

JAERI - M
91-152

低濃縮ウランシリサイド小型板状燃料の
パルス後金相詳細観察

1991年10月

柳澤 和章

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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

低濃縮ウランシリサイド小型板状燃料のパルス後金相詳細観察

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

柳澤 和章

(1991年9月2日受理)

低濃縮(19.89w/o)ウランシリサイド小型板状燃料を作製し、燃料密度 4.8g/cm^3 のものについて原研安全性研究炉(N S R R)にてパルス照射を行った。研究目的は過渡時のシリサイド燃料板の寸法安定性と破損しきい値等を、パルス後の詳細金相観察により究明することにある。また、この種のデータは世界的にも類がない。得られた結果は以下の通りである。

- (1) 実験は仏セルカ社製の1枚の燃料板を照射カプセルに装荷し、パルス照射を行う方法で実施した。シリサイド燃料板に与えられた発熱量はそれぞれ62, 77, 116 及び $154\text{cal/g \cdot fuel}$ であり、測定されたシリサイド燃料板表面温度は $201 \pm 28^\circ\text{C}$, $187 \pm 10^\circ\text{C}$, $418 \pm 74^\circ\text{C}$ 及び $871 \pm 128^\circ\text{C}$ であった。
- (2) 400°C 以下では、シリサイド燃料板の破損はなく、健全性が保持されるとともに、寸法の変化も小さく安定性が良かった。 400°C 超え 540°C までの範囲でアルミ被覆材に粒界貫通割れが局所的に発生し、それ以上の温度では、アルミ被覆材の再結晶化と溶融、燃料芯材の露出、燃料板を貫通する粒界割れ等が認められた。これらから総合的に判断して、シリサイド燃料板の破損しきい値は約 400°C 付近であると考えられる。
- (3) 400°C を超えると燃料板の曲りが著しくなり、約 900°C で最大 7mm となった。燃料芯材の肉厚は初期 0.51mm から最大 1.7mm (236%)に増加した。これは、マトリクスアルミニウム及び被覆アルミニウムが再結晶化又は溶融をおこしたり、芯材ミートと相互反応をおこしたりした結果、スウェーリングが発生したためである。高温化した燃料板では、芯材のクリープ変形のため凸凹変形が著しくなった。アルミ被覆材は 640°C にて溶融し、一部は芯材と相互反応し、一部は表面張力や重力の効果で板状燃料内を移動し、また一部は凝固して塊状となった。すなわち、 400°C を超えて高温になるに従って、寸法安定性は失われる傾向にあった。しかし、ドッグボーンやブリスター現象は実験を通じて観察されなかった。
- (4) 400°C 以上の温度では、シリサイド燃料板に破損が発生したのにも拘らず、圧力波や機械的エネルギーの発生はみられなかった。これは、燃料芯材が溶融に至るまでは、圧力波や機械的エネルギーの発生はないであろうことを示唆するものである。

Post-pulse Detail Metallographic Examinations of Low-enriched
Uranium Silicide Plate-type Miniature Fuel

Kazuaki YANAGISAWA

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 2, 1991)

Pulse irradiation at Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) was performed using low-enriched (19.89 w/o ^{235}U) unirradiated silicide plate-type miniature fuel which had a density of $4.8 \text{ g}/\text{cm}^3$.

Experimental aims are to understand the dimensional stability and to clarify the failure threshold of the silicide plate-type miniature fuel under power transient conditions through post-pulse detail metallographic examinations. Obtained data through in-core experiments and post-pulse irradiation examinations (PIE) are quite new. The obtained results are as follows.

- (1) A silicide plate-type miniature fuel fabricated by CERCA, France was loaded into an irradiation capsule and irradiated by a single pulse. Deposited energies given in the experiments were 62, 77, 116 and 154 cal/g•fuel, which lead to corresponding peak fuel plate temperatures, $201 \pm 28^\circ\text{C}$, $187 \pm 10^\circ\text{C}$, $418 \pm 74^\circ\text{C}$ and $871 \pm 74^\circ\text{C}$, respectively.
- (2) Below 400°C , reliability and dimensional stability of the silicide plate fuel was sustained, and the silicide plate fuel was intact. Up to 540°C , wall-through intergranular crackings occurred in the Al-3%Mg alloy cladding. With the increase of the temperature, the melting of the aluminum cladding followed by recrystallization, the denudation of fuel core and the plate-through intergranular cracking were observed. Judging from these experimental results, the failure threshold of the tested silicide plate-type fuel is thought to be

close to 400°C.

- (3) With the increase of the temperature beyond 400°C, the bowing of fuel plate became significant. In the worst case the bowing was 7mm at about 900°C. The thickness of fuel core was increased by swelling from the initial value of 0.51mm to 1.7mm (236%) at maximum. This was due to the recrystallization and the melting of the aluminum cladding as well as the reaction of molten aluminum with fuel meat. Because of enhanced plasticity, the fuel core deformed largely in irregular manner.

Above the temperature of 640°C molten aluminum partially reacted with the fuel core, partially flowed downward under the influence of surface tension and gravity, and partially formed agglomerations.

Judging from these experimental observations, the fuel-plate above 400°C tends to reduce its dimensional stability. However, no dogborning and blister were observed in the tested fuel-plates.

- (4) Despite of the apparent silicide fuel-plate failure, neither generation of pressure pulse nor that of mechanical energy occurred at all. This implies that no mechanical energy release will occur until the occurrence of over all meat fragmentation.

Keywords: LEU (Low-Enriched Uranium), Silicide Plate-type Miniature Fuel, Al Cladding, Fuel Meat, Dimensional Stability, Failure Threshold

目 次

1. 緒 言	1
1.1 試験研究炉燃料の世界的な低濃縮度化	1
1.2 我が国の安全規制	2
1.3 我が国のシリサイド燃料に関する研究の現状	2
1.4 本研究の目的	3
2. 実験方法	4
2.1 シリサイド燃料板	4
2.2 炉内計装とパルス照射	5
2.3 発熱量とピーキング係数	6
3. 実験結果及び考察	7
3.1 508-1実験 (発熱量62cal/g・fuel)	7
3.1.1 過渡温度変化	7
3.1.2 解体時の所見	8
3.1.3 P I E	9
3.2 508-2実験 (発熱量77cal/g・fuel)	11
3.2.1 過渡温度変化	11
3.2.2 解体時の所見	11
3.2.3 P I E	12
3.3 508-3実験 (発熱量116cal/g・fuel)	14
3.3.1 過渡温度変化	14
3.3.2 解体時の所見	14
3.3.3 P I E	15
3.4 508-4実験 (発熱量154cal/g・fuel)	19
3.4.1 過渡温度変化	19
3.4.2 解体時の所見	21
3.4.3 P I E	21
4. 燃料ふるまいに関するSEM/XMA試験からの知見	27
4.1 高温下での燃料芯材とアルミニウム母相との反応	27
4.1.1 508-4 実験に関するSEM/XMA試験	27
4.1.2 508-1 実験に関するSEM/XMA試験	29

4.2 光学的顕微鏡で解明できなかった燃料ふるまいに関するSEM/XMA研究	30
4.2.1 508-1 実験, 試料6に関する考察	30
4.2.2 508-2 実験, 試料7に関する考察	30
4.2.3 508-3 実験, 試料5に関する考察	31
4.2.4 508-3 実験, 試料BTに関する考察	32
4.2.5 508-4 実験, 試料2に関する考察	33
4.2.6 508-4 実験, 試料3に関する考察	34
4.3 508-4 実験, 試料6Rの点分析	35
5. 安全性に係わる PIEデータの評価	36
5.1 燃料板温度	37
5.2 燃料板の曲り	38
5.3 燃料板の厚み変化	39
5.3.1 芯材厚み	39
5.3.2 アルミ被覆材	39
5.3.3 燃料板	39
6. 結　　言	40
謝　　辞	42
参考文献	42

Contents

1.	Introduction	1
1.1	World-wide Use of Enrichment Reduced Material Testing Reactor Fuel	1
1.2	Safety Regulation in Japan	2
1.3	Present Status of Japanese Research Activities on Silicide Plate-type Fuel	2
1.4	Purpose of the Present Study	3
2.	Experimental Method	4
2.1	Silicide Plate Fuel	4
2.2	In-core Instrumentations Attaching to the Fuel Plate and Pulse Irradiation	5
2.3	Energy Deposition and Peaking Factor	6
3.	Experimental Results and Discussion	7
3.1	Experiment 508-1 (Deposited Energy 62 cal/g·Fuel)	7
3.1.1	Transient Temperature Behavior	7
3.1.2	Observations from Disassembling	8
3.1.3	PIE	9
3.2	Experiment 508-2 (Deposited Energy 77 cal/g·Fuel)	11
3.2.1	Transient Temperature Behavior	11
3.2.2	Observations from Disassembling	11
3.2.3	PIE	12
3.3	Experiment 508-3 (Deposited Energy 116 cal/g·Fuel)	14
3.3.1	Transient Temperature Behavior	14
3.3.2	Observations from Disassembling	14
3.3.3	PIE	15
3.4	Experiment 508-4 (Deposited Energy 154 cal/g·Fuel)	19
3.4.1	Transient Temperature Behavior	19
3.4.2	Observations from Disassembling	21
3.4.3	PIE	21
4.	Findings on Plate Fuel Behavior Obtained from SEM/XMA Examinations	27
4.1	Reaction between Fuel Core and Aluminum Matrix under High Temperature Conditions	27
4.1.1	SEM/XMA on 508-4 Experiment	27
4.1.2	SEM/XMA on 508-1 Experiment	29

4.2 Detail Studies Made by SEM/XMA Regarding Undissolved Subjects Remained from Microphotographic Examination	30
4.2.1 Specimen 6 in Ex.508-1	30
4.2.2 Specimen 7 in Ex.508-2	30
4.2.3 Specimen 5 in Ex.508-3	31
4.2.4 Specimen BT in Ex.508-3	32
4.2.5 Specimen 2 in Ex.508-4	33
4.2.6 Specimen 3 in Ex.508-4	34
4.3 Point Analysis by XMA for Specimen 6R in Ex.508-4	35
5. Evaluation of PIE Data Related to the Fuel Safety Study	36
5.1 Fuel Plate Temperature	37
5.2 Bowing of Fuel Plate	38
5.3 Thickness Change of Fuel Plate	39
5.3.1 Core	39
5.3.2 Aluminum Cladding	39
5.3.3 Fuel Plate	39
6. Conclusions	40
Acknowledgment	42
References	42

1. 緒 言

1.1 試験研究炉燃料の世界的な低濃縮度化

我が国の試験研究炉（Research and Material Test Reactors, 以下MTR）である原研のJMTR、JRR-2、3、4、等で使用されている燃料は、これまで例えば93w/o ^{235}U といった高濃縮（High enriched uranium: HEU）のアルミナイト板状燃料（UA1x）及び中濃縮（Medium enriched uranium: MEU、例えば45w/o ^{235}U ）のアルミナイト燃料を使用してきた。しかし、1977年以降、米国ではINFCE(International Fuel Cycle Evaluation)とその第8ワーキンググループがHEU燃料の使用回避とU-235の低濃縮化について検討を行って来ており、その結論によれば非増殖型のMTR燃料としては約20w/o程度の低濃縮(Low enriched uranium: LEU)燃料が望ましいとされている。燃料形状をほぼ一定に保持したまま、この種のLEU燃料を製造するためには高密度燃料の開発が不可欠であることは自明であり、このため米国DOEを主体とするRERTR(Reducing Enrichment in Research and Test Reactors)計画が発足した。この国際計画での結論は、燃料密度4.8g/cm³程度を持つ低濃縮シリサイド燃料(LEU uranium silicide fuels)をHEUアルミナイト燃料(Aluminide fuels with HEU)の代用にするというものであった⁽¹⁾。

これを受けた米国からヨーロッパへのMTR燃料製造用中濃縮ウラン供給は、年々減少しており、このため我が国の試験炉で使用する中高濃縮MTR燃料のヨーロッパからの製造及び輸入も1990年代前半には停止すると見込まれている。このため我が国の試験研究炉もLEUシリサイド燃料への変更を余儀なくされる状況にある。

MTR燃料のメーカーは、例えばヨーロッパ経済共同体にあってはUKAEA Technology(所在地独 Dounreay)、1988年にNUKEM(Hanau, Germany)から技術移転を受けたFrance's CERCA(所在地仏 Romans)があり、米国ではBabcock & Wilcox(所在地 Lynchburg)がある。デンマークではRiso研が独自にMTR燃料を生産している他、アルゼンチンのCECN、インドネシアのBATANもNUKEM社の協力によりMTR燃料を作っている。

我が国の板状燃料を用いた試験研究炉では、燃料製造を仏セルカ社等のヨーロッパ諸国に依存している⁽²⁾。従って、現在使用しているMEU45%濃縮のアルミナイト板状燃料(Aluminide plate-type fuel)から、LEU約20w/o程度濃縮のシリサイド板状燃料に移行するのは時間の問題であろう⁽³⁾。

このようなMTR燃料LEU化に向かっての世界的な潮流がある。このため、LEU化に必要な(i)燃料板の製造及び検査技術、(ii)通常運転下での健全性、(iii)事故条件下での安全性、(iv)再処理と貯蔵等については、前記のRERTR計画を中心として、精力的な研究が行われて来た。各国の研究炉を使っての研究、大学及び燃料製造メーカーによる基礎研究及びデモ照射後の試験研究成果は、例えば第12回のRERTR会議でのプロシードィング等で詳細に報じられている。

ANLのTravelliによれば⁽⁴⁾、米国ORR(Oak ridge Research Reactor)では、 $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ 要素が全炉心にてデモ照射され、引き続いて行われた照射後試験から、

通常運転下の燃料健全性には何ら問題もない事が報告されている。安全規制の面からみると、NUREG-1313(1988)にて米国原子力規制委員会が、シリサイド燃料(濃縮度約20w/o、ウラン密度 4.8 g/cm^3)の健全性について詳細な評価を行っている⁽⁵⁾。この評価のデータベースはANL(Argonne National Laboratory)によるORR照射研究である。燃料の製造特性(B&W、CERCA及びNUKEM燃料を使用)及び局所燃焼度9.8%(要素平均で $82\%^{235}\text{U}$)までの通常運転下の燃料健全性につき検討した結果、ウラン密度 4.8 g/cm^3 までの $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ 分散型燃料を試験研究炉に用いるのは妥当であると結論されている。

しかし、重要なこととして、同報告書の中でも何回か繰り返し記述されているように、事故条件下での $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ 分散型燃料の安全性に関するデータが現在のところ全くないという事実がある。

1.2 我が国の安全規制

我が国の安全規制では、軽水炉を対象とした反応度事故指針⁽⁶⁾においては、(I) 運転時の異常な過渡変化にあっては、燃料被覆は機械的に破損しないこと、(II) 事故時にあっては、燃料破損に伴う著しい機械的エネルギーを発生しないこと、

等の判断基準が定められている。燃料の形態が棒状であれ、板状であれ、この判断基準の基本的概念に変わりはないと思われる。しかし、シリサイド板状燃料については、上記(I)及び(II)の具体的基準値を定める確固としたデータ(例えば、燃料破損と温度の関係を示すデータ)がないので、それを可能ならしめる試験研究が急務であるとされてきた。

アルミナイト板状燃料を用いた研究炉に関しては、燃料板の健全性保持のため、燃料破損しきい値としてブリストラ発生温度(約515~570°C)に安全余裕をみた温度(約400°C)が目安とされて来たようである。また、機械的エネルギーの発生しきい値については、燃料蒸発温度に安全余裕をとった燃料被覆溶融温度(約582°C)が目安とされて来たようである。これらについては、米国ANLのTREAT(Transient Reactor Test Facility)等におけるアルミナイト合金燃料の反応度事故模擬実験の結果が参考してきたようである⁽⁹⁻¹²⁾。

前述したように、シリサイド燃料については、反応度事故時の燃料破損しきい値及び機械的エネルギーの発生しきい値等に関する安全規制に必要なデータは今までのところない。

1.3 我が国のシリサイド燃料に関する研究の現状

我が国では、1986年にMEU炉心に転換したJMTR(Japan Materials Testing Reactor)が、1993年にJMTR全炉心をMEU燃料からLEU燃料(密度 4.8 g/cm^3 のシリサイド燃料にCdワイヤーを可燃性吸収体としてつけたもの)に転換すべく諸々の準備を進め

ている⁽³⁾。

このうち、燃料の健全性に係る試験では、ウラン密度の異なる小型試験燃料板(4.8 g/cm^3 と 5.3 g/cm^3 の U_3Si_2 、 5.3 g/cm^3 の U_3Si)を燃焼度25~38%までキャップセル照射し(照射中の芯材温度134°C、被覆材温度110°C)、健全性の観点から良好な燃料性能データを得ている⁽¹³⁾。JMTRでは小型試験燃料板を用いたブリスター試験も実施し、525°C以上でそれが発生することが確認されている。このブリスター温度以上では、燃料がふくれて破損することを考えれば、ブリスター発生しきい温度は、いわば被覆の機械的な破損しきい値とほぼ同じであり、重要である。前述のNUREG-1313では、ORRの結果としてブリスター温度が515~570°Cと報告されており、Beeston⁽¹⁴⁾の報告した UA1x のブリスター温度とほぼ同等である事が判明している。

一方、事故時の燃料安全研究は、諸外国と同様、我が国においても、これまでのところ皆無である。しかし、運転時の異常な過渡条件及び事故時における反応度の異常付加についてJMTRを対象とした解析した例⁽¹³⁾があるので、その解析結果を以下(i)と(ii)に紹介する。

(i) 運転時の異常な過渡変化

運転時の異常な過渡変化事象の1つとして、例えば炉心内の反応度又は出力分布の異常な変化が考えられる。それらは

- (a) 原子炉起動時における制御棒の異常な引き抜き
- (b) 出力運転中の制御棒の異常な引き抜き
- (c) 実験物の異常等による反応度の付加
- (d) 冷水導入による反応度の付加(板状燃料を使用する原子炉)

に代表される。JMTRを対象とした解析結果によれば、燃料芯材最高温度及び燃料板表面最高温度に対して最も厳しい事故は(b)の場合であり、前者は約249°C、また後者は217°Cとなるとされている。

(ii) 事故時

事故時における反応度の異常な付加としては、実験設備等の損傷による反応度の異常な付加(炉内ループ実験設備を有する原子炉)、並びに燃料落下又は燃料誤装荷が想定されている。JMTRを対象とした前者に対する解析結果によれば、この反応度事故により芯材温度ピークは273°Cに、また燃料板表面温度は234°Cになるとされている。

一方、原子炉冷却材の流失又は炉心冷却状態の著しい変化に対応した想定事故のうち、JMTRに関して燃料芯材温度ピークが最も厳しくなるのは、異物による炉心路閉塞(板状燃料を使用する原子炉)である。解析例によれば燃料芯材温度ピーク約297°C、燃料板表面温度ピークは約228°Cに達するとされている。

1.4 本研究の目的

近い将来、原研の試験研究炉特にJMTR等にシリサイド燃料板が使用されることがあれば、安全評価の判断基準を定めるうえで、過渡時の燃料ふるまいデータが必要となるであろう。JMTR等では、仏セルカ社のシリサイド燃料や米B & W社製のシリサイド燃料等が使用されると思われる。そこで、本報では、まず仏セルカ社製の未照射シリサイド燃料板を用いて、NSRRにてパルス照射を行うこととした。NSRR炉心構造上の制約から、用いた燃料板は、試験炉で使用予定のものよりも寸法が小さくなっているが、被覆材や芯材の材質、及びそれらの肉厚は比較対象のJMTR等の仕様に合わせて製作した（詳細については後述する）。実験では、アルミニウム被覆材の機械的破損のしきい値やそのメカニズム及び燃料破損に伴う機械的エネルギーの発生しきい値等を解明することを目的とした。

このため実験後は、詳細な照射後試験を実施して、燃料板の寸法安定性等について考察することとした。この種の実験データは、これまでに報告された例がないので、本報にてそれを速報するものである。

2. 実験方法

2.1 シリサイド燃料板

本実験に試料として用いた低濃縮ウランシリサイド・アルミニウム分散型小型板状燃料 (Low-enriched uranium silicide-aluminum dispersion miniature plate-type fuel以下シリサイド小型燃料板) は、フランスCERCA(Compagnie pour l'Etude et la Realisation de Combustibles Atomique, Romanssur-Isere, France)にて製作した。セルカ社製のシリサイド小型燃料板の製作過程については、すでに文献等で報告されている^(16, 17)。すなわち、燃料芯材は、Table 2.1に示すように、ウランシリコン合金粉末(シリコン重量約7.5w/o)とアルミニウム粉末を機械混合したのち、圧縮成型し、所定の板状形状に仕上げたものである。この途中の過程では、溶解と均質化処理が含まれている。しかし、Fig. 2.1に示すように、ウランシリコン2元合金状態図上⁽¹⁷⁾では、U₃Si₂は単一組成(ラインコンパウンド)であるため、通常の製作工程においてU₃Si₂を析出させようとしてもUSiが僅かではあるが同時に析出する。本供試試料ではU₃Si₂+USi中のU₃Si₂は97w/o以上である。

また、アルミニウムはこのウランシリコン合金に母相(マトリクス)として存在するため、芯材の構成成分はU-21w/oAl-6w/oSiのようになる。U-Al-Siの3元合金は、216°C以下では極めて相互反応しにくいとされているが、617°C(890K)以上になると共析反応をおこし、U₃(Al, Si)₈を形成するとの報告がある^(5, 18)。このU₃(Al, Si)₈中にはUA1x結晶も含まれ、アルミニウムとシリコンの置換がおこるようである。Table 2.2は、本実験で用いたシリサイド小型燃料板の製作仕様である。これから分かるように、燃料芯材発熱部の肉厚は、平均約0.51mmであり、Al-3w/oMg合金被覆材(フランス規格では、これをAG3NEと称している。以下、単にアルミニウム被覆材と称す)の肉厚は、平均約0.38mmである。

近い将来、原研の試験研究炉特にJMTR等にシリサイド燃料板が使用されることがあれば、安全評価の判断基準を定めるうえで、過渡時の燃料ふるまいデータが必要となるであろう。JMTR等では、仏セルカ社のシリサイド燃料や米B&W社製のシリサイド燃料等が使用されると思われる。そこで、本報では、まず仏セルカ社製の未照射シリサイド燃料板を用いて、NSRRにてパルス照射を行うこととした。NSRR炉心構造上の制約から、用いた燃料板は、試験炉で使用予定のものよりも寸法が小さくなっているが、被覆材や芯材の材質、及びそれらの肉厚は比較対象のJMTR等の仕様に合わせて製作した（詳細については後述する）。実験では、アルミニウム被覆材の機械的破損のしきい値やそのメカニズム及び燃料破損に伴う機械的エネルギーの発生しきい値等を解明することとした。

このため実験後は、詳細な照射後試験を実施して、燃料板の寸法安定性等について考察することとした。この種の実験データは、これまでに報告された例がないので、本報にてそれを速報するものである。

2. 実験方法

2.1 シリサイド燃料板

本実験に試料として用いた低濃縮ウランシリサイドーアルミニウム分散型小型板状燃料 (Low-enriched uranium silicide-aluminum dispersion miniature plate-type fuel以下シリサイド小型燃料板) は、フランスCERCA(Compagnie pour l'Etude et la Realisation de Combustibles Atomique, Romans-sur-Isere, France)にて製作した。セルカ社製のシリサイド小型燃料板の製作過程については、すでに文献等で報告されている^(16, 17)。すなわち、燃料芯材は、Table 2.1に示すように、ウランシリコン合金粉末(シリコン重量約7.5w/o)とアルミニウム粉末を機械混合したのち、圧縮成型し、所定の板状形状に仕上げたものである。この途中の過程では、溶解と均質化処理が含まれている。しかし、Fig. 2.1に示すように、ウランシリコン2元合金状態図上⁽¹⁷⁾では、U₃Si₂は単一組成(ラインコンパウンド)であるため、通常の製作工程においてU₃Si₂を析出させようとしてもUSiが僅かではあるが同時に析出する。本供試試料ではU₃Si₂+USi中のU₃Si₂は97w/o以上である。

また、アルミニウムはこのウランシリコン合金に母相(マトリクス)として存在するため、芯材の構成成分はU-21w/oAl-6w/oSiのようになる。U-Al-Siの3元合金は、216°C以下では極めて相互反応しにくいとされているが、617°C(890K)以上になると共析反応をおこし、U₃(Al, Si)₂を形成するとの報告がある^(5, 18)。このU₃(Al, Si)₂中にはUA₁x結晶も含まれ、アルミニウムとシリコンの置換がおこるようである。Table 2.2は、本実験で用いたシリサイド小型燃料板の製作仕様である。これから分かるように、燃料芯材発熱部の肉厚は、平均約0.51mmであり、Al-3w/oMg合金被覆材(フランス規格では、これをAG3NEと称している。以下、単にアルミニウム被覆材と称す)の肉厚は、平均約0.38mmである。

本供試試料をシリサイド小型燃料板と称しているのは、供試シリサイド燃料と試験研究炉に供試される予定のシリサイド燃料との比較結果によるものである。すなわち、Table 2.3に示すように、燃料芯材寸法としては、NSRR供試試料の芯材は模擬性の対象となったJMTR供試燃料板の1/10(長さ)～4/10(幅)の範囲にある。また、燃料板寸法としては、NSRR供試試料はJMTR燃料板の2/10(長さ)～5/10(幅)の範囲にある。すなわち、燃料芯材として板の長さは約1/10、板の幅は5/10しかない小型燃料板である。

Fig. 2.2は供試燃料であるシリサイド小型燃料板の概略図である。燃料芯材は、通常アルミニウム被覆材に覆われていて肉眼でのぞいてみてもその存在が確認できないので、破線で示されている。また、燃料板には実験の都合上識別番号が刻印されている。照射後試験では、燃料板の上下、表裏の区別が必要なことがよくおこる。そこで、燃料番号の刻印側を底部(Bottom)とし、その反対側を頂部(Top)とした。また、燃料番号を刻印した面を表面(Front)とし、その反対面を裏面(Back)と称した。

供試燃料板に炉内計装機器として、Pt/Pt-13%Rh素線(直径0.2mm)を5本直接スポット溶接した。熱電対取り付けの終了した燃料板の状態を、Fig. 2.2中に示す。熱電対溶接は、燃料板の表面のみでありかつFig. 2.2に示すような位置に取り付けた。熱電対の識別番号は、図のように、左下すみを熱電対番号1(以下、#1)とし、反時計回りに#2～#5とした。この熱電対#5の位置を炉心中央位置と合わせ、パルス照射実験を実施した。熱電対素線は、被覆材肉厚0.38mmに対して概略表面より0.05～0.08mmの深さ(肉厚の13%～21%に相当する深さ)にまで熱拡散結合させている。この熱電対取り付け技術開発等、本実験を開始するにあたって準備したこと、また解決した技術的課題等は、別報にまとめた⁽¹⁹⁾。

2.2 炉内計装とパルス照射

パルス照射実験は4回行ったが、実験の識別番号は従来のNSRR実験番号のつづきにならない、実験シリーズ508と称する。

Pt/Pt-13%Rh熱電対をアルミニウム被覆材表面に溶接したあと、燃料板はFig. 2.3に示すように支持具に固定した。図は、燃料板が実際に炉内におかれた状態を模擬しようとしたため、組立工程とはさかさまの状態(燃料板の底が上になる状態)になっている。組立終了後、Fig. 2.4に概要を示すVII型照射カプセル中に、燃料板及び支持具を同時に装荷した。このVII型照射カプセルは、NSRRにて通常用いられている照射カプセル(壁厚5mm)に比較して、最小壁厚が15mmと3倍程度になっている。これは、シリサイド燃料板が板状金属燃料であること、溶融点がUO₂燃料の溶融点(2850°C)よりも低く(約1/2)かつ熱伝導特性が10倍も良いこと等を考慮し、燃料破損が生じても十分に破損燃料をカプセル内に封じ込めておく事ができるよう配慮したためである。

Fig. 2.3及び2.4から分かるように、照射カプセルには、燃料板表面温度測定用のPt/Pt-13%Rh熱電対以外にも計装機器が組み込まれた。すなわち、燃料板が溶融

破損して、その結果圧力波が生ずれば、それを測定できるようカプセル底部とカプセル頂部(プレナムガス部)に圧力計を各々1つずつ取り付けた。また、燃料板が溶融破損して冷却水がカプセル頂部のプレナム方向に吹き上げられた場合には、冷却水(軽水)の水面の移動速度を測定できるような水塊速度計も取り付けた。また、冷却水の温度を測定するため、クロメル／アルメル熱電対を燃料板裏面中央点から10mm程度離した位置に1対取り付けた。これら計装の詳細については別報⁽²⁰⁾にて報告済みであるので、それを参照されたい。

実験では、単一パルス照射を行ったが、その場合の出力波形の典型例をFig. 2.5に示す。NSRRの有するパルス出力特性については、以下に述べる。

NSRRは、改良トリガ型環状炉心パルス炉(TRIGA-ACPR)であり、最高反応度投入量4.67\$ (=3.41%△K)の単一パルス運転が可能である。この単一パルス運転によつて、最小炉周期1.13 msec、炉心最大積分出力117MWs、最大出力21.1GWが達成できる⁽¹⁵⁾。このNSRR炉心性能を利用すると、安全評価の判断基準を定める上で必要とされる反応度事故時の燃料ふるまい、燃料破損しきい値、燃料破損に伴う機械的エネルギー発生しきい値の解明が可能である。

未照射板状燃料を用いた本実験の概要は、Table 2.4に示す通りである。1枚の燃料板に与える発熱量を、ステップ状に増加しつつ実験が進められた。各実験毎の主要な目的は、4回のパルス実験のうちの前半の2回が燃料板の寸法安定性を、また後半の2回が破損しきい値を明らかにすることにあった。

2.3 発熱量とピーキング係数

これまでのNSRR実験では、供試燃料に投入された発熱量Eg(cal/g·UO₂)を求めるため、パルス照射後の燃料(UO₂ペレット)の1部を切断後溶解し、溶解試料の重量を測定したのち、それを化学的に燃焼度分析することにより求めて来た。すなわち、燃焼度分析から、試験燃料の発熱量とNSRRの積分出力の比としてkg(cal/g·UO₂ per MWs)という発熱量換算係数値が求まるので、この値と、原子炉に備え付けのマイクロフィッシュンチェンバーから得た原子炉積分出力P(MWs)を用い、Eg=k g·Pにより発熱量が求められた。

しかしながら、シリサイド小型板状燃料に関しては、アルミニウム母相(マトリクス)中にU₃Si₂粒が島状に分散していること、かつ燃料板成形加工時にマトリクス中に空孔(ボイド)が混在すること等の理由から、シリサイド燃料板では切断試料の重量を精度良く秤量するのは困難である事が判明した。そこで、供試燃料板はパルス照射後切断せず、そのままの形状に対してガンマ線に対する定点スペクトル測定を行うこととした。

発熱量を求めるための定点スペクトル測定は、508-2実験に用いた燃料板CS514 816を用いて行った。測定データとして得られたCs-137等の核種から発熱量を評価した結果、本実験体系については、原子炉積分出力1MWsにつきkg=6.2 cal/g·fuelという値が得られた。この値は、あらかじめ行っていた計算予測値⁽²¹⁾である5.8 cal/g·fuelとも、比較的良く合った。

一度このkg値が定まれば、同一実験体系中ではこの値は不变である。従って、それ以後の実験では、 $E_g=6.2P$ という換算式により、原子炉積分出力Pの測定値を用いて、実験毎に次々と発熱量を定めた。このようにして定めた各実験における発熱量を、Table 2.4に一覧した。

508-2実験のシリサイド小型燃料板については、発熱量評価だけでなく、横方向及び長手方向のγ線強度分布（具体的には⁹⁵Nb等によるγ線）を求めた。これは局所的な燃料ふるまいを評価するうえで重要なことである。また、板状燃料においては、成形加工時に燃料芯材端において、ドッグボーン（Dogboning：芯材端における芯材厚みの増加）、被覆肉厚の薄肉化及び芯材の局所分離（Stray fuel particles）、ボイド率の増加等が生じている可能性があり、これらに対するパルス照射の影響、特に燃料板高温化の影響を調べるにはこのγ線の強度分布状況を知っておくのが重要である。特にドッグボーンが生じていると、単位面積当たりの濃縮ウラン密度が上昇し、そこでは局所的に発熱密度が高くなる可能性がある。また、U-235を多く含む芯材端とアルミニウム被覆材（非核分裂材）との境界面には、発熱ピークが生じやすく、ここで燃料板の曲りの加速等がおこることは、よく知られていることである。

Fig. 2.6はガンマスキャニングの結果を示している。測定された核種はNb-95、Ru-103、Zr-95等であったが、図ではNb-95の結果を示す。この図から分かるように、長手方向及び横方向中心線沿いのスキャンについては、いずれも芯材端部においてエンドピーキングが生じていた。この値は、長手方向で1.15（頂部側）及び1.28（底部側）であり、横方向が1.18となった。すなわち、燃料板底部側では、最大28%も大きな局所出力スパイクが生じる可能性が示唆された。このピーキングは中性子束の芯材端における不連続性から生じたものであり、ドッグボーン等によるものではない事は、後述する照射後試験の結果により確認した。

一方、取り付け熱電対とピーキングとの関係をみると、いずれの熱電対もピーキング係数が1.0付近に取り付けられてあった。従って、燃料温度と燃料板平均発熱量は、何らの補正なしに使用できる。

3. 実験結果及び考察

以下では、実施した4つの実験、すなわち508-1実験～508-4実験について、炉内計装類から得られた過渡データ及び照射後試験(Post-pulse irradiation examination、以下PIE)から得られた結果及びこれに基づく、シリサイド小型板状燃料の過渡ふるまいについての考察を述べる。

3.1 508-1実験（発熱量 62 cal/g·fuel）

3.1.1 過渡温度変化

この実験では、燃料板底部側熱電対#1が何らかの原因で破損したが、残りの#2

一度このkg値が定まれば、同一実験体系中ではこの値は不変である。従って、それ以後の実験では、 $Eg=6.2P$ という換算式により、原子炉積分出力Pの測定値を用いて、実験毎に次々と発熱量を定めた。このようにして定めた各実験における発熱量を、Table 2.4に一覧した。

508-2実験のシリサイド小型燃料板については、発熱量評価だけでなく、横方向及び長手方向の γ 線強度分布（具体的には ^{95}Nb 等による γ 線）を求めた。これは局所的な燃料ふるまいを評価するうえで重要なことである。また、板状燃料においては、成形加工時に燃料芯材端において、ドッグボーン（Dogbonning：芯材端における芯材厚みの増加）、被覆肉厚の薄肉化及び芯材の局所分離（Stray fuel particles）、ボイド率の増加等が生じている可能性があり、これらに対するパルス照射の影響、特に燃料板高温化の影響を調べるにはこの γ 線の強度分布状況を知っておくのが重要である。特にドッグボーンが生じていると、単位面積当りの濃縮ウラン密度が上昇し、そこでは局所的に発熱密度が高くなる可能性がある。また、U-235を多く含む芯材端とアルミニウム被覆材（非核分裂材）との境界面には、発熱ピークが生じやすく、ここで燃料板の曲りの加速等がおこることは、よく知られていることである。

Fig. 2.6はガンマスキャニングの結果を示している。測定された核種はNb-95、Ru-103、Zr-95等であったが、図ではNb-95の結果を示す。この図から分かるように、長手方向及び横方向中心線沿いのスキャンについては、いずれも芯材端部においてエンドピーキングが生じていた。この値は、長手方向で1.15（頂部側）及び1.28（底部側）であり、横方向が1.18となった。すなわち、燃料板底部側では、最大28%も大きな局所出力スパイクが生じる可能性が示唆された。このピーキングは中性子束の芯材端における不連続性から生じたものであり、ドッグボーン等によるものではない事は、後述する照射後試験の結果により確認した。

一方、取り付け熱電対とピーキングとの関係をみると、いずれの熱電対もピーキング係数が1.0付近に取り付けられてあった。従って、燃料温度と燃料板平均発熱量は、何らの補正なしに使用できる。

3. 実験結果及び考察

以下では、実施した4つの実験、すなわち508-1実験～508-4実験について、炉内計装類から得られた過渡データ及び照射後試験(Post-pulse irradiation examination、以下PIE)から得られた結果及びこれに基づく、シリサイド小型板状燃料の過渡ふるまいについての考察を述べる。

3.1 508-1実験（発熱量 62 cal/g·fuel）

3.1.1 過渡温度変化

この実験では、燃料板底部側熱電対#1が何らかの原因で破損したが、残りの#2

～#5の熱電対（以下、T/Cと称す）は健全であった。Fig. 3.1.1は、パルス照射直後から10秒の間においてそれら4本のT/Cから得られた燃料板被覆表面温度データである。図から分かるように、パルス開始直後にアルミニウム被覆材の温度は急激に上昇した。

4本のT/Cとも、殆んど同じようなふるまいを示しておりデータ間の再現性も良い。パルス直後の状態をもう少し詳細に知るために、1秒間の時間幅でデータを拡大プロットした結果が、Fig. 3.1.2である。この図では、原子炉出力、T/C#2、T/C#3及び中心のT/C#5の熱電対データを同時にプロットした。これらの熱電対は、図中に例示されているように、マップ中に○印で囲んだ。以後の記述もこの例に従うものとする。図から分かるように、パルス出力の立ち上りに追従して燃料板表面温度は上昇し、T/C#2で177°C、T/C#3で216°C、そしてT/C#5で178°Cの温度ピークを記録した（T/C#4は表示されていないが234°Cが温度ピークであった）。熱電対温度は温度ピーク到達後約0.1秒で100°Cに下がっている。前図Fig. 3.1.1から分かるように、それ以後温度は徐々に水温に向かって降下している。

このときの燃料板近傍（燃料板表面より10mm）の冷却材の温度ふるまいは、Fig. 3.1.3に示すとおりである。すなわち、パルス開始とともに、冷却材温度は20.4°Cから33.5°Cに上昇し、それ以後数秒でほぼ初期温度に復帰した。

Fig. 3.1.4は、冷却材水面上の浮き子(Floating buoy)の上下動変化を炉出力とともに示したものである。燃料板の発熱によって急激な気泡発生による水面の乱れあるいは支持具の振動のため、僅かに冷却材水面が波だった事が示されているが、燃料破損を示すデータではない。

燃料破損があって圧力波が生じたり、破壊力が出たりすれば、Fig. 3.1.5に例示するように、非常に規則正しい大きな圧力と激しい浮き子の上下動が生ずるはずである。508-1実験だけは照射キャップセルの底部及び頂部内圧計を、計装していなかったので、炉内データは得られなかった。しかし、燃料非破損はPIEより確認されている。

以上の結果は、とりまとめTable 3.1に示した。

3.1.2 解体時の所見

パルス照射後、44日間の冷却を経て供試照射カプセルを解体した。Photograph 3.1.1は、解体直後に撮影した燃料板の外観写真である。燃料板表面では、燃料番号刻印箇所及び熱電対溶接箇所が少し薄茶色に変色していた。前者は、ステンレス製のグリッピング治具で燃料板をはさんでいたことによるもの、後者は異種金属である熱電対線(Pt-Rhの合金)が存在していた事によるもので、軽度の酸化の結果と思われる。全体的に被覆材表面は灰白色であり、製造時とあまり変わりがなかった。

特徴的なこととして以下が挙げられる。

- (1) 外観上、ブリスター、曲り、ねじれ等はみられなかった。
- (2) 被覆材裏面に、極く小さいが直径0.4mm程度のピッティング（深さは測定しな

かった)が、約13ヶ所程点在していた。それらは、全て発熱した芯材の被覆上であった。これは、T/C溶接時に溶接端子の電極から流れる電流によって生じた、スパークの影響により生じたものと考えられる。燃料ふるまいの直接的な影響はないと思われる。

(3) 熱電対溶接時及び燃料板組立時に発生したと思われる被覆材表面のこすり傷が、表面のみならず裏面側にも白くみえた。これは、1つには熱電対を溶接する際に、支持台座上にアルミニウム被覆材をのせて溶接するためであり、1つには燃料組立時にノギスやマイクロメータで肉厚や寸法を測定するためである。この最中に、写真にみられる接触キズが発生したと考えられる。しかし、これらによる燃料ふるまいへの直接的な影響はないと思われる。

3.1.3 PIE

3.1.3.1 寸法測定

燃料板長手方向、横方向及び肉厚方向を寸法測定したが、Table 3.2に示すように殆んど変化がなかった。以後、寸法測定等PIEの結果は、全てこの表にまとめて示し、後の考察に供するものとする。

3.1.3.2 X線検査

Photograph 3.1.2は、X線撮影した燃料板の写真である。パルス照射前のX線写真撮影を行なわなかったので比較できなかったが、パルス照射後の燃料板に有意な変形、曲りは観られない。肉厚方向についても、変化はない。目視観察では見えなかつた燃料芯材が、写真中では良く見えている。芯材の外側にうすく矩形状にみえるのがアルミニウム被覆材である。図中(a)と(b)の縦の長さが合わないのは、(b)において試料が傾いて、影が出来ているためと思われる。

あらかじめお断りするが、この燃料板はこのあと予定の切断に入る前に、誤って人間の手で曲げられてしまった。以後、切断後の金相写真において大きな曲りの入った試料写真が出て来るが、これは照射によるものではなく人為的ミスによって生じたものである。

3.1.3.3 切断、研磨、金相観察

X線検査からの写真によって、燃料芯材の位置が判明した。金相用供試試料は、横切りであれ縦切りであれ、どこか1箇所は必ず、熱電対部を含むようにした。これによって、燃料ふるまいと局所温度の相関がとれるからである。切断は、肉厚約0.4mmのダイヤモンドカッター(外径75mm)を用い、回転数150rpmにて常時試料が冷却されるような条件で実施した。1回の切断に要した時間は約20分である。切断は矩形板の縦(長手)方向と横方向に両方について実施した。

ファインカッターでこのように切断した金相用試料は、実際のところ長すぎて、直径30mm×高さ25mmの円筒形マウント中に収納できないことが多かった。収納できなければ樹脂固化が不可能となり金相試料が作製できない。そこで、そのよう

な場合、切断後の金相用試料はベンチにて非発熱部であるアルミニウム被覆材を切り落とし、マウント中に埋め込んだ。従って、金相写真ではベンチ切断の形跡(剪断傷)をもつ試料もみられる。

研磨は、切断試料を樹脂に埋め込んだのち実施した。用いたエメリー紙と研磨時間の組合せは以下のとおりである。エメリー紙の番号(♯)は小さい程、粒子の目が細かい。

#80(10～30min)→#180(10min)→#400(10min)→#800(10min)→#1000(5min)
→#1200(10min)→#1500(10min)→ダイヤモンドペースト $2.5\mu\text{m}$ (10min)

供試試料は、3つまで同時に研磨できたが、#80のエメリーから出発してダイヤモンドペーストによる研磨が終了するまでの1工程に約95分を必要とした。

研磨後、研磨面を高周波洗浄液にて水洗乾燥し、いわゆる"as-polish(鏡面仕上げ状態)"の表面状態を得た。この時点での必要な写真撮影(倍率5～800倍)を行ったのち、試料は表面腐食(エッチング)し、いわゆる"As-etched(腐表面)"の状態にした。このエッティング溶液には、75%HCl+25%HNO₃+5%HFを用い、数秒間試料を溶液中に浸透し綿で表面をこすったのち、水洗・乾燥した。

Photograph 3.1.3は、熱電対#2と#3を結ぶ線に沿って切断した横断面写真である(この付近の被覆温度ピーク216～234°C)。この付近は、アルミニウム被覆材が最も高温になった箇所であるが、全体的にみれば、芯材及びアルミニウム被覆材とともに大きな変形はない。また、芯材端部付近は、写真右上の拡大写真で示されるように若干気孔(Pore)が多めであるが、変形はみられない。またドックボーンの発生もない。U₃Si₂芯材塊が遊離・弧立して被覆材中に存在している様子もない。なお、アルミニウム被覆材上で斜めに走る沢山の線は、研磨傷であり、照射によって生じたものではない。

写真中マップの役目を果している左側の低倍率写真(×5)と右側に示す高倍率写真は、被写体は同じものであるが、光学顕微鏡の構造による違いから撮影後の写真が異なって見える。すなわち、右側写真を基準とすれば、左側写真是その鏡象となっている。この低倍率写真(×5倍)を使った比較の際には、注意が必要である。

Photograph 3.1.4は、燃料板の中央を通る縦断面であり、T/C#5を含んで切断がなされている(T/C#5での被覆温度ピークは178°C)。マップ写真(A)のうち、"4"と記した縦割り試料頂部側断面(B)をみると、アルミニウム被覆材及び芯材とともに健全であることが分かる。このうち(f)と示す位置等でアルミニウム被覆材に傷がみえるが、これらは研磨傷である。燃料芯材であるU₃Si₂の大きな塊が被覆材中に僅かにせり出している状態を示しているのが、(C)及びその拡大写真である(D)である。この(D)より、芯材まわりには、写真では黒くうつるボイド(気孔)も存在しているのが分かる。いずれの写真においても著しいドッグボーン、被覆材の酸化等は見当たらない。Photograph 3.1.5は、T/C#1～#2を横切る横断面である。アルミニウム被覆材温度ピークは約177°Cである。気孔の分布も全体的に均一であり、また、芯材及びアルミニウム被覆材の肉厚にも大きな変化はない。芯材端にはドッグボーンの形成もなく、燃料板の状態は良好である。

Photograph 3.1.6は前出の写真と同一切断箇所であるが、部分的に気孔の多い

所 (A)、熱電対溶接部 (B, C) 及び燃料芯材端 (D, E) の部分に着目している。熱電対は、写真から分かるように負極の Pt 線と正極の Pt-13%Rh 線の間隔が 0.95mm あった。また、その溶接深さは、写真 (C) の場合 0.045~0.083mm ある。これは、アルミニウム被覆材片側肉厚 0.38mm の 12%~22% に相当していた。一方、燃料芯材端 (D) 及び (E) の部分は、殆んど他の場所と寸法的に変わりがなく健全であった。

3.2 508-2 実験 (発熱量 77cal/g・fuel)

3.2.1 過渡温度変化

取り付け T/C は、全て健全であった。また、アルミニウム被覆材の最高到達温度は、個々の T/C で僅かずつ違っていたことが、Fig. 3.2.1 から分かる。時間軸を拡大して温度ピークを求めた結果、Table 3.1 に示すように、T/C#1 が 200°C、T/C#2 が 179°C、T/C#3 が 183°C、T/C#4 が 178°C そして T/C#5 が 195°C となった。平均的には 187 ± 10 °C の範囲にあった。ただし、62cal/g・fuel で実験した 508-1 実験の熱電対測定値 201 ± 28 °C よりも 10 数度低目であった。発熱量は 77cal/g・fuel と 508-1 実験より大きいのに全体的には低めの温度となつた理由は不明である。しかし、この程度の両者の温度差は、殆ど差がないとみるべきかもしれない。

Fig. 3.2.2 は冷却材の過渡温度変化であり、パルス前の 21.6°C から最大 25.7°C まで上昇した。

Fig. 3.2.3 は、冷却材水面の動きを伝える浮き子の上下動データである。前実験と同様、水温上昇に伴う微細な動きが得られたが、燃料破損に結び付くものではなかった。

燃料底部及びプレナム部に装荷した内圧計データに関しては、圧力ゼロの一定値しか得られなかった。いずれの箇所においても、圧力データの変動は認められなかった。

3.2.2 解体時の所見

パルス照射後、34 日間の冷却を経て供試カプセルを解体した。Photograph 3.2.1 は、解体直後に撮影した燃料板の外観写真である。燃料板表面及び裏面の外観は、前実験供試試料と殆ど変わりがなかった。すなわち、燃料板を支持したグリッピング部及び T/C 部ではサビの付着がみられた。また、燃料板の色は全体的に灰色であり、製造時とあまり変わらなかった。なお、写真中 T/C#2 の片方がはがれているが、これは解体中に誤って素線を引っぱってしまったためはずれたものである。なお、実験中、当該 T/C は健全であった。写真から見られる特徴的なこととして以下が挙げられる。

- (1) ブリストラー、曲がり、ねじれ等はみられなかった。
- (2) 被覆材裏面に極く小さな直径 0.4mm 以下のピッティングが 10ヶ所ほど見られた。それらの殆どは、発熱した芯材の被覆上にあった。この原因については、3.1.

2節で述べた通りである。

(3) 前実験と同様、アルミニウム被覆材の表面には、こすり傷があり、外観上ではこれが白く見えた。この原因についても、3.1.2節で述べたとおりである。

3.2.3 PIE

3.2.3.1 寸法測定

Table 3.2にまとめて示すように、燃料板の変形は殆どみられなかった。

3.2.3.2 X線検査

Photograph 3.2.2は、燃料板のX線写真である。(a)では芯材の部分は黒く、被覆材のみの部分は灰色に見えている。外観形状に著しい変化はなく、また(b)から分かるように肉厚もほぼ一定である。すなわち、曲がり等は殆ど認められなかった。

3.2.3.3 切断、研磨、金相観察

切断、及び研磨については、3.1.3.3節で記述したのと同じ方法を用いた。

Photograph 3.2.3は、添付のマップからも分かるようにT/C#3～T/C#4を横切る横断面(燃料板頂部側)であり、被覆材の温度ピークは178～183°C程度である。写真から分かるように、燃料板の健全性は損なわれていない。写真中、[A]～[F]の箇所にて詳細な観察を行った。

Photograph 3.2.4は、前写真[A]～[D]の詳細である。[A]の部分は、大きな気孔(ボイド)を示したもので、その大きさは0.07mm(横)×0.14mm(縦)である。[C]は、芯材端であるが、ドッグボーンの発生もなく良好な状態にあった。また、被覆管と芯材は製造時の状況が維持されている。このように、金相的に、被覆管と燃料芯材が製造時の良好な状態を維持し、例えば被覆材がとけて芯材をスウェーリングさせたりするような両者に相互作用が発生していない状態を、ここでは両立性(compatibility)が良いと表現することとする。部分的に気孔の多い箇所もみられる。[B]と[D]は、発熱部(芯材を含んだ燃料板)と非発熱部(芯材なし)を対比したエッティング写真である。アルミニウム被覆材の部分をみると、両者の結晶粒径は非常に良く似ている。二次元切断法で測った結晶粒径は前者が42μm、後者が48μmで差異は殆どない。[D]部分は、製造時そのままの結晶状態であることを考慮すれば、[B]部の結晶状態は、被覆に溶融再結晶がなかった事を裏付けるものである。T/C温度も高々183°C程度であり、Fig. 3.2.4⁽²²⁾に示すようなAl-3w/oMg合金の再結晶温度573°Cよりはるかに低かった。

Photograph 3.2.5は、前出写真[E]～[H]の詳細写真である。[E]は、研磨のまま及びエッティングした状態のT/C部を拡大したものである。T/Cがアルミニウム被覆材肉厚の2割程度まで被覆材中に溶接されていること、及びT/C部の結晶組織は他の部分と有意差がないことが分かる。[F]は、前述した芯材端[C]のもう1方の芯材端である。比較的気孔は多いものの、ドッグボーン等は生じておらず、被覆材

との両立性もよい。 [G] は、撮影した箇所がうまく固定できなかったが、任意の箇所に於いても芯材とアルミニウム被覆材の健全性が保持されていることを示唆するものである。 [H] は、恐らく圧延加工で、熱処理の過程で発生したと思われる、アルミニウム被覆材のひけ巣欠陥であろう。

Fig. 3.2.5⁽⁵⁾ に示されるように、アルミニウム被覆材は 200°C 付近から引張強さが急激に減少し伸びが増加する。また、金相的には結晶粒が粗大化し、材質が柔らかくなる傾向にある。すなわち、高温化による材質軟化もおこる。供試試料は殆どが 200°C 近くに温度上昇したため、少なからず軟化したと思われる。このため、研磨の過程において沢山の研磨キズが発生した。これまで示してきた As-polished 写真中に比較的沢山みられた表面キズは、より軟化した被覆材についての研磨キズであると考えられる。

Photograph 3.2.6 は、燃料板の縦中央線に沿って切断した縦断面写真であり、T/C#5 を含んでいる（温度ピーク 195°C）。(A) のマップから分かるように、試料 4 は試料 5 の片半分である。そこで、全体拡大部は (B) として試料 4 に関するもののみを示した。

(B) 及び (C) から分かるように、508-1 実験に比較して、508-2 実験では、芯材表面の凸凹が少し大きくなっている。 (D) は、試料中にみられた比較的大きい部分（外径約 0.035mm 程度）を拡大したものである。いずれにしても、芯材部と被覆材の両立性は良く、被覆溶融、破損等の兆候はない。

Photograph 3.2.7 は Photograph 3.2.7 の (D) の試料のエッティングした後の状態を示している。いずれにしても被覆材と燃料芯材は健全である。アルミニウム被覆材の結晶構造は照射前の状態と類似しており、溶融等の形跡はない。

Photograph 3.2.8 はマップ (A) に示すように、燃料底部側、T/C#1 と #2 を通過するようにして切断した横断面写真である。T/C#2 側を試料 6 (Sp. 6) 又 T/C#1 側を試料 7 (Sp. 7) と称した。(B)～(D) の写真から分かるように、研磨キズや水洗時に付着したシミがあるが、燃料板は健全である。

Photograph 3.2.9 は、前出写真 [A] 及び芯材端 [B] 部分をエッティング後に拡大したものである。 [A] から、約 0.075mm 程度の外径を持つ芯材粒子 U₃Si₂ が、アルミニウムマトリクス中に分散している様子が分かる。また被覆材部分には製造時の結晶粒径が残っているが、マトリクス中では、エッティングの効果が違うのか、それが見られない。 [B] の芯材端でも状況は同じであり、芯材端には、何らの異状も見られない。

Photograph 3.2.10 は、前出試料 6 の T/C 部及び端部から得た拡大エッティング写真である。写真 (C) の [A] 部についての拡大写真から分かるように、ここでも発熱部を被覆していたアルミニウムの結晶組織と非発熱部の製造時アルミニウムの結晶組織と類似している。すなわち、アルミニウム被覆材の溶融等は発生していない。なお写真 (C) の [A] 部右側に見える二筋の白線は、燃料板の成形加工時に出来た圧痕であろう。写真 (C) の [B] 部は、T/C 部の拡大である。T/C とアルミニウム被覆材の境界面における両者の結晶組織の比較から、T/Cを中心にして ±0.15mm の範囲内は少し溶接時の熱影響を受けた形跡がみられる（結晶粒径と結晶配向が少し

違うので、より白く輝いて見える)。この部分(T/C#1又は#2部分)におけるアルミニウム被覆材中の熱電対の拡散深さは、肉厚の約17%程度であった。

いずれにしても、燃料被覆材の割れ、溶融等健全性を損なう兆候は何一つ見い出せなかった。また、ドッグボーンやブリスターの発生もなく、芯材と被覆材の両立性も良好であった。

3.3 508-3実験(発熱量116cal/g・fuel)

3.3.1 過渡温度変化

取り付けT/Cはパルス実験中全て健全であった。Fig. 3.3.1は、T/C#1～#3、#5のデータである。T/C#1、T/C#3及び図示していないがT/C#4の過渡温度変化は508-2実験の燃料過渡温度変化と類似していた。しかし、T/C#2とT/C#5では、両者に少し異なる過渡温度変化がみられた。すなわち、T/C#2ではパルス直後温度ピーク372°Cを記録したのち、約330°C付近で約0.12秒の温度保持があってから、再び387°Cまで温度上昇した後急冷(クエンチ)した。第1番目の温度ピークから第2番目の温度ピークまでは時間にして約0.18秒あった。

一方、T/C#5では、パルス直後温度ピーク424°Cを記録したのち、クエンチせず、ほぼその温度を保持したまま約0.3秒後に再び上昇に転じ、544°Cに達した。同温度レベルに約0.1秒あったのち、やがて0.2秒かけてクエンチした。T/C#5では第1番目の温度ピークから第2番目の温度ピークまで約0.43秒の時間間隔があった。他のT/Cでは、温度ピーク保持時間が約0.01秒程度だったのに較べ、T/C#2とT/C#5では高温過渡温度状態が相対的に20倍～40倍程長かった。このT/C#2とT/C#5のふるまいメカニズムは究明されていないが、金相上、アルミニウム被覆材の高温化による塑性流動の形跡がPIEにて明らかにされており(後述)、このための影響があったのではないかと考えられる。

Fig. 3.3.2は、冷却材の過渡温度変化であり、パルス前の17.8°Cからパルス後は最大約47°Cまで温度が上昇した。さらに、一旦23.5°Cまで温度降下後、再び温度が29°Cまで上昇した。これは、膜沸騰して昇温した燃料板付近の冷却材が何らかの原因で再度暖められたと思われる。また、これは前出のT/C#2及びT/C#5に見られた被覆材の2度にわたる高温化による影響かもしれない。

Fig. 3.3.3は、冷却材水面の上下動を示している。僅かな減衰振動がみられるが、恐らく全章で記述した燃料破損とは無関係の原因による冷却材の上下動のためであろう。

Fig. 3.3.4は、燃料照射カプセル底部に取り付けた圧力センサーのデータであるが、何ら有意なデータは検出されていない。すなわち、炉内データから判断する限り、燃料板からの圧力波及び破壊力の発生は認められなかった。

3.3.2 解体時の所見

パルス照射後28日間の冷却を経て、供試照射カプセルを解体に供した。

Photograph 3.3.1は解体直後に撮影した燃料板の外観である。写真(a)から分かるようにT/Cは全て健全であったが、燃料板は下部グリッピングと上部支持板の間で曲りを起こしていた。写真(b)は、燃料板表面を撮ったものであるが、芯材が燃料板表面上にせり出し、その形状がハッキリとあらわされた。写真中、黒く見える箇所は、アルミニウム被覆材表側に芯材がせり出した結果である。目視観察から以下の結果が見出された。

- (1) T/C#1～T/C#5のまわりには約0.5mm程度の円形模様ができていた。すなわち、T/Cを溶接したことによる芯材寸法変化への影響は皆無ではなかった。しかし、その評価は困難である。
 - (2) 写真(b)の頂部側せり出し部分及び写真(c)の中央部と頂部側のへこみ部分に、ピットが沢山発生しているのがみられた。
 - (3) 写真(c)から分かるように、場所によっては流線形の、また場所によっては円形の模様が被覆表面に出来ていた。
 - (4) T/C#5付近にキズらしきものがみえた。
- 解体時の外観検査ではこれ以上の詳細観察は無理と思われたので、これら(1)～(4)に関する詳細なふるまい研究は、PIEにゆだねられた。

3.3.3 PIE

3.3.3.1 寸法測定

Table 3.2に示すように、燃料板においては板厚方向への凸凹変形が著しかった。すなわち、曲り変形が0.3～3mmもあった。また、この燃料板のスウェーリングによる凸凹は局所的には最大1.6mmとなっていた。寸法測定データに関する詳細な評価については5章で記述する。

3.3.3.2 X線検査

Photograph 3.3.2は、供試試料のパルス前後のX線写真である。平面方向の変化を比較してみると、パルス前後で殆ど差異が生じたようには見えないが、板厚方向の変形は著しいのが分かる。寸法測定の結果、燃料板は表面方向に最大約1.6mm程せり出している事が分かった。このせり出しが、まわりを非発熱体のアルミニウム被覆材に囲まれた芯材の急激な熱膨張により生じたものであろう。そのため、例えば板の表面にせり出しがあれば、その反対面の裏面では必ずへこみがみられた。これは、照射済燃料においてFPガスの作用によって発生するブリストー変形(Blister deformation)⁽⁵⁾とは、様相が異なっている。

燃料板支持方法や発熱部の形状の違い等から、このような曲り変形が直接実際のMTR燃料の曲り変形に適用できるかどうかは不明であるが、MTRの燃料板間の流路幅は2.7～3.0mm程度であるから、燃料板の曲がりとスウェーリングによる流路閉塞傾向には、十分注意を払う必要があろう。

3.3.3.3 切断・研磨・金相観察

切断及び研磨については、3.1.3.3節で記述したのと同じ方法を用いた。外観目視に於て、燃料板に大きな凸凹変形および、T/C#5付近にキズらしきものが観察された。またX線ではキズかどうかの判断ができないものも見られたので、切断の試料数を増加した。切断中に燃料等の欠け落ちはなく、研磨もこれまでの方法を踏襲した。

Photograph 3.3.3は、燃料芯材の縦方向に沿った縦断面の写真であり、T/C#5(温度ピーク424°C → 544°C: すなわち約424°Cで一旦温度ピークを記録したのち、更に544°Cで再び温度ピークを記録)が含まれている。但し、研磨によってある程度の寸法(約1mm程度の肉厚)は減損してしまうので、必ずしも所期のT/C断面が得られている訳ではない。写真中(A)で示したマップから分かるように、燃料板中央から底部に向かう縦断面を試料5L1、中央から頂部に向かう縦断面を試料5L2と称した。写真的下半分2つが試料5L1と5L2のAs-polished状態、上半分2つが同試料のエッティング後の状態である。

アルミニウム被覆材は高温化のため殆ど製造時の機械的強度を損失した傾向にある。その証拠に、研磨中に容易に研磨キズがつき、これはなかなか除去し難かった。As-polishedの写真から分かるように、燃料板肉厚(初期値1.27mm)は、もはや一様ではない。特に試料5L2の中央[M]の位置ではアルミニウム被覆材の移動があったとみえ約0.67mmと薄肉化し、その殆どは芯材だけになっている(芯材露出: Denudationと称す)。ところが、[N]の部分では、芯材厚みは0.53mmとほぼ初期製造時の状態に近い。しかし、燃料板の肉厚は1.413mmと10%も増加している。[O]点では、片側のアルミニウム被覆材が殆ど移動し、肉厚約0.53mmの芯材と肉厚約0.69mmの被覆材により燃料板が構成されている。

解体時には、照射カプセル中にアルミニウム被覆材等の破片は一切見られなかった事からして、これらの著しい肉厚変化は、高温化したアルミニウム被覆材の燃料板内の塑性流動(クリープ)によって生じたと考えられよう。

さらに、[P]点では、均質なアルミニウムマトリスとその中に分散していた燃料芯材 U₃Si₂+USiの塊が、局所的に分断をおこしていた。燃料芯材同志が分断されていた箇所は、アルミニウム被覆材も同時に引きちぎれた訳ではなく、アルミニウムマトリクスだけが薄くなっている(ネッキングと称す)。この付近のエッティング写真(写真上側の2枚)をみると、被覆管に割れキズらしきものが3箇所生じていることが分かる。さらに、[P]点及び[O]点の被覆塑性流動の著しい箇所におけるエッティング結果は、明らかに他の場所と金相上の相異が生じている事を示しており、この付近でアルミニウム合金が相図上の固相線(Solidus)に近づいたのではないかと思われる。そこで、当該付近に関する更に詳細な金相写真観察を行った。

Photograph 3.3.4中の写真(A)は、前出[P]点付近の詳細である。これは、同一エッティング条件下で、被覆材の結晶組織が互いに異なる原因を調べようとしたものである。すなわち、当該箇所におけるアルミニウム被覆中央部では明らかに結晶粒界が観定されるのに両端側ではそれがみられない原因をつかもうと思った訳

である。また、この場所のアルミニウム被覆材の裏面では、被覆表面から内部の芯材に向かう割れが走っていた。しかし、結果的にはこの時点ではその理由がつかめなかった。そこでこの箇所はSEM/XMAによる詳細研究を追試した。結果については、4章で記述する。

写真(B)は、試料5L2においてみられた相当数の被覆アルミニウムピッティングである。この燃料板頂部側に生じたピッティングは、外観写真からも観察できたが、実際に切断してみると被覆材の内部にまで到達していた。この原因は今のところ究明できなかった。

Photograph 3.3.5は、観察された芯材分断部付近の3本の割れキズの拡大写真である。割れの全長は写真左側から0.08mm、0.31mm及び0.13mmとなっており、中央部のものが最大であった。写真(A)は、その最大割れ0.31mmの長さのものが、被覆材を貫通し、芯材部まで到達している様子を示している。

Photograph 3.3.6は、この3本の割れキズ付近で燃料芯材が局所的に分断している様子を示している。この部分では、表側にあったアルミニウム被覆材は殆ど消失し、裏面側のアルミニウム被覆材のみが残っていた。

被覆割れキズは何も5L2試料にだけ観察された訳ではない。燃料板底部側の試料5L1にも、Photograph 3.3.7に示すように、アルミニウム被覆外表面から入ったと思われる割れキズがあった。この割れ長さは0.03mm程度で、アルミニウム被覆材の途中で止まっていた。いわゆる未貫通割れであった。

これまでに観察された被覆割れは、殆どの場合、燃料板両側にあったアルミニウム被覆材の片方が流失し、別の片方のアルミニウム被覆材が残っているような場所で発生しているのが特徴的である。燃料板の位置としては、どれも各々T/Cの中間部に近かった。

Photograph 3.3.8は、試料5L2において、最も被覆材の肉厚が薄くなり、燃料芯材が冷却材側に露出した状態の金属の金相写真である。写真から分かるように、被覆材としては最大肉厚でも0.06mm(初期肉厚の16%)しか残っておらず、局所的には燃料芯材が露出してしまっていた。

Photograph 3.3.9は、燃料頂部端近傍で、いわゆる発熱エンドピークが生じたと思われる箇所に対する金相写真である。写真中のマップ(A)に示すように、この箇所は非発熱アルミニウム被覆材部、T/C#3及びT/C#4の中間位置をともに含む横断面である。(B)は、当該部のマクロ写真であり、この部分では全体的に燃料板が板の表側に向ってせり上がって(曲って)いる。そのせり上がりの最も大きい場所の板表面では、アルミニウム被覆材が流失し、芯材が冷却材側に露出しかかっている。ここでの曲りは、最大で約3mmであった。この値は、例えばMTRの冷却材流路幅が2.7~3mmの間にあることを考慮すれば、小さいものではない。

この付近の被覆表面温度は、T/C#3とT/C#4の中間位置である事を考慮すれば、温度ピークは393~414°Cの間にあったと推定される。またエンドピークを考慮すれば、それ以上かも知れない。写真から以下のような幾つか興味深いことが分かる。すなわち、

(1) 写真(C)より、ここで燃料板の板厚変化は著しくない。それにも拘らず、ア

ルミニウム被覆材の一方の側が流失し、燃料芯材が曲りを伴って冷却材側（表面側）にせり出している。一方、反対の裏面側の被覆材肉厚は全体に波うち少し厚くなっている。この観察結果から、もしアルミニウム被覆材が冷却材中に流出したのでなければ、失われた被覆材は実際は燃料芯材と反応したか、もしくは部分的に溶融して別の場所に移動したと考えるのが自然であろう。

(2) 写真(D)から、曲りをおこした部分の被覆材結晶組織は、例えば非発熱部のそれに見られるような等方性結晶構造ではなく、柱状晶組織になっていた。これは、高温化したアルミニウム被覆材が溶融再結晶化したか、もしくは引張熱応力等を受けて柱状晶化したものと考えられる。

(3) 非発熱部に近い写真(D)の両端では、製造時のものと類似したアルミニウム被覆材の等方結晶組織がみられた。

(4) なお、研磨時についたと思われるキズが数多くみられた。但し、これまでのPIEで観察されたようなアルミニウム被覆材と燃料芯材との良好な両立性はもはや存在しなかった。一連のPIEに結果からは、ドッグボーンやブリスター等の変形はみられなかった。

Photograph 3.3.10は、写真(A)のマップから分かるように、前出写真よりもさらに中央部に寄ったT/C#3とT/C#4を含む横断面写真である。この部分の被覆表面温度は393°C～414°Cの範囲と推定される。写真(B)から分かるように、曲りは最大で1.8mm程度であった。曲りはあったものの、芯材とアルミニウム被覆材間のこの部分での両立性は良好で、燃料板肉厚等に著しい変化は見られない。一方、エッティング写真(D)をみると、初期のアルミニウム被覆材結晶組織に類似したものが見られる。このことから判断して、結晶組織上で著しい変化が生じなければ、アルミニウム被覆材は十分に燃料芯材との両立性を維持できると考えられる。

Photograph 3.3.11は、前出写真の拡大であるが、燃料板裏面において、アルミニウム被覆材側から芯材に向かう割れキズが発生していることを示している。

Photograph 3.3.12は、マップ(A)から分かるように、燃料板底部側において、T/C#1とT/C#2を横切る横断面の写真である。T/C#1は350°C、またT/C#2は372°Cと387°Cの2回の温度ピークを経験している。写真(B)から分かるように、曲りは0.6mm程度である。写真(C)及び(D)はそれぞれas-polished状態及びエッティング状態における金相を示している。燃料芯材の曲りも少なく、全体的に芯材肉厚は平均に近い。アルミニウム被覆材についても同様である。但し、1箇所だけ、すなわち燃料板の中央に位置する[B]点においては被覆材に僅かなふくれ(スウェーリング、ここでは流動による肉厚の増加もこのように称す)がみられた。この部分の被覆材厚みは両側とも約0.53mm(初期0.38mmに対し40%の増加)、また芯材厚みも約0.53mm(初期0.51mmとほぼ同等)であった。このようなスウェーリング発生範囲は、[B]点を中心にして約4mmの長さに及んでいる。[B]点以外では、ほぼパルス前の形状を保持していることから推定して、どこか別の場所からアルミニウム被覆材が塑性流動してきたものではないかと考えられる。この部分の拡大写真をみると、結晶粒が明らかに大きくなった箇所があり、その形状は柱状晶である。しかし、この被覆材箇所に向かって、別の箇所から芯材がせり出してきたというような傾向はみ

