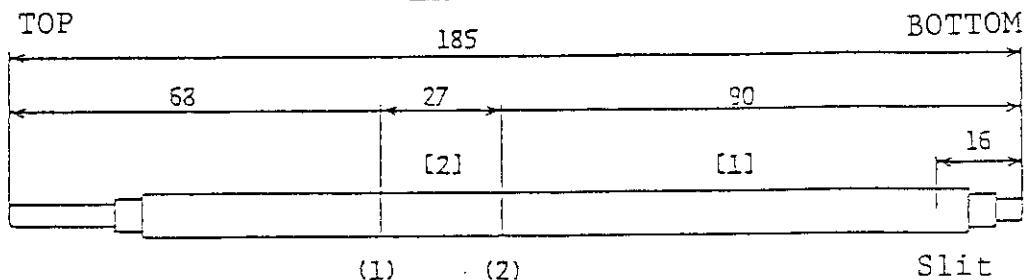
[] : Sectioned part



Sample name 371B4

Fig. 5.29 Sectioning for $(U, Pu)C_{1.0}$ pin

I C F - 3 7 - 2

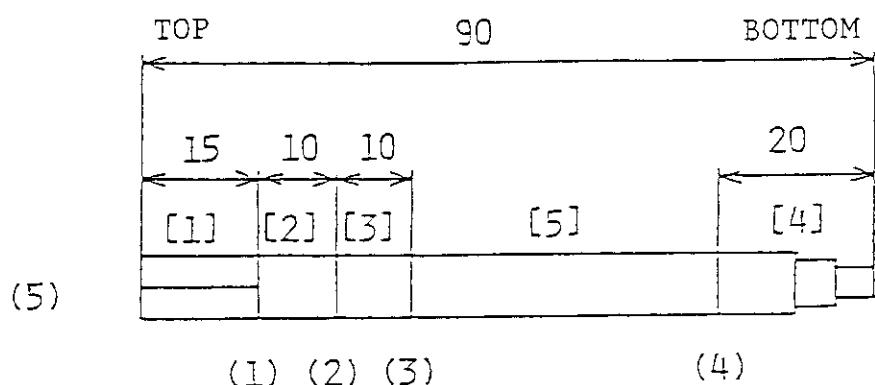


Sample name 372A 372B

Pellet 372AP

Cladding 372AC

3 7 2 B



(1) (2) (3) (4)

