

JAERI-M

88-220

酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動

1988年11月

白鳥 徹雄・伊藤 昭憲・赤堀 光雄  
柴 是行・足立 守

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

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

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1988

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 日立高速印刷株式会社

酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

白鳥 徹雄・伊藤 昭憲・赤堀 光雄  
柴 是行・足立 守<sup>+</sup>

(1988年10月5日受理)

Fertile用ThO<sub>2</sub>とfissile用(Th, U)O<sub>2</sub>を燃料核とし、BISO被覆を主体にTRISO被覆を含む8種類の酸化トリウム系被覆粒子燃料のキャプセル照射試験を実施した。試料の粒子を3体のキャプセルに無拘束(loose)状態で充填し、JRR-2又はJMT-Rで照射した。中性子照射量(最高)  $1.35 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  (th.) ,  $2.22 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ ) , 照射温度1225°C以下, 燃焼率(最高) 2.42% FIMA の照射条件における照射挙動を観察した結果, fissile-BISO粒子に極くわずかの破損が検出されたものの, 全般的には堅実な状態であり, 燃料としての健全性を確認した。また, 酸化トリウム系被覆粒子燃料のFP挙動の観察, 高速中性子照射による高密度PyC層の密度増加とそれが要因となったBISO粒子の圧縮破壊強度の増加, TRISO粒子の強度減少等の結果を得た。

Irradiation Performance of Thorium Oxide Based Coated Particle Fuels

Tetsuo SHIRATORI, Akinori ITOH, Mitsuo AKABORI  
Koreyuki SHIBA and Mamoru ADACHI<sup>+</sup>

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

(Received October 5, 1988)

BISO coated  $\text{ThO}_2$  particles as fertile fuel and BISO or TRISO coated  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  particles as fissile fuel for a High-temperature Gas-cooled Reactor (HTGR) were irradiated to investigate particle performances in loosely-packed condition of two capsules in JRR-2 and one capsule in JMTR. Irradiation of these coated particles was achieved to a maximum fast neutron fluence of  $2.22 \times 10^{21}$  neutrons/cm<sup>2</sup> ( $E > 0.18$  MeV) and a maximum thermal neutron fluence of  $1.35 \times 10^{21}$  neutrons/cm<sup>2</sup> at temperatures of 770 to 1225°C. And a maximum burnup of fissile particles was 2.42 % FIMA.

It was found in the post-irradiation examinations that the coated particles were intact except a little of the BISO coated fissile particles, and the thorium oxide based coated particles performed well under the irradiation conditions. The data were also taken on the fission product behavior released from the fuel kernels during the irradiation. And density of the outer LTIPyC (OPyC) increased as increasing the fluence of fast neutron. As a result of the densification of the OPyC, the crushing strength of the BISO coated particles increased, otherwise the TRISO coated particles decreased.

**Keywords:** Thorium, Thorium Oxide, Irradiation, HTGR, Coated Particles, Fission Products, Burnups, PIE

---

+ Department of Research Reactor Operation

## 目 次

1. 序 論 .....	1
2. 照射キャップセルと試料 .....	2
2.1 照射キャップセル .....	2
2.2 照射試料 .....	6
2.2.1 試料配置 .....	6
2.2.2 燃料核 .....	6
2.2.3 被覆層 .....	6
3. 照射条件 .....	11
3.1 照射履歴 .....	11
3.2 照射温度 .....	13
3.3 中性子照射量 .....	16
4. 照射後試験 .....	19
4.1 概 要 .....	19
4.2 外観観察 .....	23
4.3 X線ラジオグラフィ .....	25
4.4 断面観察 .....	27
4.5 燃焼率の測定 .....	38
4.5.1 JRR-2 照射キャップセル試料の燃焼率評価 .....	38
4.5.2 JMTR 照射キャップセル試料の燃焼率評価 .....	38
4.6 被覆粒子のFP挙動 .....	42
4.6.1 EPMAによる被覆粒子の元素分析 .....	42
4.6.2 照射下FP放出 .....	43
4.6.3 被覆粒子外へのFP放出 .....	44
4.7 被覆層の照射挙動 .....	52
4.7.1 光学的配向異方性(OPTAF)の測定 .....	52
4.7.2 高密度PyC層の密度変化 .....	52
4.7.3 被覆層の圧縮破壊強度 .....	53
5. 結 論 .....	59
謝 辞 .....	59
参考文献 .....	61

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Description of Capsules and Fuel Specimens .....	2
2.1 Capsule Design .....	2
2.2 Fuel Specimens .....	6
2.2.1 Loading Scheme .....	6
2.2.2 Kernels .....	6
2.2.3 Coatings .....	6
3. Irradiation Conditions .....	11
3.1 Capsule Operating History .....	11
3.2 Operating Temperature .....	13
3.3 Neutron Fluence .....	16
4. Results of Postirradiation Examinations .....	19
4.1 Outline .....	19
4.2 Visual Examination .....	23
4.3 X-ray Radiography .....	25
4.4 Metallographic Examination .....	27
4.5 Burnup Analysis .....	38
4.5.1 Burnup Analysis of Specimens on VOF-4H and ICF-28H Capsules for JRR-2 .....	38
4.5.2 Burnup Analysis of Specimens on 78F-4A Capsule for JMTR .....	38
4.6 Fission-product Release from Coated Particles .....	42
4.6.1 Electron Microprobe Analysis .....	42
4.6.2 Fission-product Release during Irradiation .....	43
4.6.3 Fission-product Release out of Coated Particle .....	44
4.7 Irradiation Performance of Coatings .....	52
4.7.1 OPTAF of OPyC Layer .....	52
4.7.2 Density Changes of OPyC Layer .....	52
4.7.3 Crushing Strength of Coated Particles .....	53
5. Conclusions .....	59
Acknowledgement .....	59
References .....	61

## 1. 序論

原子炉の核燃料としてのトリウムの利用を考えるときにトリウム燃料サイクルの特徴が生かされ、かつ特に中性子経済上有利である原子炉の一つに高温ガス冷却炉（HTGR）がある。HTGRの燃料要素の最小基本形状は直径数百ミクロンの燃料核にFPを保持するための熱分解炭素（PyC）や炭化ケイ素（SiC）を被覆した粒子である。トリウムは親物質（fertile）であり、ウランのように核分裂性物質（fissile）の同位体を伴わないために、トリウムを燃料として燃焼させてその燃料サイクルを維持するにはfissile燃料をトリウムに富化し、 $^{233}\text{U}$ を生産しなければならない。HTGRでこれを利用する場合、通常fissile燃料に濃縮ウランをトリウムと分離するか、あるいは混合物（非分離）にして用いる。すなわち、分離型ではfissile燃料としてのウラン系（酸化物または炭化物）被覆粒子とfertile燃料としてのトリウム系（同酸化物または炭化物）被覆粒子とを分離して用いる。一方、非分離型ではウランとトリウムを混合酸化物または炭化物被覆粒子とを分離して用いる。一方、非分離型ではウランとトリウムを混合酸化物（または炭化物）の被覆粒子にしてfissile燃料として用いることになる。

トリウム系被覆粒子燃料のHTGRへの利用開発研究はすでに米国・西独などでかなり以前から行われているが、これと並行して当燃料開発研究室も1975年以来、トリウム燃料の中性子照射特性の研究とトリウム燃料実用化を目的に酸化トリウム系（ $\text{ThO}_2$ および $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ）被覆粒子を研究対象物としてとりあげて照射試験を実施してきた。本報告書はそのために1979～1981年にかけて日本原子力研究所のJRR-2とJMTRで照射した3本のキャップセルによる酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動試験の結果を述べたものである。

HTGRの実用燃料は本来、被覆粒子を黒鉛マトリックスに拘束（bonded）成形させて用いられる。しかし今回の3本キャップセル照射試験では被覆粒子燃料自体の挙動を把握する目的で、 $\text{ThO}_2$ および $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ の燃料核にBISOまたはTRISO被覆をほどこした粒子燃料を黒鉛材料の試料容器中に無拘束（loose）状態で充填して照射した。粒子燃料の核直径やトリウム・ウラン比、濃縮度あるいは被覆層の材料、密度、厚さ等の仕様はHTGRの基本設計を参考にし、今後これらの仕様がパラメータの一つとなりうるように考慮して決定した。酸化トリウム系燃料核は現在のところ主として経済的な理由から入手が困難である。従って、目的に合った仕様の燃料核を得るために当研究室ではゾル・ゲル法による製造研究もすすめられてきた。今回の照射に使われた $\text{ThO}_2$ 燃料核の一部の製造と一部のBISO粒子製造のための被覆は当研究室で行われたものである。

これらの試料を照射条件（中性子照射量、照射温度）をパラメータにして照射し、その挙動を比較観察した。3本のキャップセルのうち、VOF-4H\*キャップセルとICF-28H\*はJRR-2で目標の照射条件で順調に照射を完了した。もう一本の78F-4A\*キャップセルはJMTRに

\* VOF-4H : JRR-2 VT照射孔用照射キャップセル  
照射試料 : Fuel, 照射条件 High temperature 用第4番目  
ICF-28H : JRR-2 In-Core 照射孔用照射キャップセル  
照射試料 : Fuel, 照射条件 High temperature 用第28番目  
78 F-4A : JMTR 1978年照射キャップセル第4(A)番目  
照射試料 : Fuel

において高燃焼度を目標として照射された。しかし照射初期に温度制御用の熱電対に断線故障を生じ、目標よりかなり低い  $1000^{\circ}\text{C}$  以下の温度に降して照射せざるを得なくなった。中性子照射量は当初の目標に達したので、結果的には照射温度の影響によるよりも中性子の重照射による酸化トリウム系被覆粒子の挙動を観察することになった。3本のキャップセルの照射条件のうち、最高の熱中性子照射量は  $1.35 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ( $E < 0.688 \text{ eV}$ )、最高照射温度は  $1225^{\circ}\text{C}$  であった。

照射後、各々のキャップセルは原子炉から取り出され、キャスクに収納して東海研究所(原研)ホットラボへ輸送された。照射後試験は照射後3カ月以上の冷却期間が経過してから開始された。試験の大半はホットラボのケープ内で実施され、試料の一部を当研究室に持ち帰ってFP分析、燃焼率、被覆層特性の変化などについての測定を行った。

今回の照射は試作開発試料の初めての照射挙動試験であるために、比較的おだやかな条件で実施された。従って、照射後の結果もfertile燃料( $\text{ThO}_2-\text{BISO}$ 粒子)は燃料核、被覆層共安定した挙動を示し、破損粒子もみられず健全な状態であった。一方、fissile燃料( $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2-\text{BISO}$ , TRISO粒子)もわずかに破損粒子が観察された程度である。その他の点でいくつかの照射挙動特性の変化が観測されている。これらの結果は中性子照射量、照射温度および燃焼度等をパラメータとしたデータの一部として今後の貴重な比較観察の基礎となるものである。

## 2. 照射キャップセルと試料

### 2.1 照射キャップセル

酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動を観察するための今回の3体のキャップセルは、JRR-2用・JMTR用共基本的に同じ設計構造を有する。すなわち、外筒及び内筒(あるいは試料筒)と呼ばれる二重又は三重の円筒形気密容器の中心中央部に照射試料を配し、その周囲の黒鉛材(温度が比較的低い部分はAl材)の熱媒体を通して照射発熱の熱除去を行う。高速・熱中性子照射量測定のためのフルエンス・モニタ(Al材シース又は石英アンプル入り)が、キャップセルの軸方向に3カ所程度挿入される。また照射中の温度計測と高温温度制御を行うためにW/Re熱電対を数本挿入する。試料は3体のキャップセル共、酸化トリウム系被覆粒子を無拘束状態で照射することになったために、キャップセル内の試料容器は黒鉛材で製作されている。その黒鉛容器の試料充填部に隣接したスペースに貫通小孔をあけ、そこに熱電対を計装した。熱電対は  $1000^{\circ}\text{C}$  以上の場所にW/Re材(Nb-1%Zr材シース入り)を、 $1000^{\circ}\text{C}$  以下の場所にC/A材(インコネルおよびSUS316材シース入り)を使った。試料の照射雰囲気は基本的には純Heガス(1atm)であるが、キャップセルの熱設計上、VOF-4Hでは94%Ar-Heガス(1atm)を充填して試料の照射温度を確保している。

Table 2.1に3体のキャップセルの構造の概要を一覧表にして示した。またFig. 2.1と2.2にVOF-4Hの構造設計図と完成時の外観写真とを示し、Fig. 2.3にVOF-4H及びICF-28Hの製作完成時のX線透過写真を示す。VOF-4HとICF-28Hとでは試料容器の形状がちがうので試料(被覆粒子)の配置も異なっている。なおJMTR照射の78F-4Aキャップセルの試料容器は、VOF-4Hのそれと似た形状である。

において高燃焼度を目標として照射された。しかし照射初期に温度制御用の熱電対に断線故障を生じ、目標よりかなり低い1000°C以下の温度に降して照射せざるを得なくなった。中性子照射量は当初の目標に達したので、結果的には照射温度の影響によるよりも中性子の重照射による酸化トリウム系被覆粒子の挙動を観察することになった。3本のキャップセルの照射条件のうち、最高の熱中性子照射量は $1.35 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E < 0.688 \text{ eV}$ )、最高照射温度は1225°Cであった。

照射後、各々のキャップセルは原子炉から取り出され、キャスクに収納して東海研究所(原研)ホットラボへ輸送された。照射後試験は照射後3カ月以上の冷却期間が経過してから開始された。試験の大半はホットラボのケープ内で実施され、試料の一部を当研究室に持ち帰ってFP分析、燃焼率、被覆層特性の変化などについての測定を行った。

今回の照射は試作開発試料の初めての照射挙動試験であるために、比較的おだやかな条件で実施された。従って、照射後の結果もfertile燃料( $\text{ThO}_2-\text{BISO}$ 粒子)は燃料核、被覆層共安定した挙動を示し、破損粒子もみられず健全な状態であった。一方、fissile燃料( $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2-\text{BISO}$ , TRISO粒子)もわずかに破損粒子が観察された程度である。その他の点でいくつかの照射挙動特性の変化が観測されている。これらの結果は中性子照射量、照射温度および燃焼度等をパラメータとしたデータの一部として今後の貴重な比較観察の基礎となるものである。

## 2. 照射キャップセルと試料

### 2.1 照射キャップセル

酸化トリウム系被覆粒子燃料の照射挙動を観察するための今回の3体のキャップセルは、JRR-2用・JMTR用共基本的に同じ設計構造を有する。すなわち、外筒及び内筒(あるいは試料筒)と呼ばれる二重又は三重の円筒形気密容器の中心中央部に照射試料を配し、その周囲の黒鉛材(温度が比較的低い部分はAl材)の熱媒体を通して照射発熱の熱除去を行う。高速・熱中性子照射量測定のためのフルエンス・モニタ(Al材シース又は石英アンプル入り)が、キャップセルの軸方向に3カ所程度挿入される。また照射中の温度計測と高温温度制御を行うためにW/Re熱電対を数本挿入する。試料は3体のキャップセル共、酸化トリウム系被覆粒子を無拘束状態で照射することになったために、キャップセル内の試料容器は黒鉛材で製作されている。その黒鉛容器の試料充填部に隣接したスペースに貫通小孔をあけ、そこに熱電対を計装した。熱電対は1000°C以上の場所にW/Re材(Nb-1%Zr材シース入り)を、1000°C以下の場所にC/A材(インコネルおよびSUS316材シース入り)を使った。試料の照射雰囲気は基本的には純Heガス(1atm)であるが、キャップセルの熱設計上、VOF-4Hでは94%Ar-Heガス(1atm)を充填して試料の照射温度を確保している。

Table 2.1に3体のキャップセルの構造の概要を一覧表にして示した。またFig. 2.1と2.2にVOF-4Hの構造設計図と完成時の外観写真とを示し、Fig. 2.3にVOF-4H及びICF-28Hの製作完成時のX線透過写真を示す。VOF-4HとICF-28Hとでは試料容器の形状がちがうので試料(被覆粒子)の配置も異なっている。なおJMTR照射の78F-4Aキャップセルの試料容器は、VOF-4Hのそれと似た形状である。

Table 2.1 Mechanical Designs of Instrumented Capsules

照 射 施 設	JRR-2		JMTR
キャプセル名	VOF-4H	ICF-28H	78F-4A
形 式	三重気密構造 高温温度制御式		二重気密構造 高温温度制御式
外筒材質(外径)	Al (400 mmφ)		SUS304(400mmφ)
内 筒 材 質	SUS 304		SUS316
熱媒体材質(厚さ)	Al (3.5mm)	Al (2.5mm)	黒鉛(4.45-4.78mm)
試料筒 材質	Nb-1%Zr		-
試料部 有効長	170 mm	168 mm	550 mm
試料容器 材質	黒 鉛		
試料充填方法	無拘束 (Loose)		
試料 霧囲気	94%Ar-He(1atm)	He (1atm)	He (1atm)
試料部熱電対材質 (数量)	W/Re (2本) C/A (2本)	W/Re (3本)	W/Re (3本)
フルエンスモニタ (Thermal用)	$^{59}\text{Co}$ (3本)	$^{59}\text{Co}$ (3本)	$^{59}\text{Co}$ (4本)
材質(数量) (Fast用)	$^{58}\text{Ni}$ (3本)	$^{58}\text{Ni}$ (3本)	$^{54}\text{Fe}$ (4本)

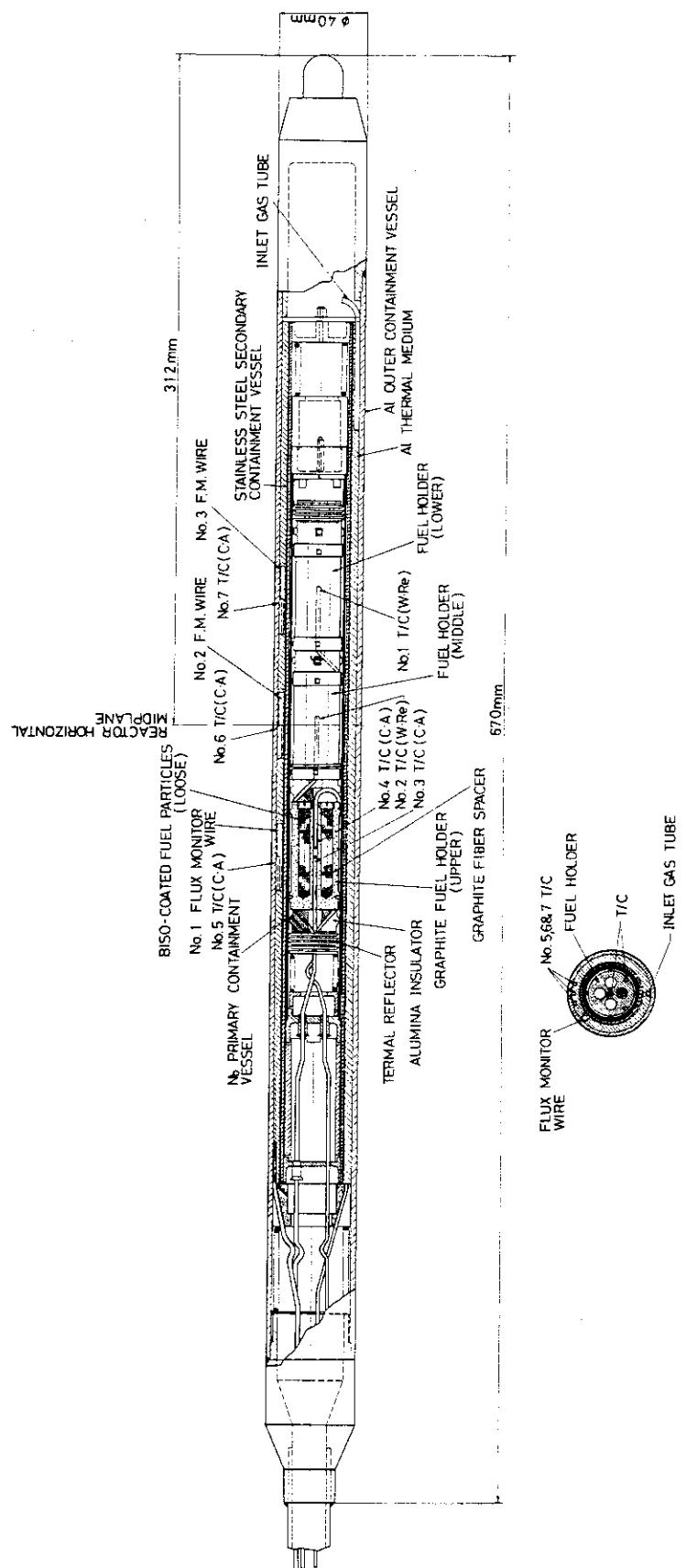


Fig. 2. 1 Schematic Drawing of VOF-4H Capsule

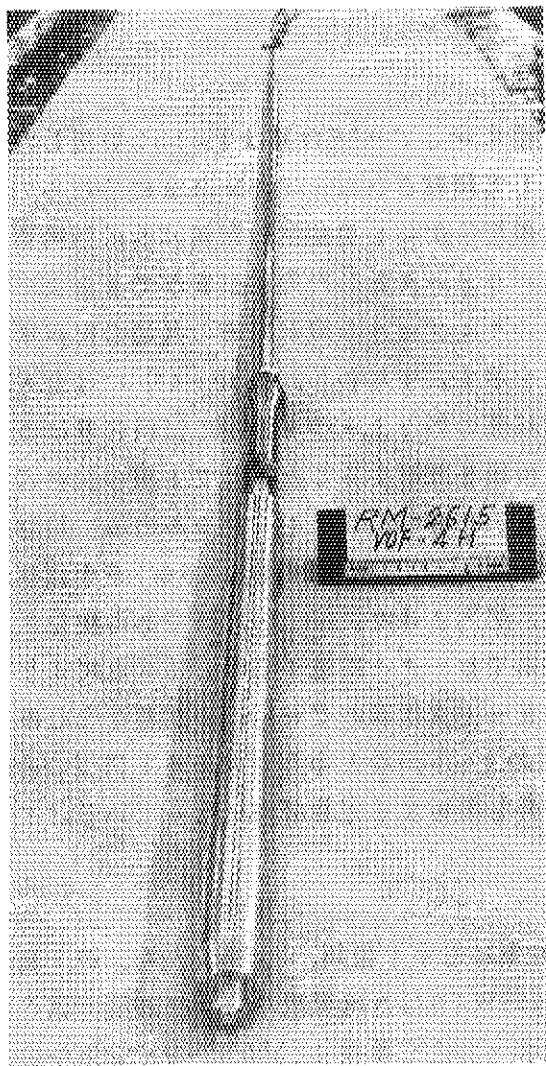


Fig. 2.2 Instrumented VOF-4H Capsule

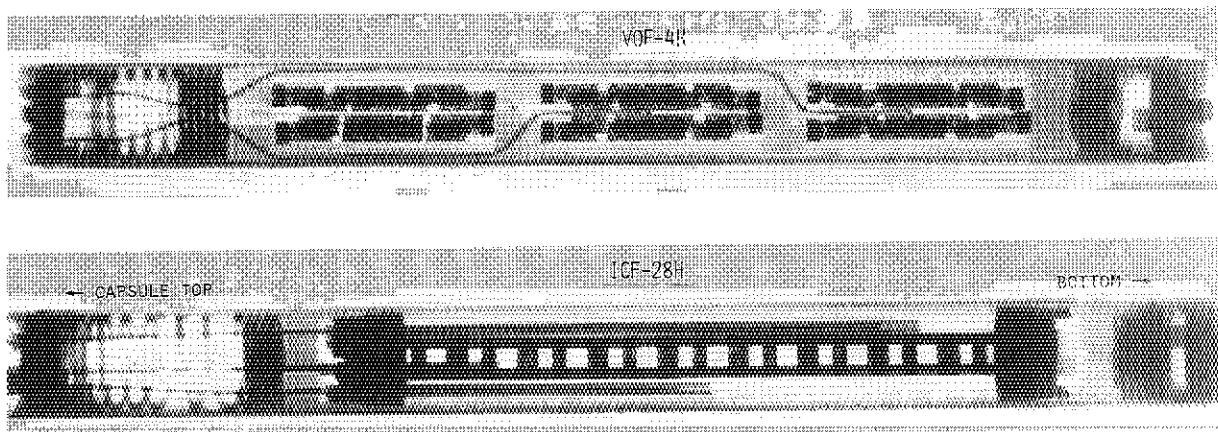


Fig. 2.3 X-ray Penetration Photographs of Fuel Sections in Capsules

## 2.2 照射試料

### 2.2.1 試料配置

$\text{ThO}_2$  又は  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  核に対して BISO 又は TRISO 被覆した粒子燃料 8 種類が、今回の 3 体のキャップセルの試料として照射された。Table 2.2 にそれらの試料の特性を一覧表にして示す。<酸化トリウム系被覆粒子燃料を黒鉛材の試料容器に無拘束 (loose) 状態で充填し、中性子照射量と照射温度とをパラメータとした照射試験ができるようにキャップセル内試料部に配置する>これが今回の 3 体のキャップセルの照射目的の共通の配置構成である。Fig. 2.4 に各々のキャップセルの試料の配置を示す。すなわち、VOF-4H には全 8 種類の被覆粒子燃料のうちの 4 種類をキャップセル内試料部の各々上・中・下段の試料容器に並行に 4 種類一組として充填した。ICF-28H では全 8 種類を照射することにして 1 個の試料容器に 1 種類を充填し、キャップセル試料部全域に配置した。ただし、このキャップセルのみ、照射試料の他にヒーター用として  $\text{UO}_2$ -TRISO 粒子 (バッチ No. 77MC5, 濃縮度 19.8%) をやはり無拘束状態で黒鉛容器に充填して本来の試料容器の間に配列させた。fertile 燃料である酸化トリウムは照射してもそれ自体高い発熱を期待できないのでヒーター用粒子を用いることにより希望の温度 ( $1200^\circ\text{C}$ ) を確保する設計となった。78F-4A は別の照射目的の試料を含む多目的キャップセルであるが、試料部 (550 mm 長) のうちの上・下両端と中央附近に各 1 個づつ合計 3 個の黒鉛材試料容器を配し、6 種類の被覆粒子燃料を照射する配置構成になっている。