られない。

拡大写真(A)は、T/C#2に相当する位置のものであるが、研磨にて試料を削り込み過ぎた為、本来なら熱電対素線とアルミニウム被覆材が拡散結合している場所であるはずなのに、それがない。また、拡大写真(C)は、燃料芯材端部に関するものであり、気孔(ボイド)はやや多いものの、燃料健全性喪失に結びつくようなものは何らみられない。また、ドッグボーン等の発生もない。

Fig. 3.3.5は、燃料板の健全性に関して、PIEからの知見をまとめたものである。すなわち、ハッチングで示した領域は、被覆材の結晶組織が等方晶から柱状晶に変化していた領域を示している。これらの場所では、状況によっては被覆材のスウェーリング(場所④)、芯材の曲り(場所①～④)とアルミニウム被覆の塑性流動による状態変化と被覆材の露出(場所①、②、③)、被覆材の割れ(場所②、③)が観察されている。未照射燃料のためであろうが、パルスによって被覆材に割れが入っても、冷却材中にFPが放出された形跡はない。しかし、もし照射済の燃料板であれば、被覆貫通割れによってFPが冷却材中に放出される訳であるから、本供試燃料に関しては、アルミニウム被覆材の割れを伴った場合は例えFP放出がなくとも破損と判定した。

燃料板の曲り3mmにみられるような著しい変形、芯材の露出及び被覆材の割れは、全て燃料板中央部に集中してみられたこと、熱電対の指示温度はフィン効果(冷却加速効果)により実際のものより低めである事を考慮すれば、被覆材の結晶組織変化が生じたところ—例えばT/C#5近傍は544°Cを約0.1秒近く経験している—では、Al-3%Mgの固相温度である573°C付近に到達したと考えるのが自然であろう。

3.4 508-4実験 (発熱量154cal/g・fuel)

3.4.1 過渡温度変化

取り付けたT/Cは、全てパルス実験中健全であった。T/Cでの白金(Pt)の融点は1772°C、Pt-13%Rhの融点は高温融体のRh(1991°C)を13%含むため1860°Cである。従って、少なくともこの熱電対では約1770°C程度まではシリサイド燃料板の温度測定が可能である。

Fig. 3.4.1は、T/C#1～T/C#4に関して得られた炉内データであるが、いずれも600°C以上の高温域にまで到達している。また、前出の508-3実験に比較して、相対的ではあるが、燃料板の高温での保持時間が長くなる傾向にあった。この高温での温度保持長期化は燃料板の中央部T/C#5で最も著しかったが、その様子をFig. 3.4.2に示す。Fig. 3.4.1及びFig. 3.4.2の2つの図から、各々のT/Cの最高到達温度を読み取ると、#1、#2、#3、#4及び#5の順に971°C、893°C、652°C、881°C及び931→957°Cとなる。最後のT/C#5では、まず温度ピーク931°Cに到達したのち、約0.5秒の間860°C付近にあり、最後に957°Cに再上昇してから急冷に至った。

前出Fig. 3.2.4に示すように、Al-3%Mg被覆材の固相線は約573°Cにあり、液相線は約640°C付近にある。従って、508-4実験に用いたT/C#3は丁度被覆の溶融開始点

付近にあったことが分かる。一方それ以外の熱電対は殆ど被覆溶融点温度を超えている。芯材の構成要素であるUSi、U₃Si、UA1x及びU₃Si₂は、Fig. 2.1に示したように各々1570°C、985°C、1350°C、及び1665°Cに融点(液相線)を持っており、供試試料の到達した温度範囲では溶融点に近いものもあるが、殆どは溶融点より低い。いずれにしても、508-4実験では、熱電対測定温度は652~957°Cの範囲にあった。

Fig. 3.4. 2には冷却材の温度変化も併せて示した。冷却材温度はパルス前で約17°C、パルス後で35°Cを経験した。水温30°C付近で比較的長く(0.55秒)温度を保持する傾向がみられた。

さて、ここで少し溶接して用いたT/Cの測定精度について考察してみたい。Al-3%Mg合金は、二元固溶合金のため、固液共存曲線をもっており、固相線は前述したように約573°C、液相線は約640°Cにある。燃料被覆材がこの固液共存領域に入れば、いかにパルスによる入熱量が高くても必ず相変態を伴うし、その変態を終了するにはある程度の時間が必要である。また、T/Cが正常に働いていれば、このアルミニウム被覆材の物性変化を必ず読み取るはずである。そこで、T/Cデータから約600°C付近の過渡温度変化を詳細に調べるために、Fig. 3.4. 3のように時間軸を拡大してデータプロッティングを行ってみた。この図から以下のことが分かる。

- (1) 5対のT/Cは、図中平坦な部分に代表されるような相変態の発生を読み取っている。
- (2) T/Cデータによれば、ある箇所では固相から液相になったのち、更に高温化したところもあるが、例えばT/C#3のように、固液共存状態のまま過渡を終了してしまったものもある。
- (3) 相図から読み取れる固相線及び液相線の温度は573から640°C($\Delta T=640-573=67^\circ\text{C}$)である。一方、熱電対から読み取れる当該線間の温度は531から612°C($\Delta T=612-531=81^\circ\text{C}$)である。平均的にみると、T/C読取値は相図温度よりも35°C低い。しかし、アルミニウム被覆材にはMgだけでなく他の金属元素も微量ではあるが含まれており、この影響のため実際のアルミニウム被覆材の融点は更に少し低いと思われること、また、熱電対部分はフィン効果が利いて実際温度より少し低めに値が出ることの2点を考慮すれば、35°Cの温度差は極めて妥当な範囲にあると考えられよう。しかしながら、本報では、相図からの融点と実験から得られた融点に対する温度差の補正是行わず、熱電対データからの読み取り値を直接使用して、以後の燃料板の過渡温度変化評価を行うこととした。

熱電対間のデータの再現性も比較的良好ことは、Fig. 3.4. 3からも明らかである。

Fig. 3.4. 4は、丁度固液共存領域に入ったまま過渡を終えた、T/C#3の過渡ふるまいを示している。最高到達温度は652°Cが記録されたが、全体的にならしてみると、殆ど612°C付近にあったことが分かる。

Fig. 3.4. 5及びFig. 3.4. 6はカプセル頂部及び底部に取り付けた内圧計からのデータであるが、パルス時にノイズが入った他は、何ら燃料破損に結びつくような圧力上昇データは観察されなかった。

Fig. 3.4. 7は、冷却材水面の上下動を示すデータであるが、これについても圧力波や破壊力に結び付くような有意のデータは観察されなかった。

3.4.2 解体時の所見

パルス照射後、22日間の冷却を経て供試照射カプセルを解体した。Photograph 3.4.1は、支持具に取り付けた燃料板の状態を、(a)はパルス照射前、(b)はパルス照射後と対比して示している。後者では、燃料芯材の変形とふくらみ、及び曲りが著しい様子が分かる。また、写真(c)～(e)は、供試燃料板の外観写真である。燃料板表面は茶色から黒に変色し、芯材部の変形凸凹はより著しくなった。全体的に、芯材部は燃料板の裏面側に向かって凸の形状になっていた。前508-3実験と同様、熱電対のまわりは円形模様ができていた。

3.4.3 PIE

3.4.3.1 寸法測定

燃料板の寸法変化は、パルス照射前の寸法値、パルス照射後の外観、寸法、X線、金相写真等から測定した寸法値を比較しつつ評価した。これらはまとめて、Table 3.2に示した。これを用いた評価は5章で記述する。

3.4.3.2 X線検査

Photograph 3.4.2は、(A)パルス照射前及び(B)パルス照射後の燃料板X線写真を比較して示したものである。写真(B)をみると、芯材の矩形外周付近で割れが生じているのが分かる。また、燃料板には最大約7mmの曲り、芯材には最大5mmの凸凹が発生しているのが認められる。

3.4.3.3 切断・研磨・金相観察

切断及び研磨については、3.1.3.3部で記述したのと同じ方法を用いた。X線写真に基づいて、切断位置を決め、前と同様に供試燃料板の切断を行った。研磨の方法も前実験で行ったものを踏襲した。

金相観察では、丁度被覆温度がAl-3w/oMg合金の固液芯存線に入ったまま過渡を終了したT/C#3を含む試料について注目した。Photograph 3.4.3は、マップ(A)に示すように、T/C#3を横切る横断面であり、

試料3(Sp.3)と称した。また、Photograph 3.4.4はそのエッチング写真である。これより以下の事が分かる。

- (1) 芯材端部付近[A]を中心として、アルミニウム被覆材が著しく変形している。
エッティング写真から分かるように、[A]左側では溶融アルミニウムがかたまって塊(agglomeration)のようになっている。この結晶配向からみて、溶融被覆材はすぐ近くにみられる薄肉化した被覆材から分離したものであると考えられる。
- (2) エッティング写真より、アルミニウム被覆材はよりよく冷えた燃料端部を残して溶融し、柱状晶を形成した。
- (3) 燃料芯材中央部[B]では、アルミニウム被覆材が溶融して芯材が露出するとと

もに、芯材中のアルミニウムマトリクスが局所的に溶けて孔が空いていた。

(4) エッティング写真からは、非発熱部は溶融せず、殆んど製造状態に近い金相組織を有していたことが分かる。

供試試料3をさらに数mm追込み研磨して、燃料板中央部にあるアルミニウム被覆の溶融状態を追跡した。その結果をPhotograph 3.4.5と3.4.6に示す。**C**で示すアルミニウム被覆材のネッキング、及び**D**に示すアルミニウム被覆材の溶融とそれに伴う芯材厚みの増加が特徴的なこととして観察される。

Photograph 3.4.7及び3.4.8は、前出写真**D**のアルミニウム溶融部を拡大したエッティング写真である。アルミニウム溶融後の形状は梢円形が多くその長径は約0.6mm程度のものが最大である。これを見ても、芯材の中央部はAl-3w/oMg合金の融点を超えたものと思われる。また、溶融孔をよくみると、かなり深くまでつきぬけたものと、比較的浅いものの両方がある事が分かる。芯材もよく観察すると、割れが入っていたり、 U_3Si_2 相の外側に微小幅(1~4μm)であるが、別の相ができる可能性を示しているものもある。これは恐らく溶融したアルミニウムマトリクスが芯材と反応を起こしたことを見唆していると考えられる。観察されたどの箇所においても、芯材が冷却材側に殆んど露出してしまっている。解体時には、アルミニウム被覆材等は一切冷却材中にみられなかったことから判断して、溶融アルミニウム被覆材は、芯材と反応して一体化し、芯材にスウェーリングが起こる一方で、芯材がより冷却材側にせり出すような現象が発生したと考えられる。

Photograph 3.4.9は、写真中のマップ(A)から分かるように881°Cを経験したT/C#4を含んだ横断面写真である。試料は、このマップ(A)から分かるように、T/C#3とは中央線をはさんで位置した試料4(Sp.4)である。芯材端部でネッキングが起きている。この写真で特徴的かつ重要な事は、中央部**E**点においてアルミニウム被覆から燃料芯材中にもぐり込んだT/Cが観察されることにある。特に右側のT/Cは、上部を溶融アルミニウム被覆材に覆われ、下部は溶融によってできたと思われるアルミニウムの空洞や U_3Si_2 芯材によって覆われている。一方左側のT/Cは溶融アルミニウム燃料芯材によって覆われている。この熱電対は、最高881°Cを記録しているが、金相写真から分かるように、アルミニウム被覆の液相線すなわち、溶融点を通過した後に芯材側に移動し、その芯材温度の影響を強く受けたものと思われる。

もう1つ、この写真から分ることは、T/C周りの溶融アルミニウム被覆材は、他の場所から流動してきた可能性もあるという点である。高温になった時点で、アルミニウム被覆材は少なからずその流動性を増加している。また、結果として生じた柱状晶の配向は今まで見てきた限りでは長手方向に対して直角にむいている。

この試料4に関しては、このあと更に数mmだけ追込み研磨を行ってみた。その結果の金相が、Photograph 3.4.10である。前出写真でみえていたT/Cはこの追込み研磨で消失した。発熱部のかなりの部分でアルミニウム被覆材が喪失し、燃料中央部ではアルミニウムマトリクス中に溶融孔が観られた。芯材端部**G**及び発熱部頂部**H**の拡大写真を撮ると、Photograph 3.4.11のようになる。**G**部分での燃

料板芯材とアルミニウム被覆材との両立性は比較的良かったが、それより約2mm燃料中央部に入ると、途端に被覆の溶融、曲げ、芯材露出が生じていた。燃料中央部Ⅱでは、溶融したアルミニウムマトリクスの痕跡が何ヶ所もあった。燃料芯材には割れが入り、アルミニウムマトリクスと燃料芯材との反応相の形成も確認された。この部分の芯材は、溶融アルミニウムマトリクスとの反応に起因したスウェーリングにより、肉厚の増加が見られた。

Photograph 3.4.12は、マップ(A)から分かるように、燃料板発熱部頂部を縦方向に横切る縦断面であり、T/C#5を含んでいる。この試料は試料5R(Sp. 5R)と称した。写真(B)はas-polished状態の、また写真(C)はエッティング状態の金相写真である。この写真から以下のことが分かる。

- (1) 燃料板の凸凹は著しい。
- (2) 写真から観察される範囲では、殆どが、燃料芯材だけになっている。すなわち、被覆アルミニウム材は芯材と反応してしまっている。但し、部分的に溶融アルミニウム被覆の塊も残留している。
- (3) 最左端 [I] の箇所に燃料芯材を貫通する割れキズがある。
- (4) アルミニウムマトリクスの溶融孔が、芯材や溶融アルミニウム被覆材の区別なく、至るところに観られる。

Photograph 3.4.13は前出写真[I]部、すなわち、燃料板貫通割れキズ部分の拡大写真である。割れは、燃料板表面から裏面に向かってほぼ直角に走っていること、また粒界割れに近い形状であることが分かる。

Photograph 3.4.14は前出写真[J]部、すなわち燃料板の溶融孔の拡大である。溶融孔は、最大径0.15mm程である。芯材の塊は、いずれも割れが入っており、反応相も存在していることが分かる。アルミニウム被覆材らしきものはもはや存在していないが、黒く見えるアルミニウムマトリクスであろうと思われる。この部分の燃料板の肉厚は芯材だけなのにも拘らず約1.4mmあり、初期の燃料板厚みよりもスウェーリングのためより厚くなっている。すなわち、リロケートしたアルミニウムと芯材との反応によって生じたスウェーリングになる肉厚の増加であろう。

Photograph 3.4.15は、前出写真[K]部の拡大であり、燃料中のU₃Si₂+USi相に割れが生じたあと、そのまわりをアルミニウムマトリクスが取り囲んだ様子を示している。島状のシリサイド粒子の他に小さくキャラメル状に分散した粒子もあるのが分かる。

Photograph 3.4.16は、マップ(A)に示すように、試料5Rの片割れであるが、研磨した分だけ位置がずれた試料であるので試料5L(Sp. 5L)と呼んだ。As-polished写真(B)やエッティング写真(C)から分かるように、互いに数mmしか離れていない場所なのに、ここでは溶融したアルミニウム被覆材の存在が多く観られる。また、燃料板貫通割れ(右端)以外に未貫通割れも存在していた。そのすぐ左下[A]で示す場所では枝状になった芯材もみられた。それぞれの特徴のある場所を、拡大写真[A]～[D]を用いて、以下で検討する。

Photograph 3.4.17は、燃料板貫通割れ部分[A]を拡大したものである。割れは殆どまっすぐに、しかもU₃Si₂の粒子を避けるようにして燃料板を貫通している。

裏面側の貫通口付近には、未貫通割れも同時に存在していることが判明した。

Photograph 3.4.18は、アルミニウム溶融部 [B] を拡大したものである。溶融アルミニウムの孔径は0.25mm程度である。その付近の(U,Si)Al相をよく観察すると、三角形状のものもあり、その形状を保持したまま反応相が形成されている。これは、もし芯材が溶融したとすれば、恐らくその形状は円形状に変わるであろうから、芯材は溶融に全く至らなかったことを示唆するものと理解される。

Photograph 3.4.19は、燃料板が大きく腕曲していた [C] 部の拡大連続写真である。黒くみえる地はアルミニウム、その他は殆どがU₃Si₂粒子と推定される。これまでと同一のエッティング液を用いたのにも拘らず、芯材中のアルミニウムマトリクスに明確な結晶組織が現われなかつた。これは、パルス中に生じた何らかの原因により組織構造上変化がおき、使用エッティング液に対しては結晶粒界が現れなかつたものと思われる。

Photograph 3.4.20は、未貫通割れ [D] を拡大したものであり、割れ長さ約0.17mm程度であった。被覆材の部分を注意深く観察してもアルミニウム被覆外面には酸化膜の生成はない。

Photograph 3.4.21は、マップ(A)から分かるように、燃料板底部側の燃料板中央位置における縦断面写真である。この試料は縦断面半切りのうちの上側のもので、試料6R(Sp. 6R)と称した。写真(B)はas-polished状態の、そして写真(C)はエッティング状態のマクロ写真である。この部分には、溶融アルミニウムがかなり多く存在した。単純な推定をすれば、この直上5R又は5L試料からの溶融アルミニウムが、重力効果で下側に流れ落ちてきたとも考えられよう。試料の左側はT/C#5(温度ピーク957°C)に、また右側は、T/C#1(温度ピーク971°C)に又はT/C#2(温度ピーク893°C)に近い。この写真から、以下が分かる。

- (1) 試料右端 [A] に燃料板を貫通する割れが存在し、その長さは約0.36mmである。Photograph 3.4.22に示すように、割れは燃料板表面から裏面に向かって走り、裏面端で開口していた。この部分ではアルミニウム被覆材は殆ど消失していた。
- (2) [B] 付近で燃料芯材が分断していた。[B]右側では、殆ど芯材だけになっていた。
- (3) [C] の右側では、燃料板の厚みが非常に大きくなっていた。[C]直下の燃料芯材厚みは0.67mm(初期値の3%増)程度であるが、燃料板厚みは1.87mmとなっており、初期値の50%増しである。すなわち、燃料板は大きくスウェーリングしている。
- (4) 溶融アルミニウム孔の数はあまり多くない。これは逆に考えると、アルミニウムが十分に存在して溶融孔形成が促進されなかつたと考えられる。
- (5) Photograph 3.4.23に示すように、[C]点付近の溶融アルミニウム組織は柱状晶ではない。

Photograph 3.4.24は、マップ(A)に示すように、前出写真と同じ部分の縦断面組織であるが、前出試料とは反対方向に数mmだけ追い研磨している。従って、少しその形態も異なっている。写真(B)はas-polished状態の、写真(C)はエッティング状態の写真である。今度は切断面中央左にスウェーリングの影響を大きく受けた箇所が現れ、その部分で燃料板貫通割れがみられた。

燃料板貫通割れは、試料6Rに観られた状態と合わせて考えると、溶融アルミニウム被覆のない U_3Si_2 芯材のみの部分に集中している。燃料中心部T/C#5の近傍は、写真左側の方であり、ここではアルミニウム被覆材は殆ど消失し、燃料板肉厚も0.69mm程度になっている。また、薄肉化した為に溶融孔も径0.32mm程度のものになっている。

Photograph 3.4.25及び3.4.26は、前出の貫通割れ部分の拡大写真であり、前者がas-polished状態、後者がエッティング状態を示している。前者から、貫通割れ近傍に長さ0.53mm程度のタイトな未貫通割れも存在しているのが分かる。一方、後者から、割れは粒界割れの様相を呈しているのが分かる。 U_3Si_2 粒にはいずれも溶融アルミニウムと反応した相が形成されており、また U_3Si_2 粒は殆どが割れをおこした形跡がある。

Photograph 3.4.27は、T/C#5付近にできたアルミニウム溶融孔である。いずれも燃料板表面近くに存在していた。

Photograph 3.4.28は、マップ(A)から分かるように、燃料板底部側のT/C#1を横切る横断面である。写真(B)はas-polished状態の、又写真(C)はエッティング状態の写真である。この試料は試料1(Sp.1)と称した。T/C#1は、温度ピーク971°Cを記録している。このためか、T/C#1箇所に近い発熱部中央では、アルミニウム被覆材が消失している。非発熱部と発熱部の境界で燃料は分断し、アルミニウム被覆材だけになっている。このような状況は前にも何例か出現した。このアルミニウム被覆部分のところ、すなわちネッキングの部分が、X線写真では黒の芯材に対して白く見えたところであろう。

溶融アルミニウムの結晶は柱状晶化していた。また、曲りは大きく約5.1mm程度になっていた。非発熱部の結晶構造は製造時のものと類似していた。ドッグボーンやブリストーの発生は認められなかった。

アルミニウム溶融による孔は、あまり数が多くなく、燃料板中心側(写真左側)に幾つかみえるだけである。芯材は露出しそうな傾向にあった。

Photograph 3.4.29は、T/C#1に近いところの芯材に関する拡大写真である。この部分ではアルミニウム被覆材が消失し、芯材が露出している。不規則な形状した U_3Si_2 の塊が分散しており、アルミニウムとの反応相も発生している。この試料に関しては、芯材の割れは観られなかった。これは、芯材が割れた場所の温度にくらべ、この部分の温度が相対的に低かったためと思われる。

Photograph 3.4.30は、マップ(A)からも分かるように、燃料底部側のT/C#2を横切る横断面である。写真(B)はas-polished状態の、写真(C)はエッティング状態の写真である。この試料は試料2(Sp.2)と称した。T/C#2では温度ピーク893°Cが記録されている。溶融したアルミニウム被覆材はあまり残っていないが、エッティング写真(C)でみると、柱状晶化したことは明らかである。

芯材の曲りは最大4.6mm程度あり、折れ曲がったようになって腕曲している。殆どの部分は芯材が露出している。芯材端では燃料分断があり、アルミニウム被覆材だけになっている部分もある。そこではピッティングらしきものの存在も観られる。非発熱部に於いても、写真(B)から分かるようにピッティングがみられた。

アルミニウム溶融に伴う溶融孔の大きさはあまり大きくなく、また割れも存在していない。この箇所には、頂部側からアルミニウム被覆材が流動して来たような形跡はみられなかった。

Photograph 3.4.31は、燃料板中央部分を拡大したものである。矩形状のU₃Si₂の塊がみられ、芯材溶融の形跡はない。しかし、約0.02mmの幅をもつ芯材とアルミニウムとの反応相は、どのU₃Si₂粒にも生じている。

Fig. 3.4.8は、PIEから得られた知見を簡単にまとめたものである。すなわち、以下の知見が得られた。

- (1) 燃料板は四方を取囲む非発熱アルミニウム被覆材から拘束をうけて、高温膨張したあと表側又は裏側に曲りを起こした。そのうち最大曲がりはT/C#3付近の6.9mmであった。このように、燃料板の横断面をみた場合、非発熱部分(一部発熱部端も含む)から急に発熱部分が腕曲し、中央部で最大曲りを生じているケースが多かった。この非発熱部と発熱部の境界では芯材が分断されたが(T/C#3に関するphoto. 3.4.3のケースでは分断幅約1.6mm)、この様子はX線写真からも確認された。
- (2) 燃料板中央部の縦断面形状は、波形にうねっており、溶融アルミニウム被覆材をとり込んだ分だけ、その肉厚は製造時の肉厚よりは厚いが、相対的に薄くなっている部分も共存した。このアルミニウム被覆材の溶融と薄肉化のためか、芯材中央部には沢山の溶融孔が存在していた。特に溶融孔の数は、燃料板頂部側に行くに従って多かった。
- (3) 燃料板中央部では、供試したどの縦断面に於ても燃料板貫通割れが観られた。また、一部には未貫通割れも共存しているのが確認された。
- (4) 芯材の露出が全面的に観られた部分では、アルミニウム被覆材の流失がみられた。それは、冷却材中に流失したのではなく、一部は重力効果によって燃料板底部側に、また一部は芯材との相互反応によってU₃Si₂粒中に取り込まれてスウェーリングに寄与し、また一部は溶融したのち、もとの位置で凝固したものと思われる。重力効果の証拠は試料6R(photo. 3.4.21)にて示した通りである。U₃Si₂粒との相互作用は、殆どの場所に於いて観察された。燃料温度が相対的に低かった燃料端部を除けば、サンドイッチしていたアルミニウム被覆材が、無キズのまま芯材を被覆し続けていた形跡は殆ど見られなかった。最も多く観察されたのは、溶融したアルミニウムが柱状晶をなして、被覆片側部分に存在するような形態であった。
- (5) 熱電対は、アルミニウム被覆材の温度だけでなく、より高温の芯材温度の影響も強く受けたと思われる。

燃料の破損に結び付く重要な観察は以下の通りである。

- (i) 燃料端のピーキング係数の高いところで、燃料芯材が分断し、アルミニウム被覆材だけが残ってネッキングをおこした。
- (ii) 燃料中央部では、アルミニウム被覆に熱応力(引張力)がかかり、その結果アルミニウム被覆材が薄肉化すると、結果として溶融アルミニウム孔の形成が生じる傾向にある。これが燃料板肉厚減少を加速する。なおかつ、この部

分では、粒界割れが生じ燃料板を貫通する傾向にある。

(A) アルミニウム溶融と共に芯材が露出したが、その溶融アルミニウムは芯材と反応して燃料板をスウェーリングさせた。熱応力によって燃料板は腕曲し、曲りを生じた。その最大は約7mmもあった。

安全性研究の観点からみると、著者らが予想だにしていなかったのは、アルミニウム被覆材が溶融し、芯材がスウェーリングするとともに冷却材側に露出したこと、また部分的には貫通割れキズが入ったのにも拘らず、圧力波や水撃力といった機械的な破損につながる影響が、一切発生しなかったことである。

4. 燃料ふるまいに関するSEM/XMA試験からの知見

これまでに実施したPIEにおいて、シリサイド燃料に係る詳細な評価行わられたが、それでも光学的顕微鏡による観察だけでは、どうしてもふるまいの原因が究明されないものが残された。そこで、原研のホット試験室に備え付けの走査型電子顕微鏡(SEM)を用いたPIEの追試を行い、燃料芯材構成元素(U, Si, Al)と被覆材構成元素(Al, Mg)の相互作用等を追跡してみた。

SEM/XMA試験は2回に分けて行った。第1回目は、燃料芯材とアルミニウムマトリックスとの反応に着目したものである。508-4実験(154cal/g·fuel)に於て、燃料芯材に貫通割れが発生したが、その割れ近傍の組織をSEM/XMAで評価分析した。続いて、508-1実験(62cal/g·fuel)に於ける燃料板組織をSEM/XMAに試供して、割れのない組織を研究し、最後に両データを相互比較して試験温度と芯材-被覆材間の相互作用の関係を明らかにした。

第2回目は、これまでのPIEで解明できなかった個々の供試試料の燃料ふるまいに関して、SEM/XMA分析を行った。

4.1 高温下での燃料芯材とアルミニウム母相との反応

4.1.1 508-4実験に関するSEM/XMA試験

供試試料は、508-4実験供試燃料板で、燃料板の中央部分を縦分割にした縦断面部(試料6R)である。この試料に関する金相上の説明は3.4節(Photograph 3.4.23)にて行った。

4.1.1.1 燃料破損割れキズ近傍

Photograph 4.1.1(a)に示すように、燃料板中央を通る縦断面試料6Rには、燃料を貫通する割れ・キズが生じている。この割れ方に関する詳細な写真が(c)である。この中央部のイチョウ形の塊はその径が概略0.045mm程度あった。これについて、まずSi元素による面分析を行ったところ(d)のようになった。これから分かるように、Si相はイチョウ形の第2相付近に多く分布している。

続いて、U元素による面分析を行ったところ(e)に示すようにイチョウ全体に渡

分では、粒界割れが生じ燃料板を貫通する傾向にある。

(A) アルミニウム溶融と共に芯材が露出したが、その溶融アルミニウムは芯材と反応して燃料板をスウェーリングさせた。熱応力によって燃料板は腕曲し、曲りを生じた。その最大は約7mmもあった。

安全性研究の観点からみると、著者らが予想だにしていなかったのは、アルミニウム被覆材が溶融し、芯材がスウェーリングするとともに冷却材側に露出したこと、また部分的には貫通割れキズが入ったのにも拘らず、圧力波や水撃力といった機械的な破損につながる影響が、一切発生しなかったことである。

4. 燃料ふるまいに関するSEM/XMA試験からの知見

これまでに実施したPIEにおいて、シリサイド燃料に係る詳細な評価行わられたが、それでも光学的顕微鏡による観察だけでは、どうしてもふるまいの原因が究明されないものが残された。そこで、原研のホット試験室に備え付けの走査型電子顕微鏡(SEM)を用いたPIEの追試を行い、燃料芯材構成元素(U, Si, Al)と被覆材構成元素(Al, Mg)の相互作用等を追跡してみた。

SEM/XMA試験は2回に分けて行った。第1回目は、燃料芯材とアルミニウムマトリックスとの反応に着目したものである。508-4実験(154cal/g·fuel)に於て、燃料芯材に貫通割れが発生したが、その割れ近傍の組織をSEM/XMAで評価分析した。続いて、508-1実験(62cal/g·fuel)に於ける燃料板組織をSEM/XMAに試供して、割れのない組織を研究し、最後に両データを相互比較して試験温度と芯材-被覆材間の相互作用の関係を明らかにした。

第2回目は、これまでのPIEで解明できなかった個々の供試試料の燃料ふるまいに関して、SEM/XMA分析を行った。

4.1 高温下での燃料芯材とアルミニウム母相との反応

4.1.1 508-4実験に関するSEM/XMA試験

供試試料は、508-4実験供試燃料板で、燃料板の中央部分を縦分割にした縦断面部(試料6R)である。この試料に関する金相上の説明は3.4節(Photograph 3.4.23)にて行った。

4.1.1.1 燃料破損割れキズ近傍

Photograph 4.1.1(a)に示すように、燃料板中央を通る縦断面試料6Rには、燃料を貫通する割れ・キズが生じている。この割れ方に関する詳細な写真が(c)である。この中央部のイチョウ形の塊はその径が概略0.045mm程度あった。これについて、まずSi元素による面分析を行ったところ(d)のようになった。これから分かるように、Si相はイチョウ形の第2相付近に多く分布している。

続いて、U元素による面分析を行ったところ(e)に示すようにイチョウ全体に渡

って分布していた。Al元素は、(f)に示すように、イチョウの外側、(c)でみると黒く見えるマトリクス部分に集中しており、イチョウ最外部第1相にも存在している。FP核種であるCsについて分布をとってみたが、存在しなかった(すなわち、バックグラウンドレベル以下であった)。この結果から、イチョウ形粒子のほとんどが U_3Si_2 でありその外側をアルミニウムマトリクスがとりまいていることが分かった。

そこで、Photograph 4.1.2に示すように、イチョウ形粒子の左端部分について拡大した写真(b)を用いてSi, U及びAlの線分析を行った。線分析箇所は写真(c)にて1と示す水平線に沿ってある。写真から分かるように、外側から幅約3~4μmの第1相、幅約1μmの第2相そして一番大きい第3相が存在する。まず、Al元素についても追跡すると、マトリクスの黒い部分でピークが生じているが、第1相から内側に向かうに従って急激に減少する。一方、Si元素は第1相から急激に立ち上がり、第2相でピークを示して次第に減少する。U元素は、Si元素と同様にふるまうが、そのピークは第3相で生じる。

これより、第1相はAl, Si, Uの混合相U(Al, Si)、第2相は、Si濃度の大きいすなわちSiリッチな相、そして第3相はU濃度の大きい(U, Si)相よりなっていると考えられる。

4.1.1.2 燃料芯材分断部

試料6Rには、芯材が分断した箇所があり、この箇所について面分析を実施した。Photograph 4.1.3はその結果である。着目した事柄は、例えば、「写真(c)で示す分断部(黒く見えるところ)は、Alだけなのか、それともUが混在しているのかどうか」というような点であった。その結果、(f)に示すように黒いマトリクスにはAlが十分にあるが、Uとしては、(e)に示すように僅かAl中に拡散しているだけであるということが分かった。この芯材分断はアルミニウムマトリクスが何らかの理由で流動して形成されたものと考えられる。この分断部のアルミニウム肉厚はもとのアルミニウム被覆肉厚よりかなり厚いので、熱応力による切断ではないとは思われるが、今のところ分断のメカニズムは究明できていない。

4.1.1.3 芯材露出部

燃料芯材からの熱は肉厚方向と板厚方向に伝わる。この場合、肉厚方向の熱は冷却材に伝えられ核沸騰等をおこすと思われるが、その場合の温度勾配はかなりきついものとなろう。特に、芯材側が冷却材側に露出したりするようになると、その温度勾配は一段と厳しくなると考えられる。

この芯材が露出しそうな状況にあった試料6Rの概観を、Photograph 4.1.4(b)に示す。この(b)を拡大したのが(c)であるが、この部分についてAl, U及びSi元素のXMA面分析を行った。その結果を、同じくPhotograph 4.1.4に示す。(d)から分かるようにAlは、被覆部分とマトリクス部分で殆ど差が無いよう見える。(e)から分かるように、Uは依然として塊状になっているが、マトリクス中に原子拡散した形跡がある。このUの分布強度が有意である事は、すぐ右に示したバックグラ

ンドレベルを示す写真との比較から分かる。すなわち、右側写真より左側写真のU強度を示す白い点が数多くなる程、明らかに有意なUが存在すると考える訳である。

写真(f)点から分かるように、Si元素も塊中だけでなく、マトリス中にも原子拡散しているようである。すなわち、Alの融点を超えた時点でUもSiも比較的自由にマトリクス中を原子拡散する傾向にあったと思われる。

4.1.1.4 芯材割れ形態

Photograph 4.1.5は、芯材割れの開口部付近にある U_3Si_2 の塊についての拡大である。この割れ具合からみると、芯材中の U_3Si_2 の塊が、恐らく、温度勾配によつて発生した熱応力によって割れ、続いて溶融Alによる芯材との相互作用が生じたと思われる。キャラメル状のものは、初期(パルス前)から存在していたのか、それとも、写真(c)に示すように、芯材 U_3Si_2 から分離したものかどうかについては、あまり明確にはならなかった。いずれにしても、 U_3Si_2 の塊を、常にAlがとりかこんでいる形態が至るところに見られる。

Photograph 4.1.6は、割れ先端近傍の U_3Si_2 の塊である。写真(b)をみても分かるように、もとの三角形態の U_3Si_2 はアルミニウムとの反応がおこる前に割れている。(c)は(b)の拡大であるが、一番外側の第1反応相は凸凹していて、キャラメルがへばりついたようになっている。第1反応相には、ピッティングがあり、これは(d)に示すように、至るところにみられた。(d)から分かるように、第1反応相に、割れが発生しているが、これは冷却時に熱収縮によって発生したものではないかと考えられる。

4.1.2 508-1実験に関するSEM/XMA試験

前章から分かるように、508-4実験(154cal/g·fuel:燃料温度ピーク871±128°C)では、燃料芯材は高温のために割れをおこすと共に、溶融したアルミニウムと反応する。その結果、芯材中には前述の第1相及び第2相が発生するとともに、芯材分断部や芯材露出部に於ては、アルミニウムマトリクス中に、UやSiが原子拡散する傾向にある。

それでは、発熱量が低い508-1実験(62cal/g·fuel、被覆材温度ピーク201±28°C)では、このようなことがおこっているのであろうか、それを検討するために、508-1実験から得た試料7すなわち前出Photo 3.1.5に相当するものについてSEM/XMA観察を行った。

Photograph 4.1.7は燃料板中央部、T/C#1付近についてSEM結果である写真(a)と(b)を、またSi及びAlについてXMA結果である写真(c)から写真(e)を示したものである。芯材表面には、研磨傷が見られるが、熱応力によるものと思われる割れは見当たらない。(c)及び(d)写真から分かるように、UとSiはほとんど同じ分布状態を示している。すなわち存在形態は U_3Si_2+USi の粒子のままであり、反応相はなかった。SEM写真に於て黒く見えているのは(e)から分かるようにAl相である。

Photograph 4.1.8は、 U_3Si_2 粒子に対する線分析を実施したものである。これより以下の事が分かる。

- (1) Alマトリスと U_3Si_2 粒子には反応の形跡がない。
- (2) UとSi相は、ある比率($U > Si$)でもって U_3Si_2 相を形成しており、Siのピークが界面で現われることはない。

すなわち、約200°C付近では、Alマトリクスと U_3Si_2 粒子間には、何の反応もおきていない事が明らかになった。

4.2 光学的顕微鏡で解明できなかった燃料ふるまいに関するSEM/XMA研究

4.2.1 508-1実験、試料6に関する考察

前節で、508-1実験の試料7(T/C#1部)に対する検討を行い、その線分析の結果から、燃料板被覆温度200°C程度では、アルミニウムマトリスと U_3Si_2 の相互反応は生じない事が明らかにされた。ここでは、試料6(T/C#2部)を用いてその再現性を考察する。

Photograph 4.2.1は、T/C#2(177°C)を横切る横断面にあって、T/Cを取り付けた被覆面とは反対側、すなわち、丁度裏面側に近い芯材端のSEM写真である。(a)はマップであり、(b)は、XMA対象箇所を示している。この箇所では、(c)中の線分1で示した範囲について、Al、U及びSi元素に関するXMA分析を実施した。結果は(c)中の白線で示してある。黒色に見えていたのはAlであり、白い塊に至ると急激に少なくなる。残りの2つの強度分布(U、Si)は、白色塊5μm手前からその分布強度を増加し、最後は両者の比を一定に保持したまま、対象粒子中に分布している。

これは、Photo 4.1.8で観察した結果と同じである。すなわち、177°C程度では、アルミニウムマトリクスと芯材との相互反応は生じないことがこれより再確認された。

この177°Cというのは、シリサイド燃料板が試験研究炉MTRにて通常使用される温度範囲であり、この温度範囲内に於いては、未照射シリサイド燃料の場合、過渡を受けても何ら組織上の変化は起きないということが明らかになった。

4.2.2 508-2実験、試料7に関する考察

前節に引き続いで、もう少し高い温度で反応相の有無を確認することとした。すなわち、今度は、508-2実験に用いた試料(T/C #1、被覆管温度ピーク200°C)に関して、考察を行った(前章、Photos. 3.2.7~3.2.9に担当)。別報⁽¹⁹⁾で報告したように、同試料のT/C部のXMA観察を行ってみると、Pt/Pt-13%Rh熱電対とアルミニウム被覆材の接触面において約0.007mm程度の厚みを持つ反応相が観察されている。そこで、T/C直下、芯材部とアルミニウム被覆材との境界に位置している U_3Si_2 粒子について、Photo 4.2.2に示すような線分析を行ってみた。

対象試料には少し割れが入っていた。写真(c)は、線分1に沿ったU、Si及びA

I元素に関するXMA線分析結果である。データ採取時に少しノイズが大きかったので、(d)～(f)では、それぞれの分布強度を合成せずに個々に示した。これから分かるように、芯材とアルミニウムマトリクス間には相互反応は認められなかった。

この粒子は約200°Cの温度を経験したと考えられる。この200°Cというのは、試験研究炉の定格出力の上限付近にあたるが、未照射シリサイド燃料に関しては、過渡変化をうけても健全性が阻害されるようなことはないことが明らかになった。

4.2.3 508-3実験、試料5に関する考察

前章、Photograph 3.3.3～3.3.5では、アルミニウム被覆材に入った3つの割れについて、金相写真から評価を行ったが、この割れの形態についてSEM/XMAを用いて更に考察する。

4.2.3.1 アルミニウム被覆材に観られた割れについて

Photograph 4.2.3(f)にマップを示す。割れはこの5L2試料(T/C #5, 被覆管温度544°C)の裏側面に発生していた。この3つの割れのうち、中央部の1部大きいものについて、SEM写真をとると(a)のようになる。被覆材のエッチングがうまく行かなかつたので、粒界割れか粒内割れかを明確に区別できなかつた。しかし、割れは芯材中にまで達していることは、明らかである。写真(b)中、上側芯材部の被膜がはがれているが、これはSEM試験のために前処理したカーボン蒸着膜がはがれたものである。写真(b)のXMA分析をU, Si及びAlについて行うと(c), (d)及び(e)のようになる。この面分析で明らかになつた事は、U元素は殆んど芯材とその近傍に存在しているのに対し、Si元素がアルミニウム被覆材裏側外面に向かって拡散した形跡が観られる。また写真(e)からは、それがマトリマスからのAlなのかそれとも被覆材からのAlなのかの区別がつけられなかつた。クラックを通って、U元素がアルミニウム被覆材中を移動した様子もみられなかつた。

写真(g)は、割れ先端部の拡大写真であるが、割れは U_3Si_2 粒子とぶつかるとその結晶粒界を迂回して進展していることが分かる。すなわち、結晶内を突き進んでいない。写真(h)は、熱応力によって割れが入った芯材の中央部にAl元素が存在していることを示している。

4.2.3.2 燃料芯材分断部

前章と同一試料に関して、中央部の燃料芯材分断部分に対し考察を行つた。この分断部では、主要元素であるU, Si及びAlがどのような形態で分布しているのかが注目された。その結果をPhotograph 4.2.4(c), (d)及び(e)に示す。写真(c)に示すU元素は芯材部のみであり、写真(e)に示す分断部のAlのところまで拡散した様子はないが、拡散しそうな状態にあった事が、芯材のまわりに点在するUスポット(白い点)の状態から推察される。一方、Siは白いスポットが分断部のAlマトリクス中にもあり、僅かではあるが、芯材部分から拡散してきた形跡がある。すなわち、分断部のアルミニウムマトリクスに対して、Siのみが僅かであるが原子拡

散をおこした形跡がある。

4.2.3.3 エッチング形態が全く異なるアルミニウム被覆材部分

前出Photograph 3.3.3～3.3.8の観察に於いて、アルミニウム被覆材のエッチング状態が同一被覆材なのに全く異なっている場所があった。そこは、Photograph 4.2.5 (d)にて④と矢印するところであり、写真(a)はそのSEM像である。写真(a)中、矢印で示した部分を境にして、左右の形態は全く違っている。左側には白い部分が多く、右側は $3\mu\text{m}$ 程度の孔が沢山あいている。一方、Al元素によるXMA分析を行っても、両境界には有意な差は生じなかった。エッチング条件は同じであるので、この両組織はパルス照射中に何らかの異なる熱変化を受けたと思われる。

4.2.3.4 燃料芯材の形態、特にアルミニウムとの相互反応

Photograph 4.2.4(a)に示した燃料芯材分断部の写真から、さらに拡大写真を作り、それをPhoto 4.2.5(p)として示した。これから分かるように、燃料芯材は割れており、割れは、アルミニウムマトリクスから芯材中へとつき進んだと思われる。しかし、芯材とアルミニウムマトリクスとの境界面には何らの反応相の生成もない。この付近は、実験中最も高い温度 544°C (T/C #5)を記録したところであるが、芯材とアルミニウム被覆材との相互反応は無かったとの結論に達した。

4.2.3.5 露出した芯材の形態

Photograph 4.2.6、マップ(f)及びマクロ写真(b)に示すように試料5L1中央部前面側では、芯材は変形し、かつ冷却材側に露出していた。その付近のSEM/XMA解析を行ってみた。SEM像(a)は解析対象部分を示している。写真左上にV字形で光っているのは、前述のカーボン蒸着膜の不具合部分である。

さて、それらのU、Si及びAlに関するXMA写真(c)、(d)及び(e)によれば、U元素は殆ど芯材中にとどまつたままであるが、Si元素は被覆材中を拡散し、被覆まで到達している。一方、写真(a)の矢印で示した部分について、UとAlのXMA写真を観ると、いずれもAlが含まれている。しかし、この部分は明らかに他の芯材部分とは異なっている。すなわち、全体的に黒ずんでおり、粒子が密につまつた形態をしている。このような形態をしたもののが、試料中のところどころに観察されたが、どのようにしてこれが形成されたのか、または元からあったものなのか等の詳細は究明できなかった。

4.2.4 508-3実験、試料BTに関する考察

4.2.4.1 ピーキング付近の燃料被覆割れ

燃料板にはエンドピーキングがみられたが、その部分からの横断面試料について考察を行った。この部分に関する光学顕微鏡の金相観察結果は、

Photograph 3.3.9に示すとおりである。

Photograph 4.2.7は、(a)がマップ、(b)が2つの横断面を示している。(b)中矢

印で示した箇所には割れがあり、写真(c)は、そのSEM像である。この写真からは、アルミニウム被覆材の粒界に沿った割れが観られた。すなわち、割れ形態は粒界割れと判断される。アルミニウム被覆材の主要構成元素であるAl及びMgについてXMA分析を行ったが、その結果を(d)と(e)に示す。(d)ではAl濃度に差が生じているが、再度のチェックの結果、これは機器の不具合から生じたもので、実際にはAl濃度に強度上の差異はなかったことが確認されている。一方、Mgについては、芯材側に多く、被覆外側に少ないという傾向がみられた。すなわち、Mgの溶融点は649°Cであること、この付近の被覆材温度はT/C#3とT/C#4のデータから397~414°C程度であったこと、等を考慮すると、Mgが原子拡散によって再分布したと考えられる。

4.2.4.2 芯材の露出形態

Photograph 4.2.8は、マクロ写真(b)中の矢印部のSEM/XMA分析結果を示している。この部分では殆ど芯材が露出してしまっている。写真(f)のAl元素が不均一分布しているが、これは機器の不具合のためである。このAlは、アルミニウム被覆材から来たのものなのか、芯材から来たもののかは明かにできなかった。しかし、何らかの作用によって芯材部が燃料板表面にまで移動して来た事は間違いない。Siは芯材部分のみならず、アルミニウムマトリクス中にも分布しているのが分かる。すなわち、Uと結合していたSiは、約400°CになるとUから分離して、アルミニウム中を拡散移動する傾向にあることが分かる。

4.2.5 508-4実験、試料2に関する考察

508-4実験試料2については、photograph 3.4.30及び3.4.31にて金相観察を行っている。試料2は、T/C#1を横断する切断面であり、測定燃料温度ピークは893°Cであった。

4.2.5.1 燃料芯材分断部

photograph 4.2.9は、マクロ写真(c)に示す燃料芯材分断部(ネッキング部)について、(b)でSEM像をまた(d)と(e)でUとSiに関するXMA分析の結果を示している。

このSEM像から明らかなように芯材は分断されたもののアルミニウム被覆材は残留していた。また、この部分を境にして燃料板肉厚は中央側で薄肉化し、曲りが大きくなっている。さて、写真(b)からみると、溶融したアルミニウム被覆材は長手方向に引っ張られたようになっている。この部分の芯材構成元素U及びSiのXMA分析を行ってみると、分断部アルミニウム中には殆ど存在していない事が分かる。この事から、まわりを冷却材及び非発熱アルミニウム被覆材で囲まれて拘束を受けた芯材が熱膨張し、その結果燃料板に曲がりが入ったためネッキングが生じたこと、しかし芯材自体はバラバラにならず局所的に極く1部が分断したこと、がうかがわれる。

試料2は、燃料板のほぼ中央部近くにあって曲りが最大になった場所であるが、

その付近で殆ど露出しかかった燃料芯材についてSEM/XMA分析を行った。分析対象箇所は、写真(d)に矢印で示した。その結果は、Photograph 4.2.10に示す。XMA分析写真によれば、写真(f)のAl元素が、外側から拡散して第1相にて写真(c)や(e)に示す(U, Si)と反応していることが分かる。ここでは、前にみられたようなSiリッチの第2相の形成はなかった。形成された第2相は(U, Si)相であり、Alはこの相中に存在していない。Alの拡散層の厚みは約1.5~3.0 μmであった。もし、芯材形状に変化がなく、反応前まではAlは芯材外側のみに存在していたと仮定すれば、写真(a)の場合、全体の1/3領域までアルミニウム拡散が進展したと推定される。この反応に使用されたアルミニウムは、もともとのアルミニウムマトリクスからのものであろうし、また芯材露出の部分においては、アルミニウム被覆材からのものであったであろう。

反応相生成は、あらたにU₃Si₂(融点1665°C)の他に融点の低いUAix(融点1350°C)を結果的に作り上げ、予測温度よりも更に低温側で燃料芯材を溶融させる可能性がないこともないと思われる。

もう1つ注意が必要なのは、反応によってできた第1相の外側には割れが入り、もともとの芯材から分離するような傾向がみえることである。これは分散芯材の再配置(リロケーション)につながる可能性があり、芯材の溶融分散過程が、このリロケーションで加速されるようなことになれば、厳しいものとなろうが、あくまで推定の域を出ない。

いずれにしても、約900°Cまで高温化していればアルミニウム被覆材の機械的強度は十分に劣化しており、燃料板の健全性を保持するのは難しい。しかし、非発熱部が燃料板を拘束しながらも形状維持の役目を果しており、燃料板としては自立している。

Photograph 4.2.11は、マクロ写真(b)で示すように前出図とほぼ同じ△印で撮影したSEM/XMA観察であるが、より芯材中心側のものである。Alの拡散層の形成と拡散層の粒状化がここに於いても観察される。XMAにおいて、Uの分布をとってみると、中心に少しUが多いように見えるだけで、殆どUは均一に分布している。またアルミニウムマトリクス中にもUが少しずつ拡散していったことが分かる。

一方、写真(b)X印箇所は、非発熱部に近いところであり、これまでのものより低温側組織と考えられる。写真(c)はその部分における典型的なSEM像である。これより分かるように、拡散による第1相(最外殻相)は約1.5 μmの厚さにしかなっていない。これから分かるように、拡散層の形成には、その部分の温度が重要な役割を果たしているようである。X印箇所は、燃料芯材端であり、最も冷却状態が良かったところと思われる。この部分の写真(f)によれば、芯材形状も比較的大きく、割れも少なく、何よりも拡散層が殆どできていないことが分かる。

4.2.6 508-4実験、試料3に関する考察

本試料は、前章ではPhotographs 3.4.3~3.4.8として金相観察に供したものである。この試料は、燃料板中央部で沢山の溶融孔の存在が確認されており、その

溶融孔形成のメカニズムが倍率の低い(約800倍)金相写真からは把握できなかったものである。

Photograph 4.2.12は、(a)マップ、(b)マクロ写真及び(c)、(d)にてSEM像が示されている。(b)から分かるように、溶融孔の先端について写真(d)のような拡大化を行った。この写真から分かるように、全体的には細かいキャラメルのような U_3Si_2 (一辺3~4μm)を沢山含んだ孔があったが、孔の奥は閉じていた。すなわち、ある奥行きと長さで孔は閉孔となっていた。孔の入口径は概略0.3~0.4mm程度である。写真(c)は、写真(d)のすぐ近くの芯材に対する拡大写真である。反応相の幅としては約10μm程度であった。

Photograph 4.2.13は、前出写真のすぐ近くの部分に関して行ったSEM/XMA分析結果である。写真(c)から分かるように左上の小さな孔は閉じているが中央の大きなものは、より深さが深いように見える。この奥行きは、2~3mm程度と思われる。写真(d)は、そのXMA分析結果であるが、奥行きの深い孔の箇所では、Alが殆ど検出されない。これはAlが存在していないのかもしくは存在していても検出不可能な程孔が深いということであろう。

4.3 508-4実験、試料6Rの点分析

本試料6Rは、前章ではPhotographs 3.4.21~3.4.23(燃料温度 873~957°C)で、また本章ではPhotographs 4.1.1~4.1.6で評価対象になったものである。特に後者では、アルミニウム被覆材の主要構成元素であるAlとMgについて、また芯材の主要構成元素であるU、Si及びAlについて、SEM/AMAによる燃料ふるまいが評価された。

ここでは、試料6Rの燃料板貫通割れの近傍に於いて、点分析を実施した。点分析はPhotograph 4.3.1に示すように芯材部、第1相、第2相及びアルミニウムマトリックス上の4ヶ所について実施した。点分析によって同定された元素をFig. 4.3.1~Fig. 4.3.4に示す。写真中①の箇所(マトリックス)にて検出された元素は、U、Al、Mg、Cである。このうちCは、電子ビーム機器の構造からくるものであり、本題とは無関係であるので、以後は検出されても言及しない。②の箇所、すなわち第1反応相にて検出された元素はU、Al、Siであった。③の箇所、すなわち第2反応相にて検出された元素はU、Siであった。

最後のオリジナル粒子の箇所で検出された元素は、U、Siであった。これら点分析にて検出された元素は、線分析の結果(Photo 4.1.2)と傾向的に良く一致した。また、各相の化学形態を推定するため、特性X線の強度比も測定してみた。

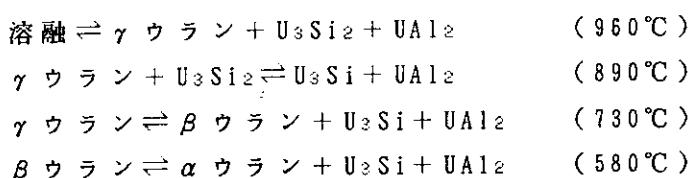
Photograph 4.3.1の①の部分は、本来ならばマトリックス(母相)を構成するアルミニウムだけのはずであるが、これ以外にUとMgが検出された。このUは、検出対象近くに存在した小さな芯材粒子中のUを検出してしまった可能性がある。これに対し、Mgはアルミニウム被覆材中に含まれていたものであり、ここでMgが検出されたということは、アルミニウム被覆材とマトリックスアルミニウムが、溶融後に混合した可能性を示唆するものである。

第1反応相でのUとSiのX線強度比は $U:Si=2241:736\text{cps} \approx 3:1$ であり、芯材部のそれは $U:Si=3072:1193\text{cps} \approx 2.6:1$ であるから、両者の比はほぼ等しい。U、Siのそれぞれの特性X線強度はAlの影響があって芯材部と比較すると反応相では相対的には小さかった。これらから、第1反応相は、 $UA1_x$ と U_3Si_2 の混在相ではないかと推定される。

第2反応相ではAlは検出されなかった。UとSiの特性X線強度比は $U:Si=2579:1537\text{cps} \approx 1.7:1$ であり、芯材部及び第1反応相でのそれは $2.6:1$ である。従って、相対的にSiがかなり多く存在している事が確認できた。つまり、この第2反応相は(U, Si)混在相であると推定される。

Photograph 4.3.1で、④と示された部分は、オリジナルの芯材部であり、殆ど U_3Si_2+USi (USiの存在率は約20%以下)から構成されていると考えられたが、実際に点分析を行ってみてもUとSiの存在じか認められなかった。

Petzowら⁽²³⁾及びPetrovら⁽²⁴⁾が行ったU-Si-Al 3元合金系に関する相図研究の結果によれば、580°C～960°Cの温度範囲で以下のようない相変態があることが分かっている。すなわち、



さて、実験では、T/C#3部分を除く殆んどの部分がFig. 3.4.1から分かるように、800°C～970°C付近に加熱されたのち、その温度領域から急冷されている。従って、本実験の点分析から観察された第2反応相は、アルミニウム相が殆んど拡散して来なかつたため、上記の3元合金による相変態に至らず、単純にγウランと U_3Si_2 の二元状態下で相変態が進行したものであろう。その結果、γウランと U_3Si_2 の混在相が形成されたと思われる。

これに対して、第1反応相領域では、γウランと U_3Si_2 の混在相が約890°C付近で $U_3Si + UA1_2$ を生じ、さらにそれ以上の高温部分では、γウランと U_3Si_2 と $UA1_2$ の3元合金による共析変態がおこり、それらの結果として U_3Si_2 と $UA1_2$ 及びγウランの混在相が形成されたと考えられる。

いずれにしても、第1反応相はU-Si-Alの3元合金系における相変態から生じたものであり、第2反応相は、U-Siの2元合金系における相変態から生じたものであろうと結論される。燃料温度が高くなればなる程、U-Siの2元合金系によるよりも、Alを含めたU-Si-Alの3元合金系による共析変態が芯材の組織変化を律速していくことが予想される。

5. 安全性に係わるPIEデータの評価

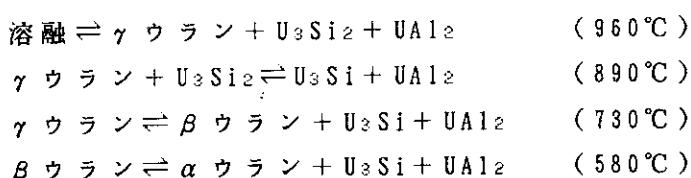
最後に、燃料板の健全性又は事故時安全性の観点から、PIEデータをとりまとめたTable 3.2による詳細な燃料ふるまい評価を行ってみた。

第1反応相でのUとSiのX線強度比は $U:Si=2241:736\text{cps} \approx 3:1$ であり、芯材部のそれは $U:Si=3072:1193\text{cps} \approx 2.6:1$ であるから、両者の比はほぼ等しい。U、Siのそれぞれの特性X線強度はAlの影響があって芯材部と比較すると反応相では相対的には小さかった。これらから、第1反応相は、 $UA1_x$ と U_3Si_2 の混在相ではないかと推定される。

第2反応相ではAlは検出されなかった。UとSiの特性X線強度比は $U:Si=2579:1537\text{cps} \approx 1.7:1$ であり、芯材部及び第1反応相でのそれは $2.6:1$ である。従って、相対的にSiがかなり多く存在している事が確認できた。つまり、この第2反応相は(U, Si)混在相であると推定される。

Photograph 4.3.1で、④と示された部分は、オリジナルの芯材部であり、殆ど U_3Si_2+USi (USiの存在率は約20%以下)から構成されていると考えられたが、実際に点分析を行ってみてもUとSiの存在しか認められなかった。

Petzowら⁽²³⁾及びPetrovら⁽²⁴⁾が行ったU-Si-Al 3元合金系に関する相図研究の結果によれば、580°C～960°Cの温度範囲で以下のようない相変態があることが分かっている。すなわち、



さて、実験では、T/C#3部分を除く殆んどの部分がFig. 3.4.1から分かるように、800°C～970°C付近に加熱されたのち、その温度領域から急冷されている。従って、本実験の点分析から観察された第2反応相は、アルミニウム相が殆んど拡散して来なかつたため、上記の3元合金による相変態に至らず、単純にγウランと U_3Si_2 の二元状態下で相変態が進行したものであろう。その結果、γウランと U_3Si_2 の混在相が形成されたと思われる。

これに対して、第1反応相領域では、γウランと U_3Si_2 の混在相が約890°C付近で $U_3Si + UA1_2$ を生じ、さらにそれ以上の高温部分では、γウランと U_3Si_2 と $UA1_2$ の3元合金による共析変態がおこり、それらの結果として U_3Si_2 と $UA1_2$ 及びγウランの混在相が形成されたと考えられる。

いずれにしても、第1反応相はU-Si-Alの3元合金系における相変態から生じたものであり、第2反応相は、U-Siの2元合金系における相変態から生じたものであろうと結論される。燃料温度が高くなればなる程、U-Siの2元合金系によるよりも、Alを含めたU-Si-Alの3元合金系による共析変態が芯材の組織変化を律速していくことが予想される。

5. 安全性に係わるPIEデータの評価

最後に、燃料板の健全性又は事故時安全性の観点から、PIEデータをとりまとめたTable 3.2による詳細な燃料ふるまい評価を行ってみた。

5.1 燃料板温度

Fig. 5.1.1はT/Cで実測した燃料板温度と発熱量の関係を示している。ここでいう燃料板温度とは、より正確にいうとアルミニウム被覆材の溶融がおこる以下の温度領域($< 640^{\circ}\text{C}$)では被覆材の表面温度であり、アルミニウム被覆材の溶融がおこった以上の温度領域($\geq 640^{\circ}\text{C}$)では、芯材温度の影響を強く受けた溶融アルミニウム被覆材の温度となる。図中、Y軸には、シリサイド燃料のアルミニウム被覆材、芯材構成成分の固相線及び液相線(溶融点)温度を例示した。また、右側の枠内には、本実験のPIEから観察された燃料ふるまいを、それが発生した温度付近に黒丸を打って例示した。燃料温度と発熱量については燃料板の破損がおこった温度データ点は黒丸で、非破損は白丸で示した。以下にこれらから得られた知見を述べる。

(1) 508-1及び508-2実験は、燃料温度 200°C 付近で行われたものであり、試験研究炉の通常運転及び運転過渡温度領域は、この付近の温度になろうかと思われる。最大測定温度に関する誤差(バラツキ)は高々 $\pm 30^{\circ}\text{C}$ 程度であり、燃料板は比較的均一な温度分布を示した。Fig. 5.1.2にパルス照射後の燃料板の外観を温度と共に示したが、 200°C 付近では殆ど照射前の形状と差異はない。

このような温度範囲にて炉運転が行われていれば、過渡が発生しても未照射シリサイド燃料板の安全性には何ら問題が生じないであろうことは明かであろう。

(2) 板状燃料を用いる試験研究炉においては、燃料板の健全性を保持するための判断基準温度として、 400°C を目安値として採用している。燃料板の温度 400°C は、試験研究炉の重要な判断基準温度となっている。この温度は、 550°C 付近で発生するとされているブリスターに対し、工学的安全裕度を加味して決められたものである。

本実験では、未照射シリサイド燃料板を用いたため、ブリスターの発生がなかったのにも拘らず、約 400°C からアルミニウム被覆材に割れが発生して燃料破損がおこることが判明した。すなわち、通常運転及び運転過渡では、FPスウェーリングによる燃料板の破損(ブリスター)をもって1つの判断温度 400°C が定められたが、この温度は過渡変化によって燃料板に割れが入って破損する温度でもあることが、本実験より明らかになった。

Fig. 5.1.1中の508-3温度データは、 $418 \pm 74^{\circ}\text{C}$ とバラツキがある。実際に燃料板の割れが生じたのは、燃料芯材中央部においてであり、燃料板ピーク温度が 544°C に到達した付近である。一方、 $418 \pm 74^{\circ}\text{C}$ の下限側すなわち 400°C 以下では燃料板は健全であった。燃料板の外観はFig. 5.1.2の下から二番目に示されている。

いずれにしても本実験範囲では、 400°C を過渡変化における破損しきい値として位置づけることが可能である。後述するが、この温度は著しい燃料板の曲り及び芯材の露出が発生するしきい値ともなりうる。しかし、重要なこととして明記しておくが、破損燃料板からは、圧力波や破壊力といった機械的エネルギー

ギ発生に結び付くものは全く生じなかった。

(3) 508-4実験では、燃料板温度は $871 \pm 128^{\circ}\text{C}$ の温度範囲に到達し、燃料ピーク温度は局所的には最高 971°C を記録した。これは、すでにアルミニウム被覆材の溶融温度を超えていたため、曲り、芯材の溶融といった燃料ふるまいの他に、芯材の分断と被覆材肉厚の極端な減少(ネッキング)、局所的な燃料板の厚みの増加(スウェーリング)、燃料板貫通割れ、そして(A1、Si)Uの反応相生成といった現象がみられた。(A1、Si)Uの反応とは、高温化した芯材部に、溶融したアルミニウムニウム又は溶融した被覆材Al-3w/oMg合金が拡散反応し、芯材外側からAlリッチの第1相、すなわち(U、Al、Mg)の混合相で平均幅約 $3\sim 4\mu\text{m}$ 、Siリッチの第2相すなわち(U、Al、Si)の混合相で平均幅約 $1\mu\text{m}$ 、及びオリジナル相すなわち(U、Si)相よりなる形態を結果として作り上げるものである。本実験においては、反応相はオリジナル芯材径に対し、概略その約 $1/3$ にまで達している。

Fig. 5.1.2の一番上の写真は、照射後の燃料板外観である。ここでは、燃料板の殆どの場所で、アルミニウム被覆材の溶融温度 640°C 以上になっている。Fig. 5.1.1に示すように5対の熱電対データは、最低でも 652°C にあった。

著者らは、アルミニウム被覆材が溶融すれば高温になっている芯材が冷却材側に露出して冷却材と接触することにより、圧力波の発生及び冷却材の膨張による水撃力の発生があると予想していたが、本実験範囲内ではそれらは生じなかった。また、いずれの実験に於いても燃料板が破碎化するような兆候はみられなかった。

5.2 燃料板の曲り

PIEにて燃料板の熱電対を含む部分を縦横に切断したのち、金相観察を行い、そこでの最大曲り(Bowing)を測定した。同時に、熱電対で測定した切断面の燃料温度の最高値も炉内データから取得した。この両者をプロットした図がFig. 5.1.3である。この図から分かるように、最大曲りは、燃料板温度 350°C 以下では発生しなかった。しかし、それ以後は温度上昇と共に増加する傾向にあり、その最大値は約 900°C で約 7mm となった。

我が国の試験研究炉について考えると、冷却材流路幅(チャンネル幅)は、 $2.7\sim 3\text{mm}$ 程度のところが多いとされている。この試験研究炉における燃料の曲りによる流路閉塞を考えると、例えば平板でチャンネルを構成するとして 1.5mm 曲り(相隣接する燃料板が流路を最も狭くする最悪の方向に同時に曲がったとする曲り)が発生するのは、本実験の結果によれば、燃料板温度約 400°C である。従って、燃料板の曲りによる流路閉塞を防ぐ意味からいっても、燃料板温度は 400°C 以下に制限する事が望ましいと考えられる。ただし、本実験で用いた小型燃料板は、 708 (長さ) $\times 25$ (幅) $\times 0.38\text{mm}$ (厚み)のアルミニウム平板合金で被覆している。すなわち、被覆長さに対する芯材長さの割合は $70/135=0.52$ 、一方被覆幅に対する芯材幅は $25/35=0.71$ となっている。これに対し、試験研究炉では前者が $760/780=0.97$ 、後者が $62/71=0.87$ となっている。被覆材と燃料板の肉厚に関しては、本実験条件は多く

の試験研究炉と同じであるが、曲りに対する模擬性及び横軸の測定温度は実際はもっと高目になることに注意を払う必要がある。

本実験の場合、燃料板の長さ方向の伸縮に対し、極めて拘束が強い条件となっているようである。これに対し、試験研究炉燃料板は合金のうち97%が発熱体であり、長さ方向に対する拘束は本実験よりも弱いと考えられる。曲りに関して、本実験は拘束を極めてきつくした安全側におけるデータを示していると考えられる。

本実験のような安全余裕を見た条件にも拘らず、Fig. 5.1.3に示すように、燃料板は400°C以下では、流路閉鎖が殆ど生じない。従ってこの温度以下に異常過渡及び事故時の判断条件が設定されていれば、曲り等に対しても十分に安全側にあるといえる。

5.3 燃料板の厚み変化

5.3.1 芯材厚み

Fig. 5.1.4は、PIE金相写真を用いて測定した燃料芯材の局所厚みをその局所温度に対してプロットしたものである。これより以下のことが分かる。

- (1) 芯材の肉厚は400°C以下では殆ど変化がない。
- (2) 400°C～800°Cでは、温度の上昇とともにアルミニウム被覆材の再結晶化・溶融が進み、さらに芯材と反応をおこすため、燃料芯材は全体的にスウェーリングする。局所的なスウェーリング率は、最大で236%(1.7mm)にもなる。
- (3) 燃料温度が800°Cを超えると、芯材の塑性流動が著しく大きくなつて曲りや凸凹変形が進む。芯材厚みは、この結果、全体的には減少する傾向にある。

5.3.2 アルミニウム被覆材

Fig. 5.1.5は、前記同様、PIE金相写真を用いて測定したアルミニウム被覆材の局所厚みをその局所温度に対してプロットしたものである。被覆材厚みは400°Cまでは初期肉厚の±50%以内で分布している。しかし、600°C近傍になると、高温化のため初期寸法形状が保持できないようになる。すなわち、500°Cを超えると局所的には被覆肉厚がほぼゼロという箇所、即ち芯材露出(Denudation)箇所が生じる。更に高温化が進むと、芯材と反応したり、表面張力や重力効果で流動したり、そのまま溶融・凝固したりして局所的な溶融アルミニウム被覆材の塊ができたりする。そのため、図では800°C～1000°Cの間で被覆肉厚が100%から200%の間で増減した。

5.3.3 燃料板

Fig. 5.1.6は、燃料板の厚み変化をPIEの金相写真から得て、そこでの局所温度に対してプロットしたものである。燃料板の厚みは、400°C以下では燃料板肉厚の

±20%で変化する。この誤差中には、当然製造誤差も含まれている。しかし、それを過ぎると、拘束をうけた芯材部の発熱膨張が著しくなって曲りが急激に発生する。さらに燃料板の軟化によってそれが加速されると、塑性変形が生じ燃料板の肉厚は減少するようになる。この減少傾向は、燃料芯材が燃料端部で局所的に分断され、被覆材だけの肉厚の薄い部分—ネッキングが発生すると更に加速されるようである。図中、ネッキング部分の測定値は三角印で示し、他の場所における測定値(丸印)とは区別した。温度の上昇と共に燃料板の凸凹は更に大きくなり、最大では初期肉厚の±60%範囲で変化する。しかし、平均値は依存として初期肉厚付近にあり、燃料板の全体的な平均値はほぼ一定であることがうかがわれる。これは、アルミニウム被覆材等が冷却材中に、流失していなかった事をも裏付けている。

