

JAERI - M
91-191

84F-10A ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料
キャプセルの照射及び照射後試験

1991年11月

荒井 康夫・鈴木 康文・笹山 龍雄
岩井 孝・関田 憲昭・大和田 功
新見 素二・大道 敏彦

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

JAERI-M reports are issued irregularly.

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

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷機

84F-10Aウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャプセルの照射及び照射後試験

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

荒井 康夫・鈴木 康文・笹山 龍雄・岩井 孝

関田 憲昭⁺・大和田 功⁺・新見 素二⁺⁺・大道 敏彦

(1991年10月14日受理)

化学量論組成の異なるウラン・プルトニウム混合炭化物燃料(U, Pu)C_{1.0}及び(U, Pu)C_{1.1}ペレットをそれぞれ充填した2本の太径燃料ピン(外径9.4mm, 長さ250mm)を1体のキャプセル(84F-10A)に組み込み, JMTRにおいてピーク線出力59kW/mの条件で3.0%FIMAまで照射した。約4ヶ月冷却したのち, 照射キャプセルを東海研の燃料試験施設へ搬入して, 計37項目の非破壊及び破壊試験を実施した。

燃料ピンの断面写真から, 当初存在していた燃料ペレットと被覆管の間のギャップが閉塞されていることが確認された。燃料ペレット中心部においては, 製造時に存在していた微小な気孔が減少していたほか, 周辺部に比較して結晶粒の成長がみとめられた。開気孔率の高い(U, Pu)C_{1.1}燃料ピンの方が, (U, Pu)C_{1.0}燃料ピンに比較して高いFPガス放出率を示した。被覆管内面近傍で浸炭現象がみとめられたが, 燃料ピンの照射健全性に影響するものではなかった。

Post Irradiation Examinations of 84F-10A Capsule
Containing Uranium-plutonium Mixed Carbide Fuels

Yasuo ARAI, Yasufumi SUZUKI, Tatsuo SASAYAMA, Takashi IWAI
Noriaki SEKITA⁺, Isao OHWADA⁺, Motoji NIIMI⁺⁺ and Toshihiko OHMICHI

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

(Received October 14, 1991)

Two fuel pins filled with uranium-plutonium mixed carbide pellets having different stoichiometry, $(U,Pu)C_{1.0}$ and $(U,Pu)C_{1.1}$, were encapsulated in 84F-10A and irradiated in JMTR up to 3.0%FIMA at a peak linear power of 59kW/m. The capsule cooled for ~4 months was transported to Reactor Fuel Examination Facility and subjected to non-destructive and destructive post irradiation examinations.

It was found from the radial cross sections of fuel pins that the helium gap between the pellets and the cladding tube was completely closed. At the central part of the fuel pellets the number of small pores was decreased and the grain growth was observed compared with the outer zone. $(U,Pu)C_{1.1}$ pellets showed higher fission gas release ratio than $(U,Pu)C_{1.0}$ pellets because the former had relatively high open porosity. Although slight carburization was observed near the inner surface of cladding tube the interaction did not affect the fuel performance itself.

Keywords: Uranium-plutonium Mixed Carbide, Post Irradiation Examination, $\alpha\cdot\gamma$ Hot Cell, Fission Gas Release, Restructuring, Swelling, Fuel and Clad Chemical Interaction, Fuel and Clad Mechanical Interaction, Stainless Steel Cladding, Fuel Performance

+ Department of Hot Laboratories

++ Department of JMTR Project, Oarai Research Establishment

目 次

1. まえがき	1
2. 照射用燃料ピン及びキャプセルの設計並びに製作	2
2.1 混合炭化物燃料ピン	2
2.2 キャプセル, 84F-10A	2
3. JMTRによる照射	9
4. 照射後試験	12
4.1 照射後試験の概要	12
4.2 照射後試験の方法, 結果並びに考察	12
5. まとめ	91
参考文献	93

Contents

1. Introduction	1
2. Design and Fabrication of Fuel Pins and Capsule	2
2.1 Mixed Carbide Fuel Pins	2
2.2 Capsule, 84F-10A	2
3. Irradiation in JMTR	9
4. Post Irradiation Examinations	12
4.1 Scheme of Post Irradiation Examinations	12
4.2 Methods, Results and Discussion	12
5. Summary	91
References	93

1. まえがき

原研における、ウラン・プルトニウム混合炭化物（以下、混合炭化物と略す）燃料の照射試験は、高速炉用新型燃料の健全性評価を目的として、昭和58年以降継続的に実施されている。これまでに、JRR-2及びJMTRを利用して4体のキャプセル、計8本の燃料ピンの照射を完了した。このうち、JRR-2で照射した2体のキャプセル（ICF-37H及びICF-47Hキャプセル）計4本の燃料ピンの照射後試験の結果については先に報告し、燃焼度1.5%FIMAまでの照射挙動について検討を加えている^{1, 2)}。

本報告書は、昭和61年5月から平成元年2月にかけて、JMTRで12サイクル、ピーク線出力59kW/mの条件の下で3.0%FIMAまで照射した混合炭化物燃料ピン2本の照射後試験の結果をまとめたものである。なお、当燃料ピン2本の特性については、既にその製作に関する報告書があるので、詳細に関しては参照されたい³⁾。

2. 照射用燃料ピン及びキャプセルの設計並びに製作³⁾

2.1 混合炭化物燃料ピン

照射した2本の燃料ピンは同一形状であり、それらの構成、寸法等はFig. 2.1に示すとおりである。燃料ピンの外径は、炭化物燃料の良好な熱伝導特性を生かすために外径9.4mmの太径を採用し、その全長は250mmである。化学量論的組成(U, Pu)C_{1.0}及び超化学量論的組成(U, Pu)C_{1.1}の混合炭化物燃料ペレットを充填した燃料ピンを、それぞれ84F-10-1及び84F-10-2と呼称することとする。Table 2.1には2本の燃料ピンの特性をまとめて示した。化学分析から求めた燃料ペレット中のC/(U+Pu)原子比は1.01並びに1.10、Pu/(U+Pu)原子比は0.194並びに0.197である。ペレットの密度は、照射下の燃料-被覆管機械的相互作用(FCMI)の緩和を目的として、81~84%T.D. (理論密度)と低密度を採用した。直径8.23mmの燃料ペレットと被覆管の間隙は直径で0.15mmで1気圧のヘリウムガスが充填されており、当燃料ピンのスミア密度は79~82%T.D.に相当する。混合炭化物燃料のスタック長はともに100mmであり、この上下に高さ8mmのUCペレットが断熱用に配置されている。被覆管には米国FFTFの第IV次炉心に採用された、外径9.4mm、肉厚0.51mmの316相当のステンレス鋼管を用いている。また、スプリングはインコネル合金製である。

製作を完了した燃料ピンは、ヘリウムリーク試験及びX線透過試験により、溶接部に欠陥のないことを確認したのち、キャプセルに組み込んだ。燃料ピンの構成材及び外観をPhoto 2.1に、X線透過像をPhoto 2.2に示す。

2.2 キャプセル、84F-10A

キャプセルの設計及び製作は、材料試験炉部照射1課並びに技術部工作課により行われた。

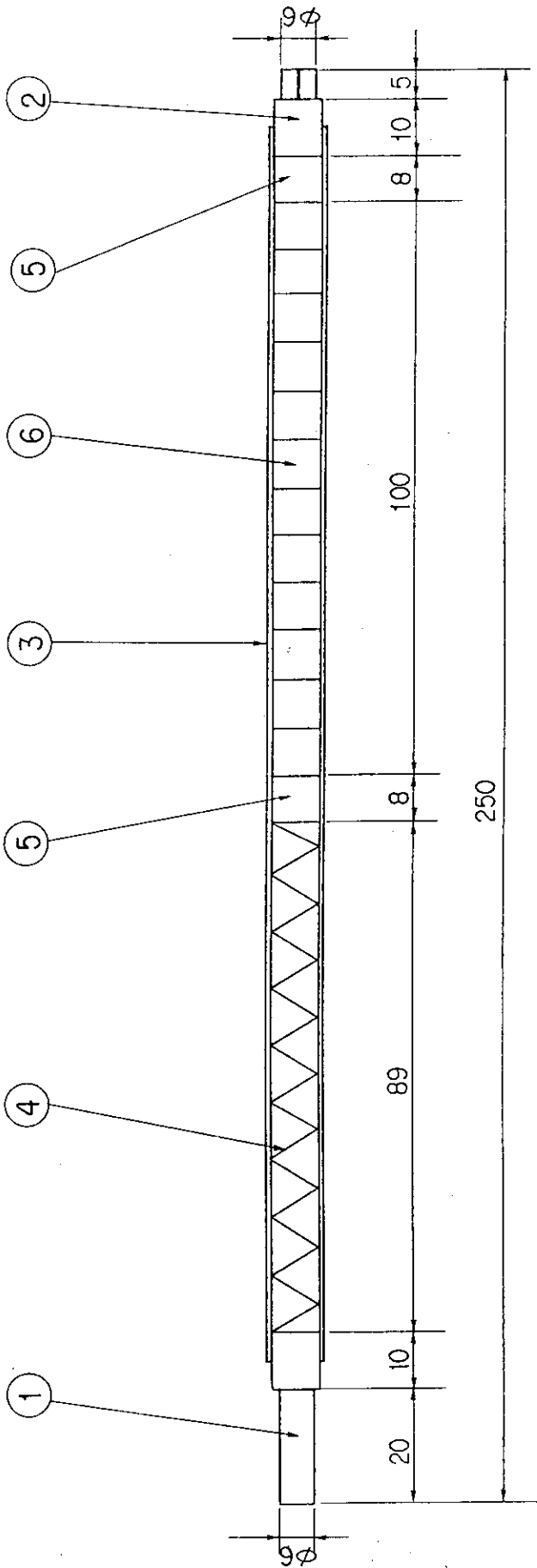
キャプセルの断面図をFig. 2.2に示す。基本的には、JRR-2で照射したICF-37H及びICF-47Hと同じ構造である^{1, 2)}。被覆管と304ステンレス鋼管内筒の間には、熱媒体としてNaK合金が充填されている。また、外筒も304ステンレス鋼製であり、内外筒間の熱媒体にはアルミ合金が用いられている。

84F-10Aキャプセルの組立図をFig. 2.3に示す。インコネルまたはステンレス鋼シースのクロメル-アルメル熱電対8本のうち4本はNaK中に、残り4本はアルミ合金熱媒体中にそれぞれ挿入されている。また、熱及び速中性子用の中性子束モニタが、2本の燃料ピンのそれぞれの燃料スタック中心位置近くに組み込まれている。

84F-10Aキャプセルの構成部品及び完成したキャプセルの本体部をPhoto. 2.3に示す。

Table 2.1 Characteristics of fuel pins in 84F-10 capsule

Fuel pin		84F-10-1	84F-10-2
Pin length	(mm)	249.5	249.6
Mixed carbide fuel length	(mm)	100.0	100.0
Outer diameter	(mm)	9.39	9.39
Weight	(g)	113.8	110.8
Fuel pellet			
Material		(U,Pu)C	(U,Pu)C
C/(U+Pu) ratio		1.01	1.10
Pu/(U+Pu) ratio		0.194	0.197
Pellet diameter	(mm)	8.230	8.230
Pellet density	(%T.D.)	84	81
Smear density	(%T.D.)	82	79
Cladding tube			
Clad material		20%CW SUS316	20%CW SUS316
Clad thickness	(mm)	0.51	0.51
Pellet-clad diameter gap	(mm)	0.15	0.15
Bonding material		Helium	Helium



No.	Items	Material	Dimension
1	Upper endplug	SUS 316L	
2	Lower endplug	SUS 316L	
3	Cladding tube	SUS 316	9.40 φ × 0.5lt
4	Spring	Inconel	
5	Thermal insulator pellet	UC	8.23 φ × 8 ℓ
6	Fuel pellet	(U,Pu)C	8.23 φ × 8 ℓ

Fig. 2.1 Structure of mixed carbide fuel pin for irradiation test

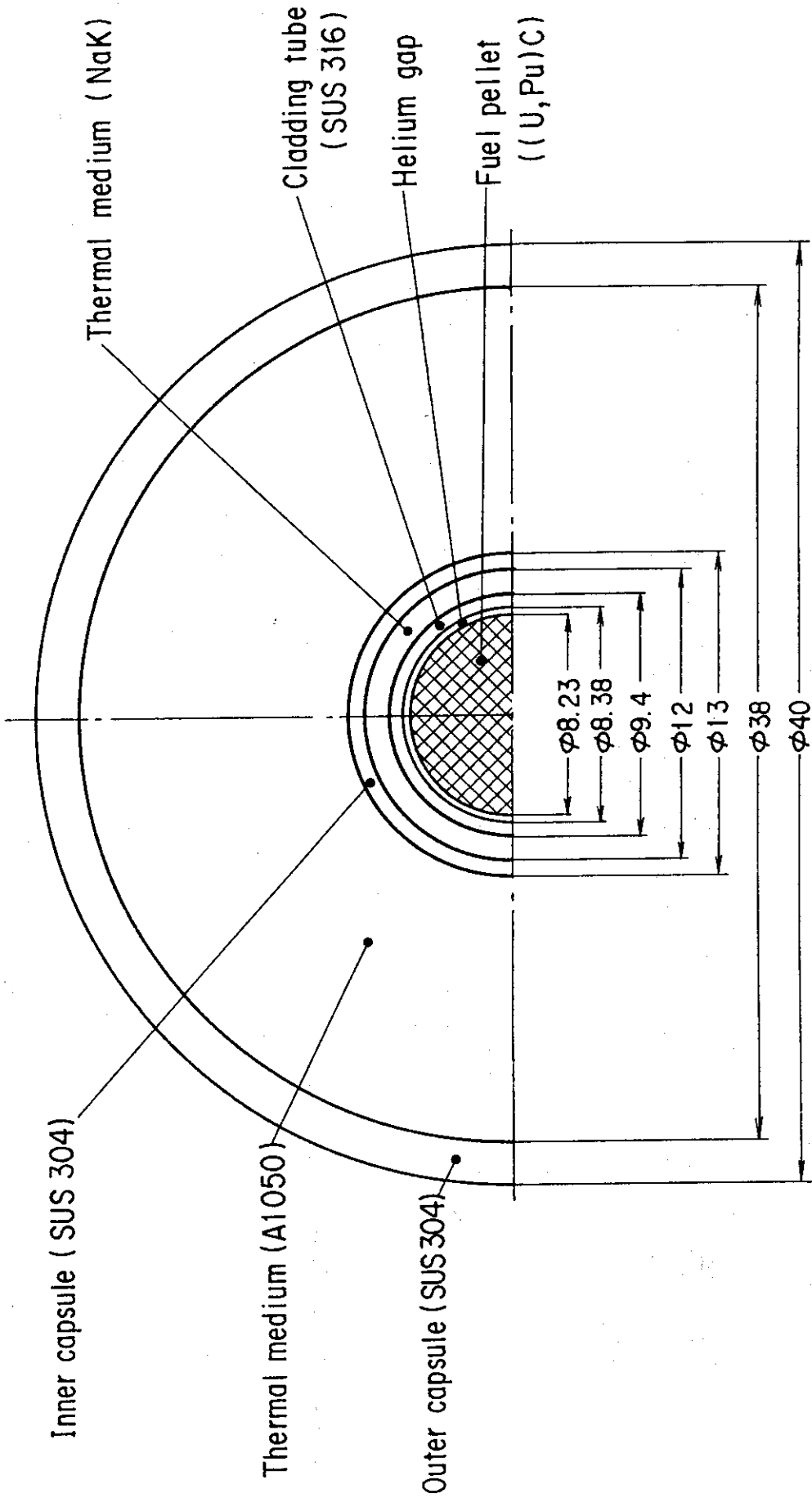


Fig. 2.2 Cross section of 84F-10A capsule

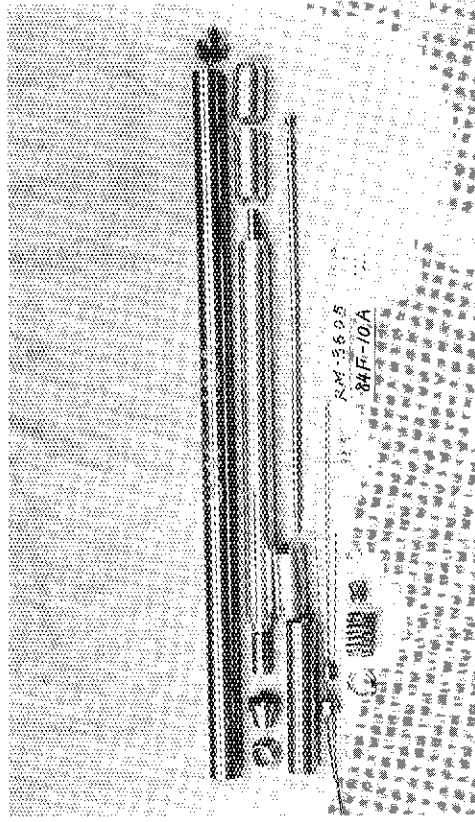
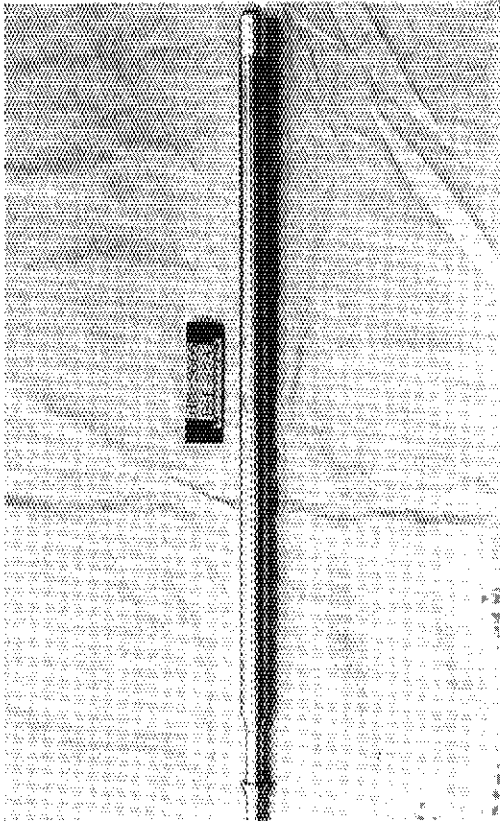


Photo. 2.3 External view of 84F-10A capsule

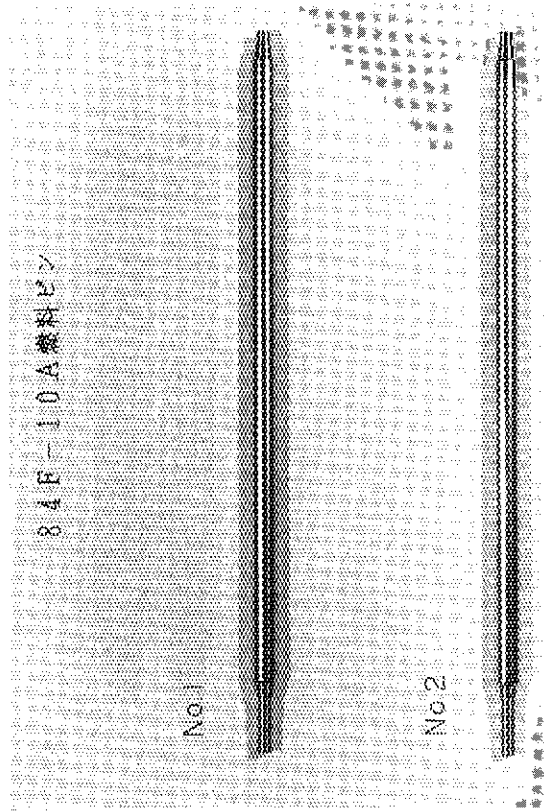
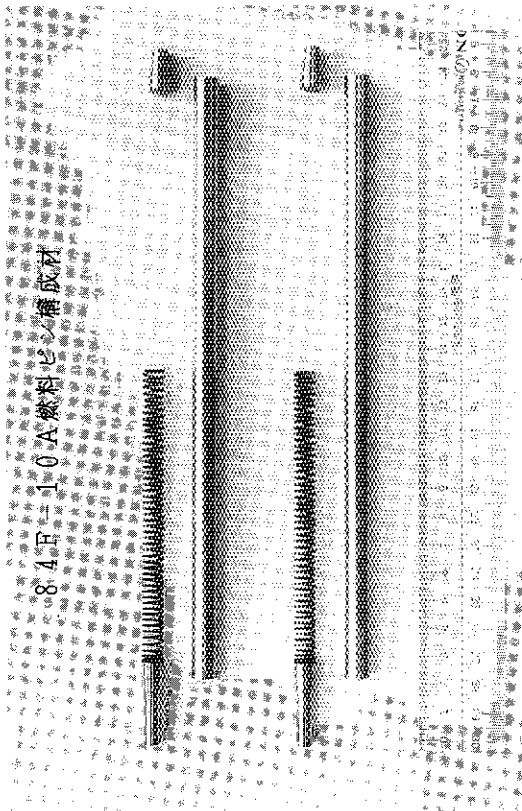


Photo. 2.1 External view of mixed carbide fuel pins

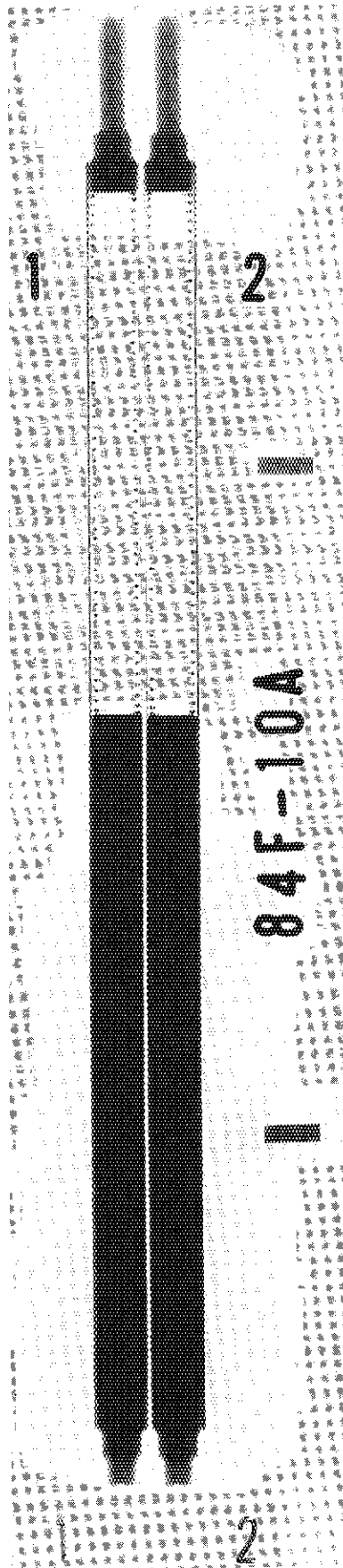


Photo. 2.2 X-ray radiograph of mixed carbide fuel pins

3. JMTRによる照射

84F-10A キャプセルは、昭和61年5月21日から平成元年2月26日まで、JMTR炉心外照射孔0-7で12サイクル（延べ6,143時間）照射された。その照射履歴をTable 3.1に示す。

照射中の8本の熱電対の温度指示記録をFig. 3.1に示す。燃料スタックの中心位置近くのNaK中に挿入した熱電対の温度は、84F-10-1ピン周辺では(T/C1及びT/C2) 330~410℃、84F-10-2ピン周辺では(T/C1及びT/C2) 330~390℃、一方、内外筒間の熱媒体中に挿入した熱電対(T/C4~T/C8)の温度は200~230℃であった。照射初期と照射末期での温度指示の比較では、NaK中で約20~30℃、内外筒間の熱媒体中で約10℃の温度の低下が照射中に見られている。Fig. 3.2にはGENGTCコードにより評価したキャプセル内の半径方向の温度分布を示した。これを用いてNaK中に挿入した熱電対の温度指示から本燃料の線出力を推定すると、ピーク値で約59kW/mとなる。この場合の燃料ペレットの中心温度は約1220℃に相当する。