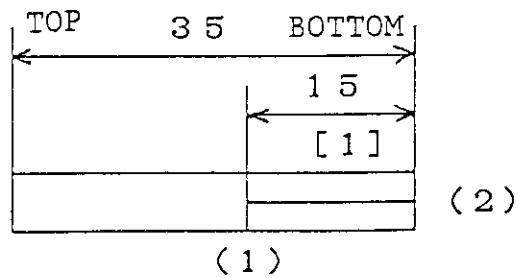
Sample name [1] 372B1

[2] 372B2

[3] 372B3

[4] 372B5

Part [5] in 372B



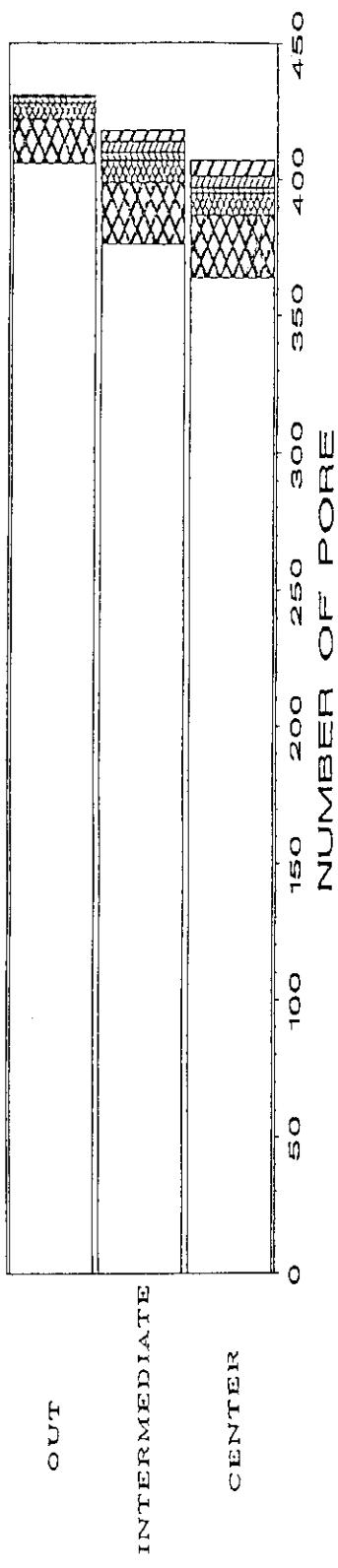
Sample name 372B4

(): Sectioning position

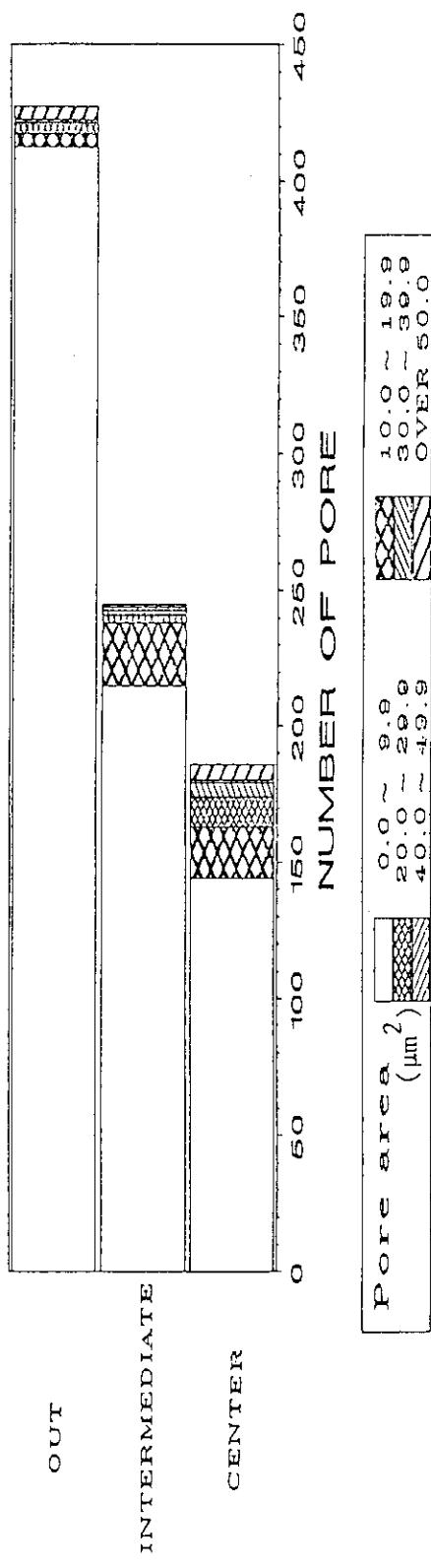
[]: Sectioned part

Fig. 5.30 Sectioning for $(U, Pu)C_{1.1}$ pin

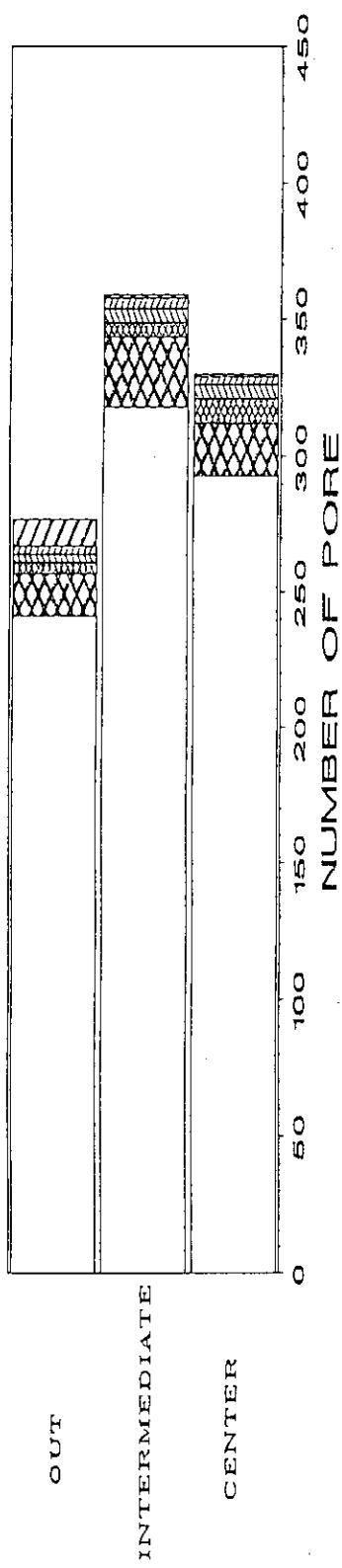
As fabricated



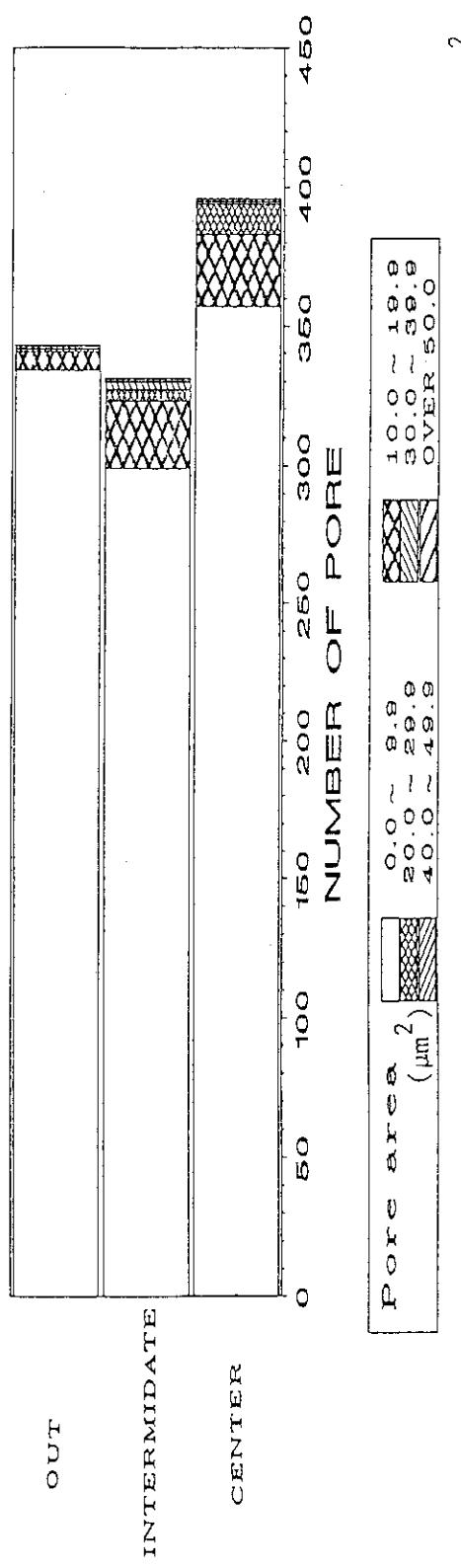
After irradiated



As fabricated

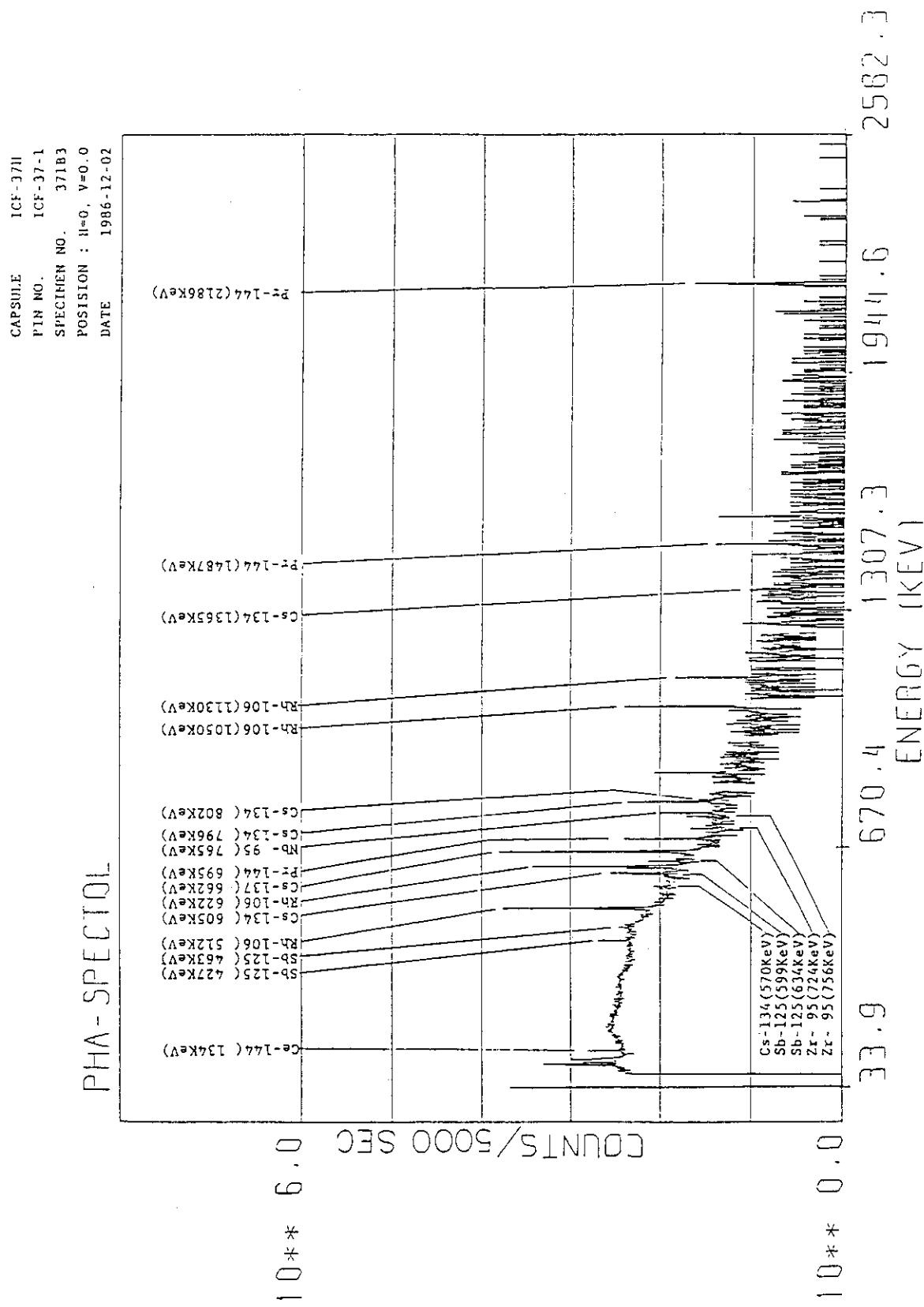


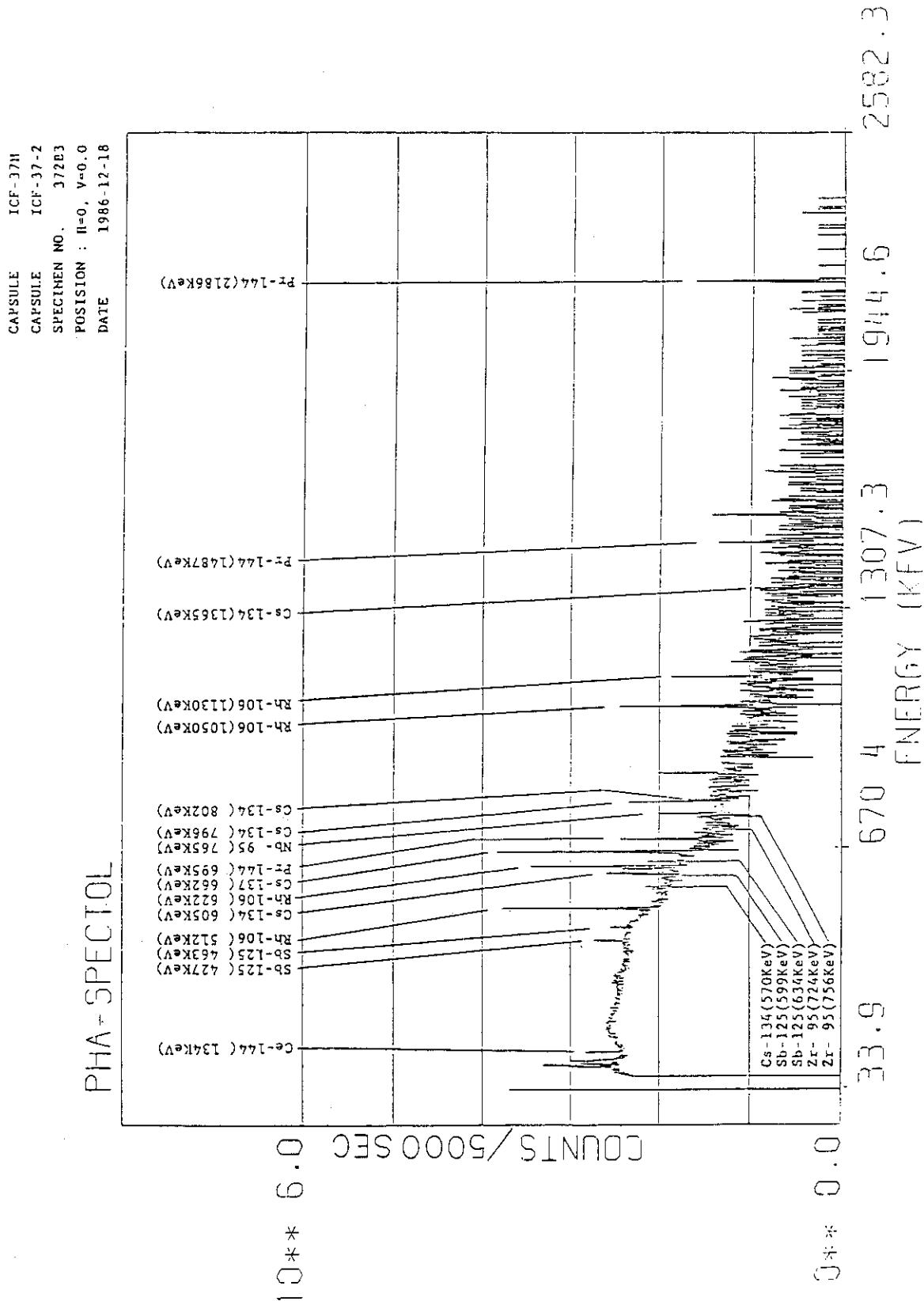
After irradiated



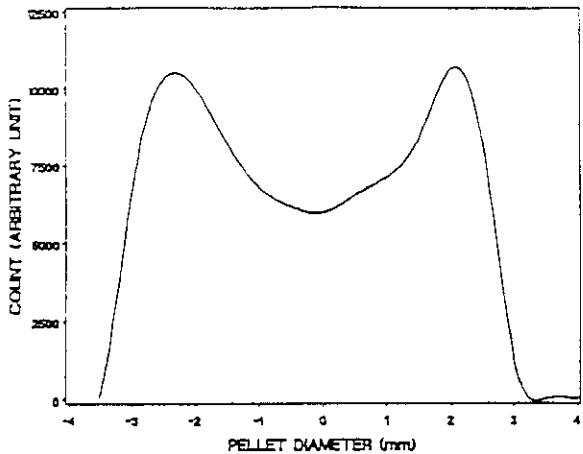
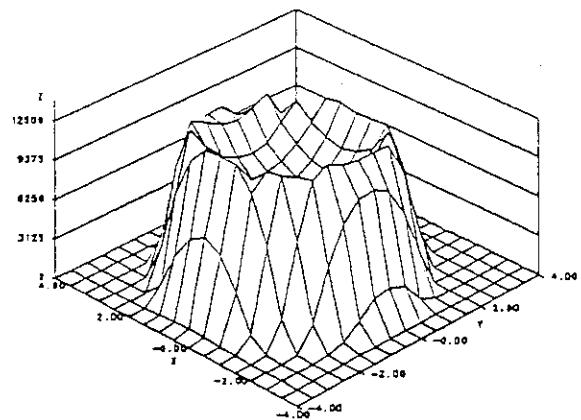
(U,Pu)C_{1.1} Fuel Pellet (372B2)

Fig. 5.32 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet

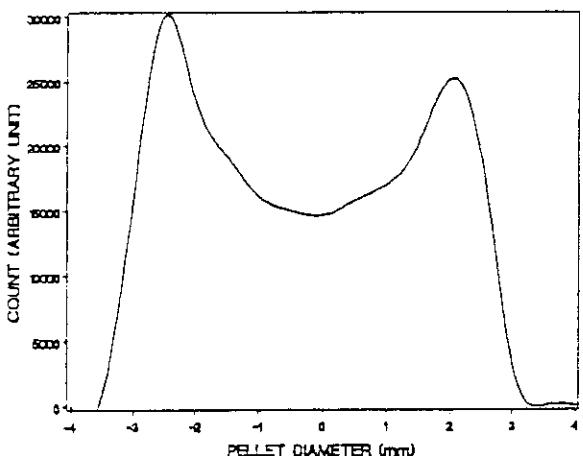
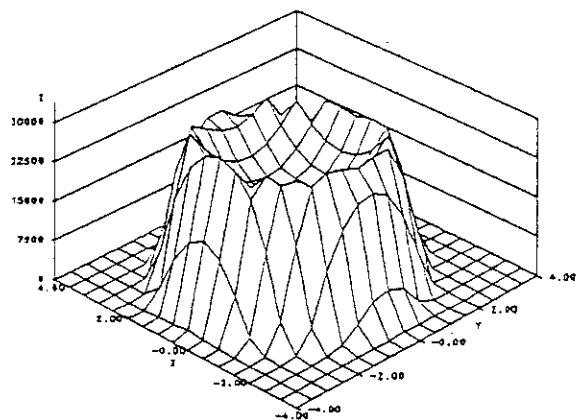
Fig. 5.33 Gamma ray spectrum at center of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pellet section

Fig. 5.34 Gamma ray spectrum at center of (U, Pu)C₁, fuel pellet section

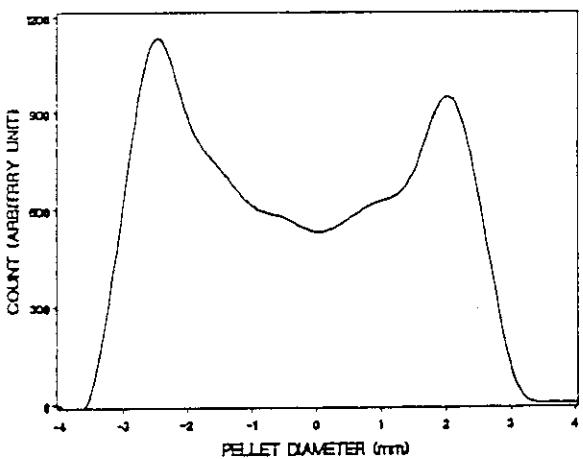
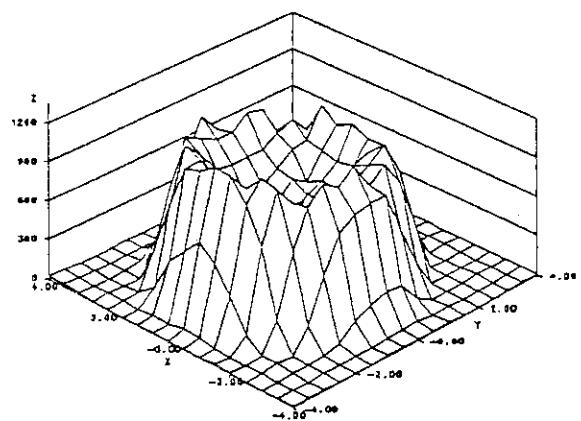
Rh106



Cs137



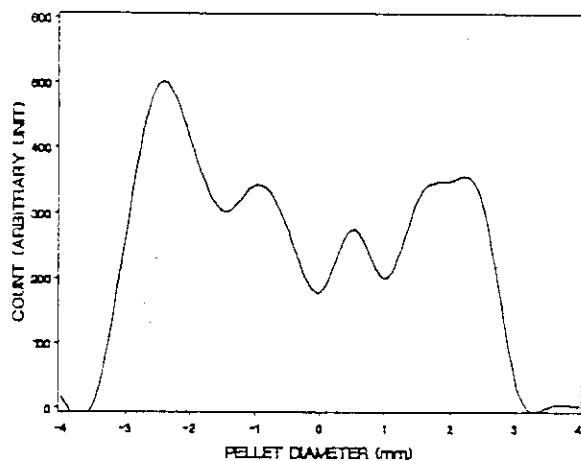
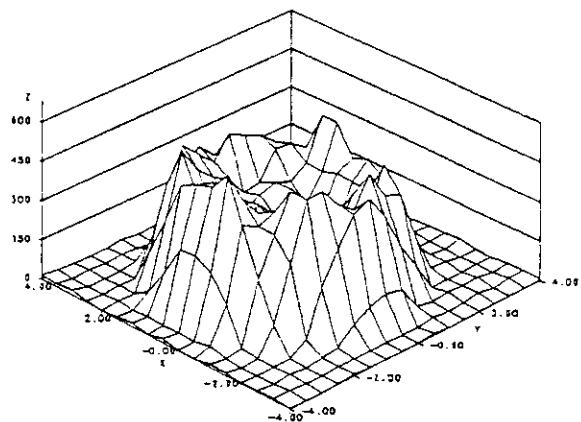
Pr144



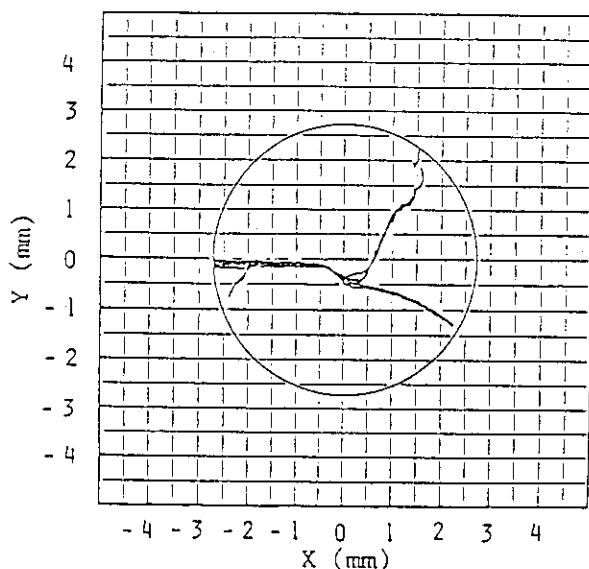
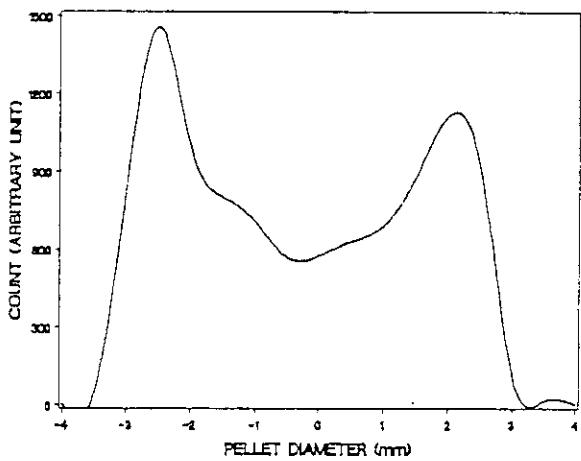
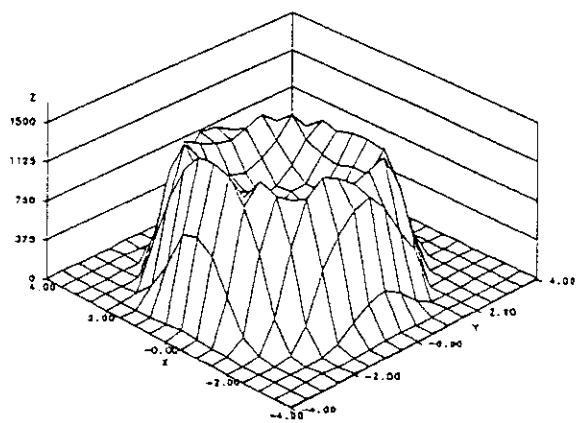
(U,Pu)C₁₀ FUEL PELLET (371B3)

Fig. 5.35 Micro gamma scanning of (U,Pu)C₁₀ fuel pellet

Nb95



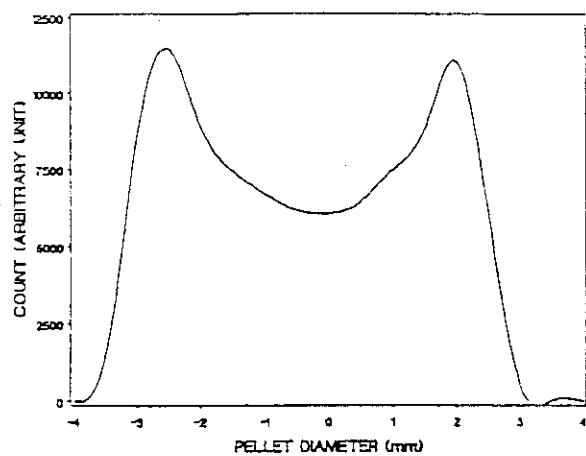
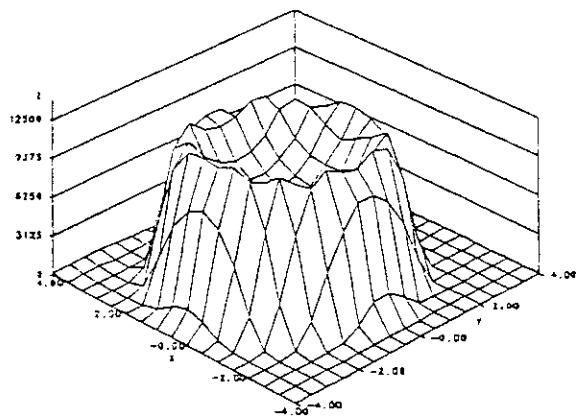
Cs134



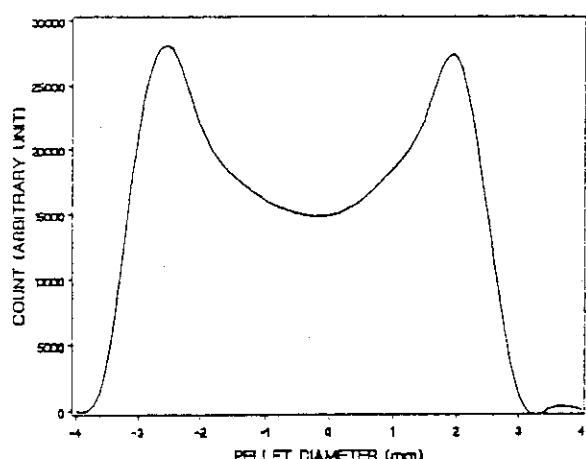
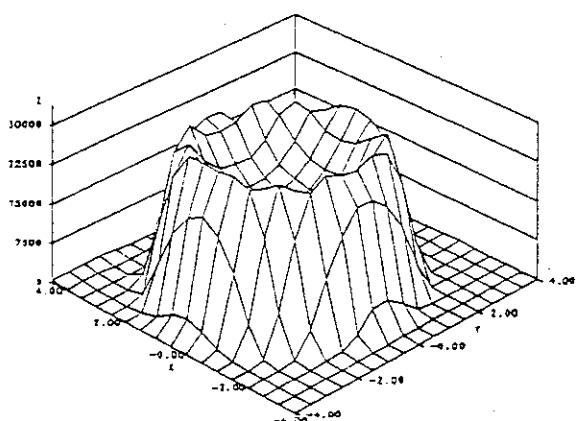
(U,Pu)C₁₀ FUEL PELLET (371B3)

Fig. 5.35 (continued)

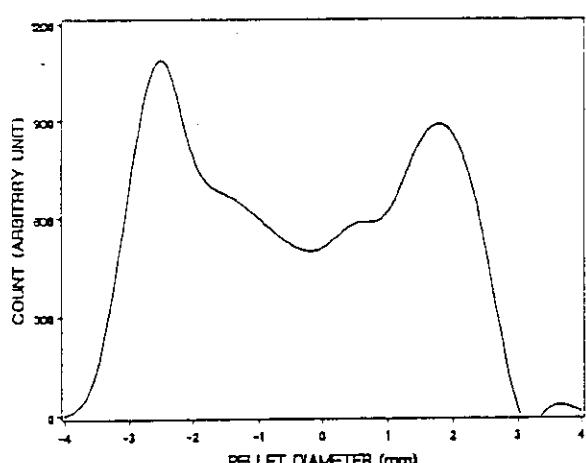
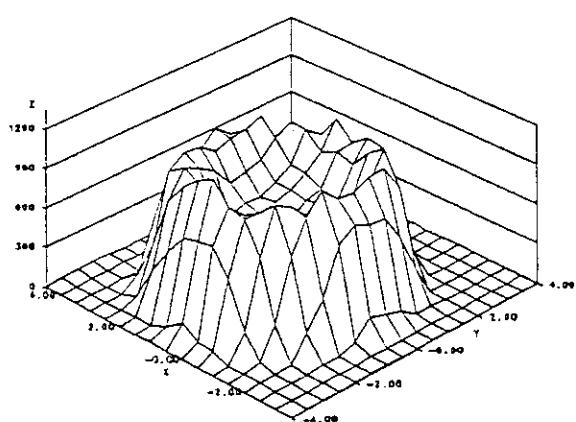
Rh106