6. 結言

低濃縮(19.89w/o)ウランシリサイド小型板状燃料に関して、過渡変化時の燃料ふるまいを研究するため、原研の安全性研究炉NSRRを用いてパルス照射実験を行った。供試小型燃料板は、縦130mm×幅35mm×厚さ3.8mmの大きさを持つAl-3w/oMg合金板を用い、縦70mm×横25mm×厚さ0.51mmのシリサイド芯材をサンドイッチにして圧延加工した板材であり、燃料密度は4.8gU/c.c.、製作メーカーはフランス・セルカ社である。

燃料板には、Pt/Pt-13%Rh熱電対をスポット溶接し過渡温度データを得るとともに、パルス照射後は照射後試験を実施し、燃料板の寸法安定性、破損しきい値等の健全性及び過渡／事故時安全性に関する研究を行った。

パルス照射実験は、1回のパルス実験につき1枚の燃料板を用い、燃料板に与える発熱量を段階的に上昇させる方式をとった。4回の実験によって、62、77、116及び154cal/g·fuelの発熱量がそれぞれ燃料板に与えられ、燃料板温度ピークとして、 $201 \pm 28^\circ\text{C}$ 、 $187 \pm 10^\circ\text{C}$ 、 $418 \pm 74^\circ\text{C}$ 、 $871 \pm 128^\circ\text{C}$ が得られた。この温度のばらつきは燃料板上のγ線分布や冷却状況に依存するものであり、熱電対自身は実際の温度よりも最大約35°C低目に温度を読み取っている。

実際より得られた主要な結果は、以下の通りである。

I. 燃料板の寸法安定性

(1) 400°C以下燃料板の寸法安定性は極めて良好であった。すなわち、

(ⅰ) 曲りの発生は350°C以下では殆んどなく、400°C付近で最大でも1mm以下であつた。

(ⅱ) 芯材の肉厚は殆ど変化なかった。アルミニウム被覆材の肉厚はその形状を保持しつつ製造肉厚の±50%以内で変化した。

(ⅲ) 燃料板の厚みは初期燃料板肉厚の±20%以内で変化した。

本実験の結果から、シリサイド燃料板の寸法安定性は400°C以下であれば極めて良好と判断され、健全性も保持されると考えられる。

±20%で変化する。この誤差中には、当然製造誤差も含まれている。しかし、それを過ぎると、拘束をうけた芯材部の発熱膨張が著しくなって曲りが急激に発生する。さらに燃料板の軟化によってそれが加速されると、塑性変形が生じ燃料板の肉厚は減少するようになる。この減少傾向は、燃料芯材が燃料端部で局所的に分断され、被覆材だけの肉厚の薄い部分—ネッキングが発生すると更に加速されるようである。図中、ネッキング部分の測定値は三角印で示し、他の場所における測定値(丸印)とは区別した。温度の上昇と共に燃料板の凸凹は更に大きくなり、最大では初期肉厚の±60%範囲で変化する。しかし、平均値は依存として初期肉厚付近にあり、燃料板の全体的な平均値はほぼ一定であることがうかがわれる。これは、アルミニウム被覆材等が冷却材中に、流失していなかった事をも裏付けている。

6. 結言

低濃縮(19.89w/o)ウランシリサイド小型板状燃料に関して、過渡変化時の燃料ふるまいを研究するため、原研の安全性研究炉NSRRを用いてパルス照射実験を行った。供試小型燃料板は、縦130mm×幅35mm×厚さ3.8mmの大きさを持つAl-3w/oMg合金板を用い、縦70mm×横25mm×厚さ0.51mmのシリサイド芯材をサンドイッチにして圧延加工した板材であり、燃料密度は4.8gU/c.c.、製作メーカーはフランス・セルカ社である。

燃料板には、Pt/Pt-13%Rh熱電対をスポット溶接し過渡温度データを得るとともに、パルス照射後は照射後試験を実施し、燃料板の寸法安定性、破損しきい値等の健全性及び過渡／事故時安全性に関する研究を行った。

パルス照射実験は、1回のパルス実験につき1枚の燃料板を用い、燃料板に与える発熱量を段階的に上昇させる方式をとった。4回の実験によって、62、77、116及び154cal/g·fuelの発熱量がそれぞれ燃料板に与えられ、燃料板温度ピークとして、 $201 \pm 28^\circ\text{C}$ 、 $187 \pm 10^\circ\text{C}$ 、 $418 \pm 74^\circ\text{C}$ 、 $871 \pm 128^\circ\text{C}$ が得られた。この温度のばらつきは燃料板上のγ線分布や冷却状況に依存するものであり、熱電対自身は実際の温度よりも最大約35°C低目に温度を読み取っている。

実際より得られた主要な結果は、以下の通りである。

1. 燃料板の寸法安定性

(1) 400°C以下燃料板の寸法安定性は極めて良好であった。すなわち、

(i) 曲りの発生は350°C以下では殆んどなく、400°C付近で最大でも1mm以下であった。

(ii) 芯材の肉厚は殆ど変化なかった。アルミニウム被覆材の肉厚はその形状を保持しつつ製造肉厚の±50%以内で変化した。

(iii) 燃料板の厚みは初期燃料板肉厚の±20%以内で変化した。

本実験の結果から、シリサイド燃料板の寸法安定性は400°C以下であれば極めて良好と判断され、健全性も保持されると考えられる。

しかしながら、400°Cを超えるとシリサイド燃料板の機械的強度特性が劣化すると共に、以下のようなふるまいがみられた。すなわち、

- (1) 400°C以上になると燃料板の曲りは温度上昇と共に大きくなり、約900°Cで約7mmとなった。
- (2) 400°C～800°Cの範囲における芯材の肉厚は、軟化又は溶融したアルミニウム被覆材との反応によりスウェーリングし、初期0.51mmが最大で1.7mm(236%)にも達した。燃料温度800°Cを超えると、今度は芯材のクリープ(塑性流動)が著しくなり、凸凹変形や曲りに大いに影響することも判明した。
- (3) アルミニウム被覆材は500°Cを超えた付近で塑性流動や溶融を開始し、その結果、一部は芯材と反応し、一部は表面張力や重力効果によって燃料板下方に移動し、一部は柱状晶化して、アルミニウム塊を作った。
- (4) 燃料板は、400°C以下になると曲りの増加と燃料板内の熱応力の増加のため塑性変形し、薄肉化する。このため、局所的には燃料芯材の分断とアルミニウム被覆材部分の極端な薄肉化(ネッキング、最大は初期1.27mm肉厚に対して0.29mmまで減少)がおこる。それ以外の場所では燃料板の凸凹が温度上昇と共に大きくなり、初期肉厚の±60%の範囲内で変化した。

このような著しい温度変化が生ずるため、シリサイド燃料板の健全性は400°C以上では維持するのが困難であろう事が判明した。但し、製造特性に起因するドッグボーンや燃料のFPガス生成に起因するブリスター破損は、本実験範囲に於いては、一切生じなかった。

II. 燃料板破損しきい値

シリサイド燃料板温度400°C以下では、健全性が保持されたが、400°C以上540°Cまでの温度範囲に於いて、シリサイド燃料板の外面から芯材に向かって走る未貫通粒界割れが発生した。アルミニウム被覆材の割れをもって破損と定義するならば、この温度でシリサイド燃料は破損である。540°C以上970°Cまで温度範囲に於いて、アルミニウム被覆の溶融、燃料芯材の露出、そして燃料板肉厚方向を貫通する粒界割れが発生した。これらより判断して、シリサイド燃料板の破損しきい値は約400°Cとすることが妥当であると考えられる。

アルミニウム被覆材の割れ、溶融、燃料芯材の露出と貫通割れによって燃料板破損が発生したのにも拘らず、冷却材との相互作用は生じなかった。すなわち、照射カプセル頂部及び底部、また水面位置指示計による計測データによれば、燃料破損に基づく圧力波や破壊力(水撃力)は一切検出されなかった。また、カプセル解体時に得た冷却材に対する検査及び γ 線測定によても、燃料板破片の水中移行は認められなかった。これは、アルミニウム被覆材が溶融破損しても、芯材が溶融に至らなければ、圧力波や水撃力の発生はないであろう事を示唆していると思われる。

謝辞

本実験の遂行にあたり、多くの原研職員の御協力を賜りました。すなわち、供試シリサイド燃料板製作にあたっては、研究炉部の古平恒夫研究炉技術開発室長他の皆様の、シリサイド燃料板への熱電対溶接と照射カプセルの設計製作及びパルス照射実験については燃料安全工学部の堀木欧一郎NSRR管理室長他の皆様の、またパルス照射を行ったシリサイド燃料板のSEM/XMA試験についてはホット試験室の山原武実用燃料試験課長他の皆様の、多くの御支援と惜しみない御協力を戴いた。

燃料ふるまい評価の観点からは、燃料安全工学部の藤城俊夫反応度安全研究室長及びJMTR計画課の皆様に適切な助言を戴いた。詳細な金相写真観察データの準備は、千代田メインテナンス(株)の吉田敏幸及び黒沢義明氏に協力を戴いた。データ整理等は(財)原子力データセンタ鴨志田裕子さんに尽力して戴いた。ここに御礼申し上げる。

参考文献

- (1) Schreiber, K., Müller, H.: "Fuel Cycle for Research and Material Test Reactor", Nucl. Europe Worldscan No. 1-2, p. 18 (1991)
- (2) Bourgon, J.: "CERCA and the Japanese Research Reactors", Nucl. Europe, No. 11-12, p. 35 (1989)
- (3) Futamura, Y., Kawasaki, M., Iso, Y., : "Status of Reduced Enrichment Program for Research and Test Reactor Fuels in Japan", Proc. 12th Int. Mtg. on Reduced Enrichment for Res. and Test Reactors, Berlin Paper 3 (1989)
- (4) Travelli, A.: "Progress of the PERTR Program in 1989", Ref(3), Paper 1 (1989)
- (5) U. S. Nuclear Regulatory Commission: "Safety Evaluation Report Related to the Evaluation of Low-Enriched Uranium Silicide-Aluminum Dispersion Fuel for Use in Non-Power Reactors", NUREG-1313 (1988)
- (6) Nucl. Safety Comm. : "Evaluation Guideline for Reactivity Initiated Events in Light Water Power Reactor", (1984) (In Japanese)
- (7) Ivins, R. O. et al : "Studies of the Aluminium-Water Reaction in TREAT", ANL-6725 (1963)
- (8) Neal, L. G., et al : "Kinetic Studies of Hetrogenous Water Reactors", STL-372-30 (1965)
- (9) Vogel, R. C., et al : "Chemical Engineering Division Semiannual Report", ANL-7125 (1966)

謝辞

本実験の遂行にあたり、多くの原研職員の御協力を賜りました。すなわち、供試シリサイド燃料板製作にあたっては、研究炉部の古平恒夫研究炉技術開発室長他の皆様の、シリサイド燃料板への熱電対溶接と照射カプセルの設計製作及びパルス照射実験については燃料安全工学部の堀木欧一郎NSRR管理室長他の皆様の、またパルス照射を行ったシリサイド燃料板のSEM/XMA試験についてはホット試験室の山原武実用燃料試験課長他の皆様の、多くの御支援と惜しみない御協力を戴いた。

燃料ふるまい評価の観点からは、燃料安全工学部の藤城俊夫反応度安全研究室長及びJMTR計画課の皆様に適切な助言を戴いた。詳細な金相写真観察データの準備は、千代田メインテナンス㈱の吉田敏幸及び黒沢義明氏に協力を戴いた。データ整理等は（財）原子力データセンタ鴨志田裕子さんに尽力して戴いた。ここに御礼申し上げる。

参考文献

- (1) Schreiber, K., Müller, H.: "Fuel Cycle for Research and Material Test Reactor", Nucl. Europe Worldscan No. 1-2, p. 18 (1991)
- (2) Bourgon, J.: "CERCA and the Japanese Research Reactors", Nucl. Europe, No. 11-12, p. 35 (1989)
- (3) Futamura, Y., Kawasaki, M., Iso, Y., : "Status of Reduced Enrichment Program for Research and Test Reactor Fuels in Japan", Proc. 12th Int. Mtg. on Reduced Enrichment for Res. and Test Reactors, Berlin Paper 3 (1989)
- (4) Travelli, A.: "Progress of the PERTR Program in 1989", Ref(3), Paper 1 (1989)
- (5) U. S. Nuclear Regulatory Commission: "Safety Evaluation Report Related to the Evaluation of Low-Enriched Uranium Silicide-Aluminum Dispersion Fuel for Use in Non-Power Reactors", NUREG-1313 (1988)
- (6) Nucl. Safety Comm. : "Evaluation Guideline for Reactivity Initiated Events in Light Water Power Reactor", (1984) (In Japanese)
- (7) Ivins, R. O. et al : "Studies of the Aluminium-Water Reaction in TREAT", ANL-6725 (1963)
- (8) Neal, L. G., et al : "Kinetic Studies of Hetrogenous Water Reactors", STL-372-30 (1965)
- (9) Vogel, R. C., et al : "Chemical Engineering Division Semiannual Report", ANL-7125 (1966)

- (10) Firstenberg, A. F., et al :"Kinetic Studies of Hetrogenous Water Reactors", STL-372-50 (1966)
- (11) Guthrie, C. E.: "Plant Safety Features", Nucl. Safety, 8[8] 565 (1967)
- (12) Ohnishi, N., et al :"Study on Light Water Reactor Fuel Behavior under Reactivity Initiated Accident Conditions in TREAT", JAERI-M 9488 (1981) (in Japanese)
- (13) Iwai, T et al :"Release Behavior of Fission Products from Irradiated Dispersion Fuels at High Temperature", JAERI-M 90-027 (1990)
- (14) Beeston, J. M., Hobbins, R. R., Gibson, G. W. Francis, W. C. : "Development and irradiation Performance of Uranium Aluminide Fuels in Test Reactors", Nucl. Technol. 49, 136 (1980)
- (15) Saito, S., Inabe, T., Fujishiro, T., Ohnishi, N., Hoshi, T. : "Measurement and Evaluation of Pulsing Characteristics and Experimental Capability of NSRR", J. Nucl. Sci. Technol. 14 [3] 226 (1977)
- (16) Tissier, A., Fanjas, Y. :"Reduced Enriched Fuel Status at CERCA"; Paper 7, Ref (3)
- (17) Snelgrove, et al :"The Use of U₃Si₂ Dispersion in Aluminum in Plate-Type Fuel Elements for Research and Test Reactors", ANL/RERTR/TM-11 (1987)
- (18) Gmelin Handbook, U Suppl. vol. C13 11 1.5.2.2, "The U-Al-Si System", p. 353 (1983)
- (19) Yanagisawa, K., et al :"Technical Report: Silicide Plate-Type Fuel Experiment at Nuclear Safety Research Reactor", JAERI-M (1991) to be published (in Japanese)
- (20) Yanagisawa, K., et al :"Behavior of PCI-resistant Additive Fuel for BWR under Reactivity Initiated Accident Conditions", J. Nucl. Sci. Technol., 27[1] 56 (1990)
- (21) Soyama, K., Ohnishi, N. :"Energy Deposition in NSRR Silicide Fuels", JAERI-M 88-112 (1988)
- (22) Japan Metal Scoiety : "Metal Data Book", Maruzen (1974)
- (23) Petzow, G., Kvernes, I.,: "Zur Konstitution der uranreichen Uran-Silizium-Aluminium-Legierungen", Z. Metallkde, 53[4], 248 (1962)
- (24) Petrov, Yu. I., Alekseeva, Z. M., Petrov, D. D.,: "Phase Equilibria in the U-U₃Si₂-UAl₂ System", J. Nucl. Mater., 182, 60 (1991)

Table 2.1 Measured chemical compositions
of the low-enriched silicide
plate-type fuels

Component	U _x Si _y powder ⁽¹⁾ (ppm)	Aluminium powder ⁽²⁾ (ppm)
B	< 8	4
C	580	—
Cd	< 5	10
Co	< 10	< 10
Cu	18	10
Fe+Si	90.5	1480
H	28	—
Li	< 10	2
N	108	—
O	760	—
Zn	< 10	30
Al	< 50	Matrix
Fe		1170
Si		310
Mg		10
Cr		10
Mn		10
Ti		4.9

Note : (1) Particle size < 0.15mm
Particles of which size was
not greater than 40 μ m < 50%
(2) Particle size < 0.15mm

Table 2.2 Characteristics of the fabricated miniature silicide plate-type fuel

1. Silicide core : (U-21w/oAl-6w/oSi)	
(1) Dimension(mm)	70(L)x 25(W)x 0.51(t) ⁽⁺⁾
(2) Enrichment(w/o)	19.89 (0.84~0.86g U-235 per plate)
(3) Element : Si(w/o)	7.5
U(w/o)	92.3, U density=4.8g/cm ³ Void fraction=3.3~6.4%
(4) Composition : Fuel : Matrix	U ₃ Si ₂ +USi, U ₃ Si ₂ density=12g/cm ³ , U ₃ Si ₂ >97w/o A5NE
2. Aluminum alloy cladding	
(1) Dimension(mm)	130(L)x 35(W)x 0.38(t) in both sides
(2) Composition	Al-2.78w/oMg-0.26w/oFe-0.15w/oSi(AG3NE)
(3) Density(g/cm ³)	2.67
(4) Mechanical properties at room temperature	
Tensile stress(MPa)	≥170
Yield stress(MPa)	≥65
Elongation(%)	≥18
(5) No blister at annealing temperature of 475°C, >1hr	

Note : (+) L=Length, W=Width and t=thickness

Table 2.3 Fuel characteristics of the NSRR miniature plate and those of the JMTR full-scale plate

ITEMS	NSRR MINIATURE PLATE	JMTR FULL-SCALE PLATE
(1) CORE MATERIAL	U_3Si_2 -Al	U_3Si_2 -Al
ENRICHMENT(w/o)	ca.19.89	ca. 20
THICKNESS(mm)	0.51	0.51
WIDTH(mm)	25	62
LENGTH(mm)	70	760
URANIUM DENSITY(g/c.c.)	4.8	4.8
(2) CLADDING MATERIAL	Al-3w/o Mg(AG3NE)*	JIS A6061 or AG3NE*
THICKNESS(mm)	0.380	0.380
(3) PLATE		
THICKNESS(mm)	1.27	1.27
WIDTH (mm)	35	71
LENGTH(mm)	130	780

NOTE: * Industrial Standard of France

Table 2.4 Outline of the silicide pulse experiment, Ex. 508-series

EXPERIMENT	508-1	508-2	508-3	508-4
PULSE MODE	SINGLE			
REACTIVITY(\$)	1.29	1.36	1.59	1.83
DEPOSITED ENERGY(cal/g)	62	77	116	154
FUEL PLATE NUMBER	CS514815	CS514816	CS514819	CS514829
PURPOSE	DIMENSIONAL STABILITY	FAILURE THRESHOLD		
INSTRUMENTATIONS	Pt/Pt-13%Rh THERMOCOUPLES (5 T/C's) Alumel/Chromel T/C CAPSULE PRESSURE SENSOR FLOATING BUOY			

Table 3.1 Summary of the in-core silicide pulse experiments

Experiment	508-1	508-2	508-3	508-4	
Fuel plate number	CS514815	CS514816	CS514819	CS514829	
Deposited energy(cal/g·fuel)	6.2	7.7	11.6	15.4	
Cladding peak surface temperature(°C)	#1 X (1) #2 #3 #4 #5 #4 #5	177 216 234 178 201 ± 28 201 ± 28 20.4 23.5 None (3) None (3) 0 (3)	200 179 183 178 195 187 ± 10 21.6 25.7 0 0 0	35.0 372 → 387 (2) 41.4 39.3 42.4 → 54.4 (2) 41.8 ± 74 17.2 47.0 0 0 0	971 893 652 881 934 → 957 (2) 871 ± 128 34.8 0 0 0
Average ± Standard deviation(°C)					
Coolant temperature(°C) prepulse peak					
Capsule pressure(MPa)					
Bottom					
Top					
Water column velocity					

Note : (1) X Thermocouple was malfunction

(2) Two temperature peaks were observed before quenching

(3) Not equipped

Table 3.2 Summary of the PIE observation on experiments 508-1~508-4:
Silicide pulse experiments (1/2)

Ex.	E. D. ⁽¹⁾ (cal/g. fuel)	T/C ⁽²⁾	CLADDING WALL (mm)		CORE END ⁽³⁾ (mm)		PLATE THICKNESS (mm)		MAX. BOWING (mm)		MAX. NECKING ⁽⁴⁾ (mm)		GRAIN SIZE OF CLAD ⁽⁵⁾ (mm)	T/C DEPTH ⁽⁶⁾ (mm)	
			MIN	MAX	MIN	MAX	MIN	MAX	WIDE	LENGTH	WIDE	LENGTH			
508-1	62	1, 2	177	0.28 ± 0.028	0.43 ± 0.014	0.45 ± 0.042	0.63 ± 0.014	0.54 ± 0.028	0.61 ± 0.042	1.27 ± 0.042	1.31 ± 0.014	-	-	0.030	0.03~0.08 (13~21%)
		3, 4	216~234 (225)	0.347	0.427	0.427	0.613	0.587	0.727	1.280	1.400	-	-	-	-
		5	178	0.333	0.400	0.400	0.587	-	-	1.253	1.267	-	-	-	-
		Mean	201±28	0.320	0.419	0.426	0.610	0.564	0.669	1.270	1.330	±0.014	±0.068	NONE	0.030
508-2	77	1, 2	179~200 (190)	0.271	0.397	0.513	0.603	0.453	0.527	1.197	1.276	-	-	-	0.034
		3, 4	178~183 (181)	0.290	0.366	0.367	0.573	0.480	0.538	1.126	1.180	±0.008	±0.071	-	0.03
		5	195	0.286	0.400	0.400	0.586	-	-	0.120	1.173	-	-	-	-
		Mean	187±10	0.261	0.388	0.427	0.587	0.467	0.53	1.148	1.210	±0.034	±0.058	NONE	0.041±0.007 (17±5%)
508-3	116	1, 2	350~387 (389)	0.267	0.587 (almost 0.37~0.40)	0.453	0.640	-	-	1.253	1.547 (almost 1.280)	0.6	-	-	-
		3, 4	393~414 (404)	0.347	0.400	0.400	0.587	0.453	0.560	1.253	1.307	1.8	-	-	Columnar 0.125
		5	544	0.~0.053	0.613	0.453	0.720	-	-	0.667	1.467	0.6	Pitting, Crack 0.025~0.31mm	-	-
		Top End	≥393~ 414	0.	0.560	0.480	0.533 (most 0.53)	0.480	0.533	-	3.0	Swelling	-	-	-
Mean		418±74	0.154	0.560	0.447	0.620	0.467	0.547	0.58	1.440	1.50	±0.122	±1.15	Columnar 0.125	-

Note : (1) Energy Deposition
(2) No. of Pt/Pt-13%Rh thermocouples (T/C) attached to.
(3) Dimension of core end checked against dogbone.
(4) Thinning of cladding wall caused by a significant bowing and fuel separation
(5) Two dimensional intercept method
(6) Distance of interface between cladding and diffused T/C components

Table 3.2 Summary of the PIE observations on experiments 508-1~508-4:
Silicide pulse experiments (2/2)

Ex.	E. D. ⁽¹⁾ (cal/g fuel)	T/C ⁽²⁾	CLADDING WALL (mm)		CORE THICKNESS (mm)		CORE END ⁽³⁾ (mm)		PLATE THICKNESS (mm)		MAX. NECKING ⁽⁴⁾ (mm)		GRAIN SIZE OF CLAD ⁽⁵⁾ , (mm)	T/C DEPTH ⁽⁶⁾ (mm)	
			MIN	MAX	MIN	MAX	MIN	MAX	MAX. BOWING (mm)	WIDE	LENGTH				
508-4	154	1	971	0.	0.507	0.800	0.427	0.507	1.200	5.1	0.813	0.40			
	2	893	0.	0.693	0.480	0.747	0.507	0.560	0.667	1.200	4.6	0.933	0.46		
	3	652	0.	0.467 ± 0.132 (a ⁽⁸⁾)	0.587 ± 0.076	1.17 ± 1.056 many holes	0.520 ± 0.018	0.520	0.267	1.120	5.3	0.290	1.47	Columnar	
	4	881	0.	0.507 ⁽⁹⁾ ± 0.113	0.52 ± 0.208	0.95 ± 0.24	0.434 ± 0.047	0.434 ± 0.047	0.32 ± 0.11	1.477 ± 0.249	6.9	0.400	1.30	Columnar	
5R	805	0.	0.360 (almost core)	0.747	1.413			0.747	1.413	2.7	Crack, Heavy				
(#5+#3) mid ⁽⁷⁾	919	0.	0.960 (a ⁽⁸⁾)	0.530	1.013			0.640	1.707	2.7	Wall-through Crack(0.92mm) Incipient Crack(0.1mm) Molten Al(0.D.=0.25mm)			0.029 at edge	
6R (#5+#2) mid	925	0.	1.07	0.53	1.73 (swelling)			0.720	1.867	2.8	Wall-through Crack(0.367mm) Fuel Separation				
6L (#5+#1) mid	964	0.	0.800	0.613	0.800			0.613	2.133	2.8	Wall-through Crack(2.13mm) Incipient Crack(0.53mm) Molten Al(0.D.=0.32mm)				
Mean			871 ± 128	0.0	0.671 ± 0.254	0.565 ± 0.085	1.078 ± 0.744	0.472 ± 0.048	0.485 ± 0.065	1.515 ± 0.36	4.11 ± 1.60	0.609 ± 0.312	0.913 ± 0.551		

Note : (1) Energy Deposition

- (2) No. of Pt/Pt-1322Rh thermocouples (T/C) attached to.
- (3) Dimension of core end checked against dogbone.
- (4) Thinning of cladding wall caused by a significant bowing and fuel separation
- (5) Two dimensional intercept method
- (6) Distance of interface between cladding and diffused T/C components
- (7) This specimen was located between T/C No.5(#5) and T/C No.3(#3)
- (8) Cladding was melted and caused agglomerations of aluminum
- (9) Cladding remained one side only

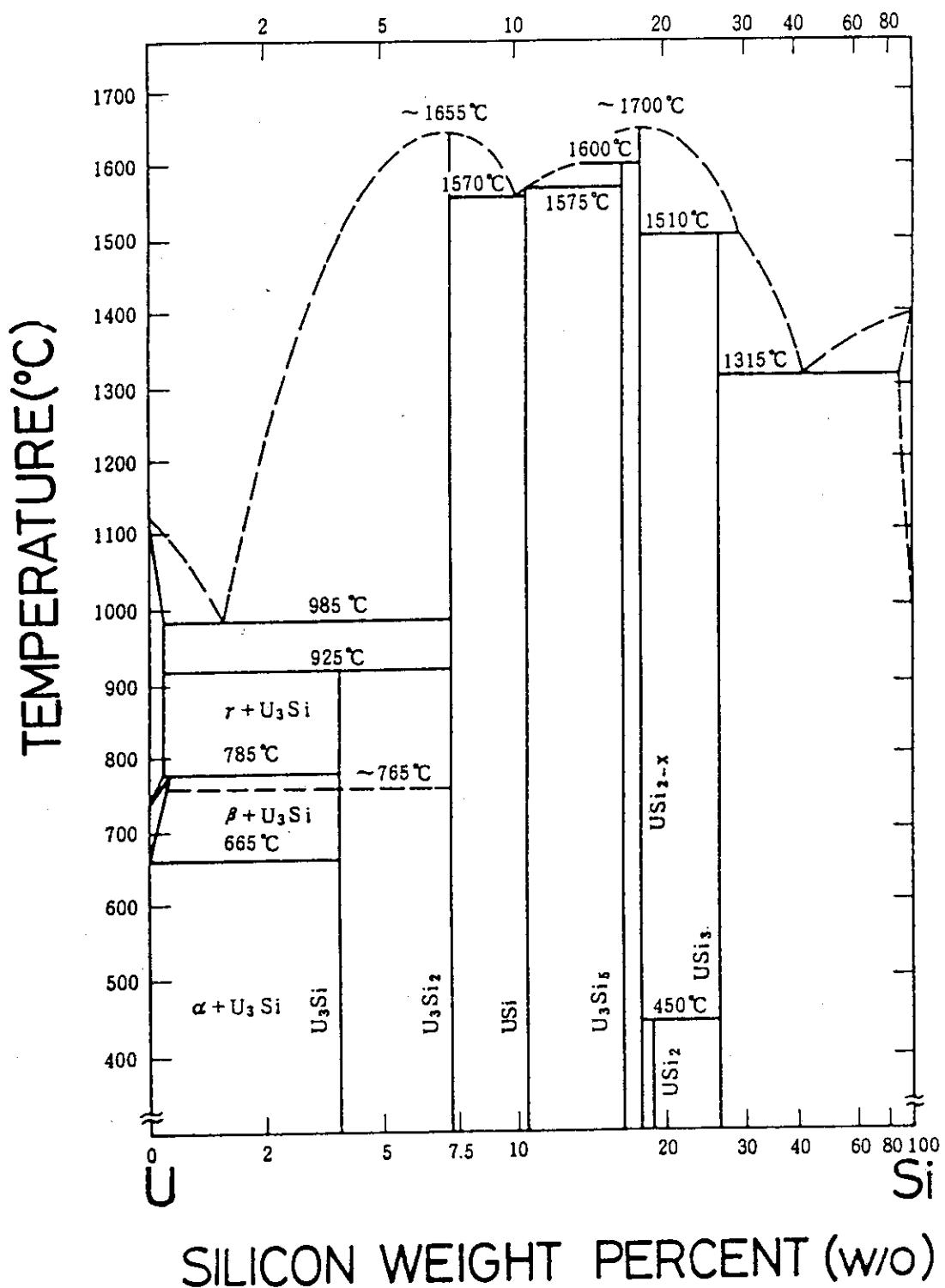


Fig. 2.1 Phase diagram of the U-Si binary alloy system:
Ref.(17)

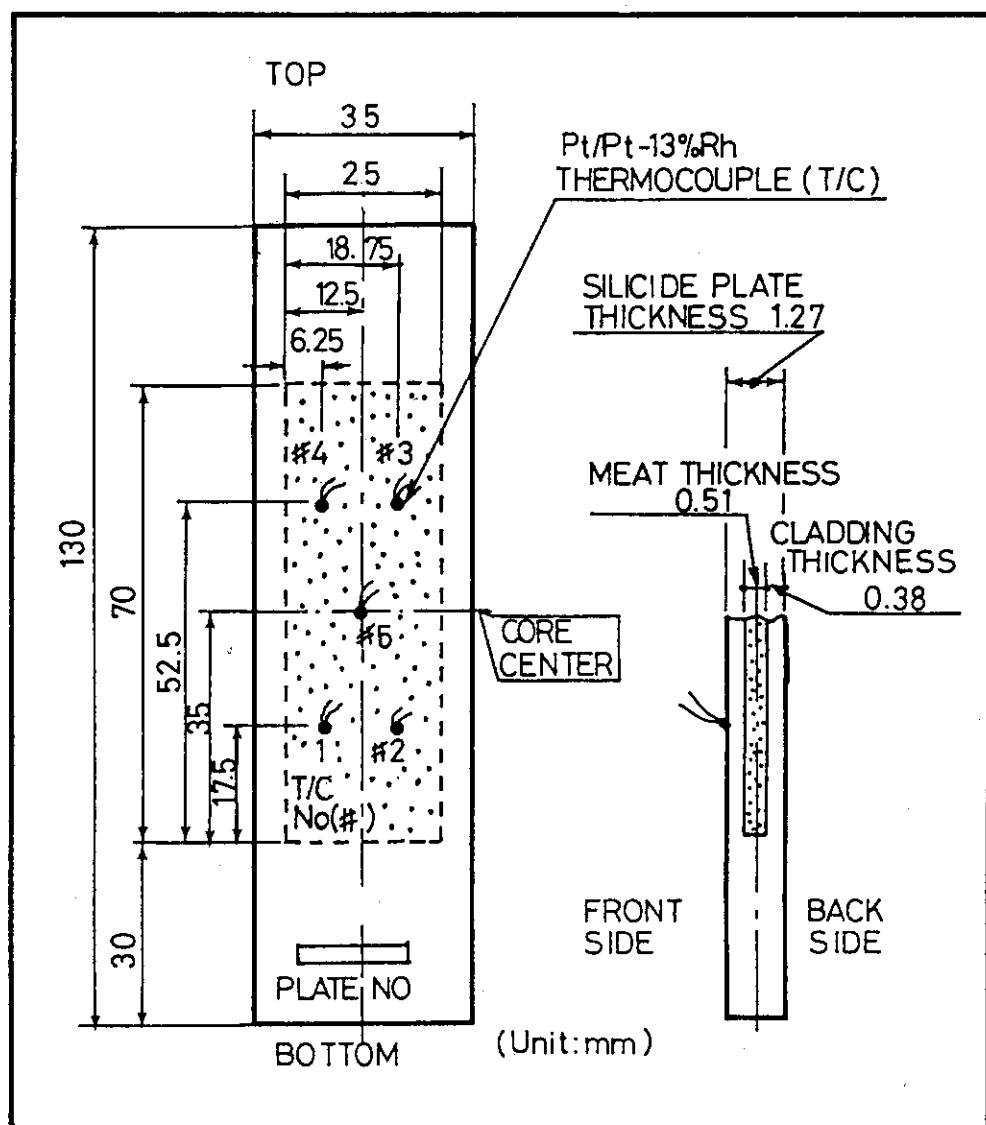


Fig. 2.2 Schematic representation of the tested silicide miniature plate-type fuel. Enrichment=19.88w/o U-235, density=4.8 gU/cm³

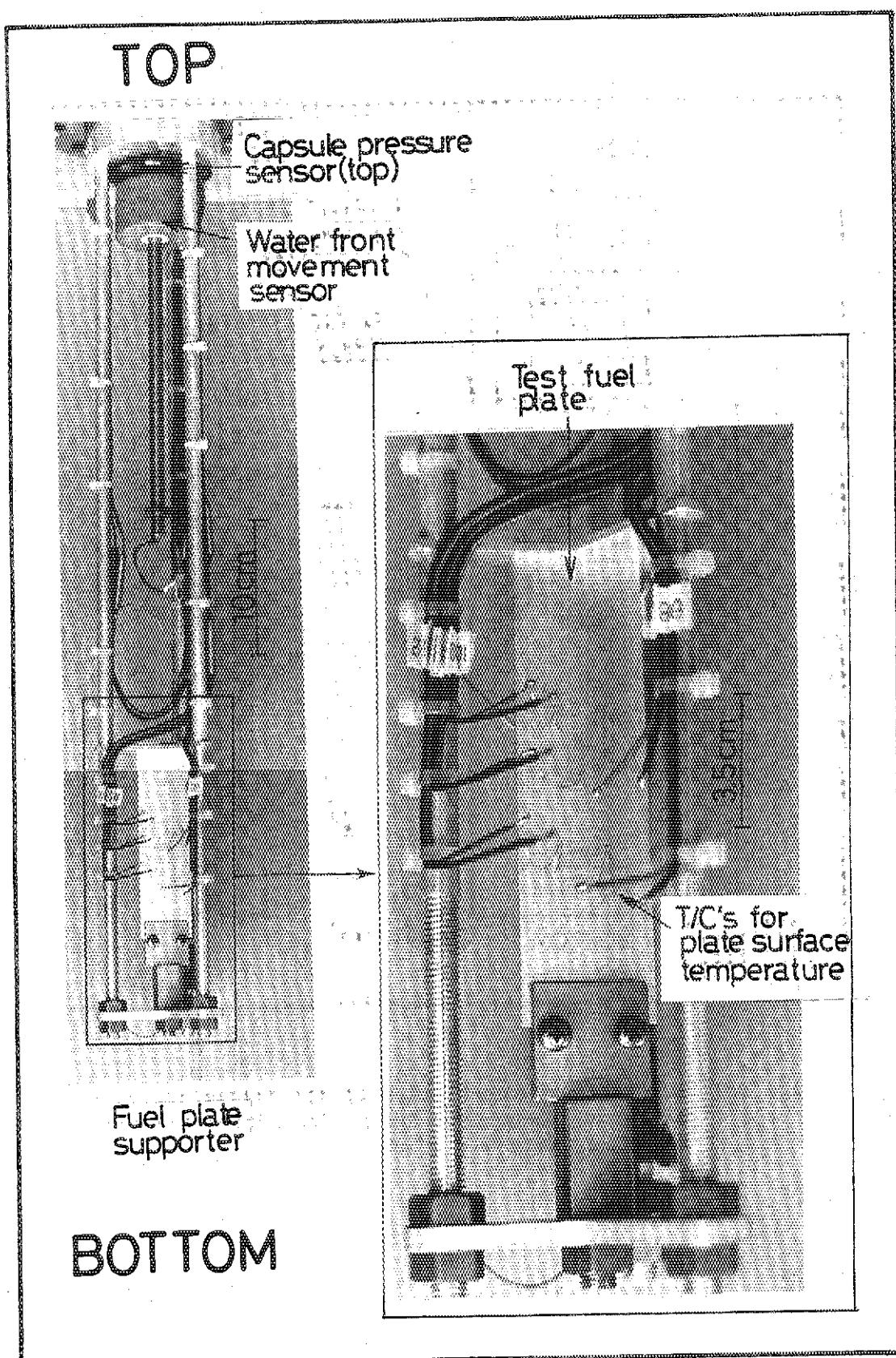


Fig. 2.3 Supporting jigs used experiment of the silicide miniature plate-type fuel

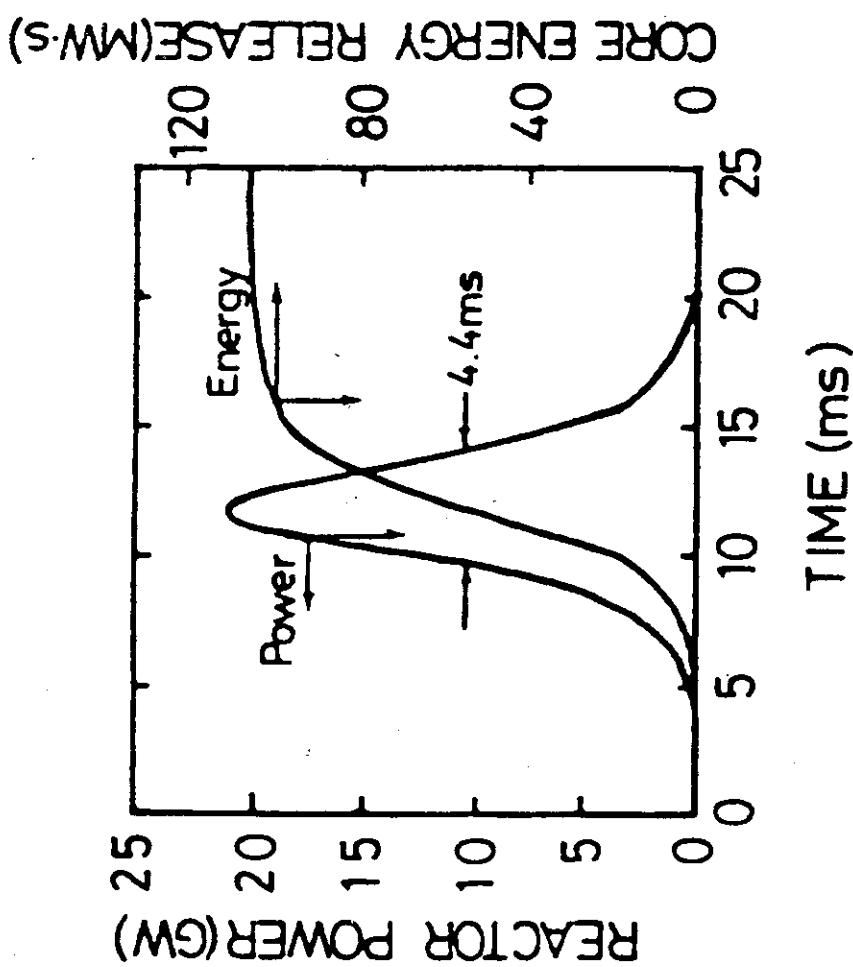


Fig. 2.5 Transient reactor power and core energy release attained in pulsing operation NSRR with \$4.67 reactivity insertion

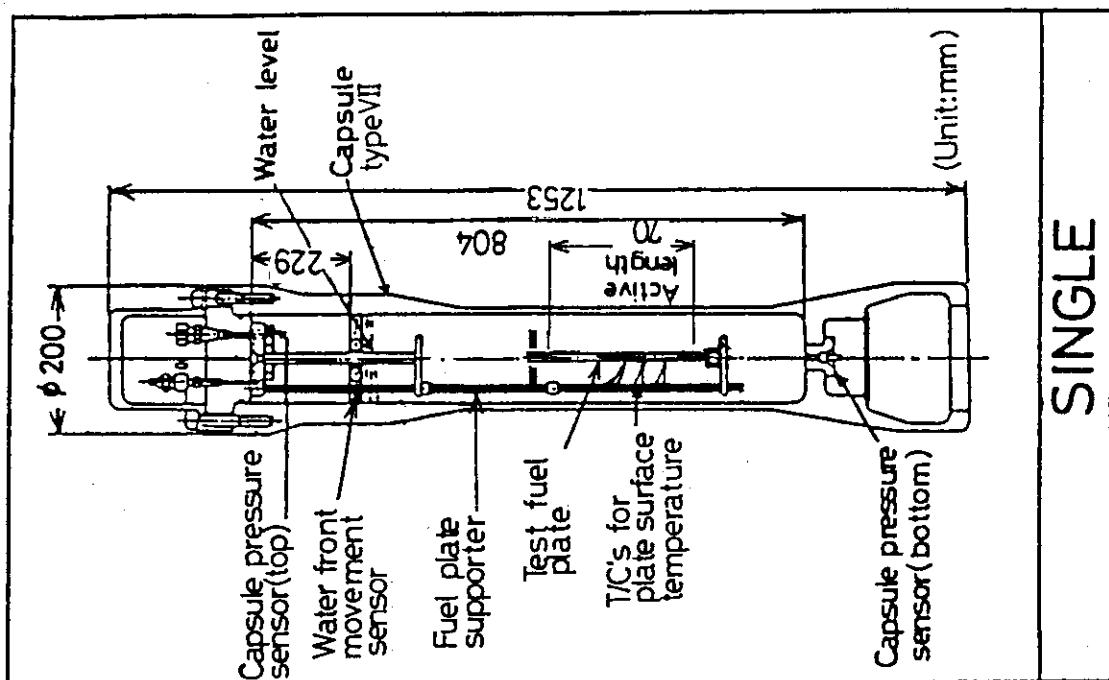


Fig. 2.4 NSRR irradiation capsule type VII prepared for the test of silicide plate-type fuel in experiment 508 series

**Ex. 508-2, 77cal/g.fuel
Fuel plate no=CS514816**

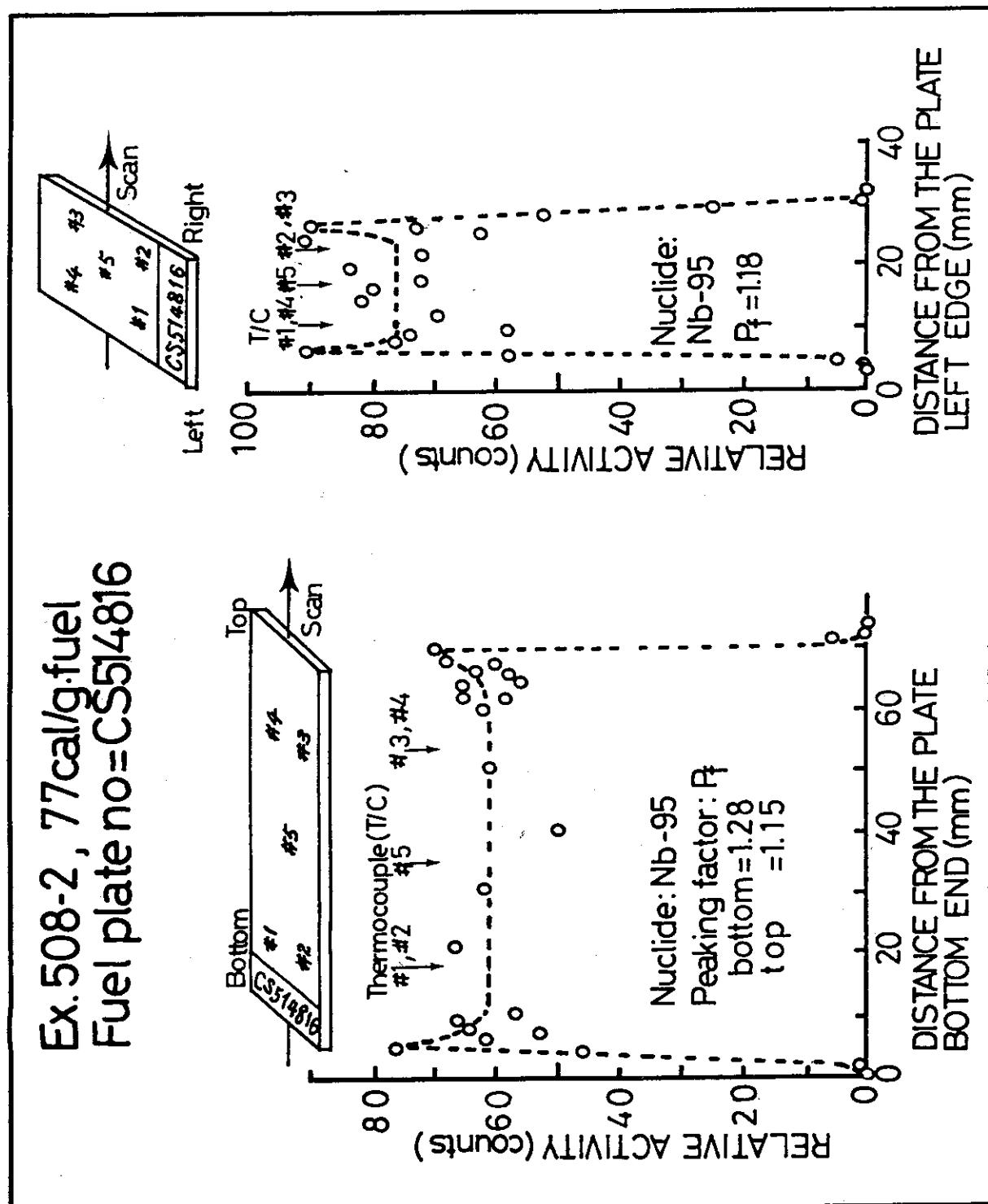


Fig. 2.6 Results of gamma scanning of the silicide plate-type fuel

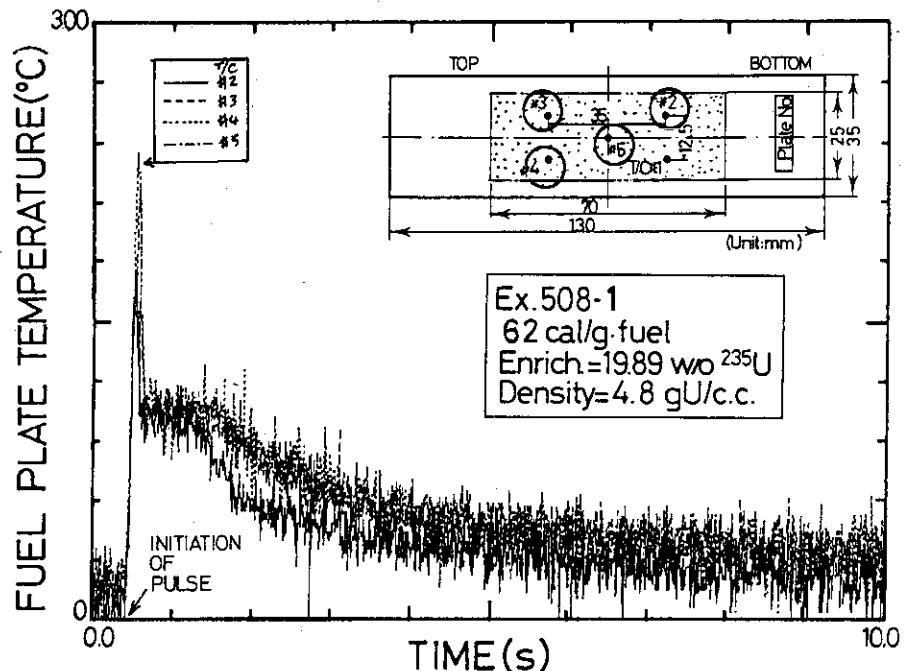


Fig. 3.1.1 Time-dependent change of the fuel plate surface temperatures measured by T/C No(#) 2, #3, #4 and #5, where 19.89w/o enriched uranium silicide plate-type fuel having density by 4.8 gU/cm^3 was used in experiment 508-1 (62 cal/g·fuel)

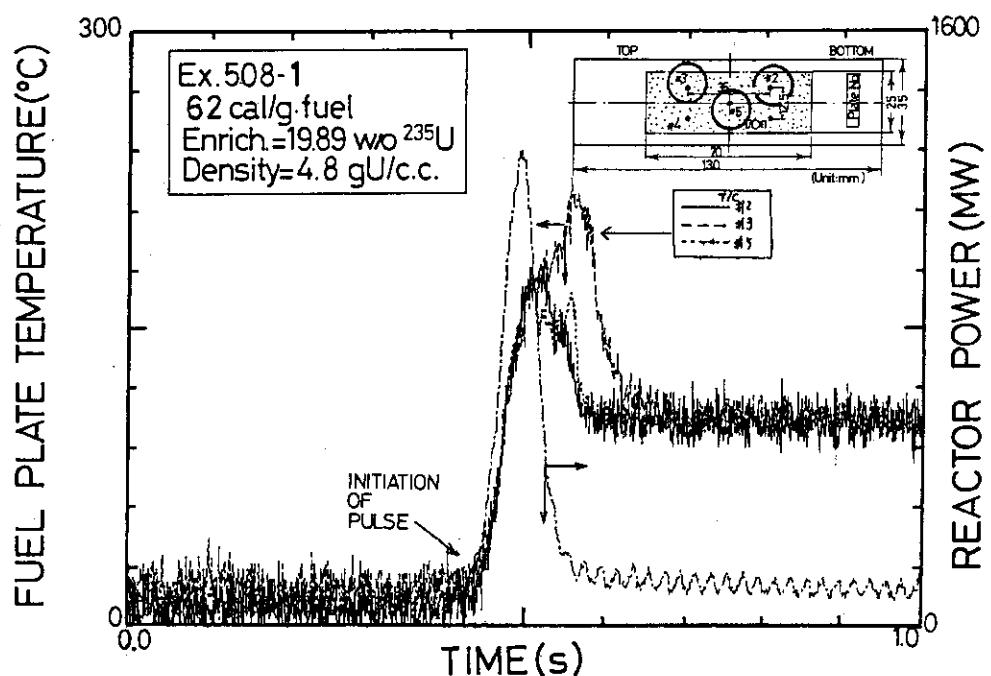


Fig. 3.1.2 Time-dependent change of the fuel plate surface temperatures measured by T/C #2, #3 and #5 and that of reactor power, where 19.89w/o enriched uranium silicide plate-type fuel having density by 4.8 gU/cm^3 was used in experiment 508-1 (62 cal/g·fuel)

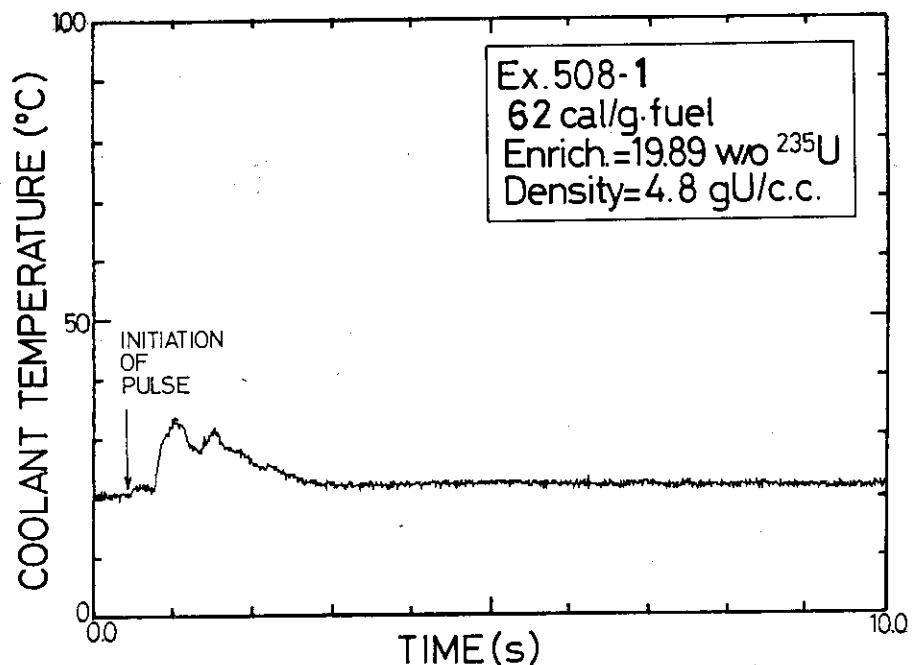


Fig. 3.1.3 Time-dependent change of the coolant at energy deposition of 62 cal/g·fuel in experiment 508-1 (1.29\$ insertion)

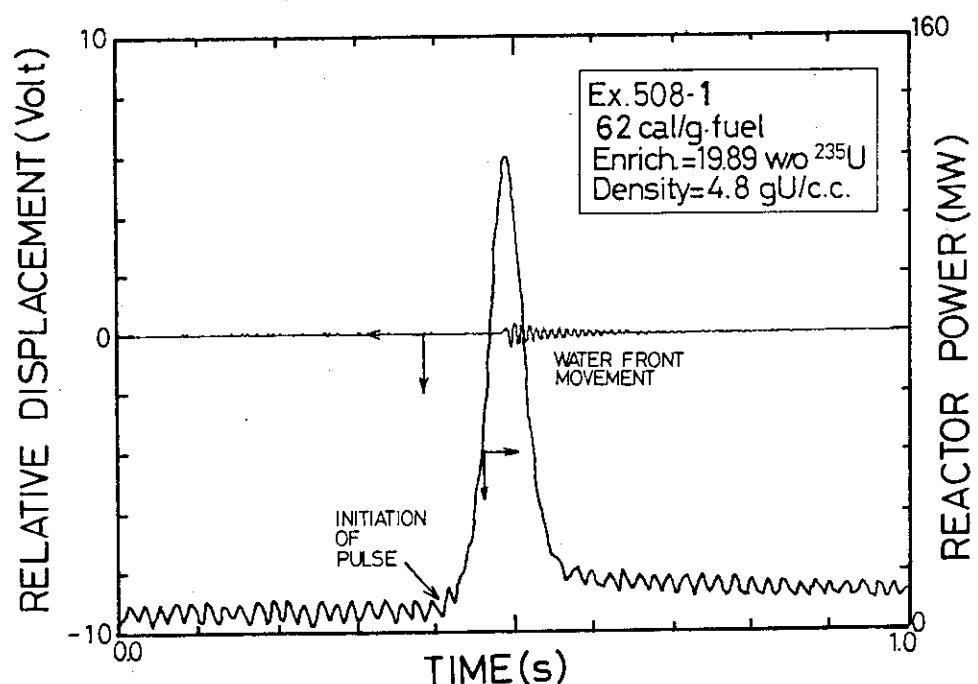


Fig. 3.1.4 Relative displacement of the coolant front measured as an indicator of water hammer and the reactor power obtained from experiment 508-1 (62 cal/g·fuel)

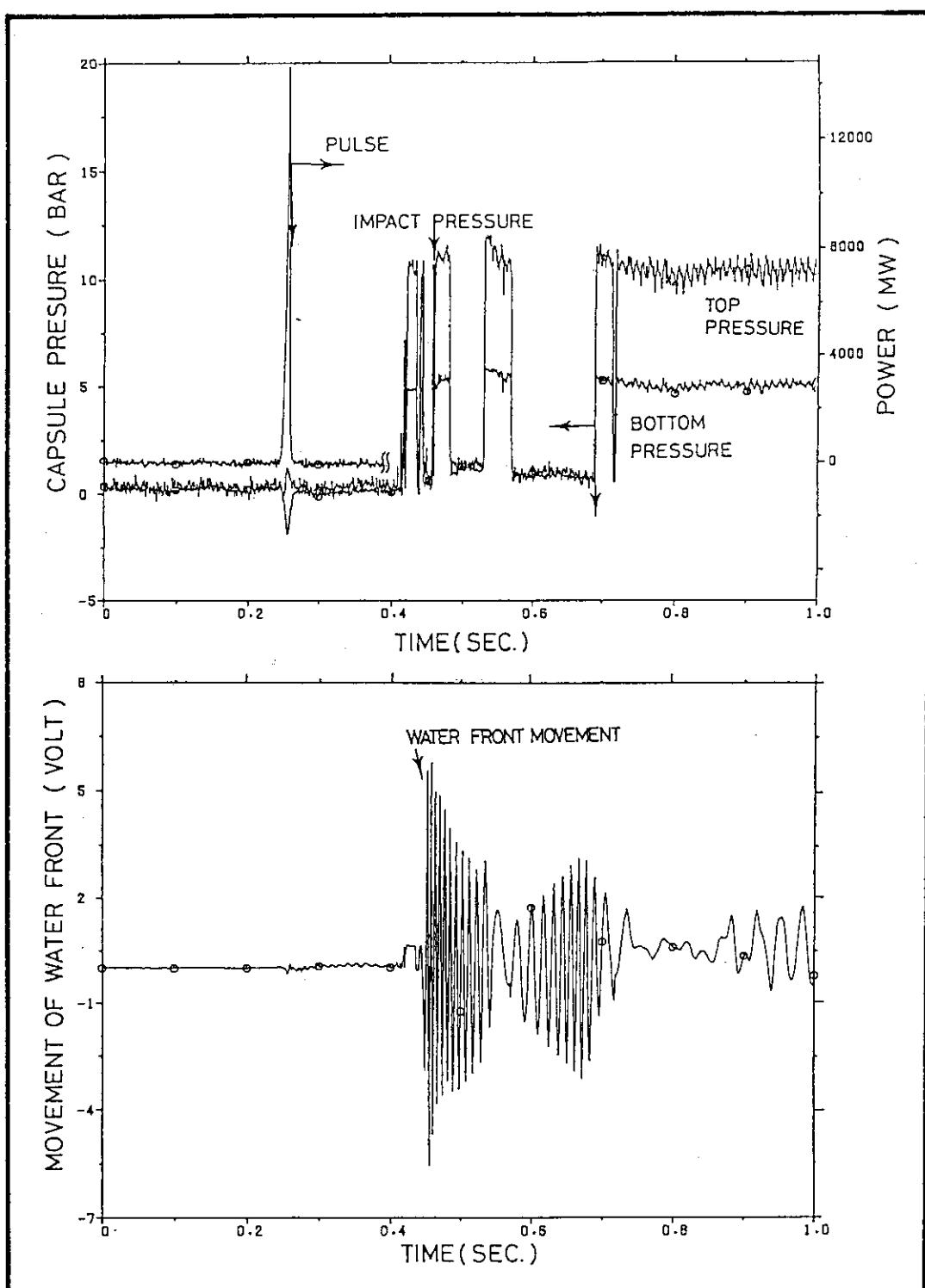


Fig. 3.1.5 Example showing the realistic generation of the capsule pressure (top) and the mechanical energy (bottom), when amounts of $394 \text{ cal/g} \cdot \text{UO}_2$ was deposited to 8×8 BWR type unirradiated fuel rod, in which maximum water column velocity by 2.1 m/s , the capsule bottom pressure by 0.22 MPa and the maximum mechanical energy conversion ratio by $4.1 \times 10^{-3}\%$ were obtained: Ref.(20)

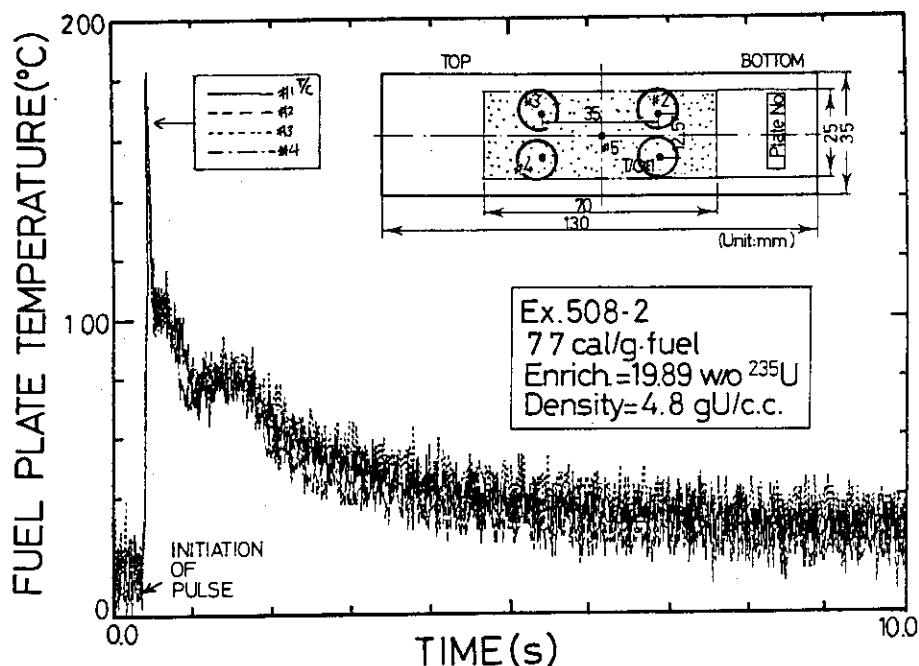


Fig. 3.2.1 Time-dependent change of the fuel plate surface temperature measured by T/C's #2~#4, where 19.89w/o enriched uranium silicide plate-type fuel having density by 4.8 gU/cm^3 was used in experiment 508-2 (77 cal/g·fuel)

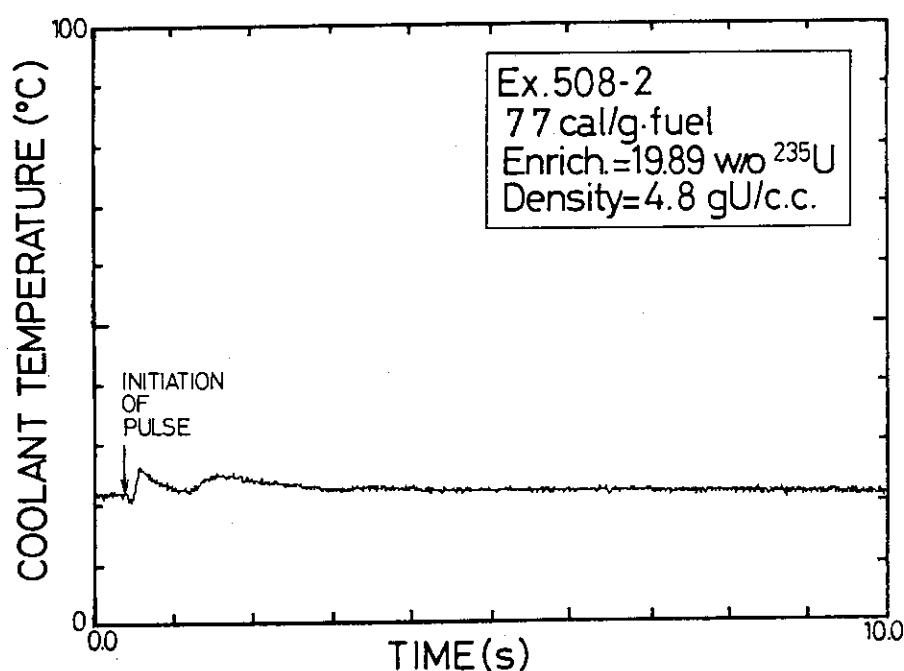


Fig. 3.2.2 Time-dependent change of the coolant at energy deposition of 77 cal/g·fuel in experiment 508-2 (1.365\$ insertion)

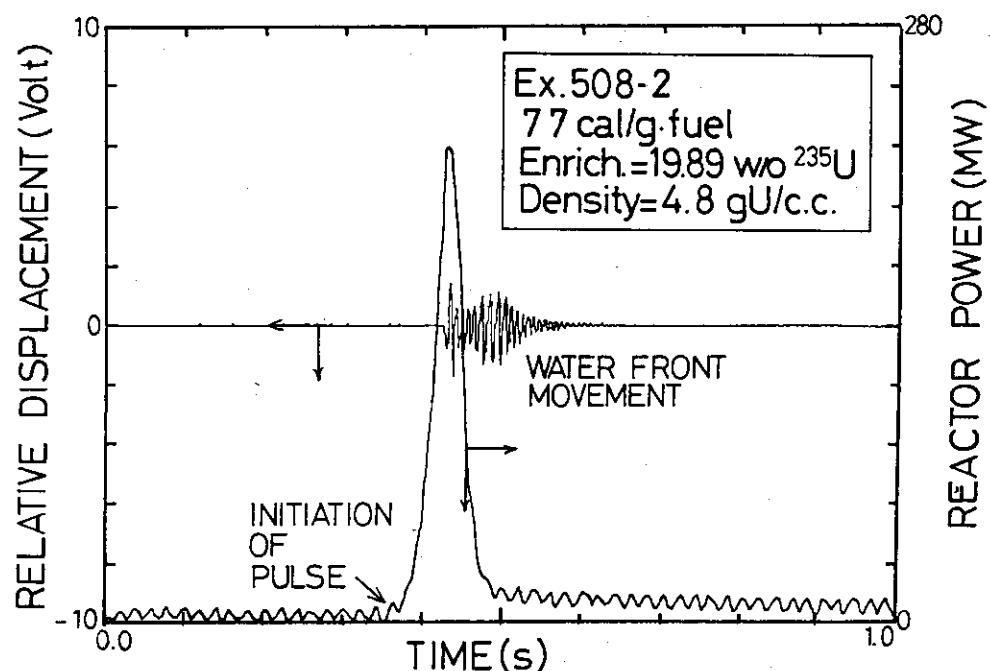


Fig. 3.2.3 Relative displacement of the coolant front used as an indicator of water hammer and the reactor power obtained from experiment 508-2 (77 cal/g•fuel)

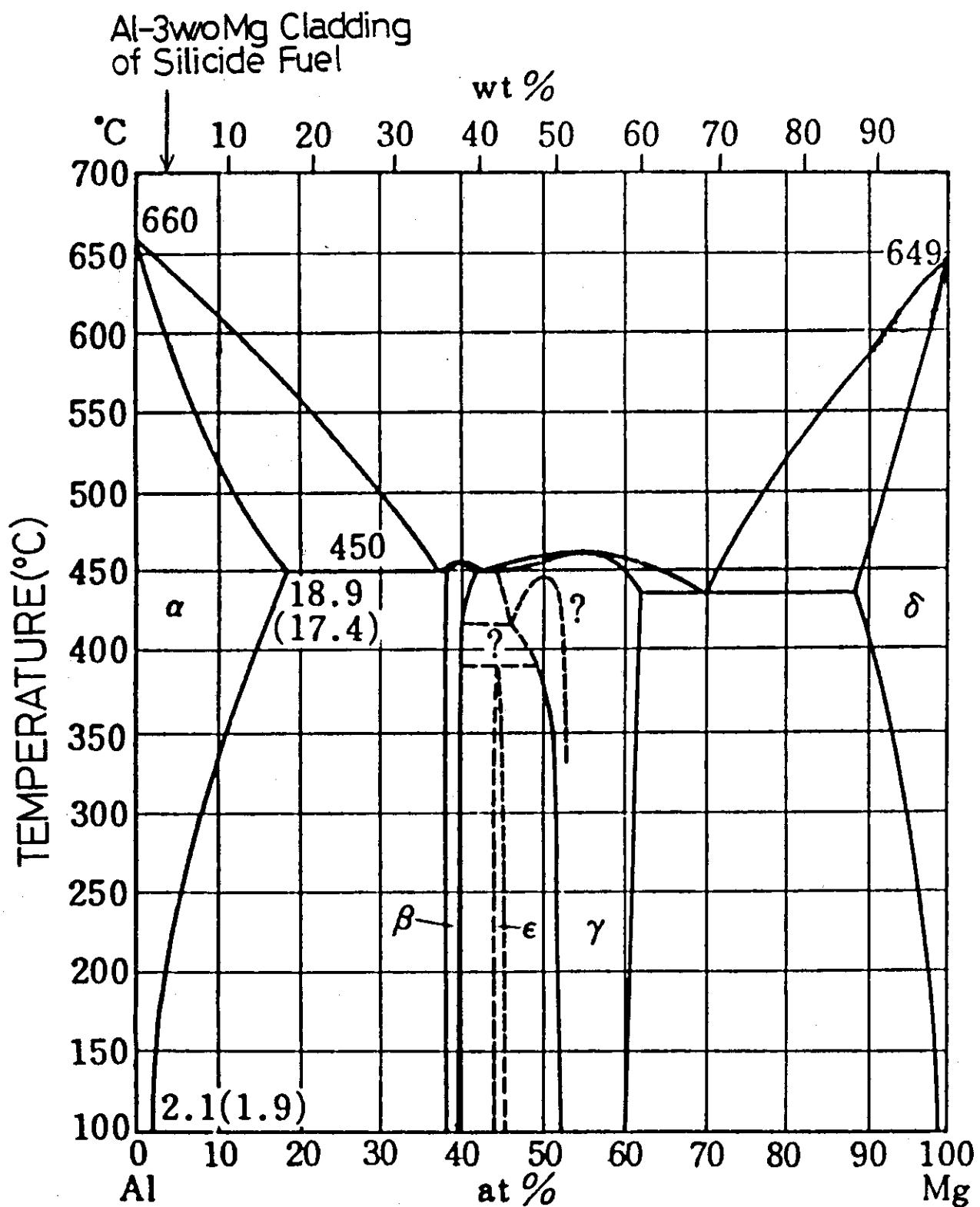


Fig. 3.2.4 Phase diagram of the Al-Mg binary alloy system: Ref.(22)