燃焼度は3.0%FIMA (26,000Mwd/t)に達した。

照射終了後、JMTRの冷却チャンネルで約4ヶ月の冷却を行った後、材料試験炉部ホットラボ課所有のJMHL-78Y15T型キャスクを用いて、キャプセルを東海研燃料試験施設まで輸送した。

Table 3.1 Irradiation history of 84F-10 capsule in JMTR

Irradiation cycle			Irradiation time (hr)
74 cycle	1986. 5.21~1986. 6.15		529.0
75 cycle	7. 8~	8. 2	528.1
76 cycle	11.28~	12.23	526.9
77 cycle	1987. 1.28~1987. 2.22		529.5
78 cycle	3.17~	4.11	527.5
79 cycle	6. 2~	6.27	484.0
80 cycle	1988. 2. 2~1988. 2.28		526.6
81 cycle	3.23~	4.17	527.3
82 cycle	6. 1~	7. 2	440.6
83 cycle	10.13~	11. 8	473.1
84 cycle	11.29~	12.24	526.8
85 cycle	1989. 2. 1~1989. 2.26		524.1

Total irradiation time: 6143 hrs

Cycle		74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85
No.1 T/C	max. (°C)	399	414	426	402	391	410	409	396	383	397	381	372
	min. (°C)	382	392	396	380	382	388	381	387	370	380	369	359
	ave. (°C)	387	400	403	385	385	396	390	389	376	384	373	364
No.2 T/C	max. (°C)	385	396	389	366	356	372	369	361	354	365	351	341
	min. (°C)	379	374	362	348	347	352	345	352	340	349	339	331
	ave. (°C)	382	380	370	351	351	360	353	355	345	353	343	335
No.3 T/C	max. (°C)	374	387	383	364	349	360	356	354	348	353	345	343
	min. (°C)	359	365	356	336	337	348	343	347	334	346	337	331
	ave. (°C)	367	369	360	342	344	353	350	350	341	349	341	336
No.4 T/C	max. (°C)	378	386	387	370	356	366	364	362	356	362	350	348
	min. (°C)	356	364	357	340	342	354	348	354	341	353	344	336
	ave. (°C)	372	368	361	346	349	359	356	358	349	357	348	341
No.5 T/C	max. (°C)	244	245	244	230	227	237	235	230	226	234	224	220
	min. (°C)	232	234	230	220	221	226	222	225	220	225	218	213
	ave. (°C)	235	237	234	223	223	230	227	228	222	227	220	216
No.6 T/C	max. (°C)	219	224	223	212	210	217	212	212	210	215	207	204
	min. (°C)	213	216	212	204	204	209	204	207	204	207	201	197
	ave. (°C)	217	218	215	206	206	212	209	209	206	209	203	199
No.7 T/C	max. (°C)	214	221	220	213	210	213	210	210	208	210	203	202
	min. (°C)	206	212	209	201	201	207	205	205	202	204	199	196
	ave. (°C)	212	214	212	204	205	210	208	207	205	207	201	199
No.8 T/C	max. (°C)	217	222	220	212	209	212	209	208	207	208	202	201
	min. (°C)	208	212	208	200	200	206	203	204	201	203	198	195
	ave. (°C)	213	214	210	203	204	209	206	205	203	205	200	197

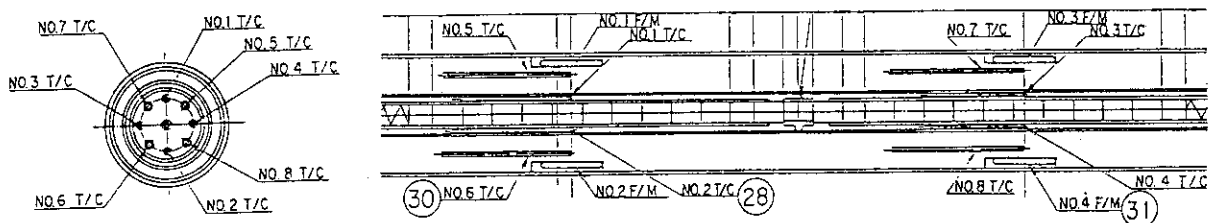


Fig. 3.1 Temperature record of 84F-10A capsule under irradiation

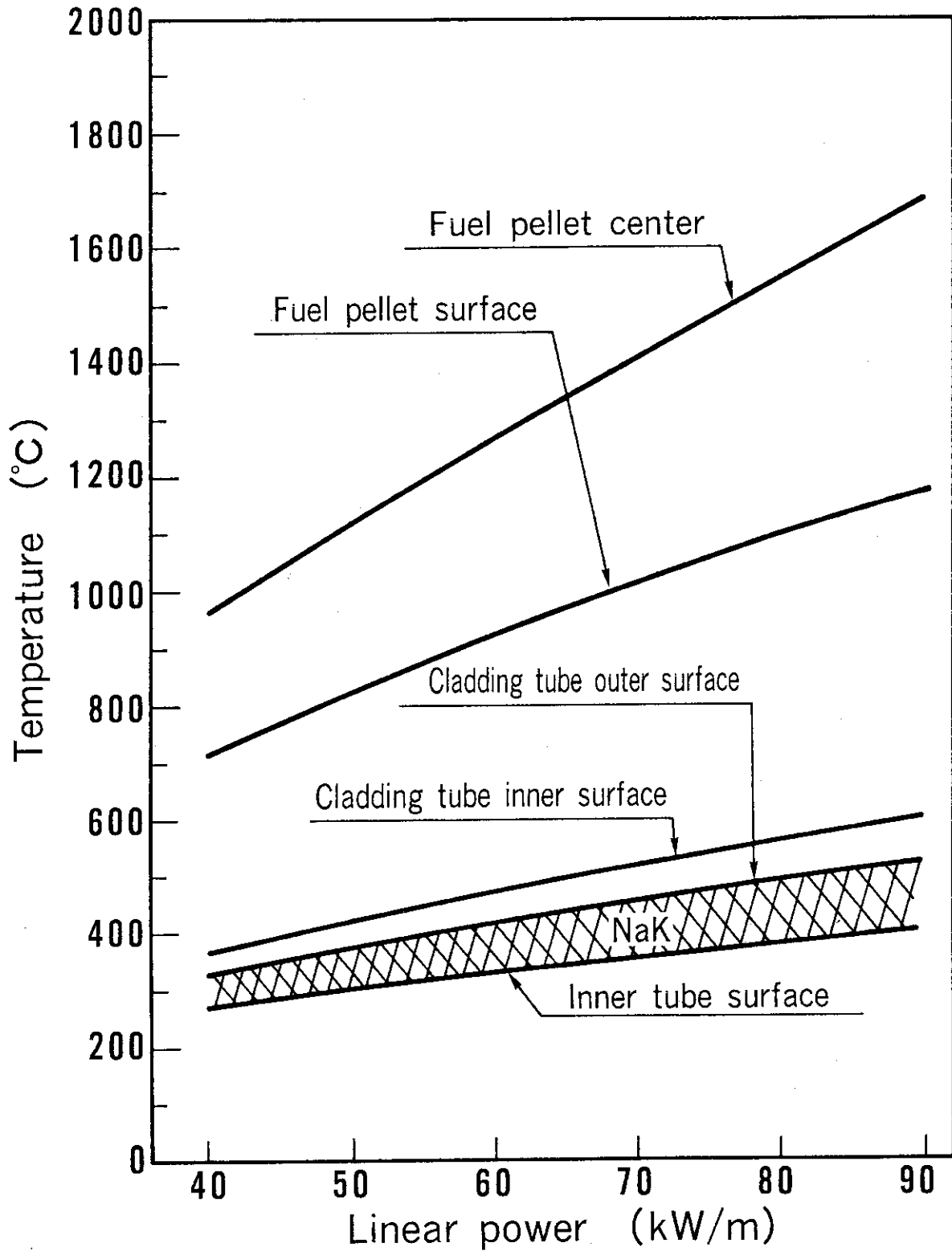


Fig. 3.2 Radial temperature distribution in 84F-10A capsule as a function of linear power

4. 照射後試験

照射後試験は、第1回照射 (ICF-37H キャプセル)、第2回照射 (ICF-47H キャプセル) と同様に東海研燃料試験施設において実施した。同施設のセル等の配置については既に報告しているので参照されたい¹⁾。

4.1 照射後試験の概要

照射後試験に先立ち、関係課室と協議の上、照射後試験計画書を作成した⁴⁾。試験内容は前回までとほぼ同様であるが、今回新たに燃料ペレット断面のEPMA観察を追加し、全体で37項目にのぼる。

試料番号、試料数と合わせて照射後試験のフローをFig. 4.1に示す。このうち作業番号1~11は $\beta \cdot \gamma$ セルで行い、作業番号12に従って試料を $\alpha \cdot \gamma$ セルに搬入した後、作業番号13~31を同セルで行った。被覆管についての作業番号33~36は $\alpha \cdot \gamma$ セルまたは $\beta \cdot \gamma$ セルで行い、作業番号37についてはセル外に設置されているEPMAで行った。作業番号32の燃料ペレット断面のEPMA観察を除き、照射後試験は全て平成2年度内に終了した。 $\alpha \cdot \gamma$ セル内の雰囲気としては、作業番号15の寸法検査以前及び作業番号24の金相試験前処理以降は空気雰囲気で行い、作業番号16の燃料ピンのパンクチャ試験から作業番号23の開気孔率測定までをアルゴンガス雰囲気 (酸素 100~110 ppm、水分 100~110 ppm) で行った。

4.2 照射後試験の方法、結果並びに考察

以下、照射後試験の各作業項目についてその方法及び得られた結果について述べる。

4.2.1 キャプセルの搬入

JMTRでの照射を終了した84F-10A キャプセルは、約4ヶ月間同炉冷却カナルに保管後、大洗研から東海研への輸送を経て、燃料試験施設に搬入した。

4.2.2 キャプセルの外観検査

搬入したキャプセルの表面の変色、変形等について目視検査を行った後、キャプセル名称刻印側面を 0° とし、 0° 及び 180° の2側面の写真撮影を行った。外観写真をPhoto. 4.1に示す。

キャプセル表面の刻印は容易に確認できたが、表面全体に薄い斑模様が観察された。

4.2.3 キャプセルのX線透過撮影

用いたX線透過撮影装置及び撮影条件は前回までの試験と同一である。X線撮影の方向はキャプセル番号が刻印された場所を 0° として、 0° 及び 90° の2方向について撮影した。

キャプセルのX線透過像をPhoto. 4.2に示す。内筒、燃料ピンとも異常は認められない。

4.2.4 キャプセルの放射線測定

キャプセルの γ 線量率の測定は、550型ラドコン線量計を用いて、キャプセルからの距離及びキャプセルの軸方向の分布について行った。前者では、 γ 線測定プローブをキャプセル下端から37cmの位置に固定し、キャプセルを水平に移動させて放射線量率を測定した。後者では、キャプセルとプローブの距離を20cmに固定し、上下に最大90cm移動させて測定した。測定時のジオメトリ及び測定結果をTable 4.1に示す。燃料ピン内の核燃料物質質量及び燃焼度の増大に伴い、ICF-37H キャプセルの場合¹⁾と比較して10倍強、ICF-47H キャプセルの場合²⁾と比較して3倍強の線量率が測定された。

4.2.5 外筒解体及び中性子束モニタの回収

作業は以下の手順で行った (Fig. 2.3の84F-10Aキャプセル構造図参照のこと)。

- 1) 外筒上部端栓部付近に示してある \cup の場所から約17cm下部の位置をダイヤモンド切断機で切断した。
- 2) 外筒下部端栓部付近に示してある \cup の場所を切断した。
- 3) リュータにより端面を処理した後、スペーサ③及び④を取り出し内筒熱媒体を引抜いた。
- 4) 内筒熱媒体を外筒から引抜きながら、中性子束モニタ4個を回収した。
- 5) 最後に熱電対のリード線を切断した。

外筒からの内筒熱媒体の引抜き作業はスムーズに行うことができた。但し、引抜き時のハンドリングにより内筒熱媒体表面に汚れ及び多少の傷が生じた。

4.2.6 中性子束モニタの搬出及び中性子照射量

84F-10A キャプセルの積算中性子照射量を求めるために、内筒外表面の燃料スタックの中央位置に組み込んだ中性子束モニタ4個を外筒解体時に回収した。回収した中性子束モニタは、小型キャスクに収納し、さらにL型輸送容器に梱包してJMT Rまで輸送して、材料試験炉部計画課で放射能測定を行うことにより、キャプセルの中性子照射量を算出した。

中性子束モニタの装荷位置については、Fig. 2.3並びにFig. 3.1にも示されている。熱及び速中性子の積算照射量をFig. 4.2、Fig. 4.3中にそれぞれ示す。84F-10-1及び84F-10-2燃料ピンのそれぞれの燃料スタック中央部に対応する位置に各2組の中性子束モニタが配置されたが、積算照射量は前者については、熱中性子フルエンスは $9.19 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心内側) 及び $6.57 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心外側)、速中性子フルエンスは $3.71 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心内側) 及び $2.99 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心外側) である。一方後者については、熱中性子フルエンスは $8.55 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心内側) 及び $6.09 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心外側)、速中性子フルエンスは $3.35 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心内側) 及び $2.71 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (炉心外側) である。両者の差は、Fig. 4.2及びFig. 4.3に示した軸方向の炉中心位置からの距離の差に起因している。

4.2.7 内筒外観検査

取り出した内筒表面の外観検査を目視により行った。検査の結果、変色変形等の有害な欠陥は認められず、良好であった。内筒表面をアルコールでふきとり、中性子束モニタ取付け部を0°

として 0° 及び 180° の 2 側面からの写真撮影を行った。外観写真を Photo. 4.3 に示す。

4.2.8 内筒解体及び NaK 処理

NaK キャプセル開封処理装置を使用して、次の手順で内筒を解体した (Fig. 2.3 84F-10A キャプセル構造参照のこと)。

- 1) 端栓品番㊸とスペーサ品番㊹の間を切断した。
- 2) 燃料ピン 2 本を NaK と共に内筒より引出し、内筒共々処理槽に移した。
- 3) 処理槽内で NaK を n-ブタノールで少量ずつ反応させて処理した。
- 4) NaK 処理後、処理槽より 2 本の燃料ピンを取出し、識別を行った。

前述したように、燃料ピンは、化学量論的組成 $(U, Pu)C_{1.0}$ のペレットを充填したものを 84F-10-1、超化学量論的組成 $(U, Pu)C_{1.1}$ のペレットを充填したものを 84F-10-2 と呼称した。

4.2.9 燃料ピンの外観検査

燃料ピン 2 本の外観観察は、マクロ観察ステージに燃料ピンをセットし、ステージを移動させて、燃料ピンの前面について行った。

外観撮影は、 0° 及び 180° の 2 方向について行った。燃料ピン 84F-10-1 及び 84F-10-2 の外観を Photo. 4.4 及び Photo. 4.5 にそれぞれ示す。

燃料ピンの表面は、2 本とも下部から約 20mm の位置から中央付近までの範囲で金属光沢の減少が見られ、その一部は無光沢の薄い黒色を呈していた。84F-10-1 及び 84F-10-2 ピン共に、下部から約 30mm の位置でスポット状の傷が観察された。燃料ピン表面には、ごく浅い軸方向の擦傷が多少観察されたが、それ以外のピンホール、腐食及び変形等の異常は認められなかった。

2 本の燃料ピンは互いの下部端栓を突き合わせる形でキャプセルに組み込まれているので、上述の燃料ピン外表面の光沢が減少した部分は、燃料スタックのうち発熱量 (中性子束) の高い部分に相当している。

4.2.10 燃料ピンの放射線測定

燃料ピンの放射線測定は、4.2.4 項のキャプセルの放射線測定とほぼ同様の手順で行った。すなわち、燃料ピンをセル内で鉛直に保持し、燃料ピン上端より約 12cm (中央部) の位置において表面より水平方向に 25cm 間隔で 4 点測定した。得られた結果を Table 4.2 に示す。前報²⁾中の、ICF-47-1 及び ICF-47-2 ピンと比較すると 2~3 倍の線量率を示した。

4.2.11 燃料ピンの X 線透過撮影

燃料ピンの X 線透過撮影は、4.2.3 項で述べたキャプセルの X 線透過撮影と同様な方法で行った。撮影条件も同一とした。燃料ピン方向が刻印されている面がフィルム側に向けた方向を 0° として、 0° 及び 90° の 2 方向について撮影した。2 本の燃料ピンの X 線透過像を Photo. 4.6 に示す。2 本の燃料ピンとも、ペレットと被覆管のギャップはほとんど認められなかった。84F-10-2 ピンの最上部のペレットと 2 番目のペレットの間にわずかなギャップが認められた。

4.2.12 燃料ピンの移送

β ・ γ コンクリートセルから、パデラックキャスクを用いて、 α ・ γ コンクリートセルへ燃料ピン2本を搬入した。

4.2.13 燃料ピンの重量測定

2本の燃料ピン表面をエチルアルコールを用いて拭き取り、洗浄したのち、上皿電子天秤（メトラ社製、PL1200型）を使用して重量を測定した。測定精度は $\pm 0.01\text{g}$ である。84F-10-1及び84F-10-2についての重量は、それぞれ114.02g及び111.03gであった。製作時はそれぞれ113.8g及び110.8gであり、前報²⁾同様にごく僅かな重量増加が観測された。

4.2.14 燃料ピンの γ 線スキャンニング

燃料ピンを γ 線スキャンニング装置に装着し、燃料ピンの軸方向について γ 線スキャンニングを行うとともに、いくつかの定点において γ 線スペクトル分析を行った。用いた装置は前報²⁾で紹介したものと同様である。下部端栓位置をゼロ点とし、そこからコリメータスリット軸芯までの距離を上下位置とした。全 γ 線の測定では、軸方向に一定速度で燃料ピンを移動させながらその強度分布を連続測定した。また、代表的なFP元素である ^{106}Rh (622keV)、 ^{137}Cs (662keV)、 ^{144}Pr (697keV)、 ^{95}Zr (757keV)及び ^{134}Cs (796keV)についても γ 線スキャンニングを行った。この場合は、測定開始点より一定間隔(0.5mm)で燃料ピンを下方へ移動して、各ステップで一定時間、特定の γ 線を測定した。さらに、次の各定点において γ 線スペクトル分析を行った。

燃料ピン	測定部位	上下位置(mm)
84F-10-1 (U, Pu)C _{1.0}	a. (U, Pu)C スタック中央部	73.0
	b. ピン上部UC断熱ペレット部	127.0
	c. プレナム部	177.5
84F-10-2 (U, Pu)C _{1.1}	a. (U, Pu)C スタック中央部	73.0
	b. ピン上部UC断熱ペレット部	127.0
	c. プレナム部	177.5
	d. 上部端栓 (特異部)	222.4

はじめに、軸方向の全 γ 線の測定結果について述べる。Fig. 4.4及びFig. 4.5には84F-10-1、84F-10-2燃料ピンについての全 γ 線スキャンニングの結果をそれぞれ示す。両者とも(U, Pu)C燃料ペレットとUC断熱ペレットの境界で鋭いピーキングが起きているのが観察される。(U, Pu)C燃料スタック部に比べて、これらのピーク頂上では γ 線量率が2~3割も高いことがわかる。このピーキングは、軸方向からの中性子が両端の(U, Pu)Cペレットに入射するために生じたものである。2本の燃料ピンの(U, Pu)C燃料スタック部の γ 線量率を比較すると、84F-10-1ピンの方が幾分高い。また、(U, Pu)C燃料スタックの上部側から下部側にかけて γ 線量率はゆるやかな増加傾向を

示し、これは84F-10-2ピンについての方が顕著である。これらの結果は、4.2.6項で述べた中性子照射量の結果と合致している。両者ともプレナム部に非常になだらかな傾きを持つ γ 線量率が観察されたほか、84F-10-2ピンではさらに上部端栓部に明瞭なピークが観察された。この結果については、以下の各元素ごとの γ 線スキャンの結果の中で触れる。

Fig. 4.6及びFig. 4.7には、84F-10-1及び84F-10-2燃料ピンについて、前述した代表的なFP元素の γ 線スキャンの結果をそれぞれ示す。 ^{95}Zr 、 ^{106}Rh 及び ^{144}Pr については、両燃料ピンとも(U,Pu)C燃料ペレットとUC断熱ペレット上のみ存在し、その分布はFig. 4.4及びFig. 4.5に示した全 γ 線の測定結果と類似している。 ^{144}Pr の分布が(U,Pu)C燃料スタック上で見かけ上げらついているのは、カウント数自体が少ないが故に生じた統計的変動のためと推定される。一方、 ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の分布については(U,Pu)C燃料ペレットとUC断熱ペレット部に留まらず、一部がプレナム部にまで移行しているのが観察され、さらに84F-10-2ピンについては上部端栓部に沈着しているのも観察された。この結果並びに後述する定点における γ 線スペクトル分析の結果から、Fig. 4.4及びFig. 4.5中のプレナム部や上部端栓部で見られた γ 線量率も、ほぼ全量がCsに起因するものと推定された。なお、プレナム部に燃料からCsが移行した現象は前報²⁾の中でも同様に観測されている。今回プレナム部で観察されたCsは、半揮発性FPの振る舞いをして、燃料ペレットから放出された後に温度勾配に沿って低温のプレナムまで移行し、スプリングあるいは被覆管内面に沈着したものと推定される。一方、84F-10-2ピンの上部端栓部で見られたCsについても上述のメカニズムに沿って移行したものが沈着されたものと思われるが、一部は放出された核分裂ガスのXeの放射線壊変或いは(n, γ)反応を経て生成された可能性も否定できない。

定点の γ 線スペクトル分析について、その代表例として燃料ペレット中央部での結果を2本の燃料ピンについてFig. 4.8及びFig. 4.9に示す。また、特異部として上述した84F-10-2ピンの上部端栓部について行った結果をFig. 4.10に示す。Fig. 4.8及びFig. 4.9を見ると、両者の放射線強度及び存在核種にほとんど差異はなく、代表的なFP元素であるCs, Pr, Zr, Nb, Rh, Sb等のピークが見られるほか、被覆材の放射化によるものと推定される ^{54}Mn 、 ^{58}Co 、 ^{60}Co も検出されている。特異部として取り上げた γ 線スペクトル(Fig. 4.10)の中で観察されたのは、上述の被覆材の放射化によるものを除けば、全てがCsのピークであることがわかる。このほか、UC断熱ペレット部の定点測定では、UとPuによるFP元素の収率の差がみとめられたほか、プレナム部での定点測定ではFPとしてはやはりCsの存在がみとめられている。

4.2.15 燃料ピンの寸法及び曲り測定

燃料ピンの長さ測定は300mm用のノギスを用いて行い、その測定精度は $\pm 0.1\text{mm}$ である。測定結果をTable 4.3に示す。照射前の値と比較しても、照射による有意な寸法変化はみとめられていない。

燃料ピンの直径及び曲りの測定はプロフィロメトリにより行い、測定精度は直径については $\pm 0.005\text{mm}$ 、曲りは $\pm 0.05\text{mm}$ である。84F-10-1及び84F-10-2燃料ピンについて、 0° 、 45° 、 90° 及び 135° の4方向について測定した直径のデータをFig. 4.11からFig. 4.18までに、また曲りのデータをFig. 4.19からFig. 4.26までに示す。

直径については、照射後の(U,Pu)Cスタックで最大 $\sim 0.03\text{mm}$ ($\Delta D/D$ では $\sim 0.3\%$)の増加が見