Cs137



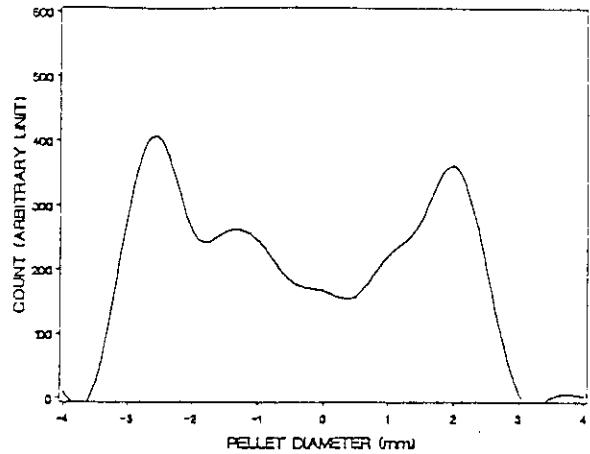
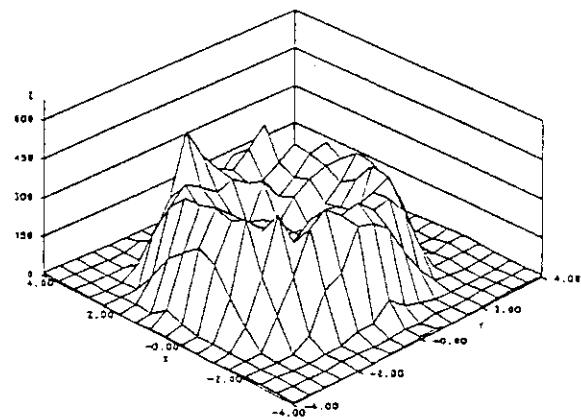
Pr144



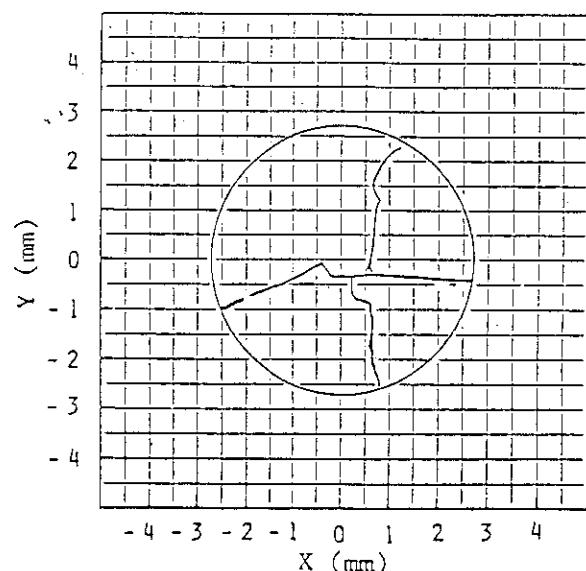
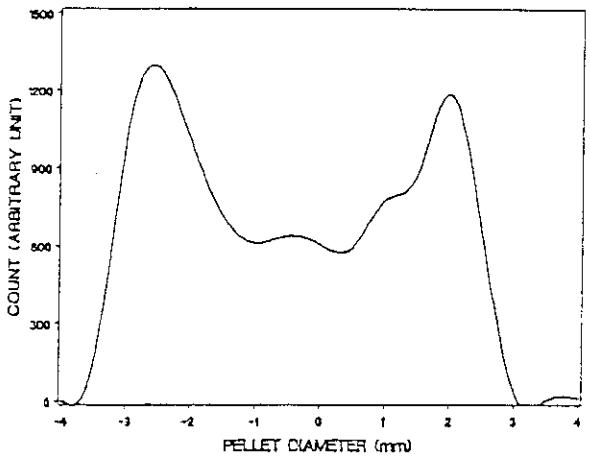
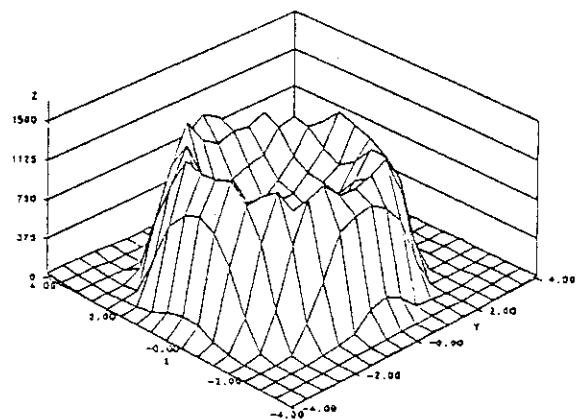
(U,Pu)C₁₁ FUEL PELLET (372B3)

Fig. 5.36 Micro gamma scanning of (U,Pu)C₁₁ fuel pellet

Nb95



Cs134



(U,Pu)C₁₁ FUEL PELLET (372B3)

Fig. 5.36 (continued)

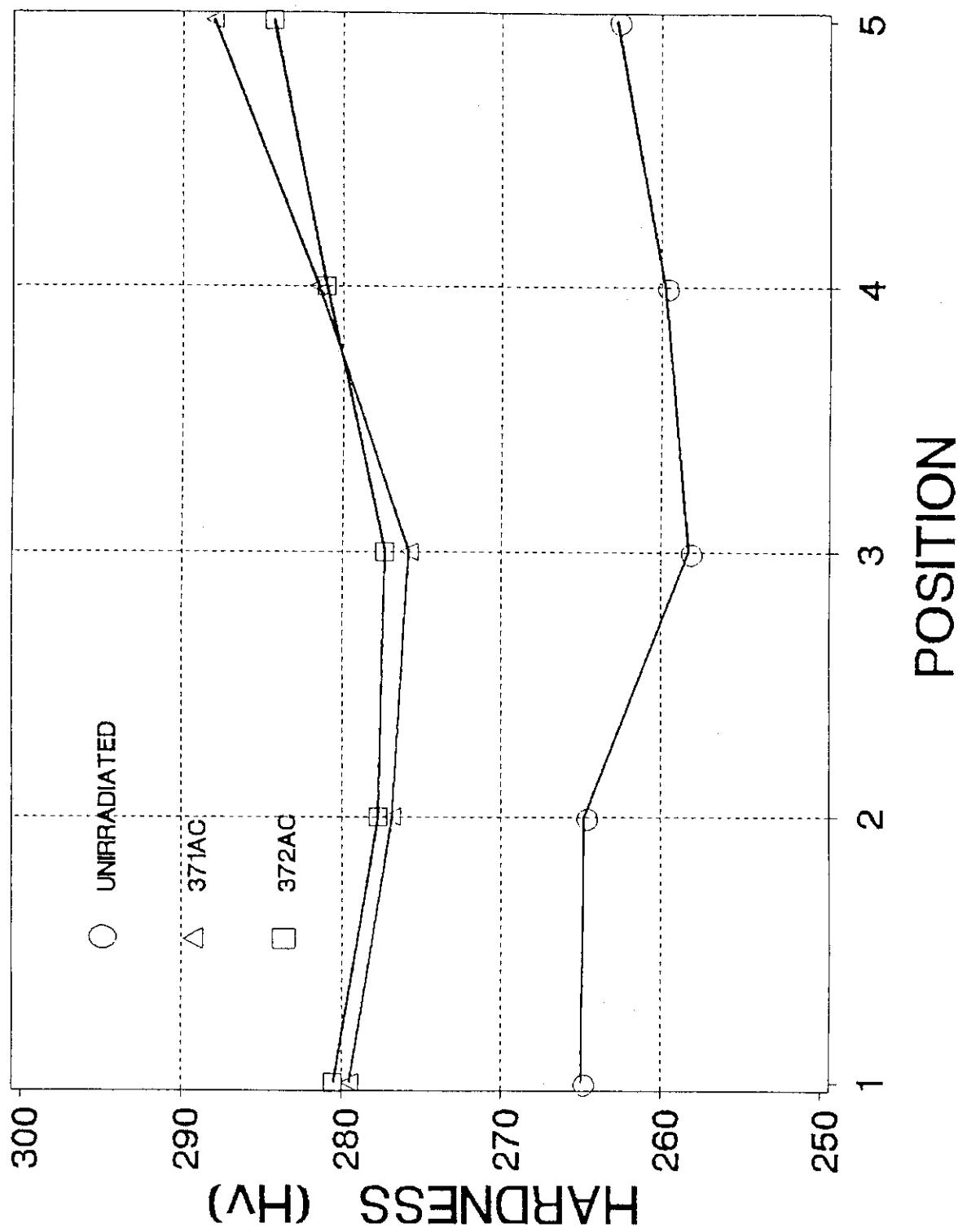
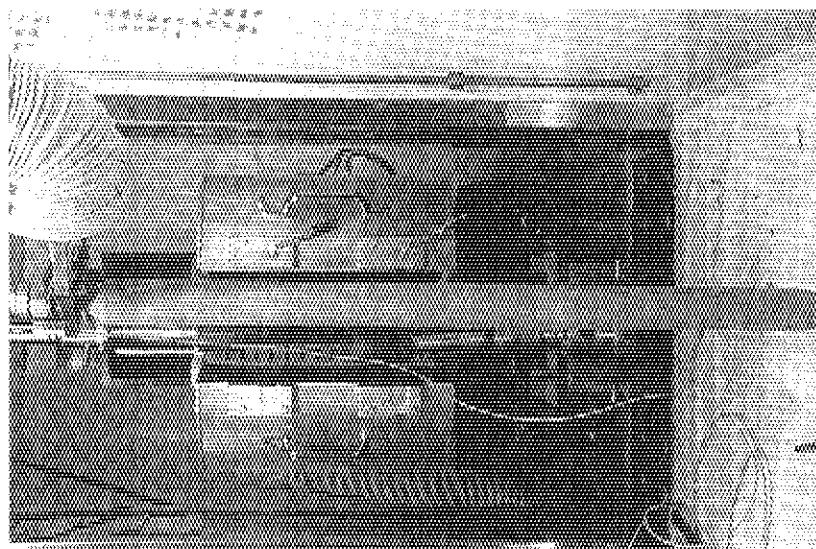
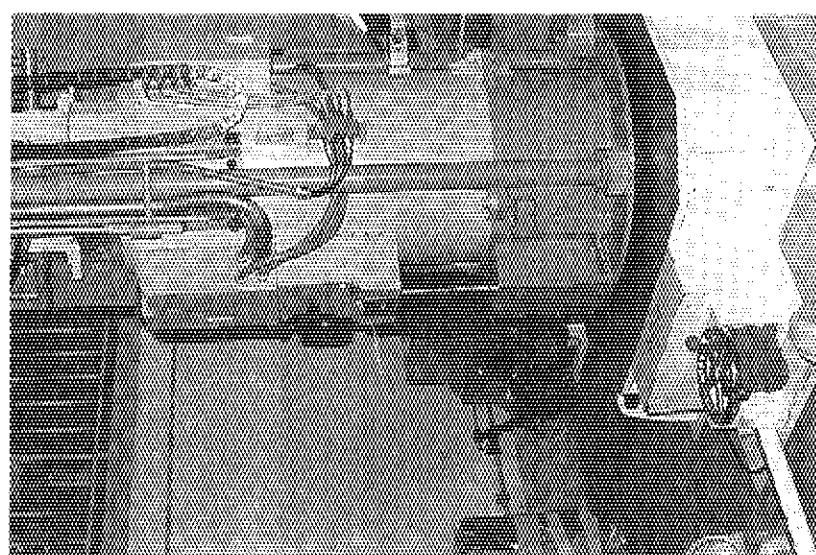


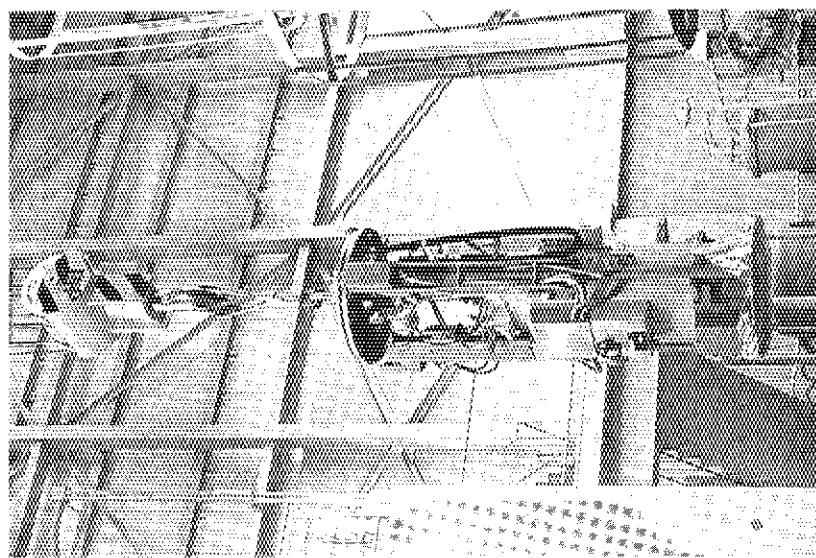
Fig. 5.37 Hardness of pin cladding



(c)



(b)



(a)