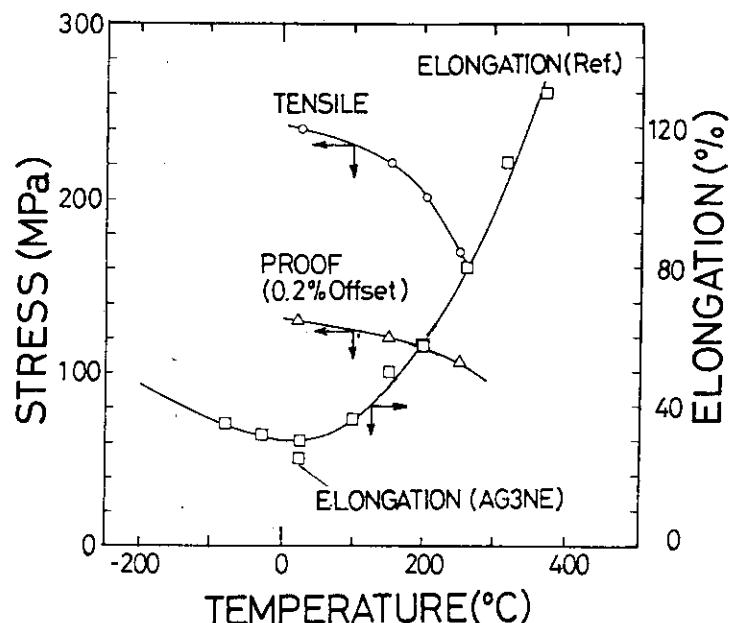


Fig. 3.2.5 Mechanical properties of Al-3w/o Mg binary alloy of the silicide cladding. This is corresponded to AG3NE of French standard. In figure, Al 5052 material data is also included as elongation referential data: Ref.(23)

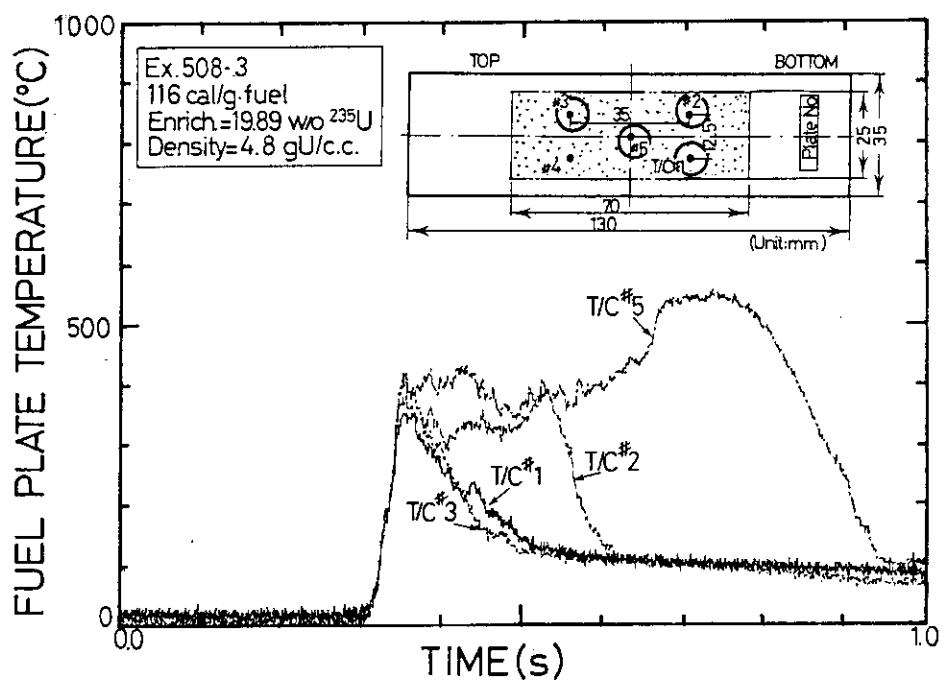


Fig. 3.3.1 Time-dependent change of the fuel plate surface temperatures measured by T/C's (#1~#3, #4), where 19.89w/o enriched uranium silicide plate-type fuel having density by 4.8 gU/cm^3 was used in experiment 508-3 (116 cal/g·fuel)

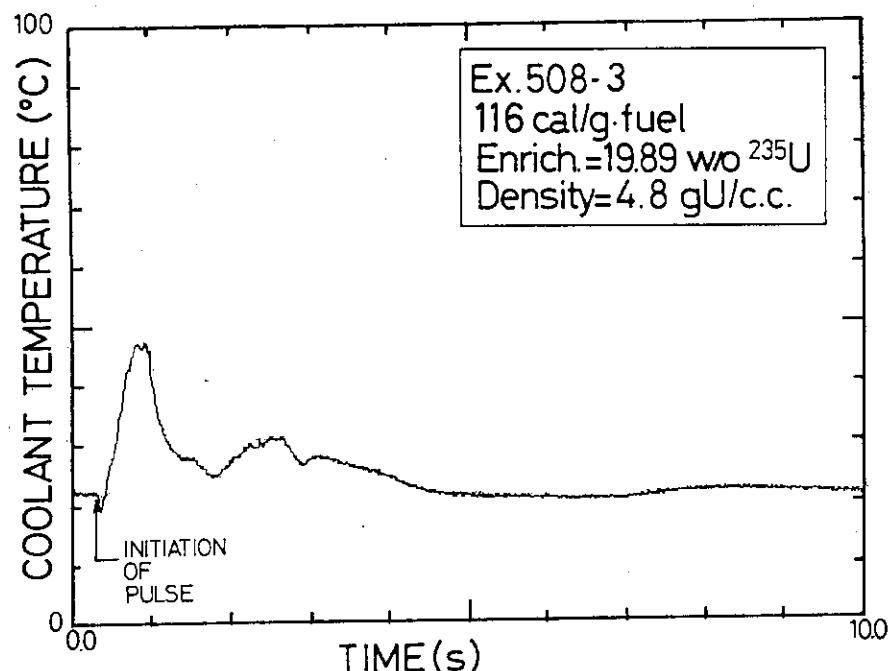


Fig. 3.3.2 Time-dependent change of the coolant at energy deposition of 116 cal/g·fuel in experiment 508-3 (1.59\$ insertion)

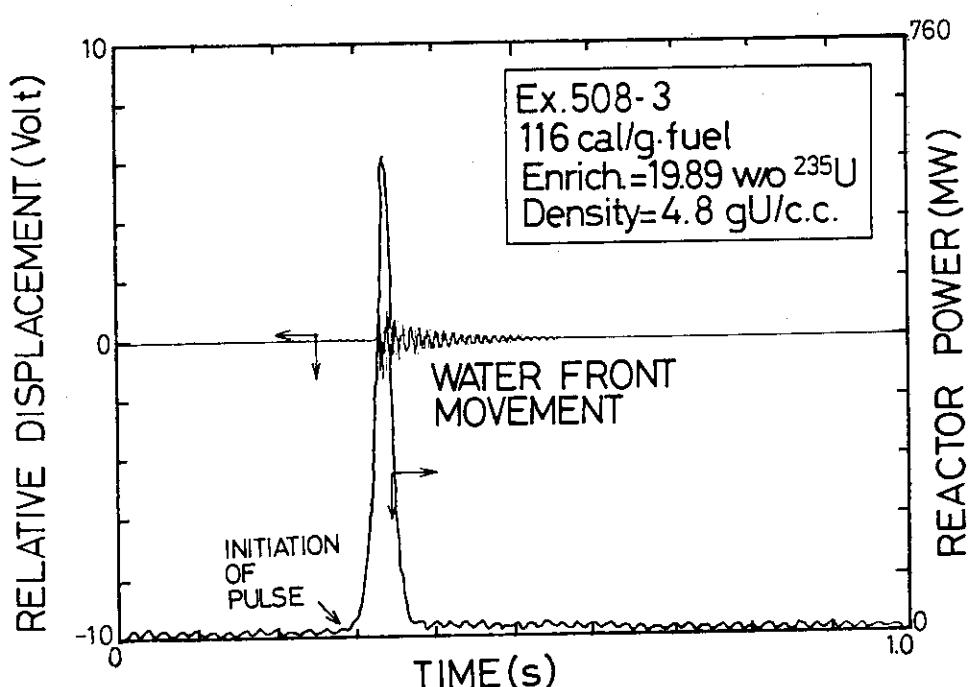


Fig. 3.3.3 Relative displacement of the coolant front used as an indicator of water hammer and the reactor power obtained from experiment 508-3 (116 cal/g·fuel)

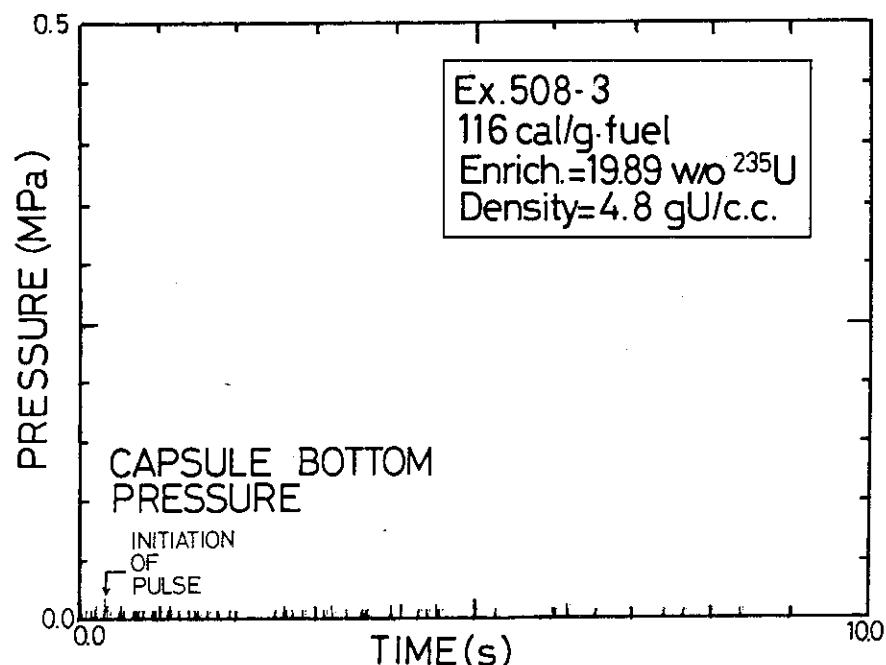
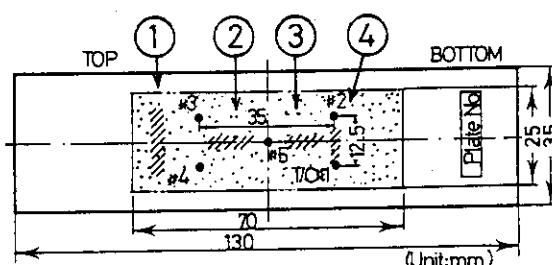


Fig. 3.3.4 Measured capsule bottom pressure in experiment 508-3 (116 cal/g·fuel), showing no significant increase of the pressure as fuel was defected



Notes	Observations
//////	Grain growth area of aluminum alloy cladding
(1)	Relative large bowing up to 3mm One incipient crack
(2)	One incipient crack
(3)	Two incipient cracks and one wall-through crack Separation of fuel core
(4)	Swelling of cladding

Fig. 3.3.5 Summary map of post-pulse irradiation examination of experiment 508-3 (116 cal/g·fuel)

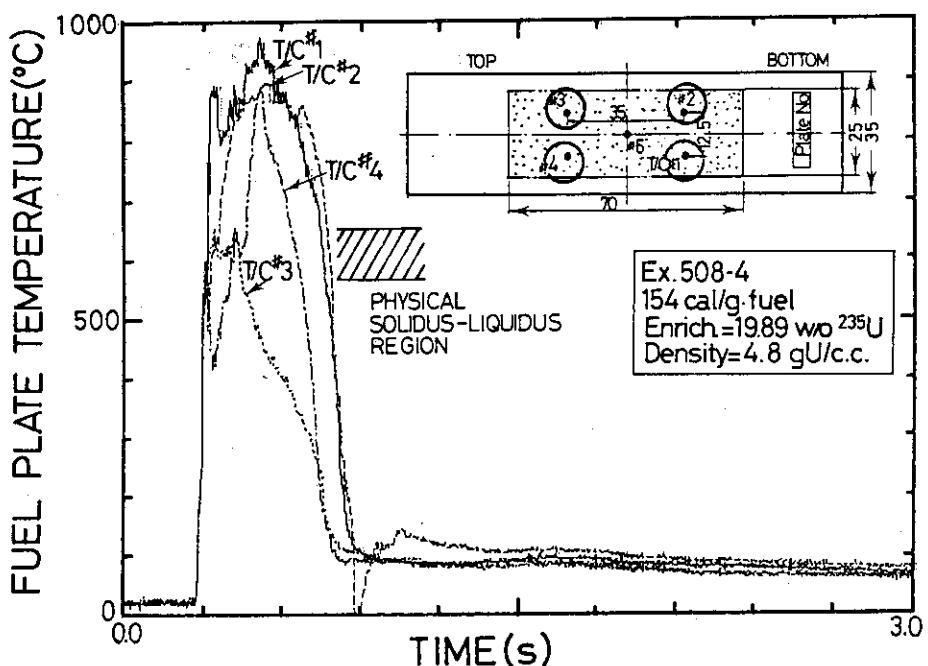


Fig. 3.4.1 Time-dependent change of the fuel plate surface temperatures measured by T/C's #1~#4, where 19.89w/o enriched uranium silicide plate-type fuel having density by 4.8 gU/cm^3 was used in experiment 508-4 (154 cal/g•fuel)

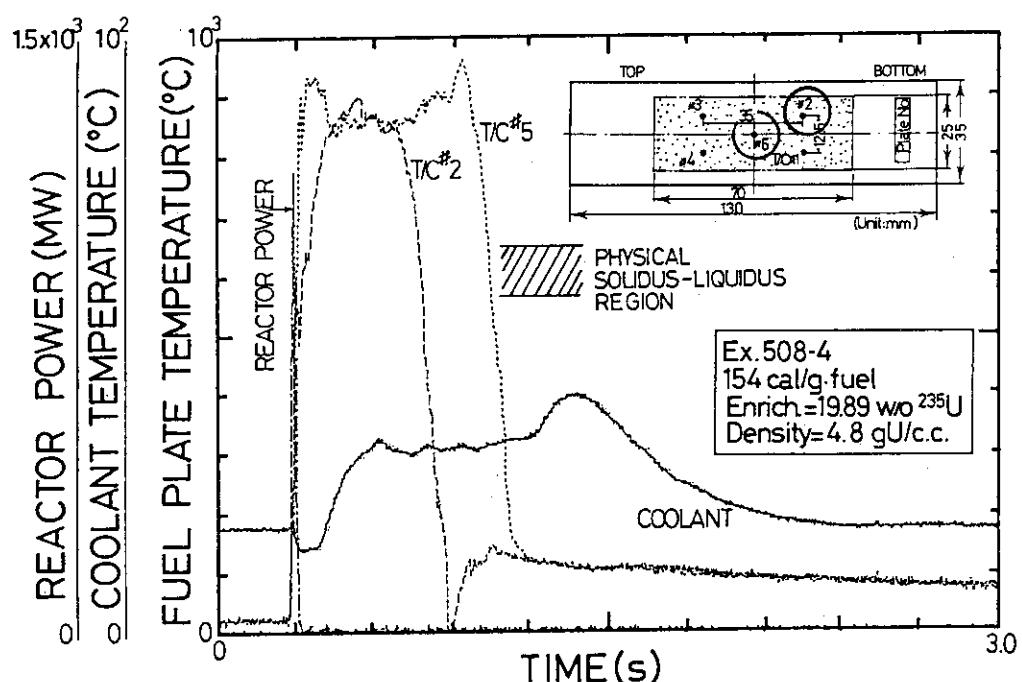


Fig. 3.4.2 Time-dependent change of the fuel plate surface temperatures measured by T/C's #2 and #5, that of coolant temperature and reactor power, where 19.89w/o enriched uranium silicide plate-type fuel having density by 4.8 gU/cm^3 was used in experiment 508-4 (154 cal/g•fuel)

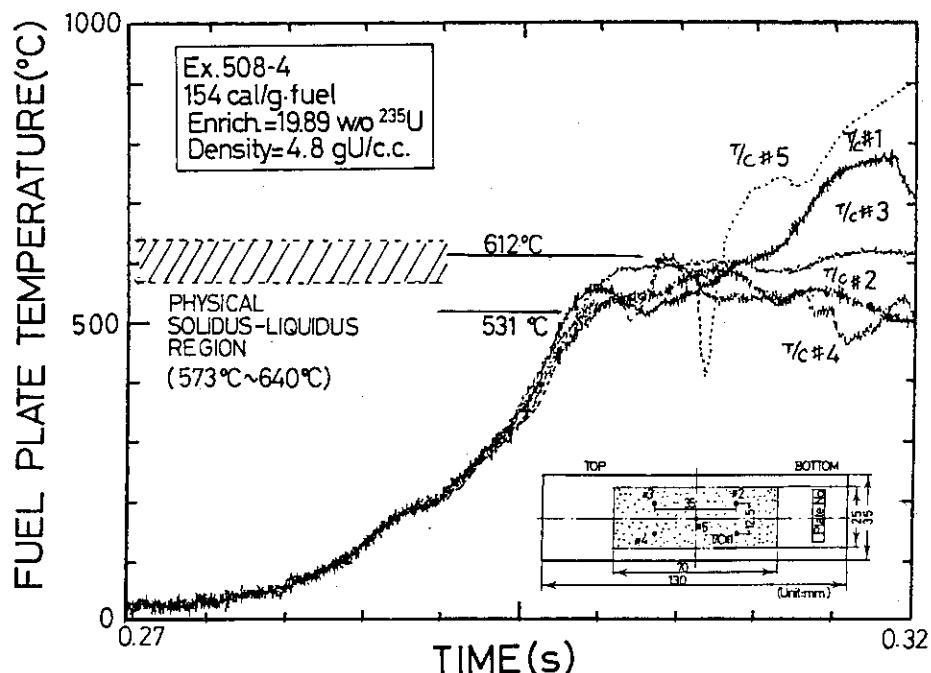


Fig. 3.4.3 Solidus-liquidus transformation (latent heat) observed by T/C's #1~#5 in experiment 508-4, where hatched areas are corresponded to the solidus-liquidus region of Al-3w/o Mg binary alloy phase diagram

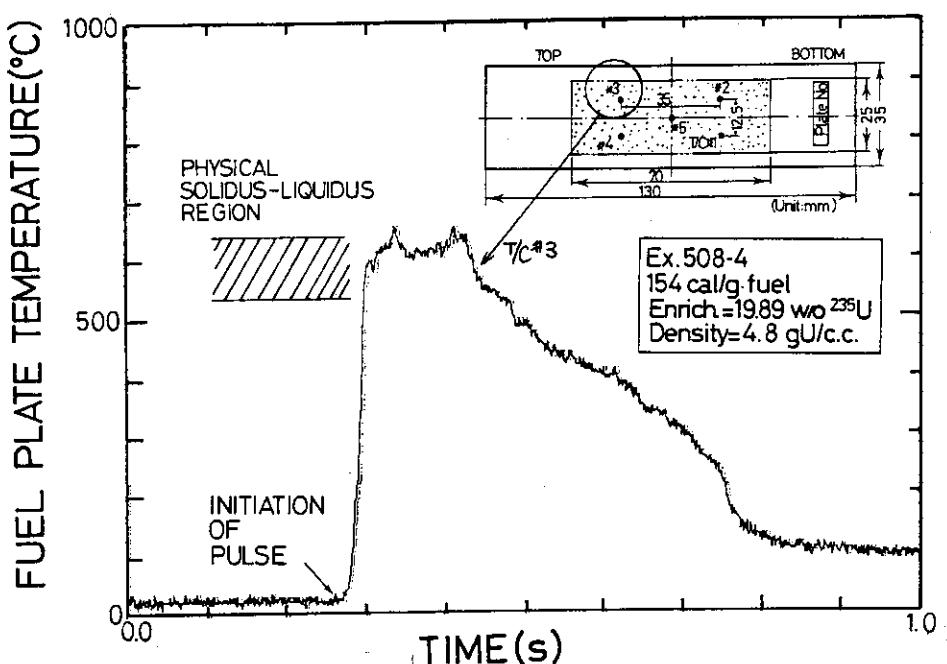


Fig. 3.4.4 Plate surface temperature obtained from T/C #3, showing no further increase of temperature from solidus-liquidus transformation range of experiment 508-4 (154 cal/g•fuel)

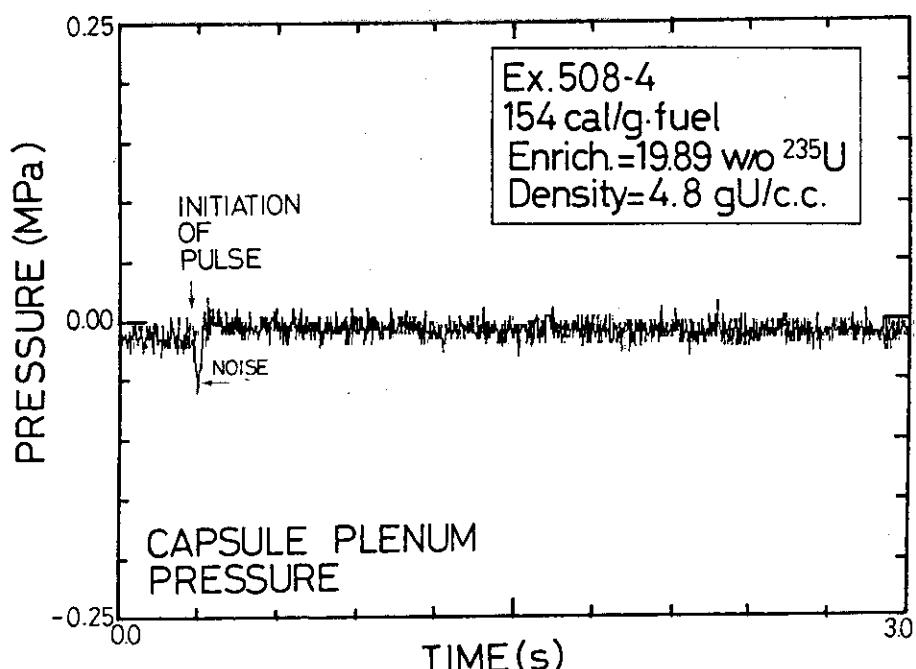


Fig. 3.4.5 Measured capsule plenum pressure in experiment 508-4 (154 cal/g.fuel), showing no significant increase of the pressure as fuel was defected

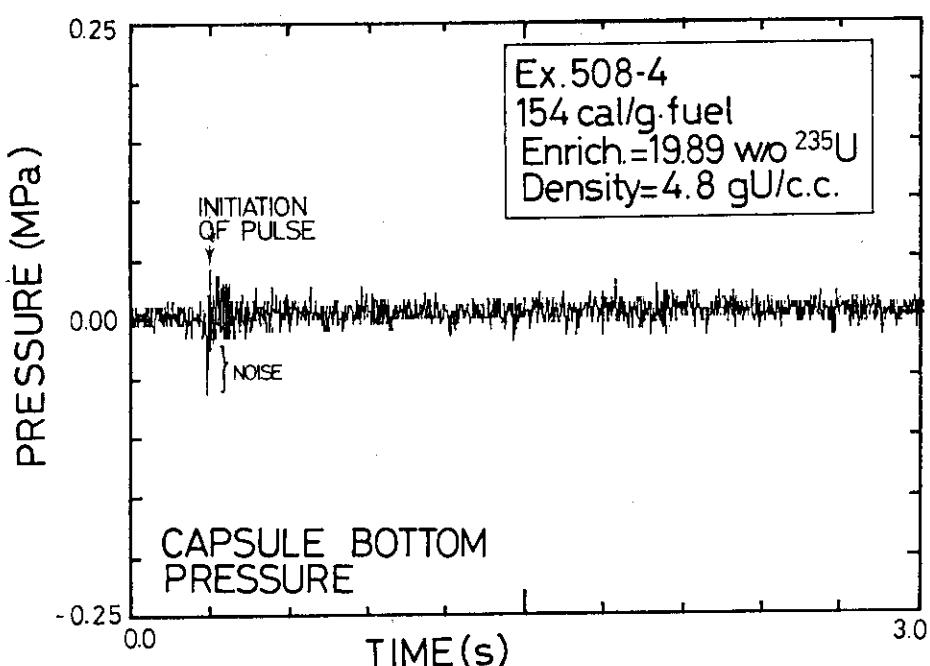


Fig. 3.4.6 Measured capsule bottom pressure in experiment 508-4 (154 cal/g.fuel), showing no significant increase of the pressure as fuel was defected

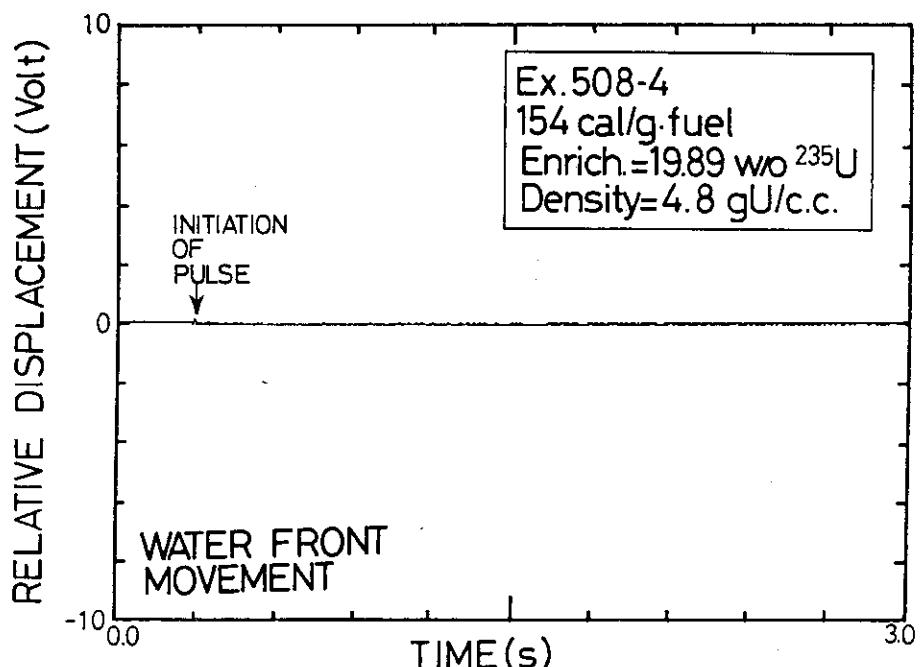


Fig. 3.4.7 Relative displacement of the coolant front used as an indicator of water hammer in experiment 508-4 (154 cal/g.fuel), where the fuel plate was defected without showing significant displacement.

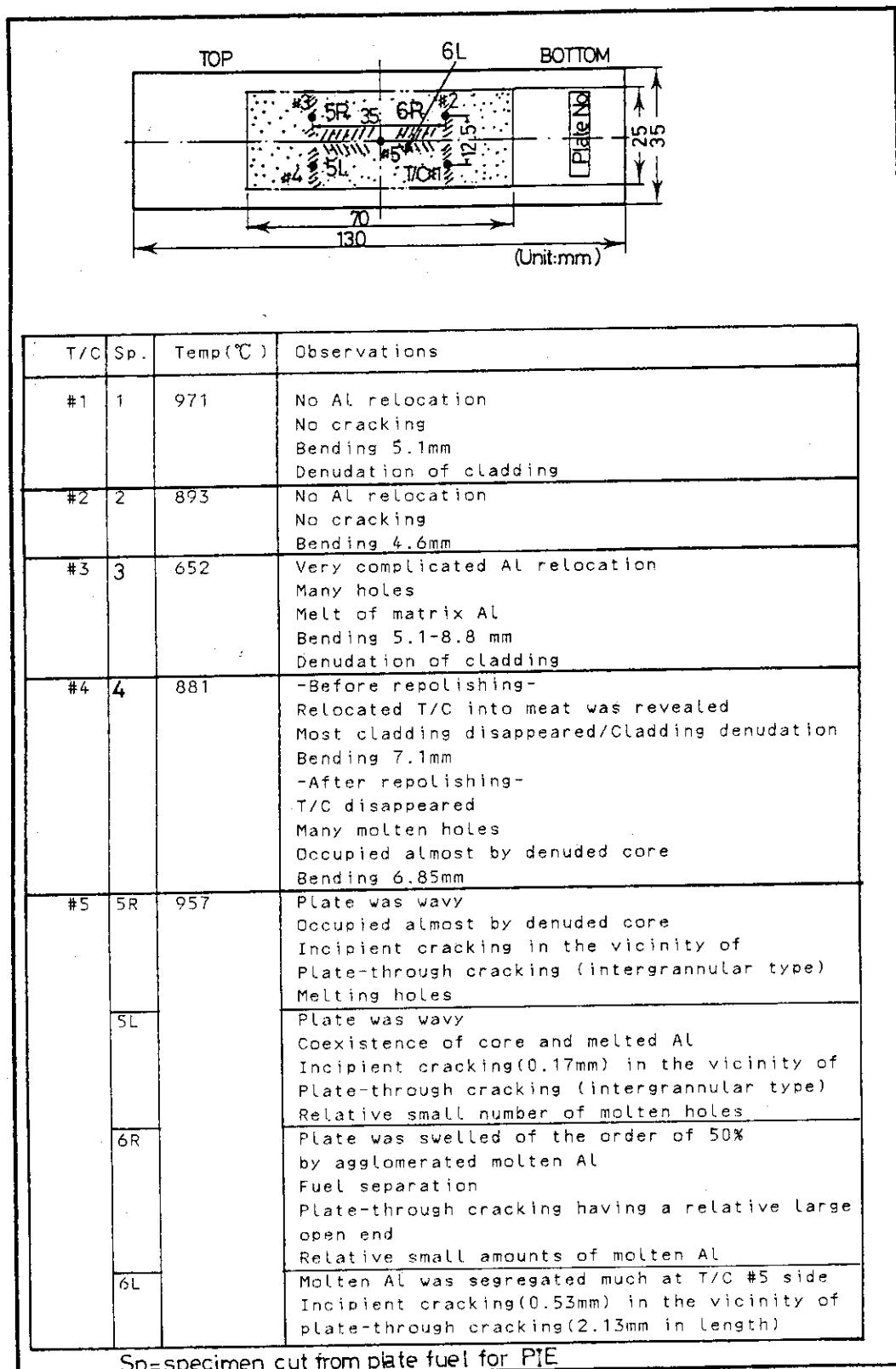


Fig. 3.4.8 Summary map of the post-pulse irradiation examination of experiment 508-4 (154 cal/g•fuel)

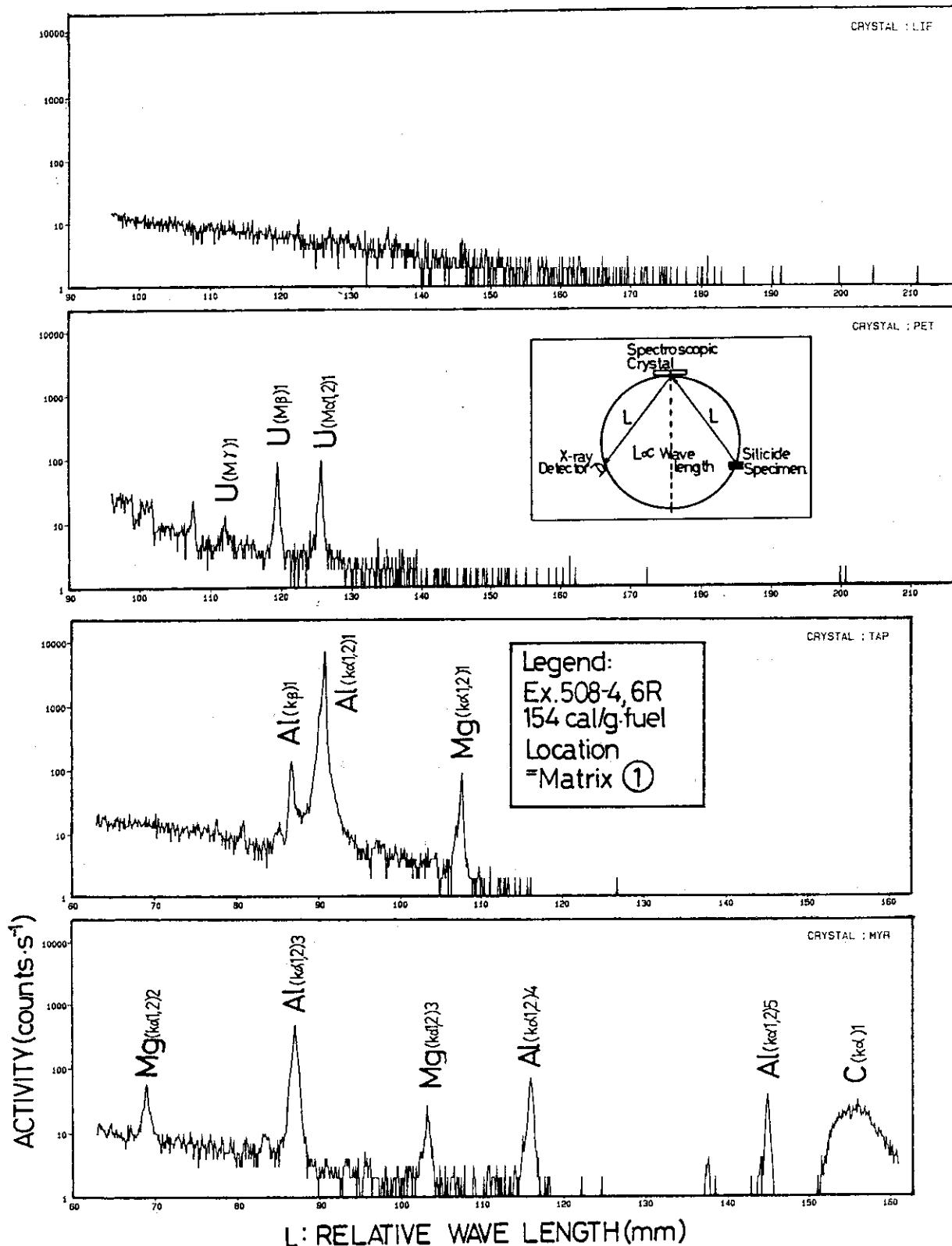


Fig. 4.3.1 XMA detected elements from the matrix ① shown in Photo. 4.3.1, where electron beam voltage by 25kV and adsorbing currency by 30nA were used. Relative wave length L is indicated schematically in the figure

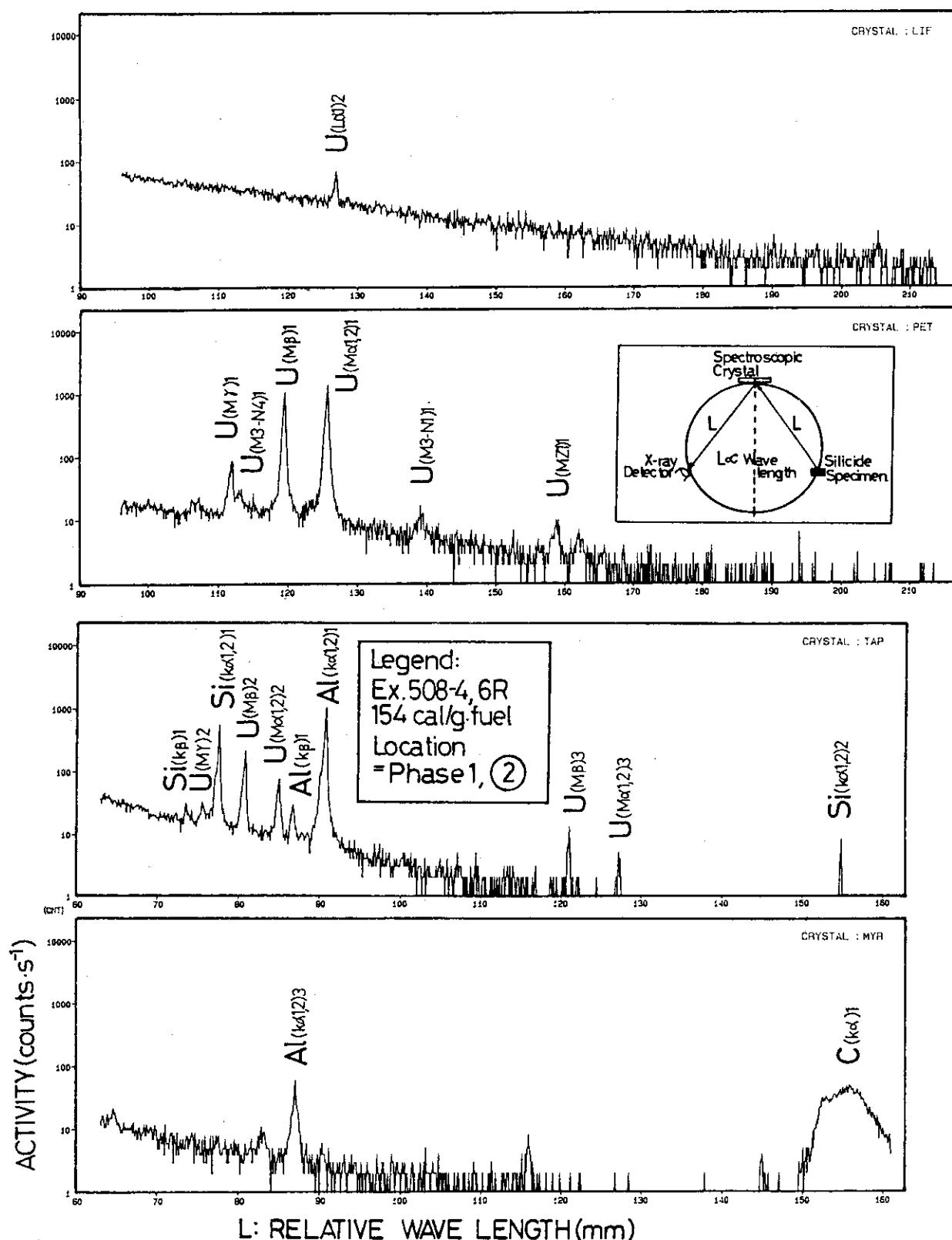


Fig. 4.3.2 XMA detected elements from the phase 1 in Photo. 4.3.1.
Relative wave length L is indicated schematically in the figure

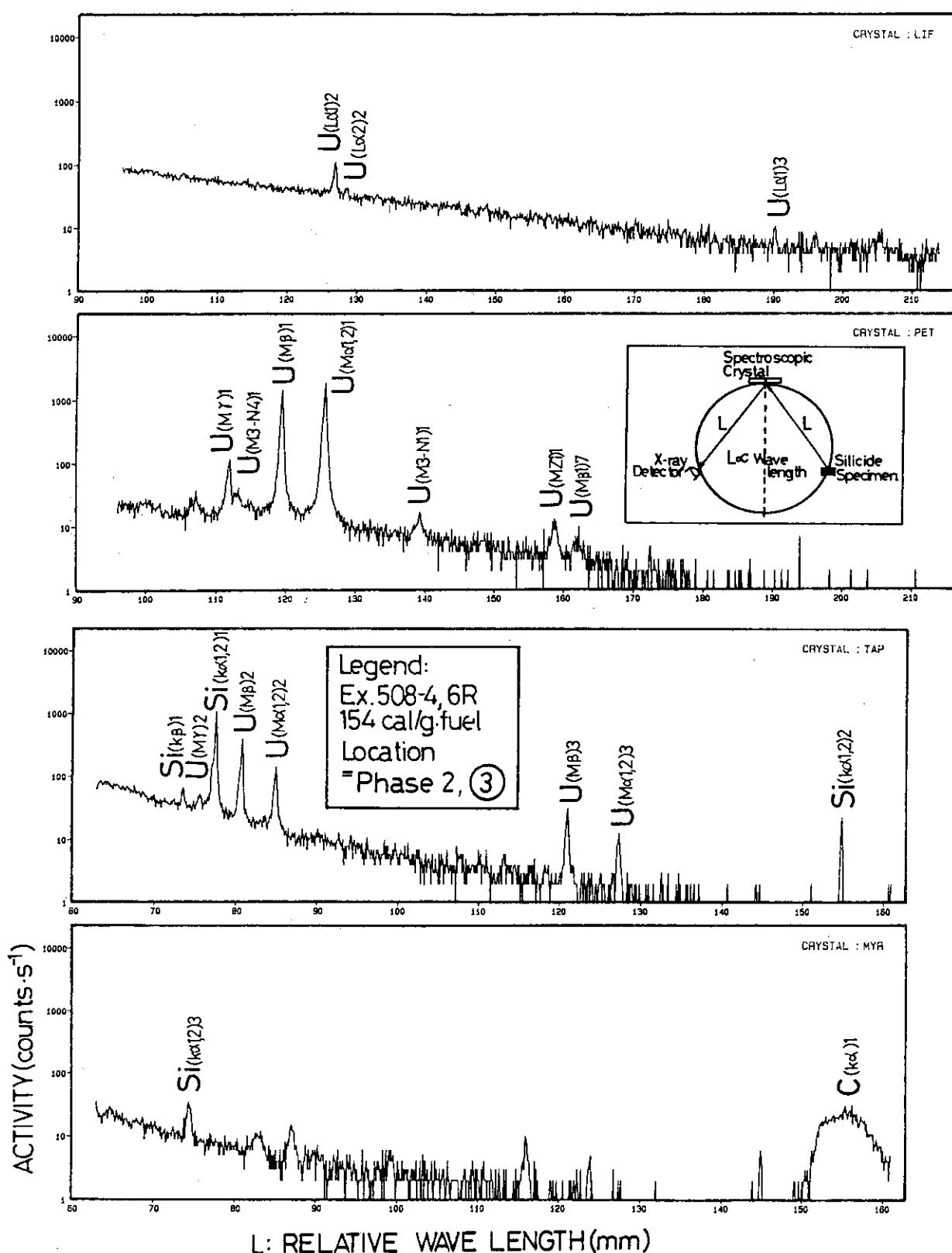


Fig. 4.3.3 XMA detected elements from the fuel core in Photo. 4.3.1.
Relative wave length L is indicated schematically in the figure

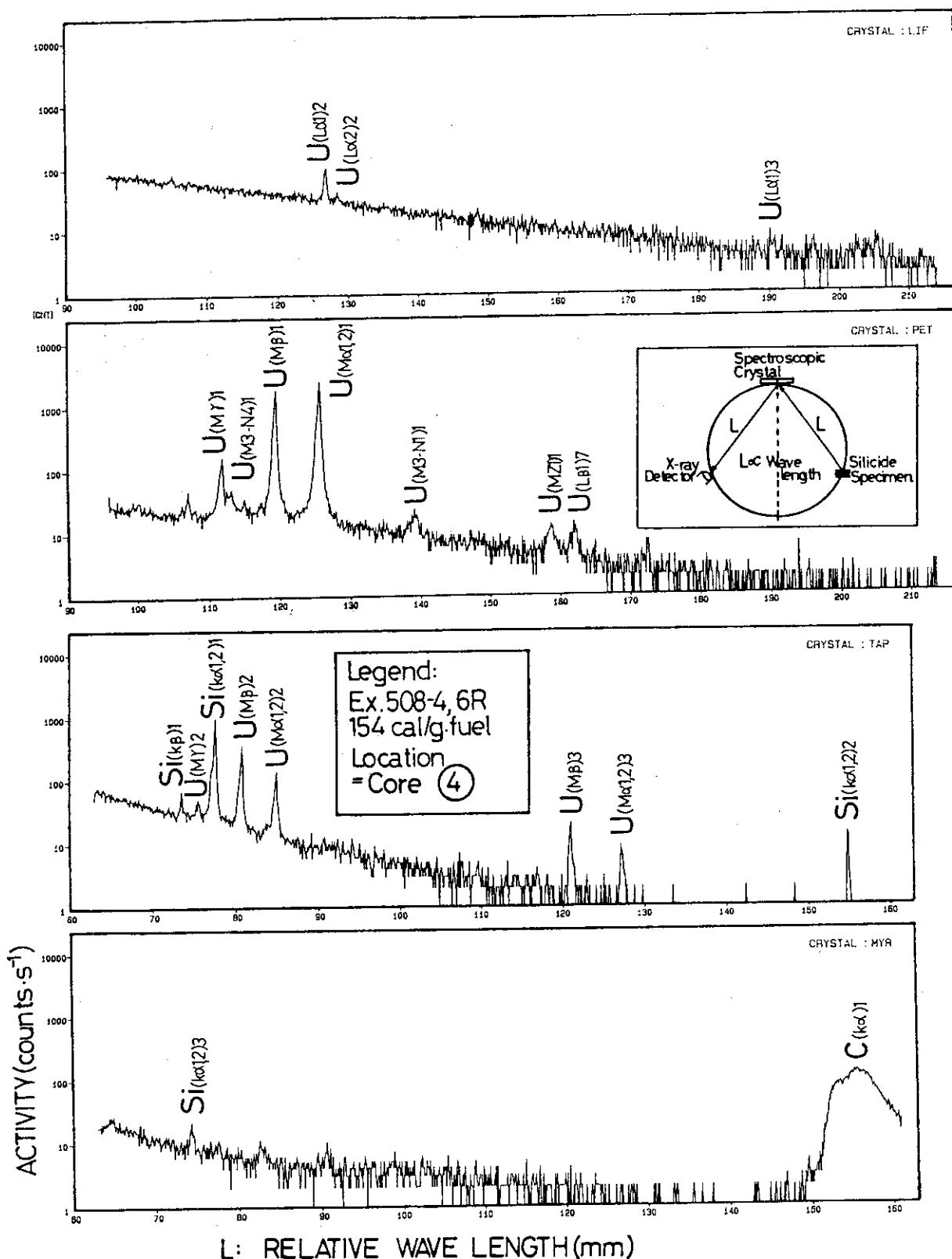


Fig. 4.3.4 XMA detected elements from core in Photo. 4.3.1.
Relative wave length L is indicated schematically in the figure

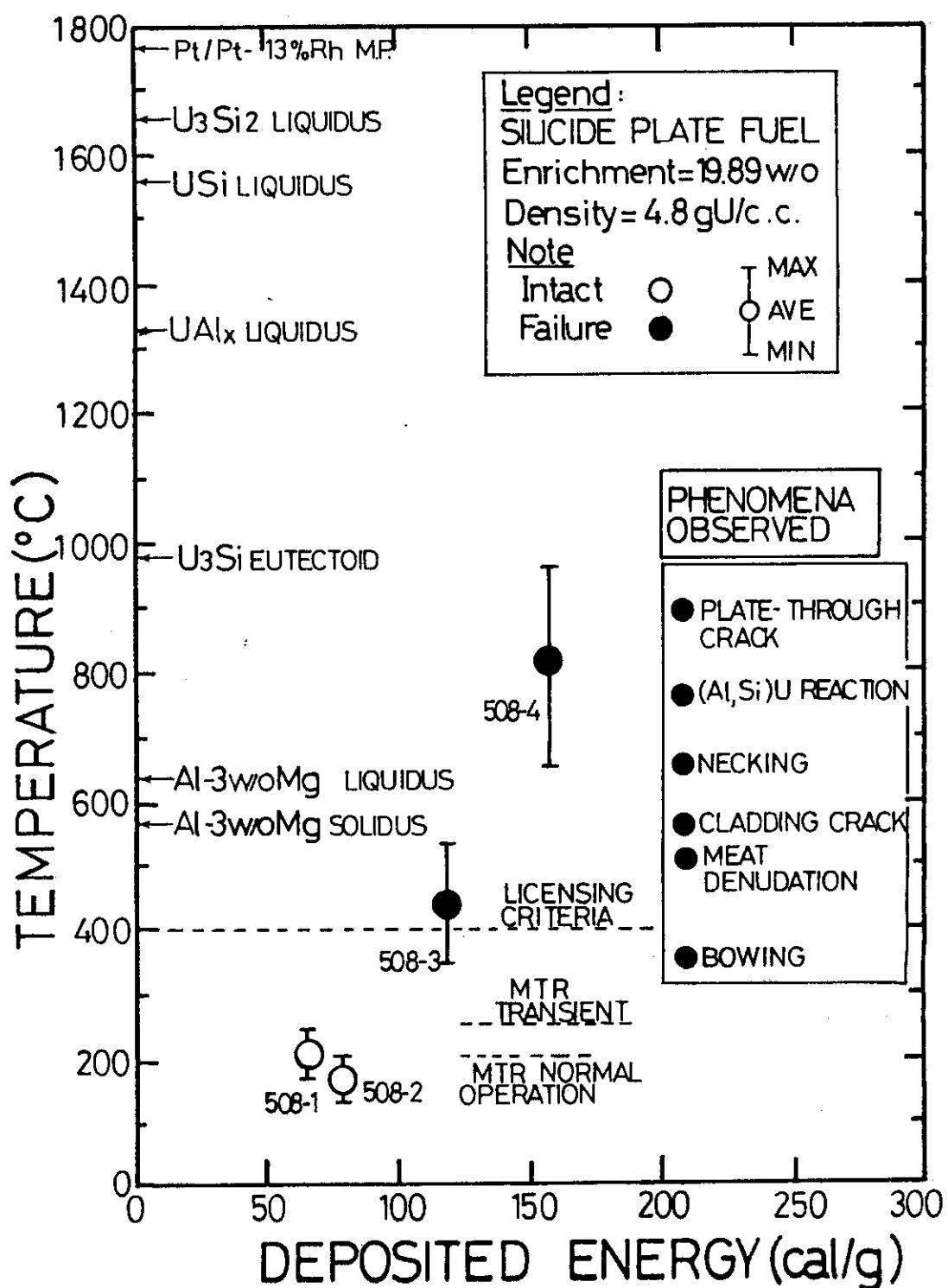


Fig. 5.1.1 Temperature of the silicide fuel as a function of deposited energy

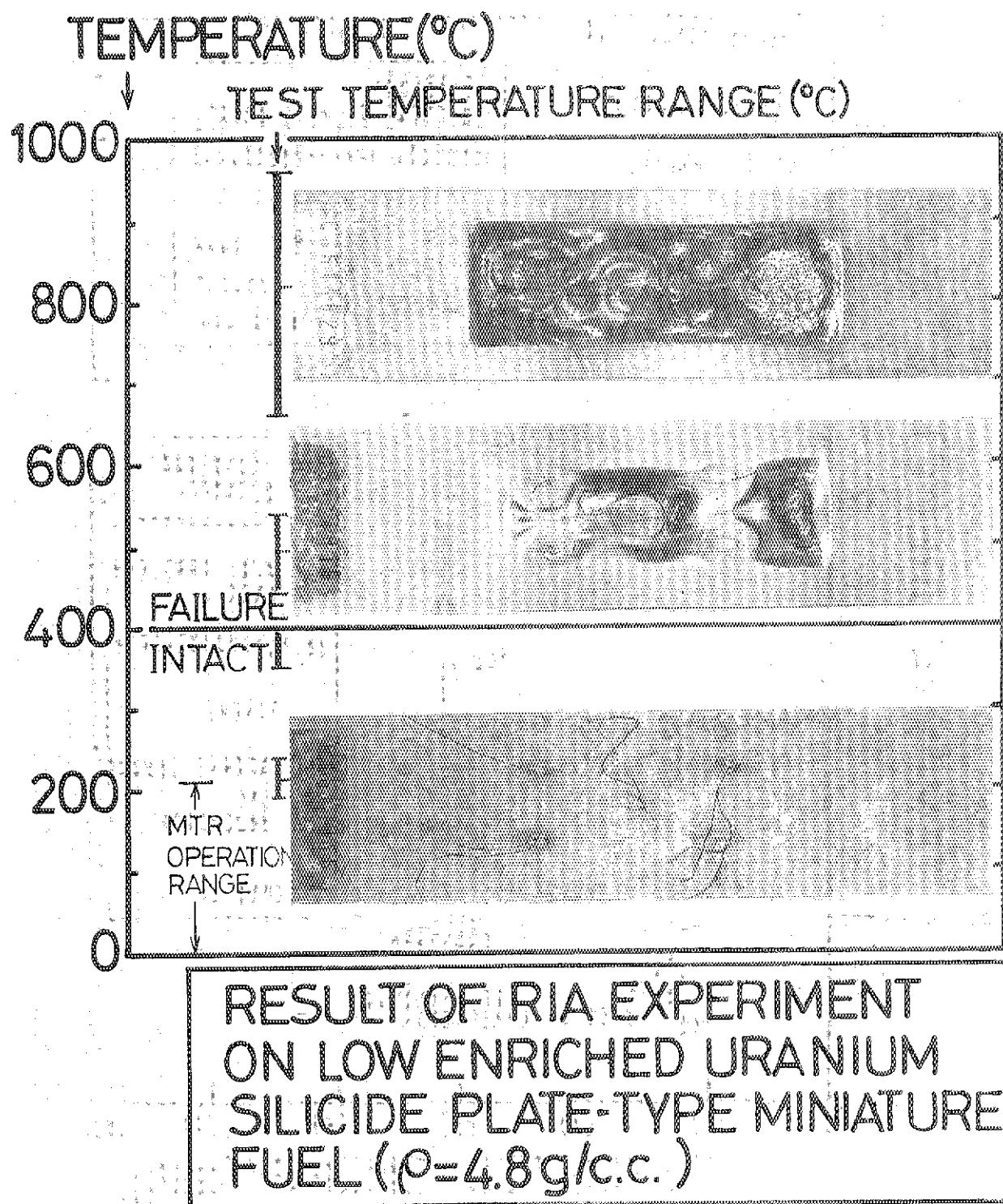


Fig. 5.1.2 Overview of the pulse irradiated silicide plate fuels resulting in a clear failure threshold above 400°C

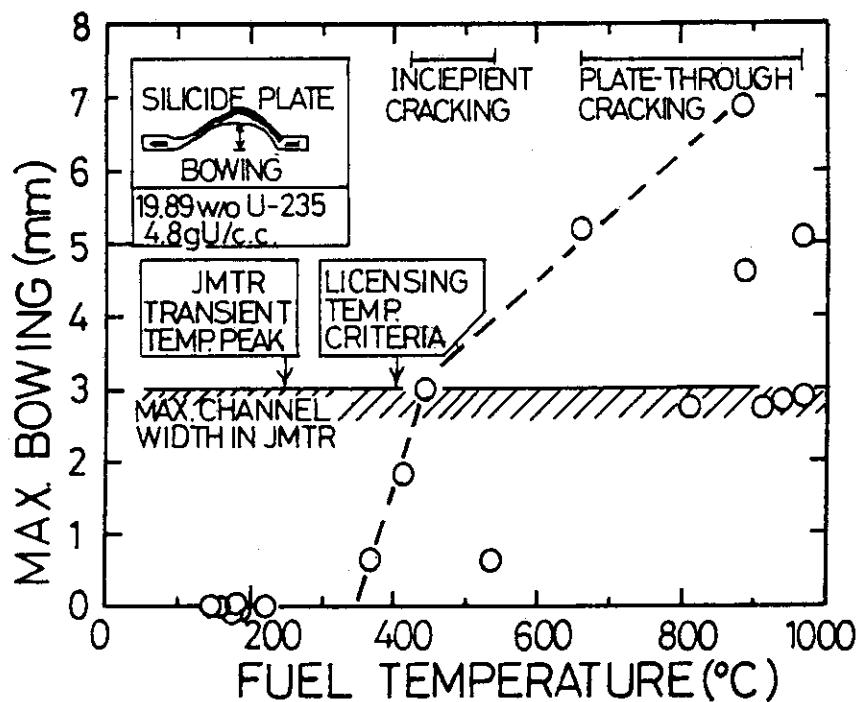


Fig. 5.1.3 Max bowing of the silicide plate-type fuel as a function of fuel temperature

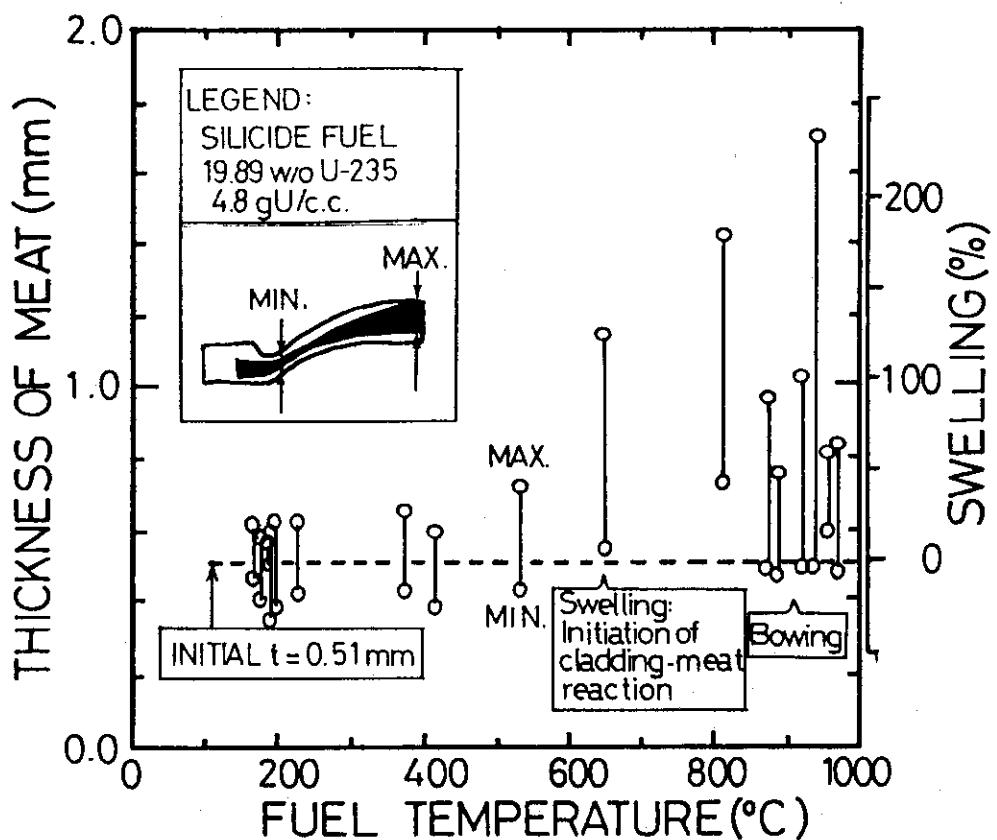
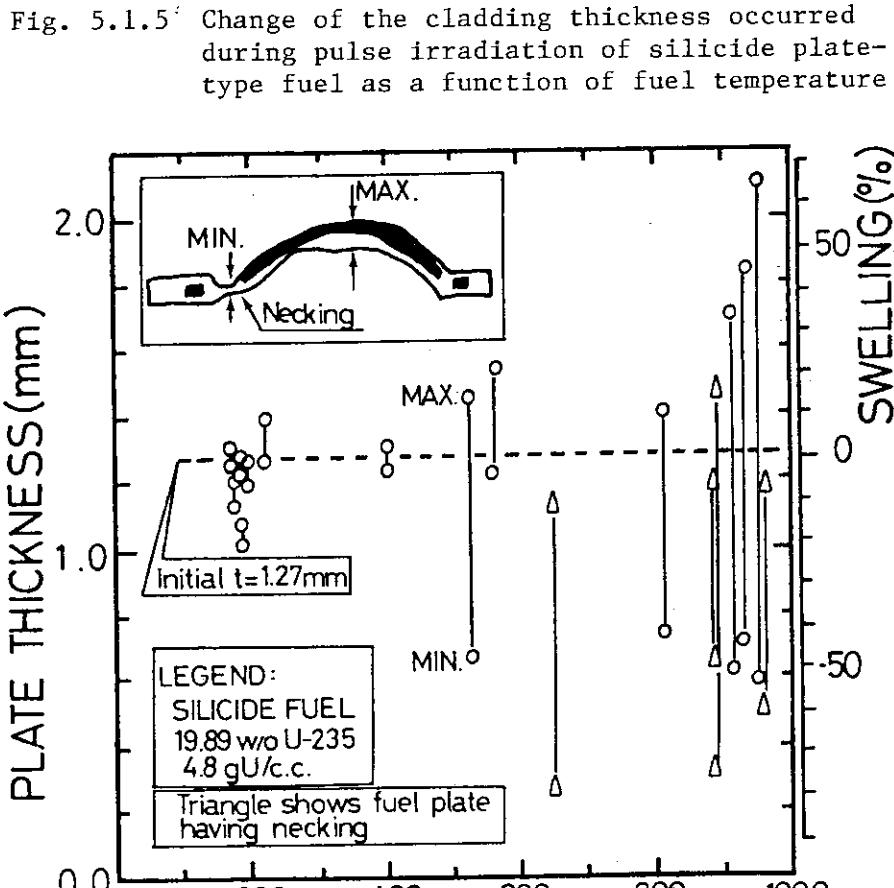
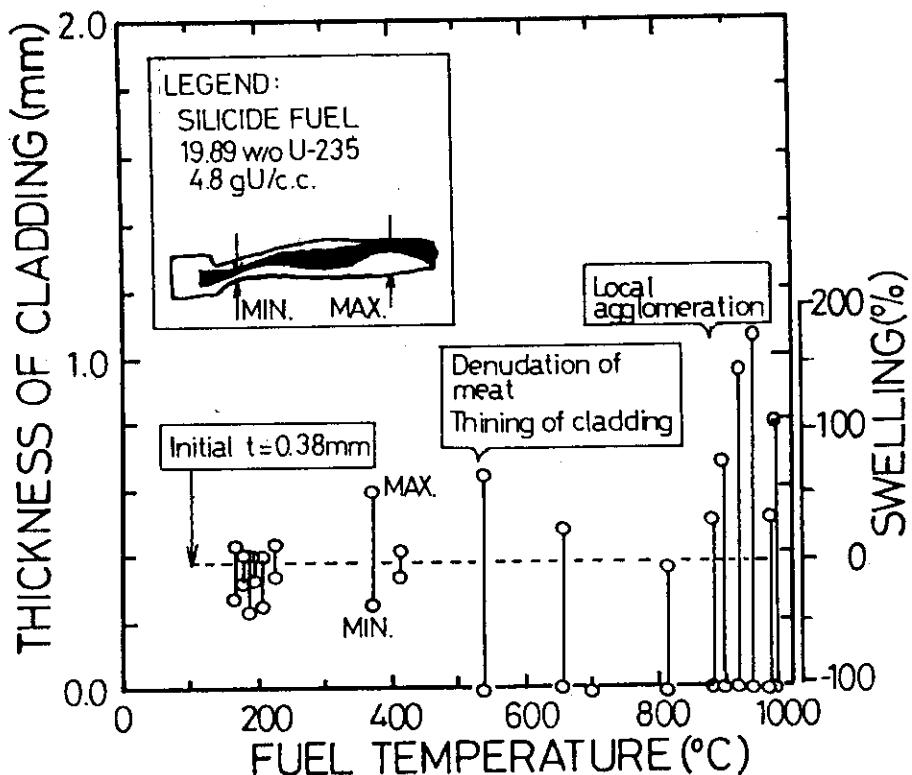


Fig. 5.1.4 Change of the meat thickness occurred during pulse irradiation of silicide plate-type fuel as a function of fuel temperature



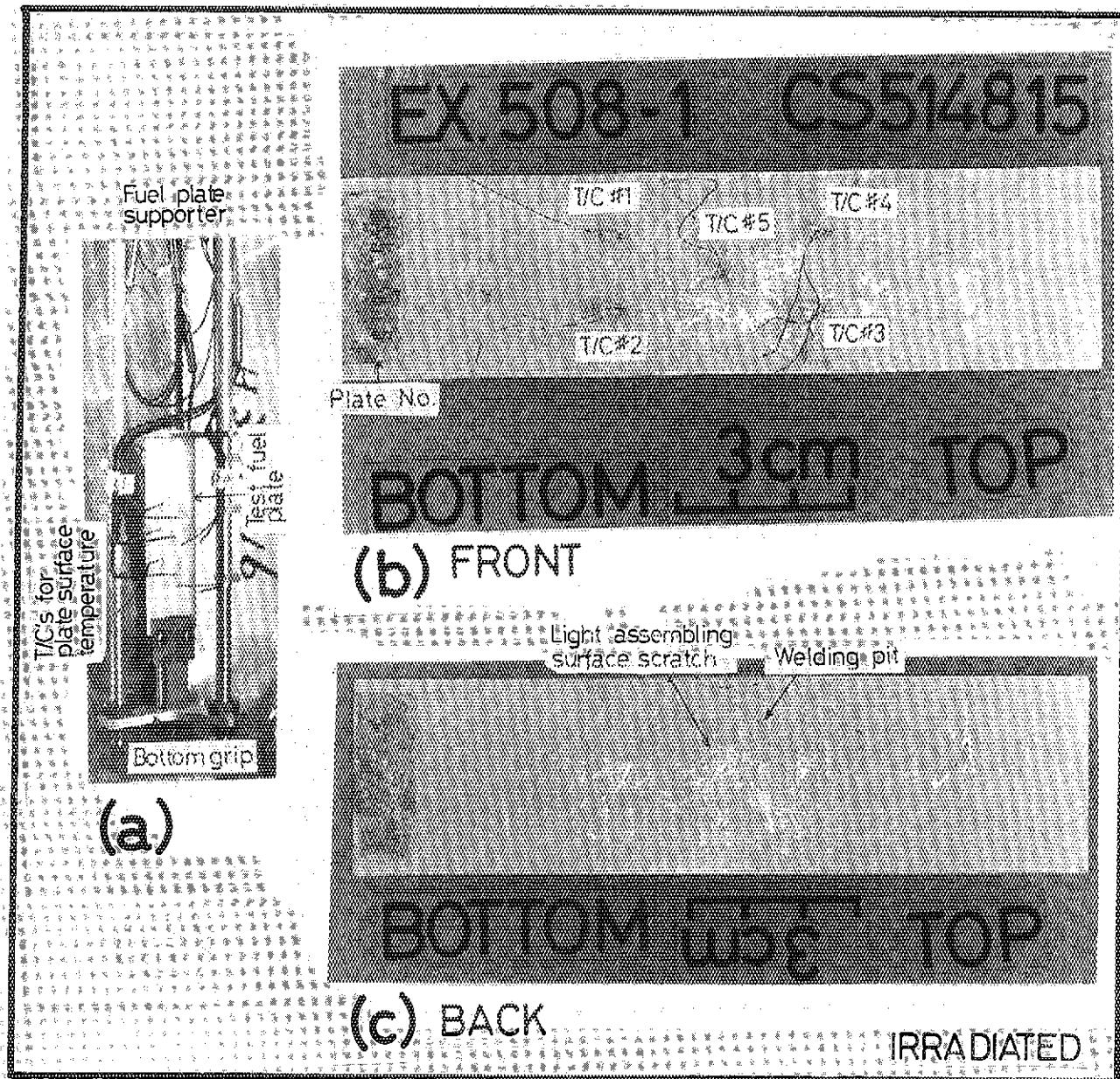


Photo. 3.1.1 Disassembled condition of the fuel plate pulsed at 62 cal/g·fuel

- (a) As-disassembled fuel plate from the irradiation capsule with supporters
- (b) Front surface condition of the plate fuel, where four T/C's except #1 were intact. Discoloration occurred at those T/C's and at plate bottom due to a slight oxidation
- (c) Back surface condition of the plate fuel, where apparent thirteen pittings (O.D.<0.4mm) were observed

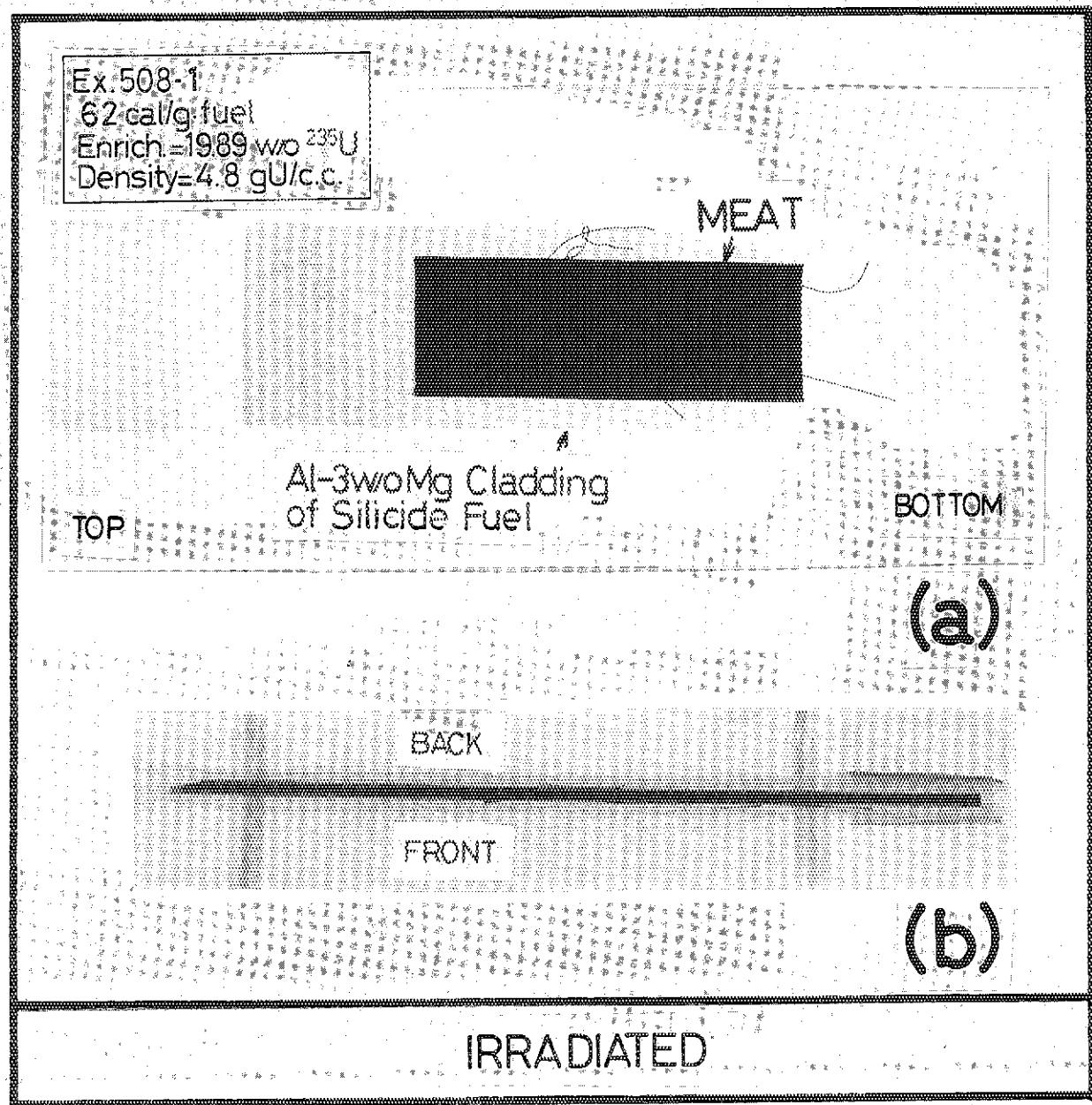


Photo. 3.1.2 X-ray photographs of the fuel plate after pulse irradiation of 62 cal/g•fuel in Ex.508-1. (Fuel enrichment=19.89w/o and density=4.8 gU/cm³), showing that the plate deformation was little. Black lines seen in (a) were thermocouple wires welded to the plates

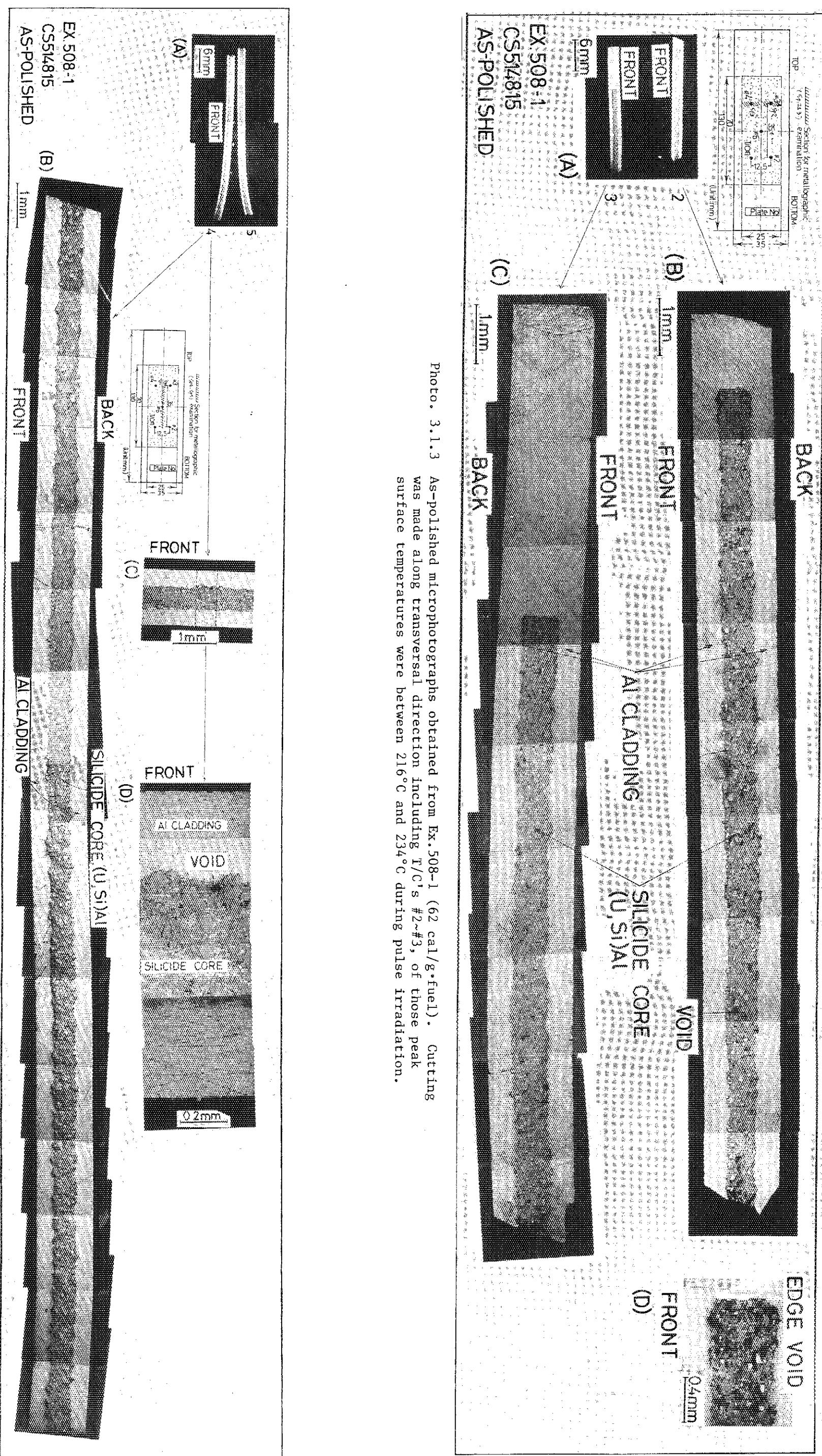


Photo. 3.1.3 As-polished microphotographs obtained from Ex.508-1 (62 cal/g·fuel). Cutting was made along transversal direction including T/C's #2~#3, of those peak surface temperatures were between 216°C and 234°C during pulse irradiation.