られるが、この結果のみではこれがFCMIに起因したものかどうかは断定できない。

曲りは、84F-10-1燃料ピンでは最大で $\sim 0.08\text{mm}$ 観察されたが、84F-10-2燃料ピンでは最大でも 0.04mm 以下であり、測定精度内であった。この程度の曲りは、キャプセル内において燃料ピンにかかる機械的応力に起因するものと推定された。

4.2.16 パンクチャ試験

パンクチャ試験では、燃料ピンに穿孔してピン内のガスを捕集して体積を推定し、さらに組成を分析することにより、FPガスの放出量及びその組成についてのデータを取得した。

α ・ γ コンクリートセル内に穿孔機構部があり、配管を介してセル外のガス捕集部の容器内にガスは捕集される¹⁾。それぞれの燃料ピンについて2本の捕集容器(内容積 150cm^3)を用い、プレナム部を穿孔後、1本目は単に平衡させた圧力でガスを採取し、もう1本には残ガスをテブラーポンプで汲み上げて採取した。燃料ピン内部空隙容積についての測定精度は $\pm 0.1\text{cm}^3$ 、燃料ピン内部ガス圧力についての測定精度は $\pm 1 \times 10^2 \text{ Pa}$ である。

2本の燃料ピンについて得られたパンクチャ試験データをTable 4.4 に示す。燃料ピン内の全ガス量(製作時に封入したヘリウムガス及び放出されたFPガス)は、84F-10-1及び84F-10-2燃料ピンについて標準状態でそれぞれ 7.57cm^3 、 11.07 cm^3 であった。ガスの組成分析については次項で述べる。

4.2.17 FPガスの組成分析及び放出率

パンクチャ試験で捕集したガスの組成分析を、ガスクロマト質量分析計を用いて行った。得られた結果をTable 4.5 に示す。表中の酸素及び窒素は主としてガス捕集系における空気の漏れ込みによるものと推定される。少量のアルゴンも検出されているが、これは燃料ピン製作時にグローブボックスを置換した際の残存によるものと考えられる。

捕集したキセノンとクリプトンの同位体組成については、2本の燃料ピンの間で有意な差はみとめられなかった。また、2本の燃料ピンについて求められたキセノン/クリプトン比は17.2及び17.6でほぼ同一であった。これらの値はORIGENコードで計算した生成量の比15.6に近いものであり、キセノンとクリプトンの放出率に関しても大きな差は無いことが確認された。

測定されたガス組成にTable 4.4 中に示したガス捕集量を乗じることにより、捕集されたキセノン及びクリプトンの量を求めた。両者の合計は、84F-10-1ピンで 2.62cm^3 、84F-10-2ピンでは約2倍の 5.56cm^3 であった。これらの値を、ピーク線出力 59kW/m を仮定してORIGENコードによる計算から求めた生成量 42.90cm^3 及び 40.55cm^3 でそれぞれ除することにより、FPガスの放出率として6.1%及び13.7%の値を得た。これを前々報¹⁾(ICF-37H キャプセル、放出率1%以下)、前報²⁾(ICF-47H キャプセル、放出率9.4%)と比較して検討すると、ICF-37H キャプセルの場合は、燃料の中心温度が低いこと(1000°C 以下)のほか、燃焼度が低いこと(1.2%FIMA)、ペレット密度が高いこと(90%T.D.以上)等の要因があいまって1%以下の低い放出率になったと思われる。一方、燃料中心温度が今回に近い前報中の放出率との比較に関しては、これに深く関係していると考えられる密度、気孔率の試験結果の中で触れる。

4.2.18 燃料ピンの粗切断

アルゴンガス雰囲気中で乾式法により燃料ピンの粗切断を行った。切断位置をFig. 4.27 及び Fig. 4.28 の上半分に示す。2本の燃料ピンともほぼ同じ位置で切断した。すなわち(1)、(2)、(3)及び(4)の位置で切断して燃料ピンを5分割した。(a)、(b)、(c)それぞれの部分を841A、841B、841C並びに842A、842B、842Cと称することとする。Fig. 4.1のフローに示したように、841A、841C、842A及び842Cは燃料ペレットの密度、気孔率測定及び被覆管の金相試験等に用いた。一方、841B及び842Bは樹脂注入を経て細切断に供した。

4.2.19 燃料ピンへの樹脂注入

試料841B及び842Bにポリエステル樹脂を最大加圧6kg/cm²、加圧時間5分の条件で注入した。ペレットと被覆管の間のギャップが閉塞していたため、完全な樹脂注入は不可能であった。

4.2.20 燃料ピンの細切断

樹脂注入を行った試料(841B及び842B)について、金相試験のために径方向及び軸方向の細切断を湿式法により行った。細切断位置及び新たに設けた試料番号をFig. 4.27 及びFig. 4.28 の下半分に示す。各試料について実施した試験項目はFig. 4.1中に詳細に示されている。

細切断後の試料をアセトンで洗浄中に、841B3 試料のペレットの大半が脱落した。この原因は前項中で述べた理由により、841B試料では樹脂注入が十分ではなかったためと推定された。このため、代替試料として841B2 試料を試験終了後、軸方向位置で再度切断・研磨し、841B3 試料の当該する試験を実施した。

4.2.21 燃料ピンからの脱ミート

従来とってきたスクリュー法による脱ミートでは、今回、ペレットと被覆管の付着が強固であり試料の採取が不可能であったため、燃料ピンを背割り切断する方法をとった。但し、被覆管硬さ測定用試料については輪切りのままの採取が望ましいため、背割り切断前に高さ5mm に乾式切断した。背割り切断にあたっては、まず試料をバイスに固定した上で、リユータにより被覆管のみを切断し、その対面についても同様に切断した。切断後、試料をピンセットで半割りにし、ペレット片を容器に採取した。

採取したペレット片から密度測定に用いるものを選別して(841AP で17ヶ、841CP で19ヶ、842AP で16ヶ、842CP で14ヶ)、それらをm-キシレンで洗浄後、P型ペリスコープで写真撮影を行った。採取したうちの841CP 及び842CP 試料の外観をPhoto 4.7 に示す。

4.2.22 燃料ペレットの密度測定

試料の洗浄後、3時間以上の真空乾燥を行なったのち密度測定を実施した。測定は、m-キシレンを置換液に用いた液浸法により行った。試料重量の測定精度は±0.0002g、また密度の測定精度は±0.01g/cm³である。841CP 及び842CP 試料についての測定結果をTable 4.6 中に示す。開気孔中には置換液が侵入するため、表中の密度はTable 2.1 中の値とは異なり気孔としては閉気孔のみを考慮した値である。

4.2.23 燃料ペレットの気孔率測定

上記の密度測定を行った試料を3時間以上真空乾燥したのち、水銀ピクノメータ法により開気孔を含む密度測定を行った。水銀加圧力は $1.333 \times 10^5 \text{ Pa}$ であり、得られる密度の測定精度は $\pm 0.05 \text{ g/cm}^3$ である。本法による測定結果及び液浸法による測定結果から計算した燃料ペレットの開気孔率及び閉気孔率を合わせてTable 4.6中に示す。

水銀ピクノメータ法による84F-10-1及び84F-10-2燃料ピン中のペレット（試料番号841CP及び842CP）の密度は、それぞれ81.4%T.D.及び79.4%T.D.であった。Table 2.1に示した照射前の当該ペレットの密度、84.1%T.D.及び81.1%T.D.に比較して、それぞれ2.7%T.D.、1.7%T.D.だけ減少している。これは、それぞれ2.7%T.D.、1.7%T.D.分の体積が見かけ上増加したことと同等である。この値を%FIMA当たりのスエリング率に換算すると、0.6~0.9%となる。これらの値は前報までの値と比較すると有意に小さく、その理由としては前報までの値は燃焼度が低く、ペレットの自由スエリングによるものであるのに対し、今回の値は、被覆管に拘束された状態下での見かけ上のスエリング率に相当するためと考えられる。

密度の測定値から計算で求めた開気孔率（%）（液浸法による密度(%T.D.)-水銀ピクノメータ法による密度(%T.D.)）及び閉気孔率（%）（ $100 - \text{液浸法による密度}(\%T.D.)$ ）は、84F-10-1燃料ピン中のペレット（試料番号841CP）については9.7%及び9.0%、84F-10-2燃料ピン中のペレット（試料番号842CP）については12.3%及び8.4%である。後者のペレットの方がより低密度なのは、大きな開気孔率に起因したものであることがわかる。同じく低密度ペレットを採用した前報中の開気孔率は11.0~11.5%であった。これらの結果から、開気孔率と前述したFPガス放出率の間にはある相関関係が見られる。すなわち、84F-10-2燃料ピンで観測された13.7%という比較的大きなFPガス放出率は、842CP試料に見られたように、FPガス放出の経路となる開気孔率の大きさに起因していることが推定される。開気孔と閉気孔の割合が照射によって大きく変化することはないと考えられるが、より正確な議論のためにはさらに未照射ペレットの気孔率についてのデータを取得することが望ましい。

4.2.24 燃料ペレット等の金相試験前処理

細切断した燃料ペレットを、金相試験、マイクロ線分析等の各種試験に供するために、樹脂埋め込み、研磨及びエッチング等を行った。金相試験等に使用した試料名をまとめてTable 4.7に示す。試料はポリエステル樹脂で埋め込んだのち研磨して鏡面仕上げを行い、一部については化学エッチングを行った。エッチング条件は下記のとおりである。

(U,Pu)C 燃料ペレット試料

エッチング液： $\text{HNO}_3:\text{CH}_3\text{COOH}:\text{H}_2\text{O}=2.5:1:1$ の混合溶液

エッチング時間：10秒

被覆管試料

エッチング液： $\text{HNO}_3:\text{HCl}:\text{HF}=1:3:4$ の混合溶液

エッチング時間：90~150秒

試験雰囲気としては、試料の埋め込みまではアルゴンガス雰囲気を採用し、それ以降は空気雰囲気中で行った。

4.2.25 燃料ペレットのマクロ写真撮影

燃料ピンの軸方向及び径方向の研磨断面を、倍率5倍のペリスコープを用いて観察するとともに、マクロ写真（フィルム、4×5インチ）を撮影した。84F-10-1ピン及び84F-10-2ピンの燃料スタックほぼ中央部の軸方向及び径方向の断面写真をPhoto 4.8、Photo 4.9にそれぞれ示す。両者とも径方向断面については、直径方向に大きなクラックが数本生じるとともに、さらにそこから枝分かれした小さなクラックもみとめられる。軸方向断面についても、縦方向、横方向に数多くのクラックが発生しているのがみとめられる。

4.2.26 燃料ペレットの気孔分布測定

前項のマクロ写真撮影に続いて、燃料ペレット径方向断面を遠隔操作型万能顕微鏡を用いて、ペレット中央部、中間部さらに外周部について倍率400倍のマイクロ写真撮影を行った。各試料についての写真をPhoto 4.10～Photo 4.13に示す。写真に枠を設けて画像解析を行い、気孔の大きさ及び数を求めた。枠の大きさは写真上で、50mm×40mmであり、画像解析装置の線分解能は0.1mmである。841B1、841B5、842B1及び842B5についての気孔分布測定結果をTable 4.8～Table 4.11に示す。また、表に示した結果を棒グラフにしてFig. 4.29～Fig. 4.40に示す。

(U, Pu)C_{1.0}及び(U, Pu)C_{1.1}燃料ペレットはともに、外周部に比較してペレット中央部では最も小さなクラスである0～9.9μm²（直径換算で0～4.6μm）の気孔が少ないことがわかる。外周部の気孔分布は、ほぼ照射前のものに近いと推定される²⁾。この解釈としては特に温度の高い中心部において、照射によって重元素の拡散が促進され焼きしまりが起こり、微小な気孔が一部消滅した結果であると思なすことができる。(U, Pu)C_{1.0}と(U, Pu)C_{1.1}燃料ペレットの比較では、前者のほうが中央部での微小気孔の減少の傾向が顕著にみとめられている。

4.2.27 燃料ペレットの金相写真撮影

(U, Pu)C_{1.0}及び(U, Pu)C_{1.1}燃料ペレットの研磨面についてエッチングを行い、中央部、中間部及び外周部の組織写真撮影を行った。倍率は1000倍とした。代表的な各部の組織をPhoto 4.14からPhoto 4.19に示す。

4.2.28 燃料ペレットの結晶粒度測定

上記の燃料ペレットの金相写真上に80mm×60mmの大きさの枠を設けて画像解析を行い、結晶粒度の測定を行った。測定結果を照射前の平均的な値と合わせてTable 4.12に示す。

照射後の試料の各部の比較では、(U, Pu)C_{1.0}及び(U, Pu)C_{1.1}ともに外周部に比較して中央部がやや大きめの粒径を有していることがわかる。照射前の平均粒径との比較では、外周部及び中間部ではほとんど変化は見られないものの、中央部では若干の成長が見られている。これは、照射促進拡散とも相まって温度の高い中央部で結晶粒が成長した結果と考えることができる。この傾向も4.2.26項に述べた気孔分布の変化同様に、(U, Pu)C_{1.0}と(U, Pu)C_{1.1}燃料ペレットの比較では前者のほうが顕著である。

4.2.29 燃料ペレットのモザイク写真撮影

倍率100 倍の局所写真約220 枚から構成されるモザイク写真を作成した。このうち、841B5 及び842B5 試料についてのものをPhoto 4.20、Photo 4.21にそれぞれ示す。4.2.25項で示したマクロ写真 (Photo 4.8 及びPhoto 4.9) に比べて、より詳細な観察が可能である。

両燃料ペレットとも、直径方向の大きなクラック数本とそこからのびる小枝のようなクラックが発生している。また、外周部には、周方向に沿った細かいクラックが数本発生しているのがみとめられる。これらは、低～中燃焼度の炭化物燃料で典型的に見られるクラックパターンである。さらに、当初存在していたペレットと被覆管の間のギャップは完全に閉塞しているのが観察される。このことは、少なくとも照射後期においては、燃料ペレットが一定の応力下で被覆管に拘束されていたことを意味している。

また、ペレット内にエッチングむらのために生じた黒と白のコントラストが見られる。このエッチングむらは、プルトニウムあるいはFP元素の存在と微妙に関係していることが考えられる。

4.2.30 燃料ペレットのオートラジオグラフ分析

α 及び $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフを実施した。 α オートラジオグラフはKODAK 社製CN-85 Type B型のニトロセルローズをニッケル箔 (厚さ $7.5 \mu\text{m}$) 及びマイラ膜 (厚さ $4 \mu\text{m}$) で包み、埋め込んだ燃料ペレットの研磨面を約1 kgの荷重で押しつけ、1分30秒間露出させることにより行った。 $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフでは、KODAK 社製HRP 型乾板をアルミニウム箔 (厚さ $15 \mu\text{m}$) 及びマイラ膜 (厚さ $4 \mu\text{m}$) で包み、研磨面を約1 kgの荷重で押しつけ、30秒間露出させた。現像後に得られた像をPhoto 4.22及びPhoto 4.23に示す。ちなみに α 、 $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフとも露出時間は、前回の試験の半分であった。

α オートラジオグラフは、燃料ペレット中のTRU 元素 (主として ^{242}Cm からの寄与が支配的) の分布状況を表しているが、ペレット中央部に比較して外周部の濃度が高いことがわかる。ここで ^{242}Cm は、主に ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu 等の中性子捕獲によって生成する核種であり、その分布はペレット内の中性子分布に起因したものと考えられる。

THERMOS コードを用いたキャプセル内の熱中性子束分布の計算結果によると、ペレット中心では表面に比較して中性子束は約1/4 に減少している²⁾。これは熱中性子炉を用いた照射で見られる特異な現象であり、その結果、周辺部ほどUやPuの中性子捕獲の確立が増し、上述した ^{242}Cm 等の分布となったものである。

$\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフは、主にFP元素の分布を示しており、両燃料ペレットとも周辺部においてその濃度が高いことが一層はっきりと確認される。この原因としても、生成後のFPの移動というよりは、上述したペレット内の中性子束分布が主として考えられる。

また、 α 、 $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフともペレット内で左右対称でない分布がみとめられる。これは照射位置でのペレット内における中性子束の勾配に起因したものであると考えられる。

4.2.31 燃料ペレットのマイクロ γ 線スキャニング

燃料ペレットの径方向断面についての γ 線スペクトル分析を行うとともに、0.5mm ピッチで全面のマイクロ γ 線スキャニングを行った。その位置精度は $\pm 1\text{mm}$ であり、全面マイクロ γ 線スキ

ャニングはペレット中心を座標軸の原点として表示する。

(U, Pu)C_{1.0}及び(U, Pu)C_{1.1}燃料ペレット中心部のγ線スペクトルをFig. 4.41、Fig. 4.42にそれぞれ示す(試料番号841B4及び842B4)。両スペクトルは存在核種及びその強度分布ともほとんど一致している。

全面マイクロγ線スキャンは、代表的なFPである¹⁰⁶Rh、¹³⁷Cs、¹⁴⁴Pr、⁹⁵Zr及び¹³⁴Csについて行った。その代表的な結果をFig. 4.43及びFig. 4.44に示す(試料番号841B4及び842B4)。図の右半分は、Y=0 (X軸)に沿った放射能強度を棒グラフに示したものである。すべてのFP元素についてペレット中央部での凹みが見られるが、これは前項で述べたように、ペレット内での中性子束分布に対応していると考えられる。各FPの分布について、凸の部分と凹の部分のγ線強度の比率を求めると、両燃料ペレットとも0.30~0.45の範囲である。この強度比は、THERMOSコードによる熱中性子束分布の計算結果ほど極端なものではない。

4.2.32 燃料ペレット断面のEPMA観察

今回の照射後試験で、初めて燃料ペレット径方向断面のEPMA観察を実施した(試料番号841B6及び842B6)。その結果については、別の報告書⁵⁾の中で詳細に検討する。

4.2.33 被覆管の金相写真撮影

燃料ペレットとステンレス鋼被覆管の化学的相互作用について調べるために、金相試験前処理を行った被覆管(試料番号841AC, 842AC, 841CC及び842CC)の写真撮影を行った。倍率は150倍及び400倍とした。841CC及び842CCの写真を、Photo 4.24、Photo 4.25にそれぞれ示す。

4.2.34 被覆管の腐食厚さ

前項の金相写真から被覆管内壁の腐食を推定した。Photo 4.24に代表されるように(U, Pu)C_{1.0}燃料ピンについては、被覆管内表面に腐食を示す兆候はみとめられなかった。また、(U, Pu)C_{1.1}燃料ピンについても、前報²⁾の中で見られたような内表面での局所的な欠落等は観測されず、明かな腐食の箇所はみとめられなかった。但し、外周部に比べて粒界がはっきり太くエッチングされている箇所(最大厚さ~50μm)が観察された。これは、局所的に、照射中に燃料から炭素が粒界に移行(浸炭)した結果と推定されるが、燃料ピンの照射健全性に影響を及ぼすものではないと判断された。

4.2.35 被覆管の結晶粒度測定

4.2.33項で撮影した400倍の写真を画像処理して、被覆管の結晶粒径を測定した。未照射試料についての結果も合わせて、Table 4.13に結果を示す。照射後の試料で、内周部の方が外周部よりも平均粒径が最大で2μm程大きい傾向が見られる。また、未照射に比べて照射後の粒径の方が大きい、これは前報²⁾中でも述べたように照射に起因したものであると断言はできない。

4.2.36 被覆管の硬さ測定

硬さ測定にはマイクロビッカス法を採用して、7μm仕上げをしたステンレス鋼被覆管(試料

番号841AC, 841CC, 842AC 及び842CC) について、試験荷重100g、荷重保持時間15秒の条件で実施した。各試料とも1ヶ所につき半径方向に9点測定し、90° ずつ位置をずらして4ヶ所で測定した。代表的な圧痕部跡をPhoto 4.26に示す。未照射試料についての測定結果も合わせて、Table 4.14及びTable 4.15にその結果を示す。また、4ヶ所の硬度の平均値を採用して図示したものをFig. 4.45に示す。この図からは、照射前後での硬度の変化及び両燃料ピン間での差はみとめられていない。但し、硬度測定の内周寄りの点が内壁から約50 μm の箇所であるため、浸炭箇所についての結果は含まれていない。

4.2.37 被覆管のEPMA観察

前項の硬度測定を行った試料について、被覆管内周部の二次電子線像観察、分析対象元素についての線分析、同じく面分析を行った。Photo 4.27には841CC 試料の、Photo 4.28には842CC 試料についての線分析の結果を500倍で撮影した二次電子線像に重ねてそれぞれ示した。線分析は被覆管内周部近傍で、U、C 及びCrを対象元素に選んで実施した。写真で見える限りにおいては、被覆管内での各元素の有意な濃度勾配はみとめられていない。このほか、CとFeについては被覆管外周部から内周部にかけて、試料駆動による線分析を実施してチャートに記録した。この中では、(U, Pu)C_{1.1}燃料ピンの被覆管において内エッジから約20 μm の範囲でCの特性X線強度が母材に比べて3~4倍程高くなっている箇所が確認された。この現象を金相写真と合わせてPhoto 4.29に示す。なお、Feについての分析は被覆管の内周及び外周のエッジを確認するために行ったものである。面分析については、U、C、Fe、Cr及びNiを対象元素に選び、二次電子線像写真と同一位置で実施した。この結果からは、被覆管の粒界での炭化物相の析出やUのステンレス鋼への移行は観察されなかった。

841CC 試料では、燃料ペレットとの分離が一部十分でなく、研磨後もなお燃料ペレットが試料に付着していた。この燃料ペレット部について倍率1000倍及び3000倍で撮影した二次電子線像をPhoto 4.30に示す。特に燃料ペレット外周部の気孔が直接観察されて興味深い。

Table 4.1 Results of radiation rate measurement for 84F-10A capsule

(a)			(b)		
Distance (cm)		Dose rate (Sv/hr)	Distance (cm)		Dose rate (Sv/hr)
x	z		x	z	
20	90	9.684	20	37	19.152
20	80	11.988	30	37	11.520
20	70	14.076	40	37	7.452
20	60	15.264	50	37	5.364
20	50	17.208	60	37	3.924
20	40	18.756	75	37	2.664
20	30	18.432	100	37	1.584
20	20	15.552	125	37	1.044
20	10	11.232	150	37	0.756
20	0	7.128	200	37	0.432

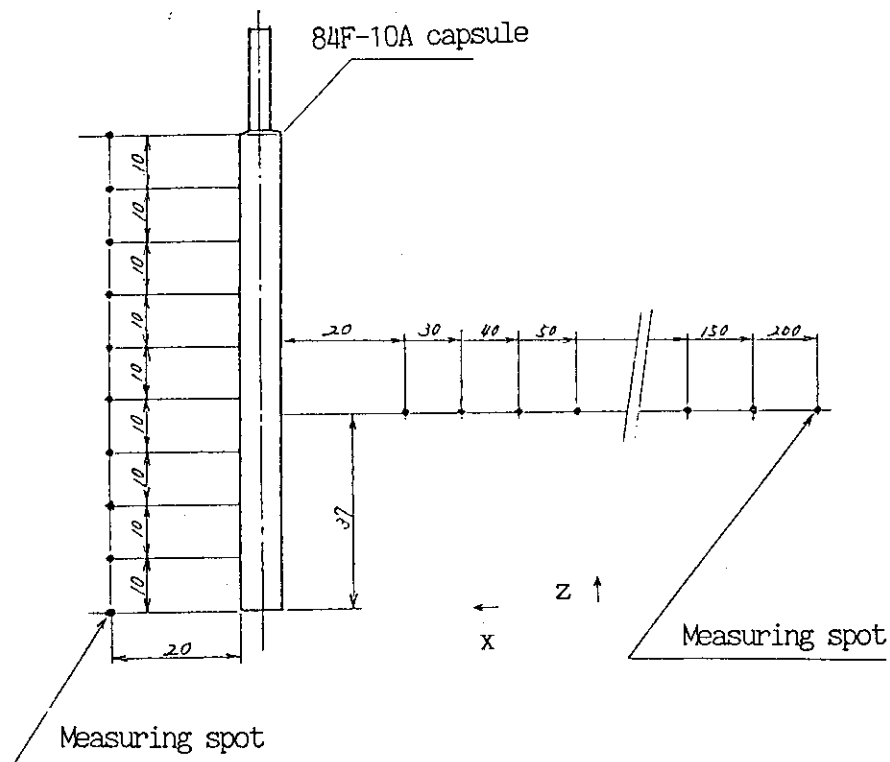


Table 4.2 Results of radiation dose measurement for fuel pins

84F-10A-1 [(U,Pu)C_{1.0} fuel pin]