Photo. 5.1 Loading of ICF-37H capsule to RFEF

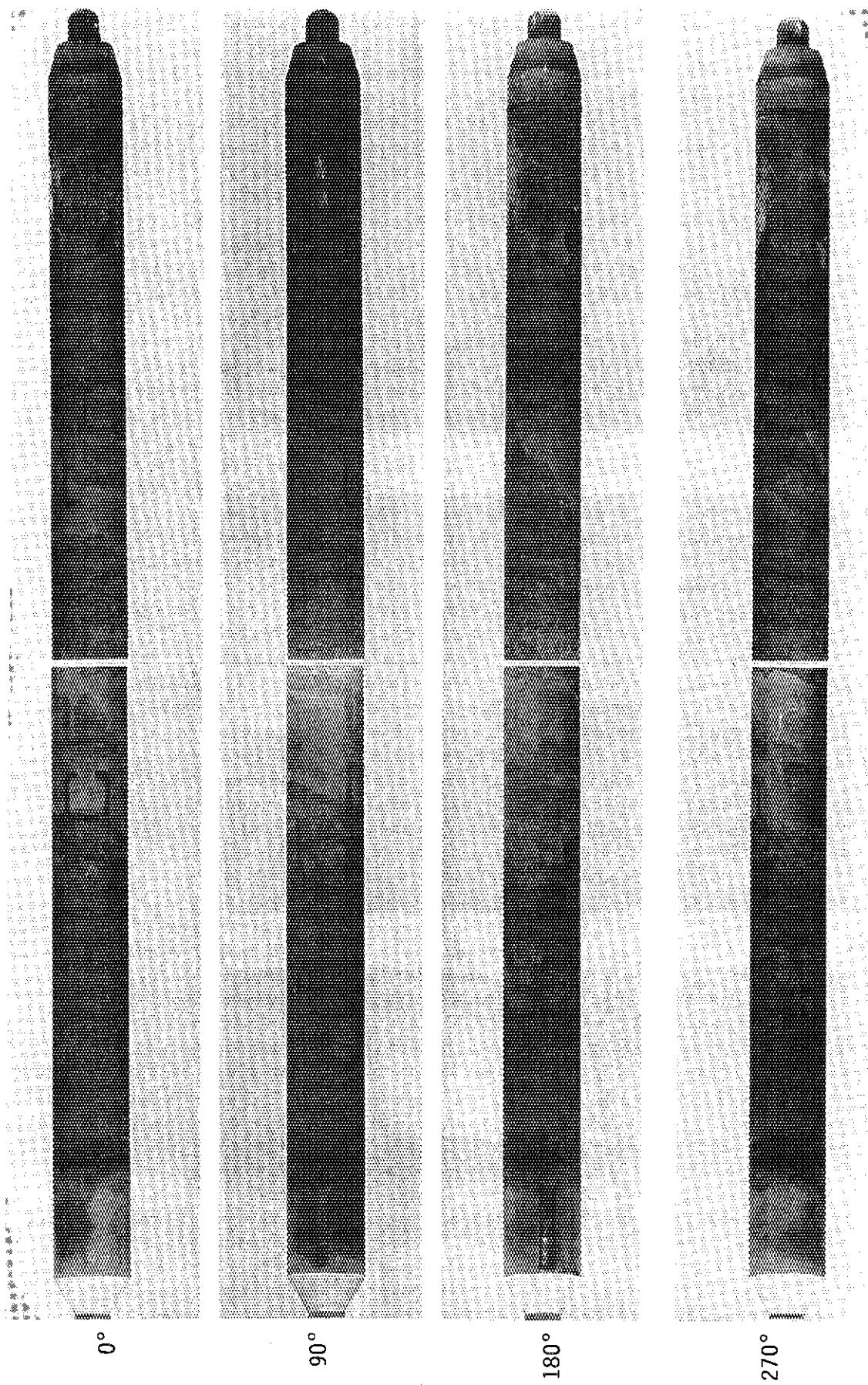


Photo. 5.2 Appearance of ICF-37H capsule after irradiation

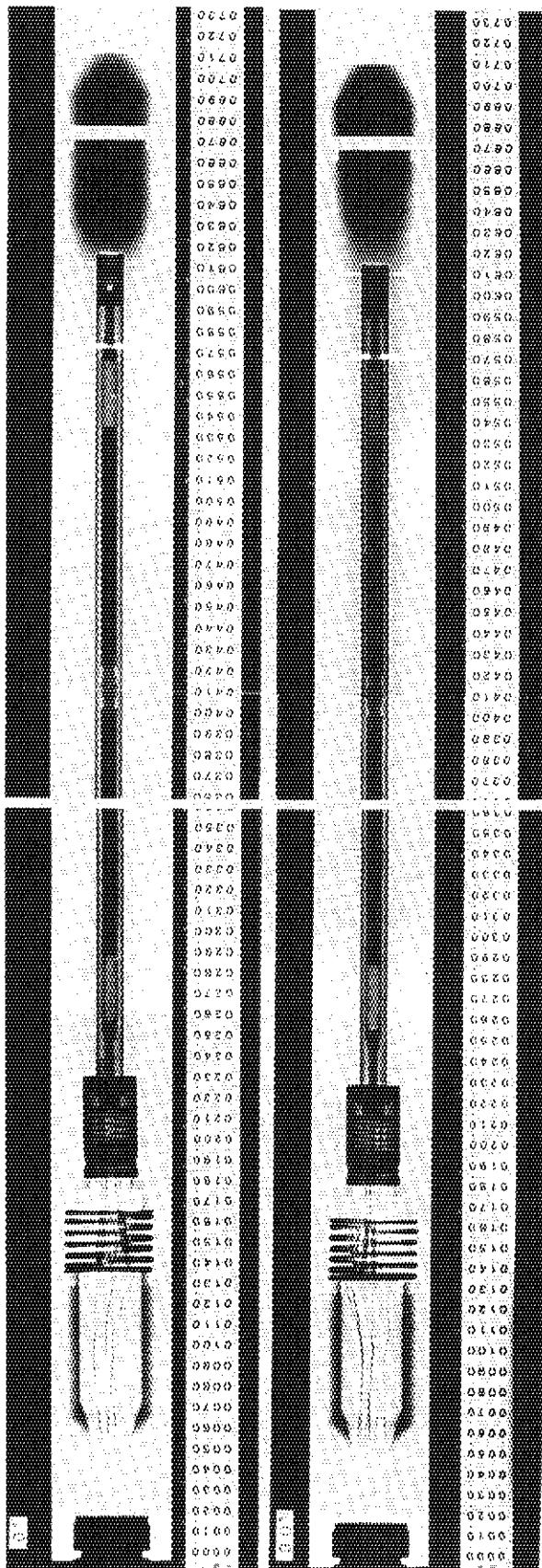


Photo. 5.3 X-ray radiograph of ICF-37H capsule

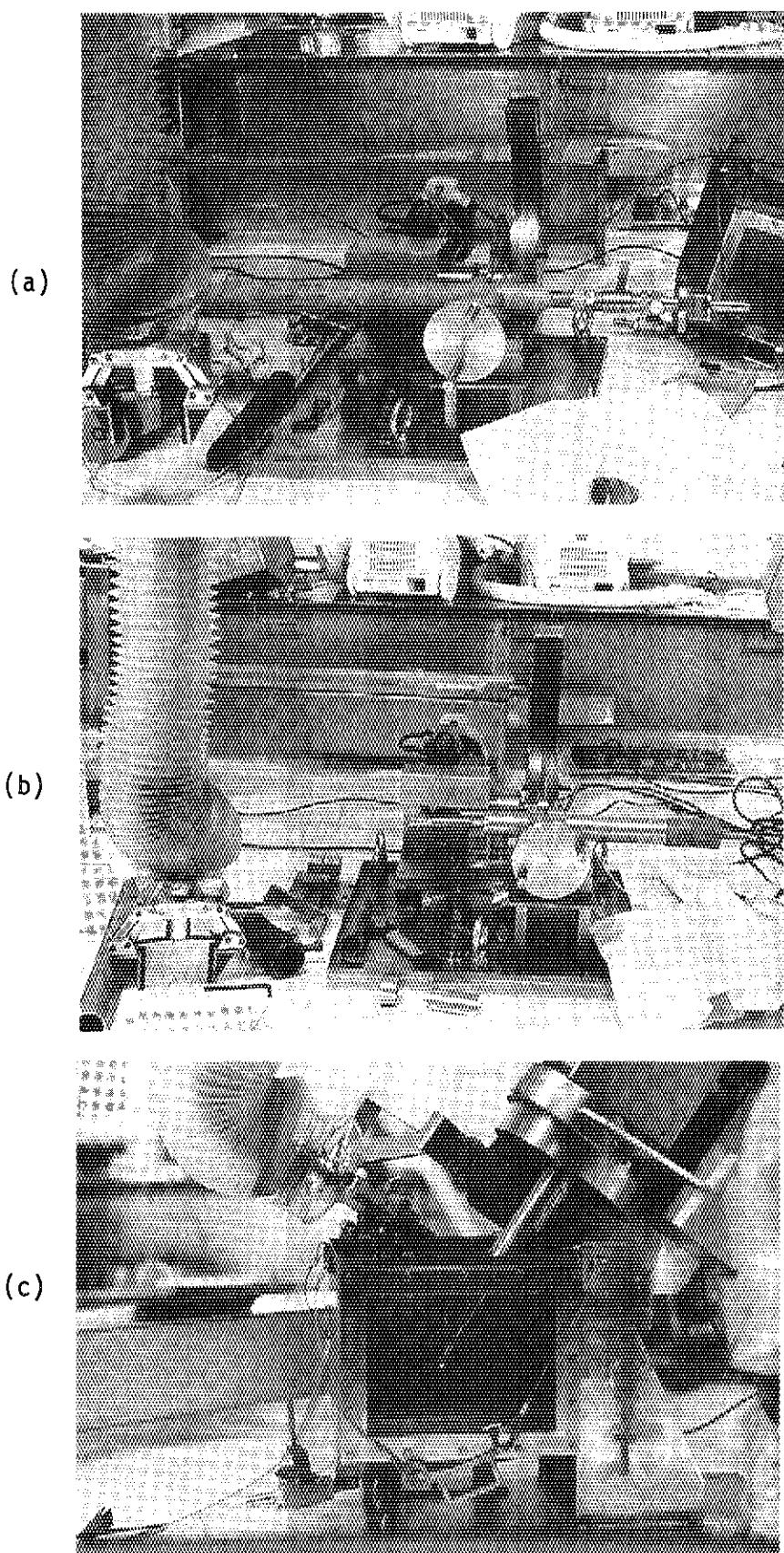


Photo. 5.4 Disassembly of ICF-37H capsule

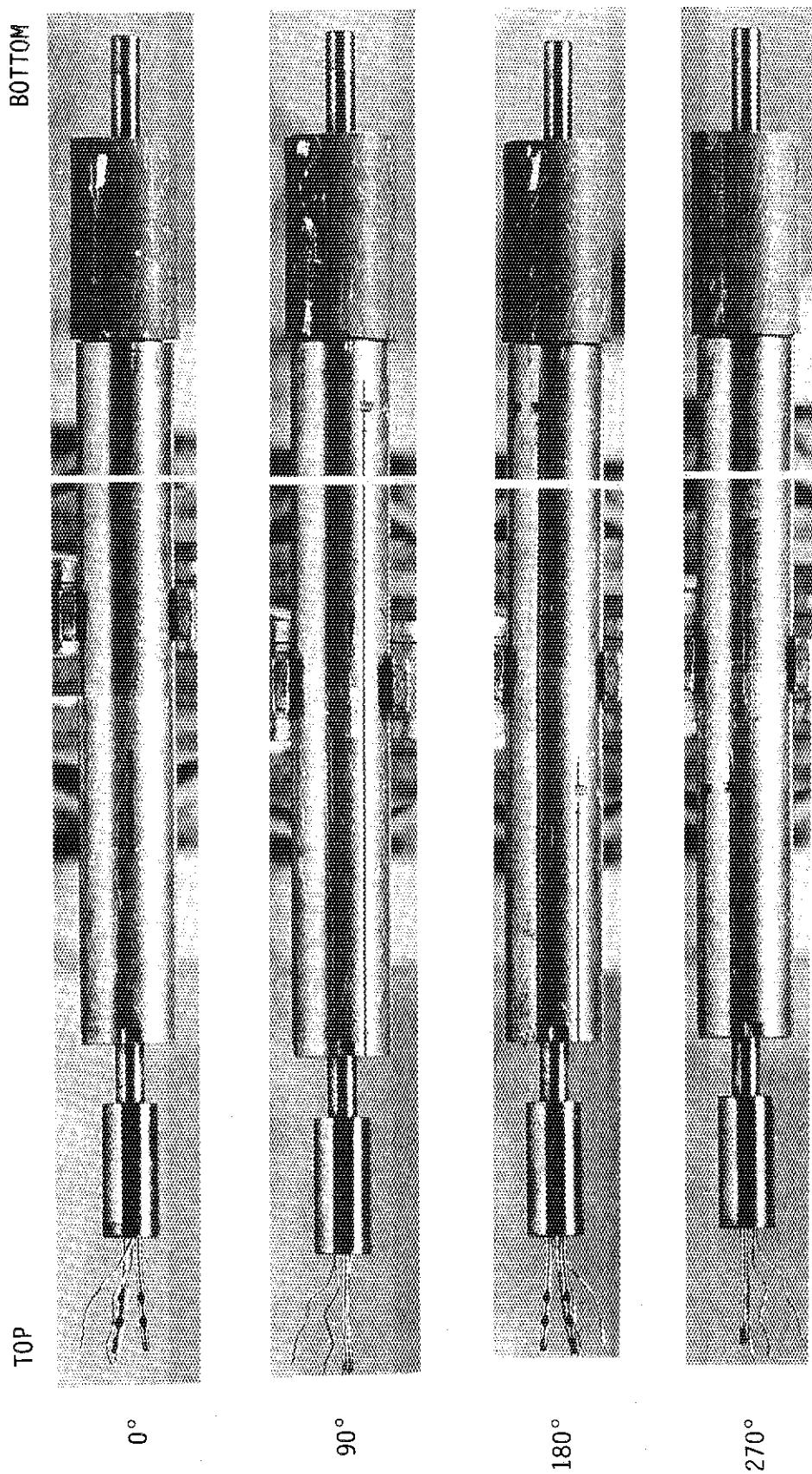


Photo. 5.5 Appearance of the inner tube of the ICF-37H capsule

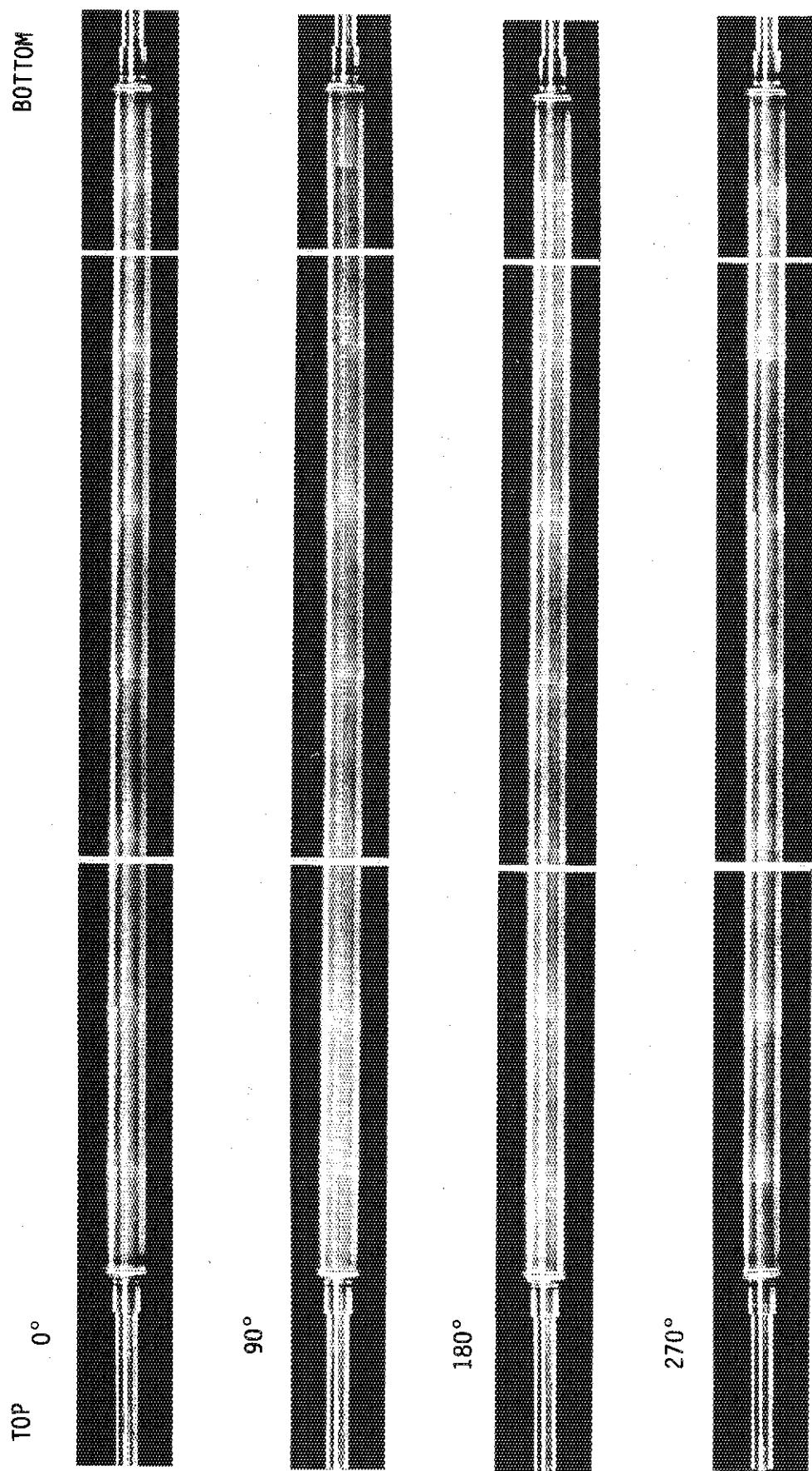


Photo. 5, 6 (U, Pu)C_{1.0} fuel pin (ICF-37-1)

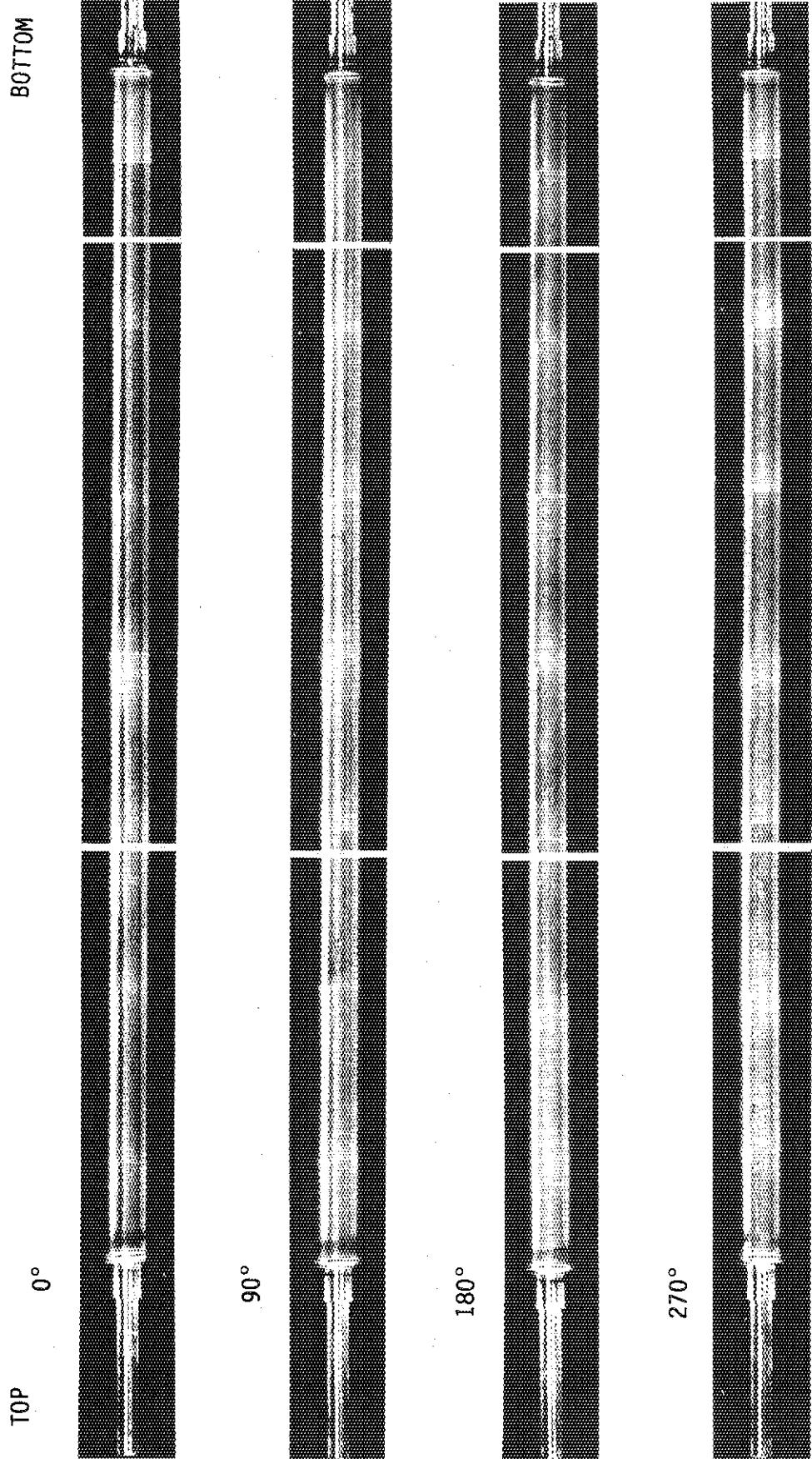


Photo. 5.7 $(U, Pu)C_{1,1}$ fuel pin (ICR-37-2)