Photo. 3.1.4 As-polished microphotographs obtained from Ex.508-1 (62 cal/g·fuel). Cutting was made along longitudinal direction of plate center including T/C #5. Cladding peak temperature at the location was 178°C.

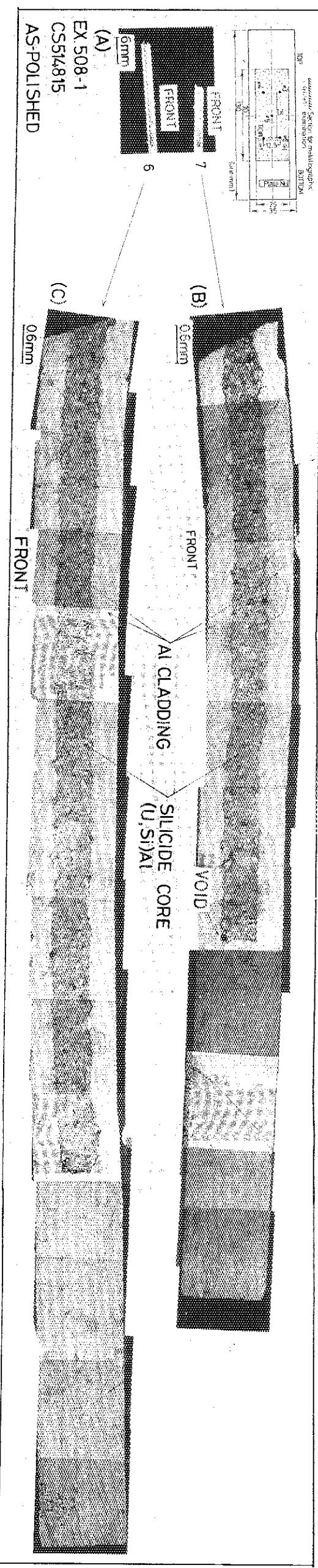


Photo. 3.1.5 As-polished microphotographs obtained from Ex.508-1 (62 cal/g·fuel). Cutting was made along transversal direction including T/C's #1~#2, of those peak surface temperatures were around 177°C.

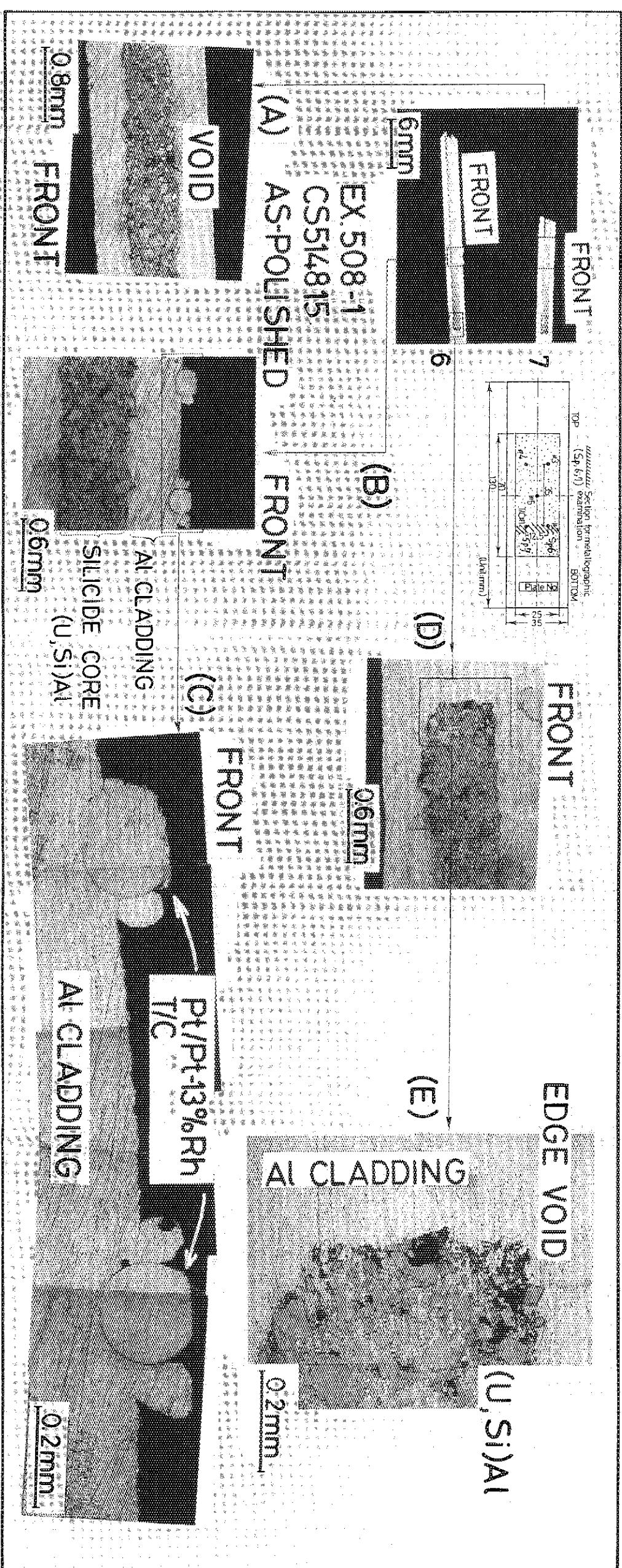


Photo. 3.1.6 As-polished microphotographs obtained from Ex.508-1 (62 cal/g·fuel). Cutting was made along transversal direction including T/C's #1~#2, of those peak surface temperatures were around 177°C. Here, void (porosity, [A]), welded thermocouples ([B], [C]) and fuel edge ([D], [E]) were shown.

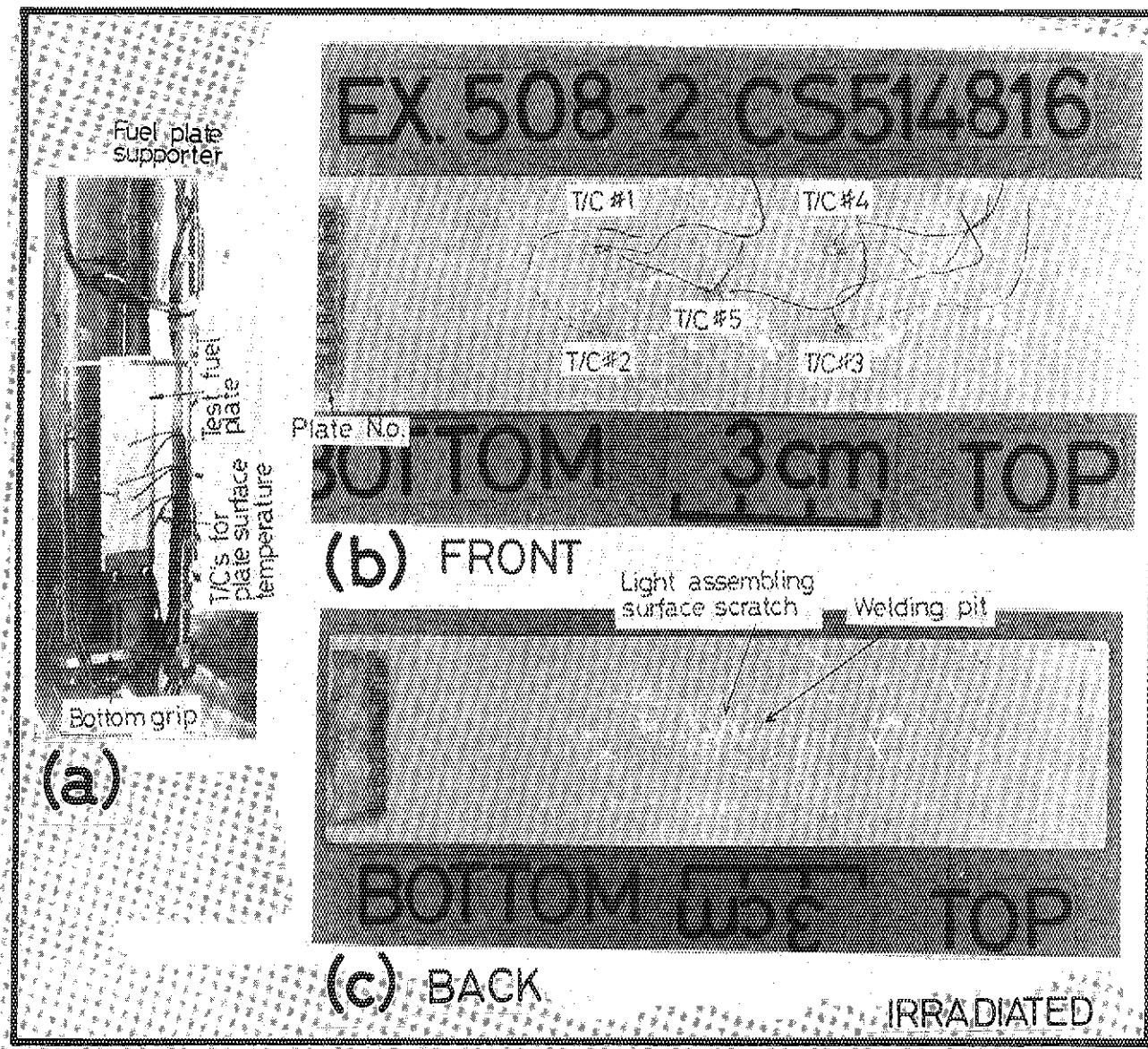


Photo. 3.2.1 Disassembled condition of the fuel plate pulsed at 77 cal/g•fuel

- (a) As-disassembled fuel plate from the irradiation capsule with supporters
- (b) Front surface condition of the plate fuel, where five T/C's were intact. Discolorations occurred at T/C's and bottom of plate due to a slight oxidation
- (c) Slight oxidized back surface of the plate fuel, where apparent ten pittings (O.D.<0.4mm) were seen. Discoloration occurred both at bottom and top ends

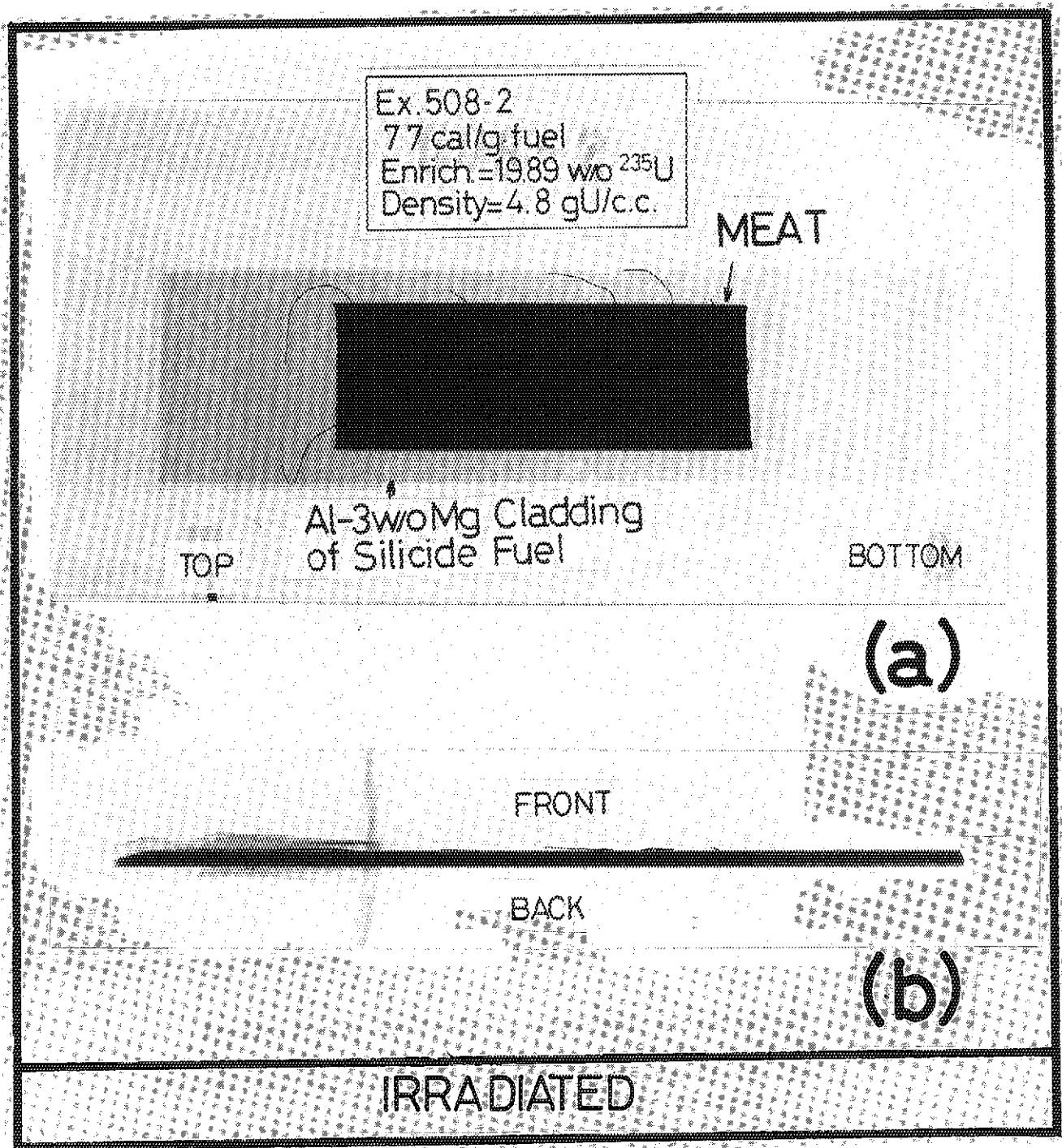


Photo. 3.2.2 X-ray photographs of the fuel plate after pulse irradiation of 77 cal/g•fuel in Ex.508-2 (Fuel enrichment, 19.89w/o and density 4.8 g/cm^3) showing that the plate deformation was little. Black lines seen in (a) were thermocouple wires welded to the plate.

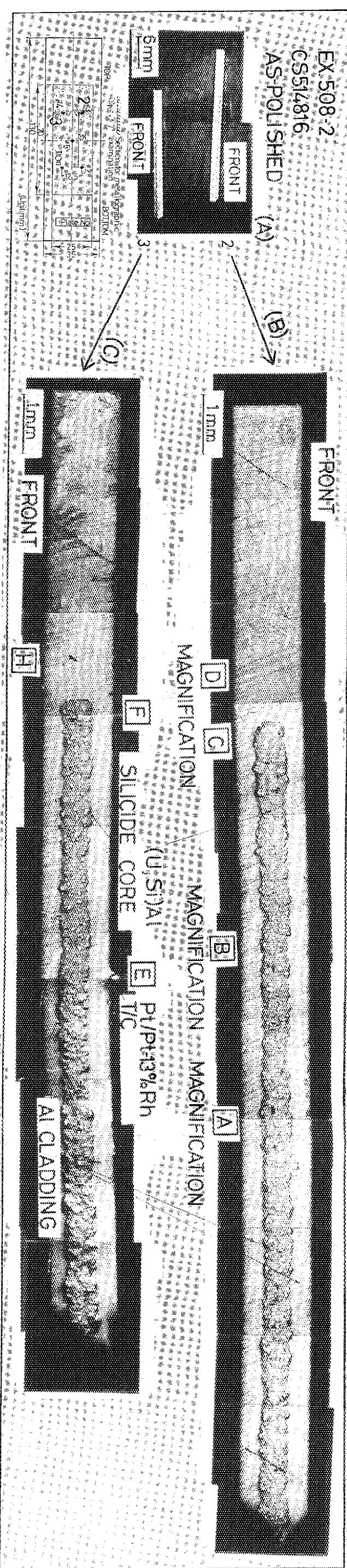


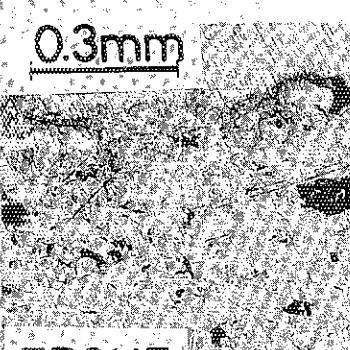
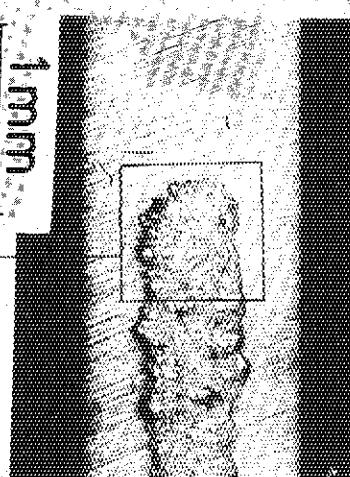
Photo. 3.2.3 As-polished microphotographs obtained from Ex.508-2 (77 cal/g.fuel). Cutting was made including T/C's #3 and #4. Experienced peak surface temperatures were between 178°C and 183°C.

(A): Cutting map, (B) and (C): magnified specimens 2 and 3

Ex. 508-2

MAGNIFICATION

FRONT



FRONT

MAGNIFICATION

FRONT

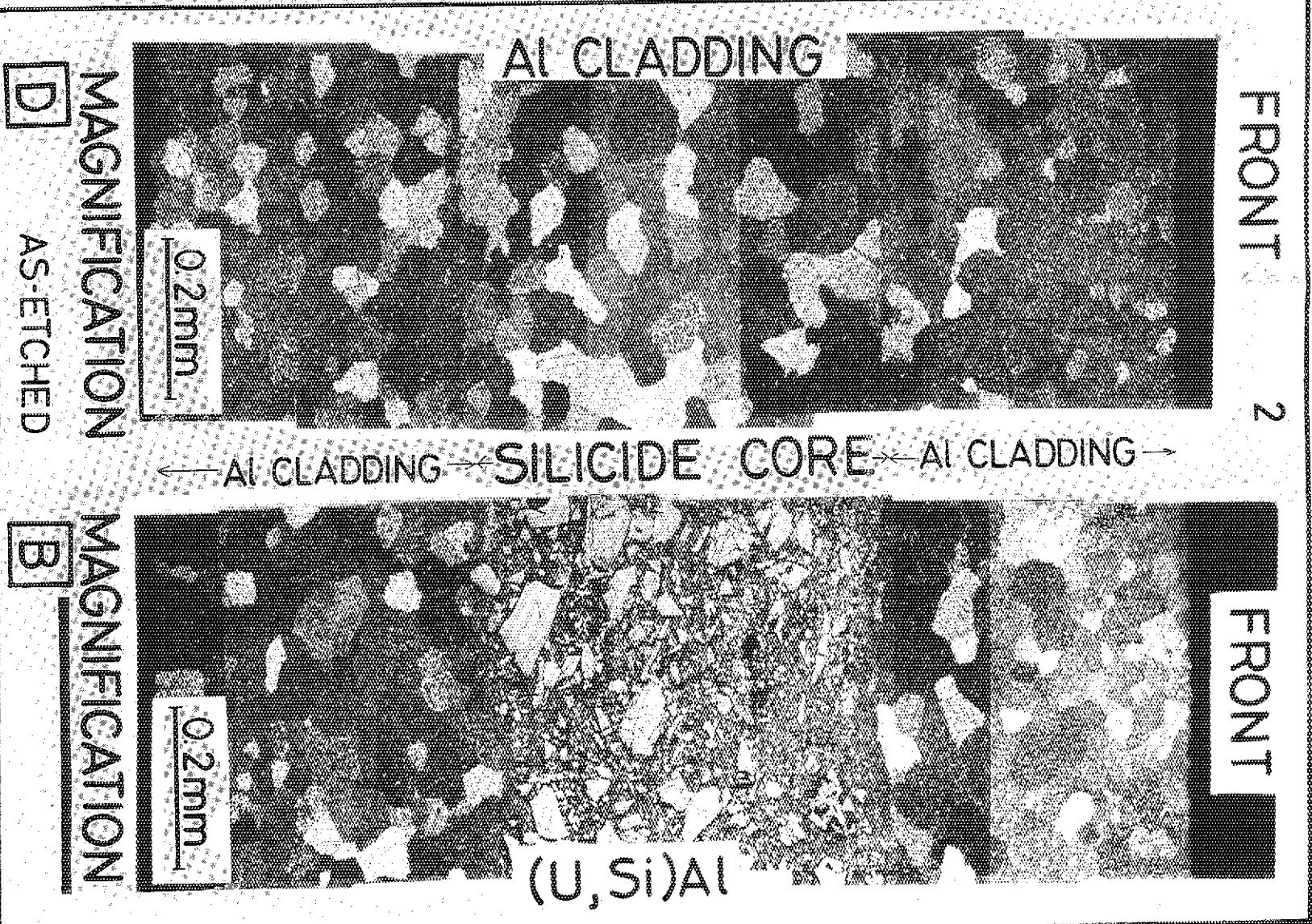
SILICIDE CORE
(U,Si)AlEDGE VOID
AS-POLISHED

Photo. 3.2.4 Magnified **A ~ D** in Photo. 3.2.3, showing the edge porosity (void) and the grain structure of the cladding.

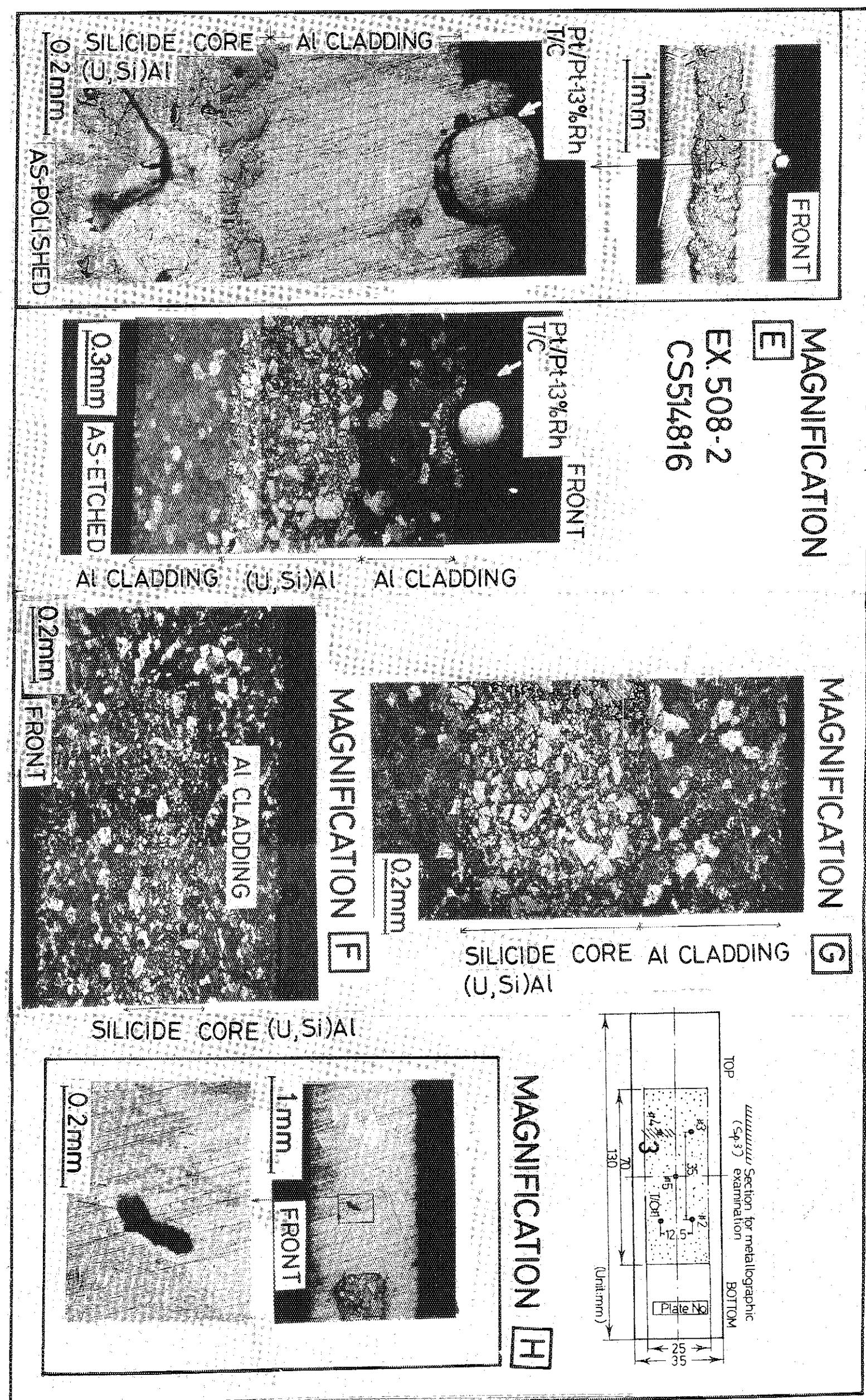


Photo. 3.2.5 Magnified **E** ~ **H** in Photo. 3.2.3, showing the conditions of welded thermo-couples and the compatibility of the fuel core with the cladding. The surface defects might be caused from fabrication stage are observed.

EX.508-2, AS-POLISHED
CS54816

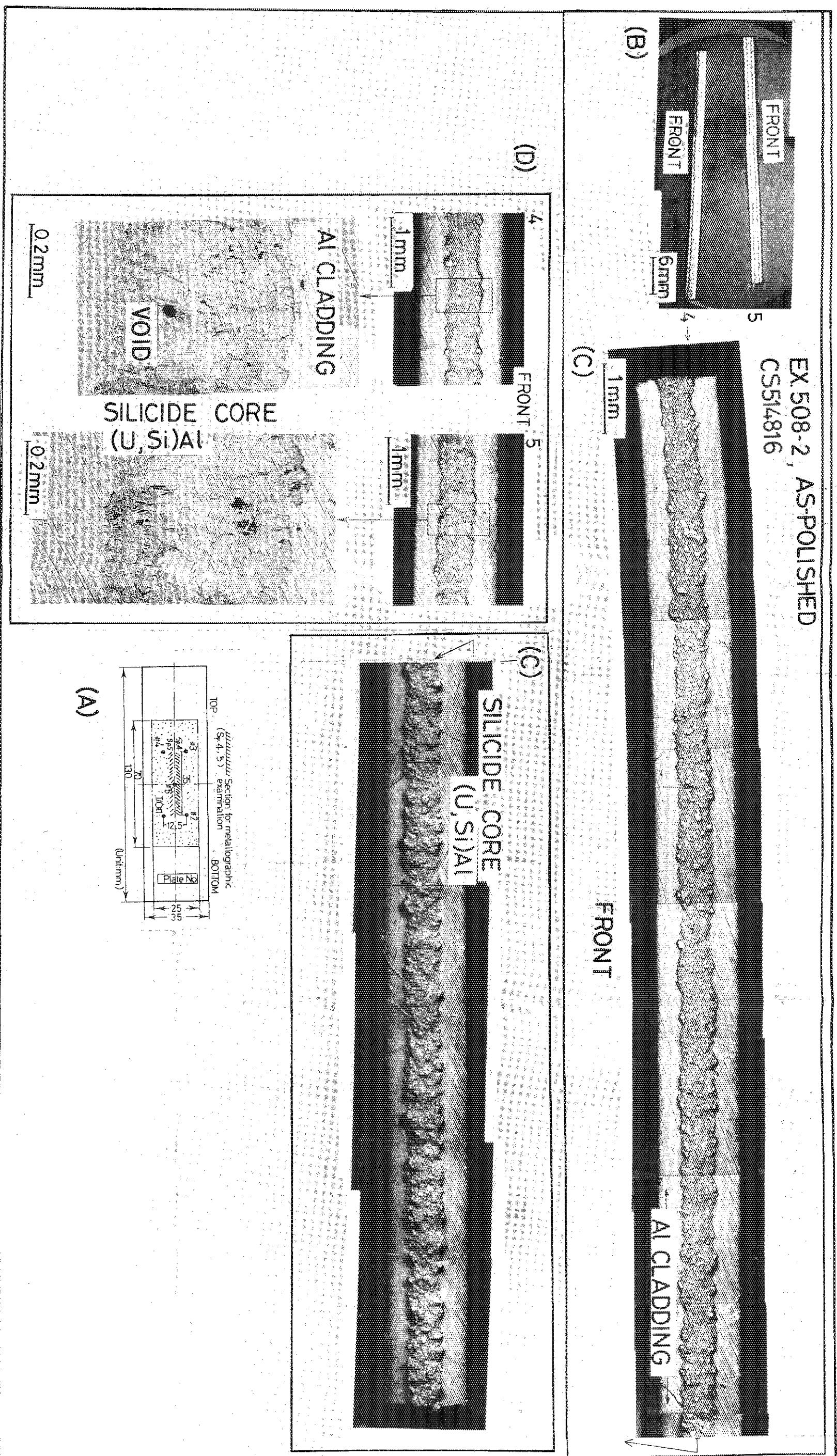


Photo. 3.2.6 As-polished longitudinal cross section of the fuel plate including T/C #5 which had maximum cladding surface temperature of 195°C in Ex.508-2 (77 cal/g°fuel). (A) cutting map, (B) outerviews, (C) magnification of (B), (D) magnified some pores (voids) in the fuel core.

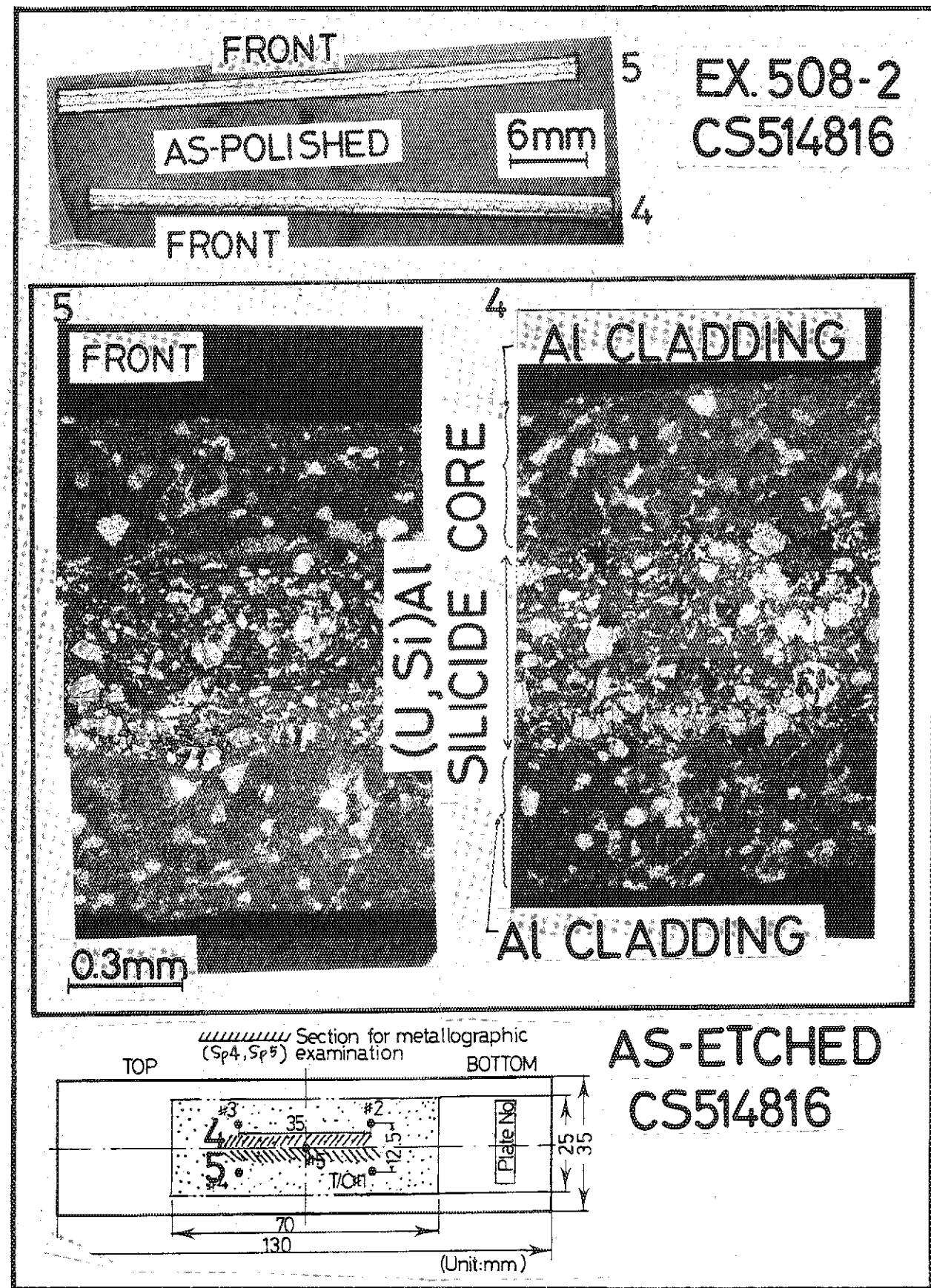


Photo. 3.2.7 As-etched microphotographs of the silicide plate specimen 4 and 5 cut longitudinally from the plate center, showing a good compatibility between Al cladding and fuel meat.

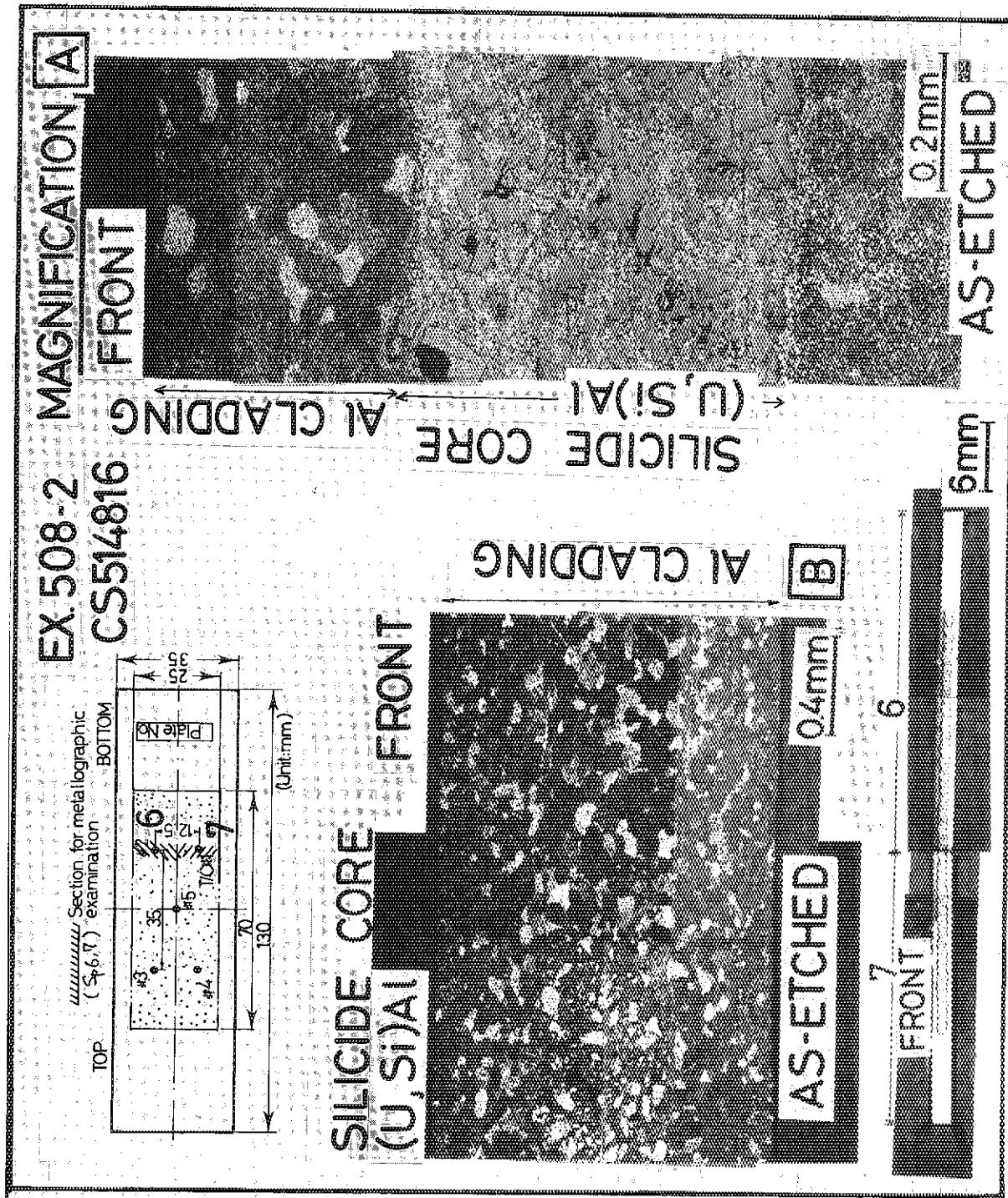


Photo. 3.2.9 Magnification of location [A] and [B] in the previous photograph, etched.

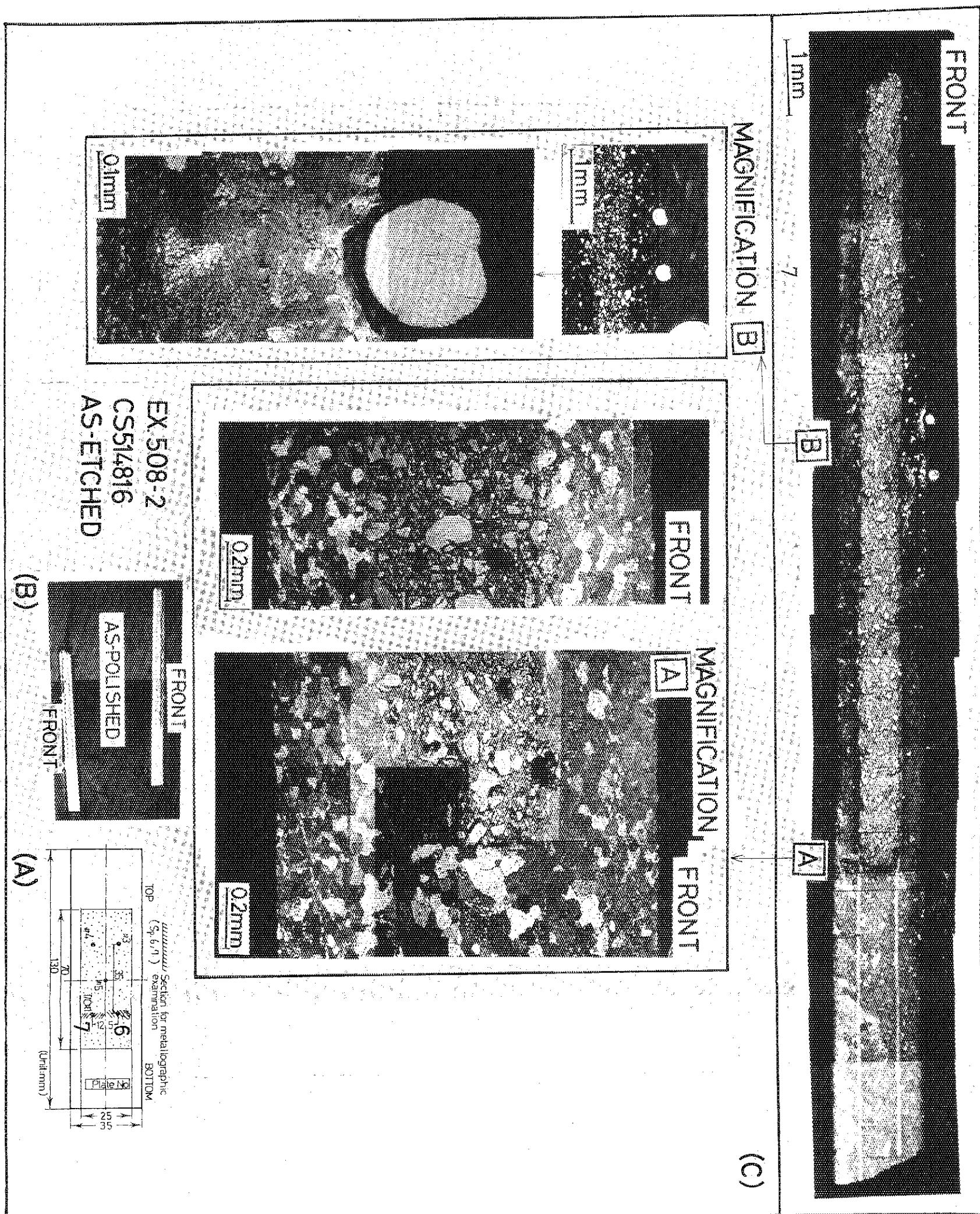


Photo. 3.2.10 As-etched transversal cross section of the fuel plate including T/C's #1 and #2, these showed maximum cladding surface temperature of 200°C and 179°C in Ex. 508-2 (77 cal/g·fuel). (A) map, (B) outerview, (C) etched specimens 6. Others are magnifications of (C).

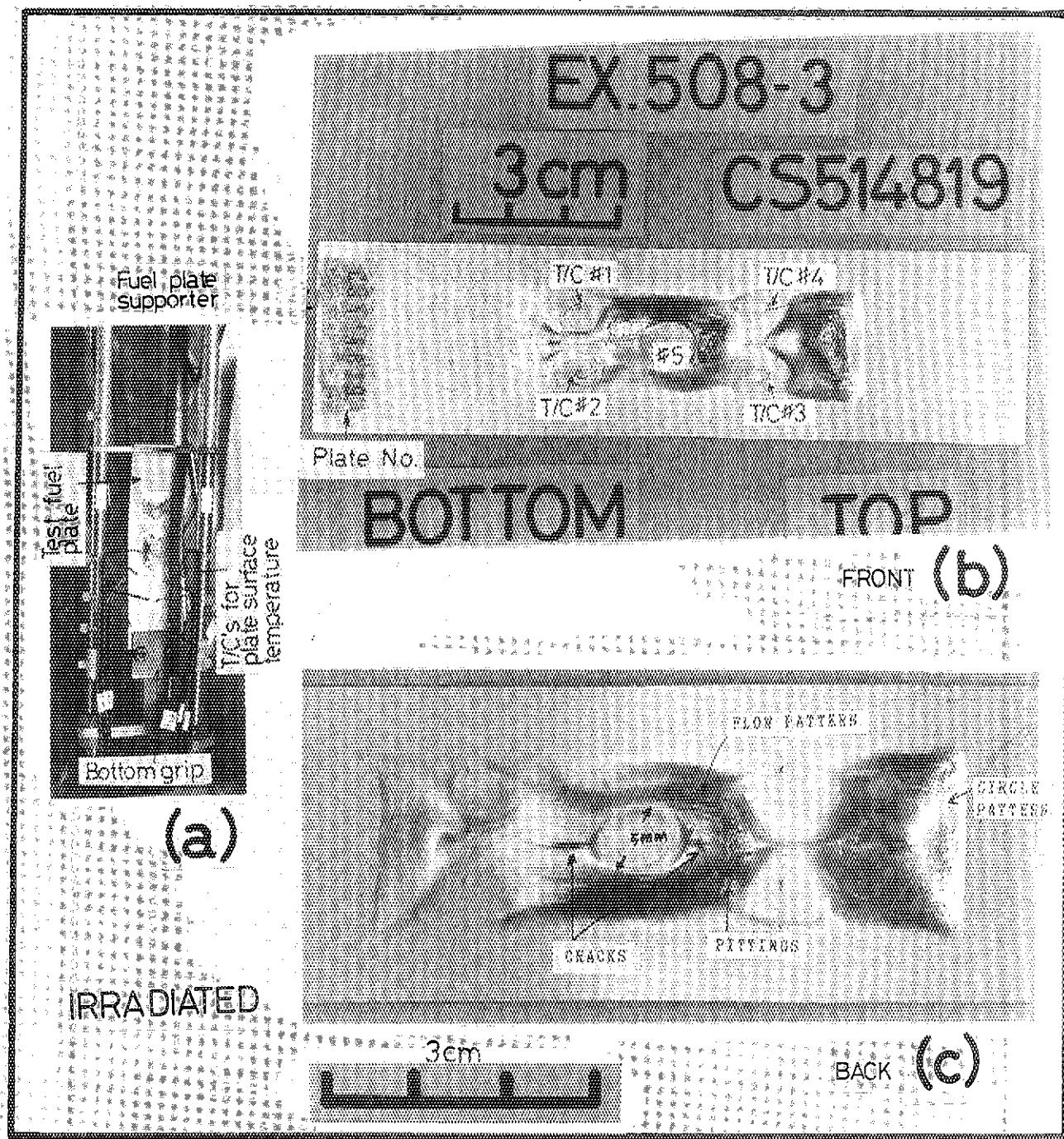


Photo. 3.3.1 Disassembled condition of the fuel plate pulsed at 116 cal/g.fuel

- (a) As-disassembled fuel plate together with supporters from the irradiation capsule
- (b) Front surface condition of the plate fuel, where five T/C's attached to were worked properly. Discoloration occurred at the bottom of plate. Fuel core deformed much toward front and back directions.
- (c) Back surface condition of the plate fuel. Fuel core also deformed much here.

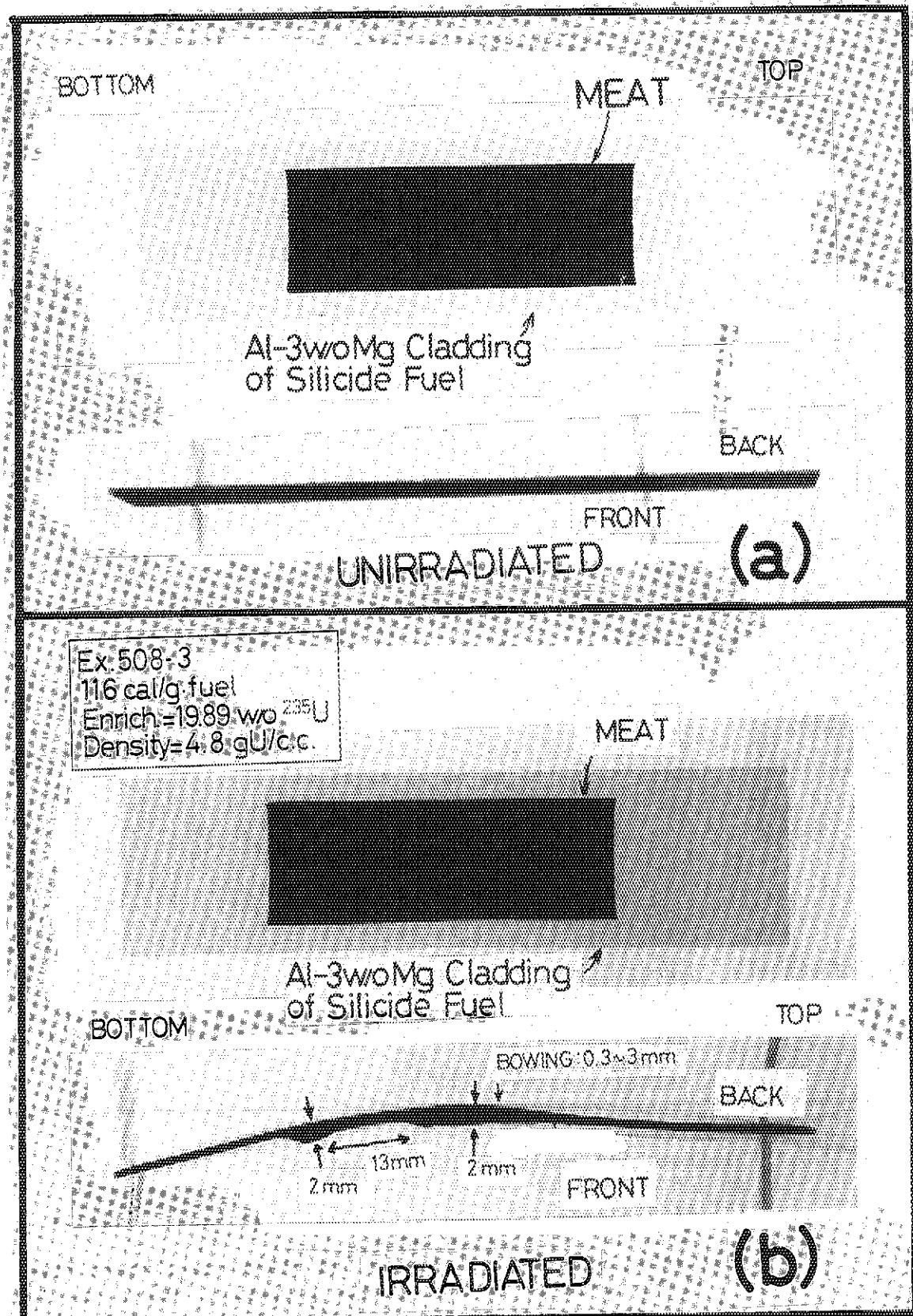


Photo. 3.3.2 X-ray photographs of the silicide plate fuel, (A) before pulse and (B) after pulse of 116 cal/g·fuel in Ex.508-3, (Fuel enrichment, 19.89w/o and density 4.8 gU/cm³). During irradiation, the plate bowed and deformed greatly. No significance like cracking was observed here.

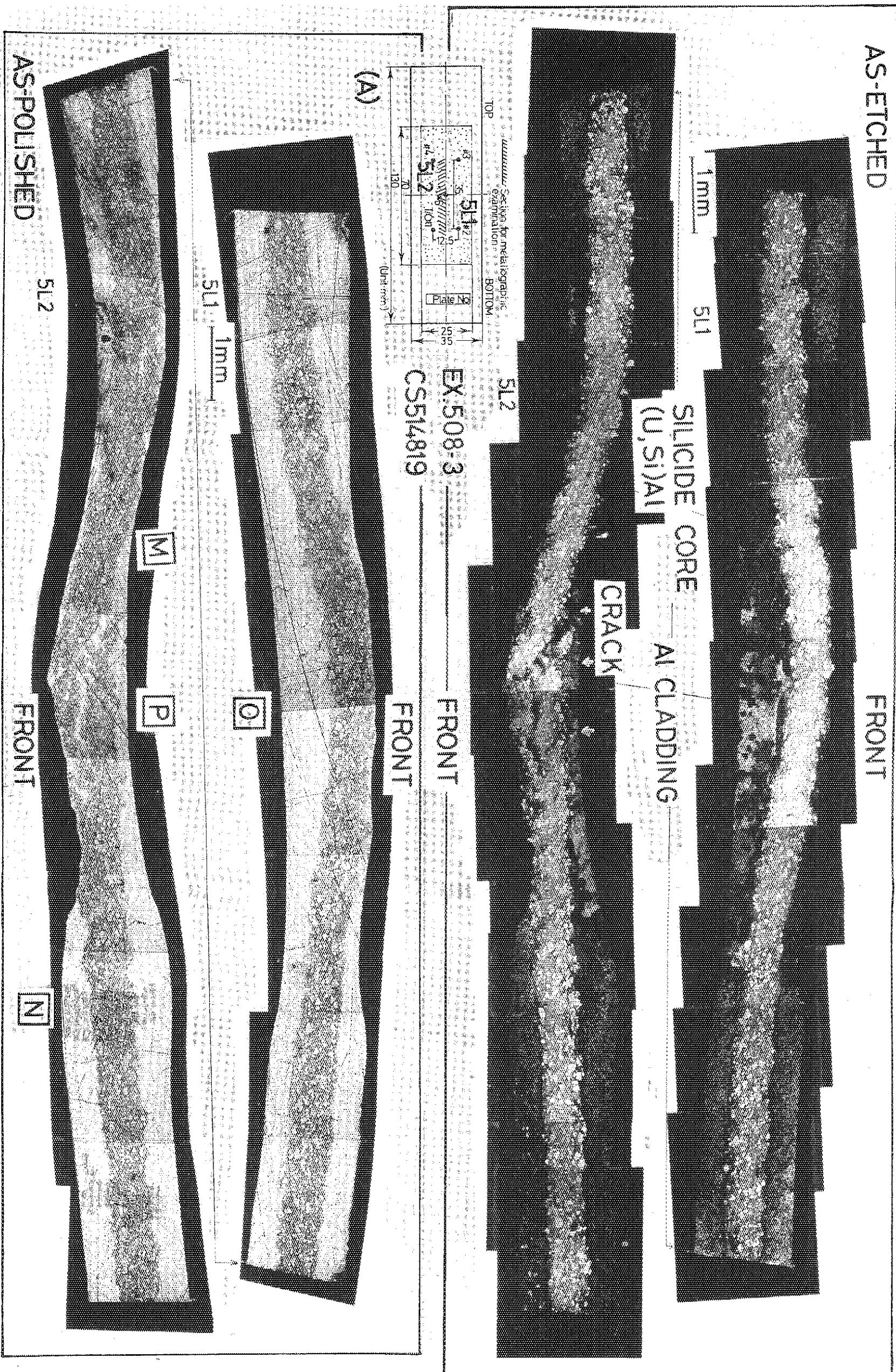
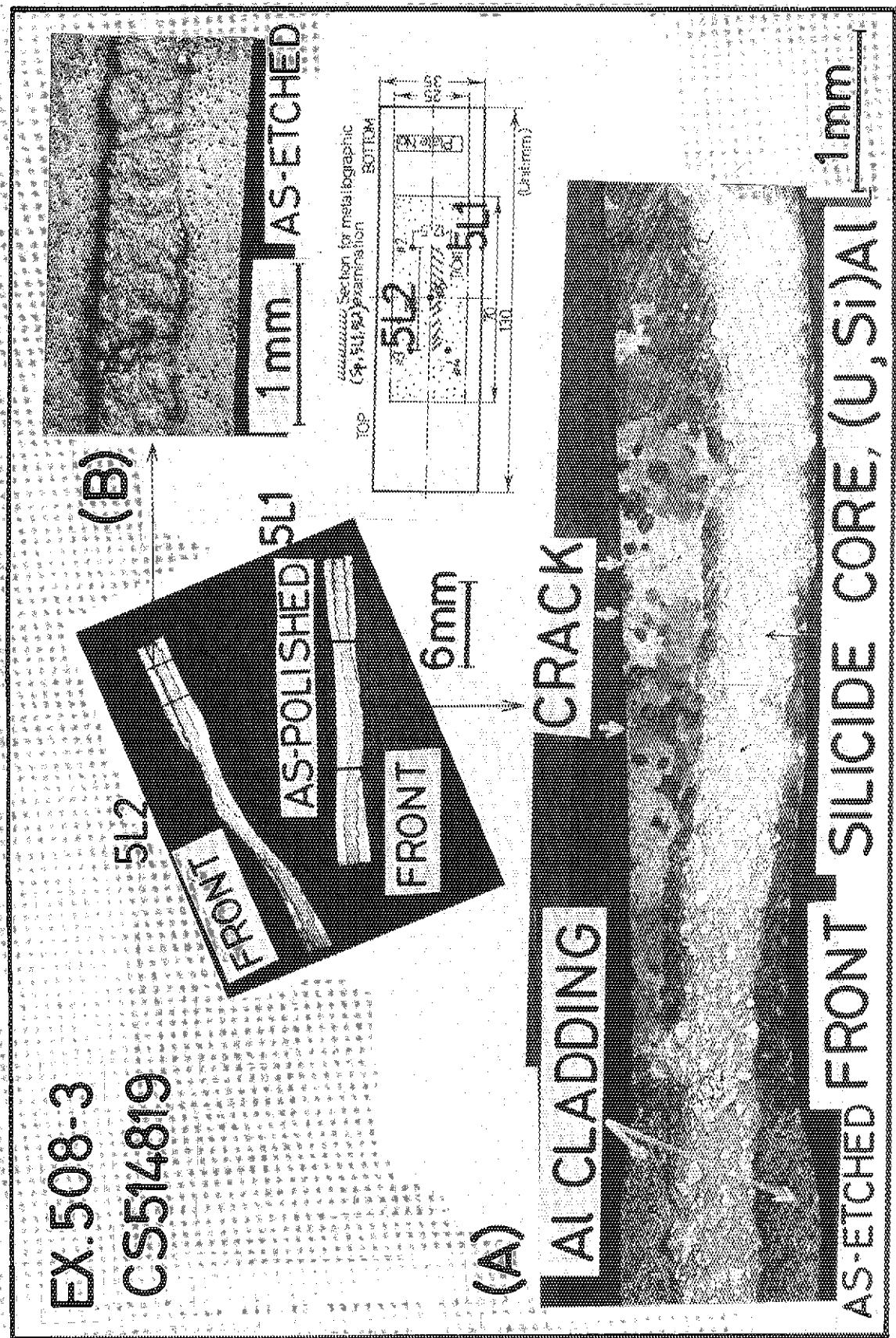


Photo. 3.3.3 As-etched (top two) and as-polished (bottom top) longitudinal cross section of the fuel plate including T/C #1 of which maximum cladding surface temperature was 544°C at energy deposition of 116 cal/g.fuel in Ex.508-3.



Modification of the specimens 5L1 and 5L2 of the previous photographs, showing (A) the different grain structure in the same specimen of 5L1 and (B) etching pits in the same specimen.

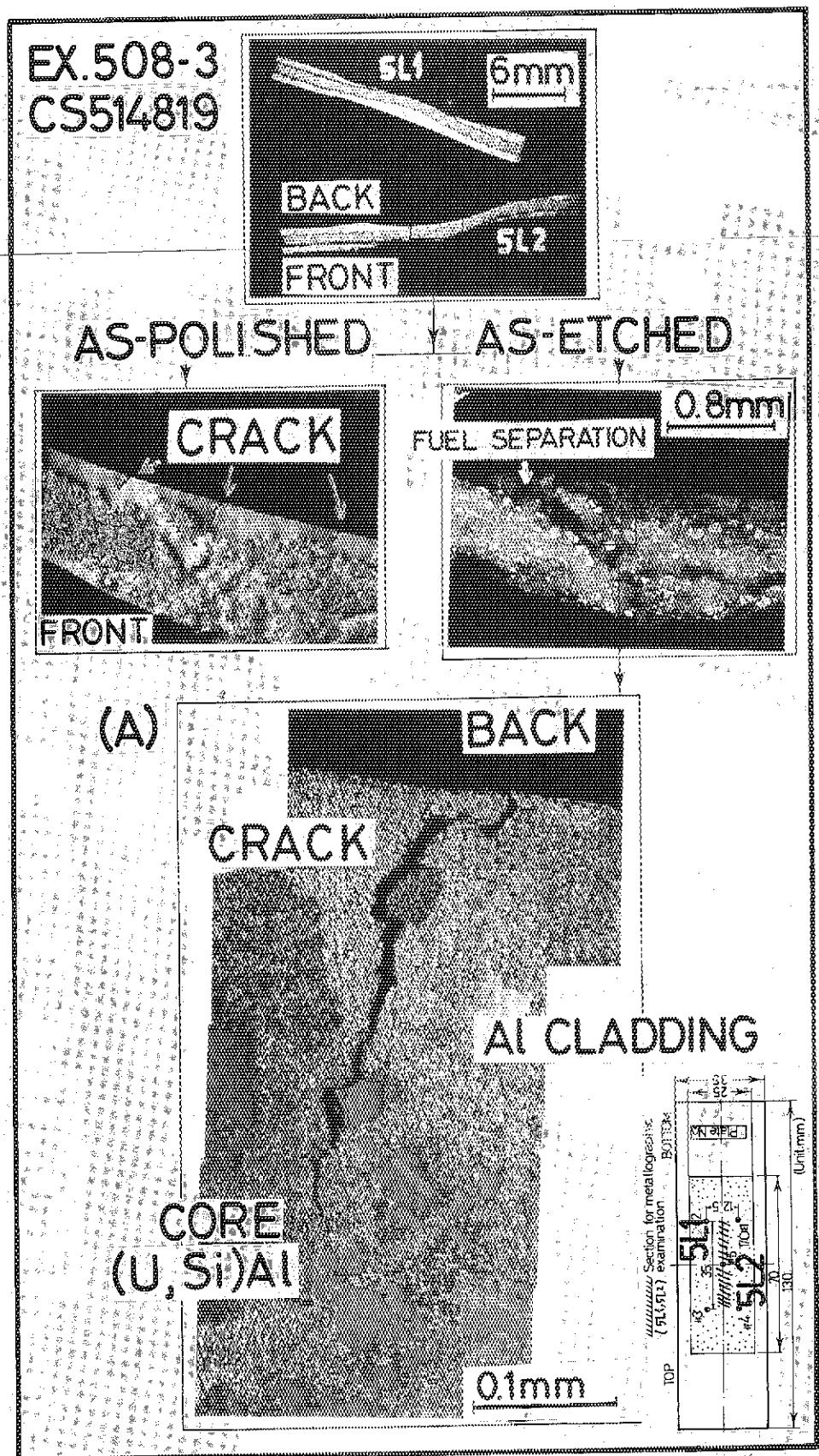


Photo. 3.3.5 Condition of three cracks observed in the axial mid location of specimen 5L2. Lengths of observed cracks are 0.08, 0.13, and 0.31mm, respectively. Greatest cracking is shown in the picture (A).