84F-10A-2 [(U,Pu)C_{1.1} fuel pin]

Distance (cm)		Dose rate (Sv/hr)
x	z	
25	12	2.5452
50	12	0.7056
75	12	0.3024
100	12	0.1512

Distance (cm)		Dose rate (Sv/hr)
x	z	
25	12	2.0412
50	12	0.5796
75	12	0.2772
100	12	0.1512

試料 

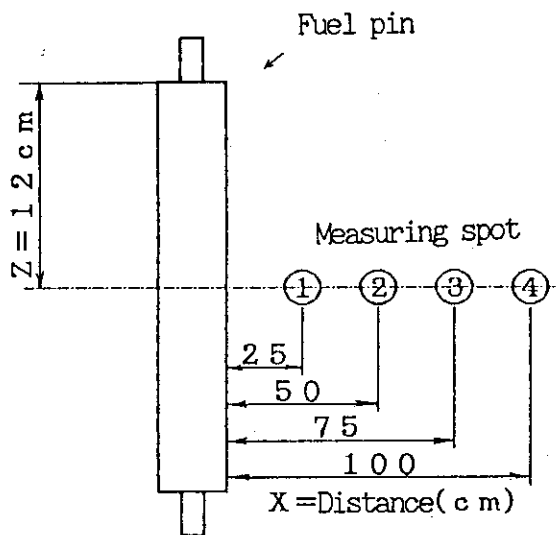
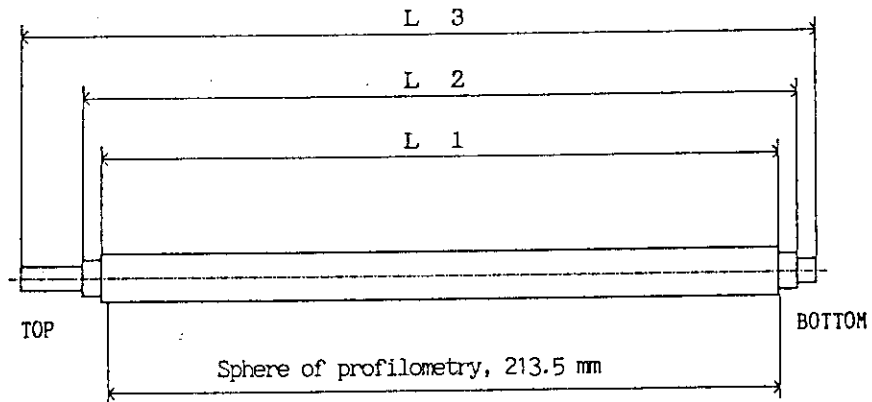


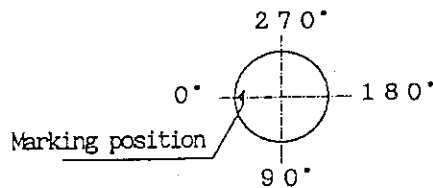
Table 4.3 Axial length of (U,Pu)C_{1.0} and (U,Pu)C_{1.1} fuel pins

Fuel pin	L ₁ (mm)	L ₂ (mm)	L ₃ (mm)
(U,Pu)C _{1.0}	216.1	224.9	249.7
(U,Pu)C _{1.1}	215.9	224.8	249.8

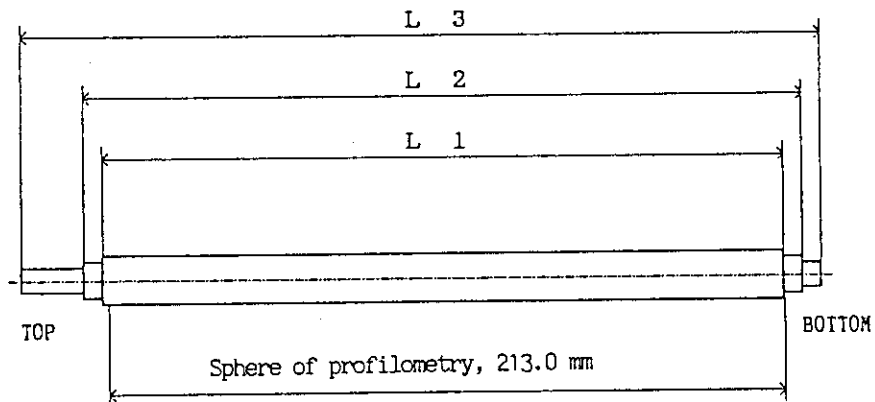
(U,Pu)C_{1.0} fuel pin



Direction angle (looking from the upper endplug side)



(U,Pu)C_{1.1} fuel pin



Direction angle (looking from the upper endplug side)

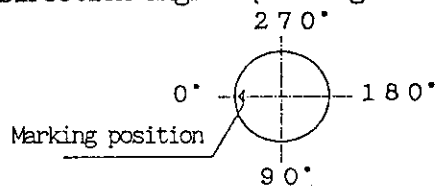


Table 4.4 Results of puncture tests

Fuel pins	(U,Pu)C _{1.0} pin [84F-10-1]	(U,Pu)C _{1.1} pin [84F-10-2]
Void volume before puncturing (cm ³)	84.49	83.54
Void volume after puncturing (cm ³)	91.20	90.19
Void volume in fuel pin (cm ³)	6.71	6.65
Vacuum pressure before puncturing (Pa)	8.79×10^{-3}	6.93×10^{-3}
Equilibrated gas pressure (Pa)	6.17×10^3	9.29×10^3
Pressure in fuel pin (Pa)	1.27×10^5	1.89×10^5
Temperature at puncturing (°C)	30.0	33.3
Total gas volume (STD, cm ³)	7.57	11.07

Table 4.5 Determination of the composition and volume of FP gas

Fuel pin		84F-10-1 (U,Pu)C _{1.0}	84F-10-2 (U,Pu)C _{1.1}
Gas composition (vol.%)	He	Base	Base
	N ₂	0.3	0.3
	O ₂	0.1	0.1
	Ar	0.25	0.25
	Kr	1.90	2.70
	Xe	32.7	47.5
FP gas isotopic ratio (%)	Kr 83-Kr	15.7	15.9
	Kr 84-Kr	30.3	30.3
	Kr 85-Kr	5.7	5.6
	Kr 86-Kr	48.3	48.2
	Xe 131-Xe	11.9	12.3
	Xe 132-Xe	19.5	19.4
	Xe 134-Xe	26.9	27.1
	Xe 136-Xe	41.7	41.2
Collected volume (Kr+Xe) (STP.cm ³)		2.62	5.56
Produced volume* (Kr+Xe) (STP.cm ³)		42.90	40.55
FP gas release rate (%)		6.1	13.7
Xe/Kr ratio observed		17.2	17.6
Xe/Xr ratio produced*		15.6	15.6

* Calculated by ORIGEN code

Table 4.6 Density and porosity of fuel pellets

Sample	841CP [(U,Pu)C _{1.0}]	842CP [(U,Pu)C _{1.1}]	
Number of fragments	19	14	
Total weight of sample (g)	4.02542	3.04847	
Archimedes' method (m-xylene)	Period of dipping (min)	29	21
	Temp. of liquid (°C)	34.1	33.8
	Density of liquid (g/cm ³)	0.8499	0.8502
	Density of sample (g/cm ³) (%T.D)	12.38 91.0	12.37 91.6
Picnometer method (mercury)	Density of sample (g/cm ³) (%T.D)	11.07 81.4	10.72 79.4
	Open porosity (%)	9.66	12.25
Closed porosity (%)	8.98	8.36	
Density before irradiation (%TD)	84.1	81.1	

Table 4.7 List of sample names for measurements

Test	Sample name
Density measurement	841AP, 841CP, 842AP, 842CP
Open porosity measurement	841AP, 841CP, 842AP, 842CP
Preparation for metallography	841B1, 841B2, 841B3, 841B4, 841B5, 841B6, 841AC, 841CC, 841B1, 841B2, 841B3, 841B4, 841B5, 841B6, 841AC, 841CC
Macroscopic photography (as polished)	841B1, 841B3, 841B5, 842B1, 842B3, 842B5
Measurement of pore distribution	841B1, 841B5, 842B1, 842B5
Microscopic photography	841B1, 841B3, 841B5, 842B1, 842B3, 842B5
Mosaic microscopic photography	841B1, 841B5, 842B1, 842B5
Measurement of grain size	841B1, 841B5, 842B1, 842B5
Micro γ -scanning	841B2, 841B4, 842B2, 842B4
Auto radiography	841B2, 841B4, 842B2, 842B4
Analysis by EPMA	841B6, 842B6

Table 4.8 Results of analysis of pore distribution for (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (I)

Sample; 841B1

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm ²)	Number of pores		
	Outer	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	353	301	209
10.0 ~ 19.9	18	23	27
20.0 ~ 29.9	12	15	6
30.0 ~ 39.9	2	3	4
40.0 ~ 49.9	3	3	4
50.0 ~ 59.9	4	2	1
60.0 ~ 69.9	1	3	4
70.0 ~ 79.9	1	0	1
80.0 ~ 89.9	0	1	2
90.0 ~ 99.9	2	0	1
100.0 ~ 109.9	0	1	0
110.0 ~ 119.9	0		0
120.0 ~ 129.9	0		0
130.0 ~ 139.9	1		0
140.0 ~ 149.9	0		0
150.0 ~ 159.9	1		1
160.0 ~ 169.9	0		1
170.0 ~ 179.9	0		
180.0 ~ 189.9	0		
190.0 ~ 199.9	0		
200.0 ~ 209.9	0		
210.0 ~ 219.9	1		
Total pore number	399	352	263

Table 4.9 Results of analysis of pore distribution for (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (II)

Sample; 841B5

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm ²)	Number of pores		
	Outer	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	309	123	125
10.0 ~ 19.9	26	20	12
20.0 ~ 29.9	5	17	12
30.0 ~ 39.9	7	8	7
40.0 ~ 49.9	2	4	6
50.0 ~ 59.9	1	2	2
60.0 ~ 69.9	1	3	3
70.0 ~ 79.9		2	4
80.0 ~ 89.9		1	1
90.0 ~ 99.9		0	1
100.0 ~ 109.9		1	1
110.0 ~ 119.9		0	0
120.0 ~ 129.9		1	1
130.0 ~ 139.9		0	1
140.0 ~ 149.9		0	0
150.0 ~ 159.9		1	0
160.0 ~ 169.9		1	0
170.0 ~ 179.9			0
180.0 ~ 189.9			1
190.0 ~ 199.9			0
200.0 ~ 209.9			0
210.0 ~ 219.9			1
Total pore number	351	184	178

Table 4.10 Results of analysis of pore distribution for (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (I)

Sample; 842B1

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm ²)	Number of pores		
	Outer	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	249	216	192
10.0 ~ 19.9	36	43	45
20.0 ~ 29.9	14	16	22
30.0 ~ 39.9	10	8	16
40.0 ~ 49.9	2	3	5
50.0 ~ 59.9	6	4	3
60.0 ~ 69.9	1	5	4
70.0 ~ 79.9	2	1	1
80.0 ~ 89.9	2	1	0
90.0 ~ 99.9	1	1	0
100.0 ~ 109.9	1		1
110.0 ~ 119.9	0		0
120.0 ~ 129.9	1		0
Total pore number	325	298	289

Table 4.11 Results of analysis of pore distribution for (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (II)

Sample; 842B5

Pore area (μm^2) (Measured area 0.0125 mm ²)	Number of pores		
	Outer	Intermediate	Center
0.0 ~ 9.9	245	250	203
10.0 ~ 19.9	22	28	34
20.0 ~ 29.9	12	3	16
30.0 ~ 39.9	3	2	5
40.0 ~ 49.9	3	3	3
50.0 ~ 59.9	1	1	1
Total pore number	286	287	262

Table 4.12 Results of grain size measurement for fuel pellets

Sample	Position	Average grain diameter (μm)	
Fuel pellet	841B1	Out	3.6
		Intermediate	4.7
		Center	5.9
	841B5	Out	3.7
		Intermediate	4.7
		Center	4.7
	842B1	Out	2.8
		Intermediate	2.8
		Center	2.8
	842B5	Out	3.2
		Intermediate	3.5
		Center	3.6
Unirradiated	(U,Pu)C _{1.0}	4.0	
	(U,Pu)C _{1.1}	2.7	

Table 4.13 Results of grain size measurement for cladding tubes

Sample	Position	Average grain diameter (μm)
841AC	Outer	15.39
	Inner	15.15
841CC	Outer	15.49
	Inner	17.48
842AC	Outer	14.98
	Inner	16.41
842CC	Outer	16.70
	Inner	18.78
Unirradiated	—	10.68

Table 4.14 Results of micro vickers hardness of cladding tubes (I)

Sample	Position	Micro vickers hardness (Hv)				
		0°	90°	180°	270°	Average value
841AC (U,Pu)C _{1.0} fuel pin	1	297	281	285	292	289
	2	285	283	285	297	288
	3	285	292	289	285	288
	4	276	289	268	285	280
	5	264	266	268	287	271
	6	287	289	297	289	291
	7	285	276	287	283	283
	8	279	266	270	266	270
	9	292	299	287	274	288
842AC (U,Pu)C _{1.1} fuel pin	1	292	297	281	312	296
	2	287	281	285	287	285
	3	283	302	283	304	293
	4	289	276	289	276	283
	5	299	292	289	279	290
	6	292	299	299	285	294
	7	299	276	294	266	284
	8	299	302	312	294	302
	9	281	289	289	287	287
Unirradiated	1	281	294	299	304	295
	2	285	297	297	292	293
	3	272	297	302	285	289
	4	287	289	289	285	288
	5	283	281	297	299	290
	6	272	283	297	285	284
	7	281	274	294	297	287
	8	287	281	266	272	277
	9	279	272	302	287	285

Table 4.15 Results of micro vickers hardness of cladding tubes (II)

Sample	Position	Micro vickers hardness (Hv)				
		0°	90°	180°	270°	Average value
8410C (U,Pu)C _{1.0} fuel pin	1	294	281	292	309	294
	2	287	274	294	281	284
	3	302	281	294	272	287
	4	279	309	272	270	283
	5	294	283	317	283	294
	6	281	297	281	258	279
	7	294	281	274	283	283
	8	292	281	299	270	286
	9	279	272	297	258	277
8420C (U,Pu)C _{1.1} fuel pin	1	294	289	302	314	300
	2	292	287	297	283	290
	3	322	297	306	276	300
	4	270	281	272	279	276
	5	292	297	304	306	300
	6	283	287	294	294	290
	7	299	289	297	292	294
	8	279	279	281	279	280
	9	297	270	302	285	289
Unirradiated	1	281	294	299	304	295
	2	285	297	297	292	293
	3	272	297	302	285	289
	4	287	289	289	285	288
	5	283	281	297	299	290
	6	272	283	297	285	284
	7	281	274	294	297	287
	8	287	281	266	272	277
	9	279	272	302	287	285

Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
	Irradiation capsule		84F-10A Capsule
①	Transportation of the capsule into the cell	1	○
②	Inspection of the capsule appearance	1	○
③	X-ray radiography	1	○
④	Radiation rate measurement	1	○
⑤	Disassembly of outer tube and recovery of neutron fluence monitors	1	○
⑥	Determination of neutron irradiation dose	1	○
⑦	Inspection of the inner tube appearance	1	○
⑧	Disassembly of inner tube and treatment of NaK	1	○
	Carbide fuel pins		(U, Pu) C _{1,0} fuel pin (84F-10-1) (U, Pu) C _{1,1} fuel pin (84F-10-2)
⑨	Inspection of fuel pins appearance	2	○
⑩	Radiation rate measurement	2	○
⑪	X-ray radiography	2	○

Fig. 4.1 Flow sheet of post irradiation examinations for uranium-plutonium mixed carbide fuel

Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
	Carbide fuel pins		
⑫	Movement of fuel pins	8	(842AC)(842B6)(842CC)
⑬	Weight measurement of fuel pins	2	(841AC)(841B6)(841CC)
⑭	γ-scanning	2	
⑮	Profilometry	2	
⑯	Puncture test	2	
⑰	Analysis of FP gas	2	
⑱	Cutting of fuel pins	2	
⑲	Filling of resin	2	841A 841B 841C 842A 842B 842C
⑳	Sectioning of fuel pins	2	
㉑	Removal of fuel pellets	4	
	Fuel pellets		
㉒	Density measurement	4	841 AP 841 AC 841 B1 841 B2 841 B3 841 B4 841 B5 841 B6 841 CP 841 CC 842 AP 842 AC 842 B1 842 B2 842 B3 842 B4 842 B5 842 B6 842 CP 842 CC
㉓	Open porosity measurement	4	
㉔	Preparation for metallography	16	
㉕	Optical inspection and macroscopic photography	6	

Fig. 4.1 (continued)

Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
(26)	Fuel pellets Measurement of pore distribution	4	841AC 841BI 841B2 841B3 841B4 841B5 841B6 841CC 842AC 842BI 842B2 842B3 842B4 842B5 842B6 842CC
(27)	Optical inspection and microscopic photography	6	
(28)	Mosaic microscopic photography	4	
(29)	Measurement of grain size	4	
(30)	Micro γ -scanning	4	
(31)	Auto radiography	4	
(32)	Analysis by EPMA	2	
(33)	Cladding tubes Measurement of hardness	4	
(34)	Optical inspection and microscopic photography	8	
(35)	Measurement of corrosion depth	4	
(36)	Measurement of grain size	4	
(37)	Analysis by EPMA	4	

Fig. 4.1 (continued)