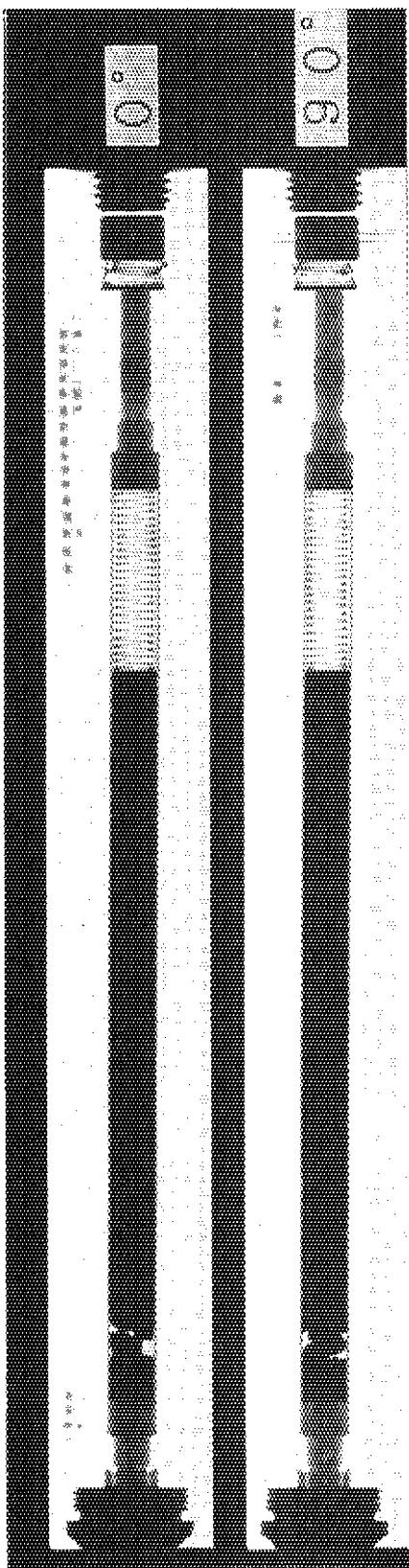
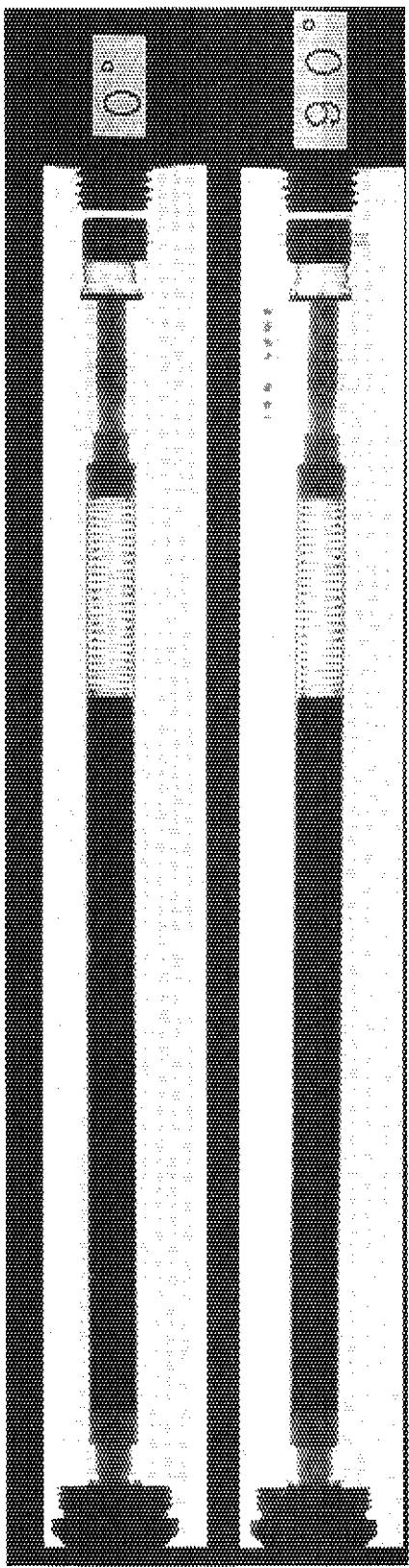
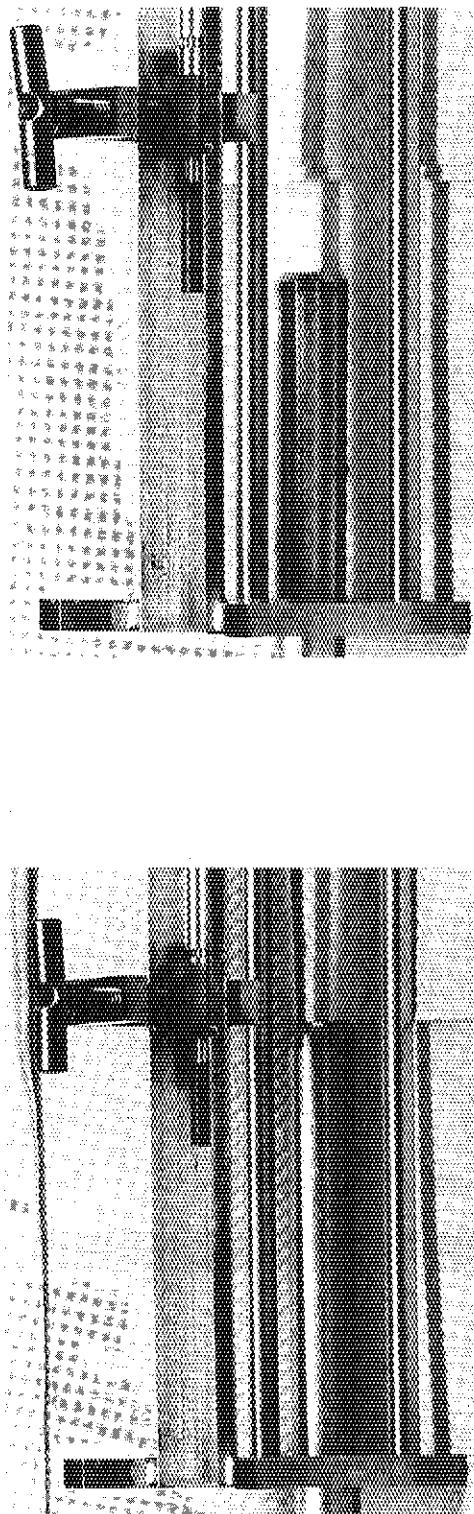
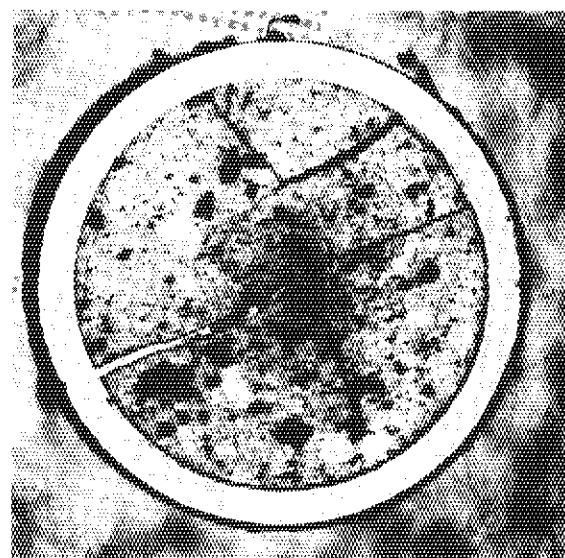
(U,Pu)C_{1,0} FUEL PIN (ICF-37-1)(U,Pu)C_{1,1} FUEL PIN (ICF-37-2)

Photo.5.8 X-ray radiograph of fuel pins



(U,Pu)C_{1.0} Fuel Pellet
(371AP)

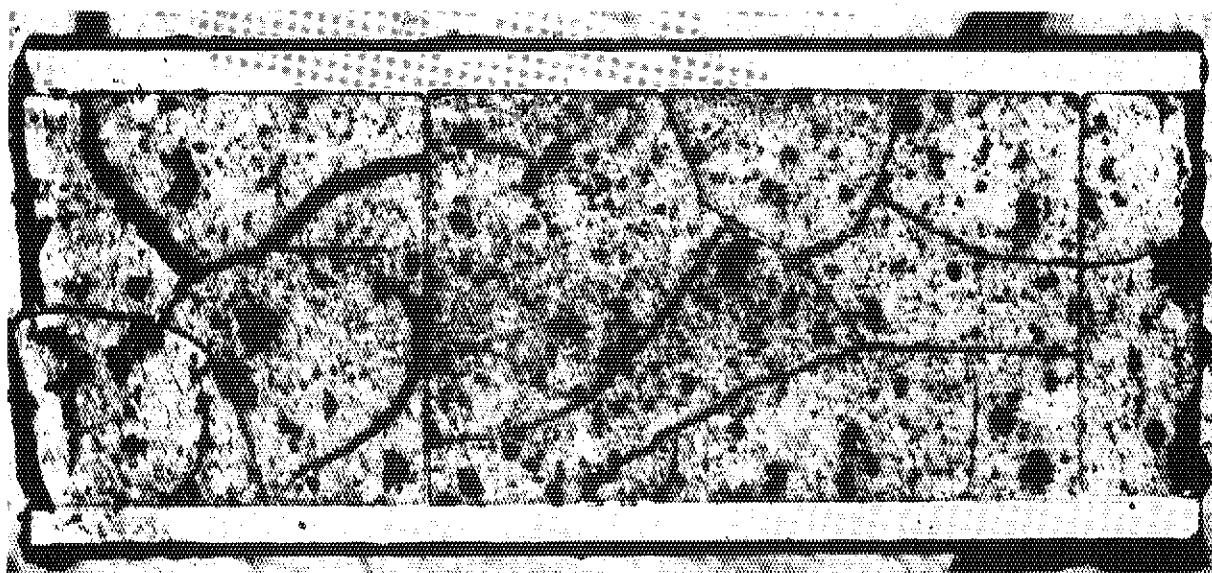
Photo. 5.9 Removal of fuel and the fuel pellet fragments



371B2

TOP

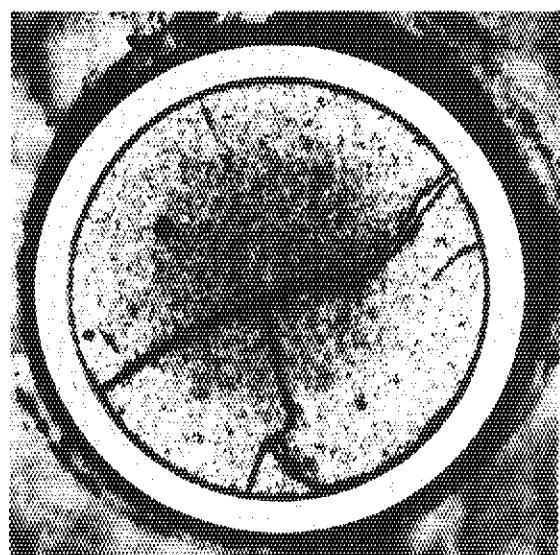
BOTTOM



371B1

1mm

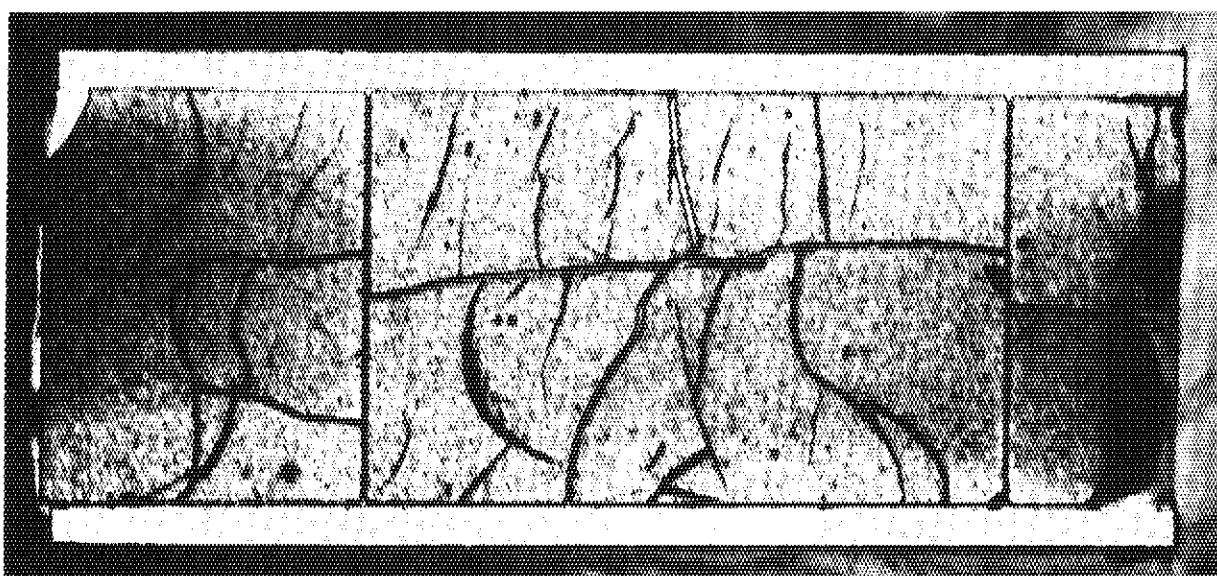
Photo. 5.10 Sectional photograph of $(U, Pu)C_{1.0}$ fuel pin



372B2

TOP

BOTTOM



372B1

1mm

Photo. 5.11 Sectional photograph of $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pin