**Ex. 508-3
CS514819**

Section for metallographic
(Sp. 5L2) examination

BOTTOM

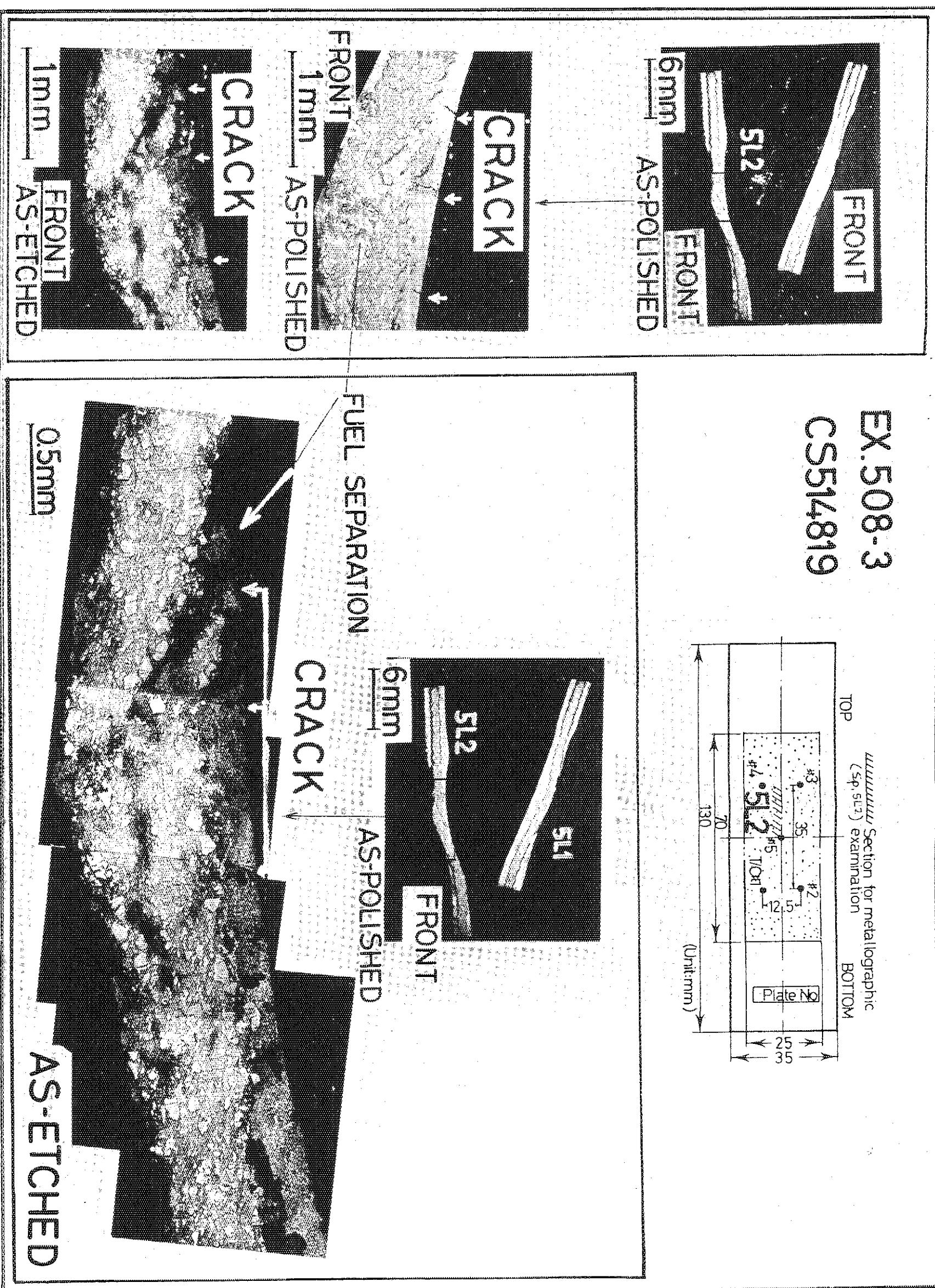
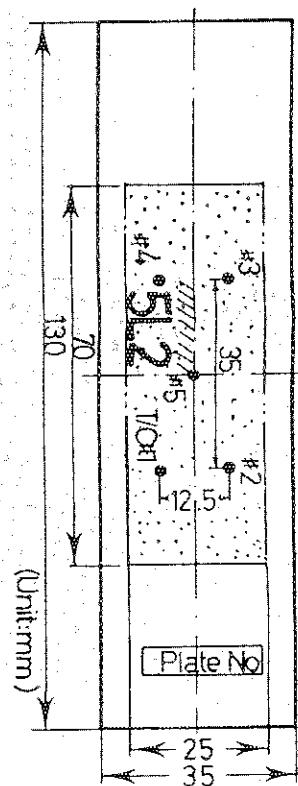


Photo. 3.3.6 Separated U₃Si₂ fuels at axial mid location of the specimen 5L2, where thickness of aluminum cladding was very thin and cladding cracks were opened at plate edge.

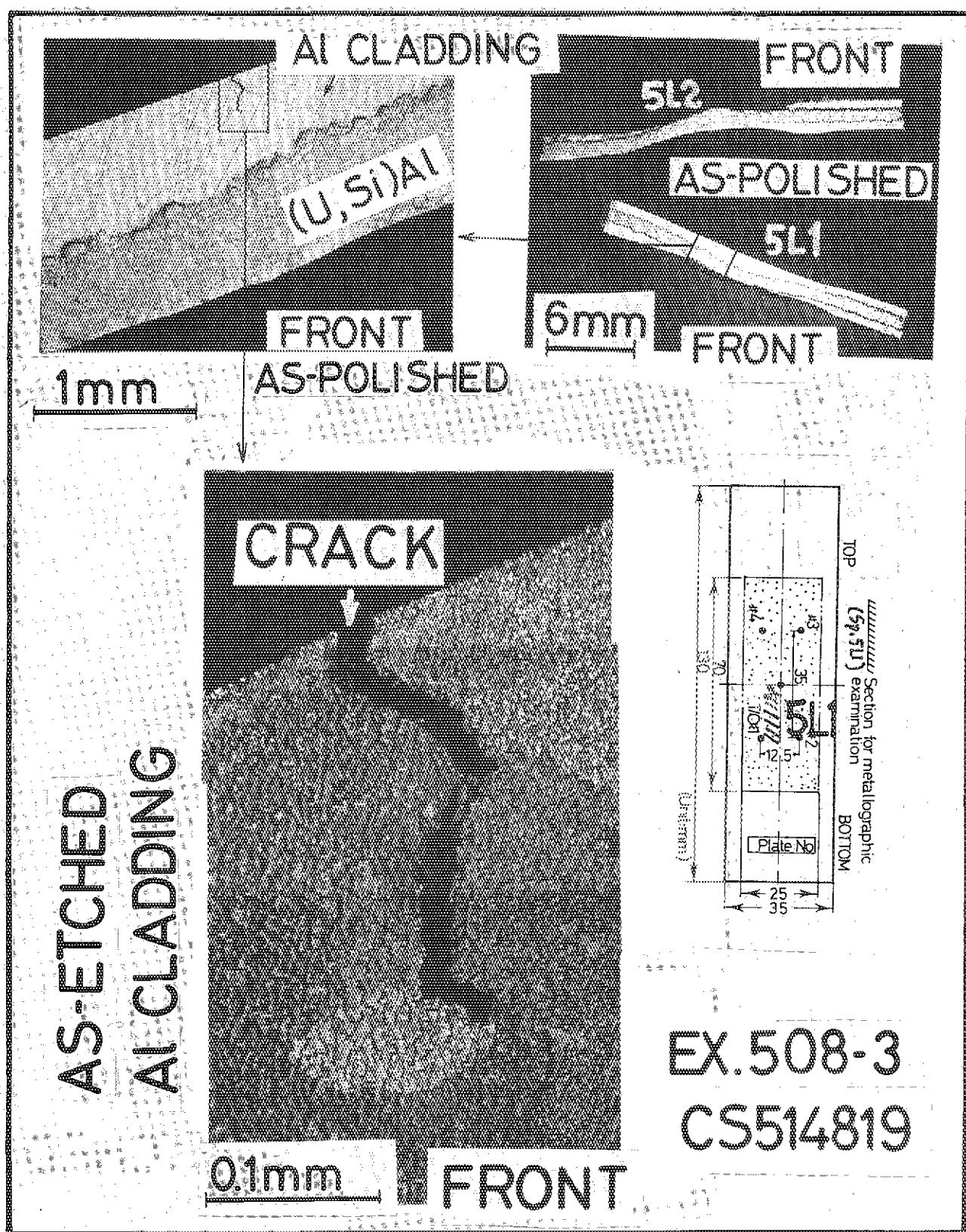
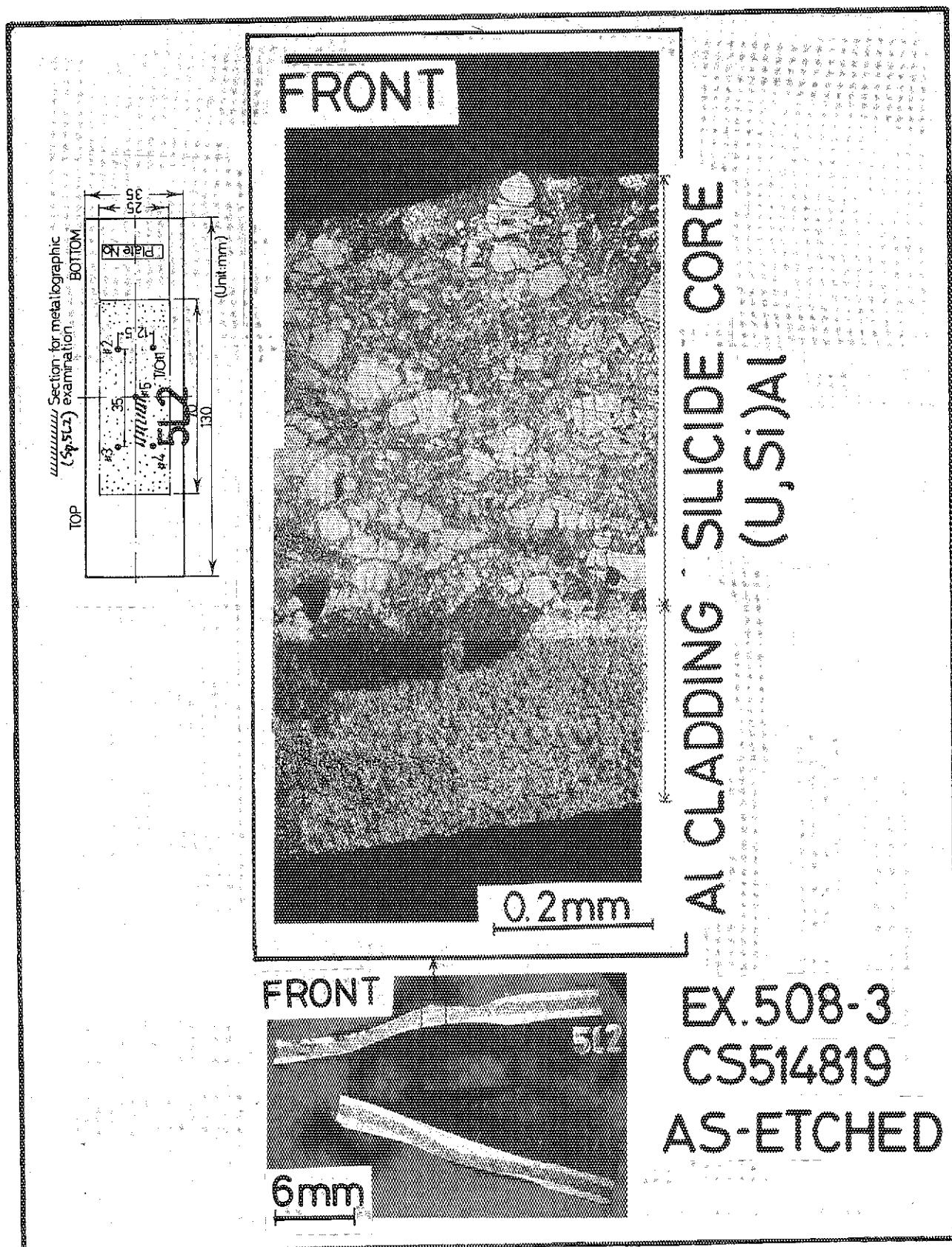


Photo. 3.3.7 Incipient crack of the cladding observed in the specimen 5L1. Approximate length of crack was 0.03mm.



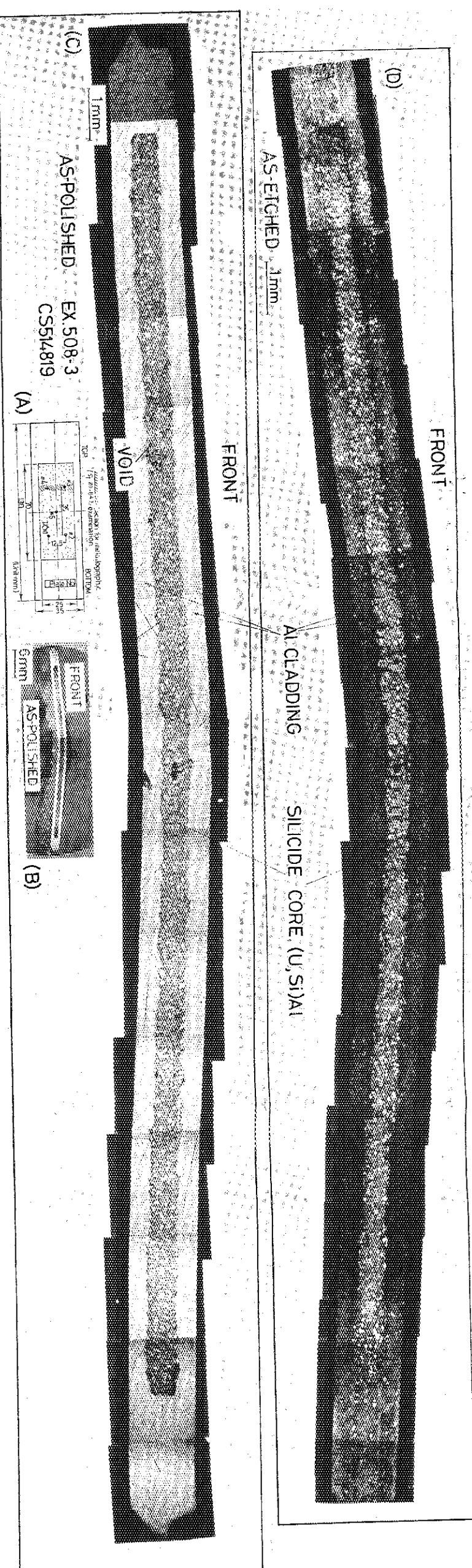


Photo. 3.3.9 As-polished (bottom) and as-etched (top) microphotographs of specimen BT cut from transversal direction of the fuel plate, pulse irradiated 116 cal/g•fuel in Ex. 508-3. (A) map, (B) macroscopic photograph, (C) as-polished photograph and (D) etched photograph.

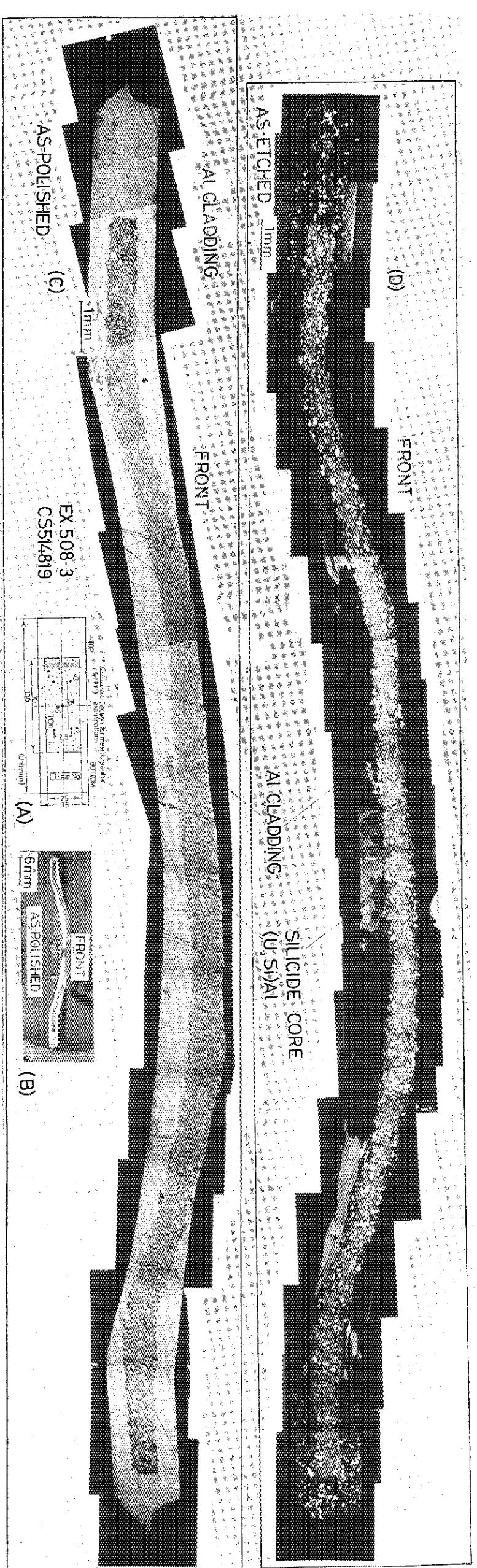


Photo. 3.3.10 As-polished (bottom) and as-etched (top) microphotographs cut transversally including T/C's of #3 and #4 (peak temperatures were between 393 and 414°C), pulse irradiated at 116 cal/g•fuel in Ex. 508-3.

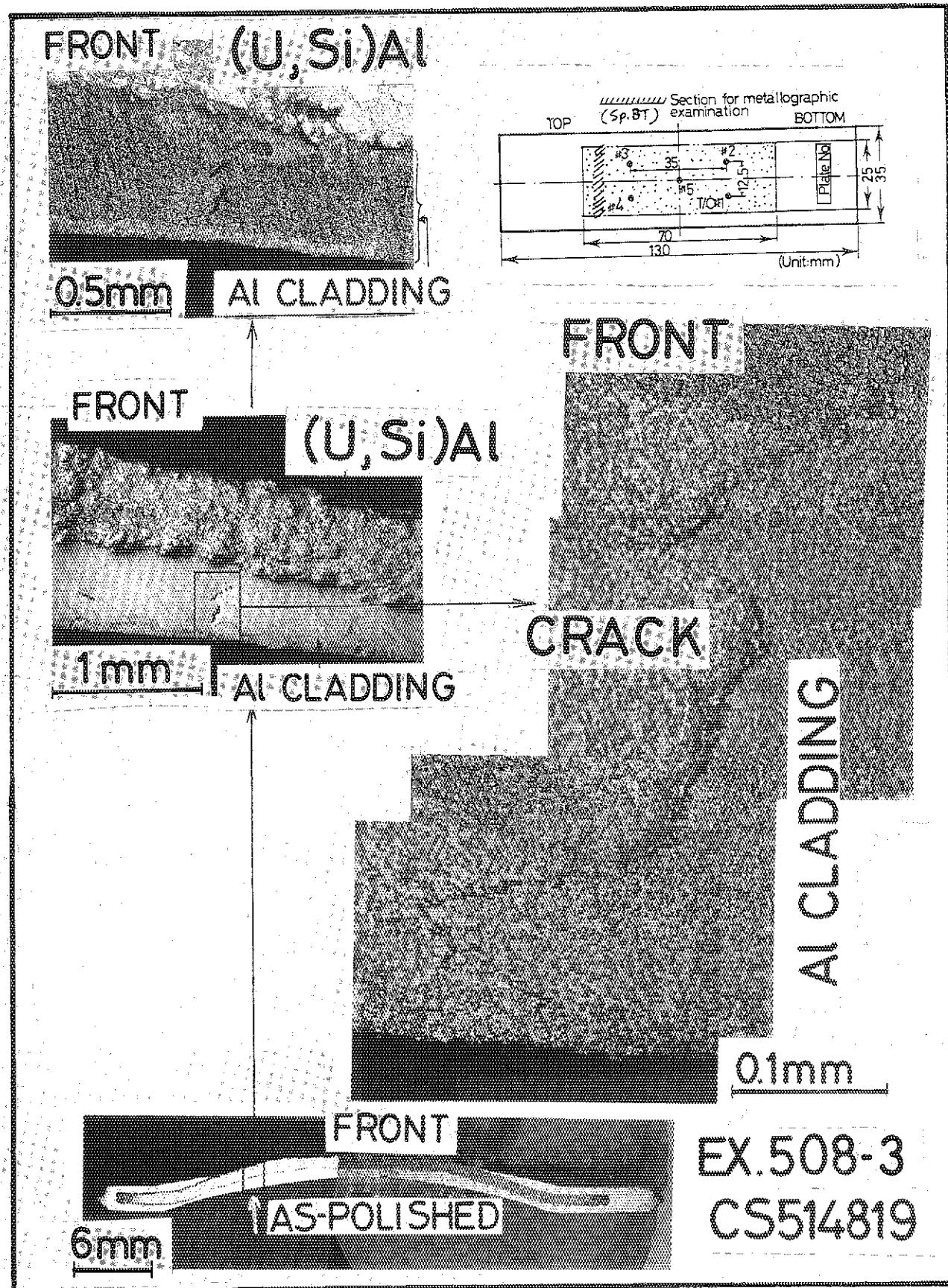
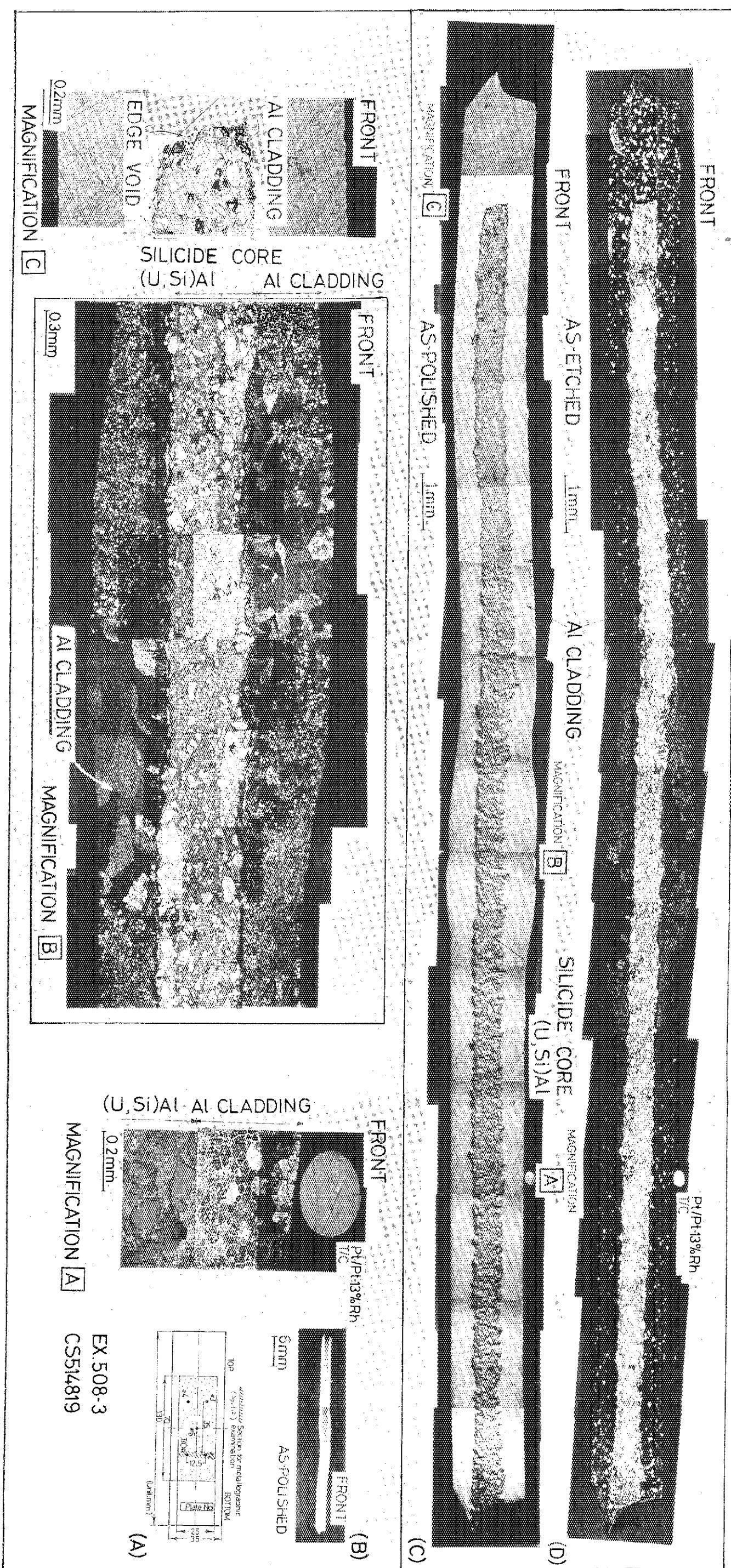


Photo. 3.3.11 Magnification of the previous photograph, showing the existence of incipient crack.



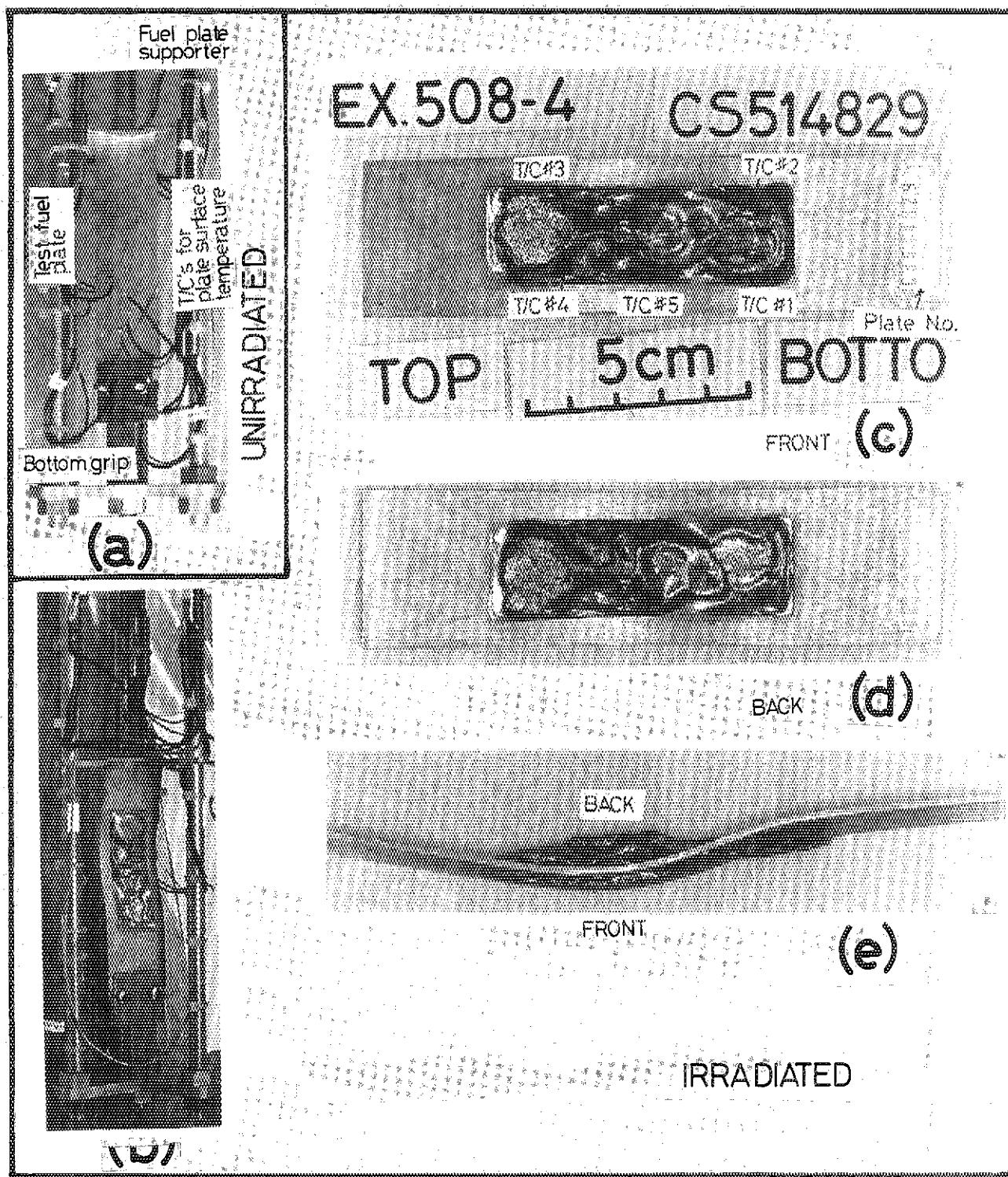


Photo. 3.4.1 Disassembled condition of the fuel plate pulsed at 154 cal/g·fuel. (a) unirradiated plate fuel, (b) disassembled plate fuel together with supporters from the irradiation capsule (c) front surface condition of the plate fuel, where five T/C's attached to are worked properly and discoloration occurred overall the plate surface. Fuel core deformed much, (c) back surface of the plate showing a significant deformation, (e) variation of plate thickness.

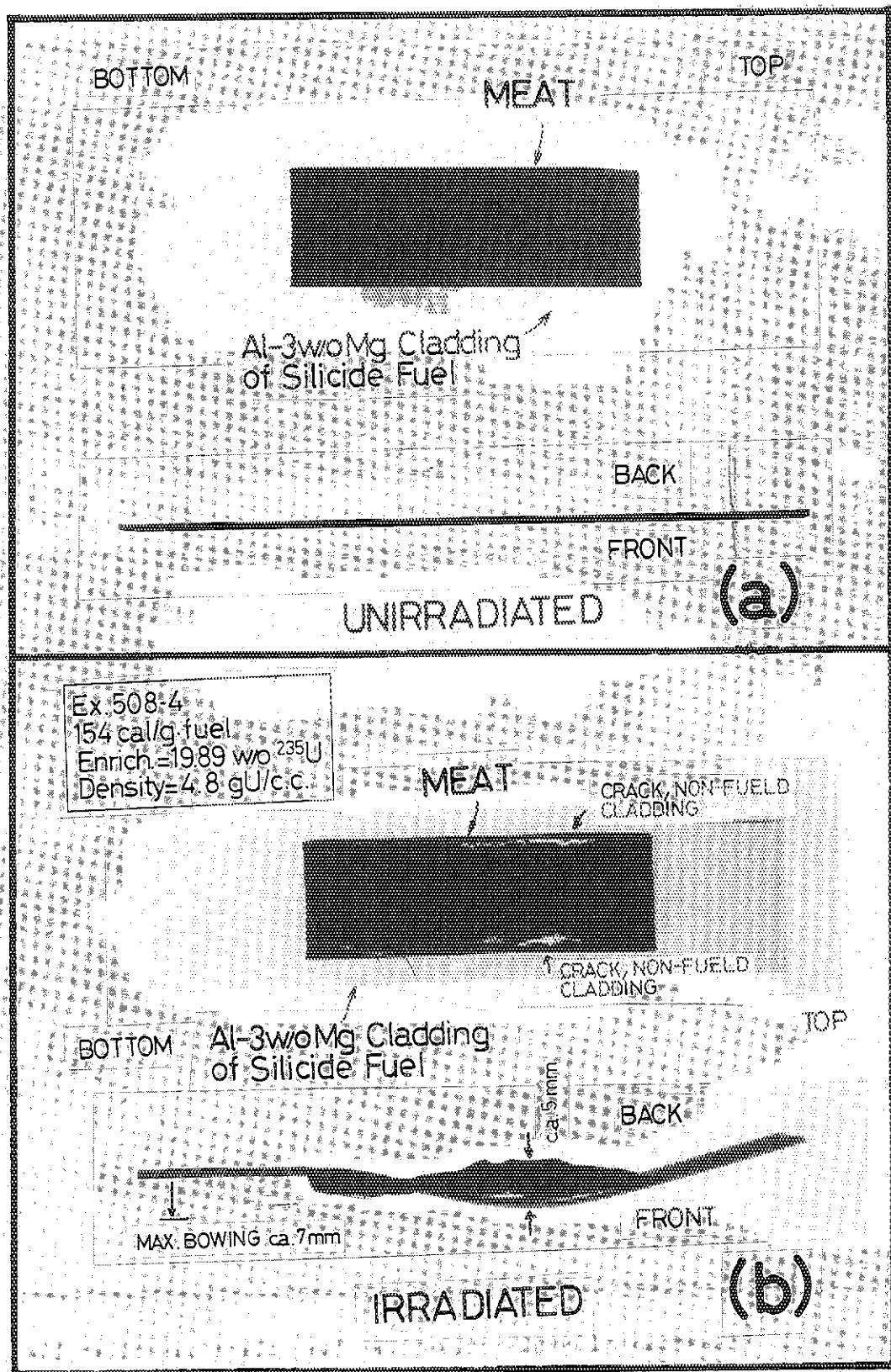


Photo. 3.4.2 X-ray photographs of the silicide plate fuel: (A) before pulse and (B) after pulse of 154 cal/g·fuel in Ex.508-3, (Fuel enrichment, 19.89w/o and density 4.8 gU/cm³), showing that due to irradiation the plate bottom bowed significantly and deformed towards back. There existed large crackings in the fuel core.

C5514829
508-4

AS-ETCHED (Before Repolishing)

FRONTIERS

**AL
GLADING**

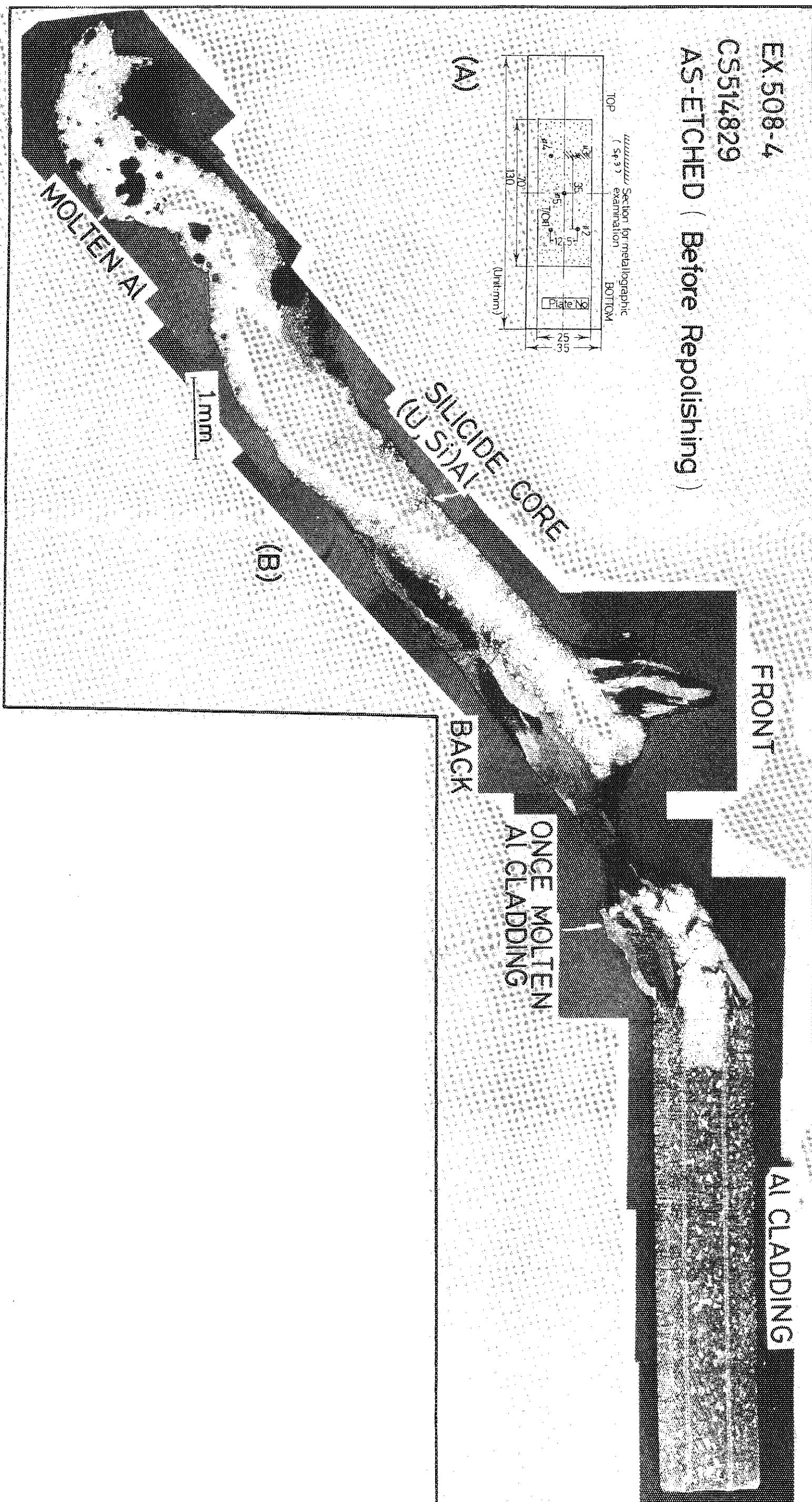


Photo. 3.4.4 As-etched condition of the specimen 3 previously shown in photograph.

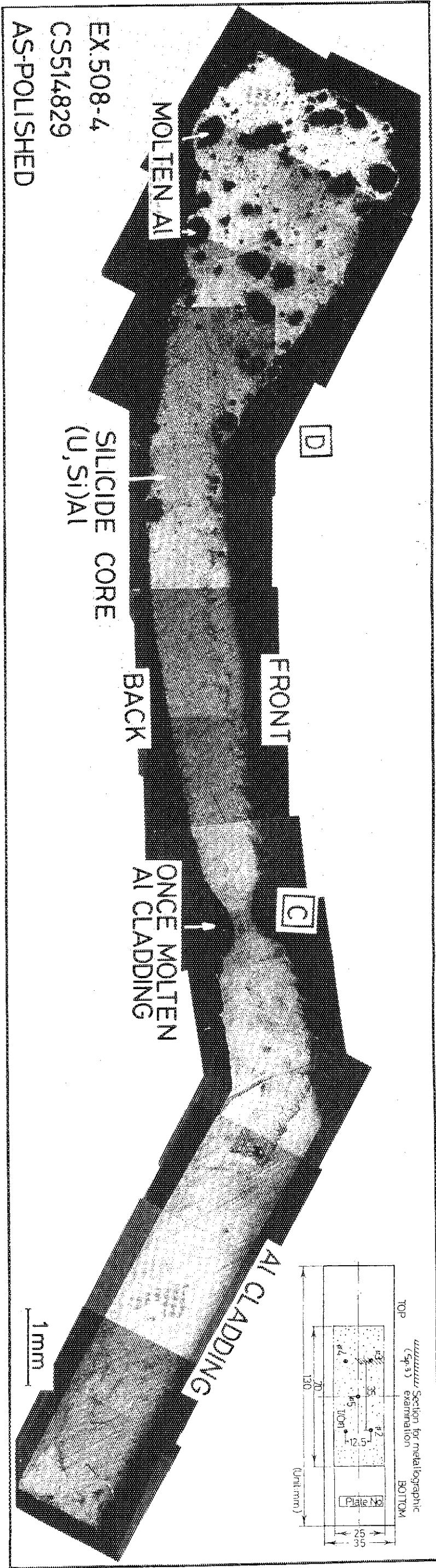
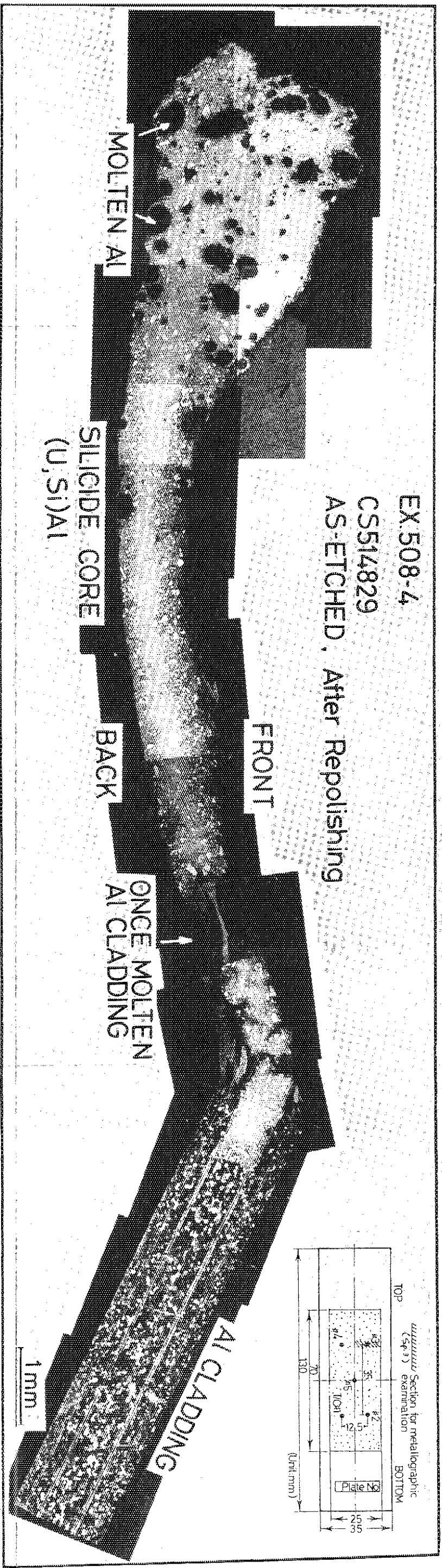
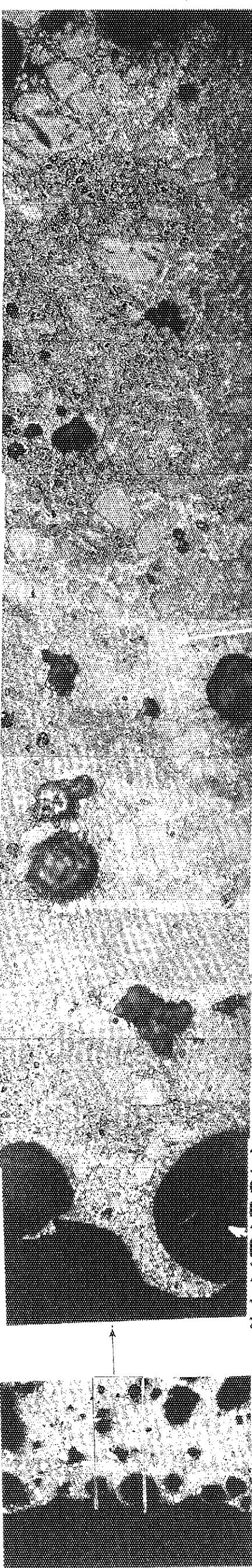


Photo. 3.4.5 Repolished specimen 3 by a few mm from Photo. 3.4.3. As-polished condition.

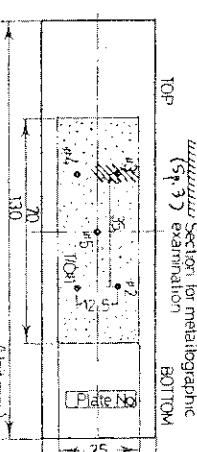
Photo. 3.4.6 As-etched condition of the Photo. 3.4.5.

FRONT
SLICIDE CORE
 $(U, Si)Al$

MOLTEN Al
BACK



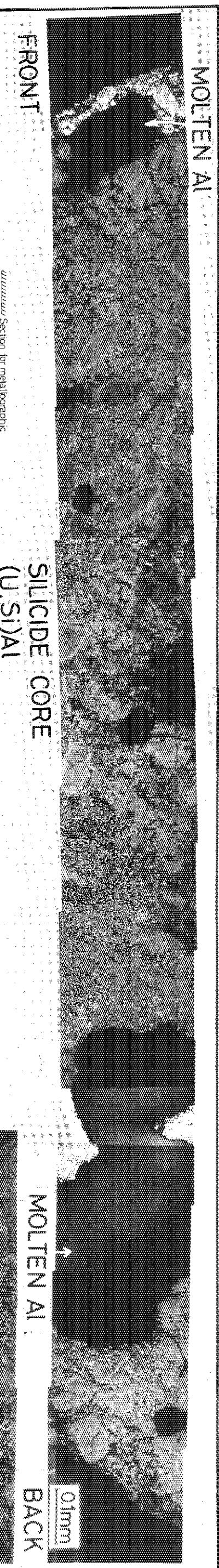
EX.508-4
CS514829
AS-ETCHED



0.2mm

1mm

Photo. 3.4.7 As-etched magnification of \square in the photograph 3.4.5, where specimen 3 of 508-4 (154 cal/g•fuel) was in the neighbour of T/C #3.



MOLTEN Al
BACK

FRONT
MOLTEN Al

Section for metallographic examination

SLICIDE CORE
 $(U, Si)Al$

examination

TOP

BOTTOM

EX.508-4	130
CS514829	10
AS-ETCHED	10 (Unit:mm)

Photo. 3.4.8 As-etched magnification of \square in the photograph 3.4.5, where specimen 3 of 508-4 (154 cal/g•fuel) was in the neighbour of T/C #3.

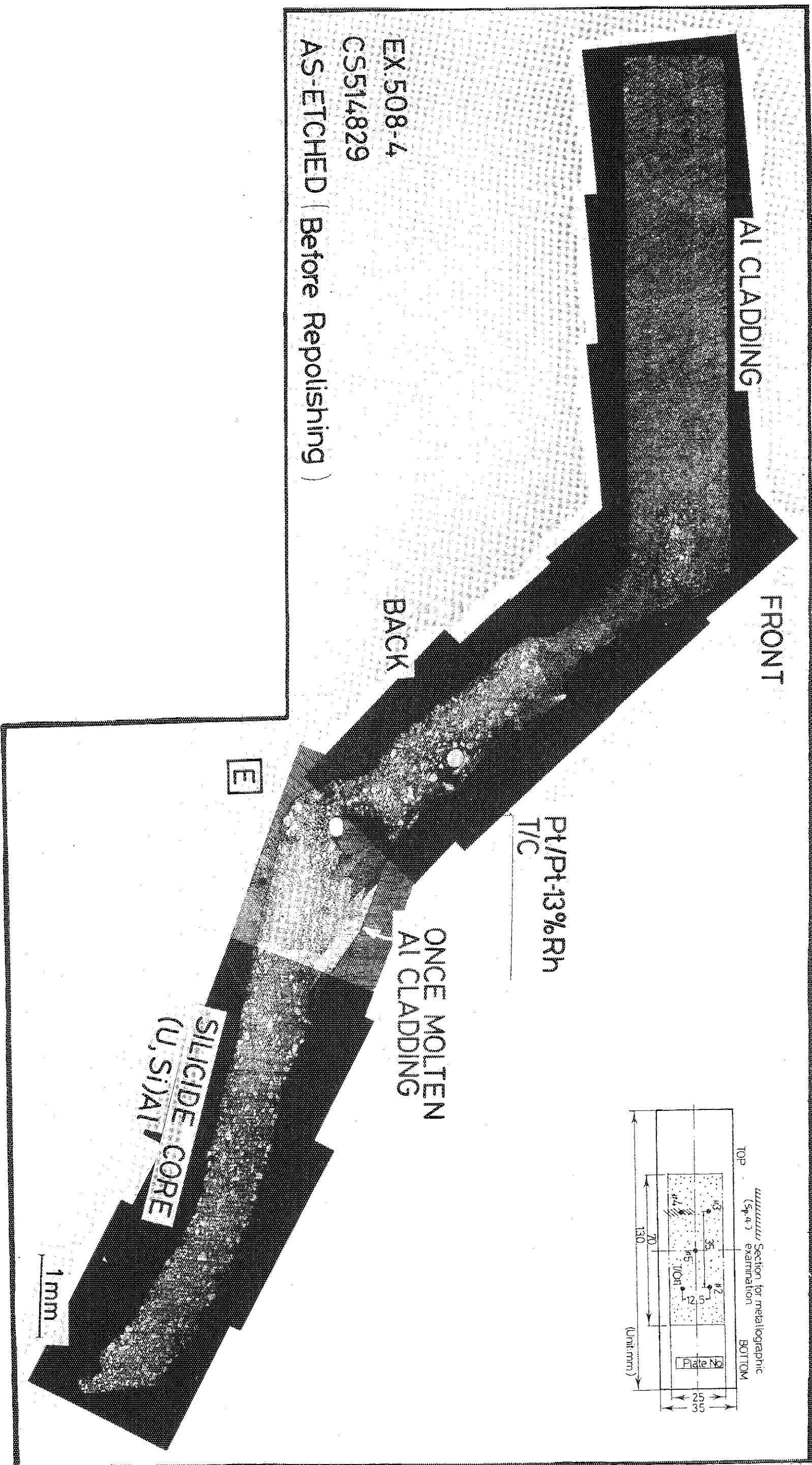


Photo. 3.4.9 As-etched microphotograph cut transversally from the specimen 4 including T/C #4: measured temperature was 881°C at 154 cal/g·fuel in Ex.508-4. Note that Pt/Pt-13%Rh thermocouples were relocated from cladding outer surface to the fuel core.

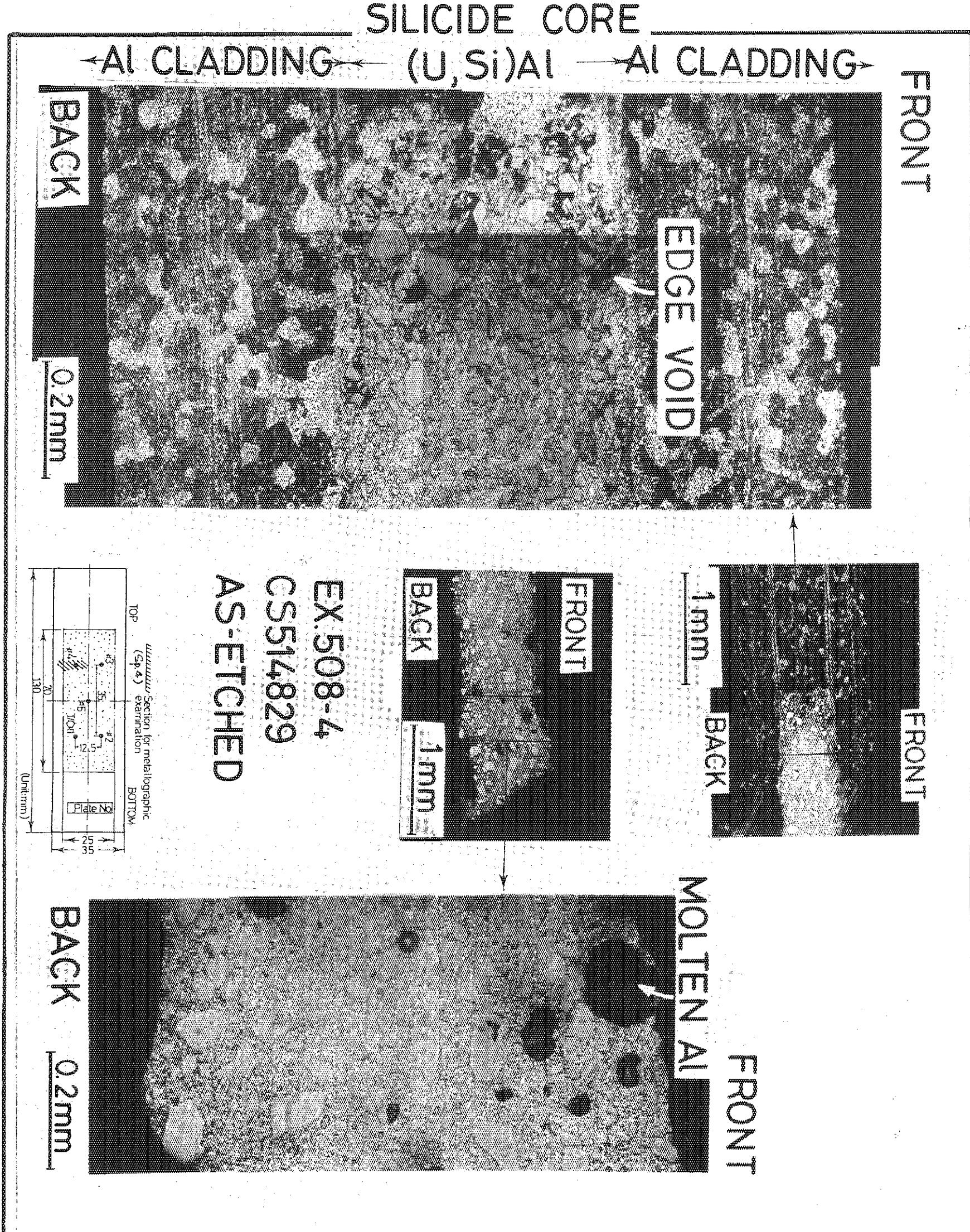
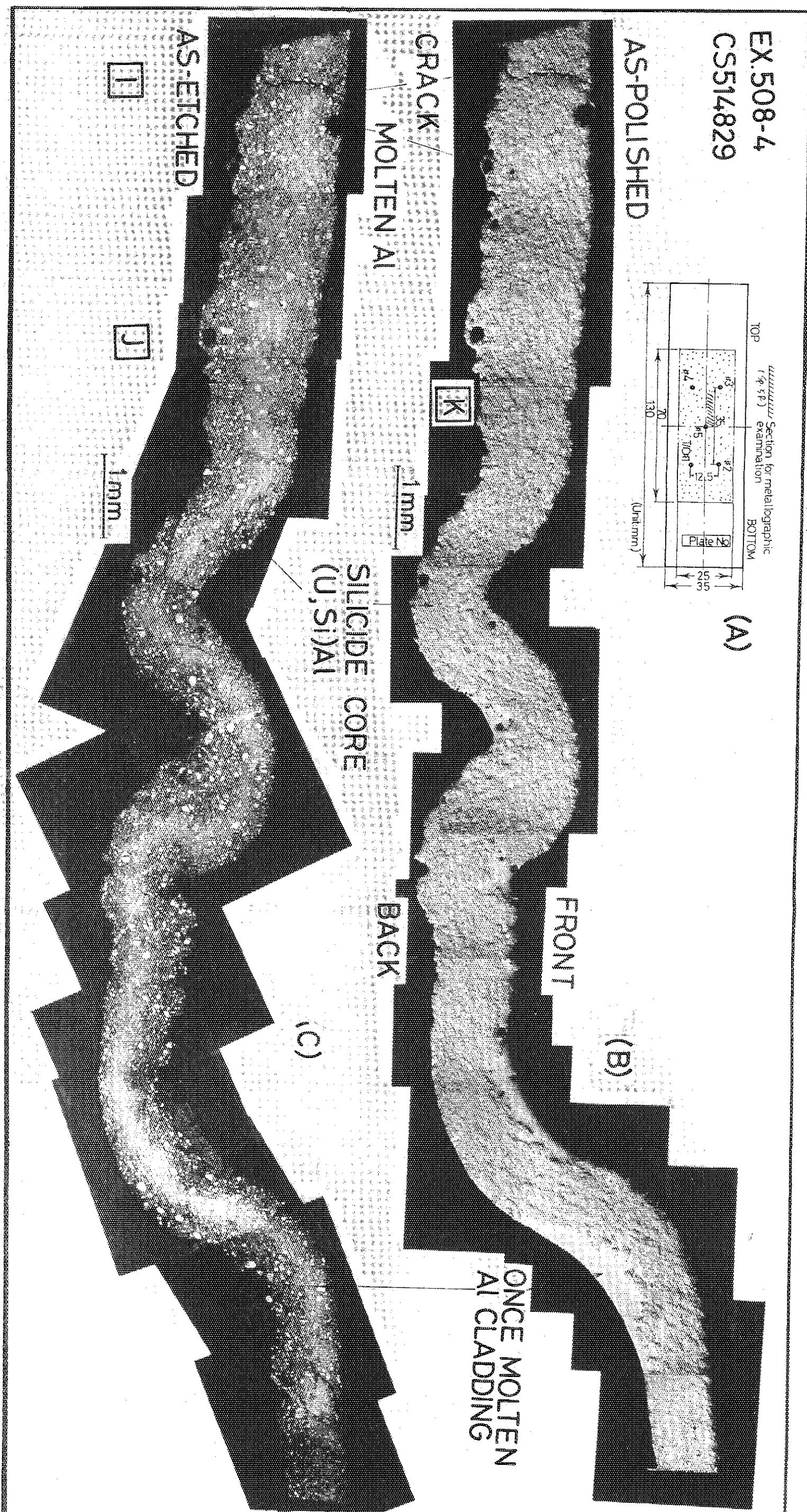


Photo. 3.4.11 Magnified **G** and **H** of the photo. 3.4.10, shown previously.



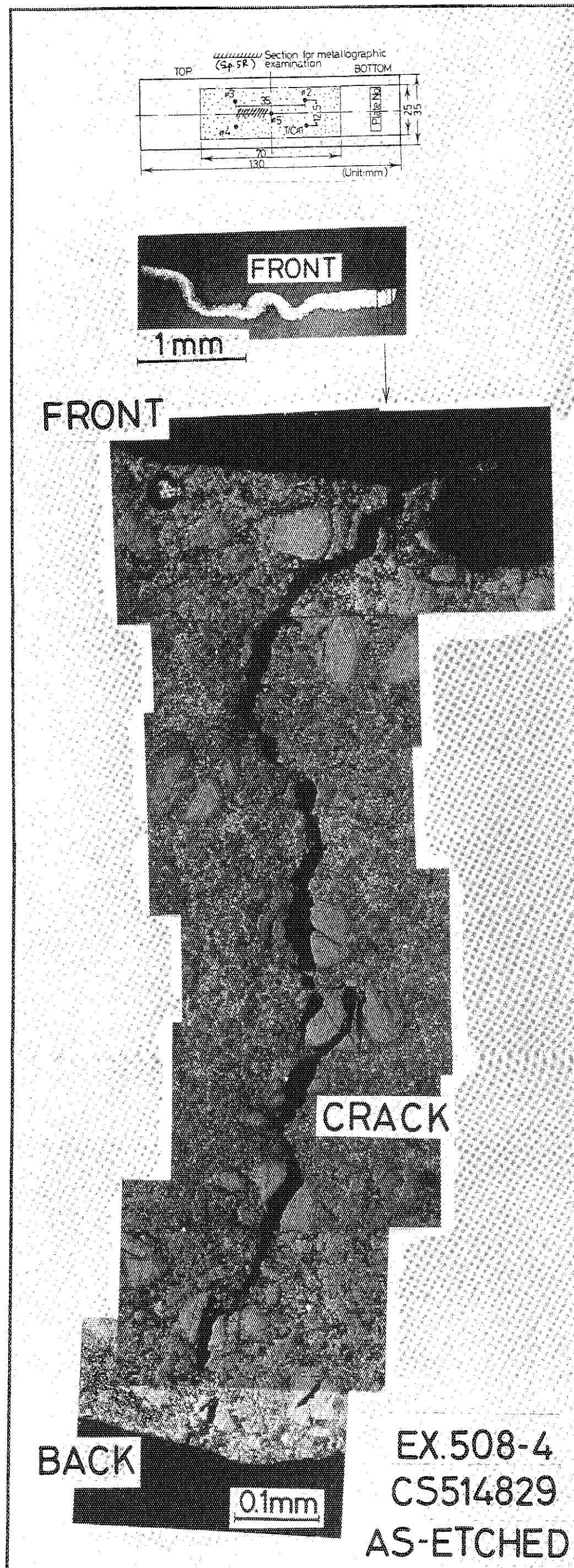


Photo. 3.4.13 Magnified wall-through intergranular cracking shown previously in the photo.
3.4.12 at location ①.

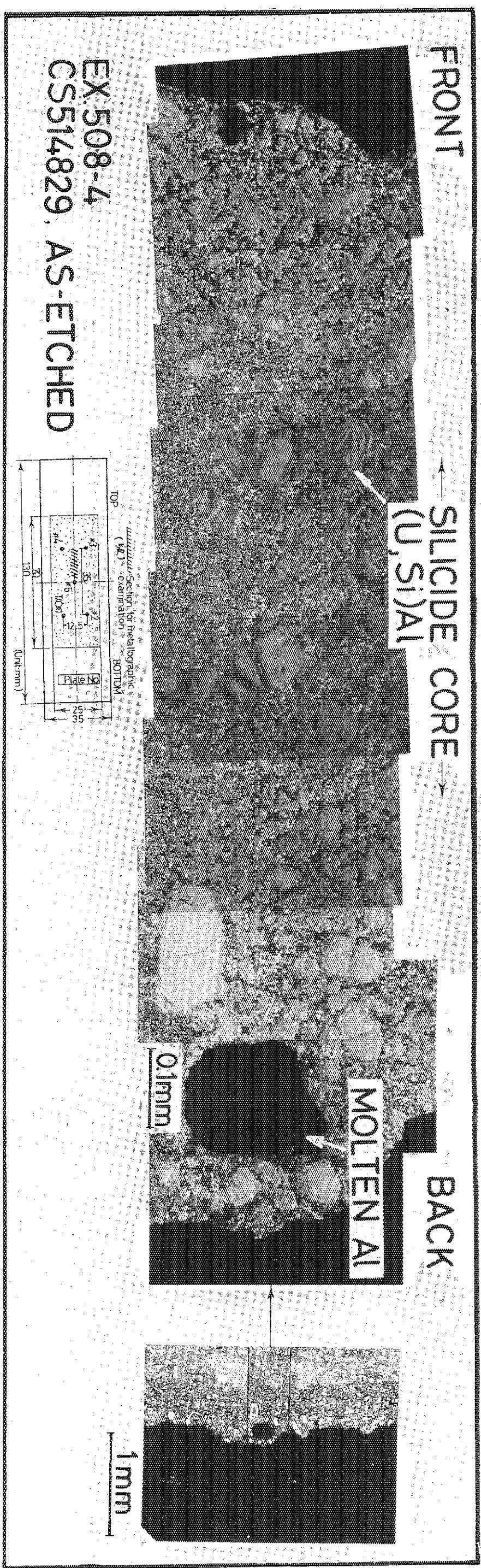
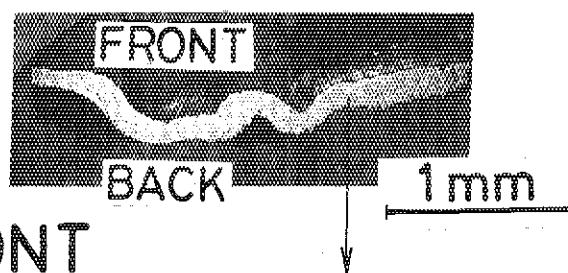
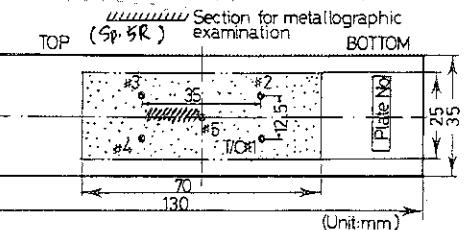


Photo. 3.4.14 Magnified location of the molten fuel shown previously as **J** in the photo.
3.4.12.

**EX.508-4
CS514829
AS-ETCHED**



FRONT

(U,Si)Al

SILICIDE CORE

Al

0.2mm

BACK

Photo. 3.4.15 Magnified location of the molten fuel shown previously as **K** in the photo. 3.4.12.

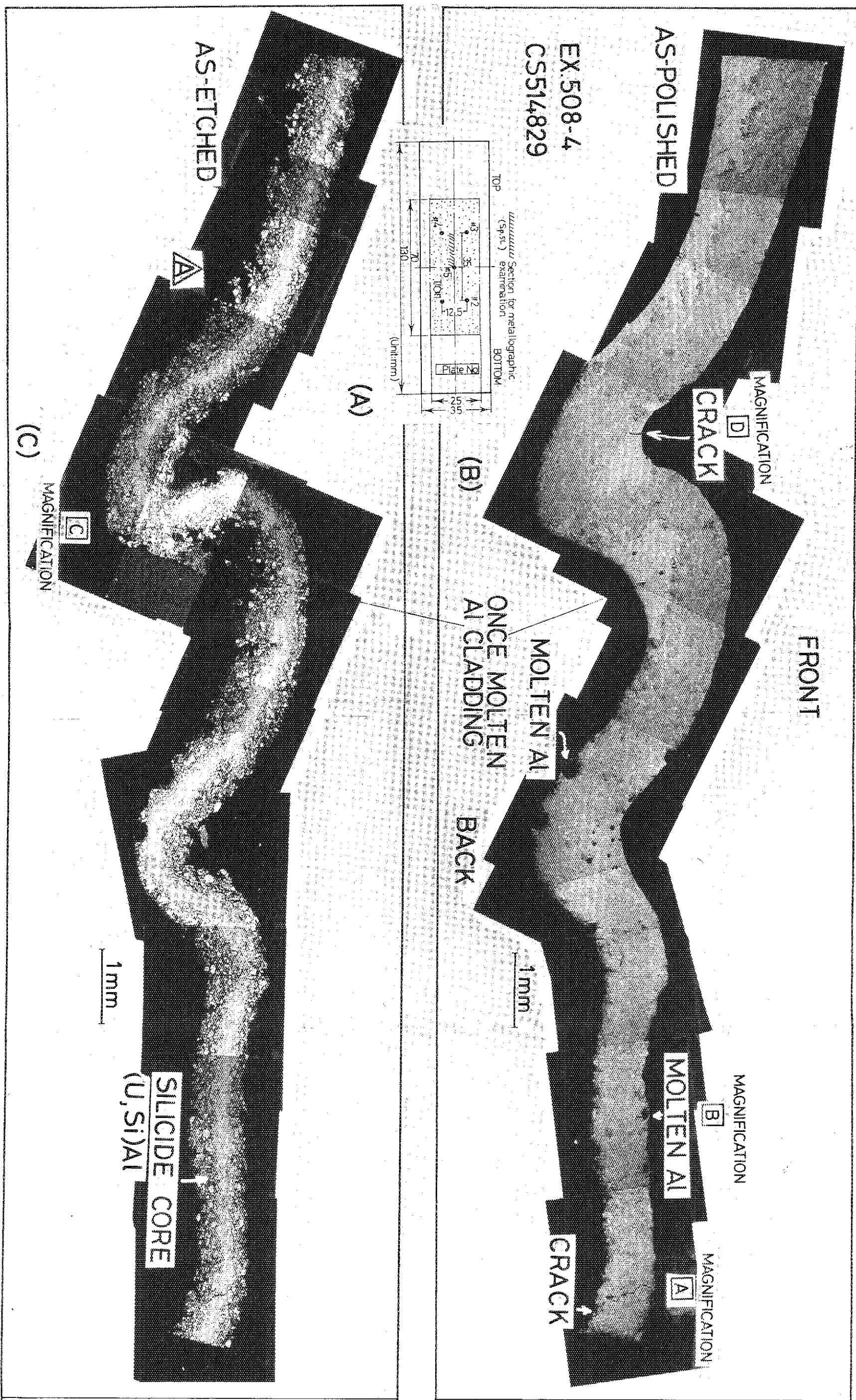


Photo. 3.4.16 As-polished (top) and as-etched (bottom) microphotographs of specimen 5L, cut longitudinally including T/C #5 (peak temperature 957°C), pulse irradiated with energy deposition of 154 cal/g/fuel in Ex.508-4.

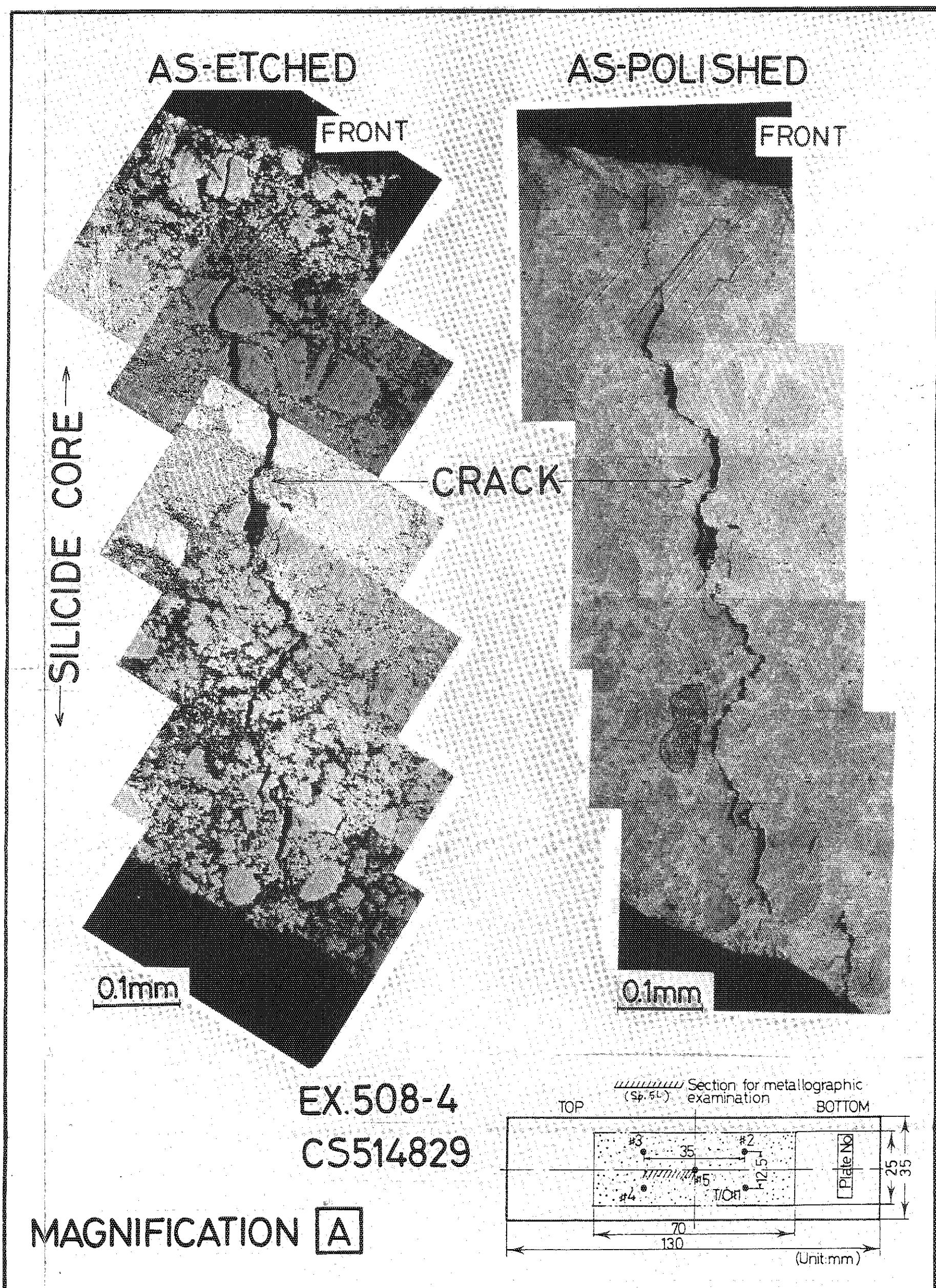
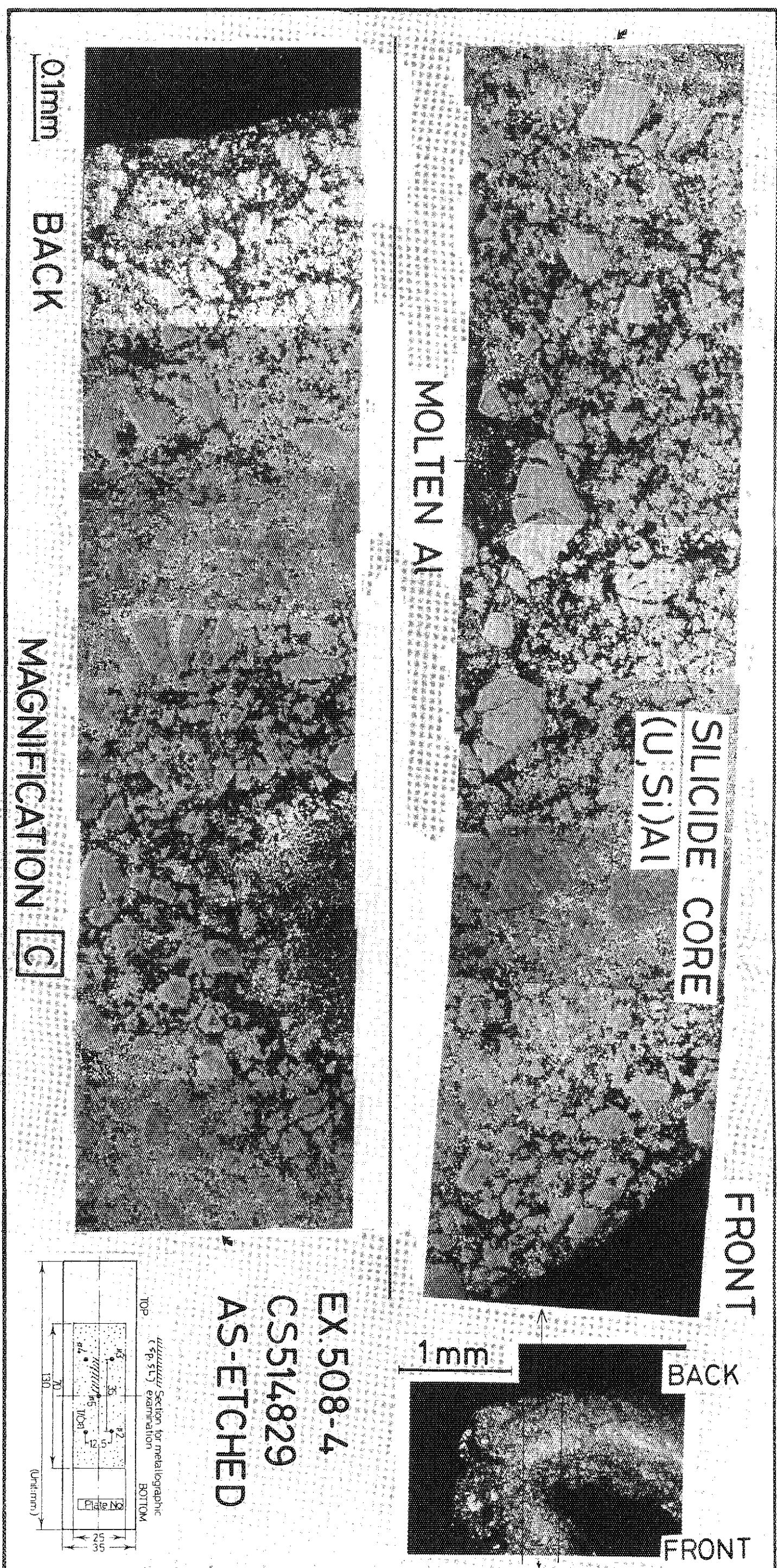


Photo. 3.4.17 Magnification of A in the photograph 3.4.16 showing the existence of wall-through cracking.