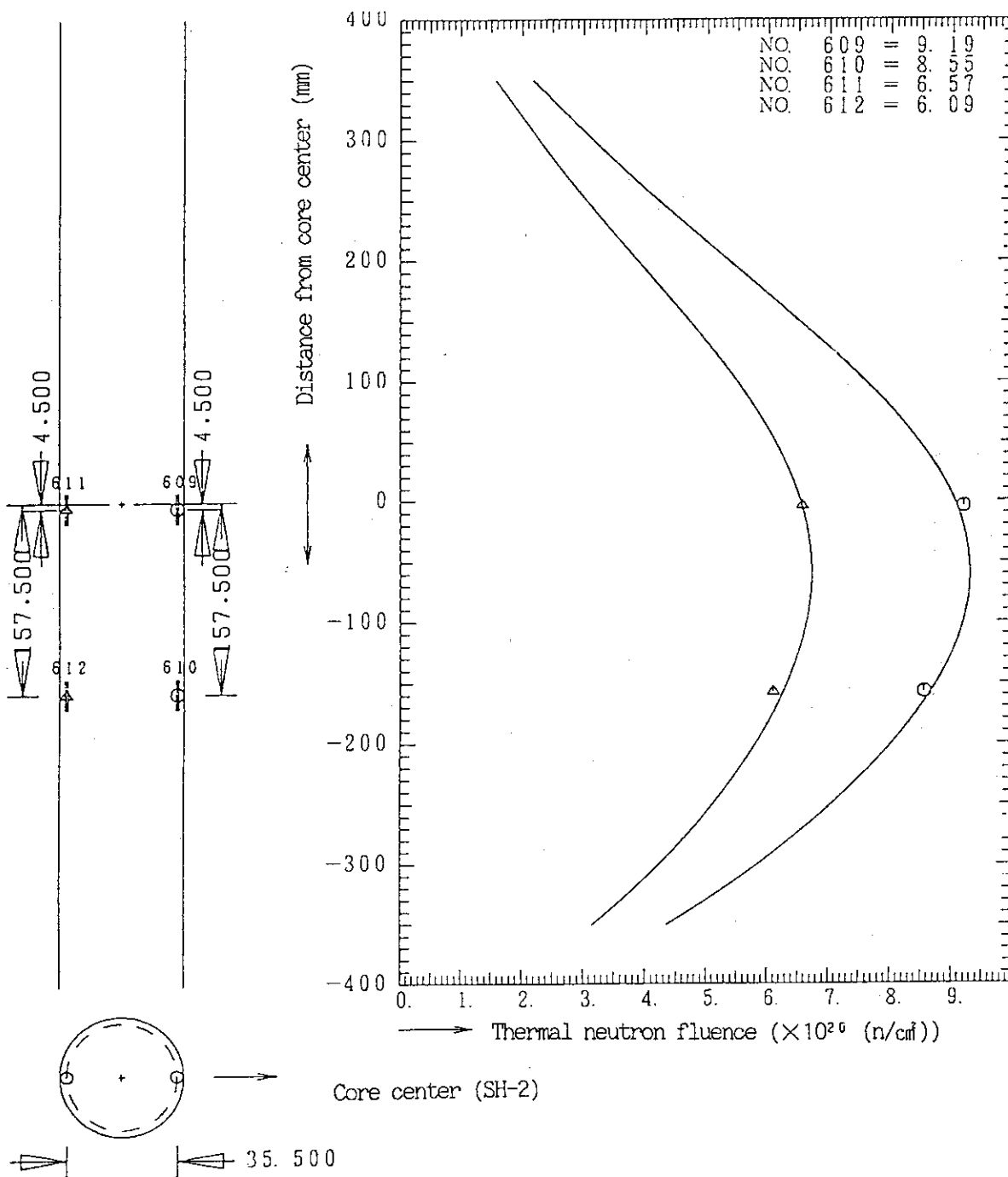


Fig. 4.2 Thermal neutron fluence of 84F-10A capsule

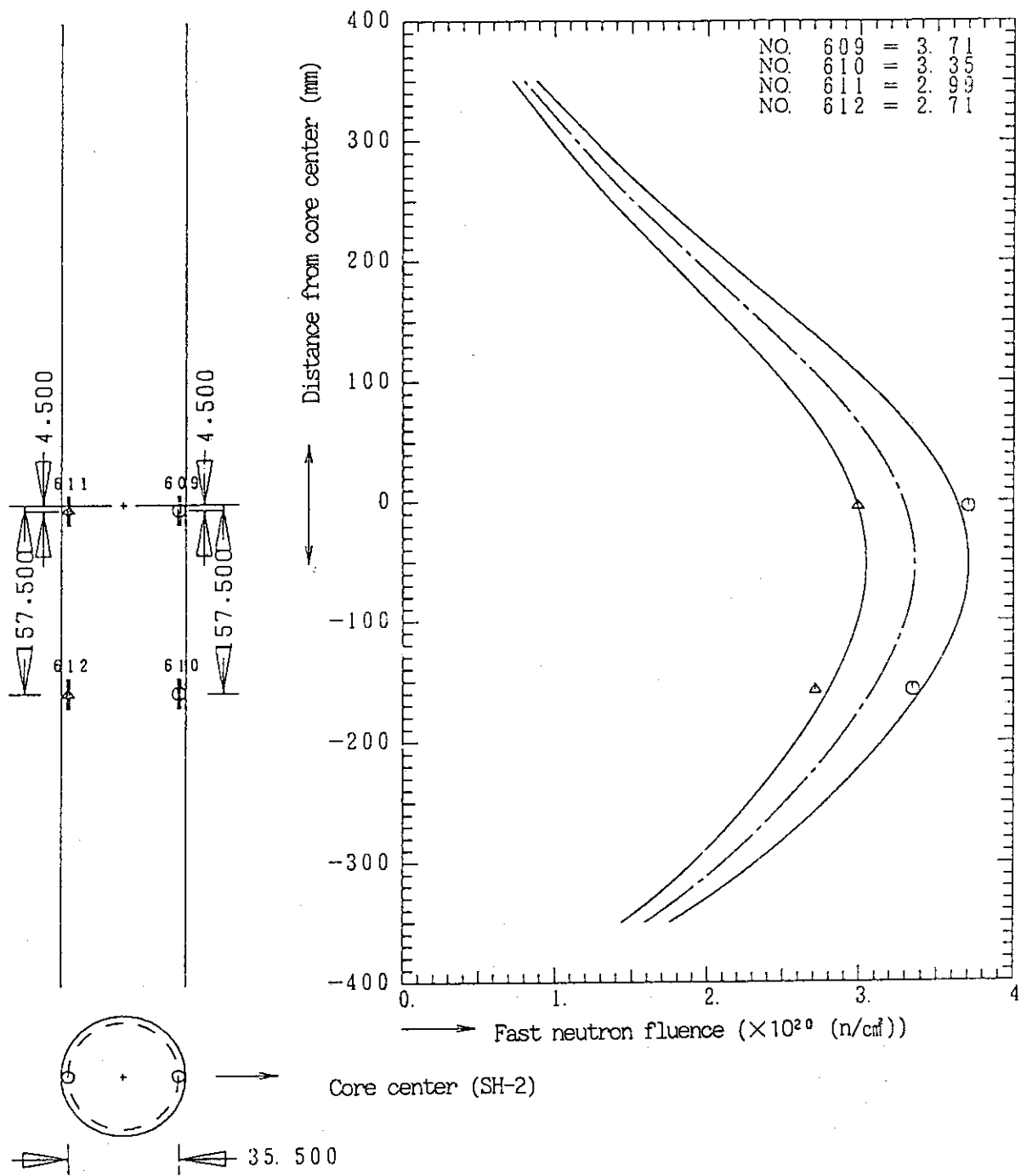


Fig. 4.3 Fast neutron fluence of 84F-10A capsule

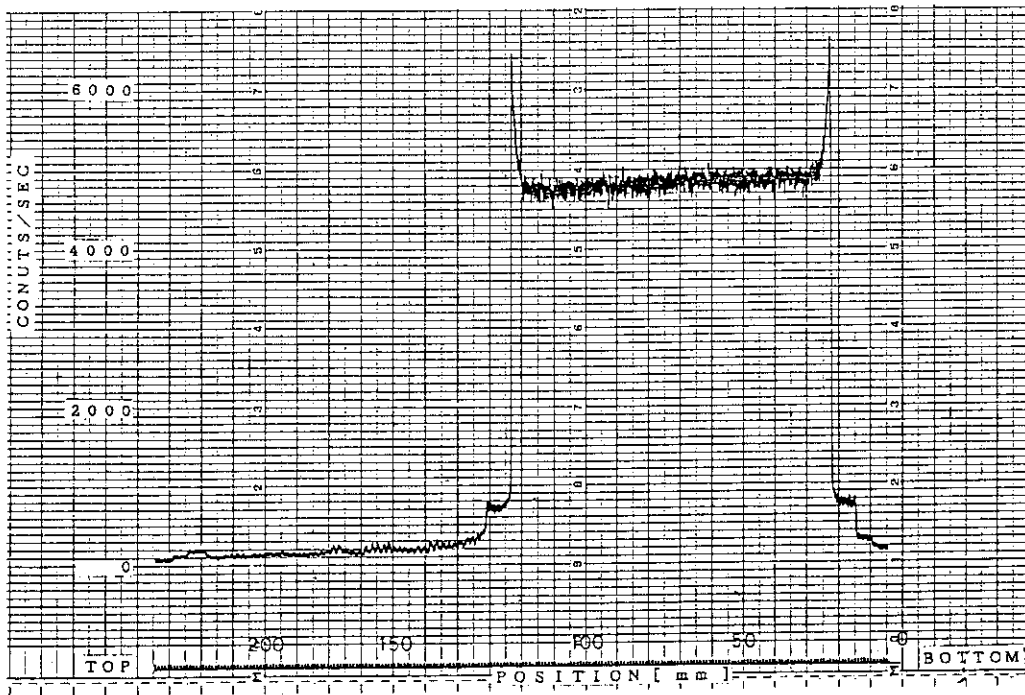


Fig. 4.4 Axial distribution of gross gamma ray in $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin

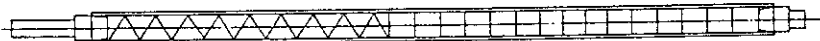
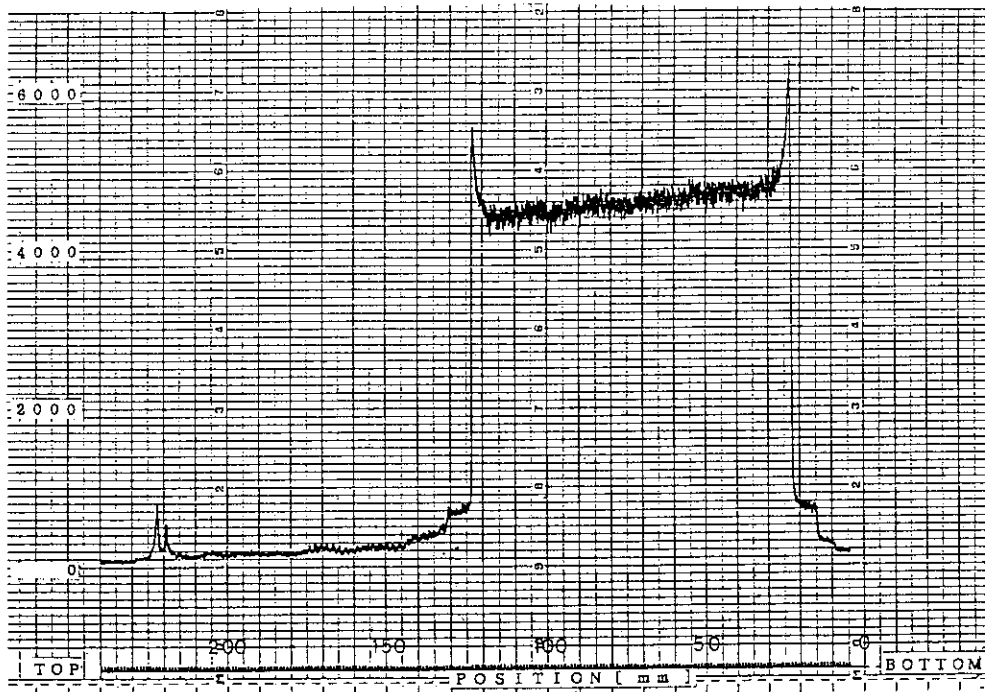


Fig. 4.5 Axial distribution of gross gamma ray in $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin

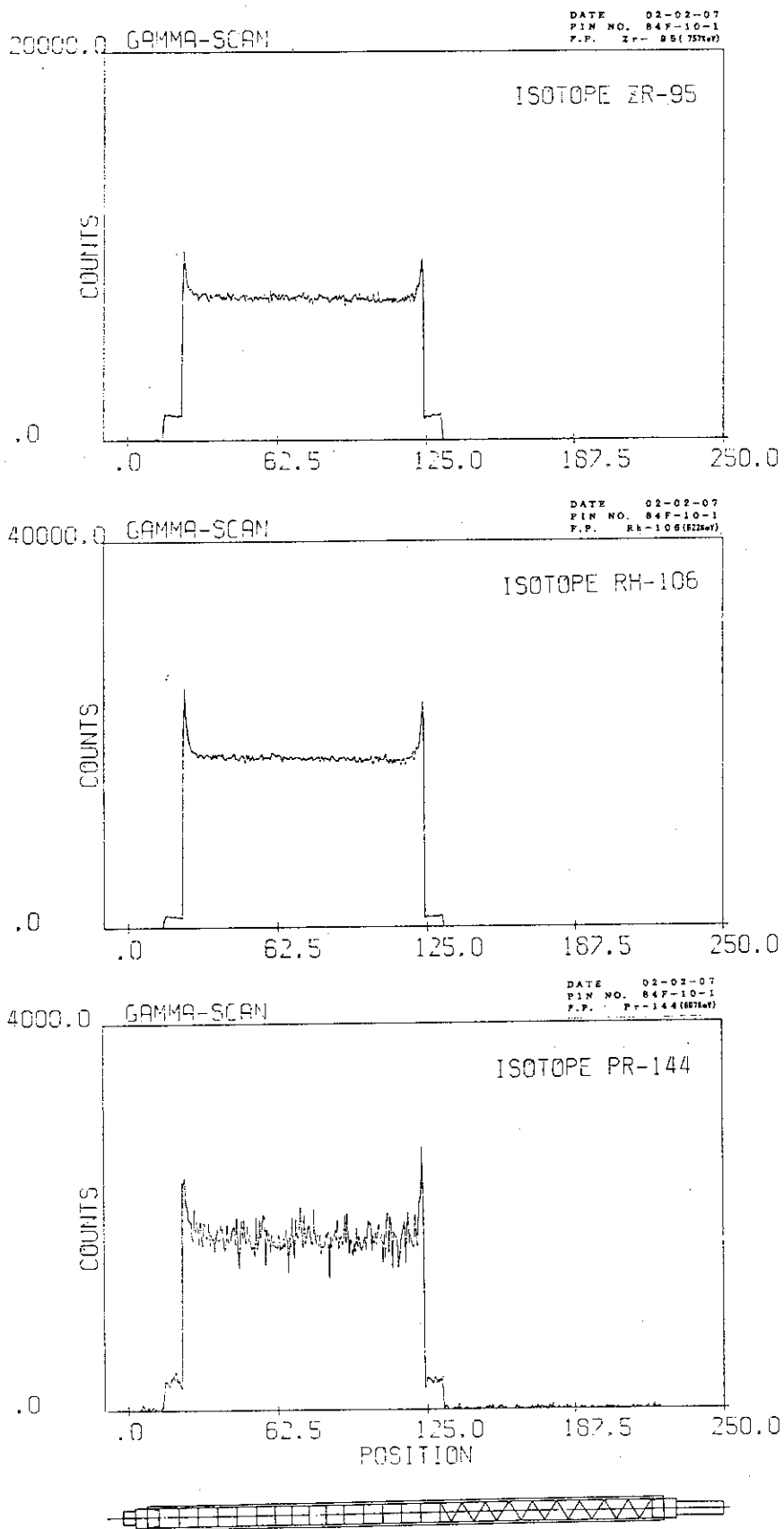


Fig. 4.6 Axial distribution of ^{95}Zr , ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{134}Cs and ^{137}Cs in $(\text{U,Pu})\text{C}_{1.0}$ fuel pin

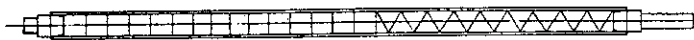
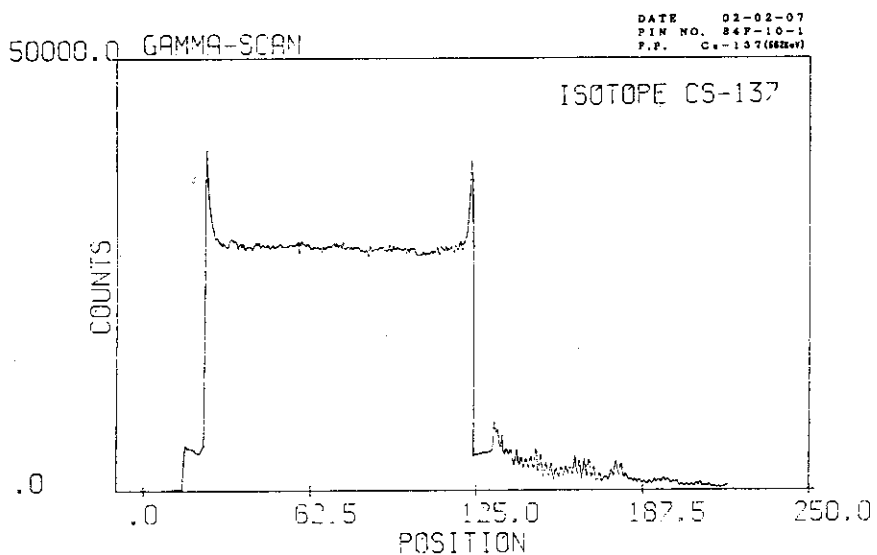
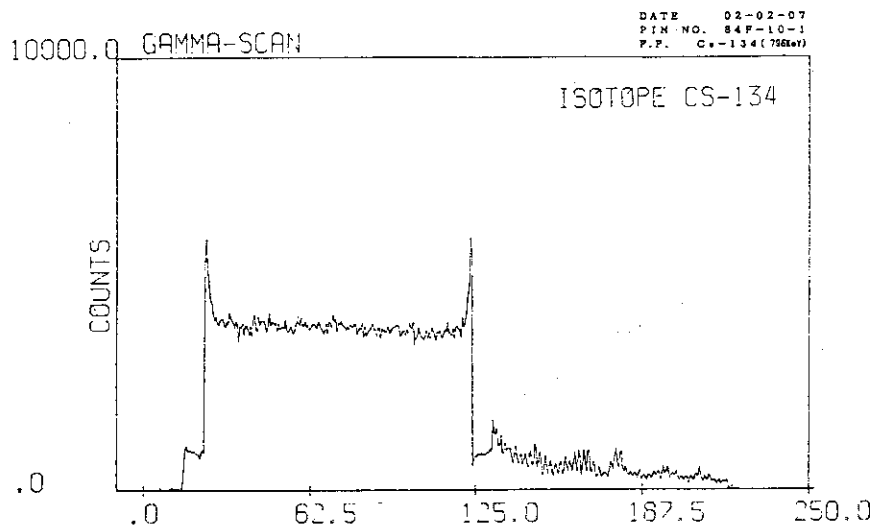


Fig. 4.6 (continued)

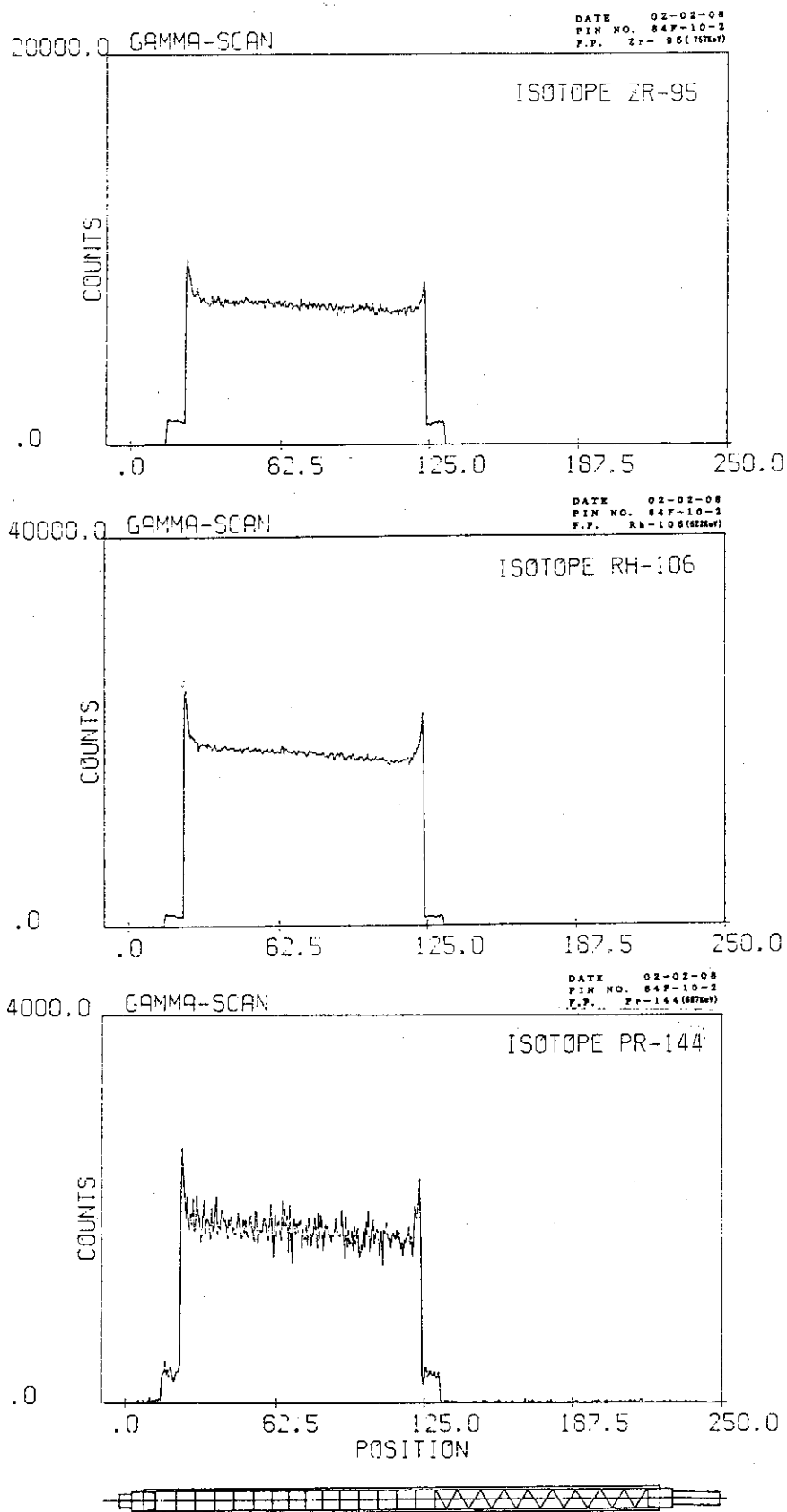


Fig. 4.7 Axial distribution of ^{95}Zr , ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{134}Cs and ^{137}Cs in $(\text{U,Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin

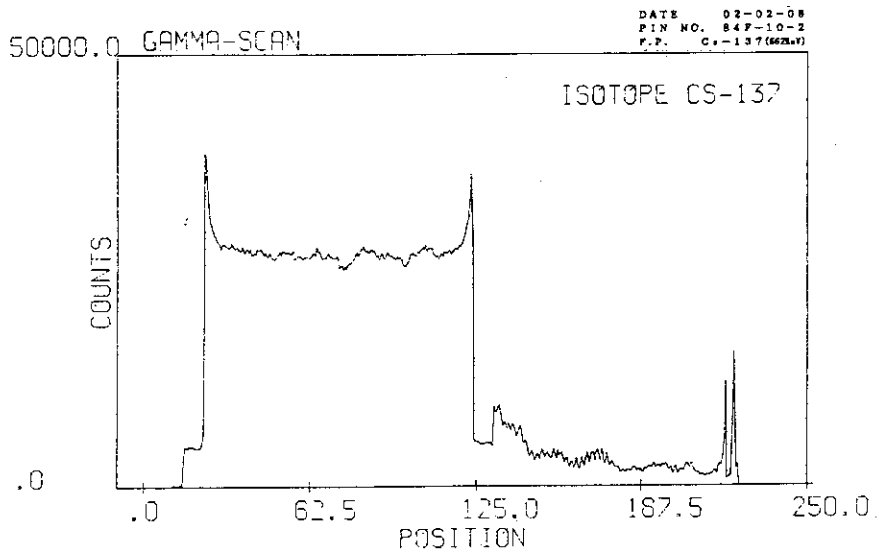
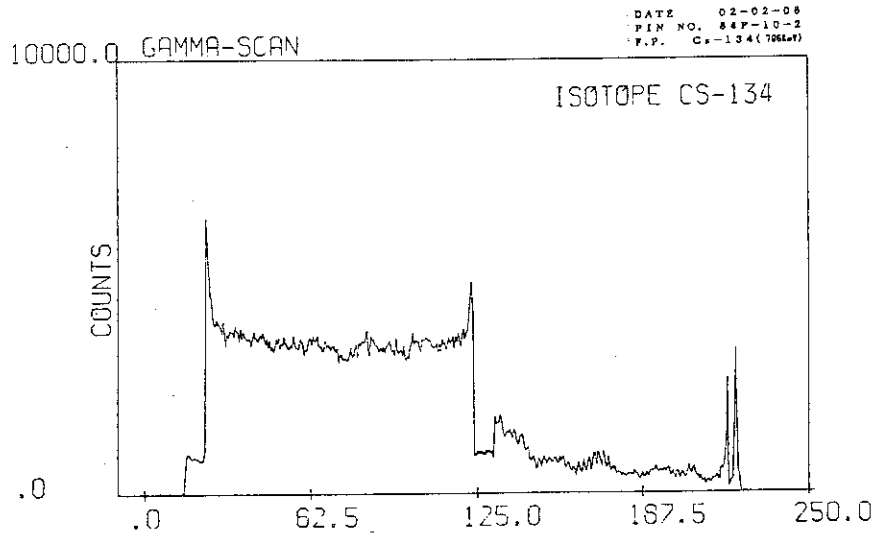


Fig. 4.7 (continued)

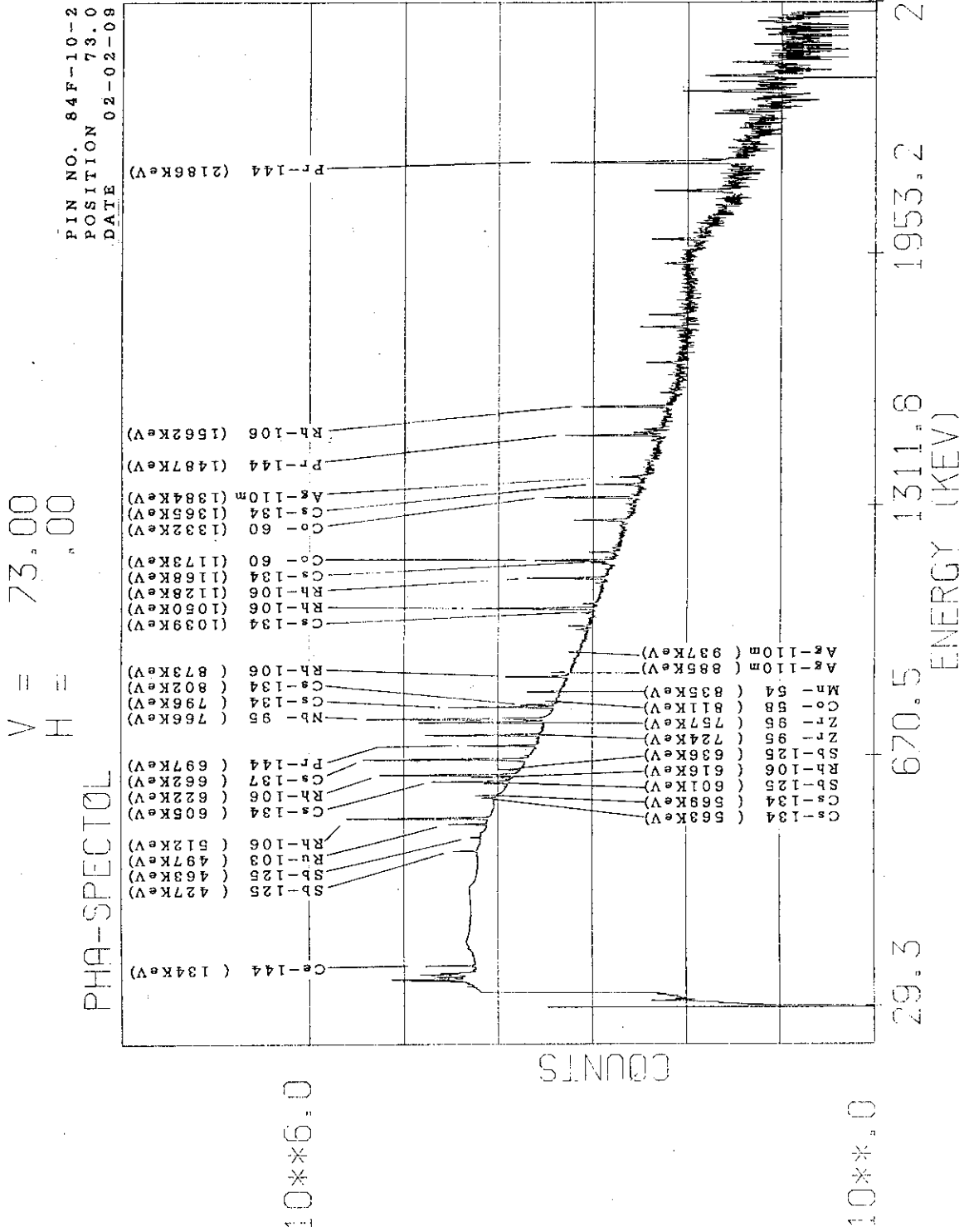


Fig. 4.9 Gamma ray spectrum on the center of fuel stack of (U,Pu)C_{1.1} fuel pin