### 2.2.2 燃料核

燃料核は  $\text{ThO}_2$  が核直径を異にして 2 種類、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  が 1 種類の合計 3 種類である。 $\text{ThO}_2$  核のうちバッチ No. G137W1S は当研究室がゾルゲル法で試作したもので  $\text{ThO}_2$  ゾルをゲル化したあとアルコール脱水 -  $135^\circ\text{C}$  乾燥 -  $1300^\circ\text{C} \cdot 3\text{ h}$  空気中焼結により得た。<sup>1)</sup> 真球度が 1.12 以上で他の燃料核に比べると少し偏平である。もう 1 種類の  $\text{ThO}_2$  核 (バッチ No. GOTH1) と  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  核とはやはりゾルゲル法による G A 社の製品である。今回照射された被覆粒子の燃料核の仕様をまとめると次のようになる。

$\text{ThO}_2$  核 : 直径 455 ~ 544  $\mu\text{m}$ , 密度 97 ~ 99 % TD

$(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  核 : U/(Th+U) 6.3 wt %, 濃縮度 92.9 %, 直径 506  $\mu\text{m}$ ,  
密度 99.7 % TD

燃料核の特性の詳細は先の Table 2.2 に示したとおりである。また、Fig. 2.5 に燃料核の外観写真を示す。

### 2.2.3 被覆層

被覆型式は  $\text{ThO}_2$  核も  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  核も BISO を基本とした。従って照射試料である 8 種類の被覆粒子燃料のうち 6 種類は BISO 粒子であり、残りのうちの一つは  $\text{ThO}_2$ -BISO 型のバッファ層と最外 PyC 層 (OPyC) との間に  $2.0\text{ g/cm}^3$  以上で厚さ 5  $\mu\text{m}$  の  $\text{C}_3\text{H}_6$  ガスを原料とした PyC のシール層をおいた被覆粒子燃料 (バッチ No. 78 TH-2), もう一つは  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ -TRISO 粒子 (バッチ No. 78 TU-1) である。これらの照射試料としての被覆層の仕様を分類す

ると次のような。

BISO型：バッファ層（原料ガス  $C_2H_2$ による PyC）厚さ  $1.03 \sim 1.18 \mu m$ , 密度  $1.03 \sim 1.18 \mu m$ ,

最外層（原料ガス  $C_3H_6$ 又は  $C_2H_2$  による LTI PyC 厚さ  $70 \sim 80 \mu m$ ,  
密度  $1.86 \sim 1.95 g/cm^3$

TRISO型：バッファ層（原料ガス  $C_2H_2$ による PyC）厚さ  $60 \mu m$ , 密度  $1.17 g/cm^3$

第2層及び最外層（原料ガス  $C_3H_6$ による LTI PyC）厚さ  $30 \mu m$  及び  
 $45 \mu m$ , 密度  $\sim 1.94 g/cm^3$

第3層（原料ガス  $CH_3SiCl_3$ による SiC）厚さ  $30 \mu m$ , 密度  $3.20 g/cm^3$

バッファ層はいずれも  $C_2H_2$ ガス + Ar(希釈用)による  $1200 \sim 1250^\circ C$  (加熱炉温度)での被覆であり、最外層は一般的には  $C_3H_6$ ガスを原料とした  $1200 \sim 1300^\circ C$ における LTI PyC 形成による被覆である。今回の被覆粒子もこの条件でつくられたが、2種類についてのみ、OPyC 層も  $C_2H_2 + 62\% H_2 \cdot Ar$ ガスを原料として  $1140^\circ C$ において LTI PyC 層を形成させた。<sup>2)</sup>

LTI PyCの被覆速度は、たとえばバッチNo.78TH-3が  $5.2 \mu m/min$ であり、以下78TH-5： $4.3 \mu m/min$ , 78TU-3： $4.7 \mu m/min$ , 78TU-4： $3.5 \mu m/min$ となっている。

シール層に関しては通常、 $CH_4$ 分解HTI(High Temperature Isotropic) PyC層をほどこす際に燃料核+バッファ層の粒子が約  $2000^\circ C$ 程度の高温にさらされて炭化されたり、重金属汚染が外部の層まで広がるのを防ぐために低温(約  $1500^\circ C$ )であらかじめ被覆することが目的である。しかし、今回のシール層付BISO被覆粒子は本来の目的に直接関わりなく、種々の被覆型式の試料の一つとして試験的に加えて照射挙動を観察することになった。

以上、被覆層の特性の詳細はTable 2.2に示されている。また被覆粒子の代表的ないくつかの外観写真を燃料核と対応させてFig. 2.5に示した。

Table 2.2 Characterization of Coated Particles for VOF-4H,  
ICF-28H and 78F-4A Capsules

Properties		For Specimen								
Coated Particle	Batch No.	78TH-1	78TH-2	78TH-3	78TH-4	78TH-5	78TH-6	78TU-2	78TU-3	78TU-4
Type of Material		$\text{ThO}_2$	$\text{ThO}_2$	$\text{ThO}_2$	$(\text{Th}, \text{U})_02$					
Batch No.		GOTH-1								
Composition	Thorium (wt%)	100	100	100	100	100	100	93.7	93.7	93.7
Uranium (wt%)	—	—	—	—	—	—	6.3	6.3	6.3	6.3
U-235 Enrichment (%)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Kernel Diameter ( $\mu\text{m}$ )	455 $\pm$ 10	455 $\pm$ 10	455 $\pm$ 10	544 $\pm$ 32	506 $\pm$ 46	506 $\pm$ 46	506 $\pm$ 46	92.9	92.9	92.9
Kernel Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	9.91	9.91	9.91	9.74	10.03	10.03	10.03	10.03	10.03	10.03
Type	BISO	BISO with Seal Layer	BISO	BISO	TRISO	TRISO	TRISO	BISO	BISO	TRISO
Buffer Layer Material	Pyc (C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> )									
Thickness ( $\mu\text{m}$ )	62.2 $\pm$ 5.6	62.2 $\pm$ 4.4	49.0 $\pm$ 4.6	57 $\pm$ 4	59.7 $\pm$ 5.1	59.9 $\pm$ 4.9	57.2 $\pm$ 4.1	55.5 $\pm$ 4.7	57.6 $\pm$ 6.7	57.6 $\pm$ 6.7
Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.18	1.18	1.058	1.135	1.17	1.17	1.029	1.057	1.057	1.057
Sealing Layer Material	—	PyC(C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )	—	—	—	—	—	—	—	—
Thickness ( $\mu\text{m}$ )	—	5.1 $\pm$ 0.4	—	—	—	—	—	—	—	—
Inner Dense Layer Material	—	—	—	—	—	PyC(C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )	—	—	—	—
Thickness ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—	—	30.3 $\pm$ 2.1	—	—	—	—
SIC Layer Density	( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	—	—	—	—	1.932	—	—	—	PyC(C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )
Thickness ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—	—	—	—	—	—	30.9 $\pm$ 2.1
Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1.835
Outer Dense Layer Material	Py(C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> )									
Thickness ( $\mu\text{m}$ )	81.4 $\pm$ 5.1	75.0 $\pm$ 3.0	78.4 $\pm$ 3.3	99 $\pm$ 3	44.6 $\pm$ 6	75.8 $\pm$ 3.9	70.8 $\pm$ 3.9	74.4 $\pm$ 3.9	74.4 $\pm$ 3.9	74.4 $\pm$ 3.9
Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	1.90	1.92	1.891	1.858	1.94	1.95	1.917	1.934	1.934	1.934
Coated Particle Diameter ( $\mu\text{m}$ )	742.2	739.6	709.8	656	833.0	777.6	762.0	765.8	765.8	765.8
CPF Total Weight (g)	—	—	—	4.808	4.503	—	—	—	—	—
Th <sub>2</sub> O or (Th,U) <sub>02</sub> Kernel Total Weight (g)	—	—	—	3.31	3.15	—	—	—	—	—
Th Total Weight (g)	—	—	—	2.91	2.77	—	—	—	—	—
U Total Weight (g)	—	—	—	—	—	—	—	3.00	2.72	—
U-235 Total Weight (g)	—	—	—	—	—	—	—	0.20	0.19	—
CPF Weight per Fuel Holder	—	—	—	1.660	1.502	—	—	1.680	1.680	—
Upper Holder (g)	—	—	—	1.587	1.500	—	—	1.681	1.681	—
Middle Holder (g)	—	—	—	1.601	1.501	—	—	1.680	1.680	—
Lower Holder (g)	—	—	—	—	—	—	—	0.19	0.19	—
Fuel Holder No.	S - 8	S - 6	S - 4	S - 2	S - 7	S - 5	S - 3	S - 1	S - 1	H-1 to H-9
CPF Total Weight (g)	791.6	758.1	855.2	745.6	824.8	827.6	866.7	884.5	884.5	5365.3
Kernel Total Weight (mg)	500	494	584	522	493	574	624	630	630	3643.3
Th Total Weight (mg)	439	434	513	459	407	474	515	520	520	—
U Total Weight (mg)	—	—	—	—	27	32	34	35	35	3209.7
U-235 Total Weight (mg)	—	—	—	—	—	—	0.126	0.311	0.311	—
CPF Total Weight (g)	—	1.272	1.333	1.281	4.015	8.614	8.872	—	—	635.5
Kernel Total Weight (g)	—	0.816	0.965	0.759	2.415	5.973	6.399	—	—	—
Th Total Weight (g)	—	0.718	0.849	0.668	2.004	4.957	5.311	—	—	—
U Total Weight (g)	—	—	—	—	0.135	0.335	0.357	—	—	—
U-235 Total Weight (g)	—	—	—	—	0.126	0.311	0.332	—	—	—
CPF Weight per Fuel Holder	No. 1 Holder (g)	—	—	1.281	1.355	2.844	2.959	—	—	—
4 Holder (g)	—	1.272	—	—	1.351	2.891	2.954	—	—	—
13 Holder (g)	—	—	1.333	—	1.369	2.879	2.959	—	—	—

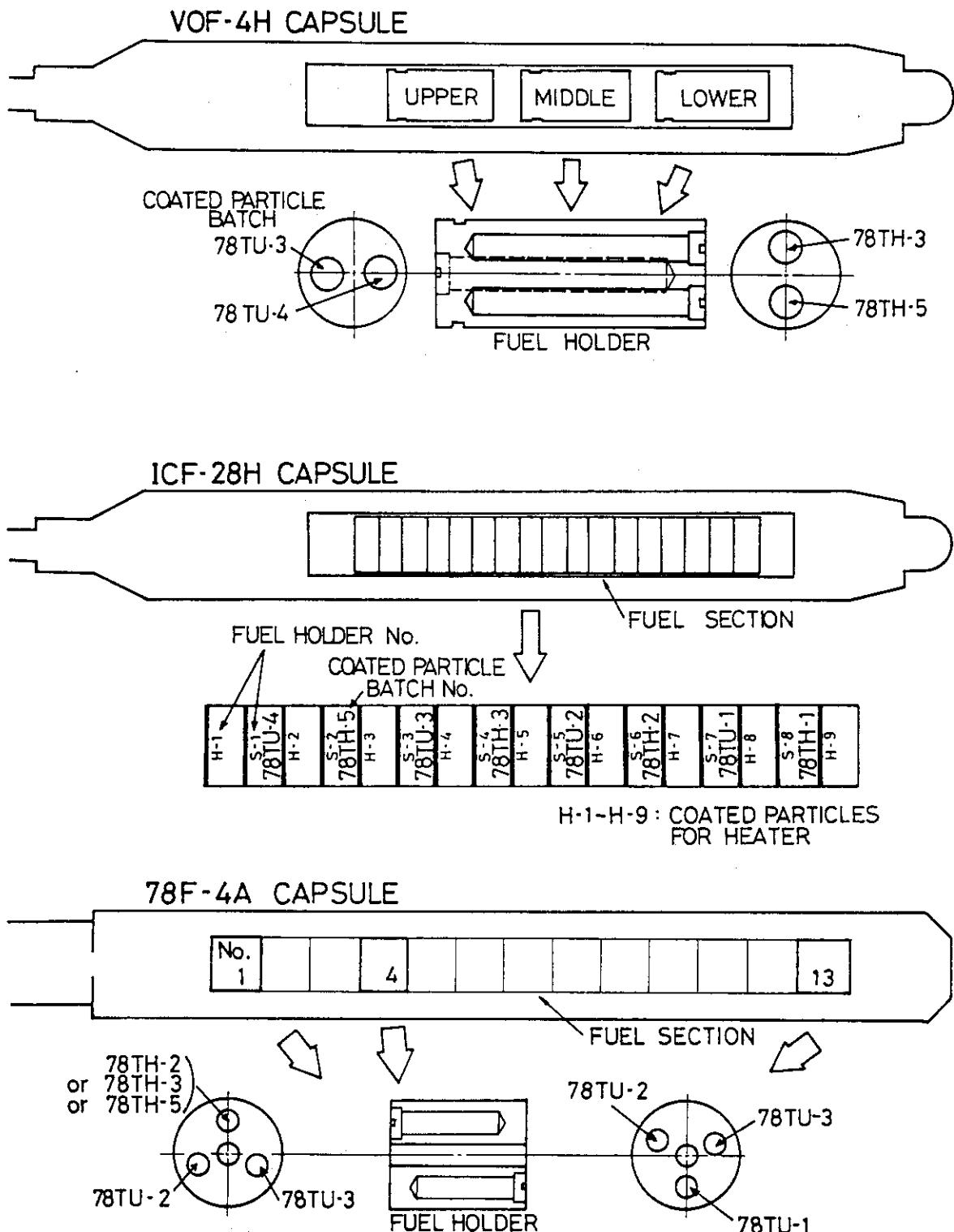


Fig. 2.4 Types of Coated Particles and their Positions in Capsules

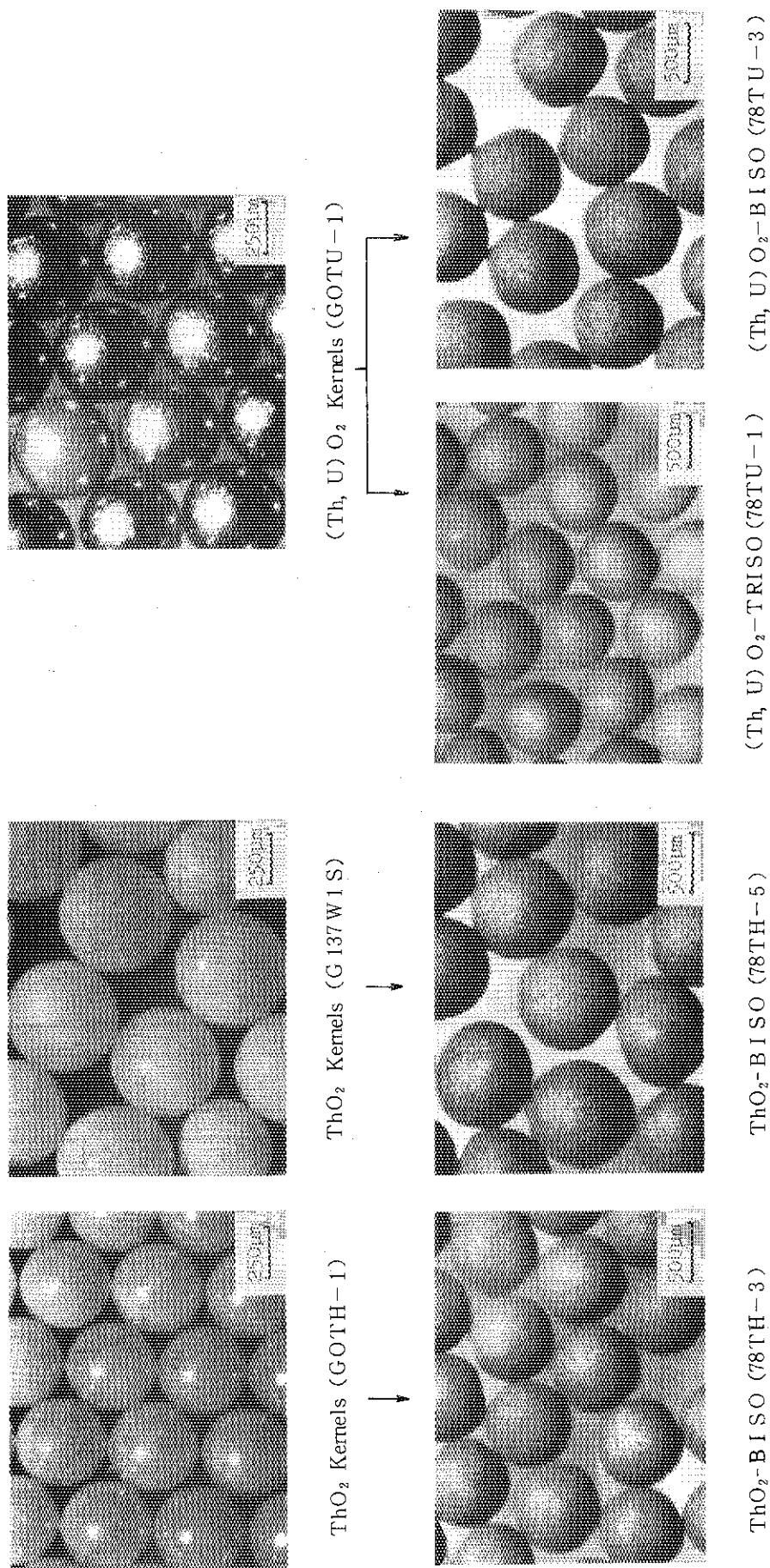


Fig. 2.5 Typical Aspects of Kernels and Coated Particle Fuels for Irradiation Specimen

### 3. 照射条件

#### 3.1 照射履歴

VOF-4HキャップセルはJRR-2のVT-10照射孔で2サイクル照射を実施。ICF-28Hは同JRR-2のインコア6D照射孔で4サイクルの照射を実施した。一方、78F-4AキャップセルはJMT-RのK-10燃料領域照射孔で4サイクルの照射を行った。照射履歴をTable 3.1に示す。

これらのキャップセルのうち、JRR-2における2体のキャップセルは順調に照射を完了したが、ICF-28Hについては第1と第2照射サイクルにそれぞれ臨時の炉運転停止を生じ、予定の照射時間よりも約34時間（全体の3%分）だけ少なくなった。

JMT-R照射の78F-4Aは第1照射サイクルの後半に試料部中段のNo.2TC（温度制御用熱電対）が故障し、以後、ダンプ運転（キャップセル内の真空雰囲気のスペースに0.4atmのHeガスを充填し、キャップセル温度を下げた状態で運転する方式）に切替えて照射をつづけた。試料の燃焼度はJRR-2照射キャップセルよりも数倍高い量を目標とし、これについてはほぼ達成した。

Table 3.1 Irradiation History of VOF-4H, ICF-28H and  
78F-4A Capsules

キャプセル 名 称	照射孔	照 射 サイクル	照射期間		定格出力時間 ( h r )	
			開始	終了		合 計
V O F - 4 H ( JRR-2 )	VT-10	R2-54-02	1979. 6. 4	6. 15	265.5	(10MW)
		R2-54-03	6. 25	7. 6	265.5	531.0
I C F - 2 8 H ( JRR-2 )	6 D	R2-54-11	1980. 2. 18	2. 29	263.5	
		R2-54-12	3. 10	3. 21	233.8	
		R2-54-13	3. 31	4. 11	265.5	(10MW)
		R2-55-01	4. 21	5. 2	265.5	1028.3
7 8 F - 4 A ( JMTR )	K-10	53	1981. 2. 28	3. 24	450.1	
		54	5. 9	6. 3	520.5	
		55	9. 24	10. 19	519.3	(50MW)
		56	11. 16	12. 10	457.9	1947.8

### 3.2 照射温度

照射中の試料部の温度はキャップセル計装の熱電対によって照射期間をとおして連続的に計測記録された。3体のキャップセルの照射中の温度経過をチャートにしてFig. 3.1～3.3に示す。JRR-2照射の2体のキャップセルは熱設計による目標どおりの最高温度1200°Cで順調な照射が行われた。しかしJMT-Rにおける78F-4Aキャップセルは先にも述べたとおり、照射中に温度制御用熱電対(No.2TC)の故障で当初の照射温度(最高1300°C)が達成できず、全4サイクル照射(約82日間)のうちの最初の10日間以降1000°C以下の状態で照射を続行・完了した。なお、各温度チャート上では各照射サイクル間に原子炉運転停止期間(各々1カ月～3カ月間)を省略してある。

Fig. 3.4と3.5には照射中の試料部全長(軸方向)の最高温度の温度分布を示した。個々の試料の温度はこの分布の内挿・外挿から求められる。ただし、ここに記録された温度自体は熱電対の指示値であって、照射試料の無拘束充填被覆粒子の温度は、それよりも高いものと考えられる。しかしキャップセル設計における発熱温度計算によれば、今回のキャップセルの試料部熱電対の指示温度よりも被覆粒子を充填した位置の温度の方が、いずれのものについても+30°Cを越えない程度である。

照射温度は、時間に対する温度経過のチャートにみられるように照射サイクルを重ねる毎に少しづつ降下している。VOF-4Hキャップセルは比較的短期間の2サイクル照射であるため、照射中の温度制御で目標温度を維持したが、ICF-28Hと78F-4Aは結果的には共に初期と最終サイクルとの間で約50～80°Cの温度降下を生じている。照射温度の制御方法は、VOF-4Hが原子炉の炉内装荷位置(垂直照射孔の上下方向)の昇降調節によって行い、ICF-28Hはキャップセル内のガス組成の2回にわたる変換(照射前の1atmの100%Heを100%Neへ入替し、更に45%He+Arへ入替)によった。78F-4Aは前述のとおりダンプ運転の措置がとられている。