EX.508-4
CS514829

AS-POLISHED

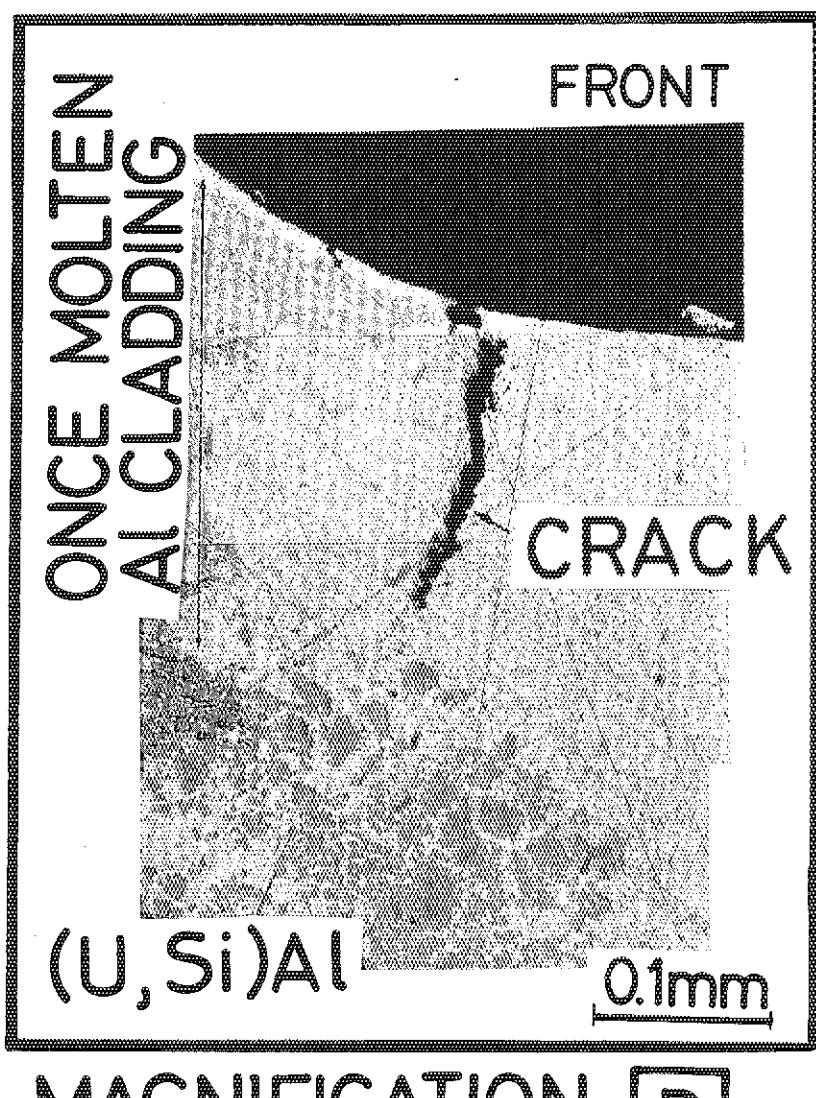
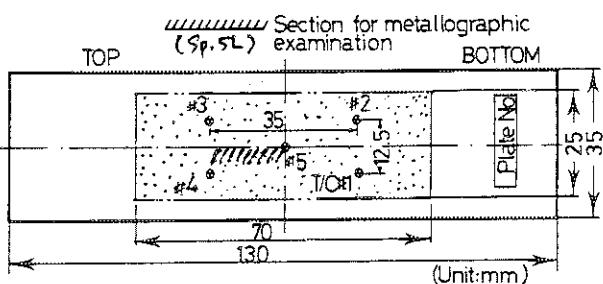
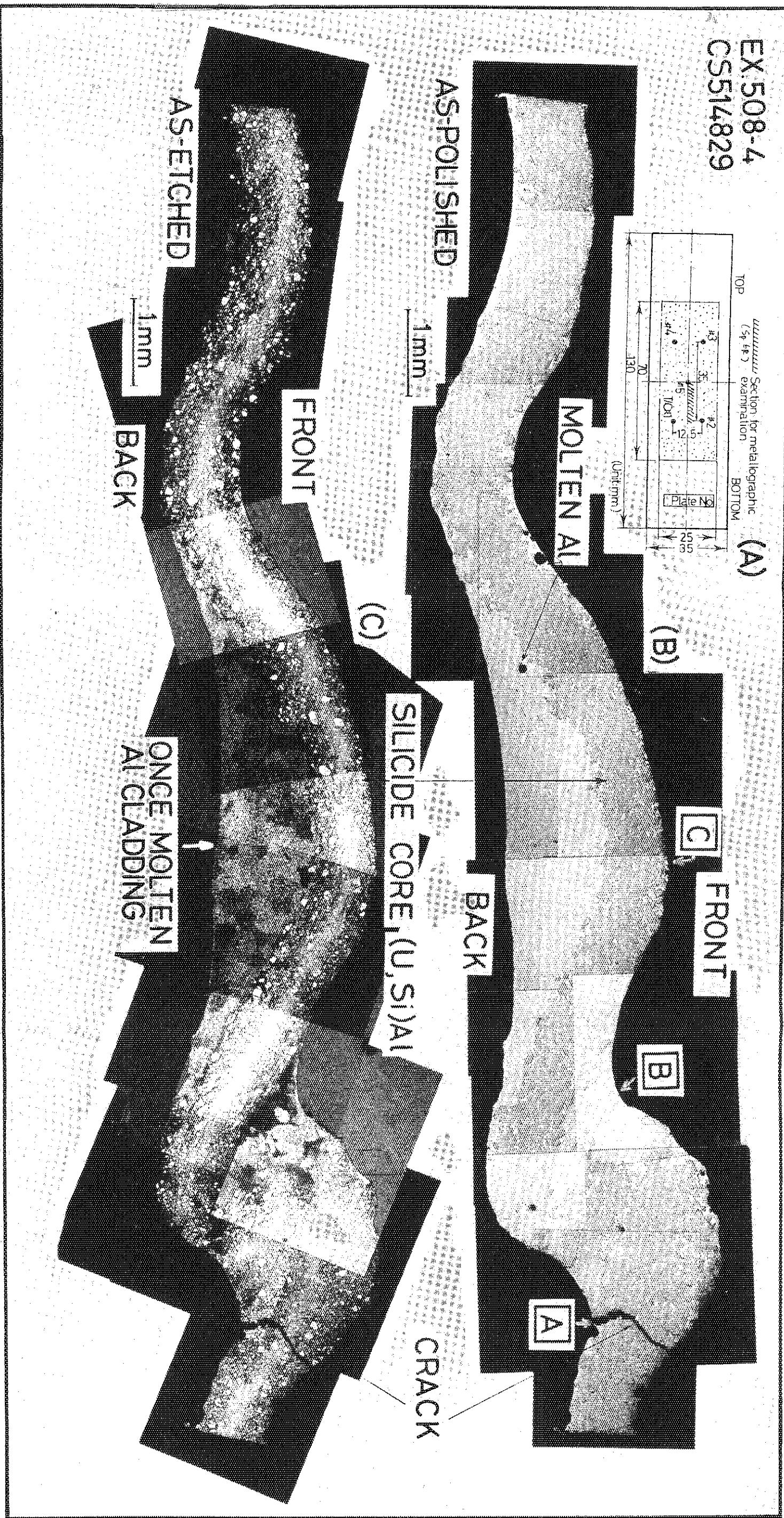


Photo. 3.4.20 Magnification of **D** in photo. 3.4.16 showing the incipient crack by length of about 0.17mm. No trace of oxidation at cladding surface.



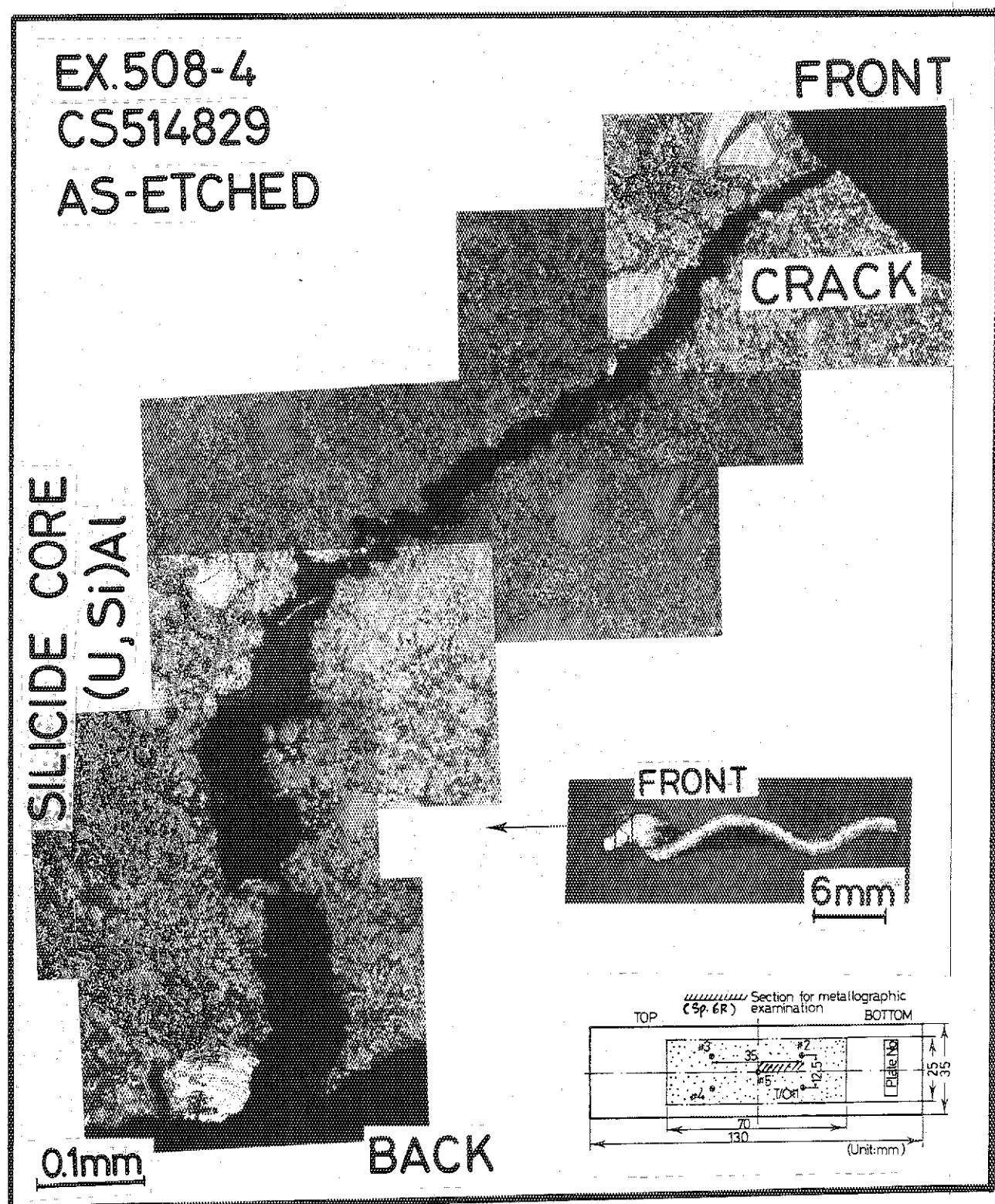


Photo. 3.4.22 Magnified location of the wall-through crack in photo. 3.4.12.

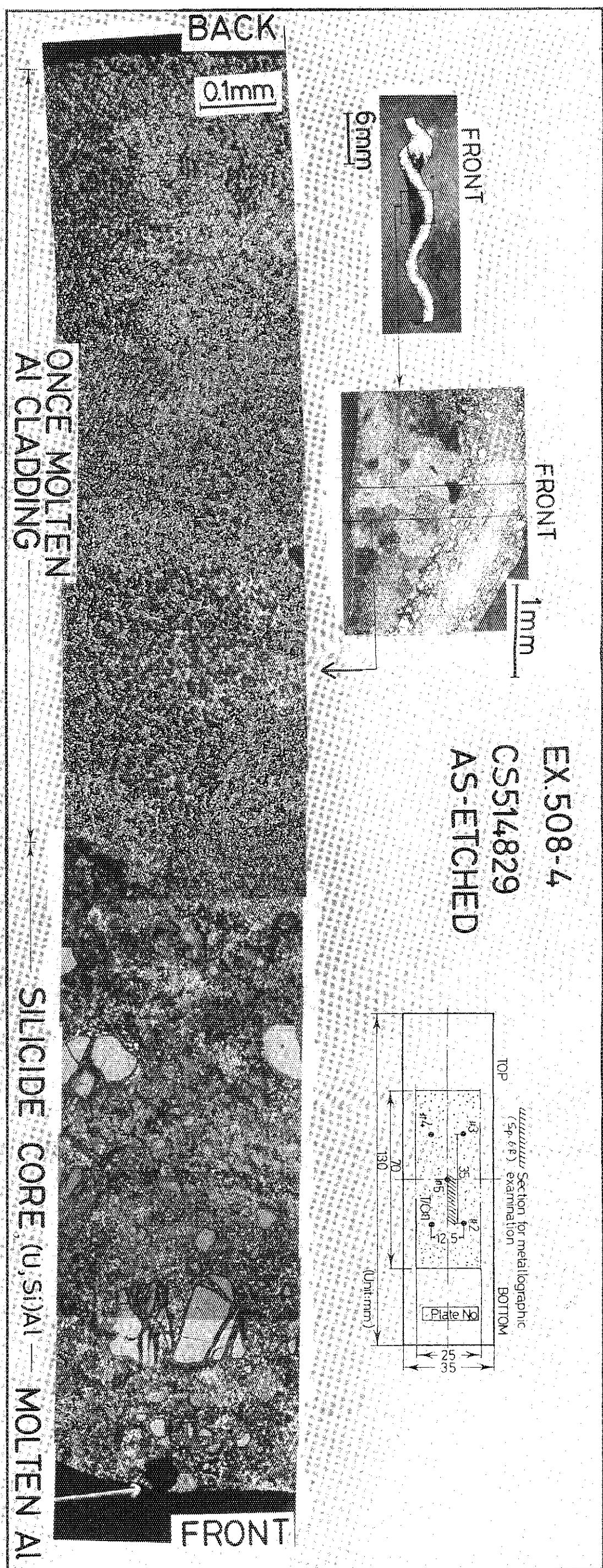


Photo. 3.4.23 Magnification of the location C in photo. 3.4.21.

EX.508-4
CS514829
AS-POLISHED

FRONT
BACK
CRACK

ONCE MOLTEN
Al CLADDING

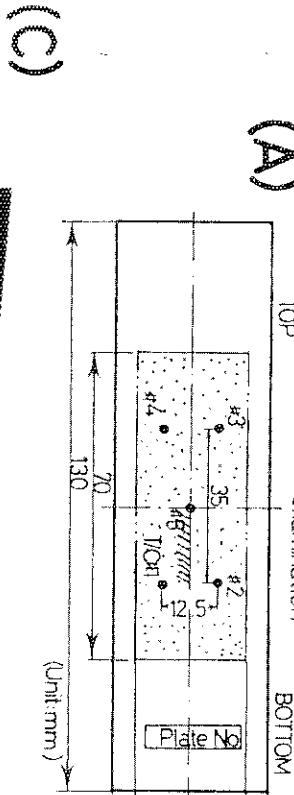
SILICIDE CORE
(U, Si)Al

0.8mm



FRONT
CRACK

ONCE MOLTEN
Al CLADDING



BACK

EX.508-4
CS514829, AS-ETCHED
SILICIDE CORE
(U, Si)Al

0.8mm

Photo. 3.4.24 As-polished (top) and as-etched (bottom) microphotographs of specimen 6R, cut longitudinally at the silicide plate center including T/C #5 (957°C) and middle of T/C #1 (971°C) and that of T/C #2 (893°C), pulse irradiated at 154 cal/g•fuel in Ex.508-4.

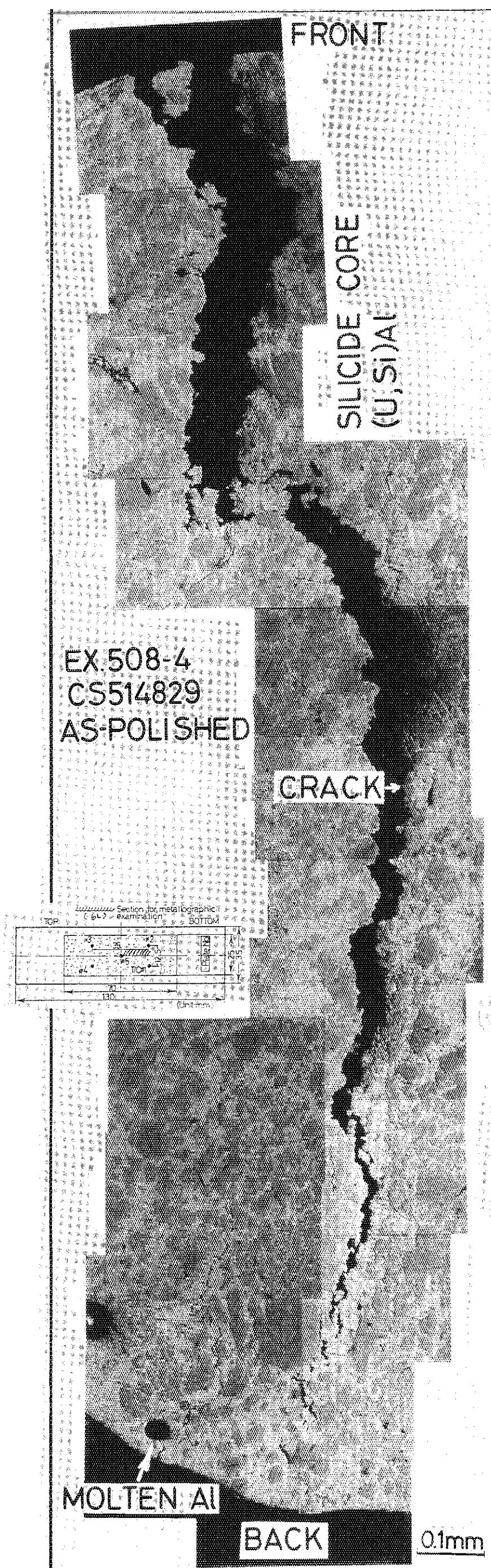


Photo. 3.4.25 Magnified crack observed in the photo. 3.4.24, as polished.

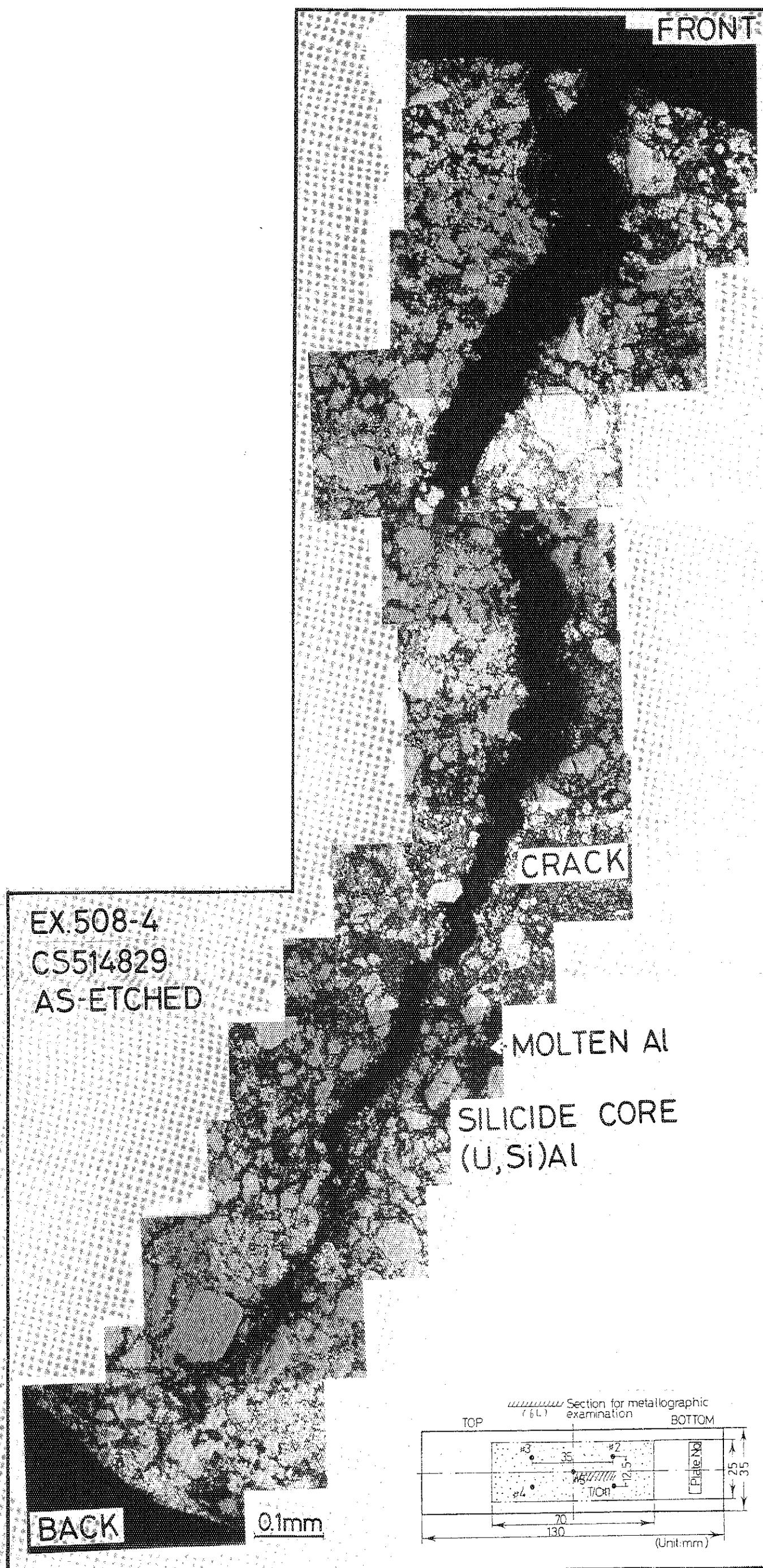


Photo. 3.4.26 Magnified crack observed in the photo. 3.4.24, as-etched.

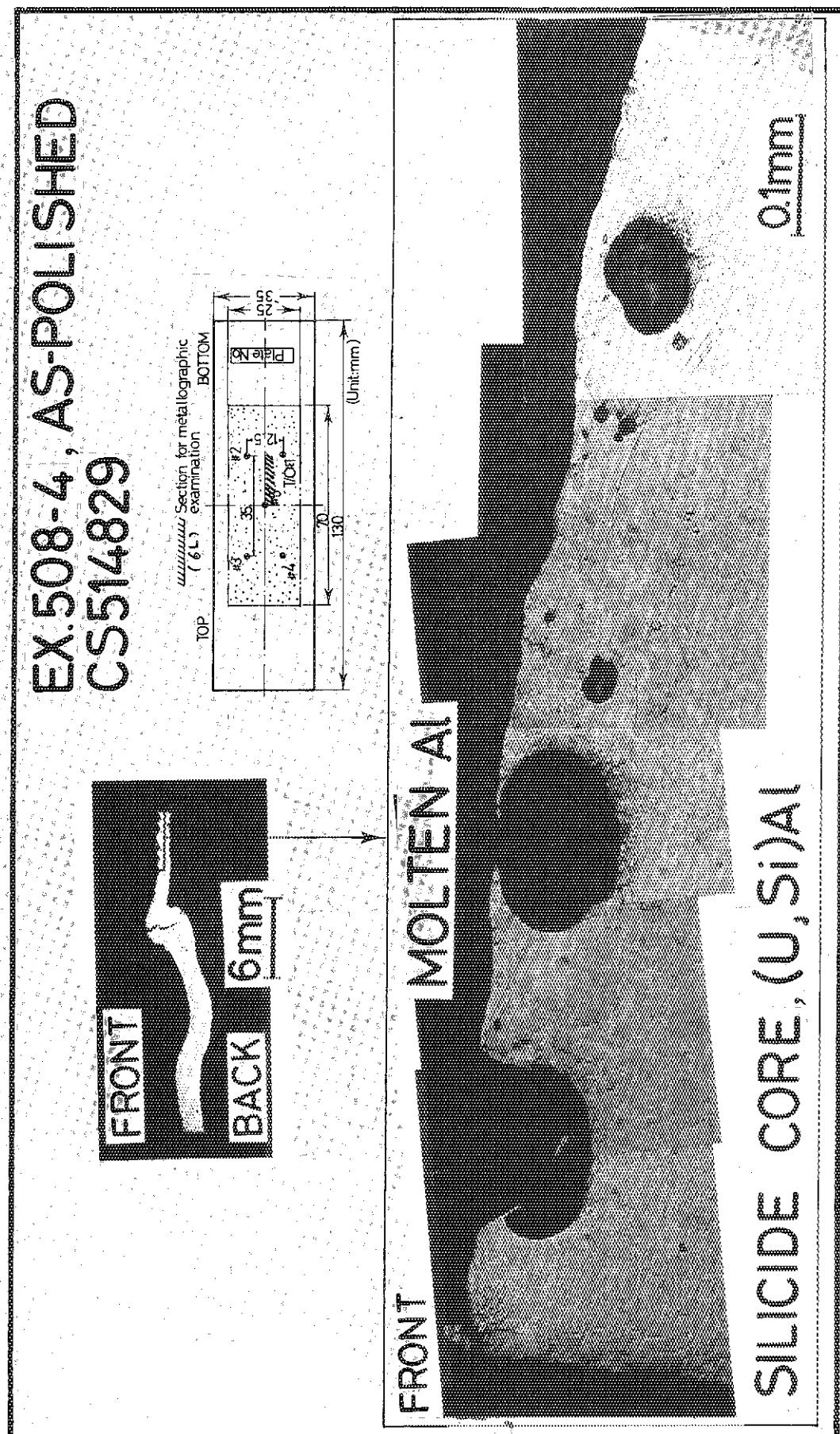


Photo. 3.4.27 Magnified holes in molten aluminum agglomerations located close to T/C #5, where decreased plate thickness was seen.

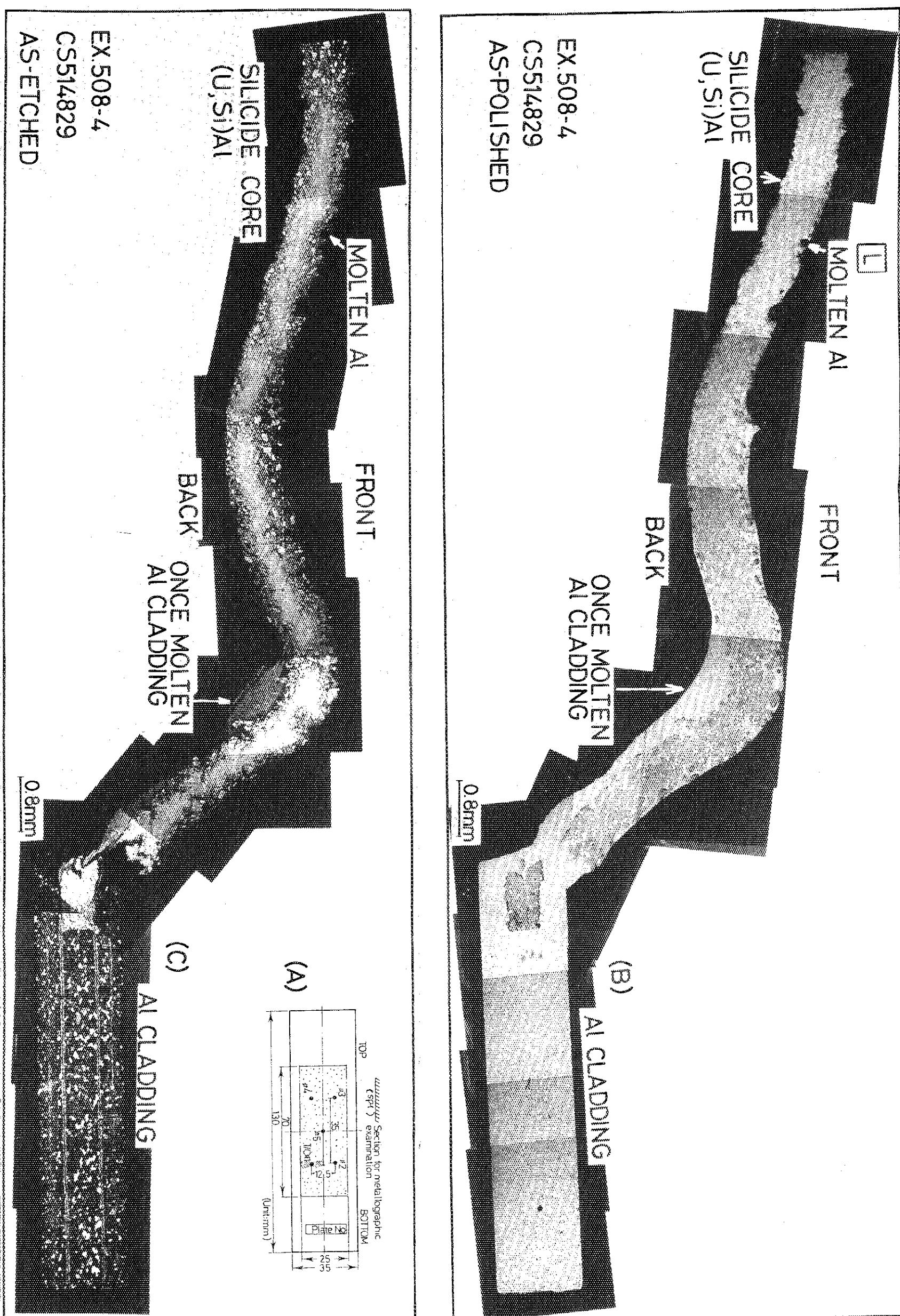


Photo. 3.4.28 As-polished (top) and as-etched (bottom) microphotographs of the silicide plate-type fuel specimen 1 cut transversally including T/C #1 (peak temperature 971°C). This plate was pulsed at 154 cal/g•fuel in Ex.508-4.

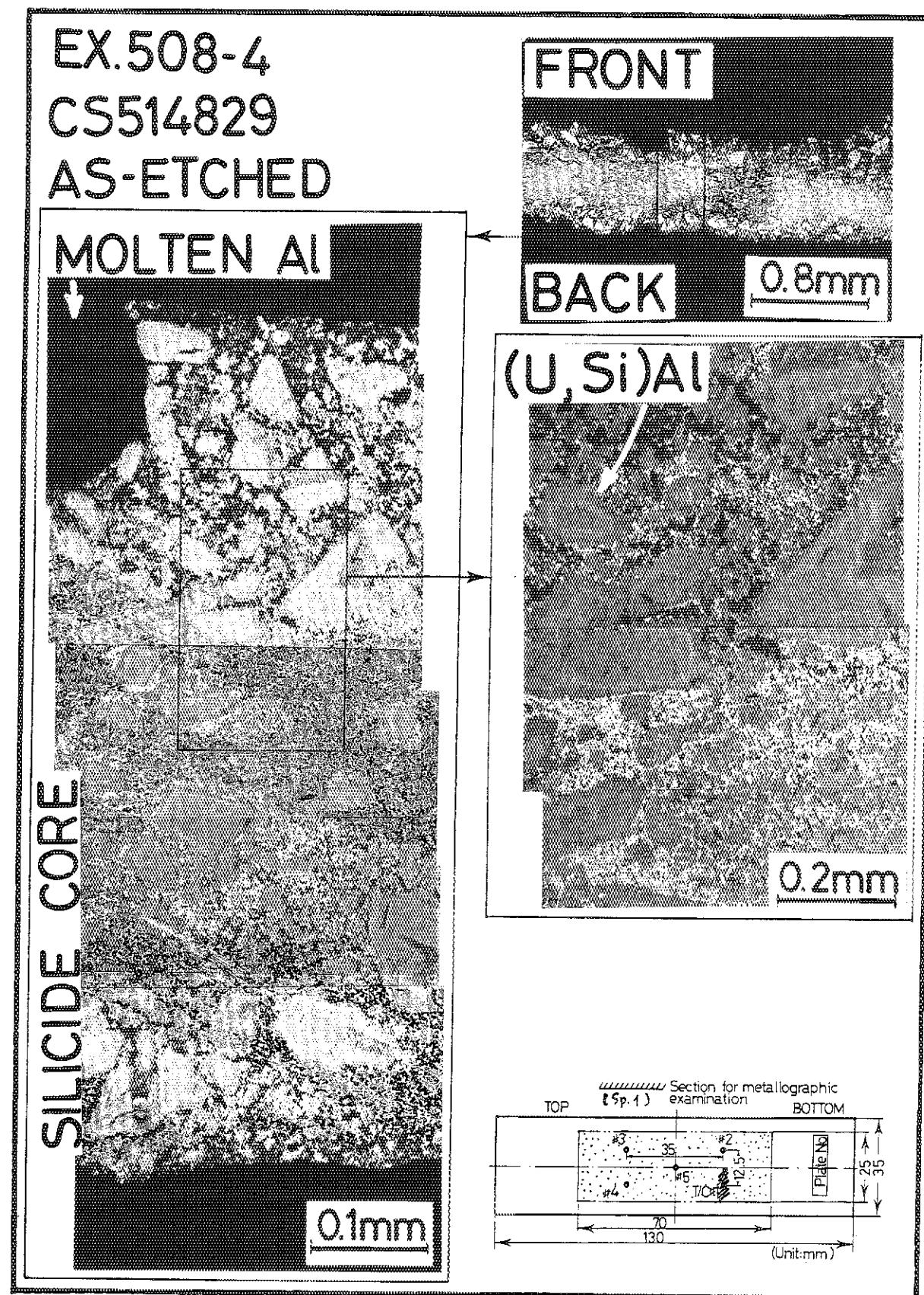
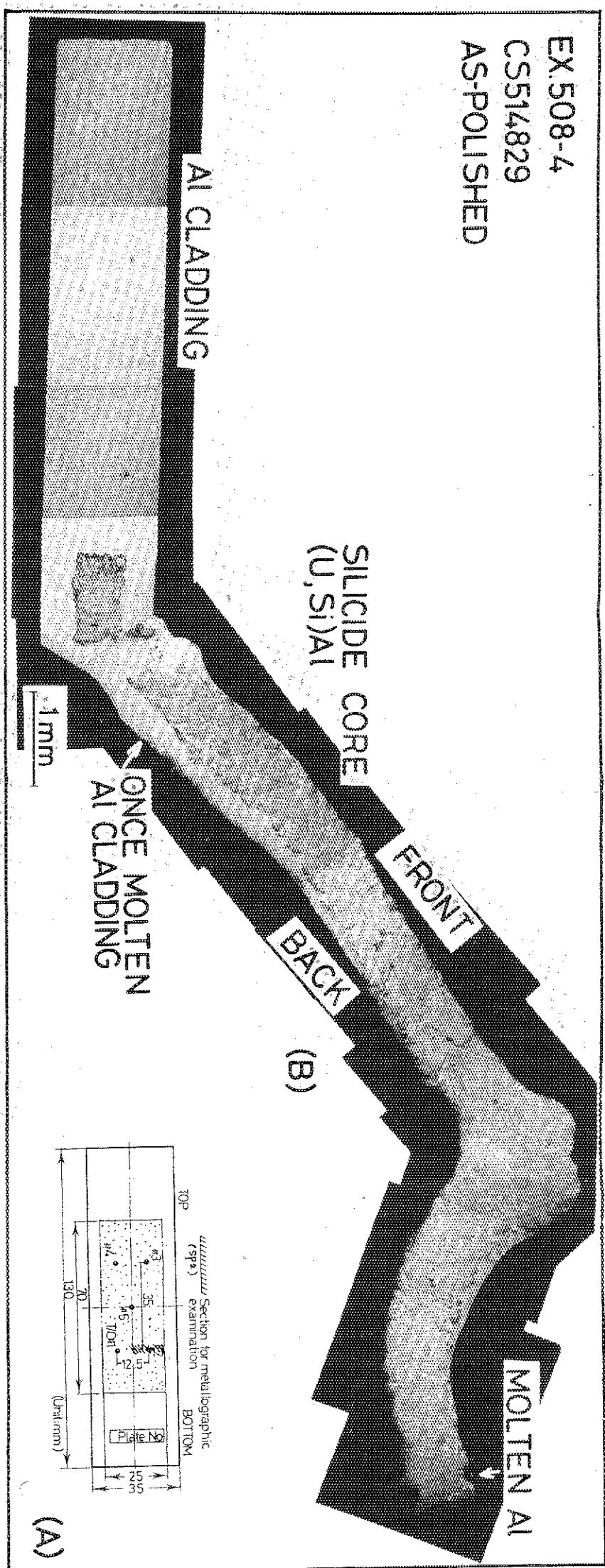


Photo. 3.4.29 Magnified location L of the molten aluminum in the photo. 3.4.28.

EX.508-4
CS514829
AS-POLISHED



(A)

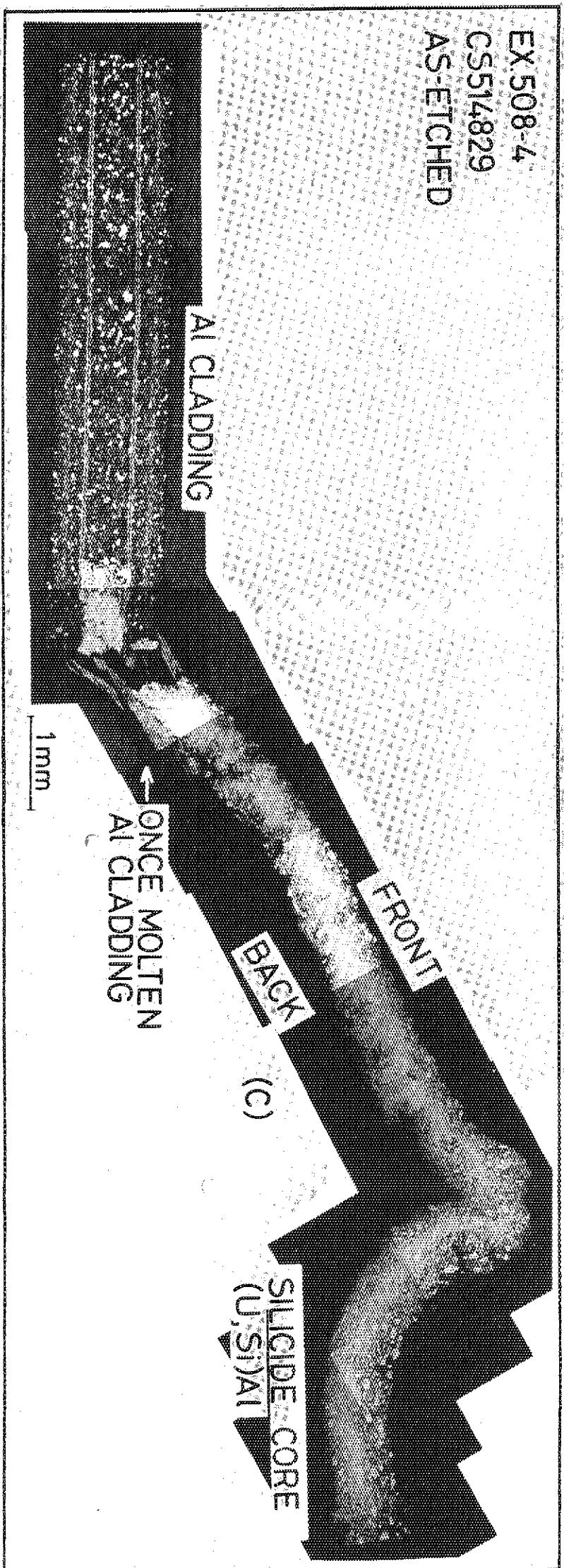


Photo. 3.4.30 As-polished (top) and as-etched (bottom) microphotographs of specimen 2, cut longitudinally from the silicide plate center including T/C #2, which showed peak temperature of 893°C by pulse irradiation of 154 cal/g·fuel in Ex.508-4.

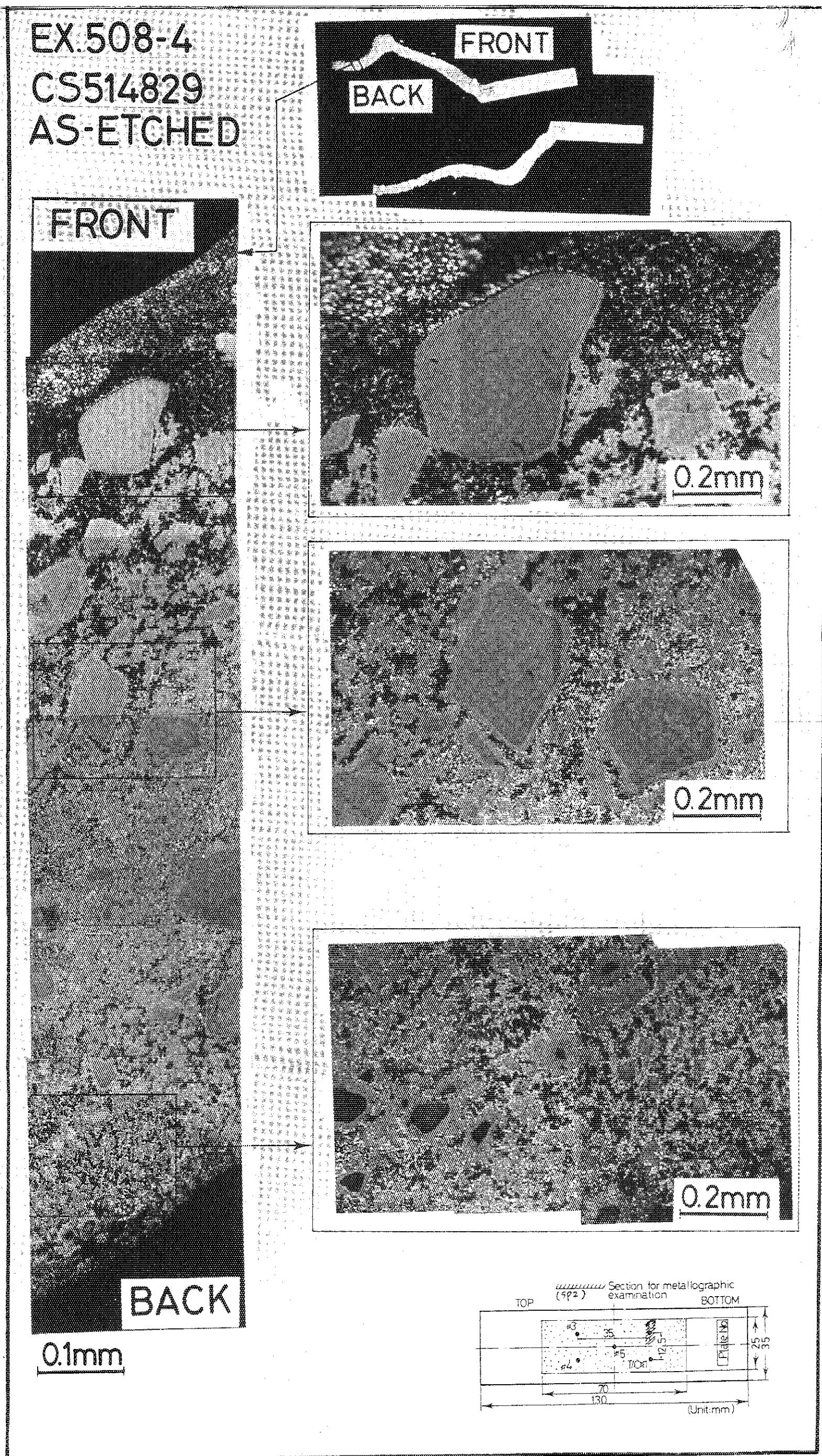


Photo. 3.4.31 Magnification of the previous specimen 2 showing the U_3Si_2 agglomerates in form of rectangular shaped core, in which reaction phases were newly formed.

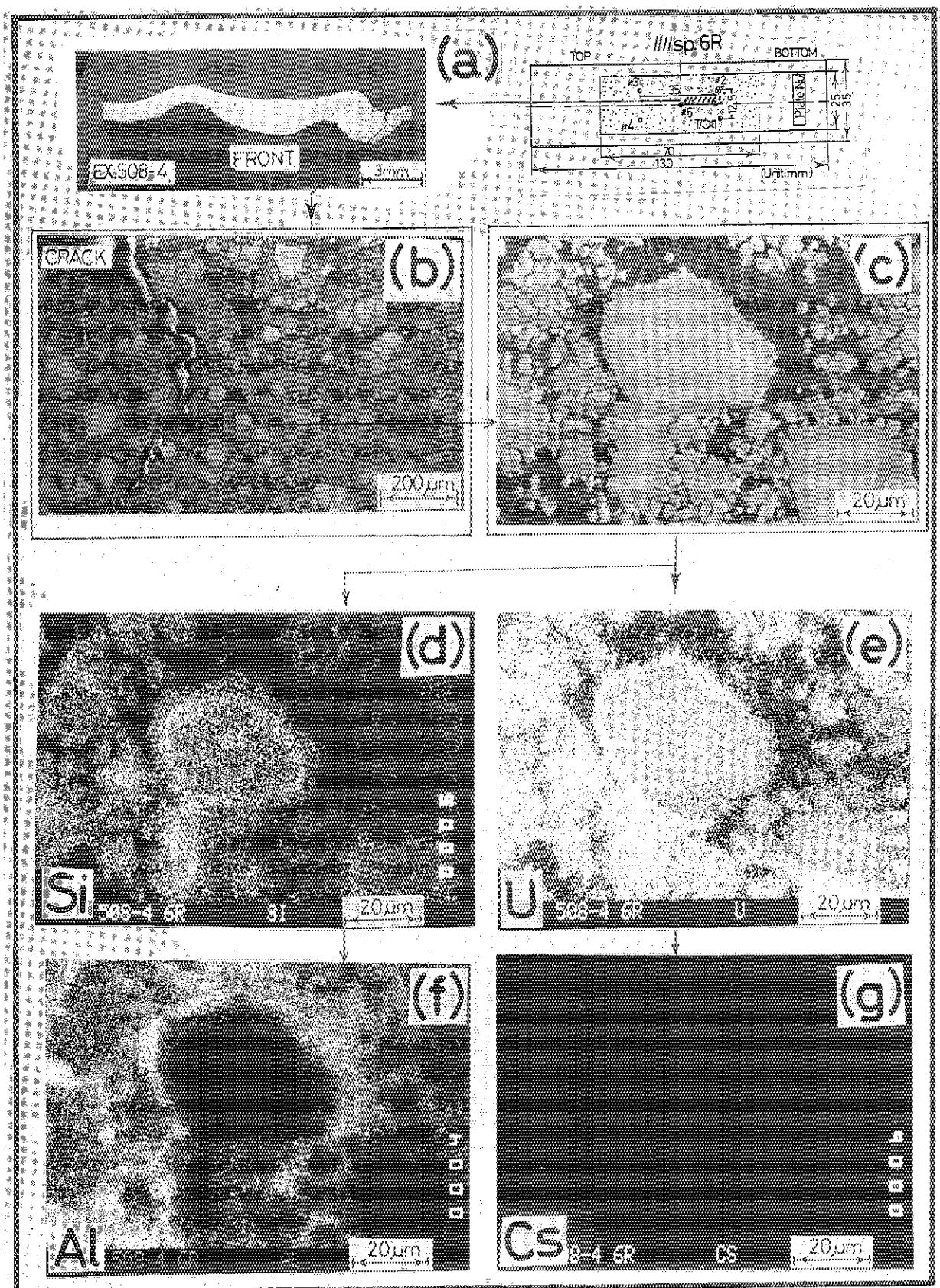


Photo. 4.1.1 SEM images of the specimen 6R cut longitudinally from the failed silicide plate pulsed in Ex.508-4 by 154 cal/g·fuel: (a) map, (b) and (c) locations examined, (d)~(g) picture of Si, U, Al and Cs by XMA.

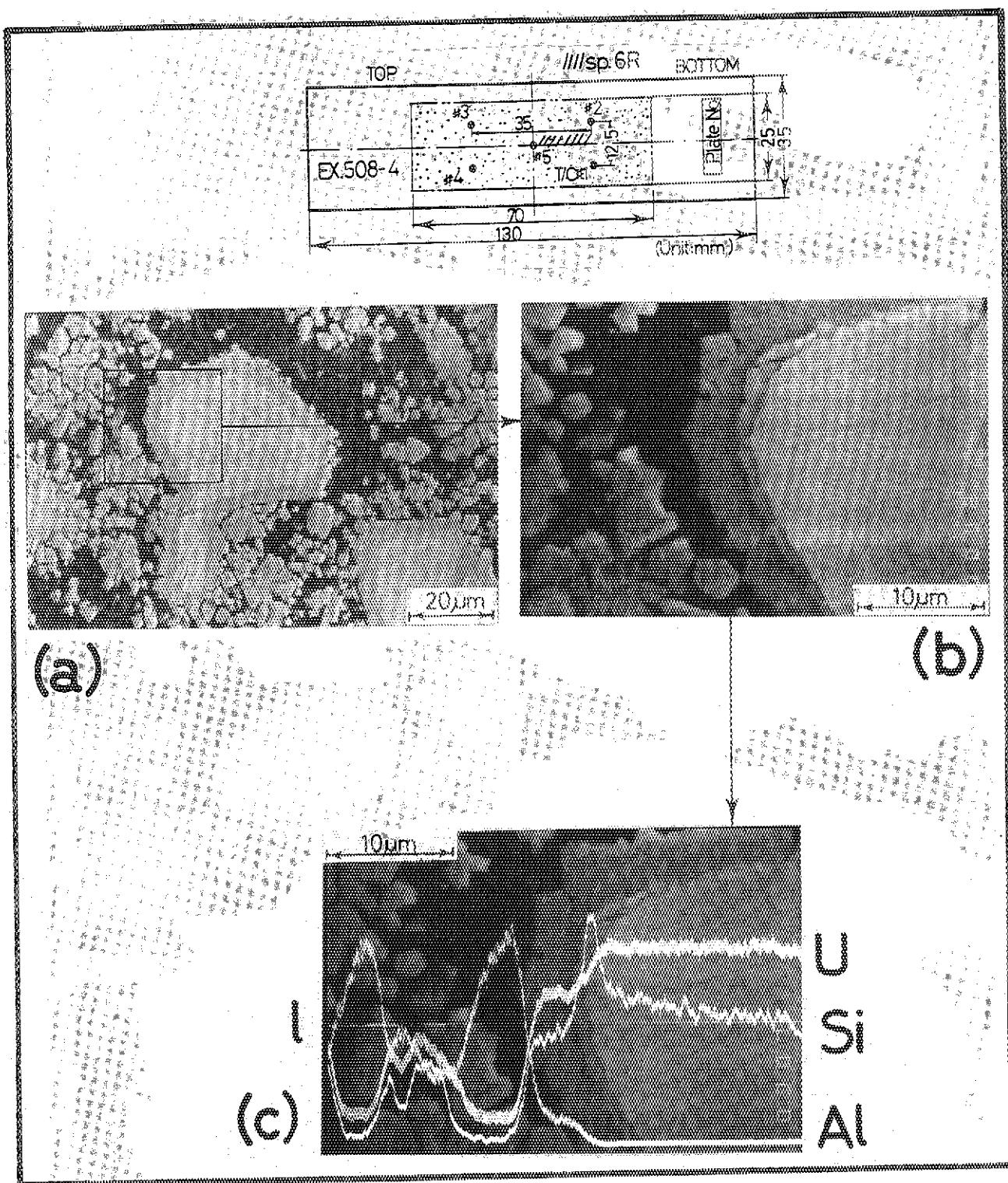


Photo. 4.1.2 Magnification of the photo. 4.1.1 and XMA linear analysis against the agglomerations of Si, U and Al.

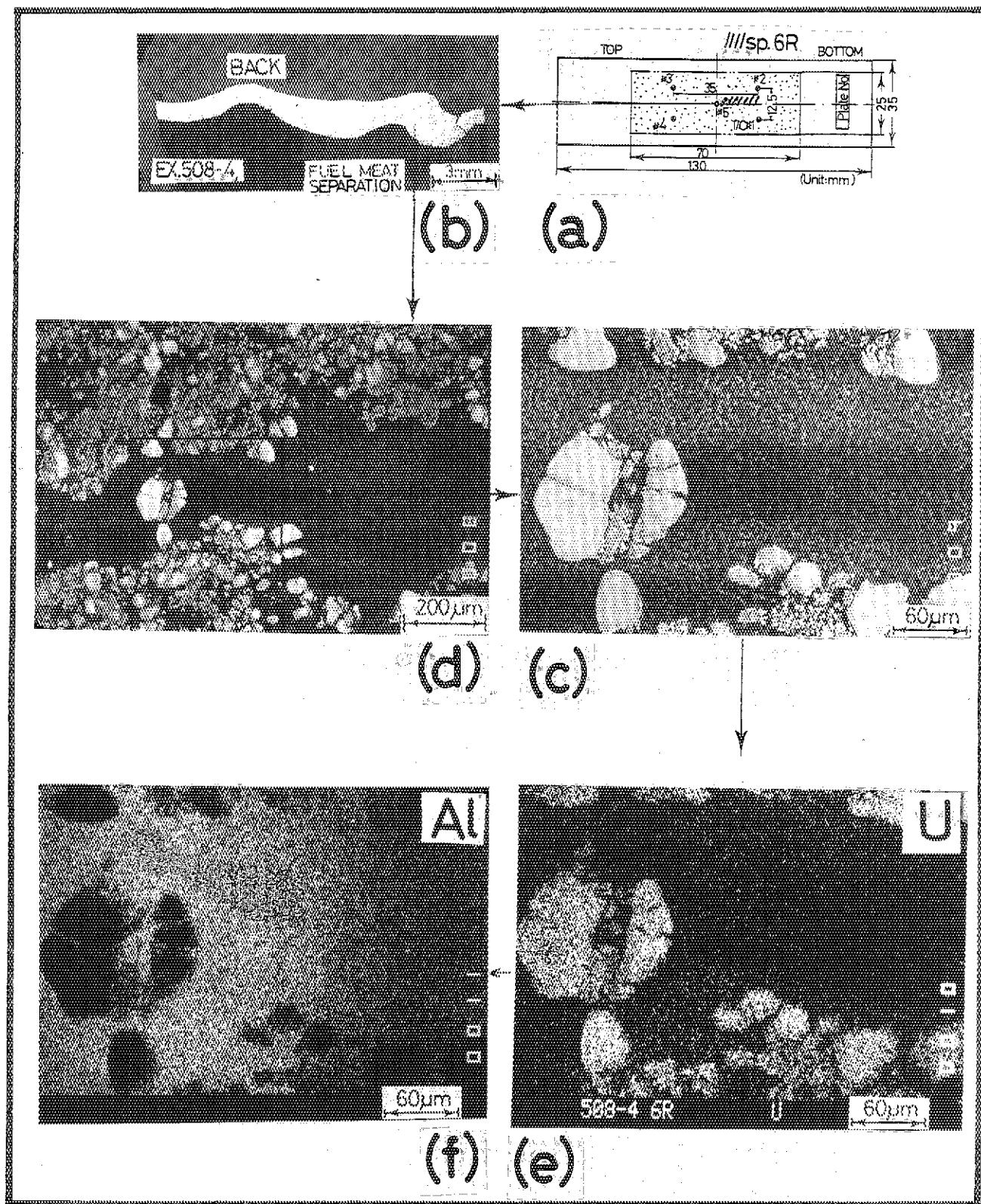


Photo. 4.1.3 SEM images of the specimen 6R cut longitudinally from the failed silicide plate pulsed in Ex.508-4 by 154 cal/g·fuel. This was intended to clarify the reason of fuel core separation.

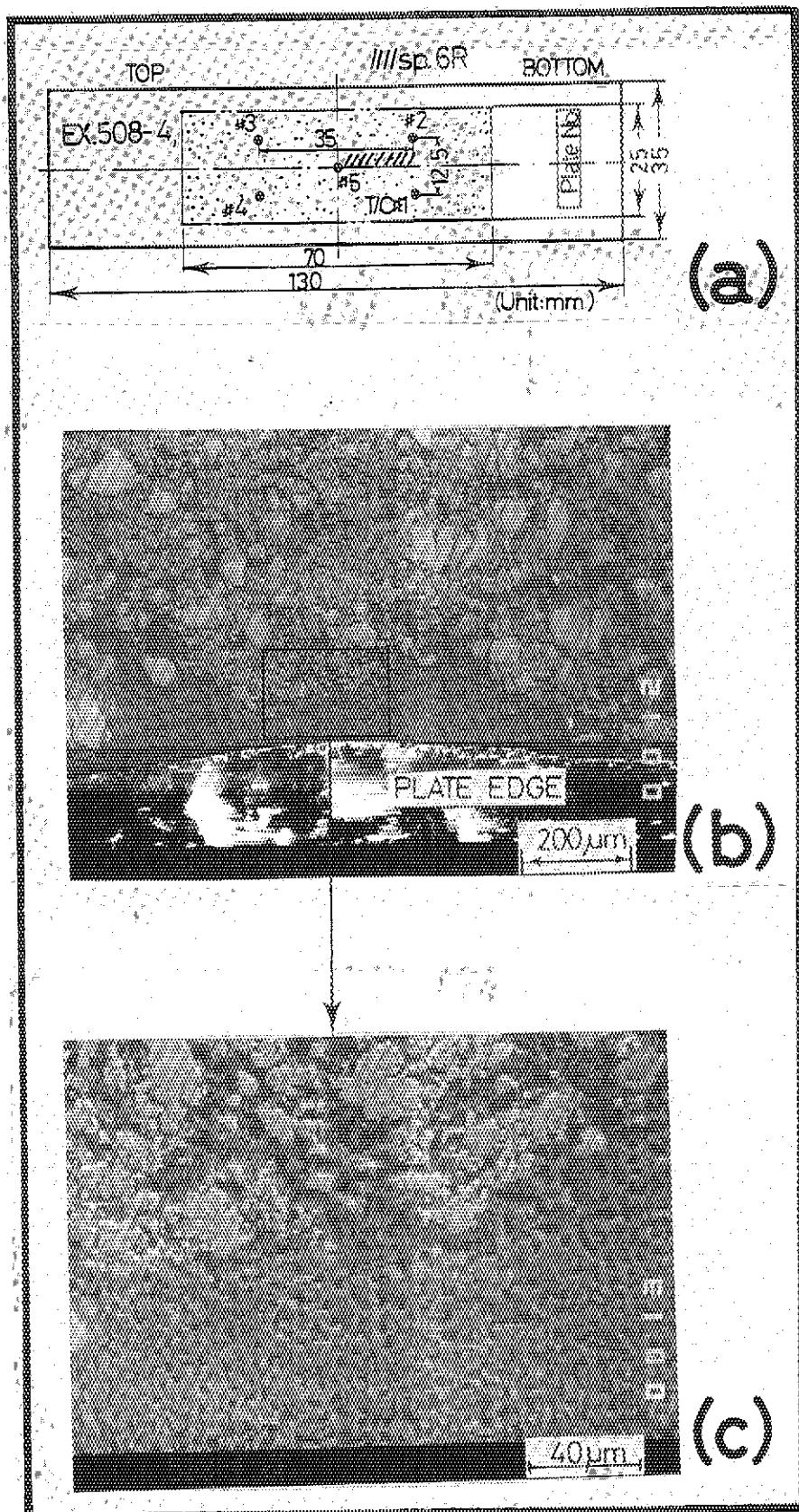


Photo. 4.1.4 SEM/XMA against the location close to the fuel surface of specimen 6 in Ex.508-4. (a) map, (b)~(c) locations examined, (d)~(f) Al, U, and Si elements. Each picture seen at right hand side of (e) and (f) was background level of the previous elements studied.

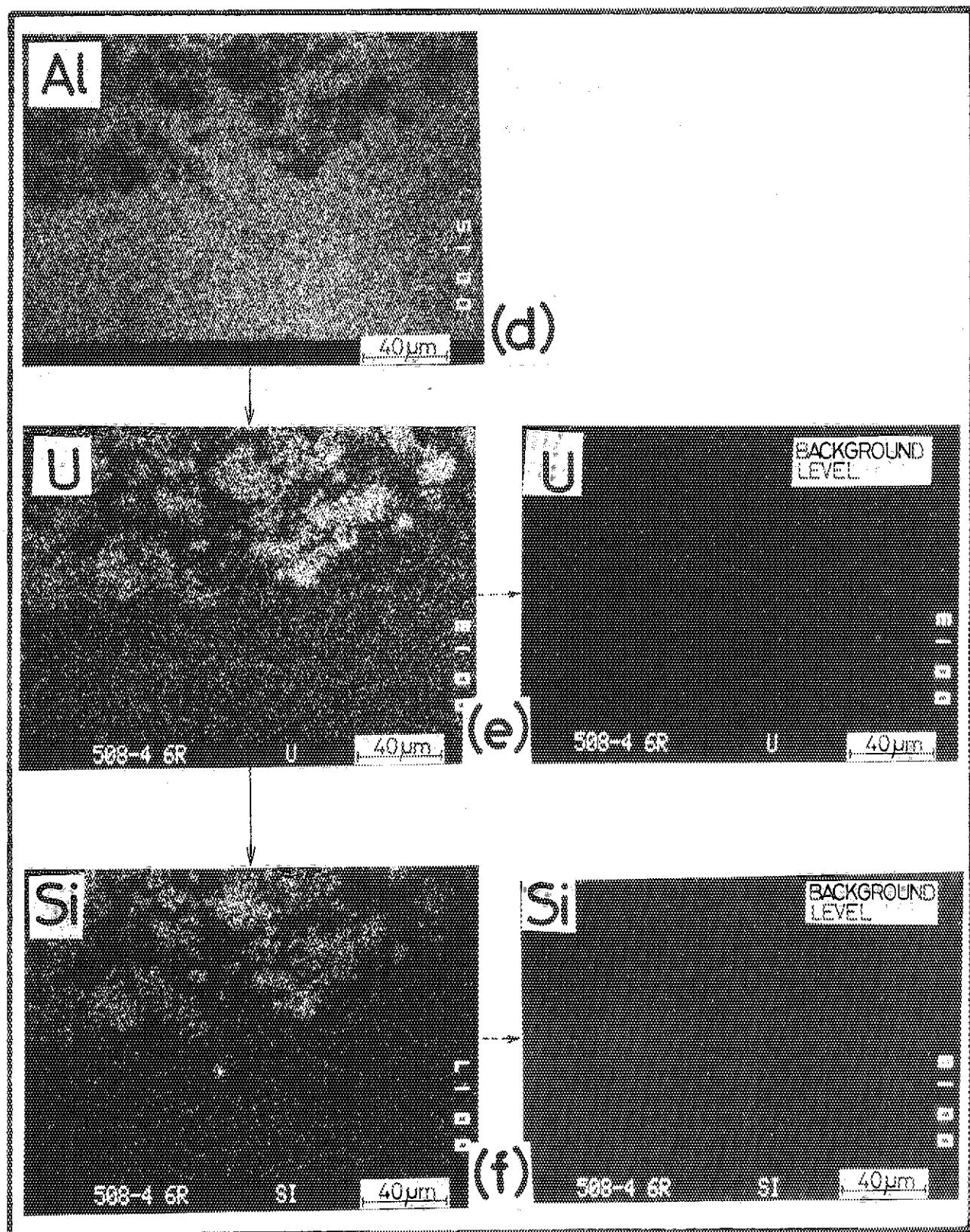


Photo. 4.1.4 (cont'd)

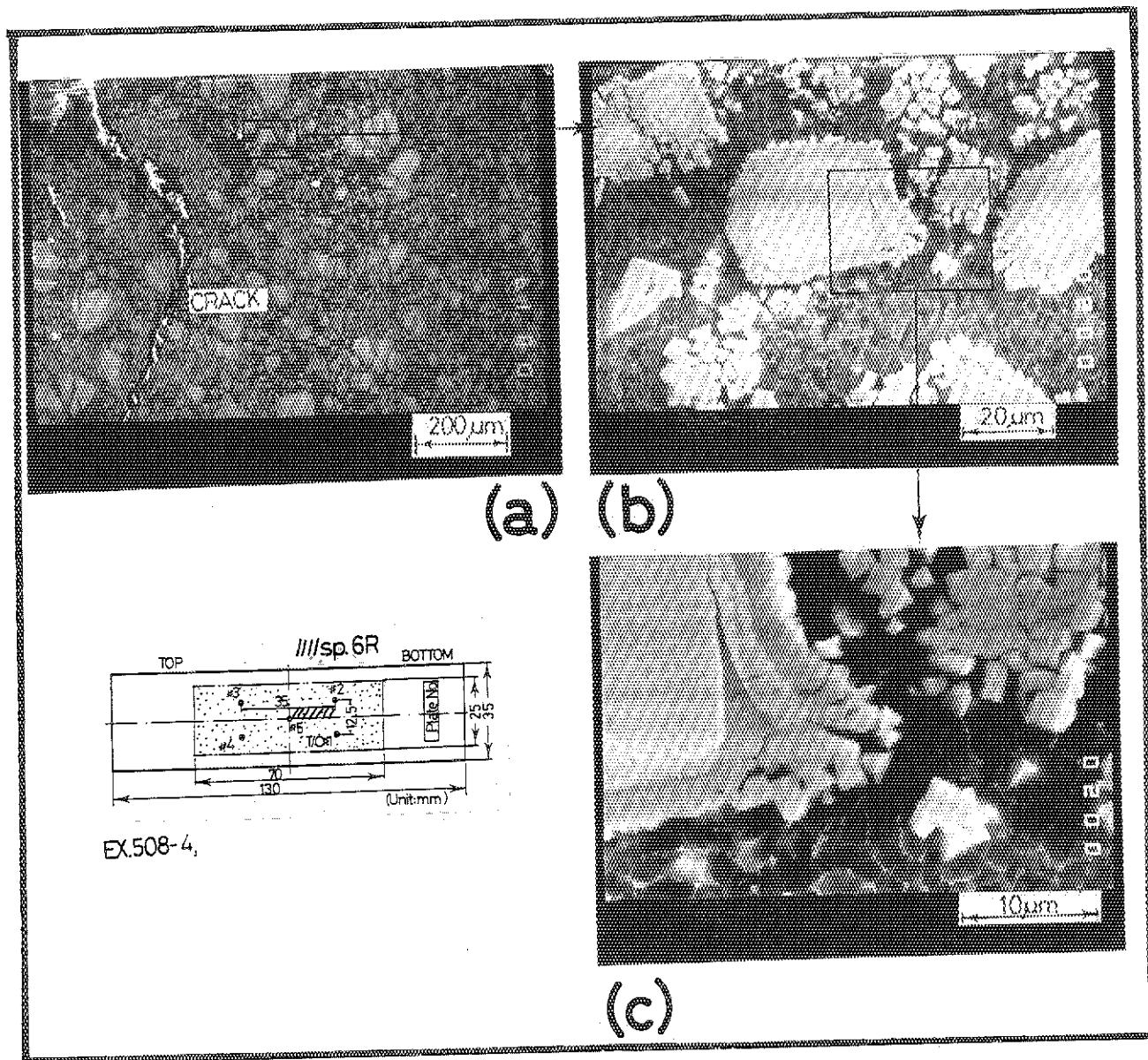
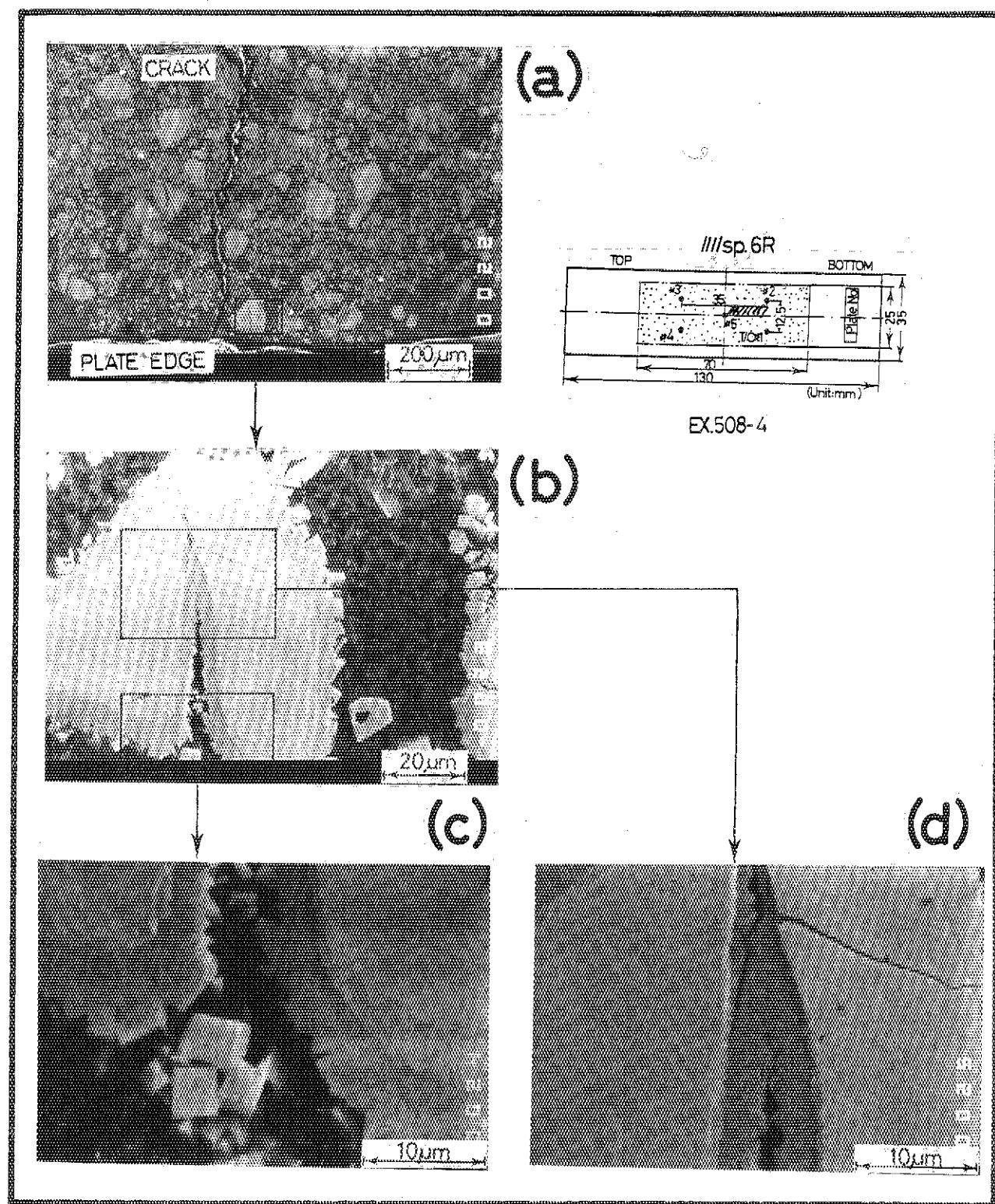


Photo. 4.1.5 SEM photographs of the specimen 6 cut longitudinally from the center of plate fuel. Magnification (b) and (c) were taken from the neighbour of crack end in Ex.508-4 (154 cal/g·fuel).