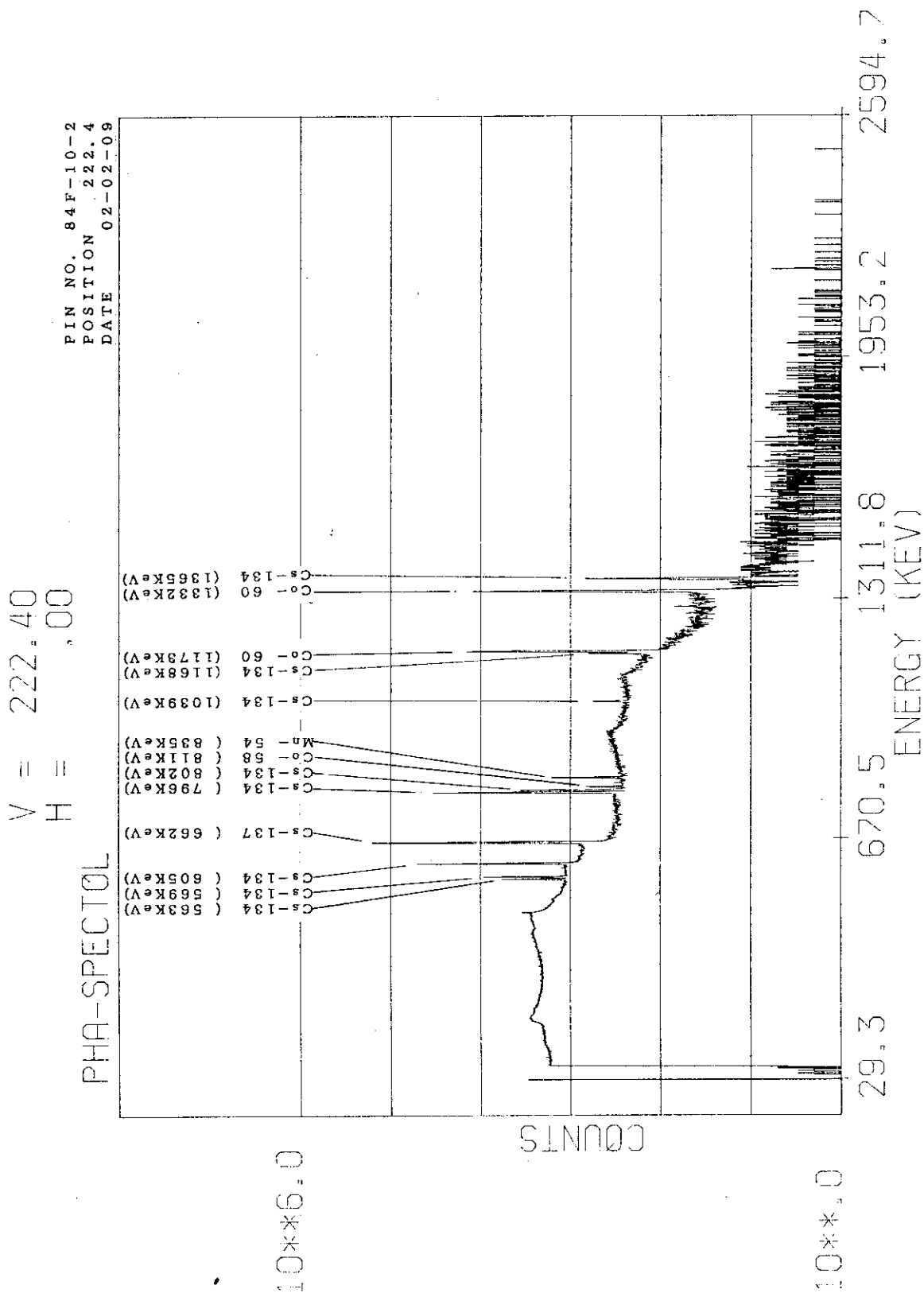


Fig. 4.10 Gamma ray spectrum on the upper endplug of (U,Pu)C_{1.1} fuel pin

FILE NO. F-1-17

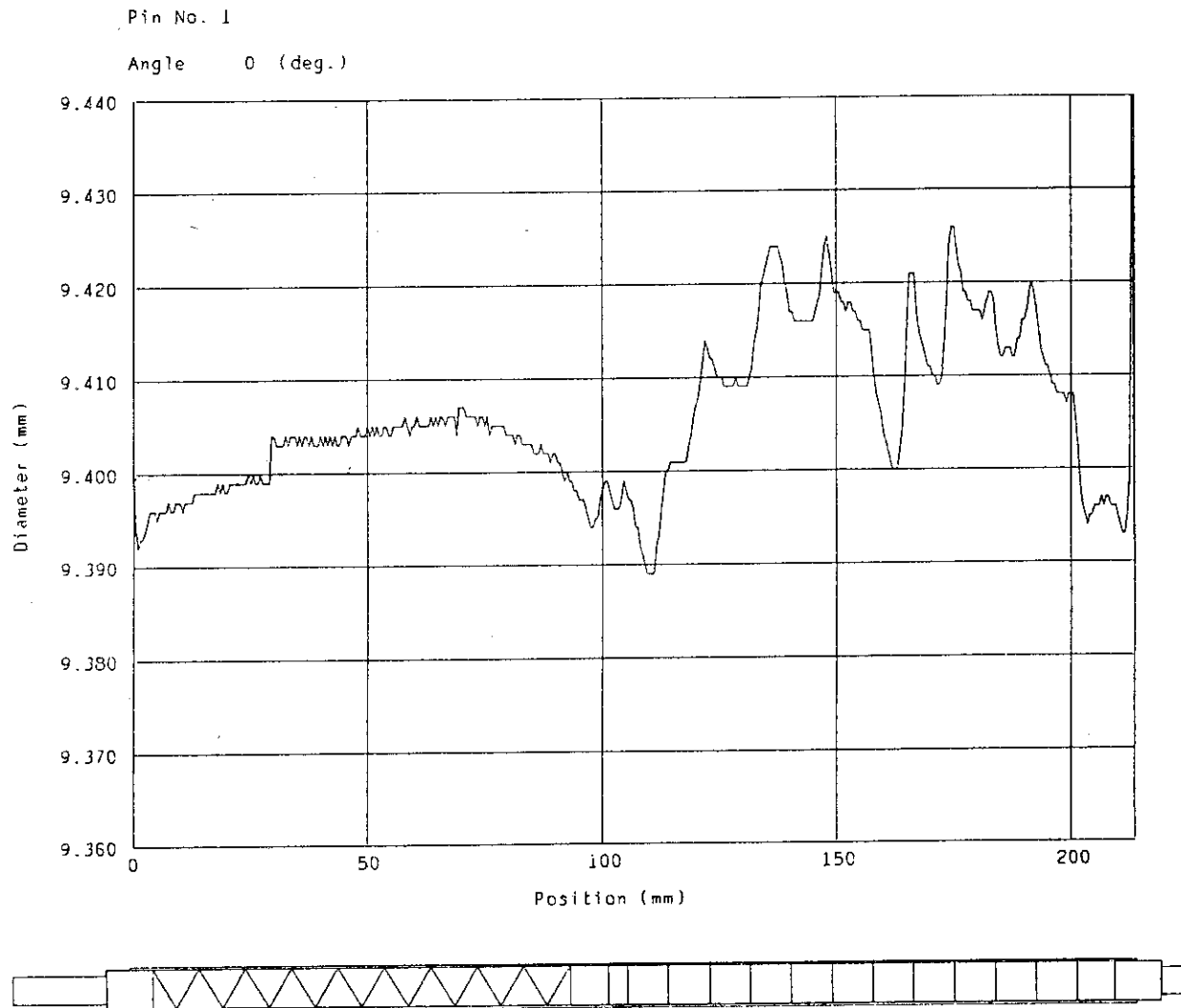


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.11 Results of diameter measurements for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin at 0°

FILE NO. F-1-18

Pin No. 1

Angle 45 (deg.)

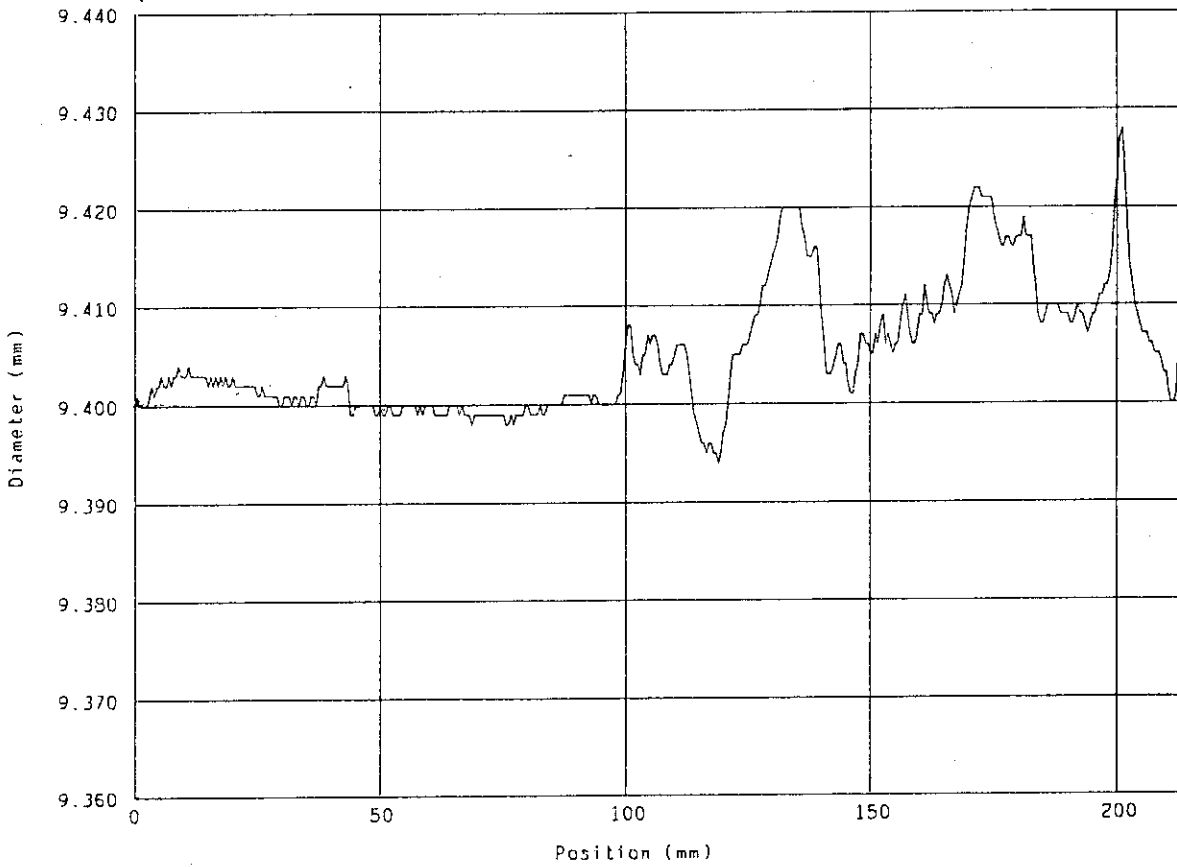


Fig. S4F-10A Profile Curve

Fig. 4.12 Results of diameter measurements for $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin at 45°

FILE NO. F-1-19

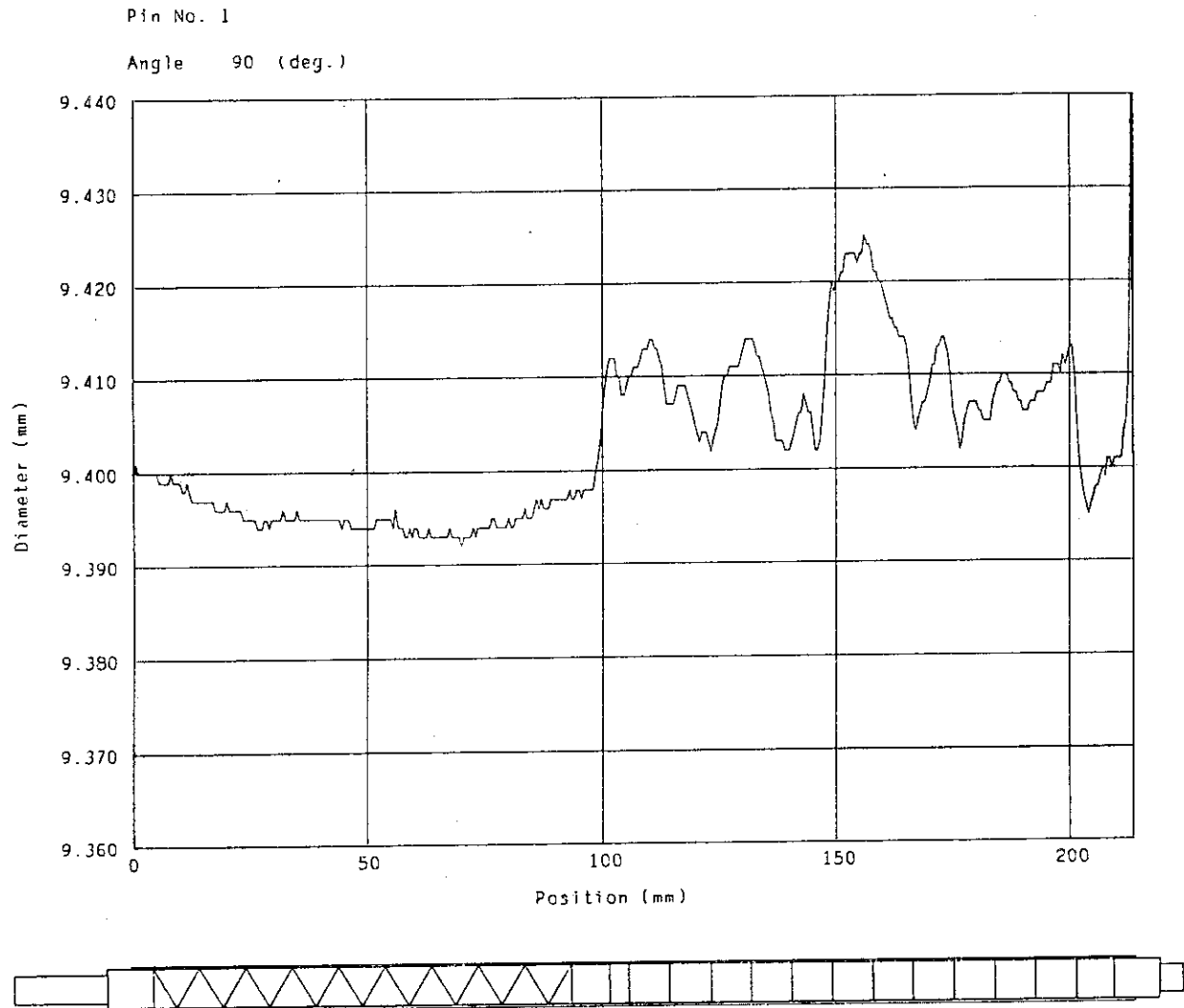


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.13 Results of diameter measurements for $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin at 90°

FILE NO. F-1-20

Pin No. 1

Angle 135 (deg.)

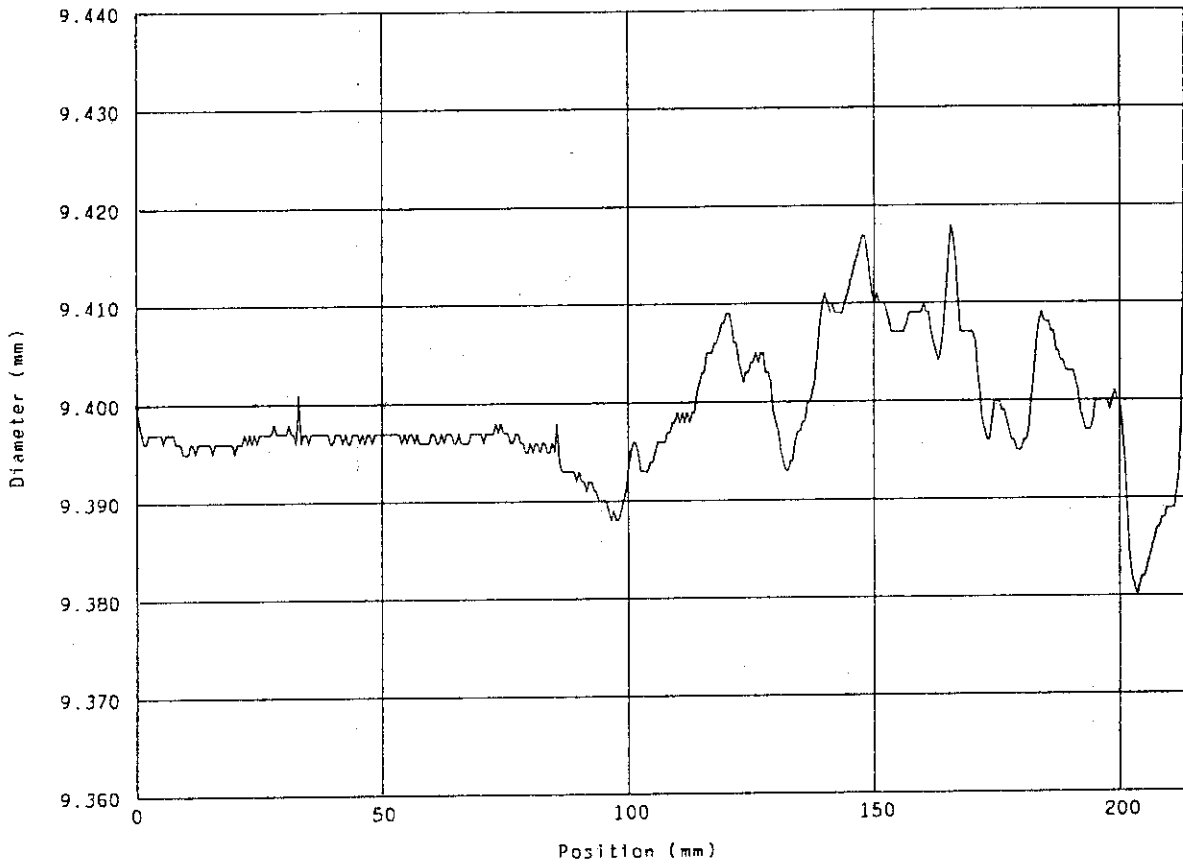


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.14 Results of diameter measurements for $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin at 135°

FILE NO. F-2-5

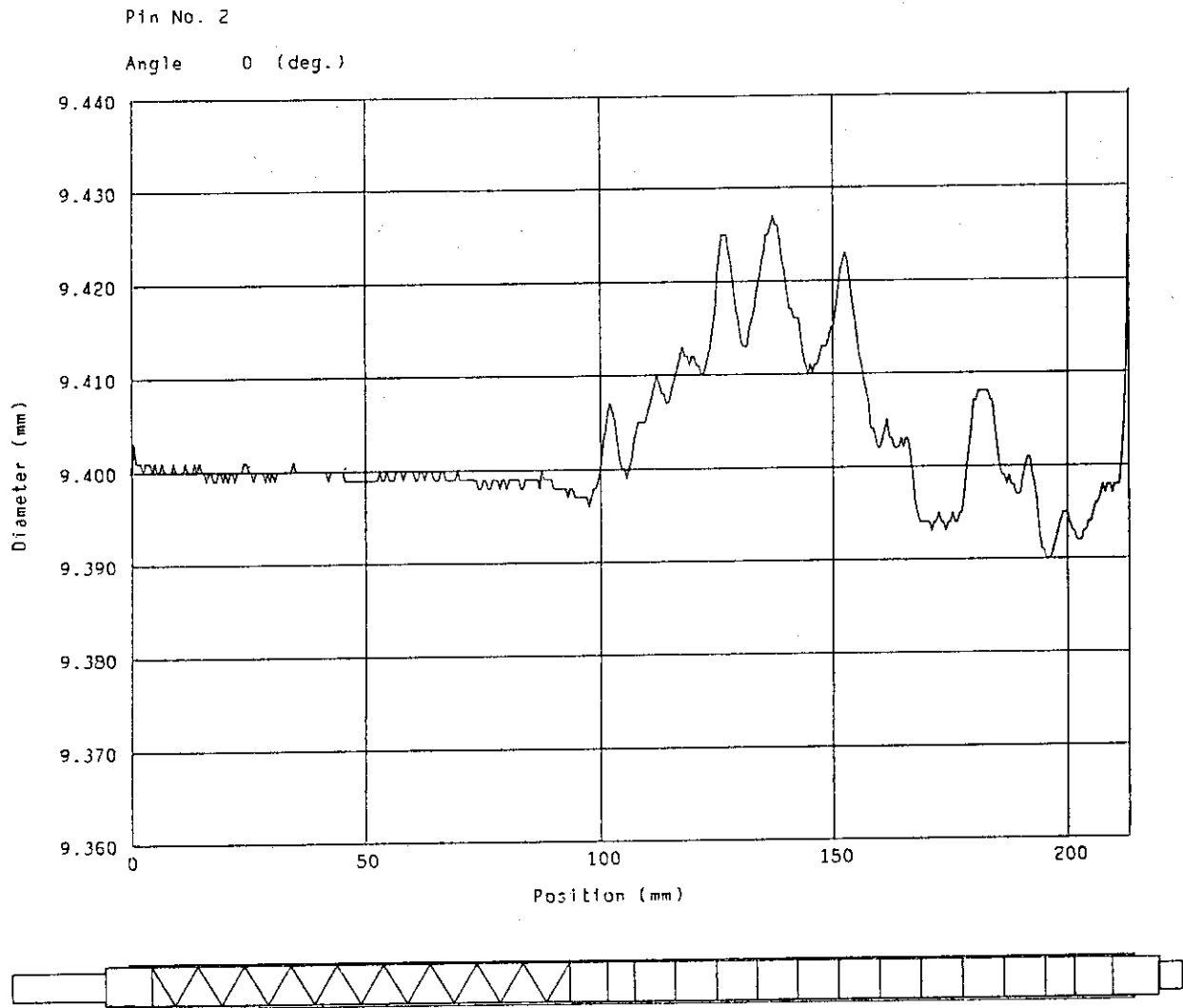


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.15 Results of diameter measurements for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin at 0°