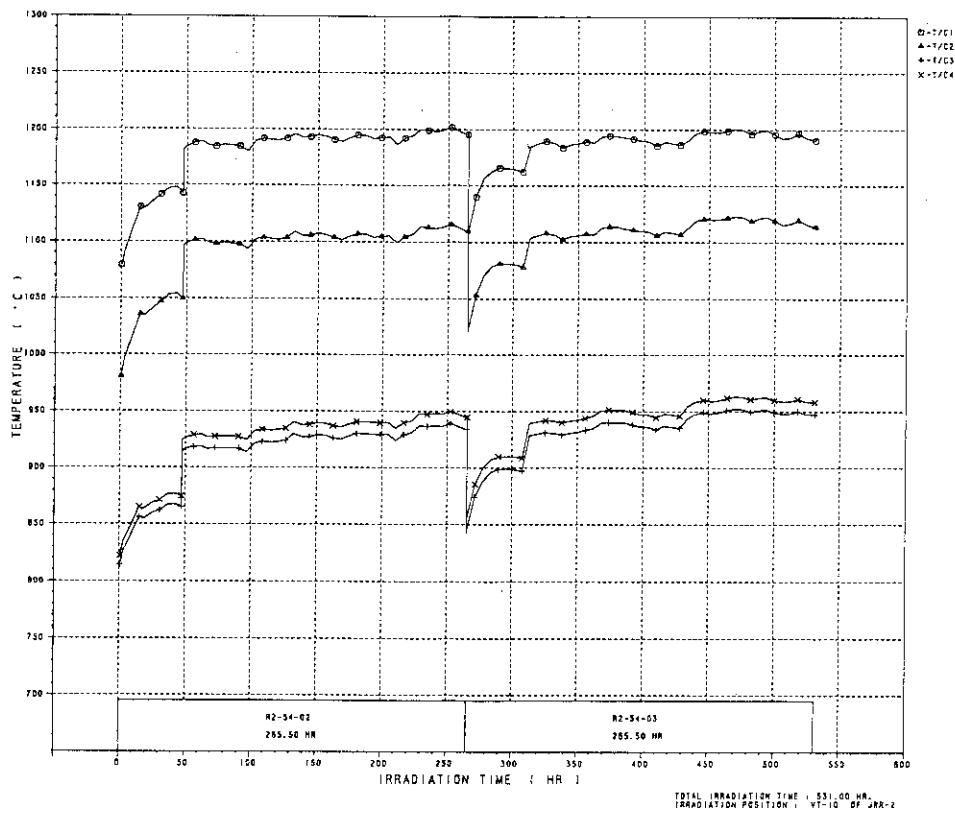


Fig. 3.1 Time-Temperature History of VOF-4H Capsule

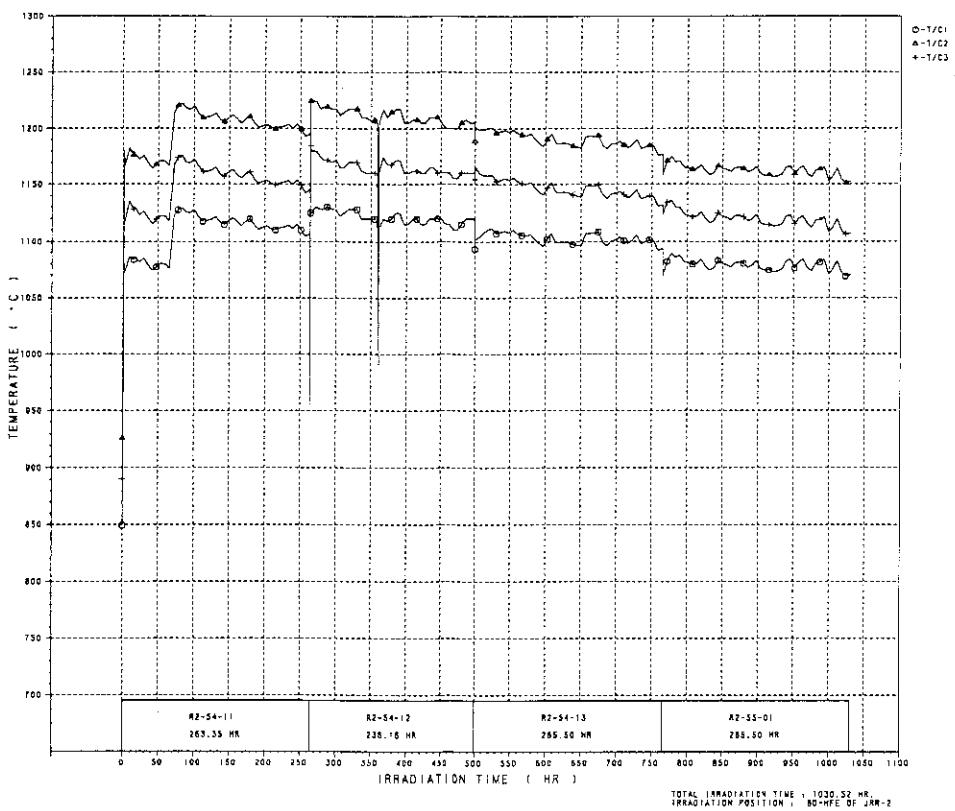


Fig. 3.2 Time-Temperature History of ICF-28H Capsule

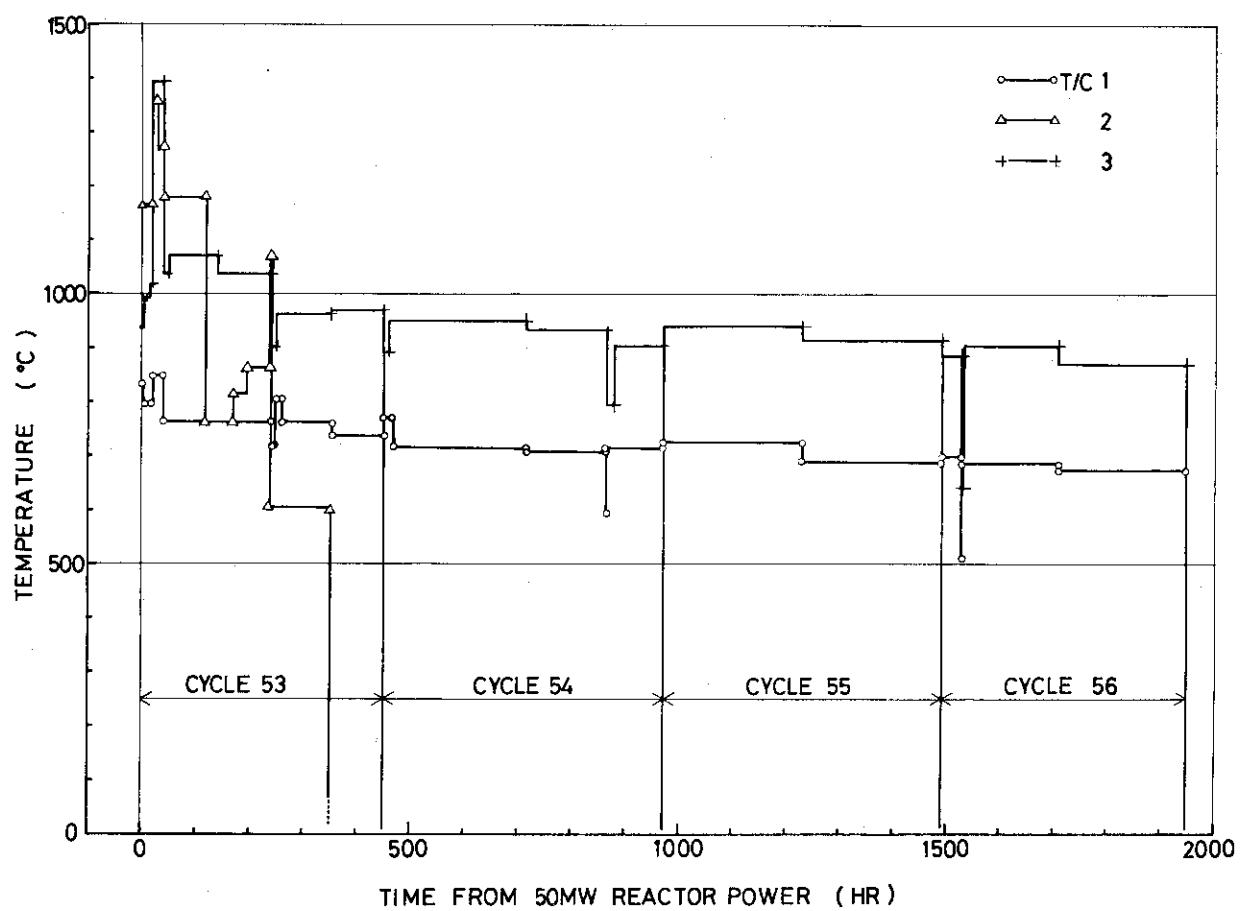


Fig. 3. 3 Time-Temperature History of 78F-4A Capsule

### 3.3 中性子照射量

中性子照射量はキャップセル試料部の外周に数個づつ内装したフルエンス・モニタを照射後に回収し、 $\gamma$ 線検出器による放射能測定から求めた。モニタは熱中性子測定に $^{59}\text{Co}$ (n,  $\gamma$ ) $^{60}\text{Co}$ 反応用ワイヤを、高速中性子測定用の方はJRR-2キャップセルでは $^{58}\text{Ni}$ (n, p) $^{58}\text{Co}$ 反応用ワイヤ、JMT-Rキャップセルでは $^{54}\text{Fe}$ (n, p) $^{54}\text{Mn}$ 反応用ワイヤを用いた。

照射量の測定結果はTable 3.2およびFig. 3.4～3.5に示した。図表から各試料の位置に対応した照射量と照射温度とを比較してみることができる。熱中性子照射量はVOF-4Hの試料部で $1.1 \sim 1.5 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ 、ICF-28Hで $3.4 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ 、78F-4Aで $0.93 \sim 1.35 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ でその間に12倍の差がある。同様に高速中性子( $E > 0.18 \text{ MeV}$ )で $1 \sim 2 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ のVOF-4Hに対してICF-28と78F-4Aは各々 $1.5 \sim 1.6 \times 10^{20}$ ,  $1.61 \sim 2.22 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ で、約110倍の差となっている。なお、JRR-2の照射孔における高速中性子速( $\phi_F \text{n/cm}^2$ )は $\phi_{F(E>0.18 \text{ MeV})} \simeq 2\phi_{F(E>1.0 \text{ MeV})}$ 、JMT-RのAl反射体照射領域にあるK-10孔は $\phi_{F(E>0.18 \text{ MeV})} = 2.44 \phi_{F(E>1.0 \text{ MeV})}$ の割合になっている。

Table 3.2には試料の燃焼率も示した。この燃焼率は照射後の被覆粒子の $\gamma$ 線測定を行い、FP生成量から求めた。fissile粒子である(Th, U)O<sub>2</sub>核-U: 6.3 wt%、E: 92.9%の最高燃焼率はVOF-4Hで0.32%FIMA、ICF-28Hでは0.48%FIMA、78F-4Aでは2.42%FIMAである。燃焼率測定については照射後試験の4.5節で詳述する。

Table 3.2 Irradiation Conditions of VOF-4H, ICF-28H and 78F-4A Capsules

Coated Particle Batch		78TH-1	78TH-2	Th0 <sub>2</sub>	78TH-3	78TH-5	78TU-1	78TU-2	78TU-3	78TU-4
Composition of Kernel	Coating Type	BISO	BISO with Seal Layer	BISO	BISO	TRISO	BISO	(Th, U)O <sub>2</sub>	U:93.7%, E:92.9% BISO	
Max. Neutron Fluence Thermal (n/cm <sup>2</sup> )	—	—	—	1.1 - 1.5 x 10 <sup>20</sup>	—	—	—	—	1.1 - 1.5 x 10 <sup>20</sup>	
Fast (E>0.18MeV) (")	—	—	—	1.0 - 2.2 x 10 <sup>19</sup>	—	—	—	—	1.0 - 2.2 x 10 <sup>19</sup>	
" (E)<1.0 MeV) (" )	—	—	—	0.48 - 1.1 x 10 <sup>19</sup>	—	—	—	—	0.48 - 1.1 x 10 <sup>19</sup>	
Burnup (% FIMA)	—	—	—	—	—	—	—	—	0.24 - 0.32	
Max. Temperature (°C)	—	—	936 , 1122 , 1202	—	—	—	—	—	936 , 1122 , 1202	
Max. Neutron Fluence Thermal (n/cm <sup>2</sup> )	3.3 x 10 <sup>20</sup>	3.4 x 10 <sup>20</sup>	3.4 x 10 <sup>20</sup>	3.3 x 10 <sup>20</sup>	3.4 x 10 <sup>20</sup>	3.3 x 10 <sup>20</sup>	3.4 x 10 <sup>20</sup>	3.4 x 10 <sup>20</sup>	3.3 x 10 <sup>20</sup>	
Fast (E>0.18MeV) (")	1.5 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	1.5 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	1.6 x 10 <sup>20</sup>	
" (E)<1.0 MeV) (" )	7.3 x 10 <sup>19</sup>	7.8 x 10 <sup>19</sup>	8.1 x 10 <sup>19</sup>	8.2 x 10 <sup>19</sup>	7.7 x 10 <sup>19</sup>	8.0 x 10 <sup>19</sup>	8.2 x 10 <sup>19</sup>	8.0 x 10 <sup>19</sup>	7.9 x 10 <sup>19</sup>	
Burnup (% FIMA)	—	—	—	—	—	0.47	0.45	0.48	0.47	
Max. Temperature (°C)	1150	1210	1225	1170	1185	1225	1210	1210	1130	
Max. Neutron Fluence Thermal(E<0.688eVn/cm <sup>2</sup> )	—	1.35x10 <sup>21</sup>	1.03x10 <sup>21</sup>	0.93x10 <sup>21</sup>	0.93x10 <sup>21</sup>	0.93x10 <sup>21</sup>	0.93 - 1.35 x 10 <sup>21</sup>	0.93 - 1.35 x 10 <sup>21</sup>	—	
Fast (E>0.18MeV) (")	—	2.22x10 <sup>21</sup>	1.78x10 <sup>21</sup>	1.61x10 <sup>21</sup>	1.61x10 <sup>21</sup>	1.61x10 <sup>21</sup>	1.61 - 2.22 x 10 <sup>21</sup>	1.61 - 2.22 x 10 <sup>21</sup>	—	
" (E)<1.0 MeV) (" )	—	0.91x10 <sup>21</sup>	0.73x10 <sup>21</sup>	0.66x10 <sup>21</sup>	0.66x10 <sup>21</sup>	0.66x10 <sup>21</sup>	0.66 - 0.91 x 10 <sup>21</sup>	0.66 - 0.91 x 10 <sup>21</sup>	—	
Burnup (% FIMA)	—	0.25	—	0.11	2.42	—	—	—	—	
Max. Temperature (°C)	—	1000	970	770	1000	1000	1000	1000	—	

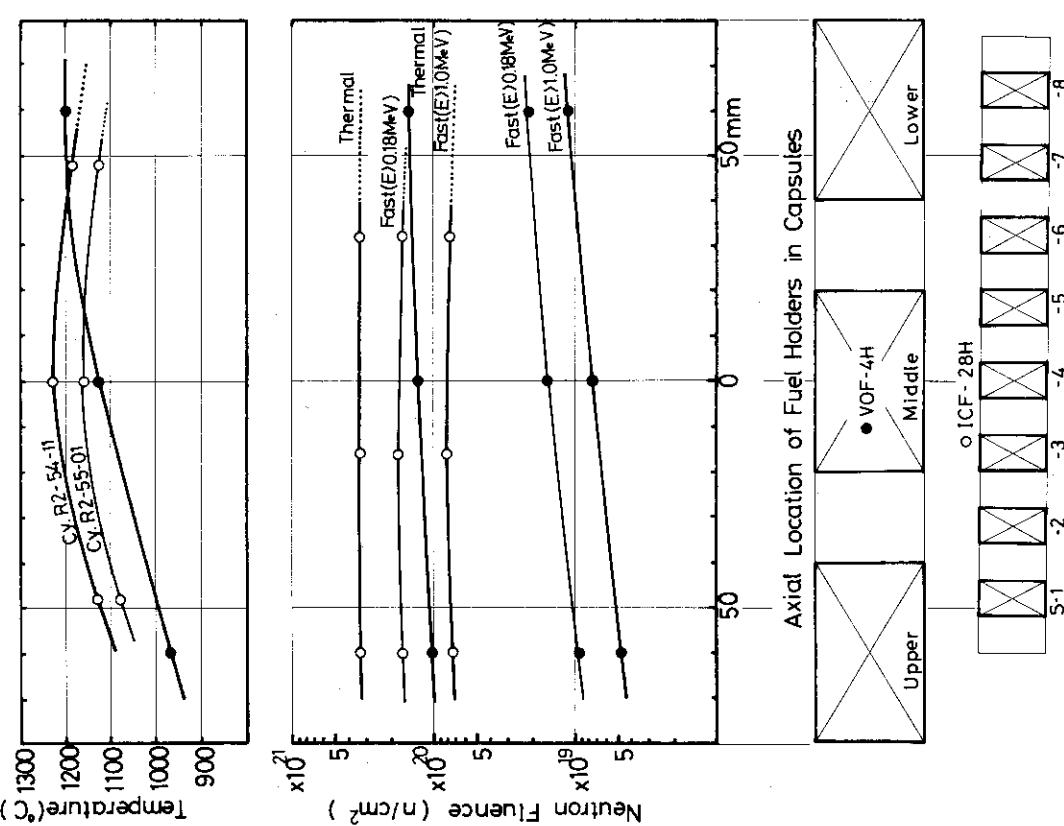


Fig. 3.4 Irradiation Conditions of VOF-4H and ICF-28H Capsules: Neutron Fluence and Temperature vs. Fuel Location

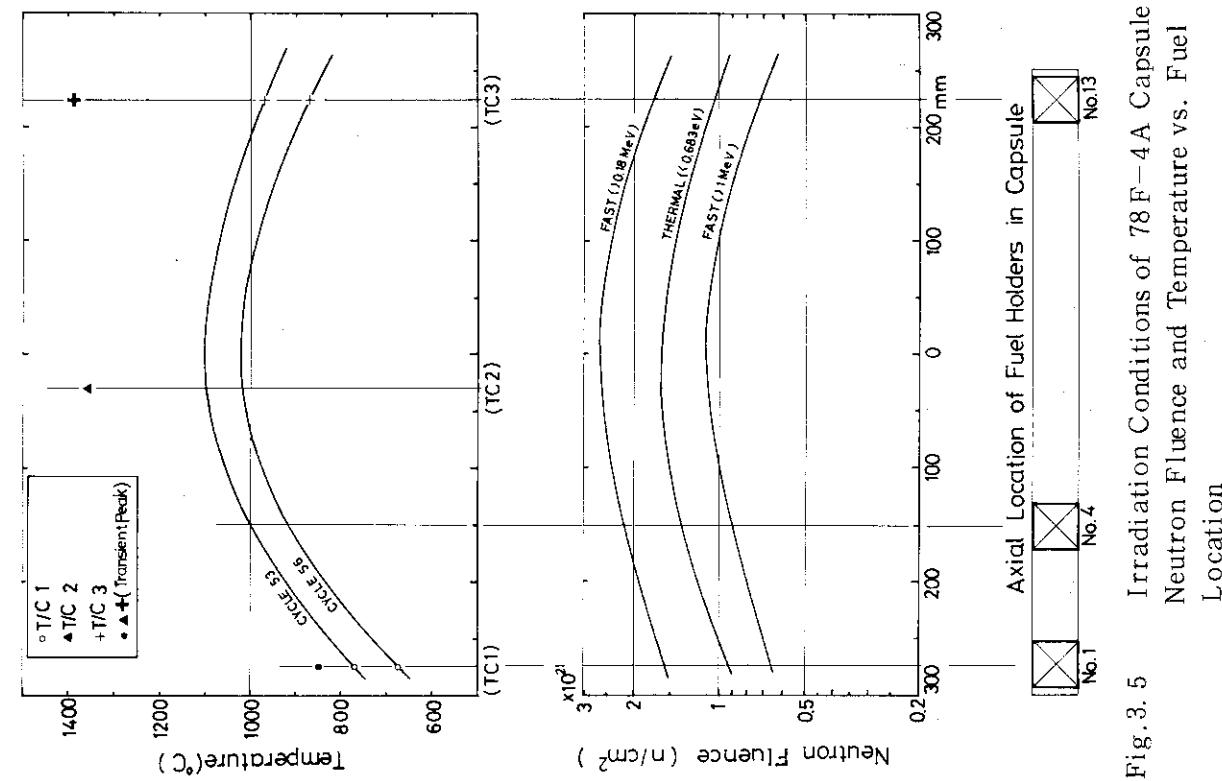


Fig. 3.5 Irradiation Conditions of 78F-4A Capsule: Neutron Fluence and Temperature vs. Fuel Location

## 4. 照 射 後 試 験

### 4.1 概 要

照射を完了したキャップセルは、3カ月以上の冷却期間をおいた後に東海研究所（原研）ホットラボにおいて照射後試験が実施された。

照射後試験は、あらかじめキャップセルの外観観察とX線ラジオグラフによるキャップセル内部の状態を観察した後、まずレジノイド材円板切断機でキャップセル外筒と内筒の各々上下端部を切り落し試料部を取り出すところから始まる。この解体の工程の途中でフルエンス・モニタや放出されたFPを測定するためのキャップセル構造材（黒鉛スリーブ等）を回収する。更に試料部の試料容器を回収し、無拘束被覆粒子燃料（試料）を取り出して照射後試験の目的に従って種類別・必要量毎に区分する。

解体はいづれのキャップセルについても順調にすすみ、本体の変形や変色・破損・融着等はみられず、また何らトラブルもなく試料を回収した。

無拘束で照射した今回の被覆粒子の照射条件のうち、中性子照射量と照射温度の最高域をキャップセル別に示すとFig. 4.1 のようになる。被覆粒子の照射後試験の結果は、この範囲内におけるものである。

キャップセル解体工程につづく試験の内容とその結果の概要はTable 4.1 に示した。外観観察、X線ラジオグラフィ、最外被覆層（OPyC）の光学的配向異方性（OPTAF）測定などからはいづれの試料についても特に異状は認められていない。照射挙動と健全性に関して照射前後で何らかの変化があったものはTable 4.1 に●印で示してある。またTable 4.2には、照射後試験の目的に従って用いた個々の試料を照射条件と対比させて示した。

これらの試験の他に、前述のフルエンス・モニタによる中性子照射量の測定を、ICF-28Hキャップセルについては試料容器（黒鉛材料）のγ線測定により被覆粒子燃料の外へ放出されたFPを観測した。被覆粒子の酸浸出法による破損率測定は、酸化トリウムの場合極めて腐食性の強い弗硝酸をふつとう状態でホットラボの鉛セル内で用いなくてはならぬために実施されず、今後の検討課題となった。以下に今回の照射後試験の結果を順次述べる。

Table 4.1 Results of Post Irradiation Examination of Coated Particles for VOF-4H, ICF-28H and 78F - 4A Capsules

試験項目	Fertile	Fissile		内容
	ThO <sub>2</sub>	(Th, U)O <sub>2</sub>	BISO	
	TRISO	BISO		
外観観察	○	○	○	割れ、破損等認められず
X線ラジオグラフィ	○	○	●	バッファ層収縮割れあり、アメーバ効果等の異状なし
研磨断面観察	○	●	●	Fissile粒子の被覆層に少數の貫通破損、燃料核結晶粒変化
γ線分析 (燃焼率、FP測定)				Burnup Fertile Max. 0.25%FIMA Fissile Max. 2.42%FIMA
最外層(OPyC) (OPTAF (配向異方性測定))	○	○	○	OPTAF < 1.02
密度測定	●	●	●	2-10% 増加
破壊強度試験	●	●	●	照射後 BISO強度増加 TRISO強度減少

○変化なし、●変化あり

Table 4.2 Specimens used for Post Irradiation Examinations

キヤブセル名	試料ホルダ 位 置	中性子照射量 (n/cm <sup>2</sup> )		燃焼率 (%FIMA)	照射温度 (°C)	Fertile			Fissile
		Thermal	Fast (E > 0.18MeV)			78TH-1	78TH-2	78TH-3	
VOF - 4 H	上 段	1. 1x10 <sup>20</sup>	1. 0x10 <sup>19</sup>	0. 32*	963	●○	●○	●○	●○
	中 段	1. 3x10 <sup>20</sup>	1. 5x10 <sup>19</sup>		1122	●○	●○	●○	●○
	下 段	1. 5x10 <sup>20</sup>	2. 2x10 <sup>19</sup>		1202	●○	●○	●○	●○
ICF - 28H	上 部	3. 3x10 <sup>20</sup>	1. 5x10 <sup>20</sup>	0. 48*	1130	●○	●○	●○	●○
	中 部	3. 4x10 <sup>20</sup>	1. 6x10 <sup>20</sup>		1225	●○	●○	●○	●○
	下 部	3. 4x10 <sup>20</sup>	1. 6x10 <sup>20</sup>		1150	●○	●○	●○	●○
78F - 4 A	①上 部	0. 93x10 <sup>21</sup>	1. 61x10 <sup>21</sup>	2. 42*	770	●○	●○	●○	●○
	②中 部	1. 35x10 <sup>21</sup>	2. 22x10 <sup>21</sup>		1000	●○	●○	●○	●○
	③下 部	1. 03x10 <sup>21</sup>	1. 78x10 <sup>21</sup>		970	●	●	●	●