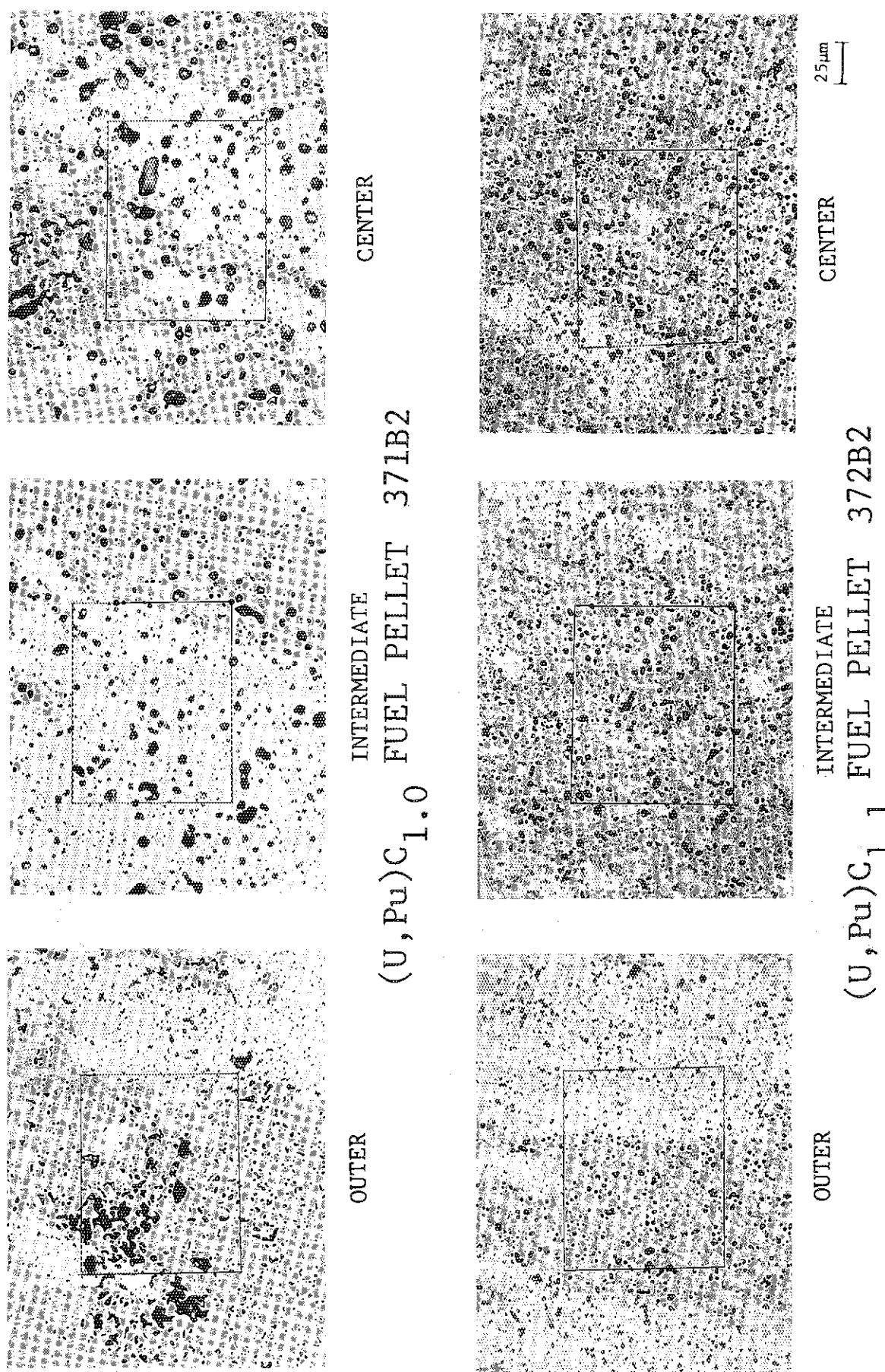
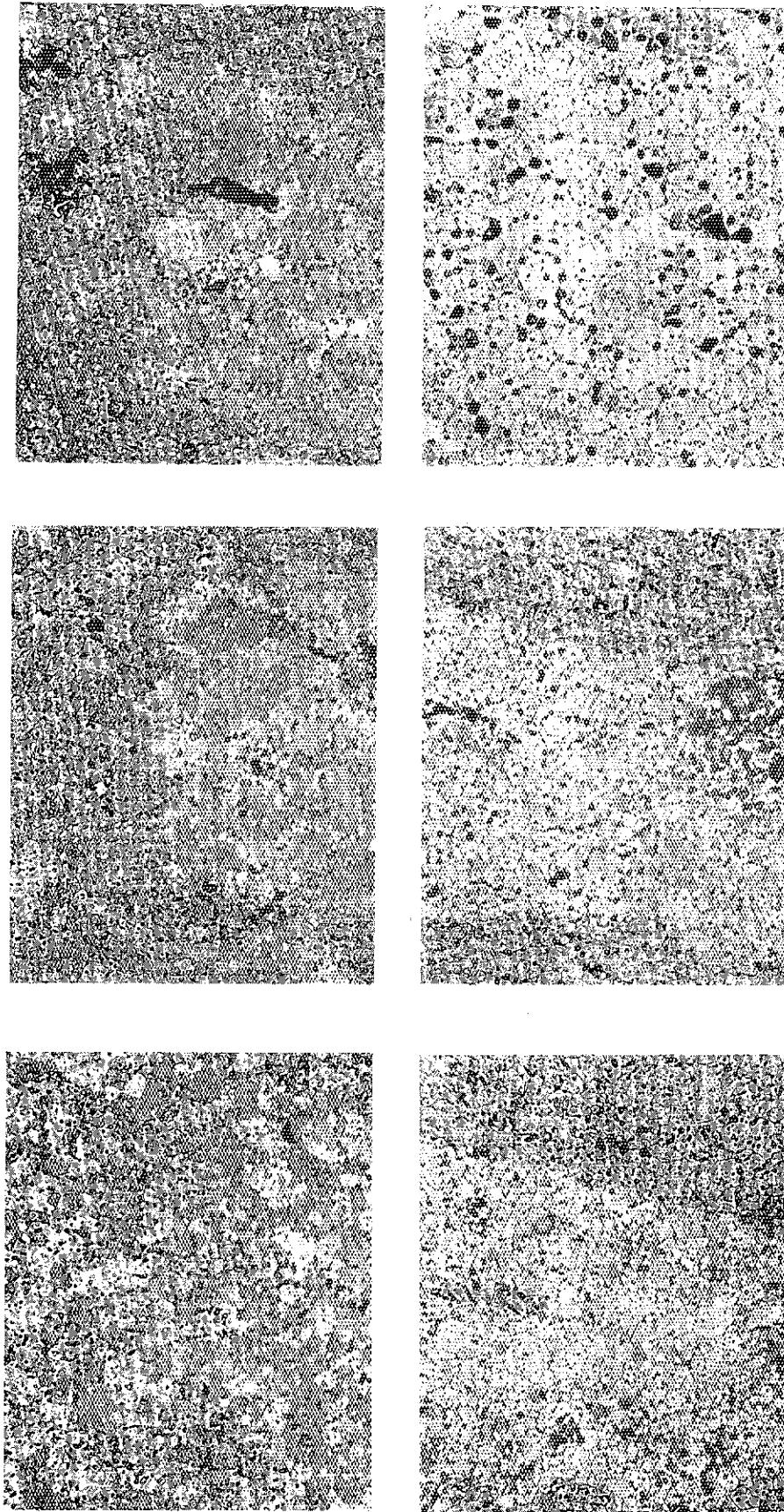


Photo. 5.12 Microphotographs for the center, intermediate and outer parts of fuel pellets

371B1



(U, Pu)C_{1.0} FUEL PELLET

CENTER
INTERMEDIATE
OUTER

Photo. 5.13 Microstructure of (U, Pu)C_{1.0} fuel pellet

372B1

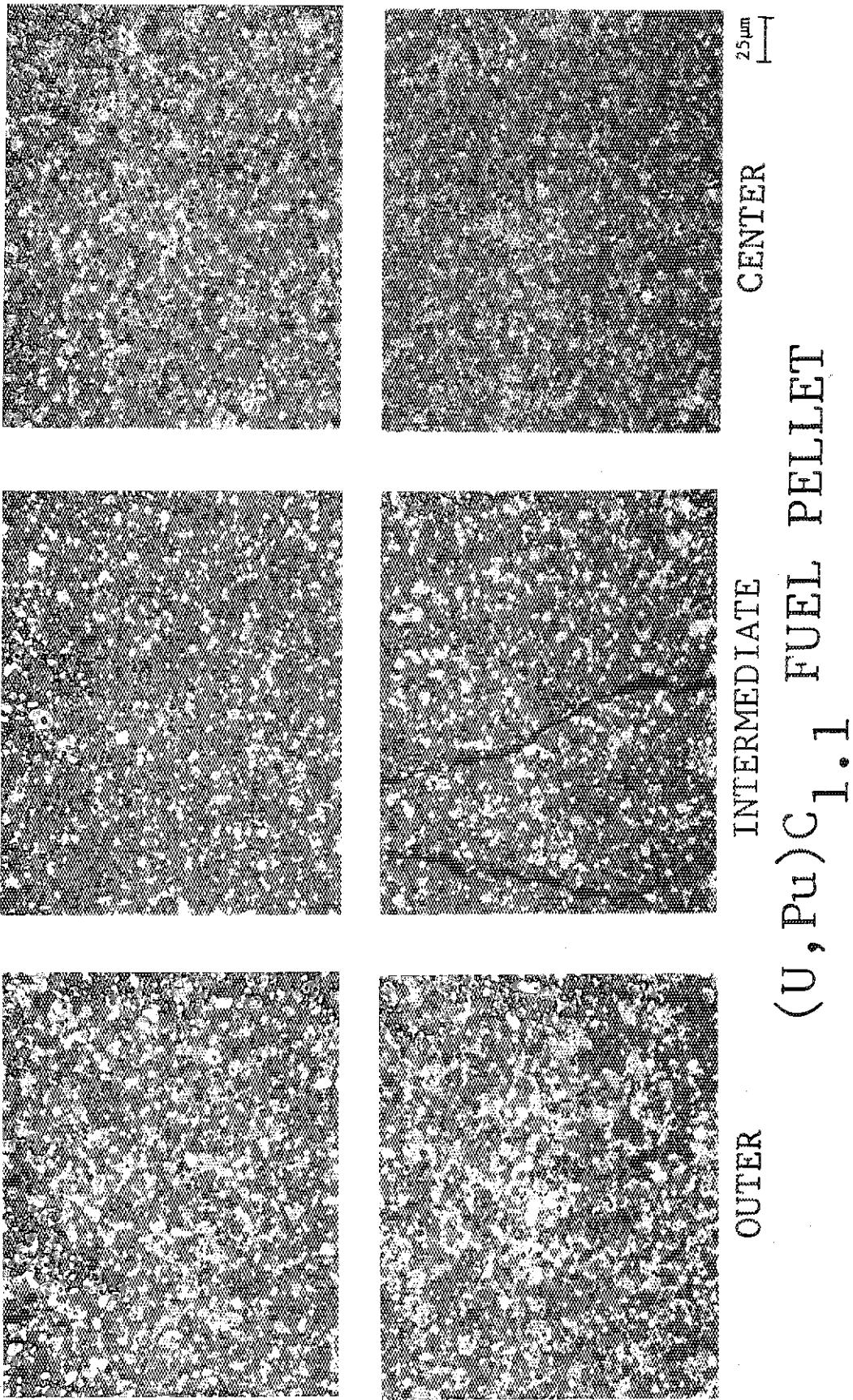


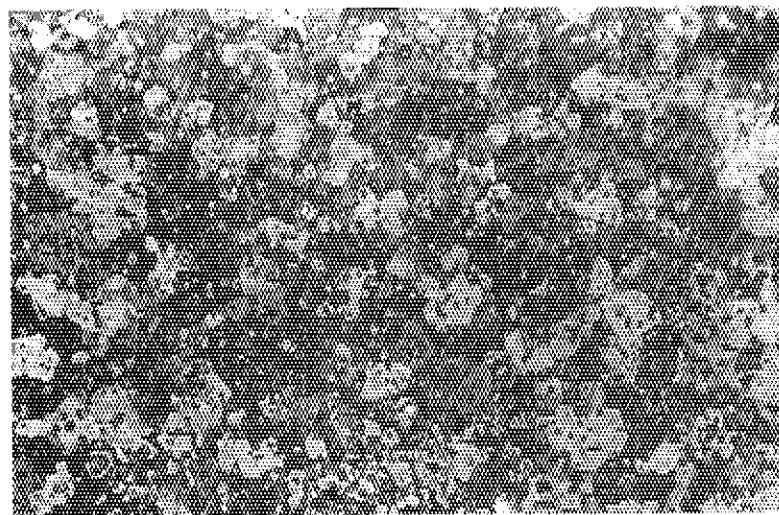
Photo. 5.14 Microstructure of $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pellet

$(U, Pu)C_{1.1}$ FUEL PELLET

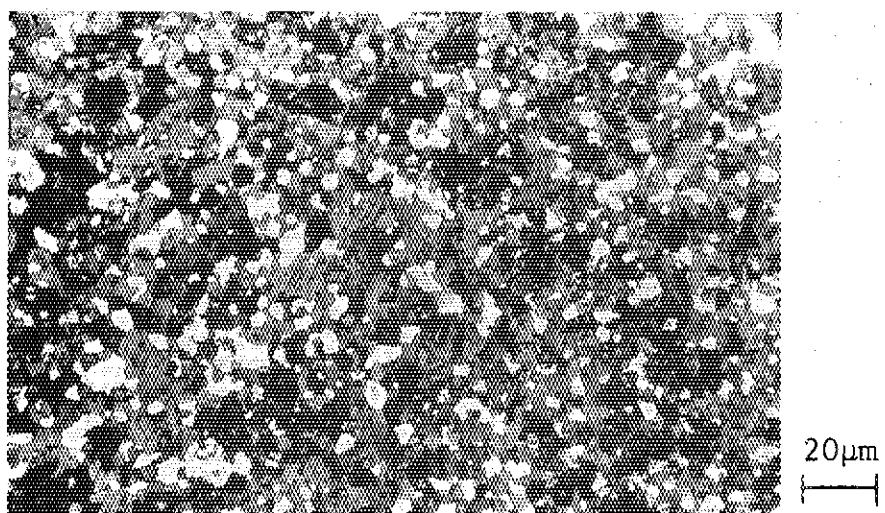
CENTER
25 μm

INTERMEDIATE

OUTER



(U,Pu)C_{1.0} FUEL PELLET (ICF-37-1 PIN)



(U,Pu)C_{1.1} FUEL PELLET (ICF-37-2 PIN)