FILE NO. F-2-6

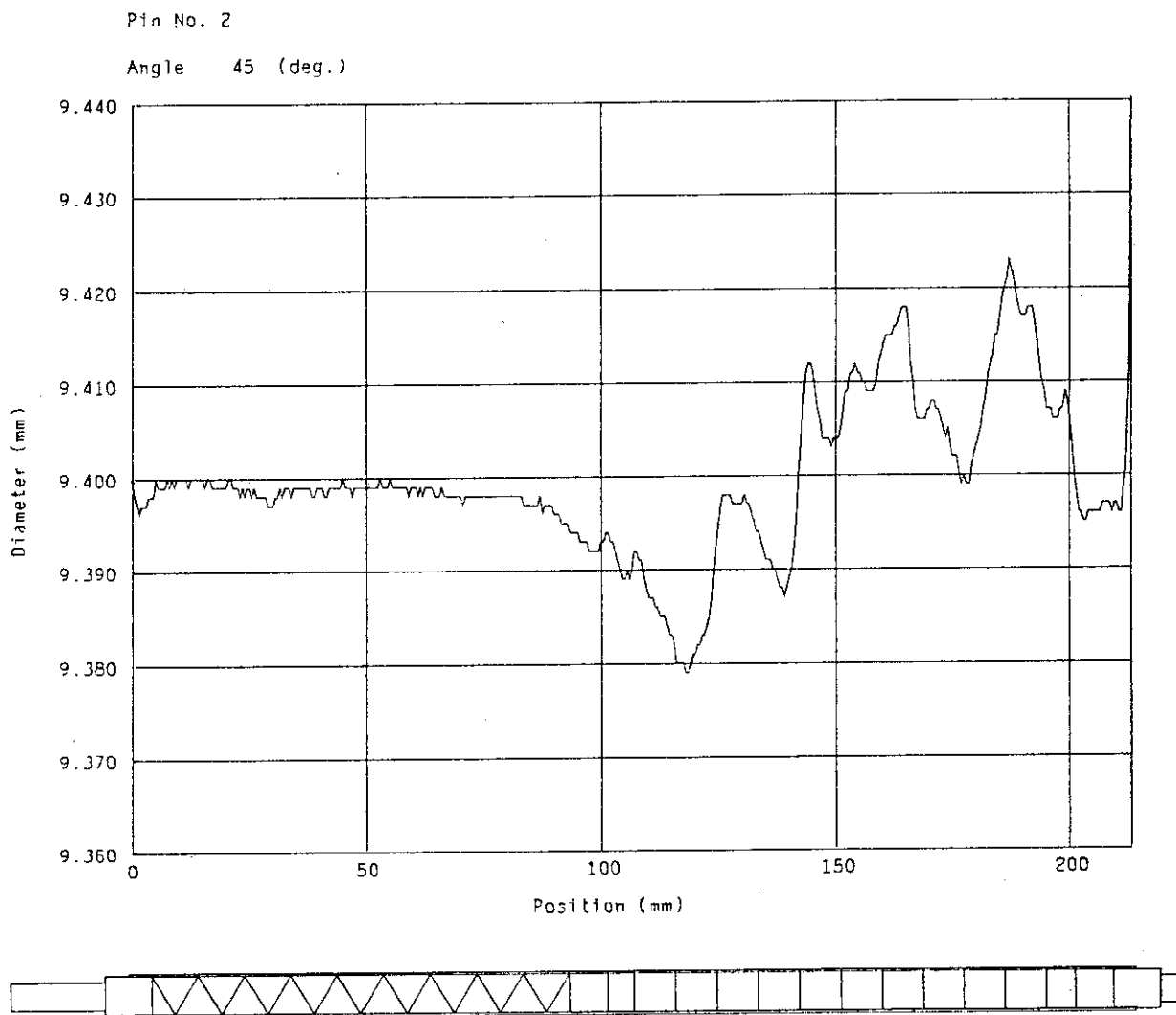


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.16 Results of diameter measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 45°

FILE NO. F-2-7

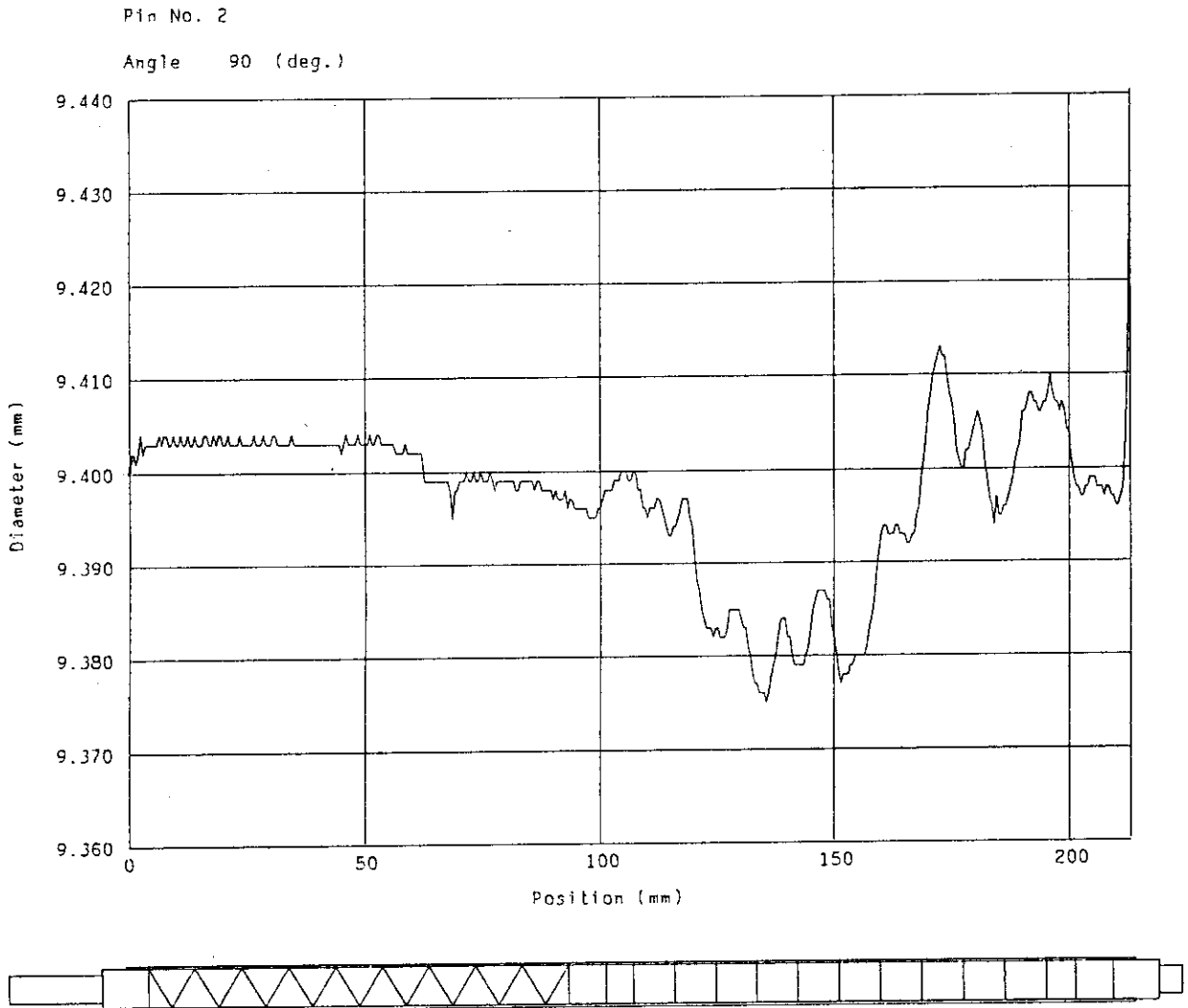


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.17 Results of diameter measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 90°

FILE NO. F-2-8

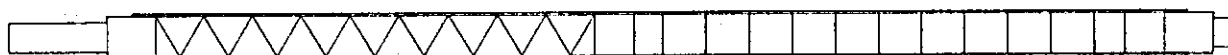
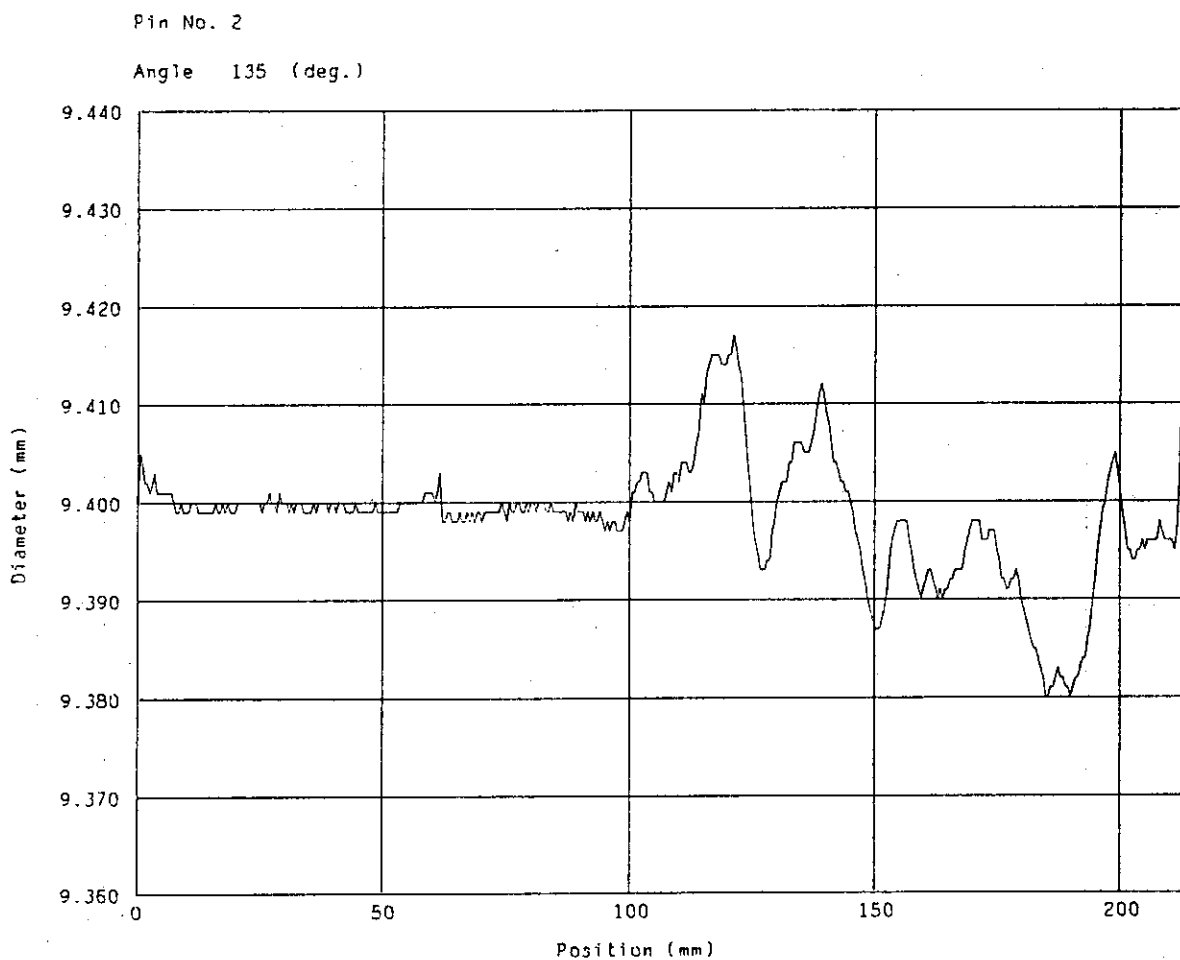


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.18 Results of diameter measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 135°

FILE NO. F-1-17

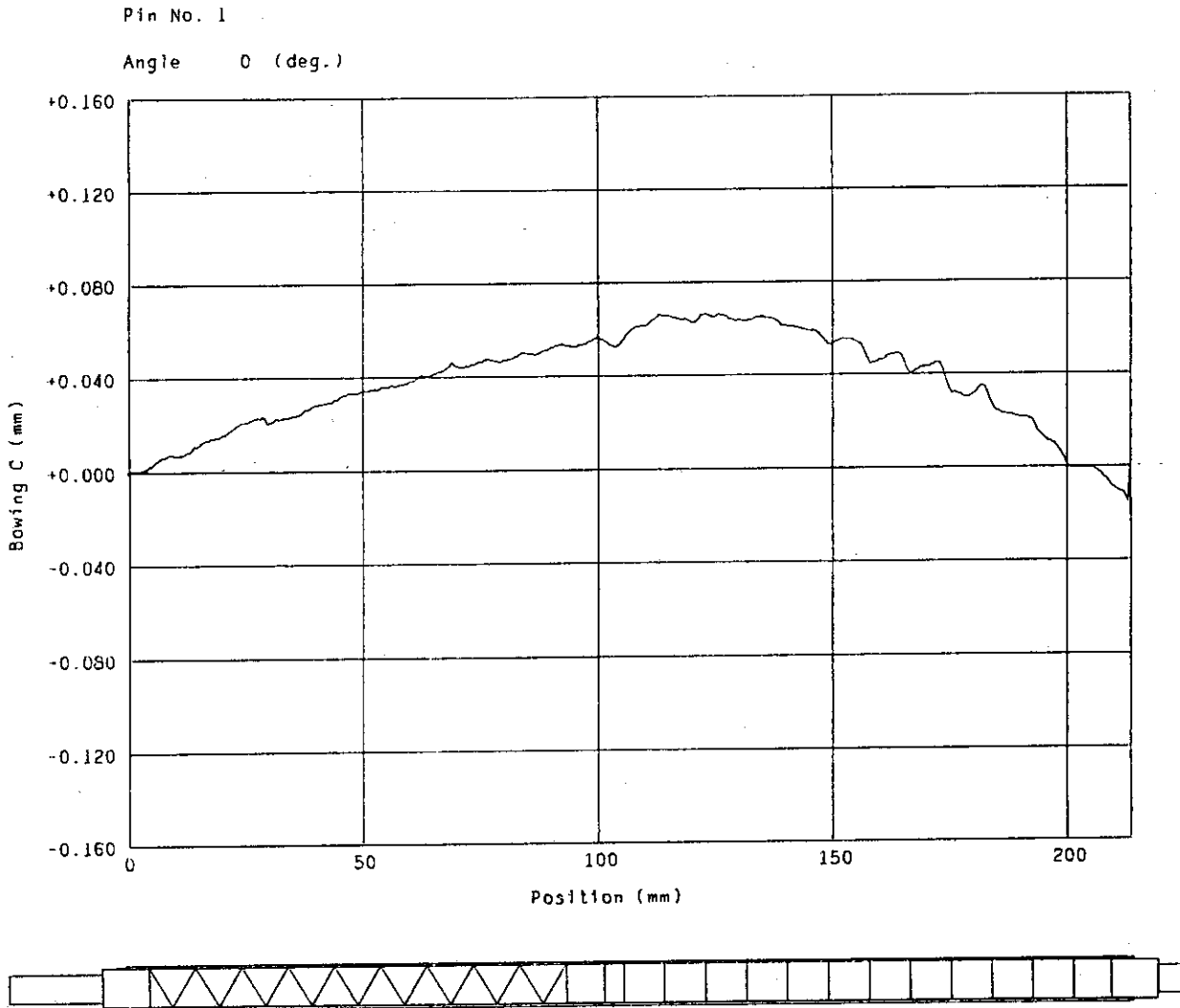


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.19 Results of bowing measurements for $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin at 0°

FILE NO. F-1-18

Pin No. 1

Angle 45 (deg.)

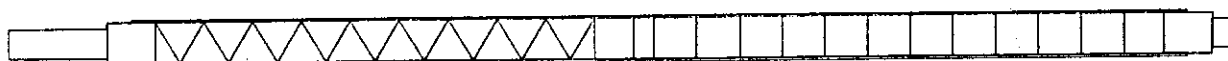
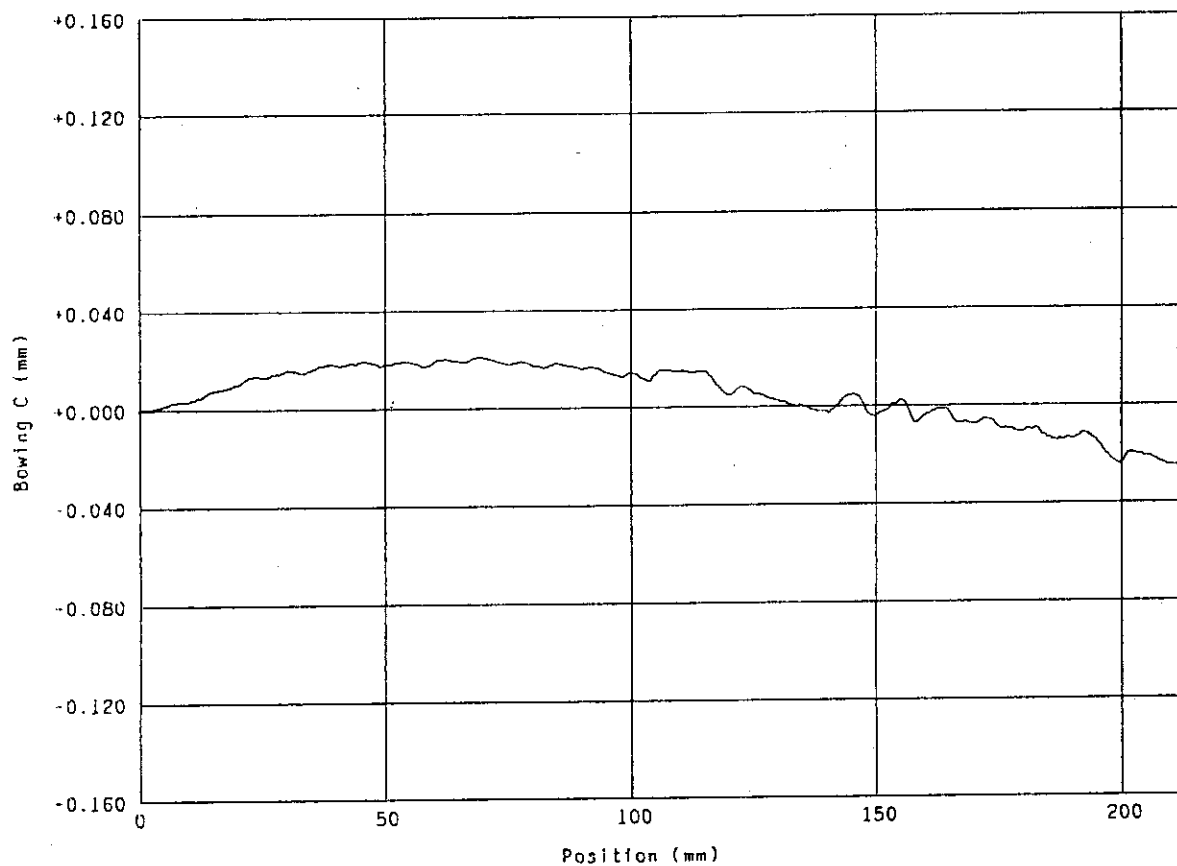


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.20 Results of bowing measurements for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin at 45°

FILE NO. F-1-19

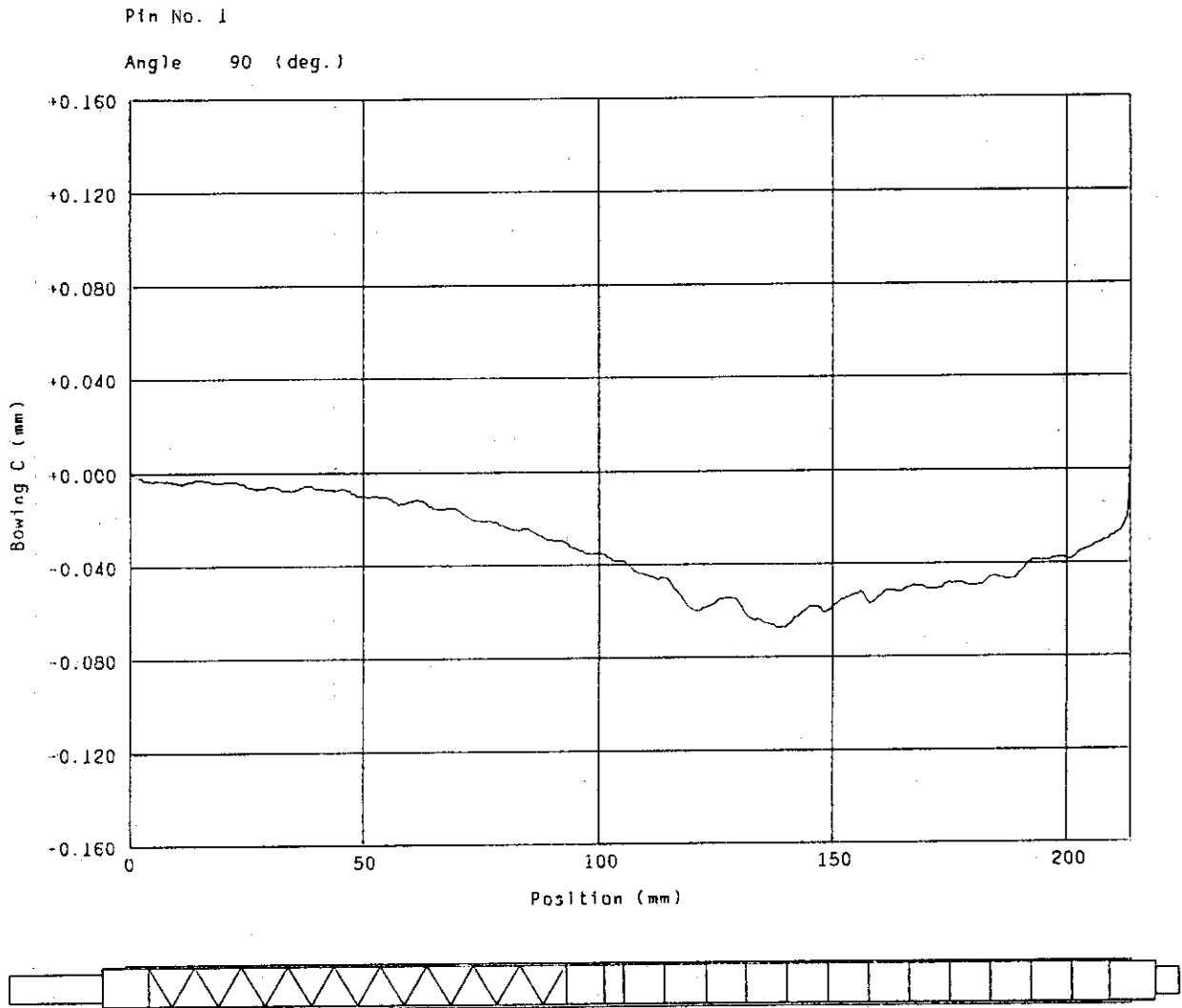


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.21 Results of bowing measurements for (U,Pu) $C_{1.0}$ fuel pin at 90°

FILE NO. F-1-20

Pin No. 1

Angle 135 (deg.)