\* Fissile粒子

●:外観察, X線ラジオグラフ  
○:研磨断面観察, X線ラジオグラフ

○:研磨断面観察, X線ラジオグラフ

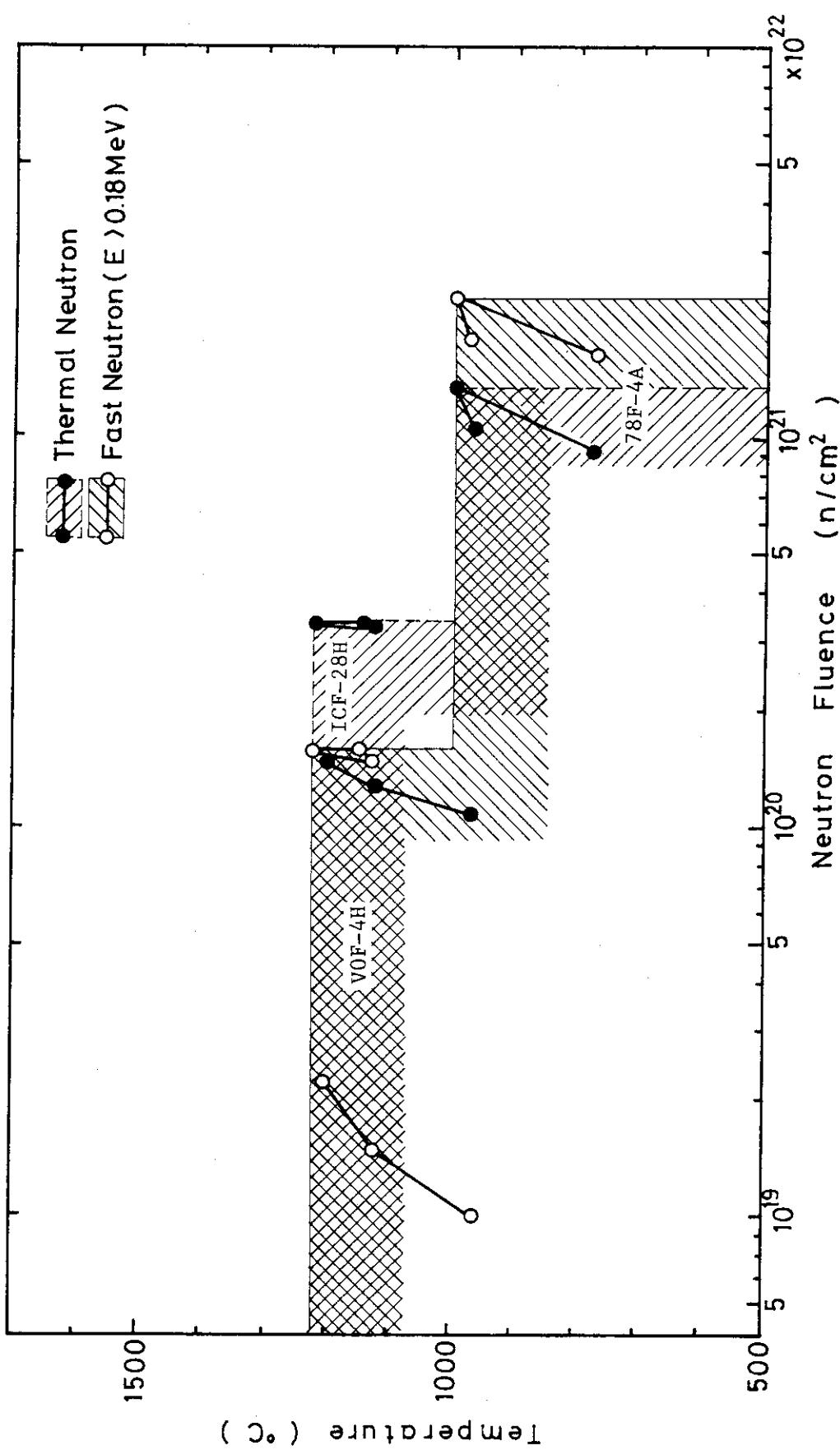


Fig. 4.1 Range of Neutron Fluence and Temperature for Capsule Irradiation Experiments

#### 4.2 外観観察

外観観察はホットラボ鉛セル内で照射済被覆粒子を小径の皿状容器に入れ、実体顕微鏡で一様に観察する方法をとっている。外観観察は照射試料容器内の個々の試料全量のうち50%（1000粒以上）～100%について実施した。その結果、Fig. 4.1 と Table 4.2 に示した定常時の最高照射条件の範囲内ではいづれの試料についても外観上の変化や異状（被覆層の割れ、破損等）は認められなかった。しかし後述の断面観察ではわずかな粒子破損がみられているので、外観観察のみから破損粒子がないとは結論できない。Fig. 4.2 に照射後試料の典型的な外観写真を示した。

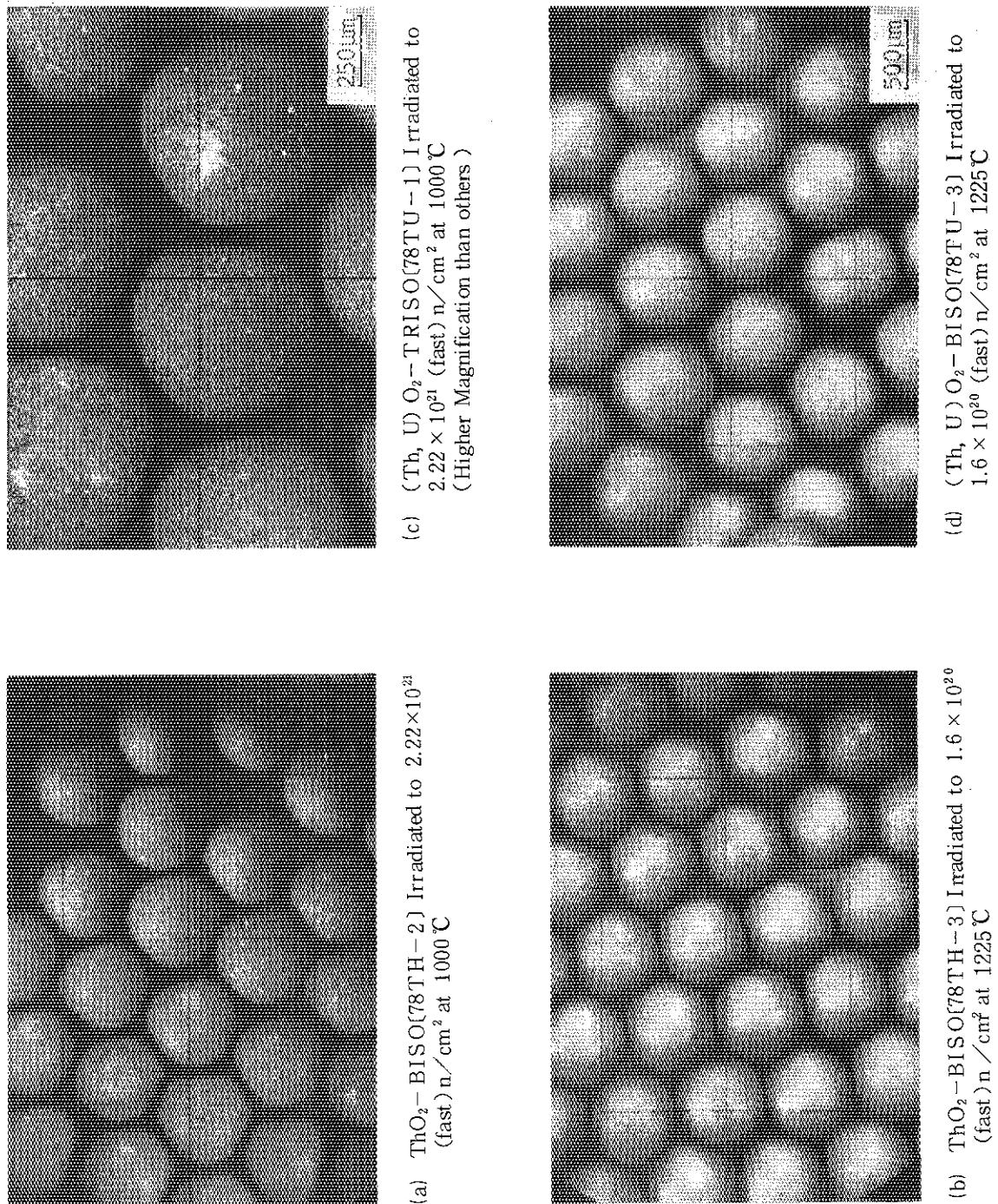


Fig. 4.2 Typical Aspects of Fertile and Fissile Particles by Visual Examination

#### 4.3 X線ラジオグラフィ

外観観察につづいてX線ラジオグラフィによる非破壊観察を行った。実施した試料はTable 4.2に示したとおりの粒子である。この試験の目的は燃料核のアーマー効果や被覆層の状態、破損検出、被覆粒子の照射による寸法変化や密度変化の観察測定などである。

VOF-4Hキャップセルの試料は、極くおだやかな条件での照射だったために、外観観察と同様にX線ラジオグラフからも燃料核・被覆層共に変化はみられず、しっかりした被覆粒子の状態が観察された。中性子照射量を更に増加させたICF-28Hキャップセルでも全体として良好な状態であった。しかし、粒子バッチ78 TU-1や78 TU-2などfissile粒子のバッファ層の収縮がX線ラジオグラフからPyC層とのギャップとなってわずかにみられた。それは更に78 F-4 Aキャップセルの照射後のX線ラジオグラフでかなり顕著なものとなっている。ところが同じfissile粒子の78 TU-3(BISO)のみ、同じ照射条件でも全く健全な状態であるのが興味深い。これはVOF-4H、ICF-28Hキャップセルの78 TU-3粒子についても同じ様相を示している。一方fertile粒子の $\text{ThO}_2$ 核-BISO試料(粒子バッチ78 TH-1~78 TH-5)は78 TH-2のごく小数の粒をのぞいて照射後のバッファ層もしっかりとしたままで、X線ラジオグラフから異状はみられない。

これらのX線ラジオグラフィの結果は次節の研磨断面観察の結果とともに考察を加えることにする。主な被覆粒子の照射後のX線ラジオグラフの様子をまとめてFig. 4.3に示した。

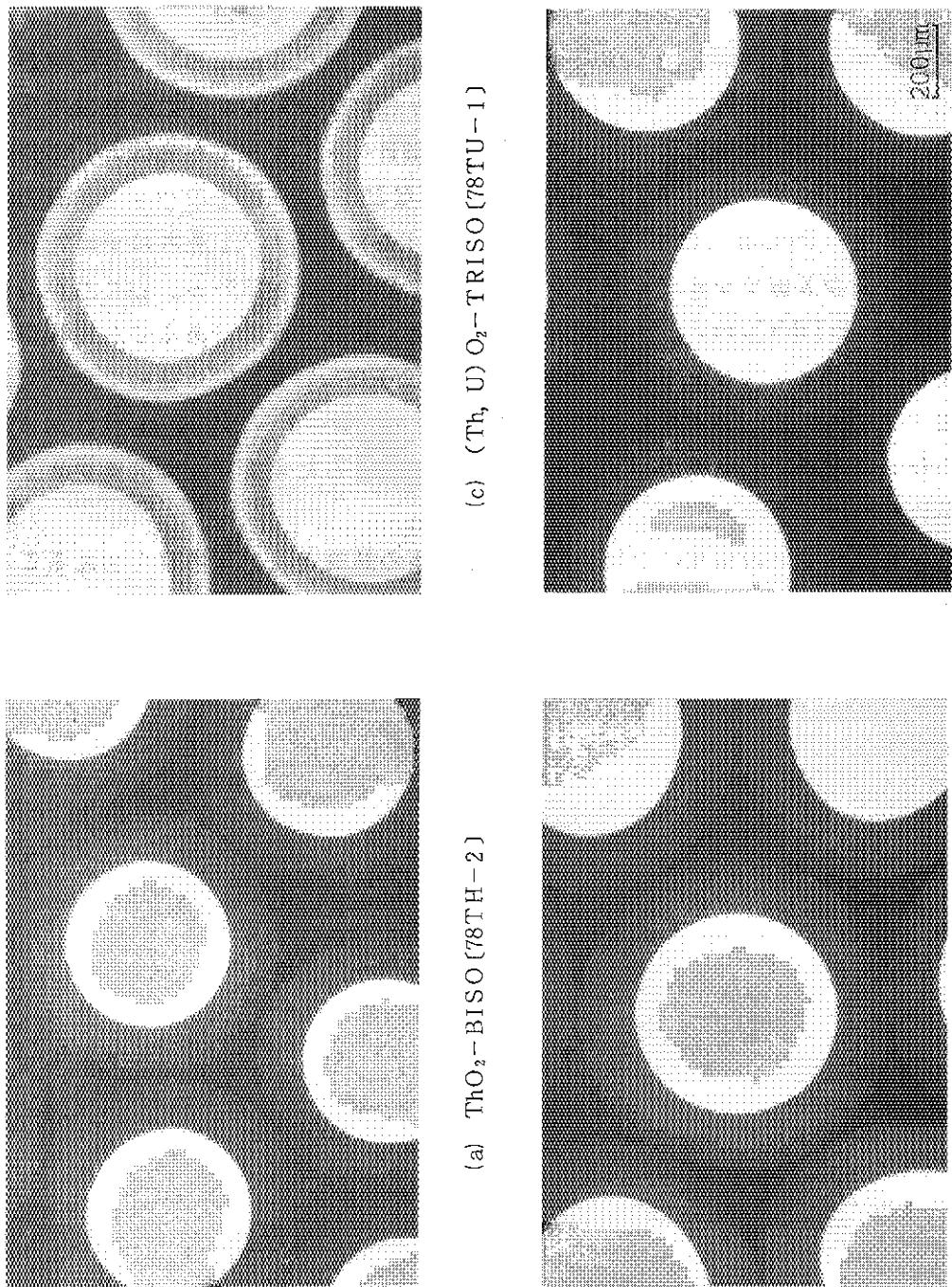


Fig. 4. 3  
X-ray Radiographs of Coated Particles Irradiated in 78F-4A Capsule.  
Irradiation Condition :(a), (c) and (d)  $2.22 \times 10^{21} \text{n}/\text{cm}^2 (\text{E} > 0.18 \text{MeV})$  at  
1000°C (b)  $1.61 \times 10^{21} \text{n}/\text{cm}^2 (\text{E} > 0.18 \text{MeV})$  at 770°C

#### 4.4 断面観察

研磨断面観察用として各々のキャプセルから照射条件の異なる粒子試料を約30粒づつサンプリングし、樹脂埋込、半球研磨して燃料核と被覆層の状態を調べた。一部の燃料核については、更にエッティングを行い、別に未照射試料を使って行った炉外加熱試験（1200°C - 25日均熱加熱）の結果と比較しながら結晶粒成長変化等を観察した。今回、研磨断面観察及びエッティングによる組織観察を実施した試料の分類と照射条件はTable 4.2に示したとおりである。

断面観察からは全般的に被覆層の重大な欠陥はみられず、バッファ層などの部分的な破損とエッティングによる観察からの燃料核の結晶粒成長が照射後の主な観点となっている。そのうち、特にfertile燃料のThO<sub>2</sub>核被覆粒子は照射後もしっかりした被覆層を堅持しており、燃料核の結晶粒成長も殆んどなく、照射前の状態とあまり変わっていない。一方、fissile粒子は被覆層に部分的な破損がみえはじめており、燃料核の結晶粒成長の傾向も現われている。しかし被覆粒子自体は断面観察からわずか1～2粒の貫通破損粒子がみつかったものの、全体として健全な状態であったと云える。

以下にfertileとfissile粒子について順次に詳述する。

##### (1) Fertile粒子 [ThO<sub>2</sub>核 - BISO粒子]

Fertile粒子の研磨断面観察の結果(写真)を照射前の粒子と比較してFig. 4.4と4.5に示す。照射前の被覆粒子の断面写真(Fig. 4.4(a))は粒子バッチ78 TH-3であるが、今回のfertile粒子はすべてBISO粒子なので、いづれのバッチの粒子もほとんど同じ様相を呈している。照射後の断面観察でもFig. 4.4(b), (c)の写真に見られるように照射前の状態とあまり変りがない。OPyC層の被覆時の原料ガスは一般的にはプロピレン(C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>)が用いられているが、78 TH-3(写真(b))のOPyC層はアセチレン(C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>)ガスが用いられた(第2章Table 2.2参照)。写真(c)の78 TH-5のOPyC層はC<sub>3</sub>H<sub>6</sub>ガスからの熱分解被覆である。照射条件の異なる他のfertile粒子の断面観察の結果を比較したが、OPyC被覆にC<sub>2</sub>H<sub>2</sub>を用いてもC<sub>3</sub>H<sub>6</sub>を用いても照射後の挙動に特に差異は認められなかった。

Fig. 4.5は照射温度が低かったものの高速中性子照射量が $2.22 \times 10^{21} n/cm^2$ (E>0.18 MeV)と最も高かった78 F-4 Aキャプセルの78 TH-2粒子の照射後の断面写真である。この粒子のOPyC層の被覆原料ガスはC<sub>3</sub>H<sub>6</sub>であるが、一方このBISO粒子には「2章 2.2.3節被覆層」で述べたような目的でバッファ層とOPyC層間に5 μm厚のシール層(C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>原料ガスによるLTIPyCで、密度2.0 g/cm<sup>3</sup>以上)がある特殊な試料である。この78 TH-2粒子の78 F-4 Aキャプセル照射のもののみに写真(a), (b)にみられるようなバッファ層の割れが観察された。これはFig. 4.3(a)のX線ラジオグラフすでに予想されていた。断面観察の結果から同じようなバッファ層の割れは20%以上の粒子にあった。ところが、照射量がこれよりも低いICF-28Hキャプセルの同バッチ粒子( $1.6 \times 10^{20} n/cm^2$ , E>0.18 MeV, 1225°C)には全くみられない。Fig. 4.5(a), (a')の断面写真から、照射によるバッファ層の収縮割れが内側から発生している様子がわかる。バッファ層の外周には薄いシール層が見える。これに対して、(b), (b')の断面写真のバッファ層の割れは外側から発生している。割れの部分を拡大した(b)の写真をみると薄いシール層が部分的に不明瞭(ポーラス)になっており、そこから割れが走っているようである。

バッファ層の厚さもこの割れの部分を境にして異なり、段ちがいになっている。他に同じような例がないので発生のメカニズムはわからないが興味深い様相である。シール層との何らかの影響も考えられる。

研磨断面観察の後、それらの一部を使って  $\text{ThO}_2$  核をエッチングし、組織観察を行った。 $\text{ThO}_2$  のエッチングは湿式法および乾式法の二つの方法を用いた。すなわち湿式法では、13M  $\text{HNO}_3$  と 0.1M  $\text{NaF}$  の 15 : 1 の混合液により 95°C で 5 ~ 10 分間エッチングした。放射能の強い試料（主に 78 F - 4 A キャップセルのもの）はホットラボの鉛セル内に表面処理装置として新設された Ar イオンのスパッタリングによる乾式法エッチングによった。

Fig. 4.6 と 4.7 に製造時のままの未照射粒子、未照射炉外加熱試験粒子（1200°C - 25 日）及び照射後粒子を比較したエッチングによる組織観察写真を示す。Fig. 4.6 は粒子バッチ 78 TH - 2 と 78 TH - 3 についての各条件における結果であるが、 $\text{ThO}_2$  核は同じ製造バッチのものである。写真(a)の製造時のままの結晶粒径（2 ~ 3  $\mu\text{m}$  以下）に対して写真(b)の未照射炉外加熱試験後も、また中性子照射量と照射温度の異なる試料写真(c) ~ (d) も共にほとんど変化はみられない。Fig. 4.7 は粒子バッチ 78 TH - 5 の場合である。その写真(b)未照射炉外加熱後の  $\text{ThO}_2$  核と写真(d)熱中性子  $0.93 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ 、770°C 照射の核とが他の結晶粒径と異なっている。写真(b)の  $\text{ThO}_2$  核は 1200°C - 25 日炉外均熱加熱によってわずかな結晶粒成長があったものと考えられた。しかし写真(d)は照射温度が低く結晶粒成長はなく、照射前から比較的大きい結晶粒径だったものと考えられる。すなわち、粒子バッチ 78 TH - 5 の  $\text{ThO}_2$  核は、1300°C - 3 h の焼結でバッチ製造されており、エッチングの組織観察すでに結晶粒径が 1 ~ 10  $\mu\text{m}$  の範囲でバラツキのあることを確認している。写真(e)は熱中性子  $1.5 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ 、1202°C 照射後の場合である。この例でも結晶粒径はかなり細かいまで、ほとんど変化なしと云える。

このように、今回の照射試験の条件における fertile 燃料は、バッファ層の収縮割れがみられる粒子があった他は全般的に変化なく、ほとんど健全な状態を保っていた。

## (2) fissile 粒子 [(Th, U)O<sub>2</sub>核 - BISO, TRISO 粒子]

同じ照射条件の fertile 粒子と比較して fissile 粒子が最も対照的な照射挙動を示した点は、被覆のうちのバッファ層の損傷であろう。Fig. 4.8 と 4.9 に研磨断面観察の写真を示したが、今回の照射温度が低かったことを考慮すれば、主に高速中性子照射に起因すると思われるバッファ層の損傷のいろいろな様相がここにみられる。たとえば、Fig. 4.8 の(a) ~ (d) はすべて (Th, U)O<sub>2</sub> - TRISO [78 TU - 1 粒子] の場合であるが、(a) は  $1.6 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ )、1150°C 照射の結果で、燃料核とバッファ層間にわずかなギャップを生じているものの、照射前とほとんど変わらず健全な状態の粒子である。それに対して(b) ~ (d) は  $1.61 \sim 2.22 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ )、770 ~ 1000°C 照射の結果で、バッファ層収縮による内側 PyC 層 (IPyC) との間のギャップの生成 (写真(b)) やバッファ層と燃料核との間のギャップの生成 (写真(c))、あるいはバッファ層自体が収縮割れを起している場合 (写真(d)) などの例がみられる。最も照射量が多かった 78 F - 4 A キャップセルの TRISO 粒子のバッファ層はすべてこのいずれかの様相で損傷している。そしてその損傷を引き起す要因の一つは、照射によっても収縮変化が少なく、機械強度上堅固な SiC 層にあるものと考えられる。従って、これに比べると Fig. 4.9 に示した fissile BISO 粒子は SiC 層がないので、バッファ層と OPyC 層との収縮差が小さく、か

つ損傷の程度も写真(b)にみられるように軽度である。

Fissile粒子のうち、最も厳しい照射条件でも健全な挙動を示したのは写真(c)の例にみられる78 TU-3粒子であった。すなわち78 TU-3粒子の断面観察からは1粒も異状がみられず、比較するために写真(a)に示した未照射粒子などと全く変らずしっかりしていた。78 TU-3粒子のOPyC層被覆はC<sub>2</sub>H<sub>2</sub>ガスを原料とした1140°CでのLTIPyC形成である。OPyC層は一般にはC<sub>3</sub>H<sub>6</sub>ガスを原料とした1200°C以上でのLTIPyC形成であるが、今回のOPyC層形成的原料ガスの違いによる密度の大きな差はない(Table 2.2参照)。しかし、C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>によるOPyCはC<sub>3</sub>H<sub>6</sub>によるOPyCよりも照射後の密度増加率が大きいことが、後述4.7.2節(高密度PyC層の密度変化)で明らかになり、BISO粒子の場合このOPyCの大きな密度増加(すなわち収縮)がバッファ層との収縮差をより少なくする結果となって、被覆層全体が燃料核の周囲に健全な状態で維持されたものと考えることができる。fertile BISO粒子の78 TH-3のOPyC層もC<sub>2</sub>H<sub>2</sub>ガスを原料としているが、Fig. 4.4写真(b)で示したように健全な照射結果であった。ただしこちらの方は照射条件が最も厳しい場合ではないので78 TU-3粒子と78 TH-3粒子とをここで直接比較することはできない。とにかく結果的には、C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>原料ガスによるOPyC層被覆の78 TU-3粒子が照射で健全な挙動を示したことになった。

外観観察とX線ラジオグラフからはみつからなかった貫通破損粒子が研磨断面観察で極く少數みられた。すなわち78 TU-2と78 TU-4の各粒子に2粒づつみつかったが、これらはすべてfissile BISO粒子である。今回唯一のTRISO粒子だった78 TU-1は断面研磨中に割れたと考えられる粒が2粒あっただけで照射中の貫通破損はない。Fig. 4.9写真(d), (d')は78 TU-4粒子の貫通破損の例でOPyC層の外側から割れを生じている様子が観察できる。

研磨断面観察後の粒子の一部の燃料核についてエッチングによる組織観察を実施した。エッチングの方法はThO<sub>2</sub>の場合と同じである。Fig. 4.10に未照射試料、未照射炉外加熱試験試料および照射後試料のいくつかの結果を比較して示す。Fig. 4.10(a)の製造時のままの被覆粒子の燃料核(Th, U)O<sub>2</sub>の結晶粒径は、ThO<sub>2</sub>のそれ(Fig. 4.6(a)とFig. 4.7(a))にくらべて大き目で平均5 μm以上ある。これに対して写真(b)は未照射炉外加熱試験(1200°C-25日均熱加熱)の結果で結晶粒成長の傾向がわずかにみられる。写真(c)はVOF-4Hキャップセル照射後の試料で照射温度1200°C-22日に相当する。粒子バッチは78 TU-4であるが、燃料核(Th, U)O<sub>2</sub>は同じバッチの製品である。ここで結晶粒径は更にわずか大きくなっている。次の写真(d)~(g)は照射温度が実質的に1000°C以下だった78 F-4 Aキャップセルの照射試料の例である。しかし照射温度は過渡的に1400°C近くに達した記録(Fig. 3.3と3.5参照)を考慮すれば、これらの結晶粒径がやはりわずかながらも大きくなる傾向にあると云えよう。