UNIRRADIATED PELLET

Photo. 5.15 Microstructure of unirradiated fuel pellets

371B2

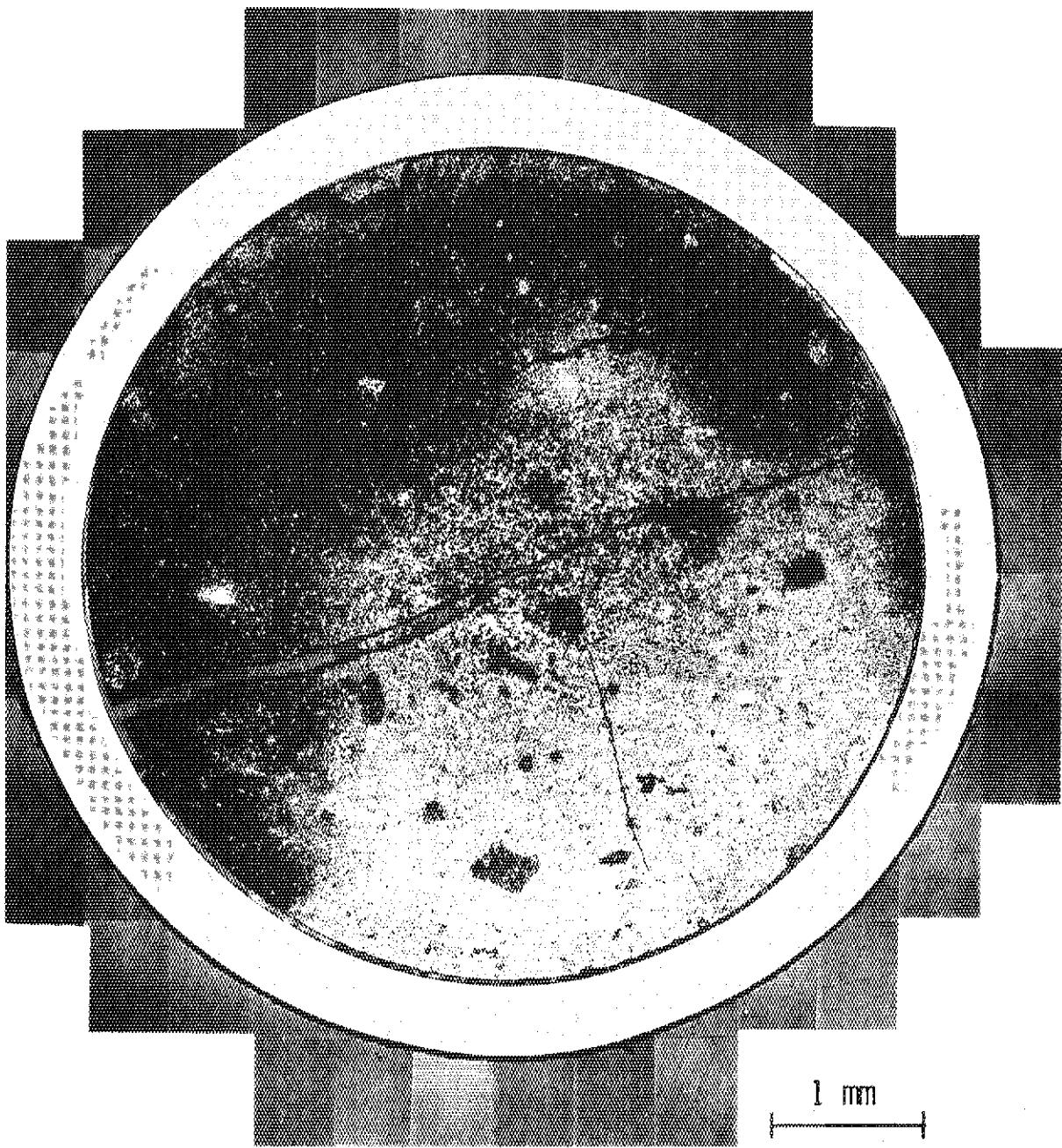


Photo. 5.16 Mosaic photograph of $(U, Pu)C_{1.0}$ fuel pin

372B2

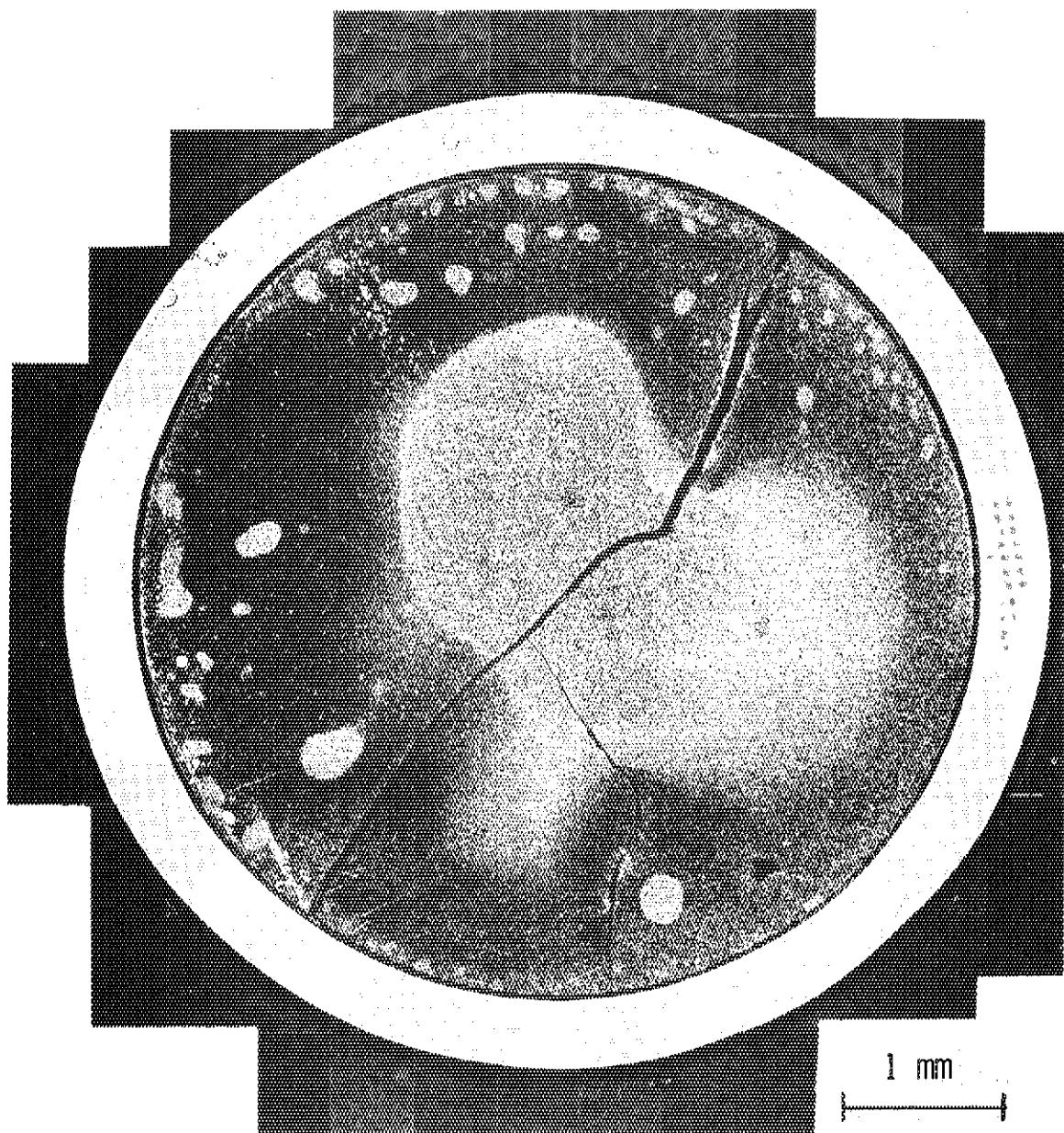
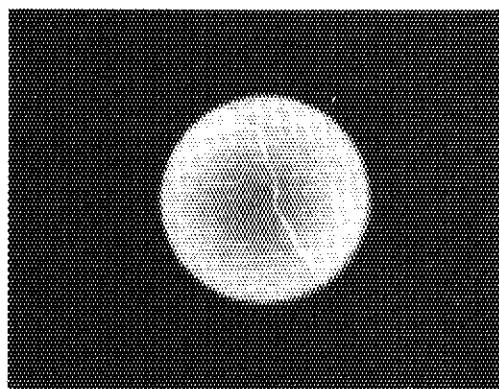
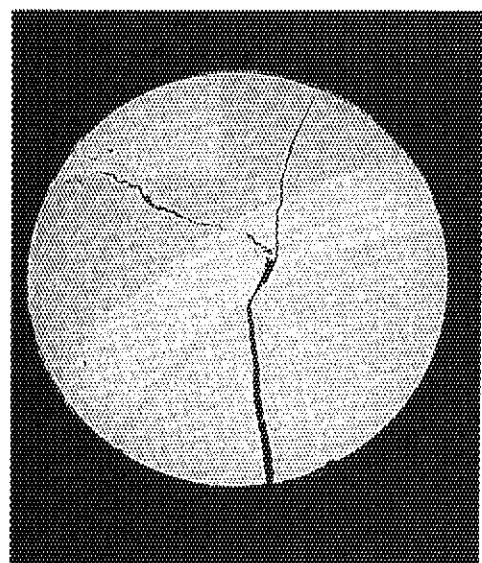
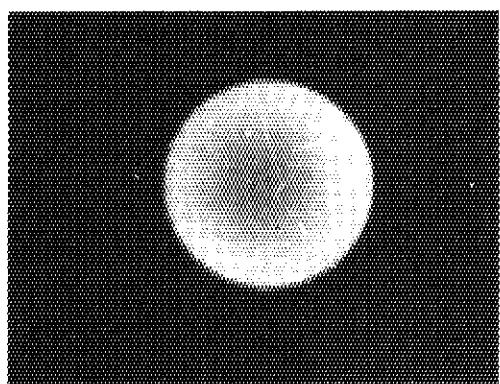
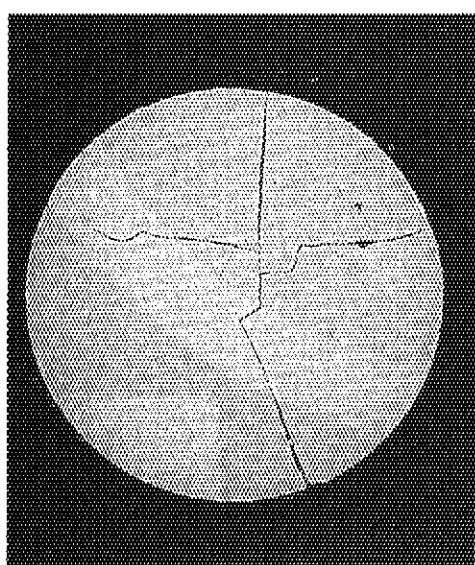


Photo. 5.17 Mosaic photograph of $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pin