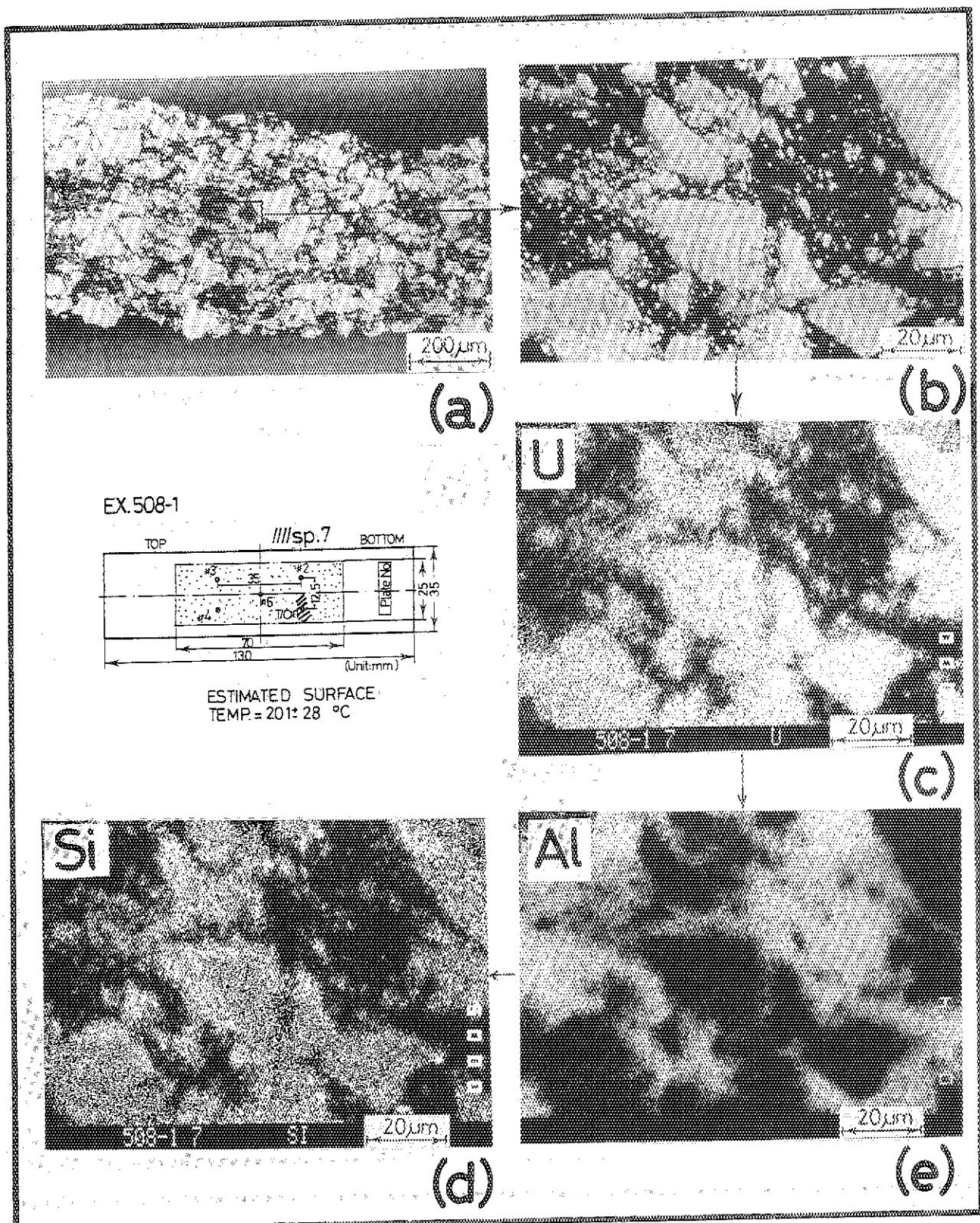


Photo. 4.1.7 Transversal cross section cut from specimen 7 (T/C #1) of the silicide fuel, pulsed in Ex.508-4 with energy deposition of 154 cal/g·fuel. From the center of fuel plate microphotographs were taken for SEM/XMA.

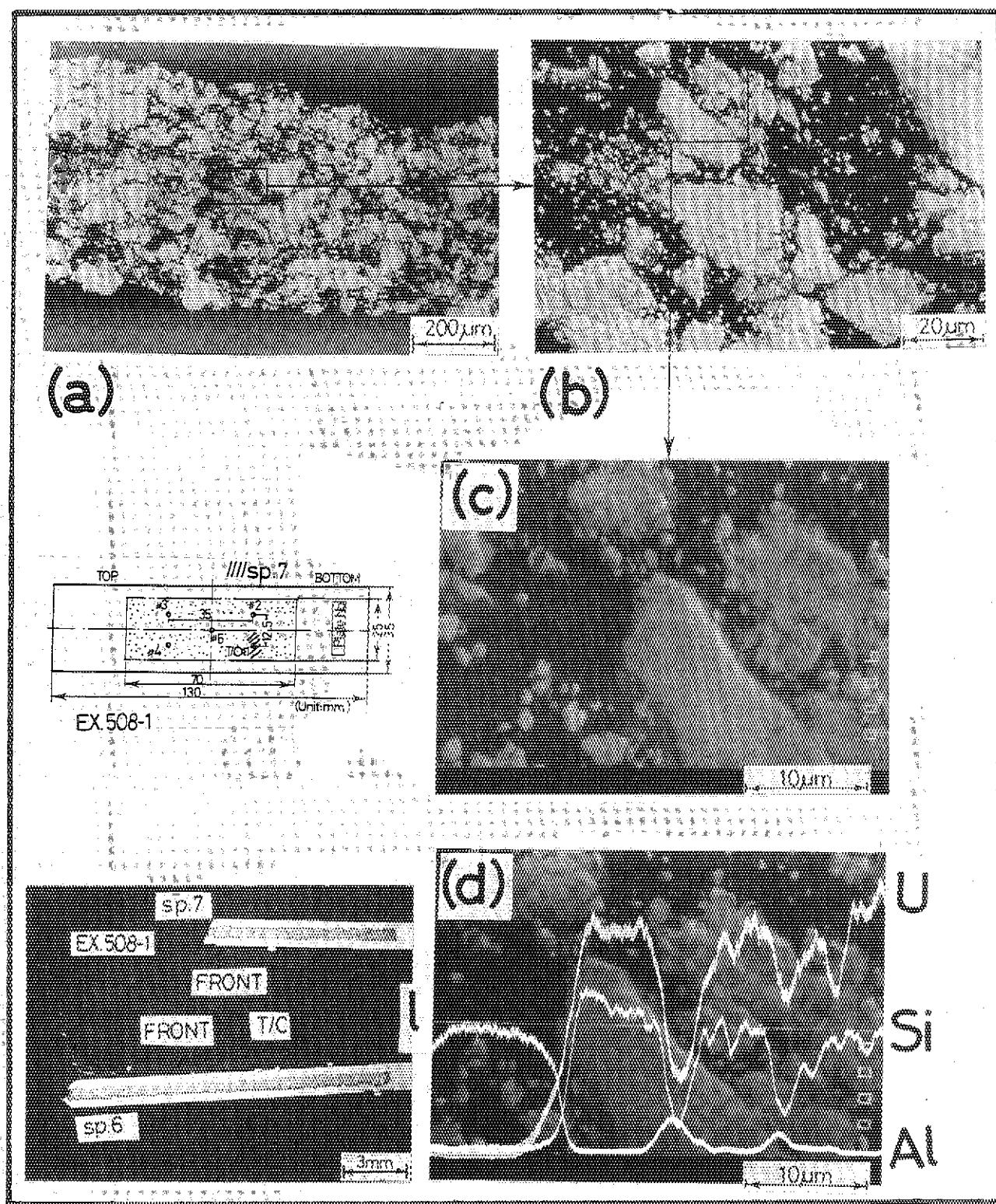


Photo. 4.1.8 The same specimen shown in previous photo. 4.1.7 where XMA analysis against U_3Si_2 agglomerates and Al matrix were made by using U, Si and Al elements.

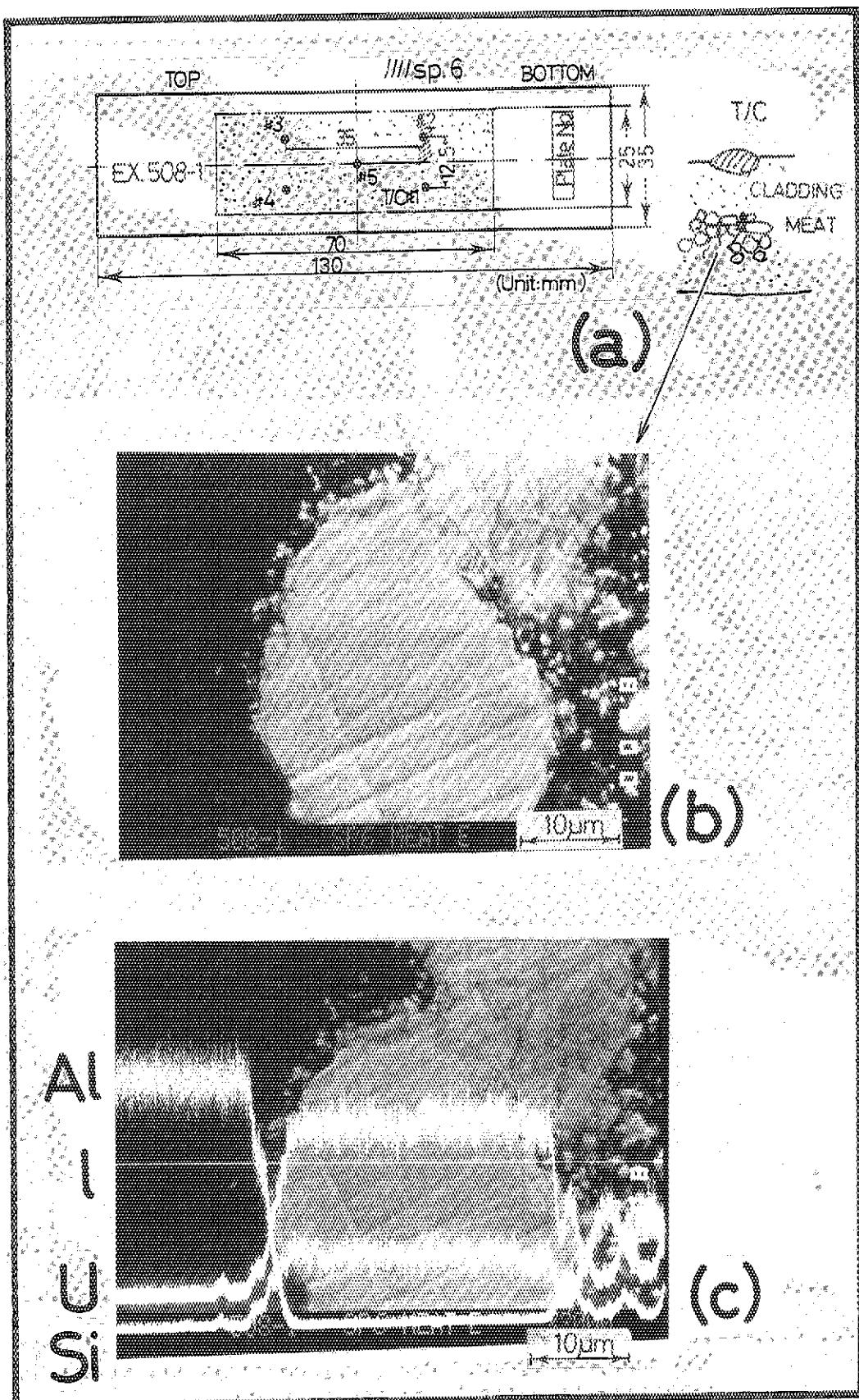


Photo. 4.2.1 Microphotographic sample of SEM/XMA study, cut transversally from specimen 2 of the silicide plate (T/C #2, 177°C peak temp.), pulse irradiated by 62 cal/g·fuel in Ex. 508-1. Location was adjacent to the attached thermocouples.

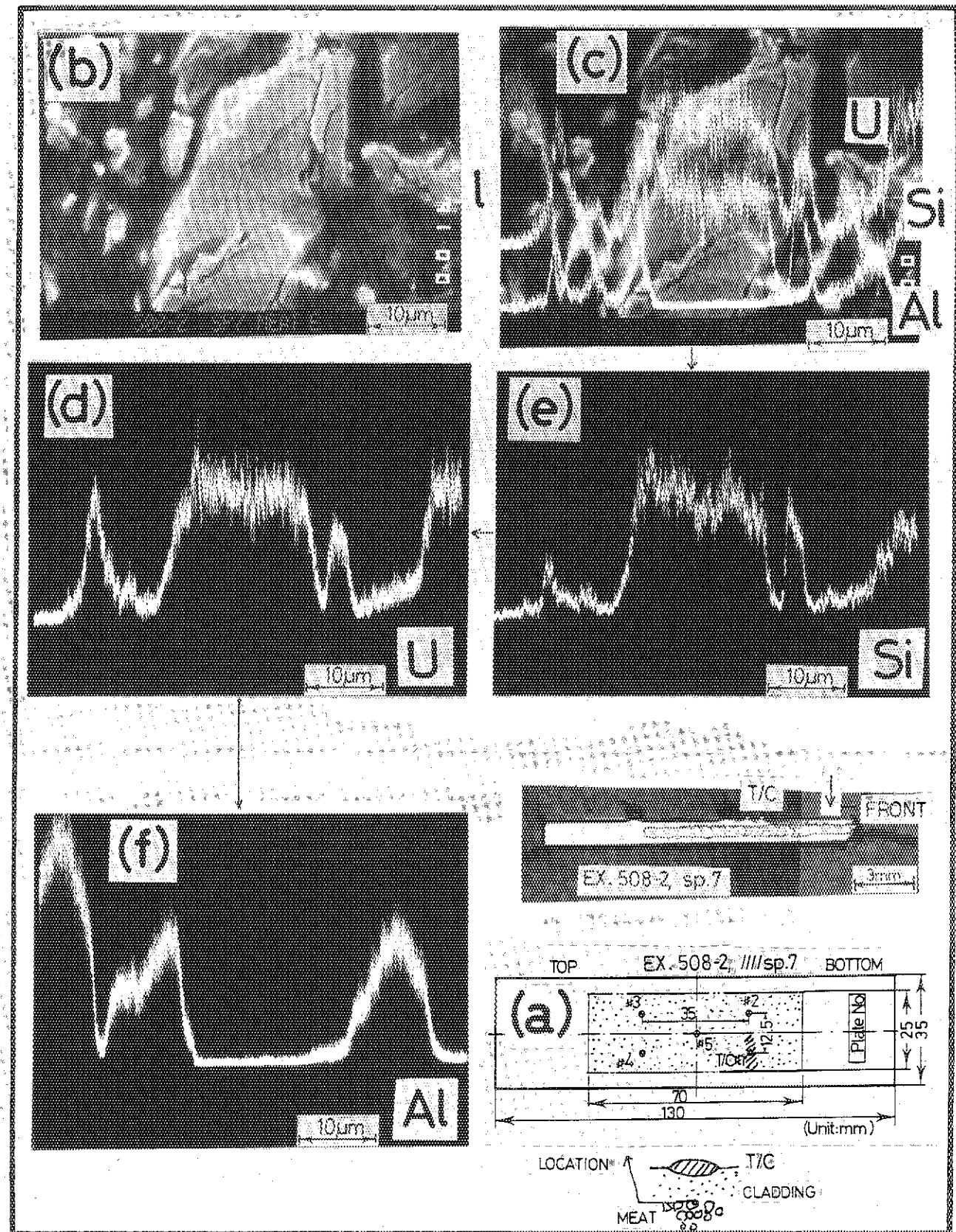


Photo. 4.2.2 Microphotographic sample of SEM/XMA examination, cut transversally from specimen 1 of the silicide plate (T/C #1, 200°C peak temp.), pulse irradiated by 77 cal/g·fuel in Ex.508-2. Location was adjacent to the attached thermocouples.

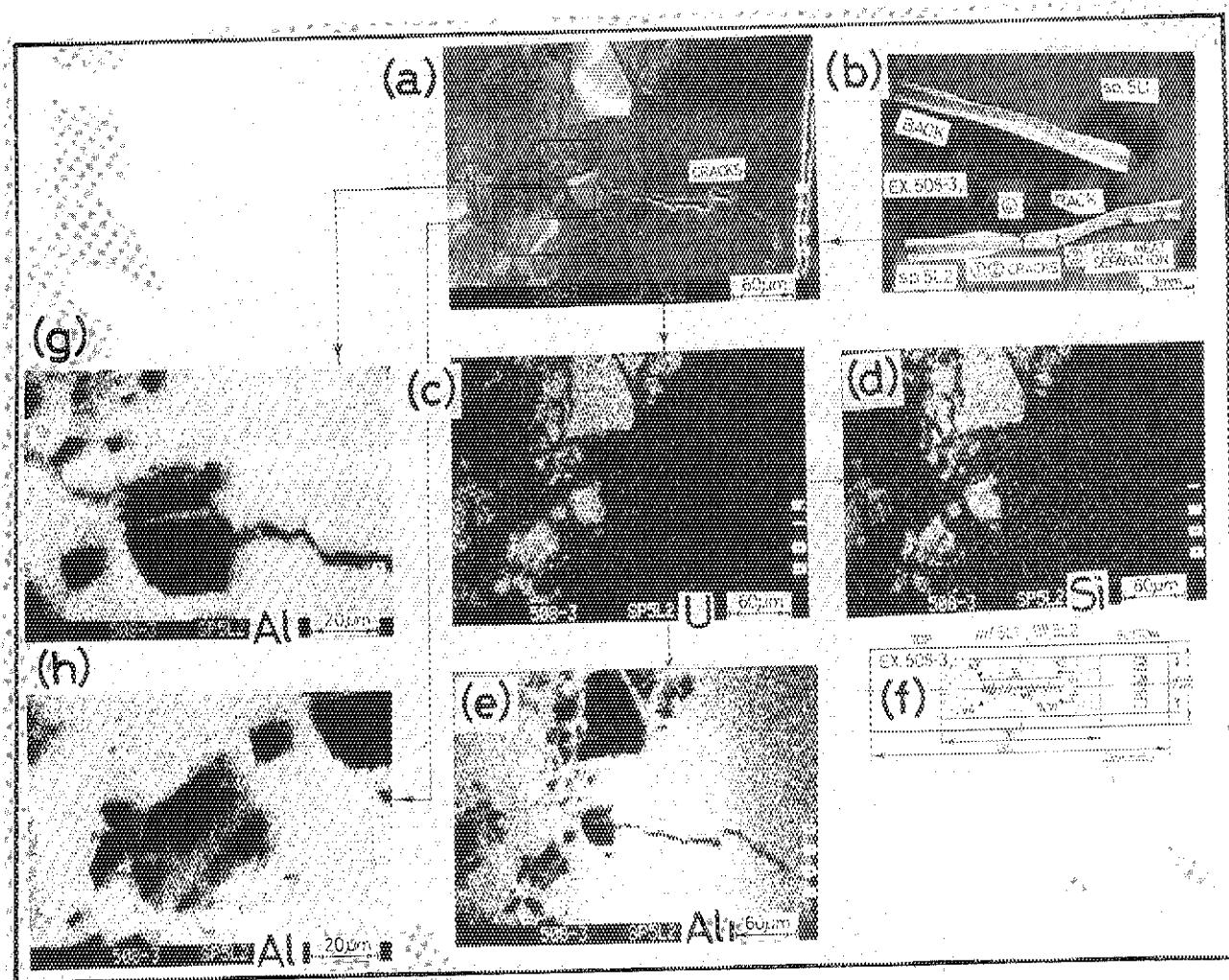


Photo. 4.2.3 SEM/XMA results obtained from specimen 5L2 (T/C #5, 544°C peak temp.) of the pulse irradiated silicide plate fuel by 116 cal/g·fuel. Morphology of the cladding was studied. (a) SEM, (b) macrophotograph, (c)~(e) XMA study of U, Si and Al elements, (f) map, (g) and (h) intensity of Al element in magnified location of picture (a).

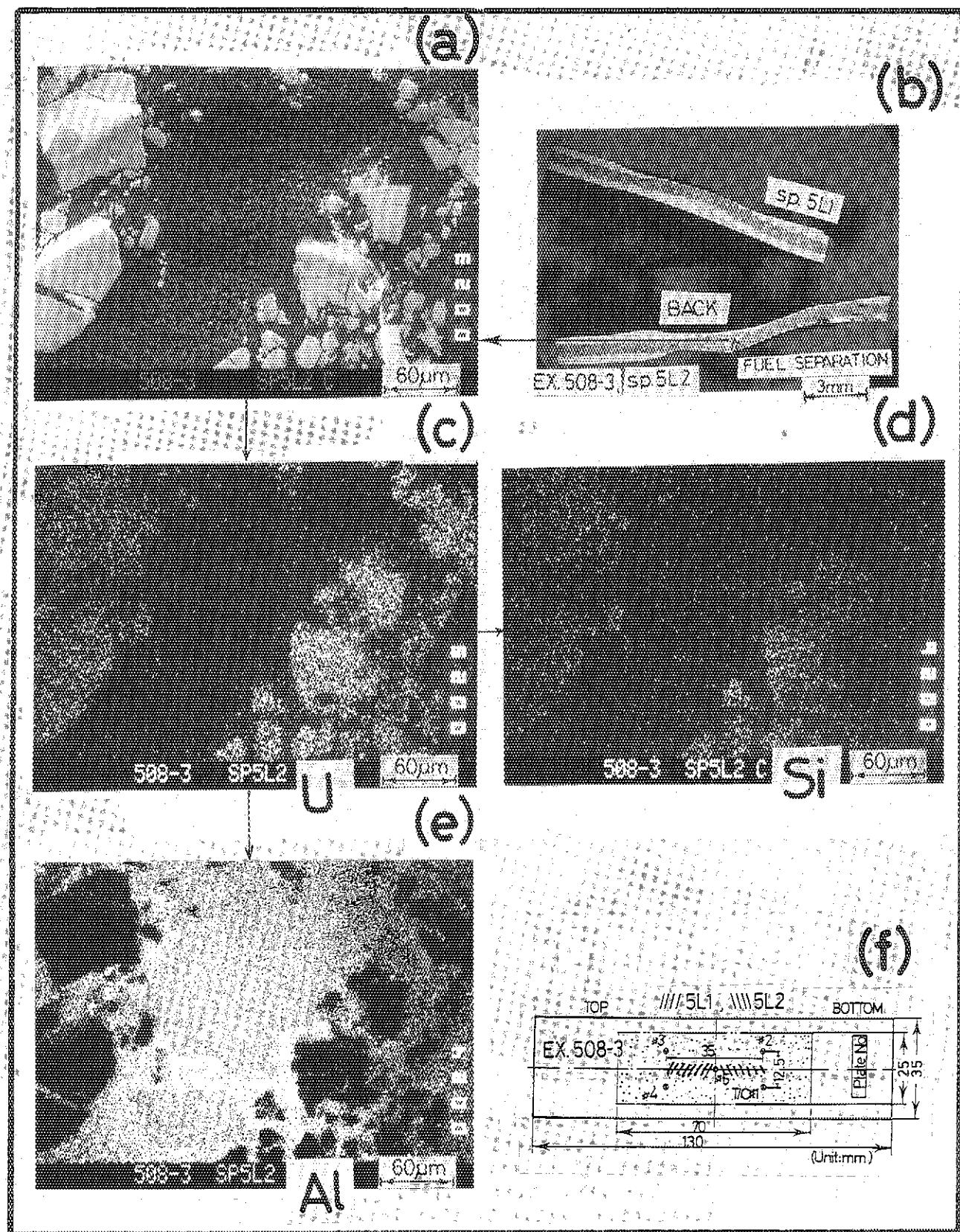


Photo. 4.2.4 SEM/XMA results obtained from specimen 5L2 (T/C #5, 544°C peak temp.) of the pulse irradiated silicide plate fuel by 116 cal/g·fuel, where separation of the core matrix was studied.

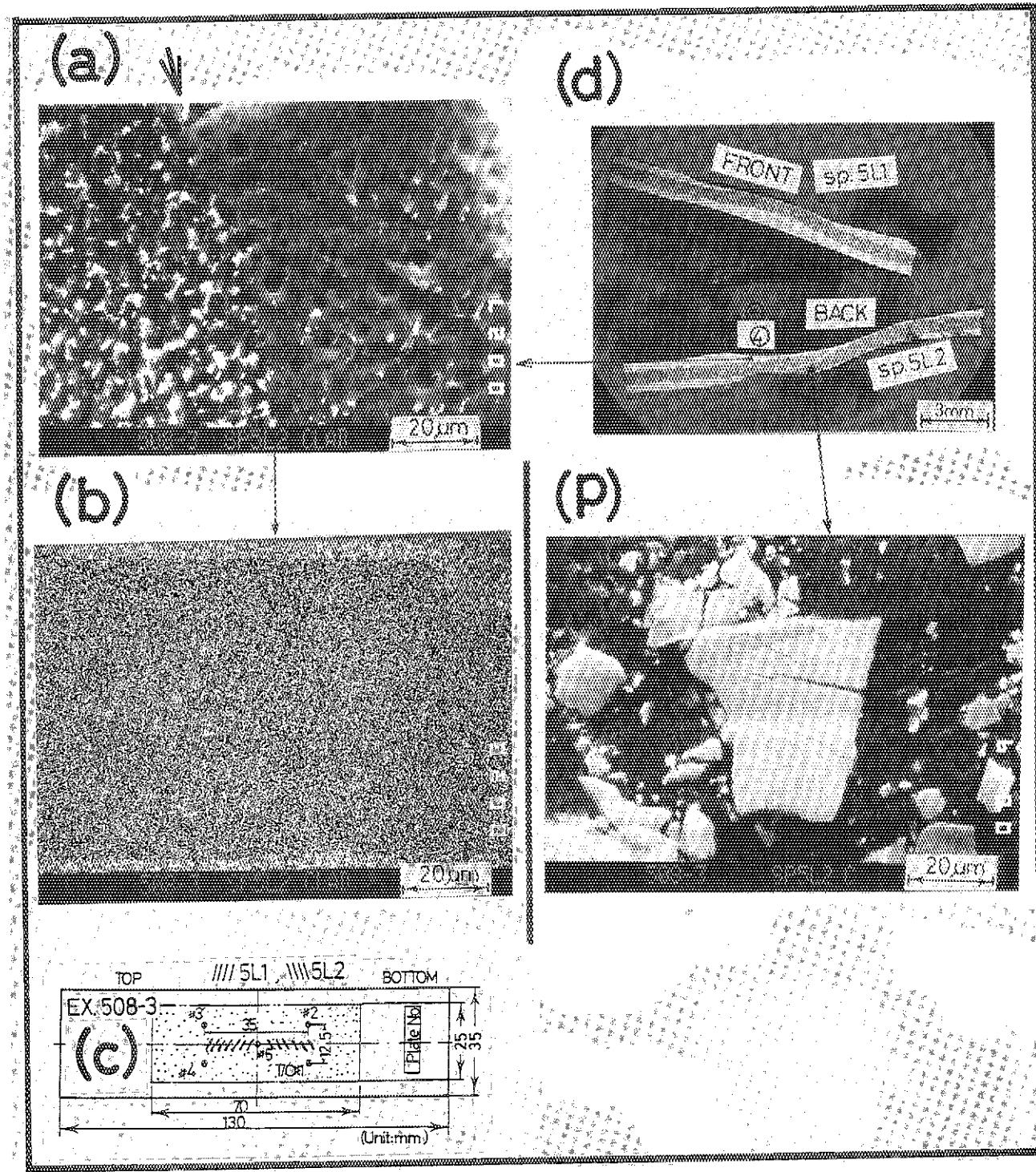


Photo. 4.2.5 The same specimen of 5L2 as shown in Photo. 4.2.4, where morphological difference in cladding surface at location ④ is shown in picture (d), and shown in (b) from XMA. Core morphology obtained from fuel separation region is also displayed.

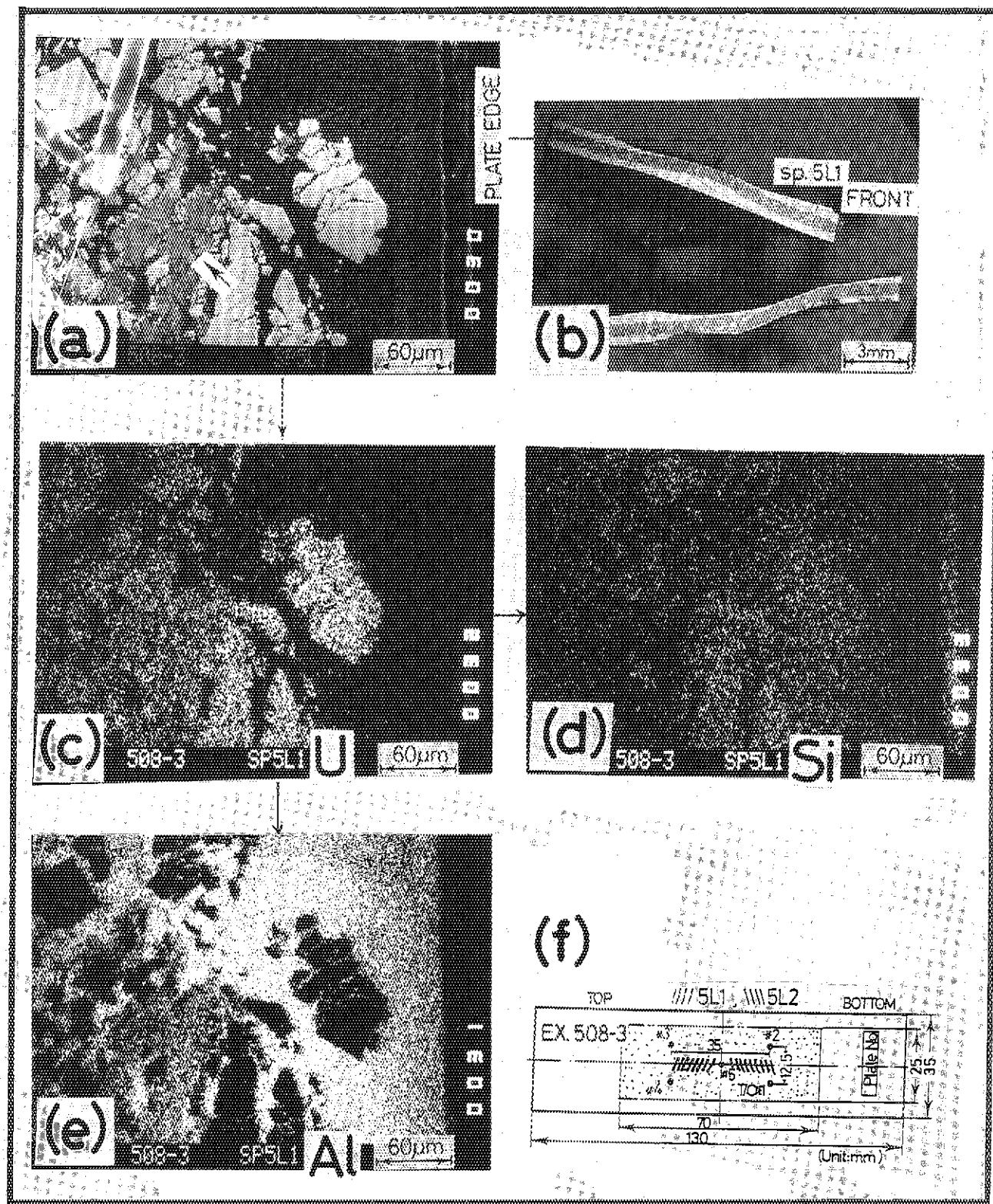


Photo. 4.2.6 Specimen of 5L1 as pulsed as the same condition of 5L2 shown in photo. 4.2.4. Fuel core relocation toward cladding was shown.

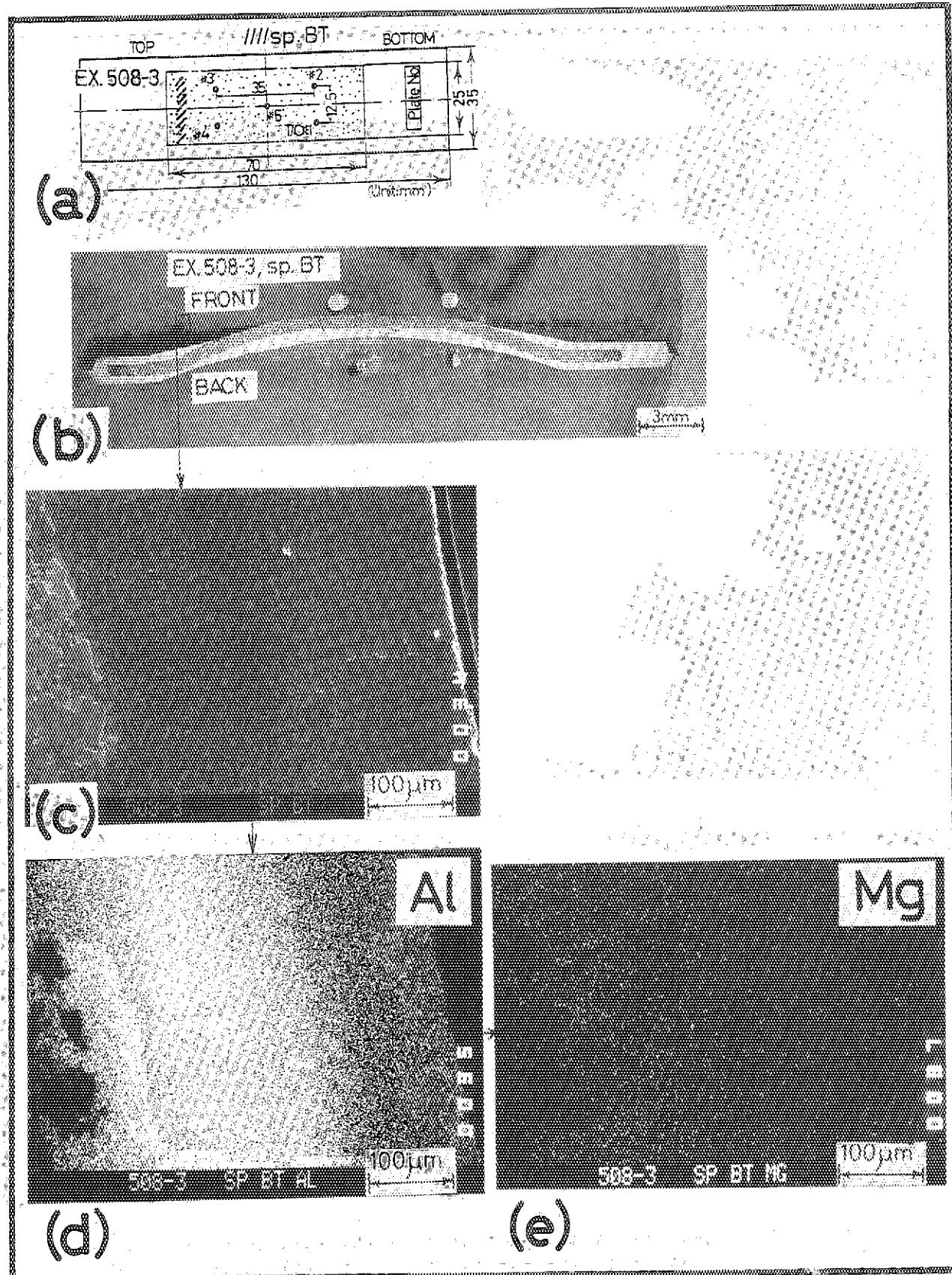


Photo. 4.2.7 Specimen BT of silicide plate fuel cut transversally from the fuel top end, pulsed at 77 cal/g·fuel in Ex.508-2.
 (a) map, (b) macrophotograph, (c) SEM of intergranular cracking, (d) and (e) XMA of Al and Mg elements.

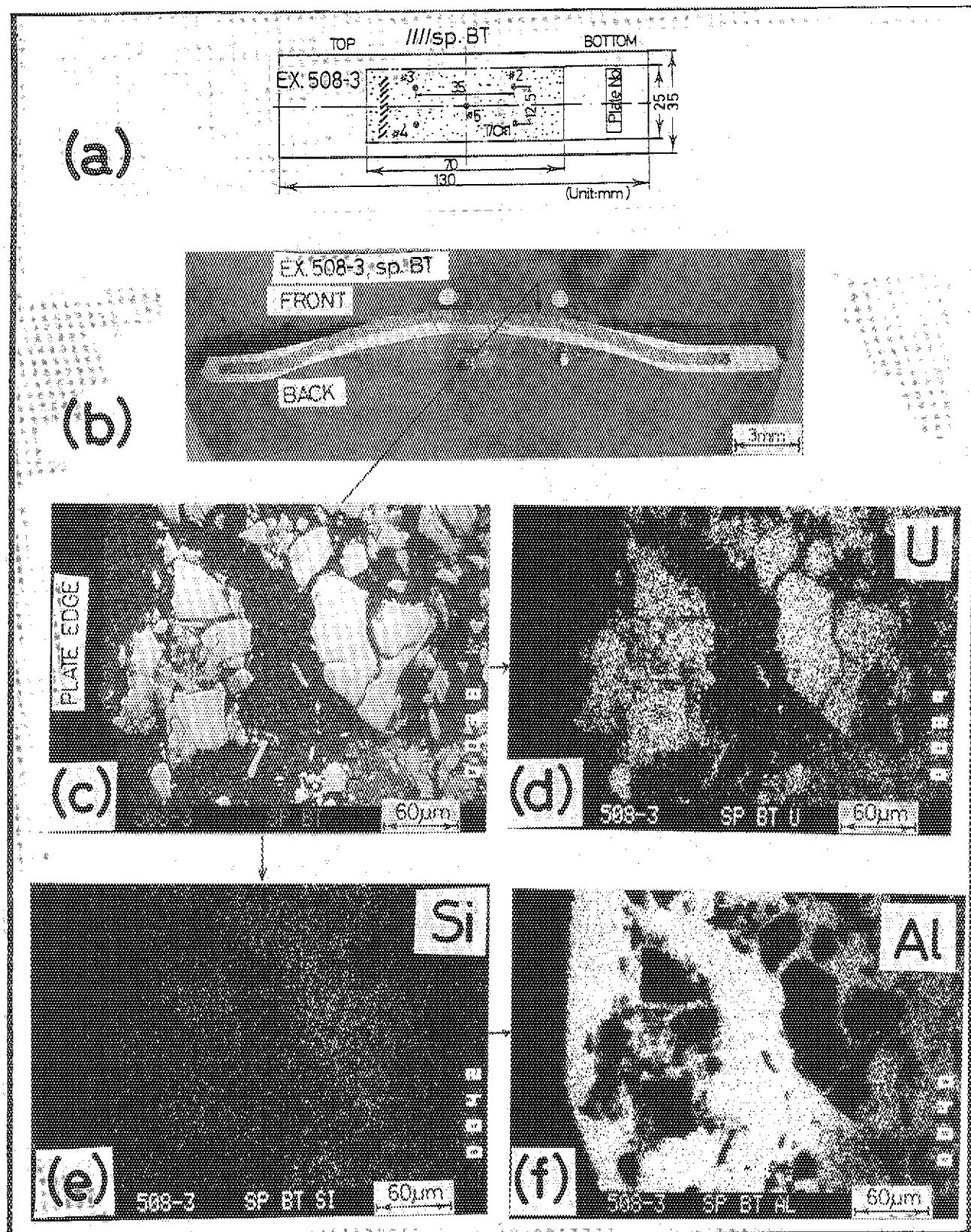


Photo. 4.2.8 Specimen BT shown in photo. 4.2.7, where relocation of fuel meat toward cladding was studied by SEM and XMA.

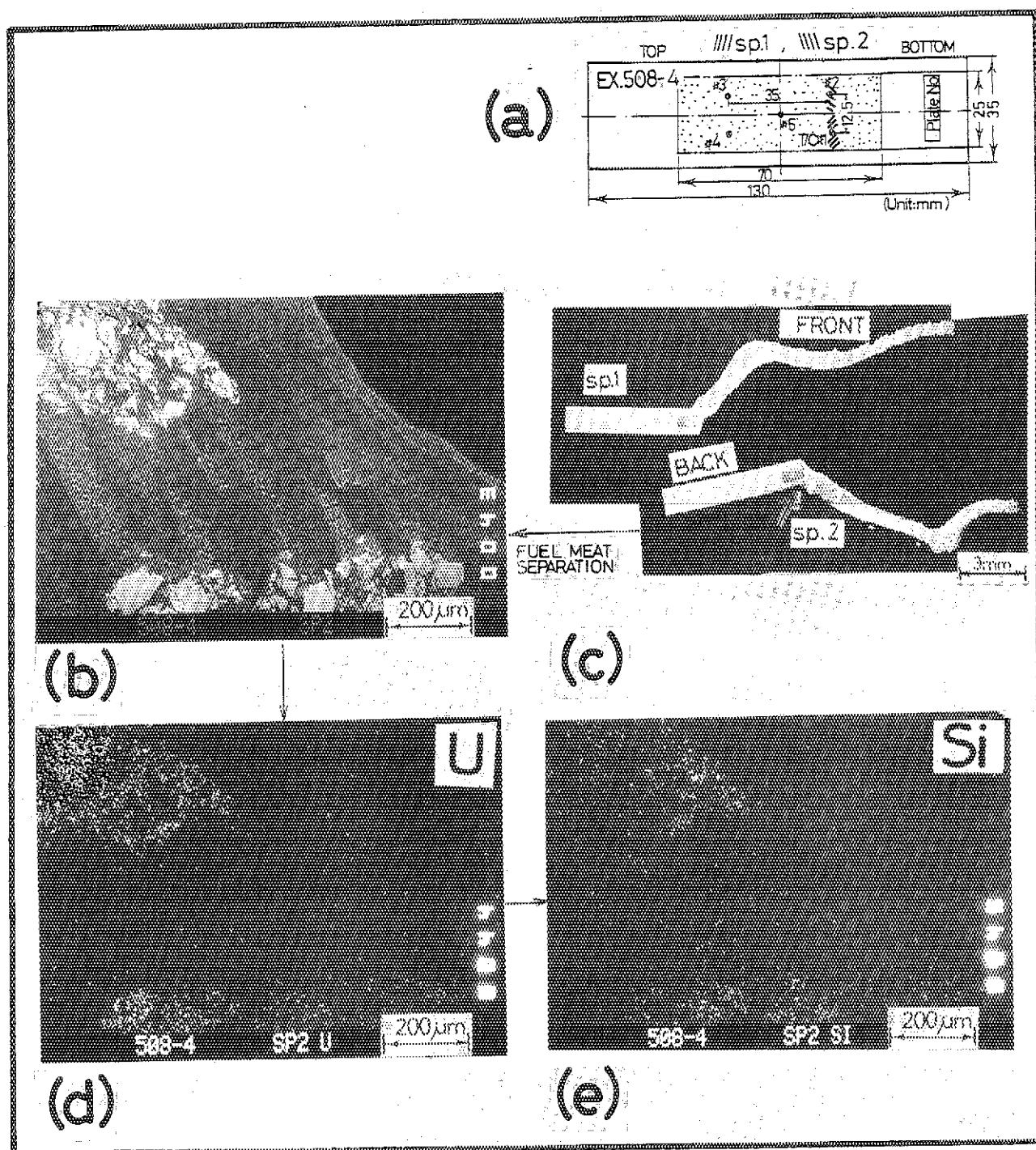


Photo. 4.2.9 Specimen 2 cut transversally from the silicide fuel plate, pulsed in Ex.508-4 with energy deposition of 154 cal/g·fuel. Microphotographs taken at the center of fuel plate were provided for SEM/XMA study. This location included T/C #2 (893°C in peak). Arrow in picture (c) shows the location of fuel separation.

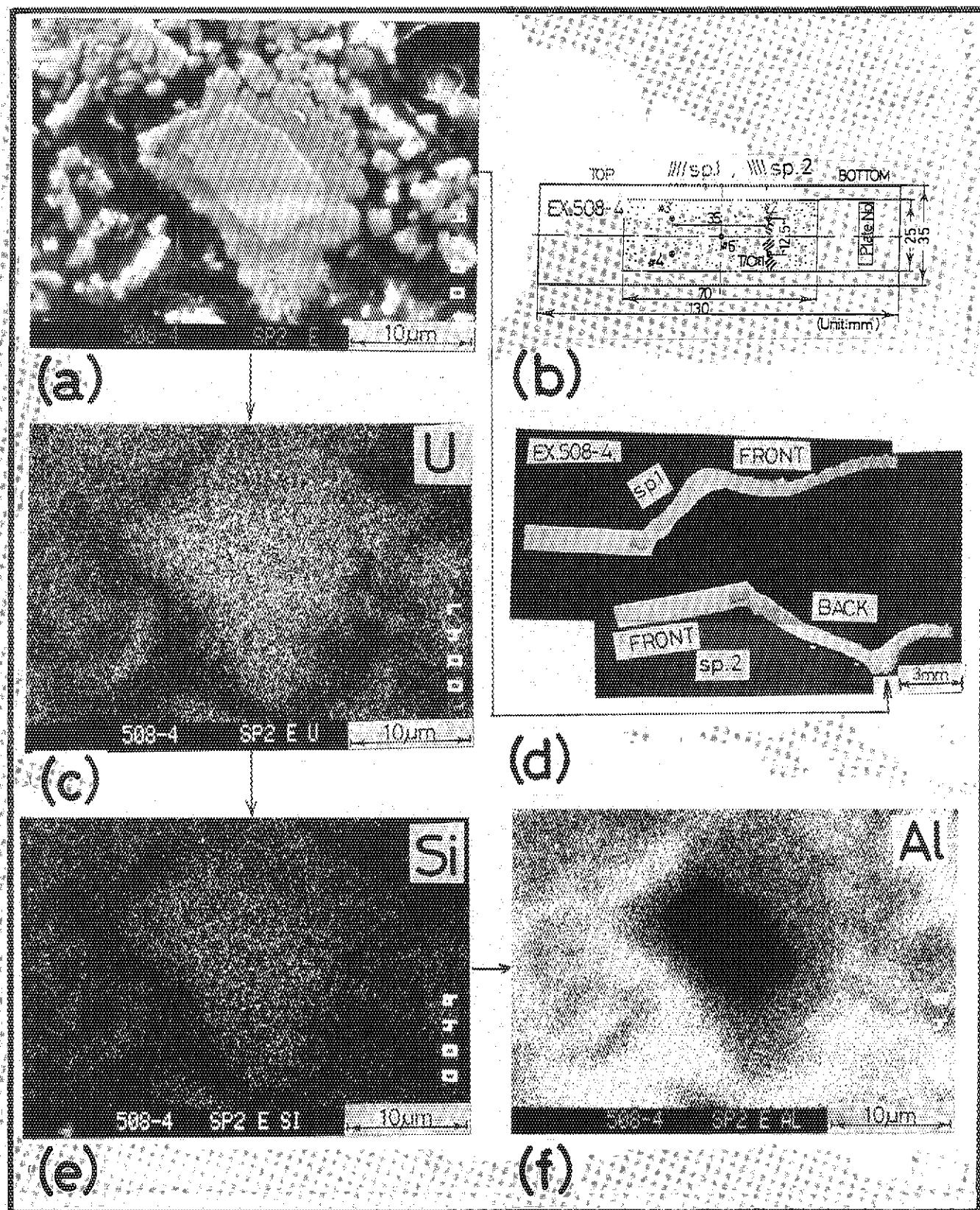


Photo. 4.2.10 SEM morphology of the fuel core taken from the location shown in picture (d). XMA analysis by elements of U, Si and Al was made at this place. Specimen 2, pulsed in Ex.508-4 with 154 cal/g·fuel (T/C #2, 893°C in peak temp.).

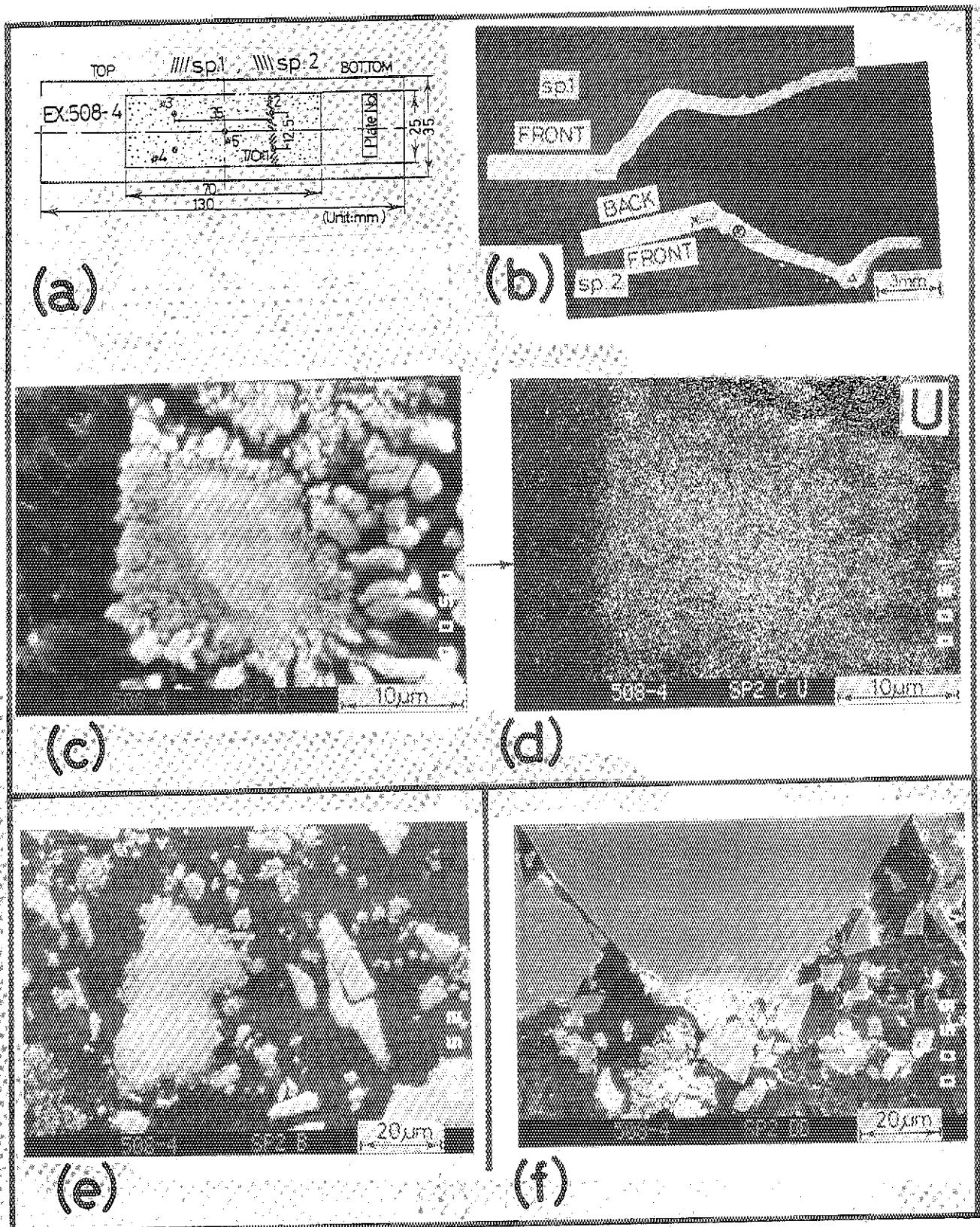


Photo. 4.2.11 SEM morphology of the fuel core taken from three different locations in picture (c). XMA analysis was made against picture (c) by Al element. Specimen 2 was pulsed in Ex.508-4 with 154 cal/g·fuel (T/C #2, 893°C in peak temp.).

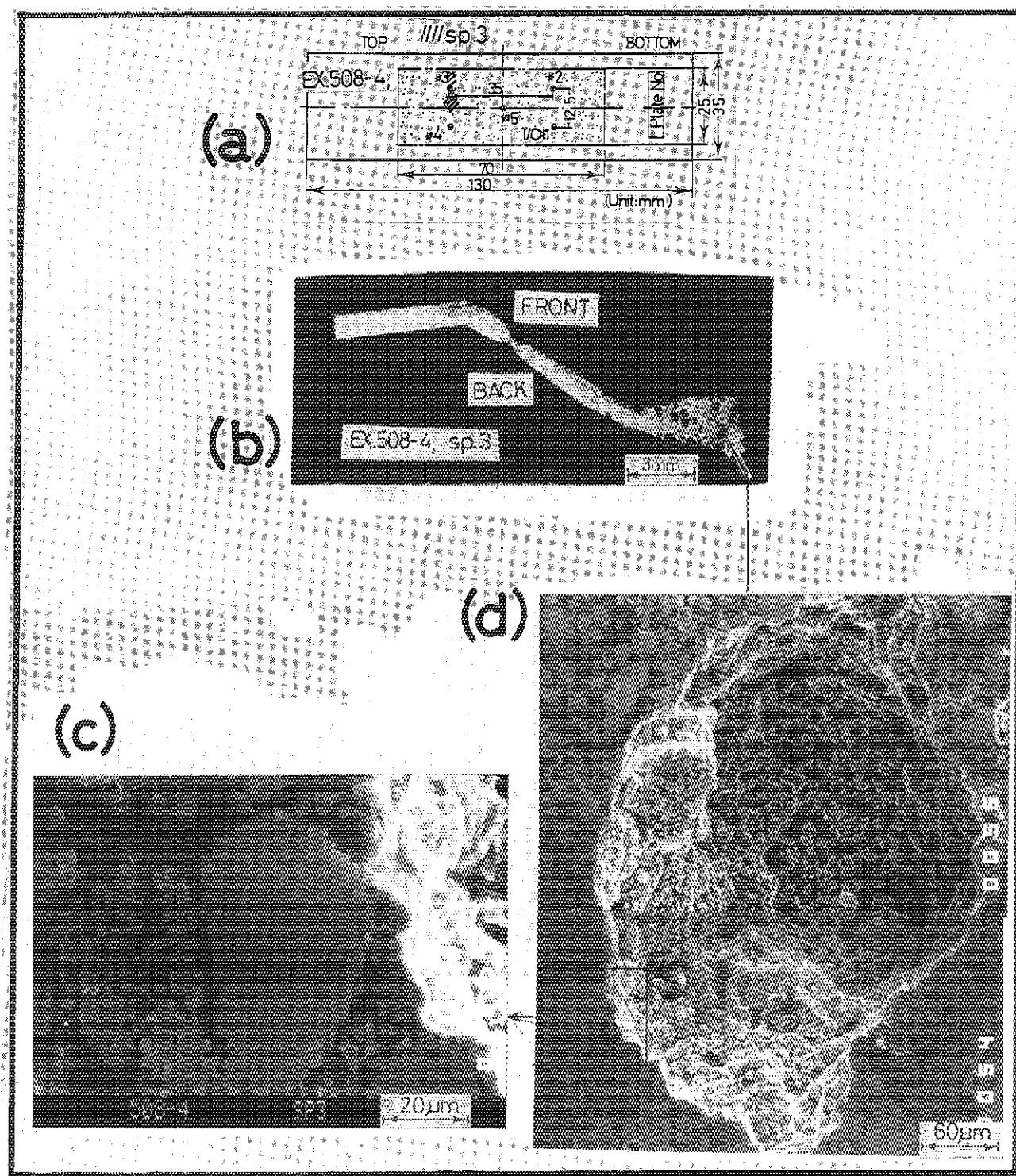


Photo. 4.2.12 SEM morphology of the specimen 2 (T/C #3, 652°C in peak temp.) which was cut transversally from the silicide fuel plate. Pulse irradiation was performed with 154 cal/g·fuel in Ex.508-4.

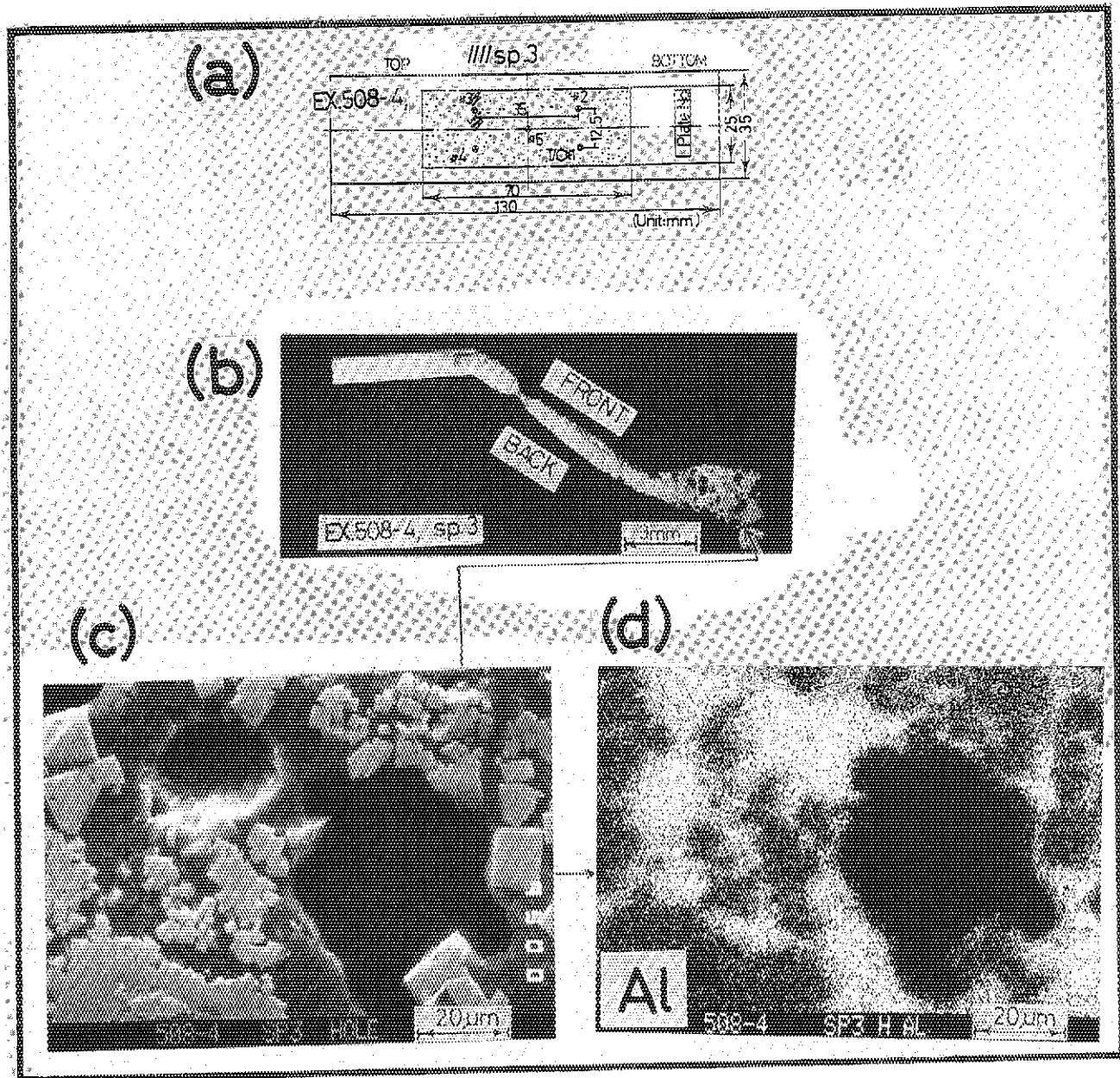


Photo. 4.2.13 SEM/XMA of the specimen 3 (T/C #3, 652°C in peak temp.) cut transversally from the silicide fuel plate. Pulse irradiation was made with 154 cal/g·fuel in Ex.508-4.

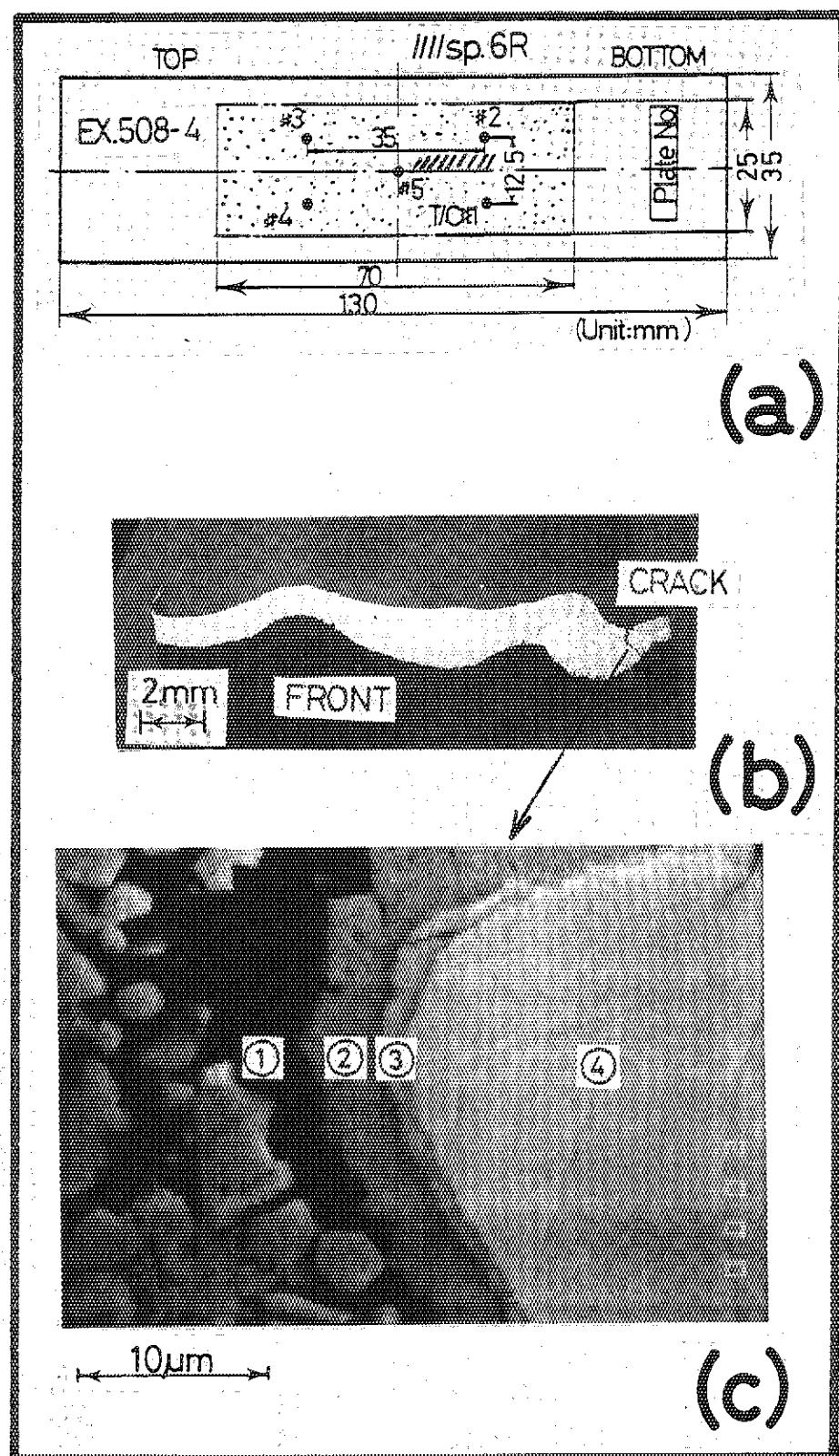


Photo. 4.3.1 Location of XMA point analysis to detect the existing metal elements at the place. (a) identification of specimen 6R (b) cross section of the specimen, (c) locations of XMA point analysis, where ① matrix, ② outermost (first) phase, ③ second phase, and ④ original meat.