今回の断面観察からはその他に特に注目すべき点はない。燃料核への析出物や被覆層の腐食などはみられず(4.6.1節に詳述)やアメーバ効果も起きていない。

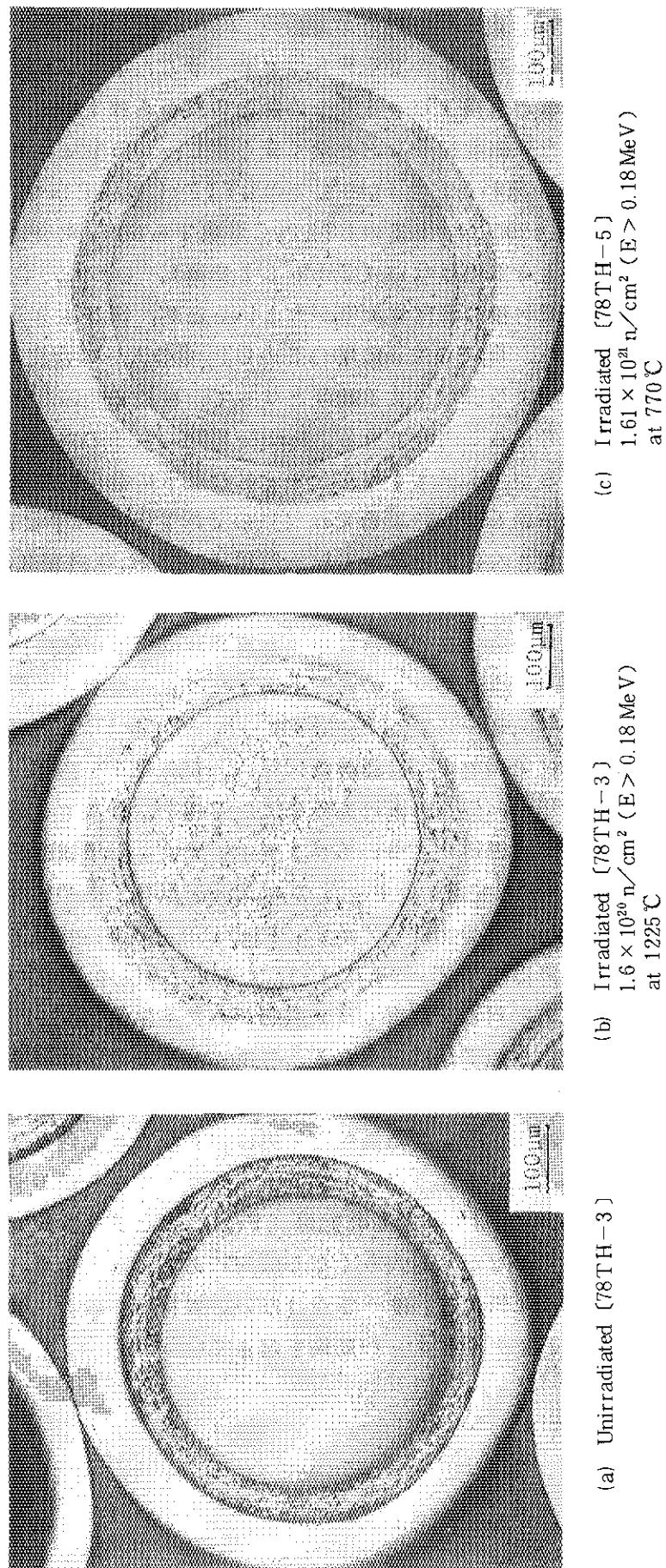
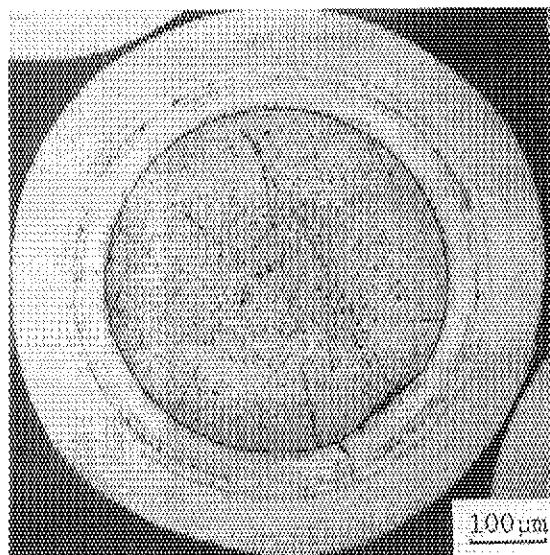
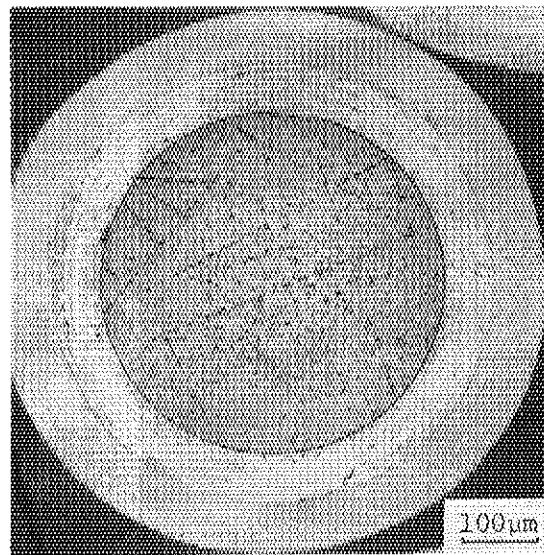


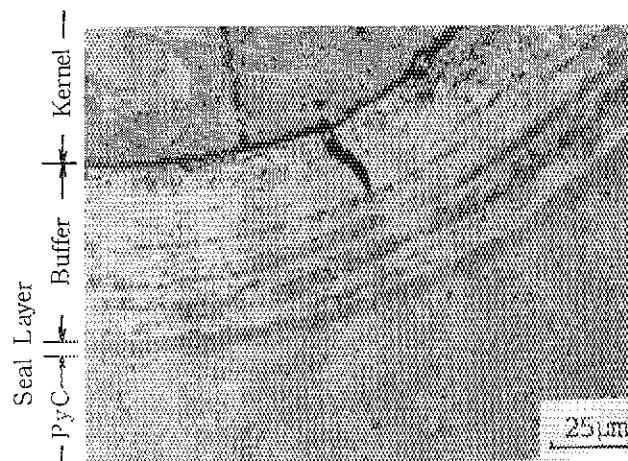
Fig. 4.4 Metallographs of ThO<sub>2</sub>-Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Coated Particles



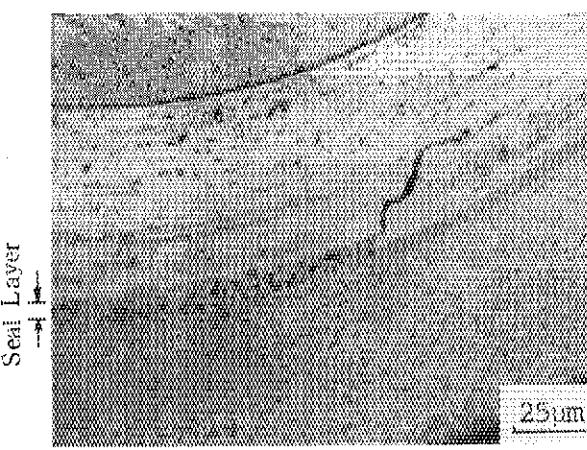
(a)



(b)

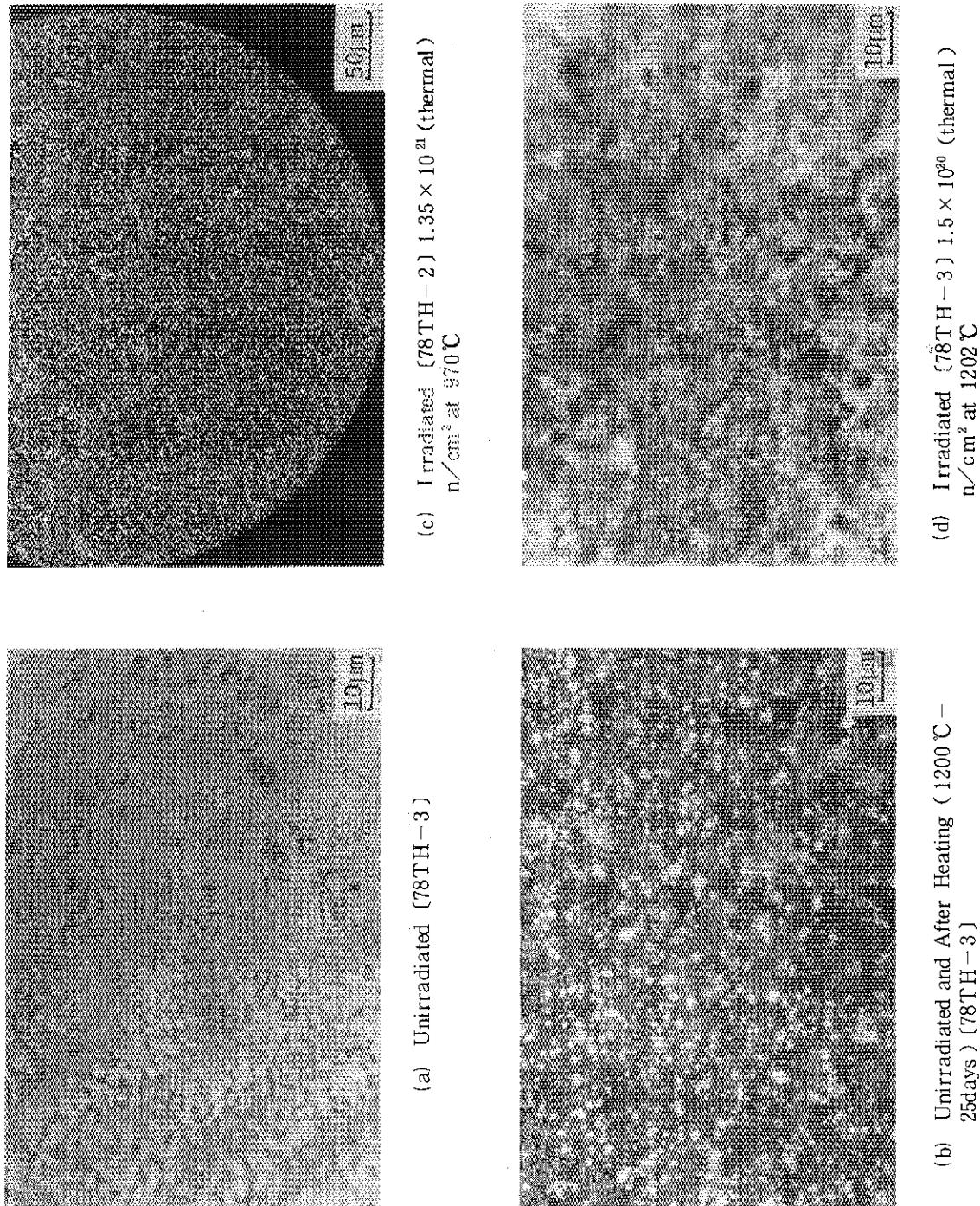


(a') Higher Magnification of Cracked Position (a)



(b') Higher Magnification of Cracked Position (b)

Fig. 4.5 Metallographs of ThO<sub>2</sub>-BISO with Seal Layer (78TH-2)  
Particles Irradiated to  $2.22 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ ) at  
1000 °C

Fig. 4.6 Microstructure of  $\text{ThO}_2$  Kernels (I)

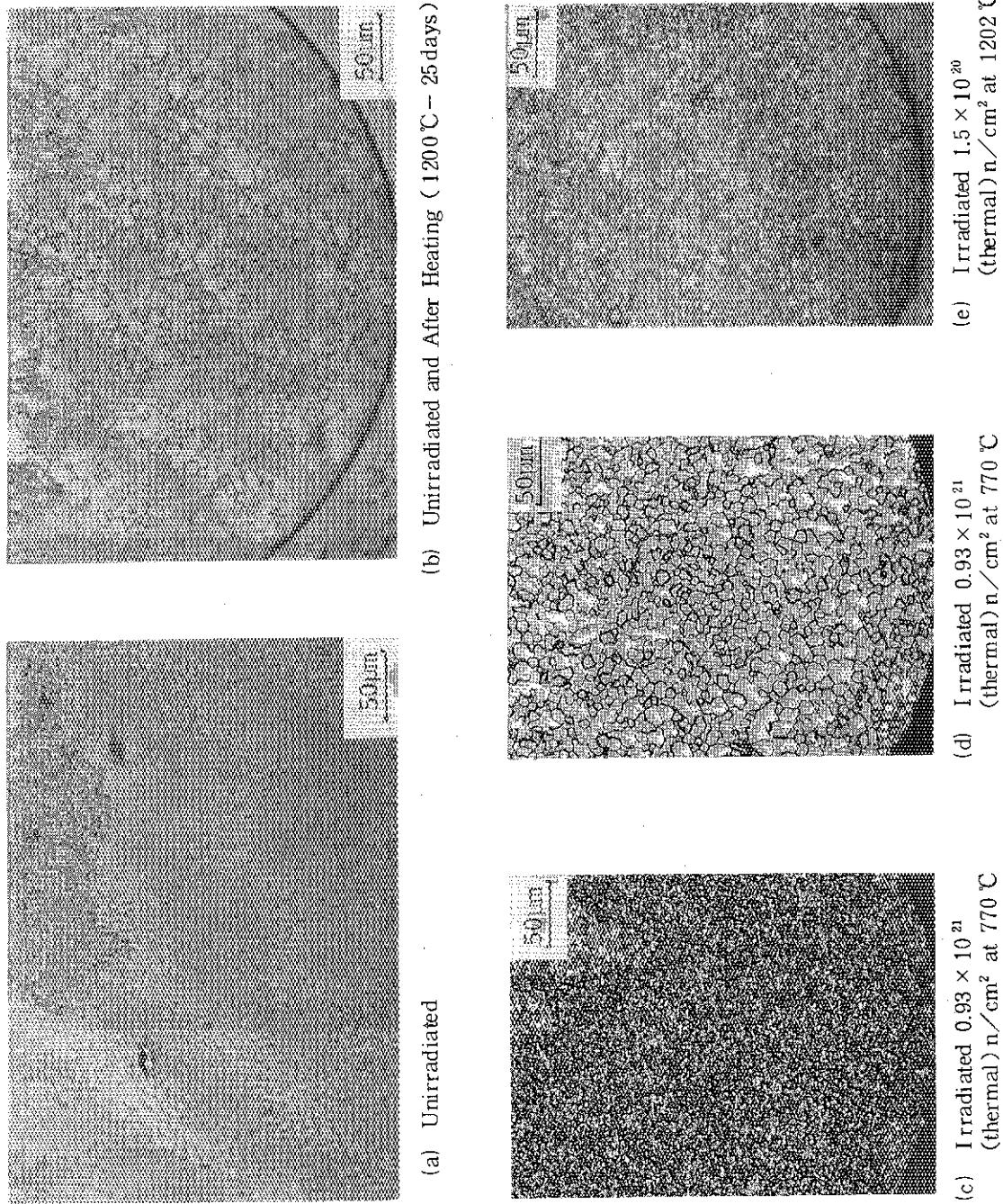


Fig. 4.7 Microstructure of  $\text{ThO}_2$  Kernels [78 TH-5] (II)

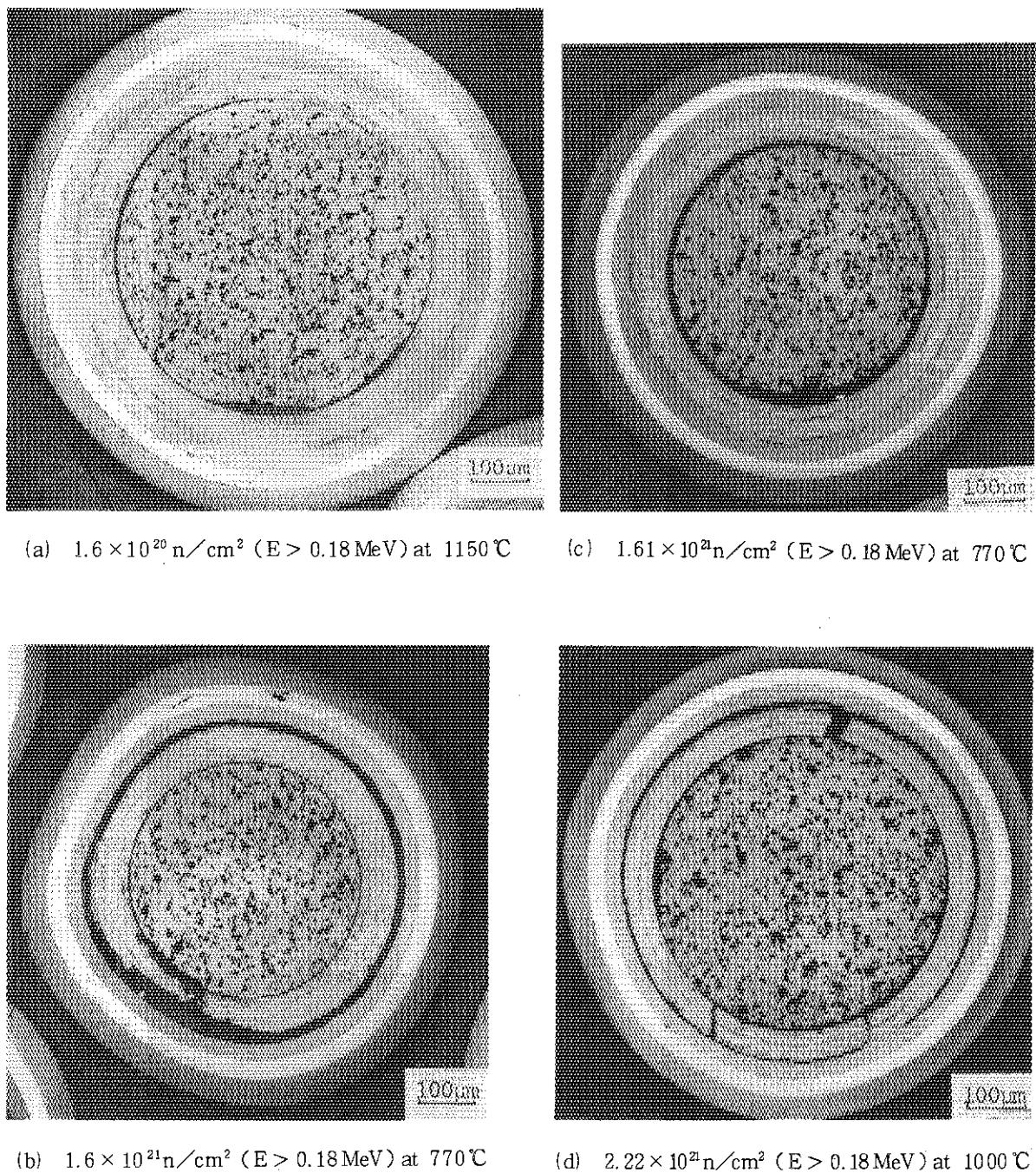
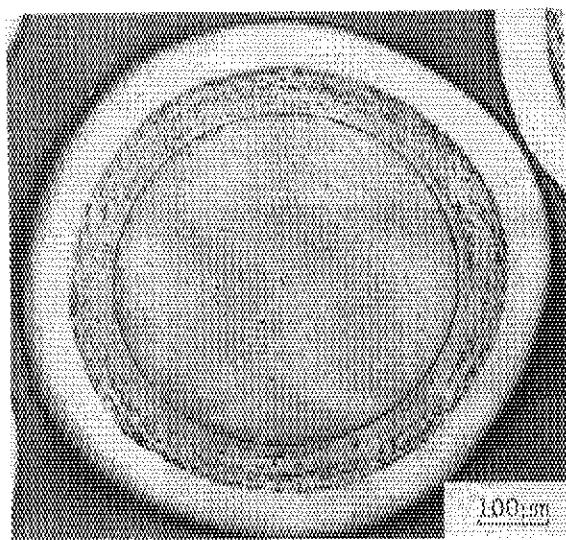
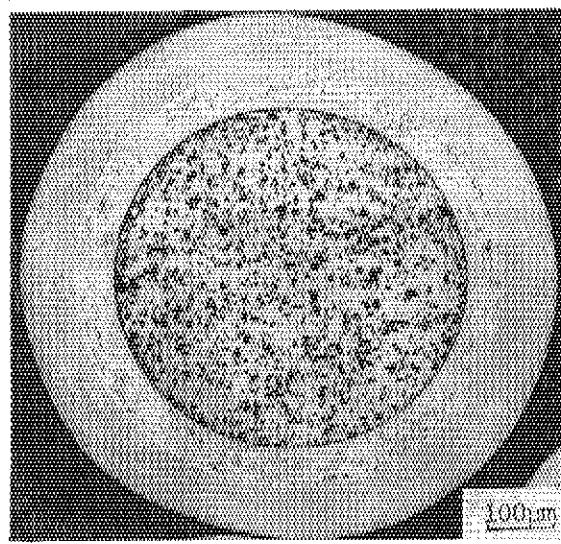


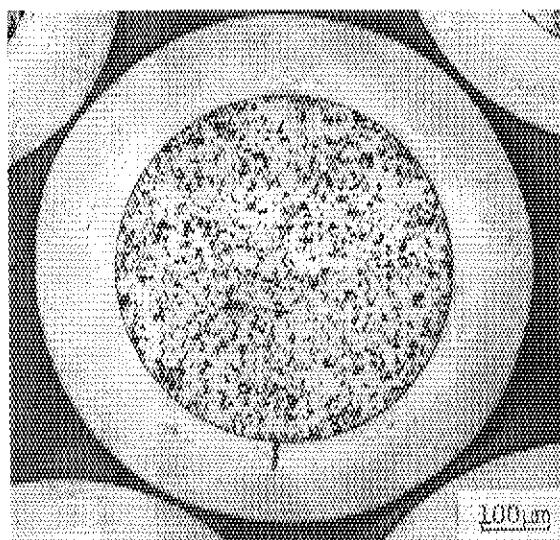
Fig. 4.8 Metallographs of Irradiated  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ -TRISO (78 TU-1) Particles



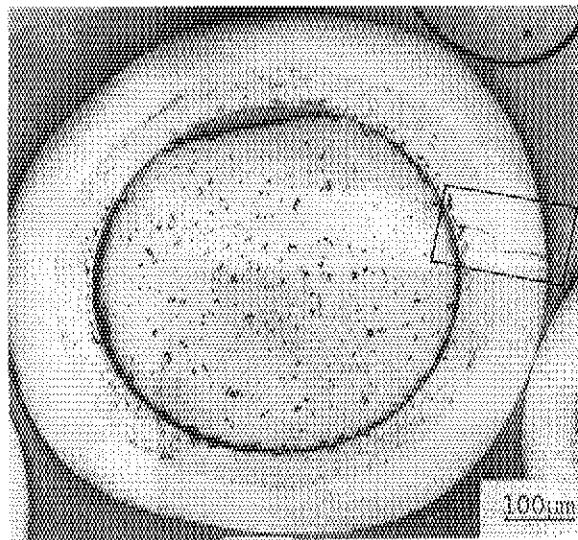
(a) Unirradiated [78TU-3]



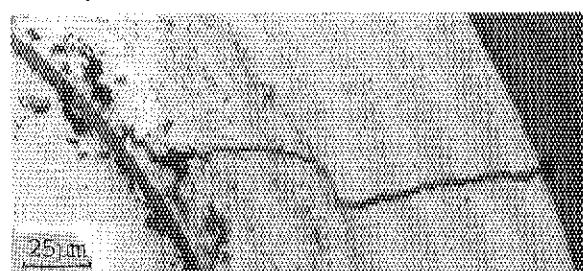
(c) Irradiated [78TU-3]  $2.22 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$   
(E > 0.18 MeV) at 1000 °C



(b) Irradiated [78TU-2]  $2.22 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$   
(E > 0.18 MeV) at 1000 °C



(d) Irradiated [78TU-4]  $1.5 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$   
(E > 0.18 MeV) at 1130 °C



(d') Higher Magnification of Cracked Position(d)

Fig. 4.9 Metallographs of (Th, U) O<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub> Coated Particles