α (x10) 371B3 $\beta \gamma$ (x5)
 $(U, Pu)C_{1.0}$ FUEL PELLET



α (x10) 372B3 $\beta \gamma$ (x5)
 $(U, Pu)C_{1.1}$ FUEL PELLET

Photo. 5.18 Alpha and beta-gamma radiograph of fuel pellets

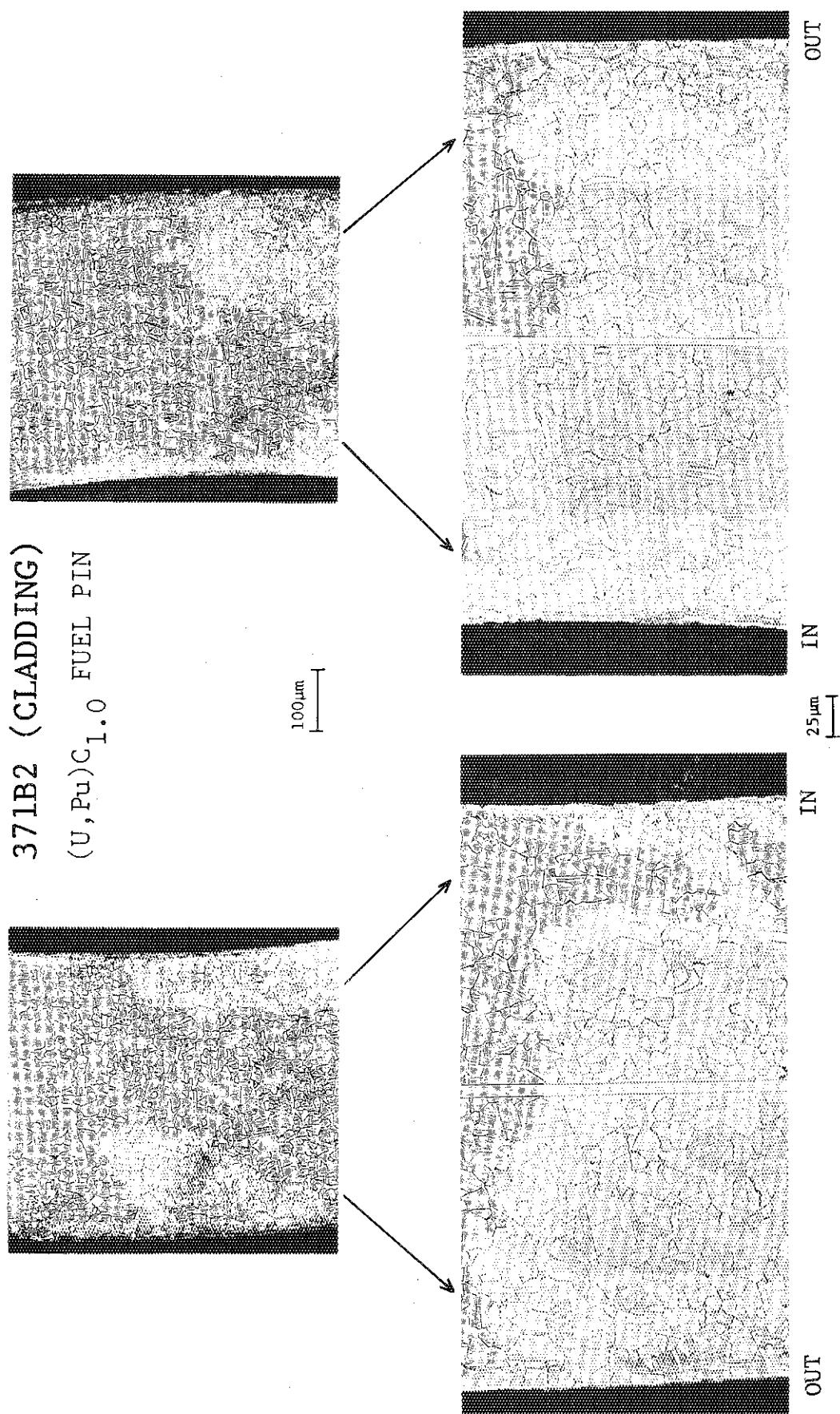


Photo. 5.19 Macro- and microstructures of $(U, Pu)C_{1.0}$ fuel pin cladding

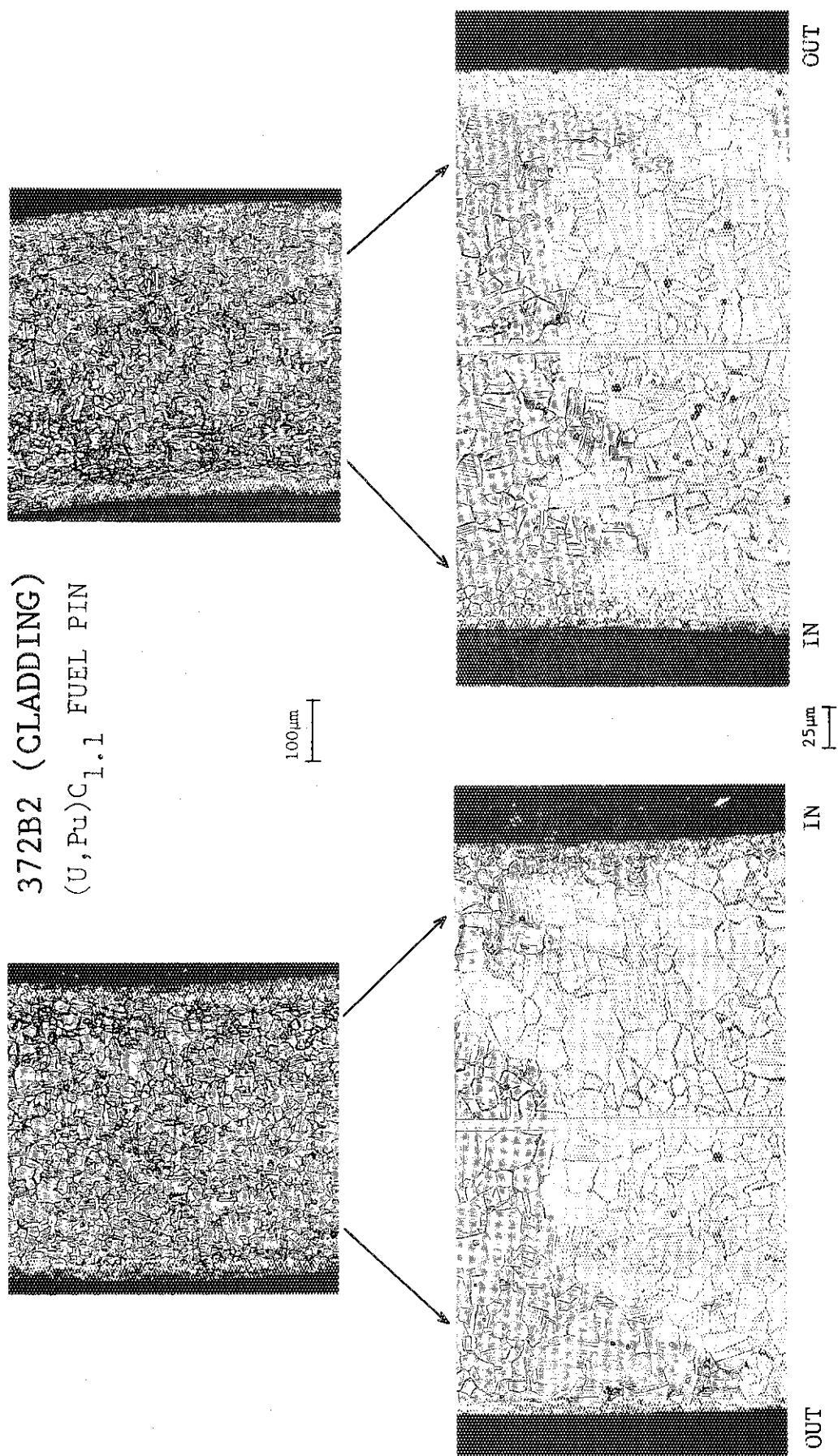


Photo. 5.20 Macro- and microstructures of $(U, Pu)C_{1.1}$ fuel pin cladding

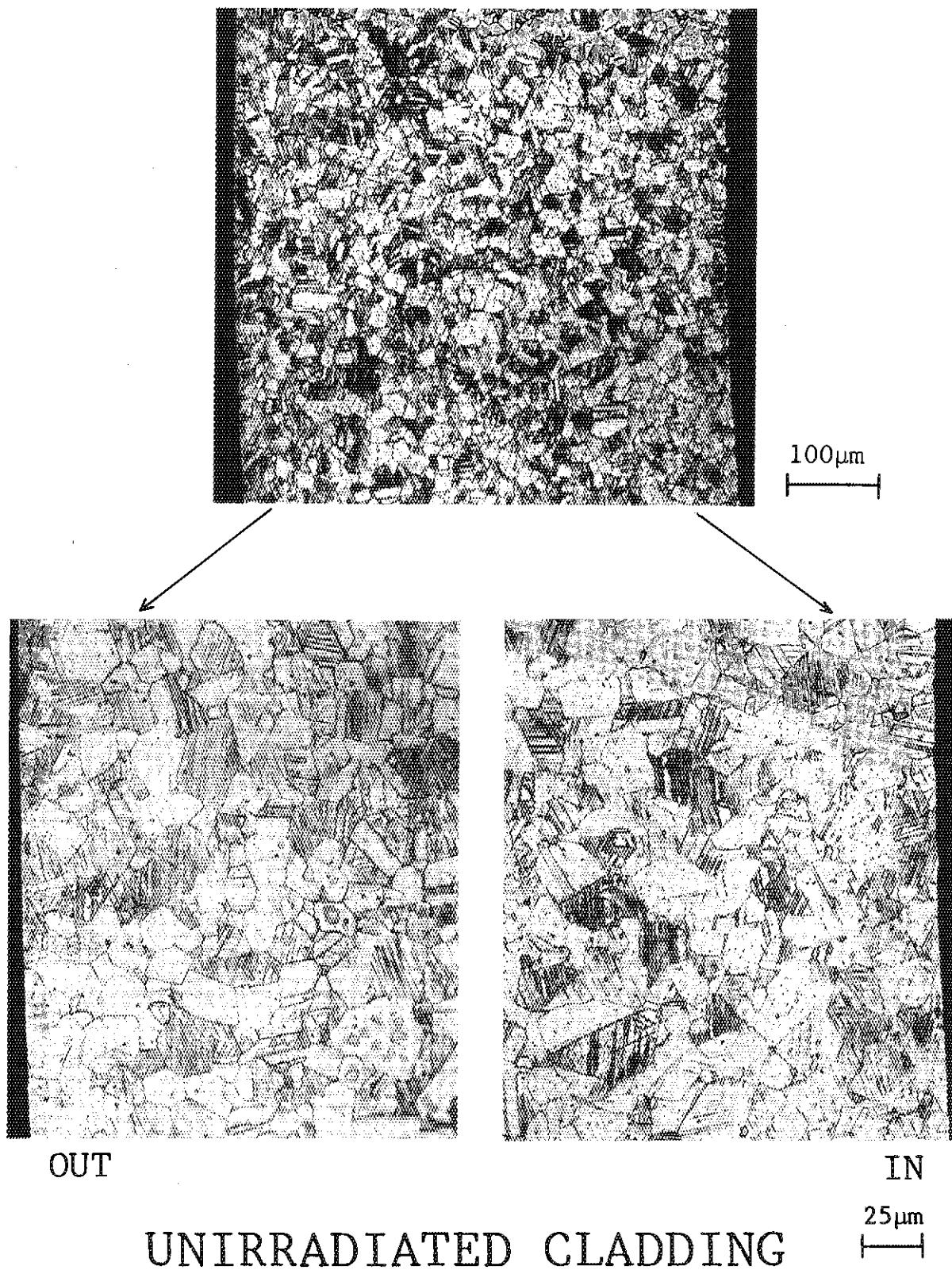
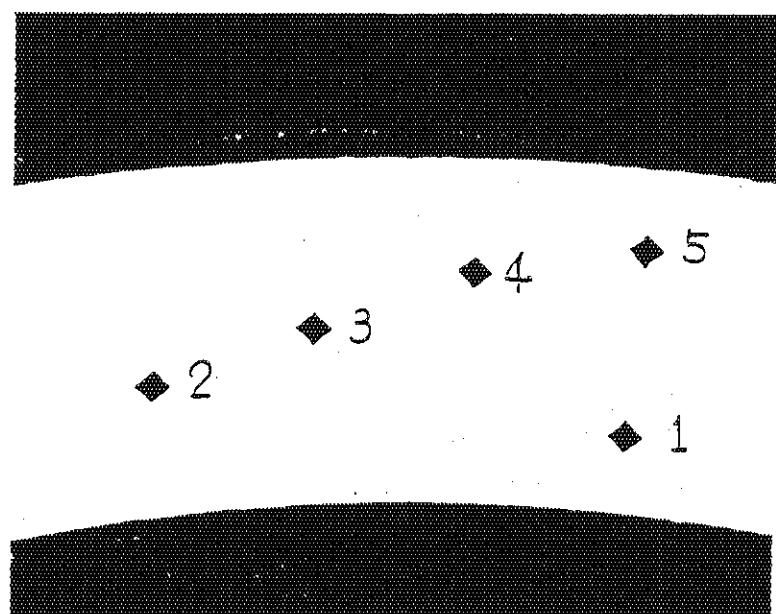


Photo. 5.21 Macro- and microstructures of unirradiated cladding

371AC



ネガ No 61-1596 MAG× 100

Photo. 5.22 Traces of vickers hardness measurement for cladding

6. ま と め

(1) 混合炭化物燃料ピン⁷⁾ (Fig. 3.1 参照)

化学量論組成及び超化学量論組成のウラン・プルトニウム混合炭化物ペレット $\{(U_{0.8},Pu_{0.2})C_{1.0}\}$ 及び $\{(U_{0.8},Pu_{0.2})C_{1.1}\}$ を316ステンレス鋼被覆管(外径6.50 mm, 厚さ0.47 mm)に充填・溶封した短尺燃料ピン(燃料スタック長108 mm, ピン全長185 mm)2本を昭和57年に大洗研究所燃料研究棟で製作した。

(2) 照射キャップセル (Fig. 3.4 参照)

上記の燃料ピンを東海研究所、工作工場に搬入し、2本の燃料ピンを上下に重ねた状態で、内筒及び外筒で二重被覆した照射キャップセル、ICF-37Hに組込んだ。燃料ピンとキャップセル内筒間の熱媒体にはNaK合金を用いた。

(3) 照 射 (Table 4.1, Table 5.2)

ICF-37HキャップセルをJRR-2インコア実験孔に挿入して、昭和58年11月から59年7月までの6サイクル(集積照射時間、1542時間、熱中性子照射量 5×10^{20} nvt、速中性子照射量約 $1 \sim 1.7 \times 10^{20}$ nvt)、線出力420 W/cmで、1.0 at.%燃焼度まで照射した。照射時の燃料中心温度は約1000°C、被覆管温度は450～500°Cであった。

(4) 燃料試験施設 (Fig. 5.1 参照)

東海研究所燃料試験施設において照射後試験を昭和60、61年度に行った。非破壊試験は同施設のNo.1～No.6までのβ・γセルで、破壊試験は、No.1及びNo.2の二つのα・γ、アルゴンガス雰囲気セルで行った。

(5) 照射後試験 (Fig. 5.6, Fig. 5.7 参照)

照射したキャップセルの燃料試験施設への搬入から被覆管の硬度測定まで35項目について実施した。

(6) 照射後試験結果

主要な照射後試験結果は以下のとおりである。

a) 燃料ピンの直径変化 (Fig. 5.20～Fig. 5.27 参照)

1 at.%と燃焼度が低いために、2本の燃料ピンとも燃料と被覆管の機械的相互作用(FCMI)及びプレナムのFPガス圧等による被覆管のクリープ変形は観測されなかった。

b) FPガス放出量及びその組成 (Table 5.6 参照)

FPガス放出量は(U,Pu)C_{1.0}燃料で0.44%，(U,Pu)C_{1.1}燃料で0.09%であった。燃料中心温度が1000°Cであることから、FPガス放出は、ノックアウト及び反跳機構に支配されていると考えられる。Xe/Kr比は前者で15，後者で20でありORIGENコードによる計算値とほぼ一致した。

c) 燃料ペレットの密度変化 (Table 5.7 参照)

照射に伴う燃料ペレットの密度変化は、(U,Pu)C_{1.0}燃料で-1.3%，(U,Pu)C_{1.1}燃料で-1.6%であった。この減少率は、1.0 at.%燃焼度における体積スエリング率($\Delta V/V$)

を示しており、これまで文献に報告された 1000 °C 以下で燃料ペレットが被覆管に拘束されない自由スエリング率 1.2 ~ 1.7 %¹³⁾ と一致している。

d) 燃料ペレットの開気孔率 (Table 5.7 参照)

液浸法及び水銀ピクノメータ法による密度測定の差から燃料ペレットの開気孔率をもとめた結果、(U, Pu) C_{1.0} 燃料で 1.3 %, (U, Pu) C_{1.1} 燃料で 0.45 % であった。この開気孔は、ノックアウト及び反跳等による低温（1000 °C 以下）における FP ガス放出率と直接的に関連がある。b) で述べたように (U, Pu) C_{1.1} 燃料よりも約 4 倍大きく予測どおりの結果である。

e) 燃料ペレット中の気孔及び結晶粒度の分布 (Table 5.9, Fig. 5.30, Fig. 5.31, Photo. 5.12 参照)

照射前後において燃料ペレットの中央部、中間部及び外周部のマイクロ写真撮影を行い、得られた写真を画像解析して気孔の大きさ及び分布の測定を行った。その結果、(U, Pu) C_{1.0} 燃料ペレットの中央部及び中間部において 0 ~ 9.9 μm² の極微小気孔の大幅な消滅及び大きな気泡への成長が観測された。この現象も燃料中の原子の熱及び照射誘発拡散速度を考慮することで十分に説明することができる。燃料ペレットの結晶粒度の成長についても気孔分布と同様な結果が得られた。

f) 燃料ペレットのモザイク写真 (Photo. 3.16, Photo. 3.17 参照)

燃料ペレットとともに直徑方向に大きな割れが 1 本生じており、この割れに対して半径方向に数本の割れを生じており、照射初期における割れの代表的な様相を示している。燃料中心温度が 1000 °C と低いことから中央部での割れの消滅、ポイドの発生は起っていない。燃料と被覆管の間隙が十分に残っており、a) で述べた燃料ピンの外径変化がないことと符合している。

g) 燃料ペレットのオートラジオグラフ (Photo. 3.18 参照)

α オートラジオグラフでは Pu, U, TRU 等が均一に分布していることが示された。β・γ オートラジオグラフから燃料ペレット中央部における FP 濃度が外周部に比べて低いことが分った。この原因是、熱中性子照射であるので中央部における中性子束の減衰を反映しているものと推測した。

h) 燃料ペレットのマイクロ γ 線スキャニング (Fig. 5.35, Fig. 5.36 参照)

代表的な FP として ¹⁰⁶Rh, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Pr, ⁹⁵Nb 及び ¹³⁴Cs の半径方向の分布を測定した。外周部と中央部の γ 線強度 (¹⁰⁶Rh) の比は (U, Pu) C_{1.0} で 0.57, (U, Pu) C_{1.1} で 0.52 であり、g) で述べた熱中性子束の減衰を確認した。なお、核計算コードによる結果は 0.35 であった。

i) 被覆管内壁の腐食 (Photo. 3.19, Photo. 3.20, Photo. 3.21 参照)

被覆管内壁に、(U, Pu) C_{1.0} 及び (U, Pu) C_{1.1} 燃料で浸炭による被覆管の結晶粒の微細化領域が、それぞれ 10 ~ 15 μm 及び 15 ~ 25 μm 観測された。腐食厚さは、炭素ポテンシャルの高い (U, Pu) C_{1.1} 燃料の方が大きいが、絶対値は反応速度が遅いことから大きな値でなく、燃料ピンの健全性評価上は問題にはならないことが分った。

j) 被覆管の硬度 (Fig. 5.37 参照)

被覆管への浸炭に関する知見を得るために、マイクロビッカス法を用いて被覆管の厚さの

半径方向の硬度を測定した。照射によってビッカス硬度が 15 ~ 20 程度全体的に増大していたが、(U, Pu) C_{1.0} と (U, Pu) C_{1.1} 燃料について被覆管内側の測定点がほぼ同一値であったことから、この硬度増大は浸炭によるものではなくて中性子の照射損傷により起ったものであると推測した。

7. あとがき

今回のウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピン2本の照射及び照射後試験は、我が国として第1回目のもので太径のステンレス鋼被覆管が入手できなかつたために、高速炉「もんじゅ」の混合酸化物燃料用に開発された外径6.50 mmの細径の316ステンレス鋼被覆管を使用した。このため、線出力は420 W/cmとほぼ酸化物燃料並みで、燃料中心温度は約1000 °C、燃焼度も1.0 at. %に抑えられた。しかし、混合炭化物燃料の照射の基本特性に関する兆候は、燃料ペレットの割れ、FPガス放出、スエリング、気孔の分布、結晶粒度の変化、燃料と被覆材の化学的相互作用等すべてにおいて観測することができた。 α ・ γ 、不活性ガス雰囲気セルを用いた照射後試験も種々な困難に直面しながらすべての装置が正常に働き今後計画されているより高燃焼度燃料の試験を実施できる目途が得られた。以上に述べたように第1回目の混合炭化物燃料の照射及び照射後試験は所期の目標をほぼ100%達成することができた。

おわりに、本試験の遂行に際して御指導及び御助言をいただいた東海研究所近藤達男燃料・材料工学部長、柴是行同次長、児玉敏夫実用燃料試験室長、大洗研究所大久保義春管理部長に厚く感謝いたします。また、照射用燃料ピンの製作では大洗研究所燃料研究棟の皆様に、キャップセル製作では東海研究所技術部工作課に、照射では研究炉管理部研究炉利用課に、照射後試験では実用燃料試験室に、使用済燃料の保管廃棄では保健物理部放射性汚染処理第2課の諸氏に御支援いただいた。ここに心からお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 半田宗男, 鈴木康文, 「高速炉用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の開発現状」, 日本原子力学会誌, 26, №1, pp 2~7 (1984).
- 2) H. Bailly, "Situation Regarding Advanced Fuels in the French Fast Breeder Reactors Program", IAEA-TECDOC-352 (1985).
- 3) R.J. Neuhold, R.D. Leggett, L.C. Walters and R.B. Matthews, "High Reliability Fuel in the U.S.", Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors", September 7-11, Tucson, Arizona (1986).
- 4) 渡辺 斎, 栗原正義, 「プルトニウム炭化物系燃料研究施設」, 日本原子力学会誌, 19, 526 (1977).
- 5) 荒井康夫, 岩井 孝, 塩沢憲一, 半田宗男, 「チャンファ型ウラン・プルトニウム混合炭化物ペレットの製造」, JAERI-M 85-159 (1985).
- 6) A. Maeda, T. Iwai, T. Ohmichi and M. Handa, "Quality Control of Uranium-plutonium Mixed Carbide and Nitride Fuels", IAEA Technical Committee Meeting on Advanced Fuel for Fast Breeder Reactors, IAEA-TECDOC-466, Vienna, November 3-5 (1987), p.35.
- 7) 半田宗男, 大道敏彦, 福島 燐, 笹山龍雄, 鈴木康文, 前多 厚, 荒井康夫, 岩井 孝他, 「照射用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作」, JAERI-M 83-206 (1983).
- 8) J.M. Simons, J.A. Leary, J.H. Kittel and C.M. Cox, "The U.S. Advanced LMFBR Fuels Development Program", Advanced LMFBR Fuels, October 10-13, Tucson, Arizona, p.2 (1977).
- 9) Y. Arai, S. Fukushima, K. Shiozawa and M. Handa, "Fabrication of Uranium-plutonium Mixed Nitride and Thermally Stable Carbide Fuels", IAEA Technical Committee Meeting for Fast Breeder Reactors, IAEA-TECDOC-466, Vienna, November 3-5 (1987), p.25.
- 10) 相沢作衛, 金井塙文雄, 白崎昭夫, 萩谷 一, 坂倉 敦, 原研・燃料試験施設における α ・ γ セルの整備, (I)ホットセル及び付属施設の概要, 日本原子力学会「昭和 60 年分科会」, H 43, 仙台 (1985).
- 11) 大和田功, 花田也寸志, 岩松重美, 野村 勇, 相沢作衛, 白崎昭夫, 川崎公靖, (II)調整試験と成果, 同上, H 44, 仙台 (1985).
- 12) 燃料工学部, 実用燃料試験室, 低出力(第1回)照射ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料照射後試験計画書(昭和 60 年 7 月).
- 13) 笹山龍雄, 鈴木康文, 渡辺 斎, 半田宗男, 「ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作設備」, JAERI-M, 83-136 (1983).

- 14) W. Dienst, "Swelling, Densification and Creep of (U,Pu)C Fuel under Irradiation", J. Nucl. Mater., 124, 153 (1984).
- 15) W. Dienst, et al., "Swelling, Densification and Creep of Oxide and Carbide Fuels under Irradiation", Proc. Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, California, March 5-8, p.166 (1979).
- 16) W.D. Kingery, Introduction to Ceramics, John Wiley & Sons, Inc., New York, p.404 (1963).
- 17) Hj. Matzke, Science of Advanced LMFBR Fuels, North-Holland Physics Publishing, Amsterdam (1986), pp.258 and 276-278.
- 18) idem, ibid., p.414.
- 19) O. Götzmann and P. Hofmann, "Comparison of In-pile Compatibility Behavior of Oxide and Carbide Fuel Pins According to Simulation Tests", Proceedings of Symposium on Fuel and Fuel Elements for Fast Reactors, Vol.1, p.233 (1973).
- 20) W. Batey, "Compatibility Studies of Irradiated Carbide Fuel Pins", Intern. Working Group on Fast Reactors Technical Committee Meeting on Fuel and Cladding Interaction", IAEA, IWGFR/16, p.104, Tokyo (1977).
- 21) O. Götzmann and R.W. Ohse, "Fuel/Cladding Compatibility of Stainless Steels with Gas and Sodium-bonded Uranium Plutonium Carbide Fuels", Panel Proceedings on Behavior and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuels, p.255, IAEA (1972).
- 22) H. Kleykamp, "The Chemical State of Irradiated Carbide Fuel Pins", Topical Meeting Proceeding on Advanced LMFBR Fuels, Eds. J. Leary et al., Tucson, Arizona, October 10-13, 1977, p.166.
- 23) 長谷川, 三島監修, 原子炉材料ハンドブック, 日刊工業新聞社 (1977), p.555.
- 24) C. Ronchi, M. Coquerelle and H. Blank, "The Sodium-bonded Pin Concept for Advanced Fuels, Part II: Analysis of the Cladding Carburization", Nucl. Technol., 67, 73 (1984).
- 25) D.R. Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", TID-26711-P1, p.441 (1976).