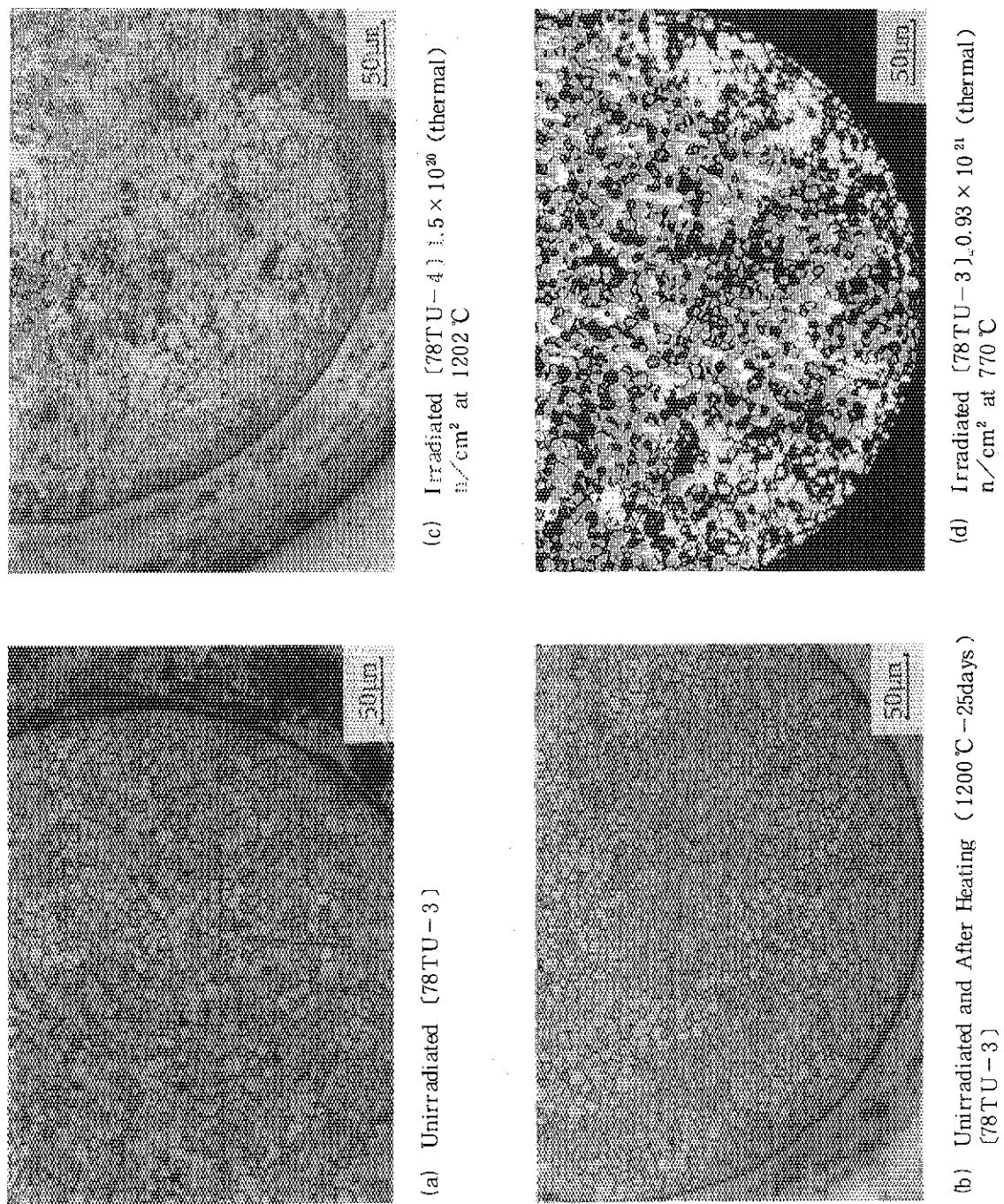
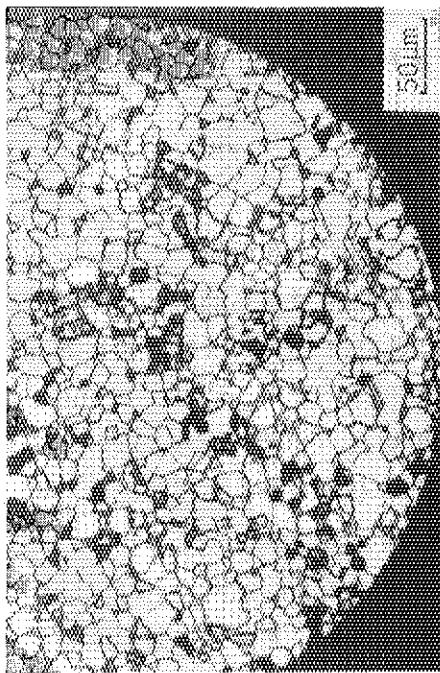
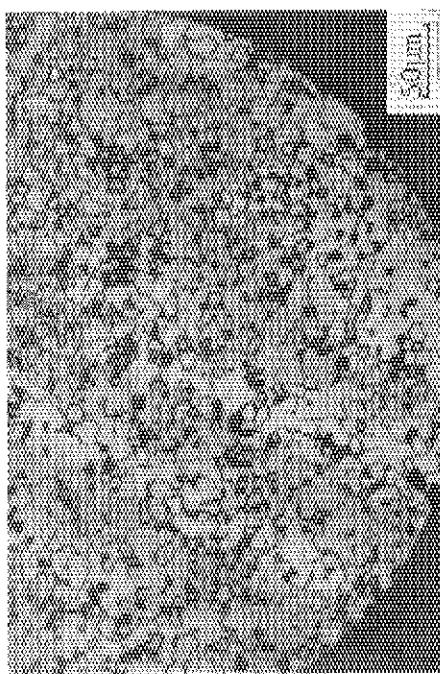


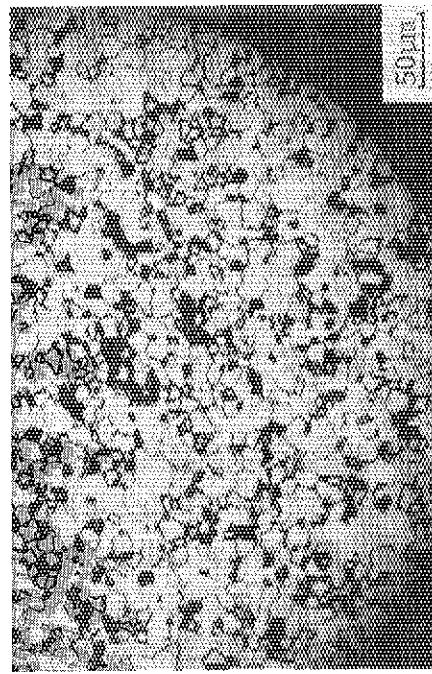
Fig. 4.10 Microstructure of (Th, U) O<sub>2</sub> Kernels



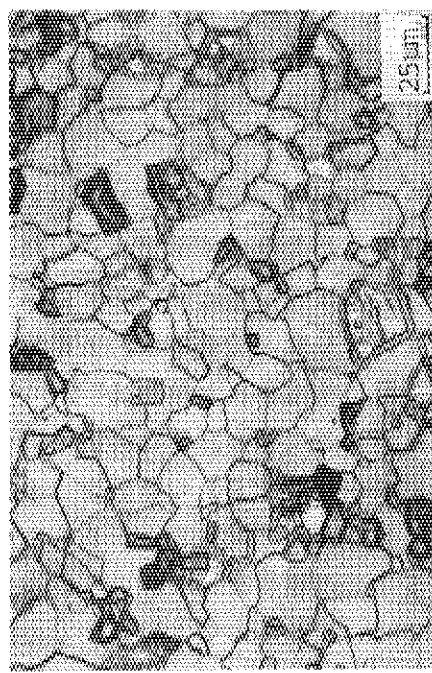
(e) Irradiated (78 TU-1)  $0.93 \times 10^{21}$  (thermal)  
n/cm<sup>2</sup> at 770 °C



(f) Irradiated (78 TU-2)  $1.35 \times 10^{21}$  (thermal)  
n/cm<sup>2</sup> at 1000 °C



(g) Irradiated (78 TU-1)  $1.35 \times 10^{21}$  (thermal)  
n/cm<sup>2</sup> at 1000 °C



(g') Irradiated (78 TU-1) Higher Magnification  
of Microstructure (g)

Fig. 4.10 (Continued)

#### 4.5 燃焼率の測定

被覆破損のない照射後の被覆粒子燃料は核分裂生成物（F P）の被覆層外への放出率が低く、また粒子のままの状態で $\gamma$ 線測定を行っても微小球であるために吸収補正は小さくて済むなど、F P生成量を精度よく容易に定量できる。この方法によって酸化トリウム系被覆粒子の燃焼率を測定した。以下にJRR-2で照射した2体のキャップセル試料の場合とJMT-Rで照射した1体のキャップセル試料の場合とに分けて測定結果を述べる。

##### 4.5.1 JRR-2照射キャップセル試料の燃焼率評価

JRR-2で照射した2体のキャップセル試料のうち、健全であることを確認したfissile粒子すなわち $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 被覆粒子について $\gamma$ 線測定を行い、F Pの生成量から照射・冷却条件を考慮して燃焼率を評価した。被覆粒子の $\gamma$ 線測定は250～300日冷却後にGe(Li)検出器を用いて行った。その際に検出された核種は $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ - $^{144}\text{Pr}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ である。燃焼率の計算は今回用いたfissile粒子の場合、 $^{232}\text{Th}$ から生成される $^{233}\text{U}$ と $^{238}\text{U}$ から生成される $^{239}\text{Pu}$ の核分裂はICF-28Hの場合でも $^{235}\text{U}$ の1%程度であるので無視し、 $^{235}\text{U}$ のみを考慮して測定したF Pの生成量に合う $\phi_{\text{rf}}$ を求め、燃焼率を算出した。その計算にあたって $^{235}\text{U}$ の原子数は1粒の平均重量および組成から求めた。試料の $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 核の直径は506±6 μmであるので1粒の $^{235}\text{U}$ の誤差は4%未満である。その他に計算に必要とした数値は次の文献から得た。核分裂収率 $\eta$  (M. E. Meak and B. F. Rider, NEDO-12154-1, 1974), F Pの壊変定数 $\lambda$  ("Table of Isotopes" 第7版, 1978), 核の $\gamma$ 線吸収係数(「放射線データブック」からウランの値を代用)。

燃焼率の計算結果をTable 4.3に示す。計算値は $\gamma$ 線計数値が大きく、壊変補正及び吸収補正が小さい核種から求めた方が精度が高くなるので、ここでは $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ から求めた平均値を採用した。 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粒子の燃焼率はVOF-4Hでは0.24～0.32% FIMAの範囲であり、ICF-28Hでは位置の差は小さく、0.45～0.48% FIMAであった。参考までに計算した $\phi_{\text{rf}}$ と3.3節で求めた $\phi_{\text{th}}$ の値から $^{235}\text{U}$ の核分裂断面積を求めるときVOF-4H(VT-10照射孔)で中性子束が高い下段の試料でも約380 barnであり、ICF-28H(6D照射孔)では約250 barnと一般的な $^{235}\text{U}$ の $\sigma_f$  580 barnに対してかなり低い値になった。

##### 4.5.2 JMT-R照射キャップセル試料の燃焼率評価

前節のJRR-2キャップセルの場合とは異なり、JMT-Rで高中性子照射量まで照射されたトリウム系燃料の燃焼度を評価する場合、 $^{232}\text{Th}$ の中性子捕獲反応により生成される $^{233}\text{U}$ の燃焼の寄与は無視できないほど大きくなる。これはウラン系燃料における $^{239}\text{Pu}$ 核分裂の寄与と同様であるが、燃焼度をF P生成量から評価する場合、例えばウラン系燃料で簡便法として提案されている $^{235}\text{U}$ と $^{239}\text{Pu}$ とのF P収率の差から求める方法<sup>3)</sup>は、 $^{233}\text{U}$ と $^{235}\text{U}$ とのF P収率にあまり差がないためその適用は難しい。本報告においては、 $\text{ThO}_2$ 及び $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 被覆燃料粒子の中から照射後、健全粒子を選び $\gamma$ スペクトロメトリーによりF P生成量を求ることにより $^{233}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}$ の燃焼率を評価した。

### (1) 方法

照射後健全な  $\text{ThO}_2$ -BISO 及び  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ -TRISO 被覆粒子の  $\gamma$  線強度を  $\gamma$  線スペクトロメータにより測定し、照射終了時における各種 FP 放射能を求めた。この際、試料自身による  $\gamma$  線の自己吸収補正是吸収係数の大きい燃料核についてのみ行い、PyC 及び SiC 被覆層による吸収の効果は無視した。例えば、直徑が約  $500\mu\text{m}$  の  $\text{ThO}_2$  燃料核における補正係数は、 $^{144}\text{Ce}$  (133.5 KeV) 及び  $^{137}\text{Cs}$  (661.7 KeV) で各々 1.55 及び 1.02 である。従って、FP 放射能から燃焼度を評価する場合、 $\gamma$  線エネルギーが高く試料による自己吸収が少なくかつ放射能強度が適度に高いこと等を考慮して、 $^{137}\text{Cs}$  放射能を用いるのが適当である。なお、SiC に比較して PyC 中の Cs 拡散係数は相当大きいため、 $\text{ThO}_2$ -BISO 粒子では被覆が健全であっても Cs の拡散による粒子外への放出が懸念される。しかし、本キャップセルの照射温度が低いこと及び照射時間を考慮すると粒子外への放出は無視できると考えられる。

最初に、 $\text{ThO}_2$  の  $^{137}\text{Cs}$  放射能強度を測定して  $^{233}\text{U}$  燃焼による  $^{137}\text{Cs}$  生成量を評価した後、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  の  $^{137}\text{Cs}$  強度に対して Th 重量割合から  $^{233}\text{U}$  燃焼寄与分を補正することにより、 $^{235}\text{U}$  燃焼による  $^{137}\text{Cs}$  生成量を求めた。次に、その  $^{137}\text{Cs}$  強度からフィッティングにより  $^{235}\text{U}$  の核分裂断面積の最適値及び燃焼度の  $^{235}\text{U}$  寄与分を求めた。さらに、 $\text{ThO}_2$  の  $^{137}\text{Cs}$  生成量から  $^{232}\text{Th}$  の熱中性子捕獲反応の断面積をパラメーターとして、フィッティングにより  $^{233}\text{U}$  燃焼度を求めた。この際、 $^{233}\text{U}$  の核分裂断面積は  $^{235}\text{U}$  における最適値と文献値 (577 barn)との比率を用いて、 $^{233}\text{U}$  の文献値 (524 barn) から求めた計算値を用いた。また、フィッティングに用いた中性子束はフルエンス・モニタリング・ワイヤにより求めた中性子照射量から計算した。

### (2) 結果

#### 1) $\text{ThO}_2$

Table 4.4 に異なるキャップセル位置で照射された各種  $\text{ThO}_2$ -BISO 粒子において、照射終了時における各種 FP 放射能の測定値、各種反応断面積及び燃焼率を示す。結果として、 $\text{ThO}_2$  における  $^{233}\text{U}$  の燃焼率は 0.12 から 0.25% FIMA であった。

$^{232}\text{Th}$  の熱中性子捕獲反応断面積は文献値で 7.4 barn であるが、フィッティングによる最適値はそれよりも相当高いことが分かる。また、 $^{232}\text{Th}$  の高速中性子による核分裂等  $^{233}\text{U}$  以外の核種の燃焼率に対する寄与は、 $^{233}\text{U}$  に比べて 3 枠以上低くなると評価された。

#### 2) $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$

Table 4.5 には  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ -TRISO 粒子 (78 TU-1) の FP 放射能測定値及び各種計算値を示す。 $^{235}\text{U}$  の核分裂断面積は約 380 から 430 barn へとキャップセルの下段ほど高くなっている。また、総燃焼度は上段の 1.75% FIMA から最高で中段の 2.42% FIMA であり、このうち  $^{233}\text{U}$  燃焼相当分は約 6 から 10% であった。

Table 4.3 Burnups Determined from Fission-Product Concentrations  
for VOF-4H and ICF-28H Capsules

キャップセル名	VOF-4H		ICF-28H		
試料容器位置	上段	下段	S 3(上部)	S 5(中部)	S 7(下部)
試料粒子	78TU-4	78TU-4	78TU-3	78TU-2	78TU-1
$\Phi \sigma_f^*$ ( $\times 10^{-8} \text{n/sec}$ )	2.30	3.04	2.32	2.17	2.24
燃焼率 (%FIMA)	0.240	0.320	0.480	0.450	0.465
$\Phi_{th}$ ( $\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ )	$5.68 \times 10^{13}$	$8.03 \times 10^{13}$	$8.98 \times 10^{13}$	$8.97 \times 10^{13}$	$8.97 \times 10^{13}$
$^{235}\text{U}$ の $\sigma_f$ (barn)	405	379	258	242	250

\* :  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ から求めた値の平均値

Table 4.4 FP Contents and Burnups of Fertile ThO<sub>2</sub> Coated Particles  
Irradiated by 78F - 4A Capsule in JMTR

被覆粒子バッチ 照射位置		78TH-5 1	78TH-2 4	78TH-3 13
FP量 ( $\mu$ Ci)	<sup>106</sup> Ru	2.523	3.529	2.956
	<sup>125</sup> Sb	0.545	0.715	0.525
	<sup>134</sup> Cs	0.525	0.991	0.663
	<sup>137</sup> Cs	2.786	3.713	2.819
	<sup>144</sup> Ce	68.405	89.443	65.721
	<sup>154</sup> Eu	0.017	0.025	0.015
断面積 (barn)	<sup>232</sup> Th	11.7	13.0	15.6
	<sup>233</sup> U	343	345	387
燃焼率 (%FIMA)	<sup>232</sup> Th(f)	4.86E-4	6.67E-4	5.43E-4
	<sup>233</sup> U(t)	1.12E-1	2.50E-1	1.90E-1
	<sup>235</sup> U(t)	5.25E-5	2.44E-4	1.03E-4
	Total	1.12E-1	2.51E-1	1.90E-1

Table 4.5 FP Contents and Burnups of Fissile (Th, U) O<sub>2</sub> Coated  
Particles Irradiated by 78F-4A Capsule in JMTR

被覆粒子バッチ 照射位置		78TU-1 1	78TU-1 4	78TU-1 13
FP量 ( $\mu$ Ci)	<sup>106</sup> Ru	48.55	65.45	57.66
	<sup>125</sup> Sb	1.90	2.88	2.52
	<sup>134</sup> Cs	12.93	25.80	18.41
	<sup>137</sup> Cs	33.22	46.03	39.93
	<sup>144</sup> Ce	856.7	1167.1	1059.7
	<sup>154</sup> Eu	0.36	0.68	0.50
断面積 (barn)	<sup>233</sup> U	343	345	387
	<sup>235</sup> U	378	380	427
	<sup>239</sup> Pu	741	—	—
燃焼率 (%FIMA)	<sup>232</sup> Th(f)	4.56E-4	6.26E-4	5.09E-4
	<sup>233</sup> U(t)	1.05E-1	2.34E-1	1.77E-1
	<sup>235</sup> U(t)	1.65	2.18	1.92
	<sup>239</sup> Pu(t)	2.67E-4	5.01E-4	3.03E-4
	Total	1.75	2.42	2.10

#### 4.6 被覆粒子のFP挙動

これまでに照射後試験として被覆粒子自体の非破壊・破壊検査を中心に述べてきたが、この章では照射後のFP挙動について測定した結果を述べる。内容のはじめは今回の一連の照射試験で最も中性子照射量が高かった78F-4Aキャップセルの試料を使ったEPMA (Electron Probe Micro-analyzer) による被覆粒子内のFP分布観察に関するもの、更に同じ高燃焼度の照射試験を用いた燃料核から被覆層へのFP放出に関するもの、最後は被覆粒子外へ放出されたFPを被覆粒子の破損との関係で把握するためにICF-28Hキャップセルの試料容器を用いて $\gamma$ 線測定した結果に関するものである。

##### 4.6.1 EPMAによる被覆粒子の元素分析

###### (1) (Th, U) O<sub>2</sub>核被覆粒子中のFP分布

被覆粒子中のFPの挙動を把握する目的で、EPMAを用いてその分布を調べた。EPMAの検出限界を考慮し、78F-4Aキャップセルで照射した(Th, U) O<sub>2</sub>核被覆粒子のみ分析を行った。しかし、本キャップセルは照射温度が低かったので、あとで述べるように、燃料核内にFPの偏析や濃度勾配は認められず、また、被覆層内ではバッファ層にのみFPは検出されたが、主として反跳によると推察される。

照射試料容器No.13の78T U-1, 2, 3被覆粒子各2粒を赤道面近くまで研磨し、測定に供した。この試料容器の照射温度は、約960°C(初期)～880°C(終期)である。分析には波長分散型X線分光器を用いた。はじめに、燃料核及びバッファ層中に存在する元素の定性分析を行った。試料78T U-1粒子の波長走査チャートをFig.4.11に示す。なおバッファ層の分析は、燃料核の外約5μm(反跳飛程内)の位置で行った。分析条件は25kV～約0.2μA(吸収電流)、また、分光結晶にはLiF(2.5Å以下)及びPET(pentaerythritol, 2.5Å以上)を用いた。このチャートから、バッファ層に比べて燃料核の分析の場合、P/B比の低下及び重元素のX線による妨害(例えば、XeL $\alpha$ はThM<sub>I</sub>N<sub>IV</sub>とかさなる等)がみられるが、主要なFPのZr, Mo, Xe, Cs, Ndは充分測定可能と判断できる。

78T U-1粒子の被覆層内のFP分布を線分析により調べた結果をFig.4.12に示す。図にはZr, Xe, Csに加えて、空間分解能を判断するためにThのプロファイルも示した。FP元素はおよそ反跳に対応した分布を持っている。さらに被覆層各点で、波長走査により主なFP元素の分析を行った。その結果、Zr, Mo, Ndは核の外約30μm以遠では検出されなかった。一方、Xe, Cs, Baはバッファと高密度PyC層の境界までわずかに存在し、バッファ層中を拡散したと推測される。しかし、高密度PyC層以降では検出されなかった。このような結果は、被覆条件が異なる78T U-2, 3粒子についても同様であった。

燃料核中のFPの分布も同様にして調べた。Mo, Zrは核の中で化合物を作り偏析していることも考えられる。しかし、分析結果の一例(78T U-2粒子の場合)としてFig.4.13に示すように、いずれも核内はほぼ均一である。他のFP(Xe, Cs, Nd)は、P/B比が小さいので主として波長走査により、核の中央、表面付近及びその中間の各点で分析した。その結果、いずれの粒子も分析位置により有意の差は認められなかった。

(2)  $\text{ThO}_2$  核中の生成ウランの定量

E P M Aにより、照射に伴い $\text{ThO}_2$ 核中に生成したウランの定量を試みた。定量は検量線法により行い、そのために既知濃度の $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ (0.50, 1.03, 2.96, 6.30 wt% U),  $\text{ThO}_2$ 及び $\text{UO}_2$ を準備した。生成ウランの分析は、78 F-4Aキャップセルの試料容器No.13の78 T H-3粒子2粒について行った。

$\text{UM}_\alpha$ 及び $\text{UM}_\beta$ 線の波長は、それぞれ $\text{ThM}_\beta$ 及び $\text{ThM}_\gamma$ 線の波長に隣接している(Fig. 4.11参照)。したがって、バックグラウンド計数率は、Thの寄与を考慮し、次のように求めた。

$$B + (N_0 - B) \alpha$$

B : ウランピークの両側(±0.08 Å)におけるBGの平均

$N_0$  :  $\text{ThO}_2$  試料におけるウランピーク位置の計数率

$\alpha$  :  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 対 $\text{ThO}_2$ のトリウムの強度比

分析には、 $\text{UM}_\alpha$ 線を用い、25 kV-約0.009 μAで行った。検量線をFig. 4.14に示す。ウラン濃度と $\text{UM}_\alpha$ 強度の関係は、測定したウラン濃度範囲では直線とみなせる。

生成ウランの分析は、粒子あたり10ヶ所以上で行った。核の中央及び表面付近でウランの計数率に差は認められない(小粒子のため、共鳴吸収の効果は検出されず)ので、単純に平均した(標準偏差は±約3%)。2粒のウラン濃度としてそれぞれ0.83及び0.95 wt%が得られた。粒子間で分析値が違うのは、主として同一照射容器内でも中性子束が10%余り異なることに起因すると推測される。

## 4.6.2 照射下FP放出

J M T R キャップセル試料の燃焼度評価に用いた健全な $\text{ThO}_2$  BISO及び $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  TR ISO被覆粒子を機械的に燃料核と被覆層とに分離した後、各々のFP量をγ線スペクトロメトリー法により測定し、被覆層へのFP放出割合を求めた。

照射下において被覆層が健全であった被覆粒子燃料においては、燃料核から放出された各種FPは被覆層内に留っている。従って、照射後被覆層内にあるFPの割合を測定することによりその放出率を知るとともに、燃料核におけるFPの拡散係数が導出できる<sup>4)</sup>。照射後、被覆層にあるFP割合(F)は次式により示される。

$$F_t = F_d + F_r + F_c$$

ここで、d, r, 及びcは各々拡散放出、反跳放出及び被覆層の汚染によるFP割合を示す。ここで被覆層の汚染による寄与は考慮せず、反跳放出を計算で評価することにより拡散放出割合を求めた。

## (1) 反跳放出

球状物質からの反跳によるFP放出割合 $F_r$ は、理論的に次式から求められる。

$$F_r = 3/4 (R/r_k) - 1/4 (R/r_k)^3$$

ここで、Rは各種FPの反跳距離及び $r_k$ は球状燃料核の半径を示す。反跳距離は次式に示す

$^{235}\text{U}$ の熱中性子核分裂における各種FPの反跳距離に関するFrankの経験式<sup>5)</sup>により求めた。

$$R / E^{2/3} = 0.0391 + 0.0202 A / Z^{1/2}$$

ここで、Eは各種FPの反跳エネルギー、A及びZは核分裂物質における質量及び原子番号のモル分率の総和を示す。

Table 4.6には本キャップセルで試料とした3種のThO<sub>2</sub>及び(Th, U)O<sub>2</sub>燃料核における各種FPの反跳放出割合を示す。結果として、直径が約500 μmの燃料核を持つ被覆粒子では、燃料核から被覆層への内部放出割合の約2%が反跳放出によるものであることが分かる。

## (2) 拡散放出

Table 4.7には各種FPの内部放出割合及びその値から反跳放出割合を差引いた値、つまり拡散放出割合を各キャップセル位置について示す。ここで測定に供した各被覆粒子の個数は、他の実験の都合のため2~4粒であった。拡散放出割合は一部を除いて0.2%から0.5%の範囲内にあり、FP核種間及びThO<sub>2</sub>と(Th, U)O<sub>2</sub>間の差異は認められなかった。また、4.5.2節に述べたようにキャップセル内の試料位置により燃焼度は異なる上に、照射温度についても約800°Cから最高1000°Cで変化している。しかし、78F-4Aキャップセルの照射条件範囲においては、拡散放出割合に顕著な燃焼度及び照射温度依存性は認められなかった。

### 4.6.3 被覆粒子外へのFP放出

トリウム系被覆粒子燃料の固体状FPの放出率は、今後被覆形式をBISOもしくはTRISOのどちらにすべきかを選択するうえで、また被覆破損率の判断として重要である。ICF-28Hキャップセルでは、各試料は別々の黒鉛容器に充填したので、容器の放射能を測定することにより、放出率の目安が得られる可能性がある。

照射後に回収した空の黒鉛容器のγ線測定は、照射が終了してから約280日後に行った。ホットケーブでのハンドリング等に伴う汚染の有無を判断するため、一部の試料については硝酸洗浄(14M, 110°C - 30分)前後で測定した。その結果、硝酸洗浄前後で黒鉛容器の放射能は、<sup>95</sup>Zr-<sup>95</sup>Nbについてのみ約 $\frac{1}{2}$ に減少したが、その他の核種については変化しなかった。<sup>95</sup>Zr-<sup>95</sup>Nbの多くは被覆粒子から放出されたものではなく、主としてNb-1%Zr製熱電対シーズ及び試料筒を生成源とする汚染によると推定される。

黒鉛試料容器の放射能測定結果をTable 4.8に、また、その相対分布をFig. 4.15に示す。<sup>95</sup>Zr-<sup>95</sup>Nbについては、硝酸洗浄を行った容器についてのみ、洗浄後の値を表に示した。図に示すように、<sup>137</sup>Csはどの黒鉛容器も一定で全体に拡散しており、容器外への放出が大きいと予想されるので、放出率の目安にはできない。一方、<sup>144</sup>Ce及び<sup>106</sup>Ruは、(Th, U)O<sub>2</sub>核BISO粒子充填容器が高く、ThO<sub>2</sub>核粒子充填容器ではその数分の1である。しかし、粒子の生成量の比は $\frac{1}{100}$ であることを考えると、ThO<sub>2</sub>核粒子充填容器で検出されたCe, Ruの大部分は(Th, U)O<sub>2</sub>核BISO粒子からの放出に起因すると考えられる。したがって、両側の容器より明らかに高い値を示す(Th, U)O<sub>2</sub>核BISO粒子充填容器のみ、容器の放射能と充填粒子中の生成量の比(f)を放出率の目安にできる。この3つの容器のfは、表に示したように、<sup>144</sup>Ceが

約  $2 \times 10^{-5}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  が約  $2 \times 10^{-4}$  である。 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 核 TRISO 粒子充填容器も  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 核 BISO 粒子から放出された FP の寄与が見込まれるが、それでも  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  とも BISO より 1 術低い値である。 $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  及び  $^{134}\text{Cs}$  (FP の  $^{133}\text{Cs}$  の中性子捕獲により生成) は、計数値が低く誤差が大きいので、すでに述べたそれぞれの同位体の  $f$  の値と比較しても、確かな結論は望めない。

試料容器の放射能測定から、BISO被覆粒子について  $^{144}\text{Ce}$  及び  $^{106}\text{Ru}$  の放出率の目安が得られた。但し、これらの放出が、主として被覆層の拡散によるか、被覆破損または被覆層の核物質汚染に起因するかは特定できない。すでに述べたように断面観察において 78 TU-2, 4 各 2 粒に貫通クラックが認められているほか、BISO 粒子の被覆層汚染率も明らかでない (BISO 被覆では測定が難しい)。

Table 4.6 Recoil Release of Metallic Fission Products from Kernels in Coated Particles

被覆粒子バッチ 燃料核直径 ( $\mu\text{m}$ )		78TU-1 506	78TH-2 455	78TH-3 544
反跳放出率 (%)	$^{106}\text{Ru}$	2.381	2.648	2.215
	$^{125}\text{Sb}$	2.054	2.285	1.911
	$^{134}\text{Cs}$	2.027	2.254	1.885
	$^{137}\text{Cs}$	1.956	2.175	1.819
	$^{144}\text{Ce}$	1.802	2.004	1.676

Table 4.7 Internal Release of Metallic Fission Products in Coated Particles Irradiated by 78F - 4A Capsule in JMTR

被覆粒子バッチ 照射位置 照射温度 (°C)		78TU-1 1 770	78TU-1 4 1000	78TH-3 13 970
放出率 (%)	$^{106}\text{Ru}$	2.876 (+0.495)	2.686 (+0.305)	
	$^{125}\text{Sb}$	2.137 (+0.083)	2.238 (+0.184)	2.598 (+0.313)
	$^{134}\text{Cs}$	2.487 (+0.460)	2.376 (+0.349)	2.766 (+0.512)
	$^{137}\text{Cs}$	2.245 (+0.289)	2.312 (+0.356)	2.435 (+0.260)
	$^{144}\text{Ce}$	2.158 (+0.356)	1.690 (-0.112)	2.177 (+0.173)

Table 4.8 Activities of Fuel Holders in ICF-28H Capsule

容 器	器 器 №	S - 1	S - 2	S - 3	S - 4	H - 5	S - 5	S - 6	S - 7	S - 8
充 填 粒 子 パ ッ チ №	78TU-4	78TH-5	78TU-3	78TH-3	77MC-5	78TU-2	78TH-2	78TU-1	78TH-1	
被 覆 形 式	BISO	BISO	BISO	BISO	TRISO	BISO	BISO	TRISO	BISO	
粒 子 充 填 量	(mg)	884.5	745.6	866.7	855.2	597.8	827.6	758.1	824.8	791.6
	(個数)	926	706	917	1194	340	843	1010	724	1022
<sup>141</sup> Ce	( $\mu$ Ci) 生成量に対する比	2.78	1.09	3.08	0.81	0.58	2.66	0.48	0.30	0.72
黒 鉛	"	~0.09	—	~0.1	—	—	~0.14	—	—	—
鉛 盔	"	~3×10 <sup>-5</sup>	—	~3×10 <sup>-5</sup>	—	—	~5×10 <sup>-5</sup>	—	—	—
器 器	"	~0.1	—	0.76	—	—	0.29	—	—	—
中 放 射 能	"	~2×10 <sup>-5</sup>	—	1.6×10 <sup>-4</sup>	—	—	7×10 <sup>-5</sup>	—	—	—
の 放 射 能	"	1.1	0.4	2.19	0.28	0.44	1.06	0.48	~0.14	0.46
		1.2×10 <sup>-4</sup>		2.4×10 <sup>-4</sup>		2.2×10 <sup>-5</sup>	1.3×10 <sup>-4</sup>		~2×10 <sup>-5</sup>	
<sup>137</sup> Cs	"	2.3	2.5	2.4	2.7	2.7	2.9	2.6	1.9	<sup>134</sup> Cs
		2.9×10 <sup>-4</sup>		3.0×10 <sup>-4</sup>		1.5×10 <sup>-4</sup>	3.8×10 <sup>-4</sup>		4.2×10 <sup>-4</sup>	
<sup>95</sup> Zr	"	0.19	0.20	0.20	0.21	0.22	0.21	0.26	0.23	<sup>95</sup> Nb
<sup>95</sup> Nb	"	4.1×10 <sup>-4</sup>		4.3×10 <sup>-4</sup>		2.7×10 <sup>-4</sup>	4.9×10 <sup>-4</sup>		6.2×10 <sup>-4</sup>	

（表測値、容器測定時）

（実測値、容器測定時  
に壊変補正）

<78TU-1><78TH-2>

注) ThO<sub>2</sub>-BISOの放射能は、始んど (Th, U) O<sub>2</sub>-BISO粒子からの放出に起因するので、生成量に対する比は省略した。  
たゞ、—は検出限界以下を表わす。

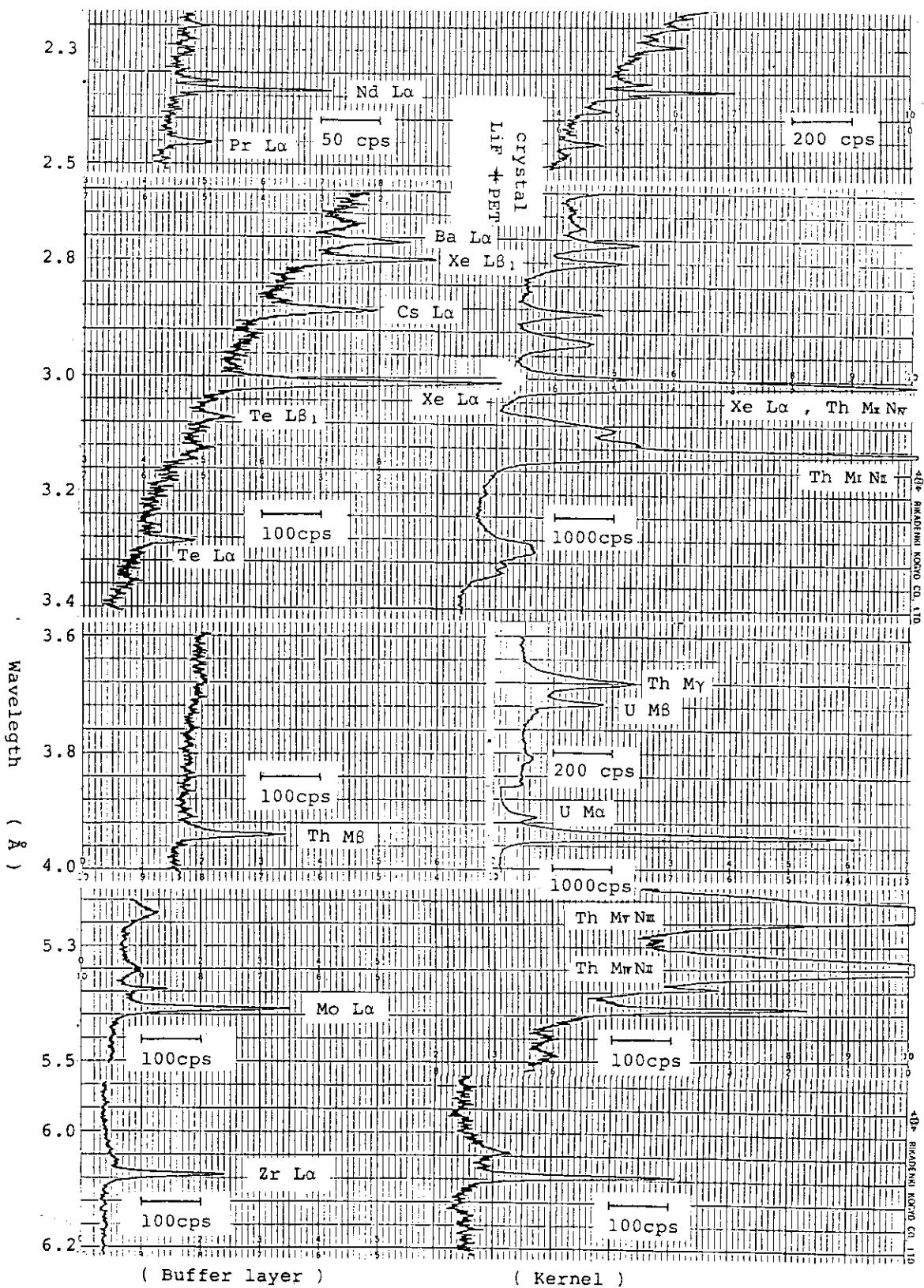


Fig. 4.11 Comparison of X-ray Spectra from Kernel and Buffer Layer of Coated Particle 78TU-1 in No13 Fuel Holder Irradiated by 78F - 4 A Capsule

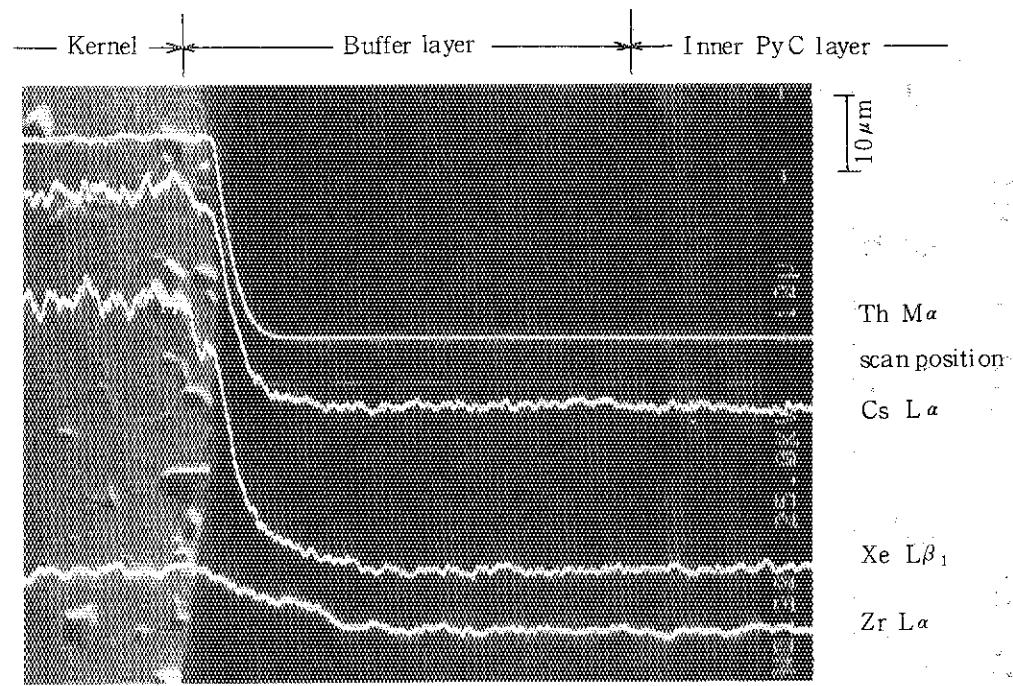


Fig. 4.12 Cs, Xe and Zr Profiles in Coatings of Coated Particle 78 TU - 1  
in № 13 Fuel Holder Irradiated by 78 F - 4 A Capsule

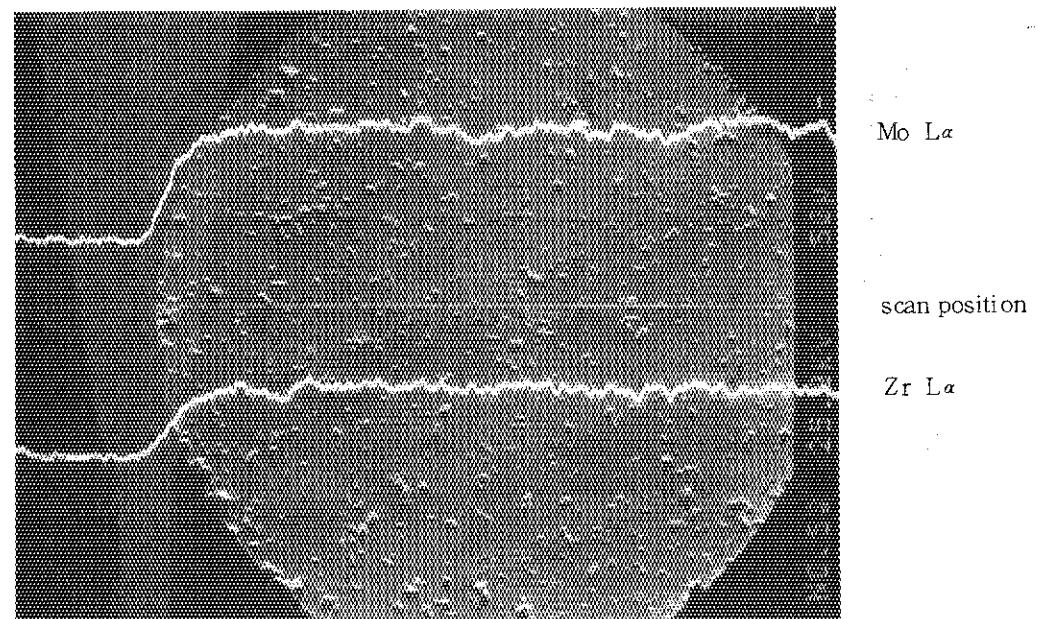


Fig. 4.13 Mo and Zr Profiles across (Th, U)O<sub>2</sub> Kernel of Coated Particle  
78 TU - 2 in № 13 Fuel Holder Irradiated by 78 F - 4 A Capsule

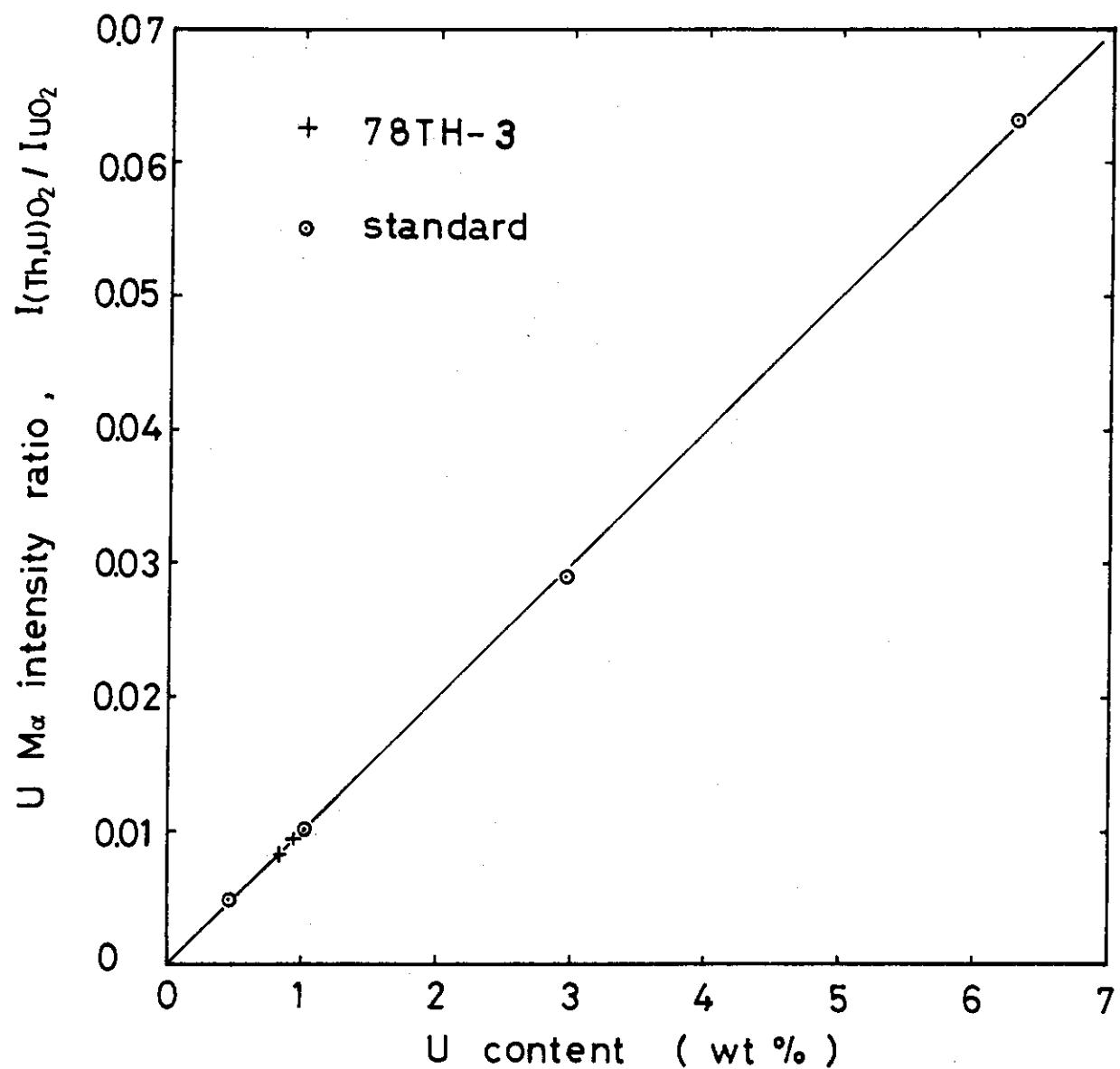


Fig. 4.14 Relation between Uranium Content in  $(Th, U) O_2$  and  $U M_{\alpha}$  Intensity Ratio

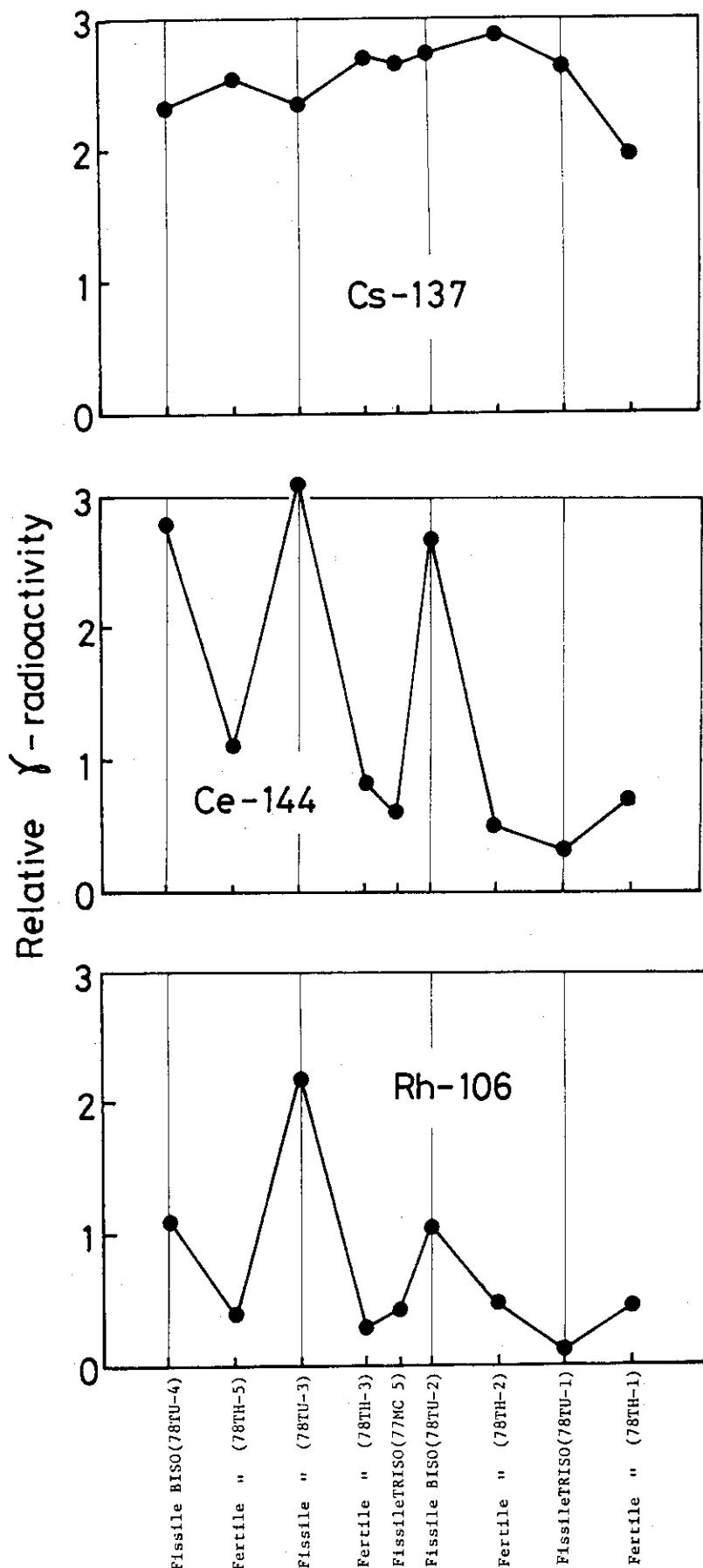


Fig. 4.15 FP Distributions in Fuel Holders of ICF-28H Capsule

#### 4.7 被覆層の照射挙動

粒子燃料の被覆層の照射挙動には、FPの粒子外への拡散防止に対する重要な課題が含まれている。これまでに外観観察、研磨断面観察、EPMAの観察等から被覆層の破損状態やFP保持・放出の結果を検討してきた。この項では、主に高密度PyC層の健全性にかかる照射特性－配向異方性、密度、圧縮破壊強度－について照射前後の変化の試験結果を述べる。

##### 4.7.1 光学的配向異方性(OPTAF)の測定

被覆層のうち最外高密度PyC(OPyC)層の光学的配向異方性について各キャップセルで照射した試料の照射前後の変化を観察するためにOPTAF(Optical Anisotropic Factor)の測定を行った。試料は未照射と照射後の被覆粒子で、各々3～4粒を樹脂に埋込み、半球になるまで研磨し、OPTAF測定した。測定点数は1粒につき4カ所で、データはその平均値をとっている。結果をTable 4.9に示す。今回の照射条件範囲内(最高高速中性子照射量 $2.22 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ,  $E > 0.18 \text{ MeV}$ )では各被覆粒子共、OPyCのOPTAFの照射前・後で変化が認められなかった。

##### 4.7.2 高密度PyC層の密度変化

最外高密度PyC層の照射による密度変化を調べた。照射後の被覆粒子はホットラボ鉛セル内で半球に研磨され、燃料核がとりのぞかれた。燃料核をのぞいたことによって放射能が低減した試料は、鉛セル外へ取り出すことができ、いくつかの測定に用いられた。最終的には、樹脂埋込状態の半球被覆層を再研磨してゆき、OPyC層のみを残した極少微片にして回収し、密度測定に使用された。測定は浮遊沈降法によった。すなわち、四臭化エタン( $\text{CHBr}_2 \cdot \text{CHBr}_2$ ,  $d^{20} : 2.97$ )+ベンゼン( $\text{C}_6\text{H}_6$ ,  $d^{20} : 0.88$ )混合液を用いてOPyCの密度と平衡に達したところで比重びんによる重量(密度)測定を行った。試料数は種類の異なる被覆粒子毎に1～7個程度で、ICF-28Hと78F-4Aの2キャップセルから中性子照射量と照射温度をパラメータとした試料のデータを得ることができた。結果をTable 4.10に示す。この表には照射後試料の密度変化のデータの他に未照射で炉外加熱(1200°C-50日)した後の測定データも示した。これによればこの条件での炉外加熱だけで2.3～3.4%程度の密度増加がおこることがわかる。照射後試料のうちICF-28Hキャップセルのものは照射温度・時間がほぼ同じであって、密度は2.2～5.3%の巾で増加している。これは温度に加えて高速中性子照射の影響があるものと考えてよい。更に中性子照射量が高い78F-4Aキャップセルの試料では、最高10%密度増加したものがあった。この試料は被覆の原料ガスに $\text{C}_2\text{H}_2$ を用いた78TU-3粒子のOPyCで、78TH-3粒子( $\text{C}_2\text{H}_2$ によるOPyC)と共に、照射後の密度増加率はその他の $\text{C}_3\text{H}_6$ によるOPyCの粒子よりも大きい傾向がみられた。8種類の粒子試料のうちのいくつかについて密度変化量を高速中性子照射量に対するグラフにしてFig. 4.16に示す。どれも被覆粒子製造時(未照射)の密度に対して高速中性子照射量と共に同じ傾向で増加している。グラフにはHewetteら<sup>6)</sup>が被覆層の中性子照射による影響を調べた結果から典型的な例を比較して示した。彼らの試料は燃料核のburnupの影響をなくすためにInert核を用いたTRISO型粒子で高速中性子照射量(最

高  $14.1 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ ,  $E > 0.18 \text{ MeV}$ )と照射温度 ( $750^\circ\text{C}$  及び  $1050^\circ\text{C}$ ) をパラメータに試験している。Fig. 4.16に比較して示した部分は、その照射量の低い域の一部である。被覆条件や照射温度が各々多少異なっているので厳密には比較できないが、その限りにおいて著者らのデータとよく一致した傾向を示している。この範囲では、密度増加率は大体同じで、初期の被覆密度がそのまま密度増加後も差となっている。なお、Hewette らのデータは、これより中性子照射量のずっと高い領域 ( $> 5 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ ) を境にして OPyC の密度は減少傾向となっている。

#### 4.7.3 被覆層の圧縮破壊強度

被覆粒子の照射特性のうち被覆層の内・外圧に対する強度が照射の前と後とでどのように変化するかを把握しておくことは、その健全性を知る上で重要な項目の一つである。しかし内圧強度試験の方法は試料が微小球であることや、鉛セルでの遠隔操作が必要であることなど技術的に難しく現在のところ実施されていない。従ってここでは外圧による圧縮破壊強度試験機によって得た測定結果を述べる。

測定に使った照射後試料は 78 F - 4 A キャップセルで照射した粒子で、外観観察と X 線ラジオグラフにより一粒づつ被覆層に破損のないことを確認した。試料粒子数は各々約 20 粒である。照射した粒子と同バッチの未照射（照射前）被覆粒子をあらかじめホットラボの圧縮破壊強度試験機で測定しておき、照射前・後の強度変化を比較した。粒子の破壊過程は、上下の平らな加圧板（超硬合金材、Hs91）の間で被覆粒子が圧縮されてまず被覆層が破壊され、さらに圧縮してゆくと次に燃料核が破壊に至る。そのそれぞれの圧縮荷重 (Kg) と歪量 ( $\mu\text{m}$ ) の最大値を測定データとしている。圧縮加圧速度は  $0.4 \text{ mm/min}$  である。結果を Table 4.11 に示す。被覆層のデータと共に燃料核のデータも並記してある。

まず、燃料核のデータについて考察すると、fissile 粒子 3 種 (78 T U - 1, 78 T U - 2 及び 78 T U - 3) の (Th, U) O<sub>2</sub> 核はすべて同じ製造バッチのものであり、照射前の破壊強度は  $2.24 \sim 2.27 \text{ kg}$  で当然ながらよく一致している。照射後はいずれも 20% 前後の破壊強度増加となっている。また、fertile 粒子 (78 T H - 2 のみ) も照射前は  $2.21 \text{ kg}$  で同程度の強度であるのに對して照射後はわずか  $2.3\%$  増であり変らず、fissile 核の場合とはかなり異なる。歪量は fissile, fertile 共、照射後に一様に増加しているがデータにバラツキがあって照射特性の傾向をみるととどめる。

一方、被覆層の方は fissile 粒子、fertile 粒子共 B I S O 被覆が照射後に破壊強度を増すのに對して、唯一の T R I S O 被覆粒子 (78 T U - 1) の場合は逆に減少した。これを前節で述べた OPyC の照射前・後の密度と対比させてプロットすると Fig. 4.17 のようになる。B I S O 粒子における OPyC 層は被覆層の唯一の強度部材となっている。従って圧縮破壊強度は OPyC 層の特性が直接影響するものと考えられる。その OPyC 層が照射後に図中の各々の中性子照射量と温度とに対して密度増加と破壊強度増加の結果を示した。これは高速中性子照射によって L T I PyC の密度が増す（収縮する）ことにより堅固な OPyC 層になり圧縮荷重により強くなったものと考えてよい。ただし W. J. Lackey ら<sup>7)</sup> の未照射被覆粒子の圧縮強度試験の研究では B I S O 被覆のバッファ層の密度も圧縮破壊強度に影響することが報告されているので、その密度が  $1.2 \text{ g/cm}^3$  以上の場合はこの点も考慮する必要があるだろう。Fig. 4.17 でもう一つ注目

する点は照射量と温度がより高い試料の方がOPyCの密度は増すものの破壊強度が減少するようみられることである。これがただ誤差範囲にあるものなのか、あるいは中性子照射量によるものか、温度によるものなのか、更に高い範囲の照射量と温度でのデータを得ることによって明らかになるであろう。

TRISO粒子の方は照射後のOPyCの密度がBISO粒子のOPyCと同程度に増加しているのに、破壊強度は明らかに減少している。今回のTRISO粒子の圧縮破壊強度試験は1種類だけだったが、すでに湊ら<sup>8)</sup>がUO<sub>2</sub>核TRISO粒子を使って同じ方法で行った結果と一致している。TRISO被覆の強度部材は第二層の高密度PyC(IPyC層)とSiC層それにOPyC層の三層から成っているために各層間の引張りと圧縮の相互作用が強度に大きく影響しているものと考えられ単純には論じられない。今回の試料のfissile粒子はBISOもTRISOも全く同じ燃料核を使っている上、照射条件も同じであるから、被覆層の破壊強度に対する燃焼度や発熱温度など燃料核の影響は基本的には同等と考えてよいであろうが、ここでは、結果的にTRISO被覆層の破壊強度が照射後に減少したことを指摘するにとどめる。

被覆層の圧縮破壊歪量はTRISO粒子が照射後に破壊強度と同様に減少していく定性的に「割れやすくなつた」ことがわかるが、BISO粒子の方は、傾向が一致しないところもあって更に範囲の広い条件での照射後の結果から考察しなければならない。

最後に、C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>原料ガスによりOPyC層を被覆した78TU-3粒子についてであるが、圧縮破壊強度試験の結果からは他のC<sub>3</sub>H<sub>6</sub>によるOPyC層の強度と特に差がみられなかったことを記しておく。

Table 4.9 OPTAF of OPyC Layer for Fertile and Fissile Coated  
Particles

被覆粒子バッヂ		78TH-1	78TH-2	78TH-3	78TH-5	78TU-1	78TU-2	78TU-3	78TU-4	備考		
被覆核	組成	ThO <sub>2</sub>				(Th, U) O <sub>2</sub>						
	被覆型式	BISO				TRISO	BISO					
0 P	照射前試料	<1.02	<1.02	1.008	0.998	<1.02	<1.02	1.007	1.003			
T	照射後試料	—	—	1.003	0.993	—	—	1.013	0.991	V0F-4II下段 照射試料		
A	—	1.005	1.001	1.005	0.993	0.998	0.996	1.004	ICF-28II 照射試料			
F	—	0.995	—	1.002	1.004	1.003	0.997	—	78F-4A ①照射試料			

測定試料数：3 - 4粒（測定点数4カ所／1粒）

Table 4.10 Effect of Neutron Irradiation on Density of OPyC Layer of Coated Particles

被覆粒子バッチ	78TH-1	78TH-2	78TH-3	78TH-5	78TU-1	78TU-2	78TU-3	78TU-4	
燃料核組成	ThO <sub>2</sub>				(Th, U)O <sub>2</sub>				
被覆型式	BISO				TRISO	BISO			
OPyC 原料ガス	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	
OPyC密度(g/cm <sup>3</sup> )	1.898	1.92	1.881	1.858	1.938	1.948	1.917	1.934	
未照射炉外加熱 (1200°C-50日)									
密度ρ <sub>1</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	—	—	1.9454	1.908	—	—	1.968	1.978	
△ρ <sub>1</sub> /ρ (%)	—	—	3.424	2.691	—	—	2.660	2.275	
照射(ICF-28H)									
密度ρ <sub>2</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	1.942	—	1.980	1.898	1.977	1.996	1.974	2.020	
△ρ <sub>2</sub> /ρ (%)	2.318	—	5.263	2.153	2.012	2.464	2.973	4.447	
照射量(n/cm <sup>2</sup> )	1.6x10 <sup>20</sup>								
OPyC 照射温度(°C)	1150	—	1225	1130	1150	1225	1210	1130	
照射(78F-4A)									
密度ρ <sub>3</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	—	—	—	1.9865	2.0666	2.0603	2.0809	—	
△ρ <sub>3</sub> /ρ (%)	—	—	—	6.913	6.636	5.765	8.550	—	
照射量(n/cm <sup>2</sup> )	1.61x10 <sup>21</sup>								
照射温度(°C)	770								
密度ρ <sub>4</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	—	2.1018	—	—	2.0725	2.1003	2.1089	—	
△ρ <sub>4</sub> /ρ (%)	—	9.469	—	—	6.940	7.818	10.010	—	
照射量(n/cm <sup>2</sup> )	2.22x10 <sup>21</sup>								
照射温度(°C)	1000								

Table 4.11 Crushing Strength of Coated Particles for  
78F-4A Capsule

粒子 バッチ No.		78TH-2	78TU-1	78TU-2		78TU-3			
燃料核組成		ThO <sub>2</sub>	(Th, U)O <sub>2</sub>						
燃料核直径 (μm)		455	506						
被覆型式		BISO	TRISO		BISO				
被 覆 層	バッファ層	厚さ (μm)	57	59.7	59.9	57.2			
		密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.14	1.17	1.17	1.03			
被 覆 層	PyC 層	厚さ (μm)	5.1	30.3	—	—			
		密度 (g/cm <sup>3</sup> )	(Seal)	1.93	—	—			
被 覆 層	SiC 層	厚さ (μm)	—	28.9	—	—			
		密度 (g/cm <sup>3</sup> )	—	3.20	—	—			
被 覆 層	PyC 層	厚さ (μm)	75.0	44.6	75.9	70.8			
		密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.92	1.94	1.95	1.92			
燃 料	破壊荷重平均値 (kg)	照射前	2.21	2.27	2.27	2.24			
		照射後	2.26	2.81 2.68	2.76 2.66	2.78 2.67			
核	破壊歪平均値 (μm)	照射前	6.2	8.8	8.5	6.7			
		照射後	7.6	11.7 11.6	11.9 8.8	9.1 8.5			
被 覆	破壊荷重平均値 (kg)	照射前	2.82	2.47	2.72	2.45			
		照射後	4.13	1.92 1.70	4.84 4.73	4.53 4.52			
被 覆 層	破壊歪平均値 (μm)	照射前	33.6	22.7	33.2	29.1			
		照射後	31.4	19.6 18.9	34.3 35.7	35.2 36.0			
照射条件	高速中性子照射量	2.22	1.61	2.22	1.61	2.22	2.22		
	熱中性子照射量 $\times 10^{21} (\text{n}/\text{cm}^2)$	1.35	0.93	1.35	0.93	1.35	1.35		
	照射温度 (°C)	1000	770	1000	770	1000	770		

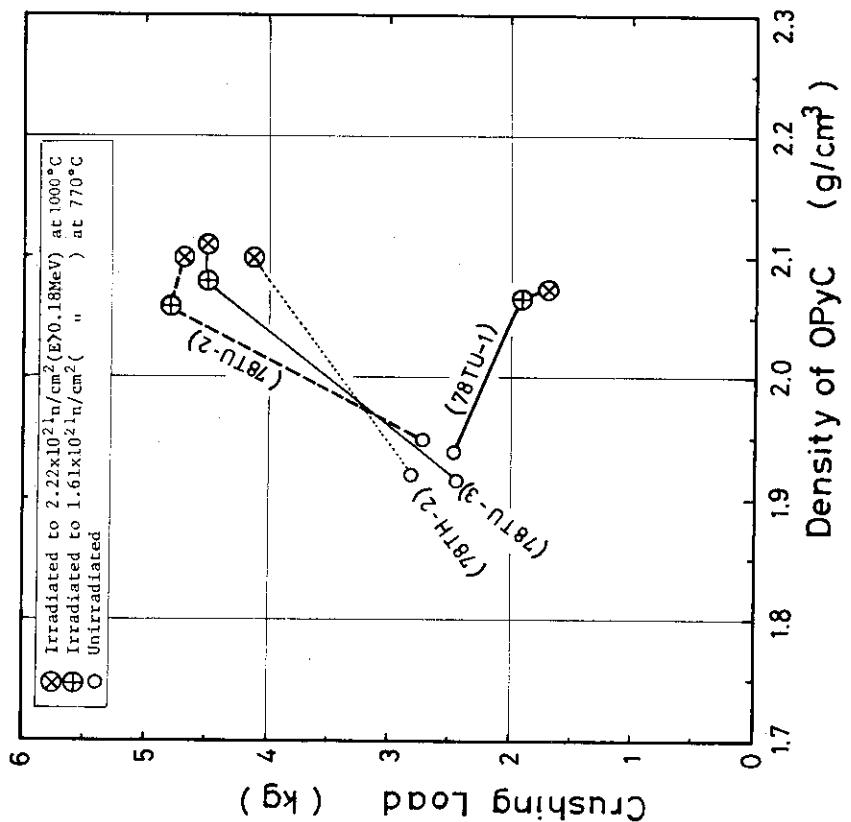


Fig. 4.17 Crushing Load of Coated Particles versus Density of OPyC Coatings

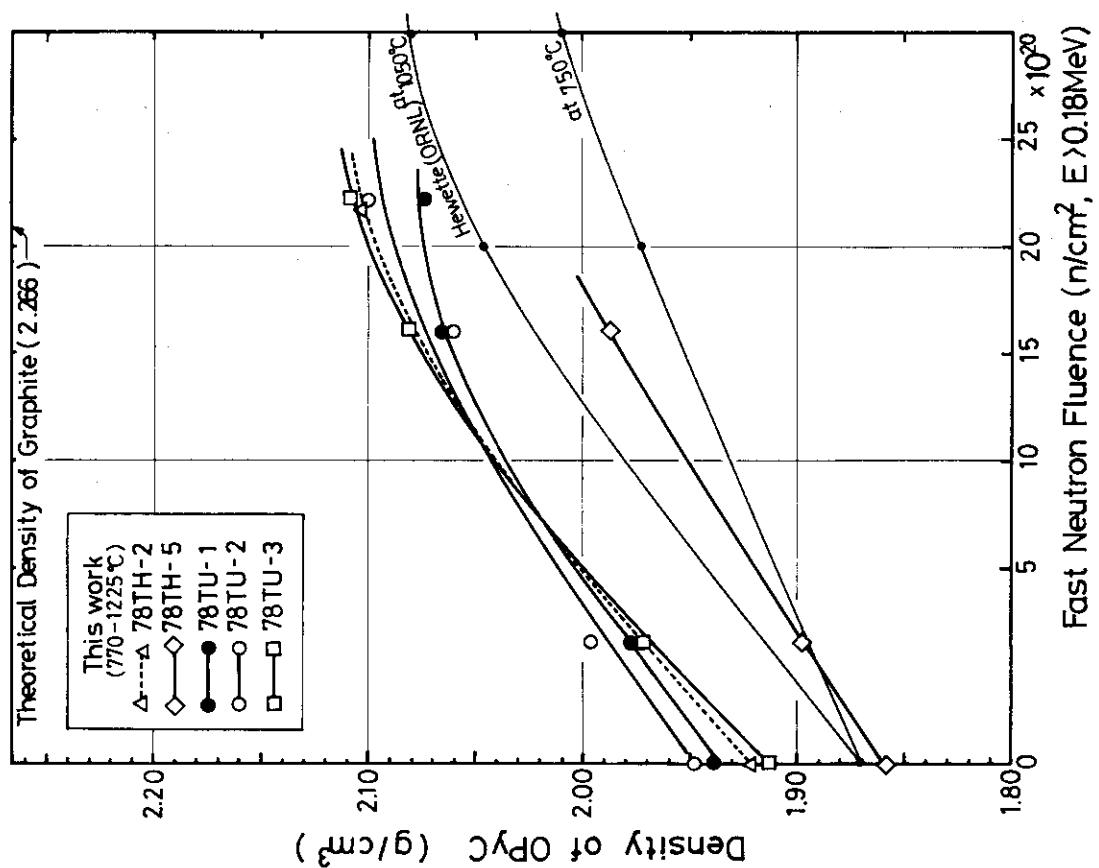


Fig. 4.16 Density Changes of OPyC as a Function of Fast Neutron Fluence

## 5. 結 論

$\text{ThO}_2$  と  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  を燃料核とし、 $\text{BISO}$  被覆を主体に  $\text{TRISO}$  被覆を含む 8 種類の酸化トリウム系被覆粒子燃料のキャップセル照射試験を実施した。試料の粒子は 3 体のキャップセルに無拘束 (loose) 状態で充填され、照射量 (最高)  $1.35 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  (th.)、 $2.22 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  (f)，照射温度  $1225^\circ\text{C}$  以下、燃焼率 (最高) 2.42% FIMA で照射された。その照射後試験から次のような結果を得た。

- (1) Fertile 用  $\text{ThO}_2 - \text{BISO}$  粒子、Fissile 用  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2 - \text{BISO}$  および  $\text{TRISO}$  粒子共全般的に安定した照射挙動を示し、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2 - \text{BISO}$  粒子に数粒の破損がみられたものの、現照射条件下的被覆粒子燃料としての健全性を確認した。また、 $\text{ThO}_2$  およびウラン 6.3 % 含有の  $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$  核は照射温度が比較的低かったこともあって顕著な結晶粒成長もみられず、生成 FP の偏析や燃料核移動 (アメーバ効果) 等も起きていない。
- (2) 被覆層の照射挙動では  $\text{OPyC}$  層の密度が高速中性子照射量と共に増加し、照射前の密度に対して  $2.22 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$  ( $E > 0.18 \text{ MeV}$ )、 $1000^\circ\text{C}$  照射後で最高約 10% 増加となった。 $\text{BISO}$  粒子の場合、この密度増加が圧縮破壊強度を増す結果になることがわかった。一方照射後の  $\text{TRISO}$  粒子は  $\text{OPyC}$  層の密度増加にもかかわらず圧縮破壊強度が減少する結果となった。
- (3) 高密度 PyC 層の生成原料ガス ( $\text{C}_2\text{H}_2$  又は  $\text{C}_3\text{H}_6$ ) のちがいによる照射特性に顕著な差はみられなかった。 $\text{C}_2\text{H}_2$  による  $\text{OPyC}$  層生成の 78 TU-3 粒子は Fissile 粒子のうちでもよい照射挙動を示した。

キャップセル照射試験の今後の課題としては、照射条件 (照射温度、中性子照射量) をパラメータとして更に高い領域、厳しい条件での酸化トリウム系被覆粒子の照射挙動を観察すること、かつ、無拘束状態の場合と燃料体としての本来の形状である黒鉛マトリックスに拘束 (bonded) された状態 - 燃料コンパクトの場合との照射挙動の変化等について究明してゆく必要があろう。

## 謝　　辞

昭和53年度にはじまる被覆粒子燃料としての酸化トリウムのキャップセル照射試験計画の最初の3体の試験を完了した。キャップセル照射試験は、かなり長い時間を要し、かつ、研究所の関連課室の多くの方々の御協力と多大の労力によって成し遂げられる。ここに、特に次の課室の諸兄に謝意を表します。

## (1) キャップセルの設計、製作、照射試験

東海研究所	研究炉管理部研究炉利用課
大洗研究所	材料試験炉部計画課、照射一課、同二課、同三課
東海研究所	技術部工作課

## (2) 照射後試験

東海研究所	研究炉管理部ホットラボ管理室
大洗研究所	材料試験炉部ホットラボ課

特に、キャップセルの設計・製作と照射試験を推進して下さった諸氏、照射済キャップセルの安全な輸送の推進、照射後試験における厖大なデータを出された諸氏に深く感謝します。

照射後試験の結果については、燃料照射研究室長福田幸朔氏、鹿志村悟氏、小林紀昭氏、湊和生氏に御教示いただいた。また、J M T R 照射の78F-4Aキャップセルは燃料照射研究室が照射試験を推進したものであり、その一部に当研究室のトリウム系試料を充填し、共同照射させていただいた。ここに重ねて感謝申し上げます。

本試験研究を遂行するにあたって御支援下さった燃料・材料工学部長近藤達男氏に謝意を表します。

酸化トリウム燃料核は、その需要・供給と核燃料管理上の理由からなかなか入手困難な状況にある。照射試料の一部は、当研究室（製造研究グループ山岸滋、高橋良寿両氏）による開発製造品である。また、トリウム燃料開発研究の一環としてたずさわった井川勝市氏に謝意を表す。

## 参 考 文 献

- 1) 山岸 滋, 高橋良寿他: 「ゾルゲル法による $\text{ThO}_2$  燃料核の製造」 JAERI 1271 (1981.6)
- 2) 伊藤昭憲, 小林紀昭他: 「酸化トリウム燃料核へのB I S O被覆」 日本原子力学会昭和54年々会要旨集H 20 (1979.3)
- 3) 小川 徹他: 「J M T R 照射低濃縮 $\text{UO}_2$ 核被覆粒子のPu核分裂割合」 JAERI-M 83-152 (1983).
- 4) P. E. Brown and R. L. Faircloth, "Metal Fission Product Behaviour in High Temperature Reactors -  $\text{UO}_2$  Coated Particle Fuel" J. Nucl. Mater., 59, 29 (1976)
- 5) P. W. Frank, "Recoil Range of Fission Fragments" WAPD-BT-30 (1964).
- 6) D. M. Hewette II et al. "Effects of Neutron Irradiation on Loose and Bonded Inert Particles Coated with Pyrolytic Carbon and Silicon Carbide", ORNL-TM-4551 (Aug. 1974)
- 7) W. L. Lackey et al. "Crushing Strength of High-Temperature Gas-Cooled Reactor Fuel Particles", Nucl. Technol. 31, 191 (1976)
- 8) K. Minato, K. Fukuda et al. "Crushing Strength of Irradiated TRISO Coated Fuel Particles", J. Nucl. Mater. 119, 326 (1983)