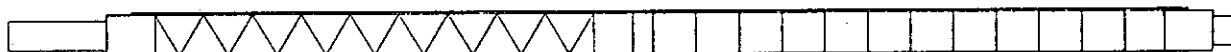
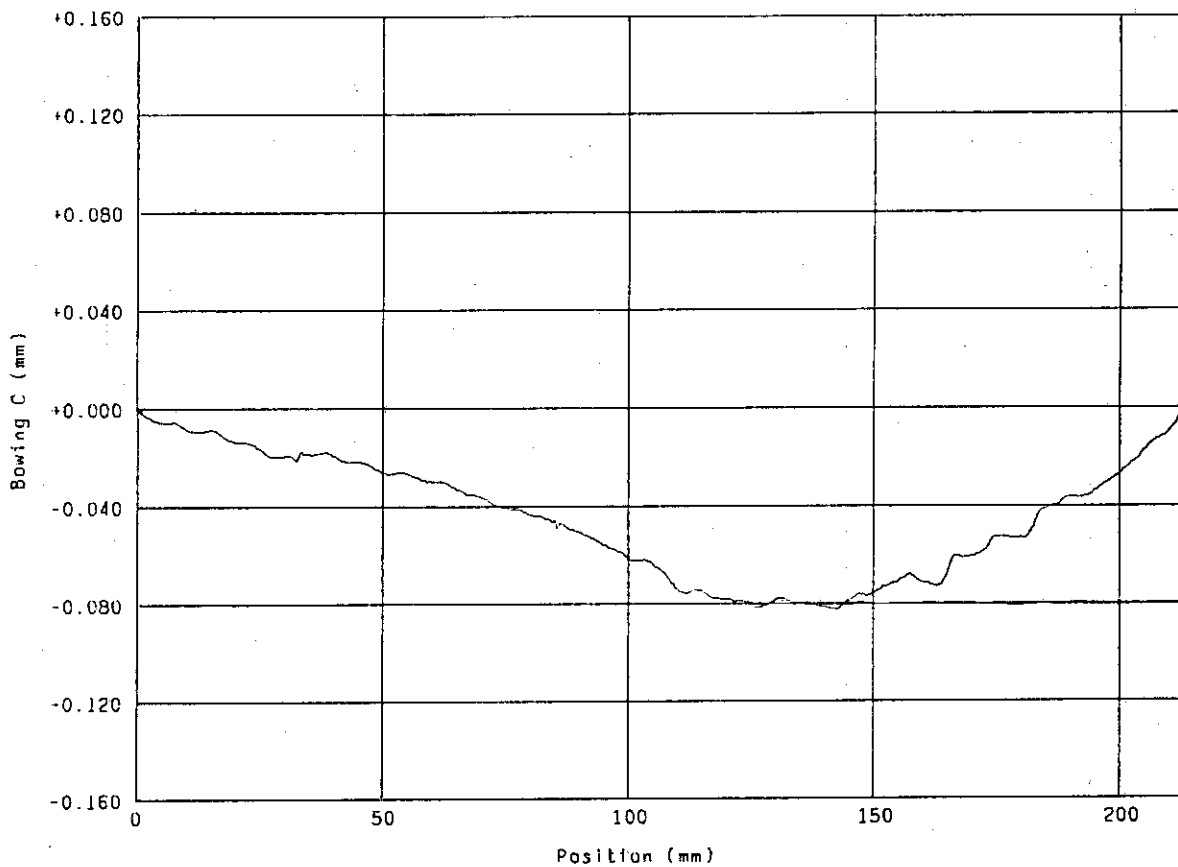


Fig. B4F-10A Profile Curve

Fig. 4.22 Results of bowing measurements for $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pin at 135°

FILE NO. F-2-5

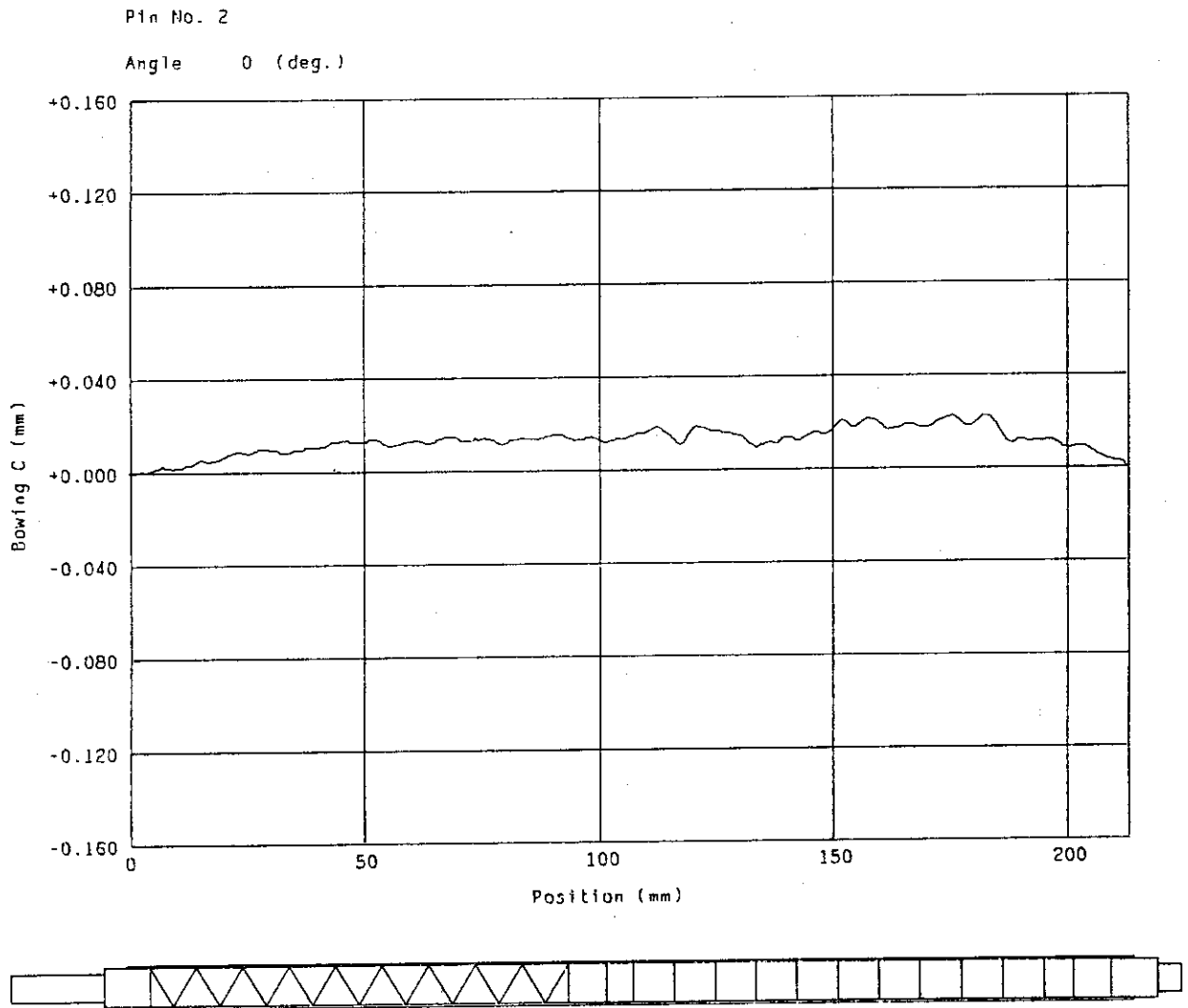


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.23 Results of bowing measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 0°

FILE NO. F-2-6

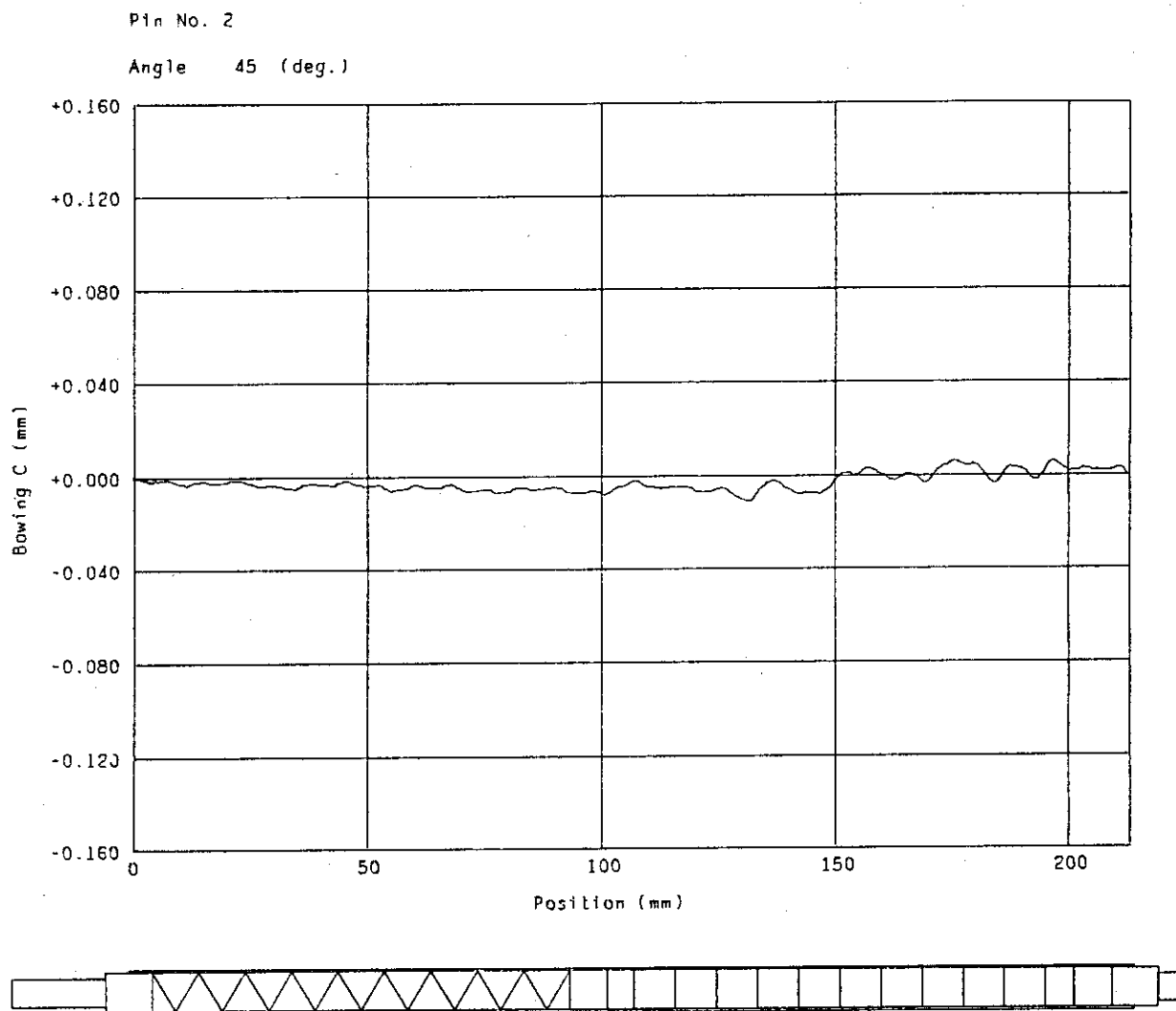


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.24 Results of bowing measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 45°

FILE NO. F-2-7

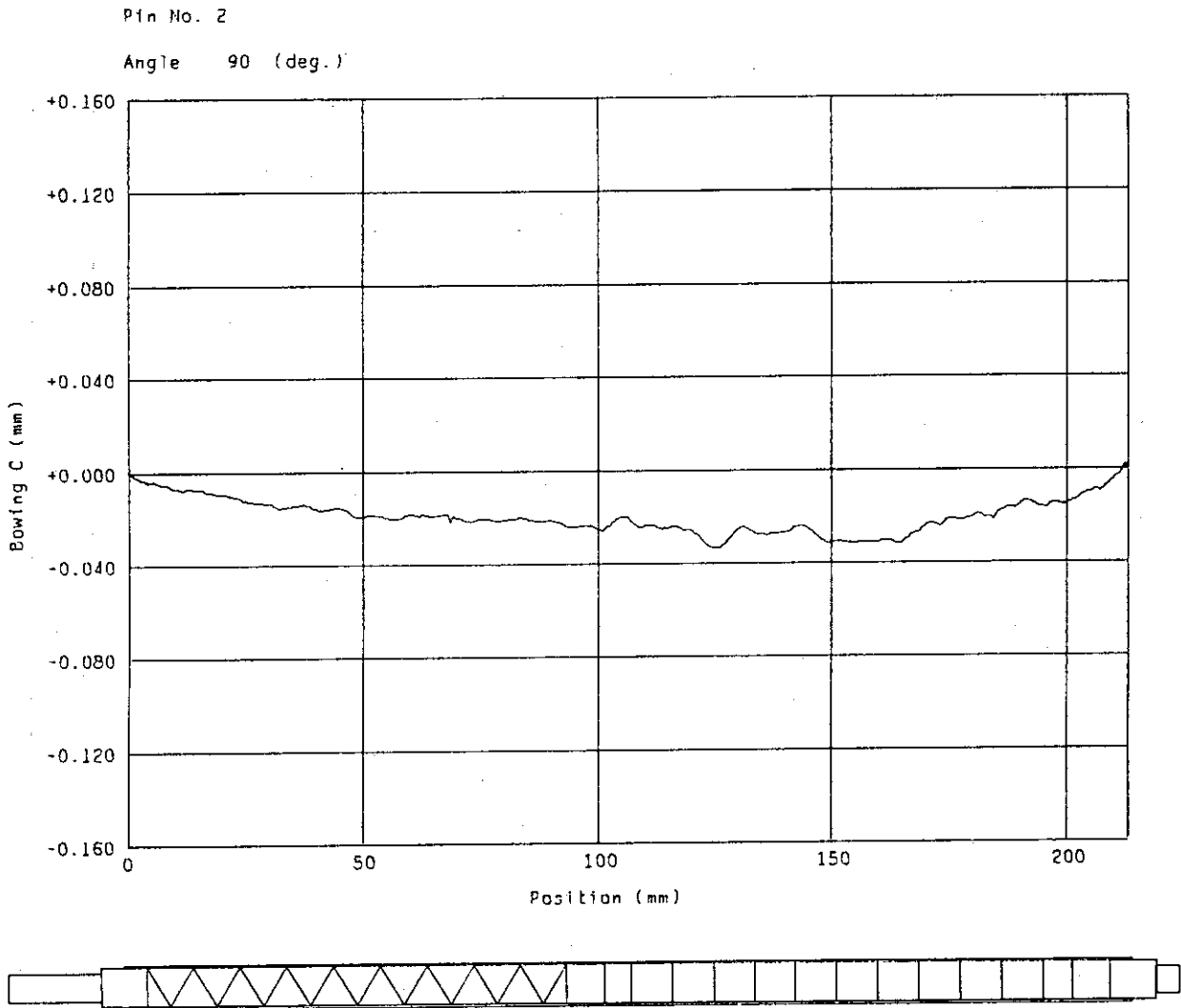


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.25 Results of bowing measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 90°

FILE NO. F-2-8

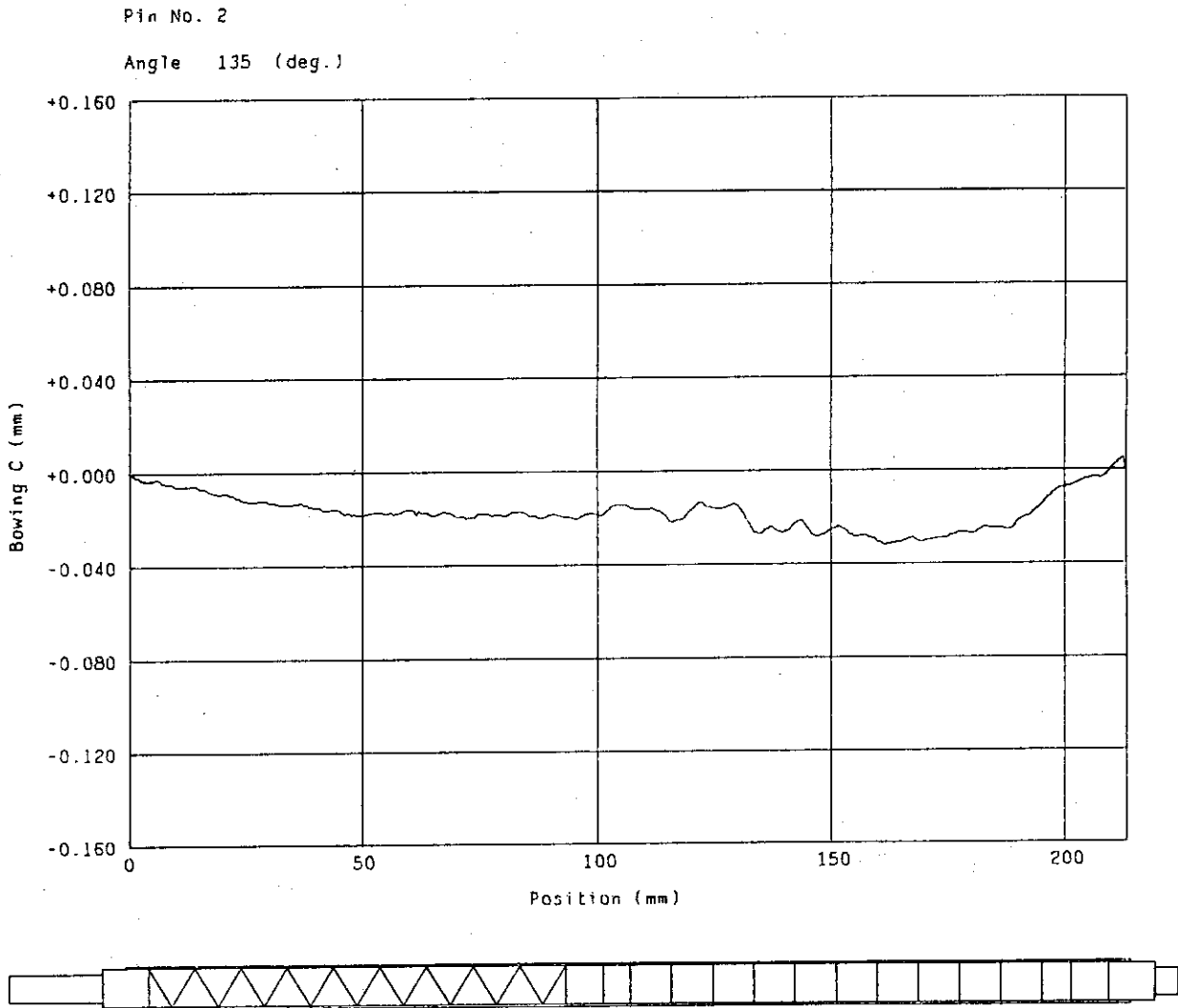
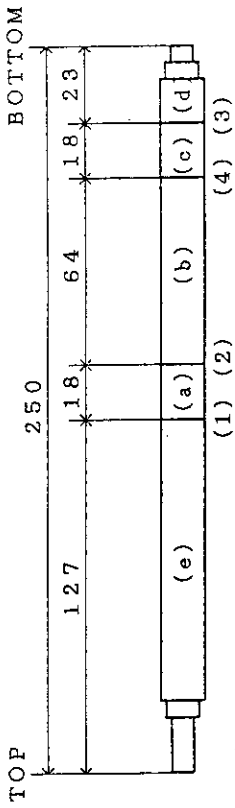
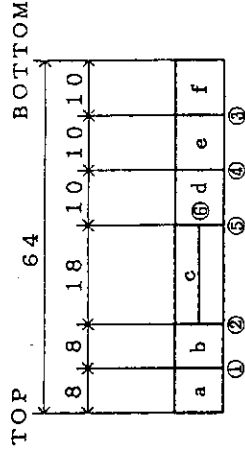


Fig. 84F-10A Profile Curve

Fig. 4.26 Results of bowing measurements for $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pin at 135°

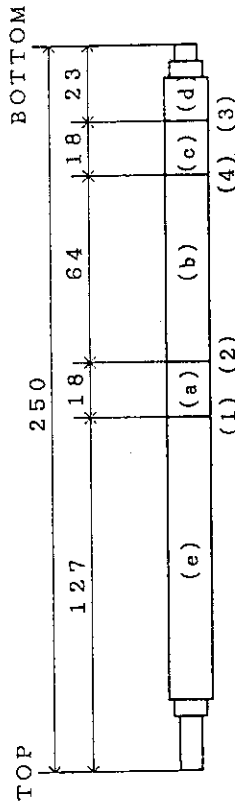


Sample name : (a) 842A
 (b) 842B
 (c) 842C

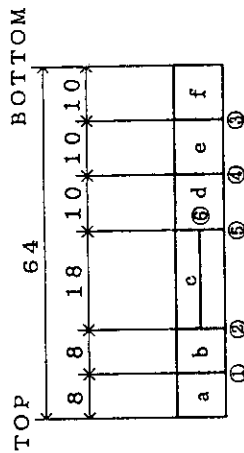


Sample name : (a) 842B1
 (b) 842B2
 (c) 842B3
 (d) 842B6
 (e) 842B4
 (f) 842B5

Fig. 4.28 Cutting and sectioning position for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin



Sample name : (a) 841A
 (b) 841B
 (c) 841C



Sample name : (a) 841B1
 (b) 841B2
 (c) 841B3
 (d) 841B6
 (e) 841B4
 (f) 841B5

Fig. 4.27 Cutting and sectioning position for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin

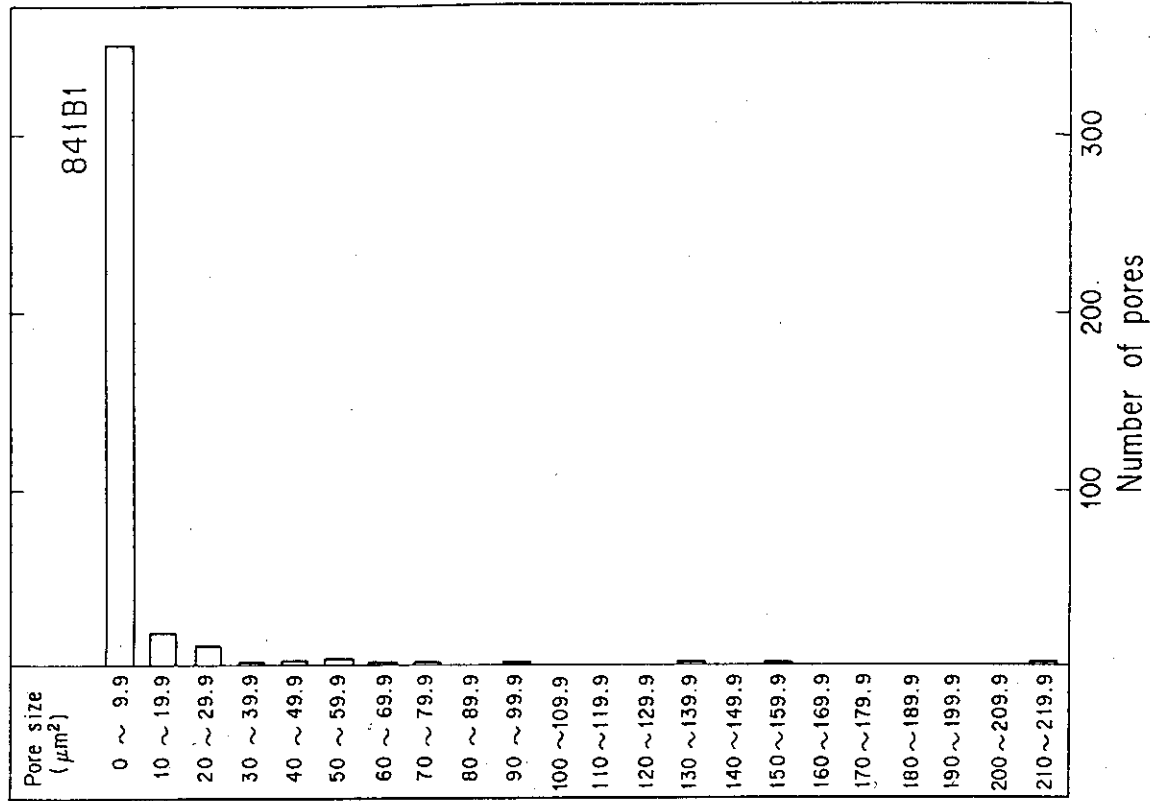


Fig. 4.30 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B1, INTERMEDIATE)

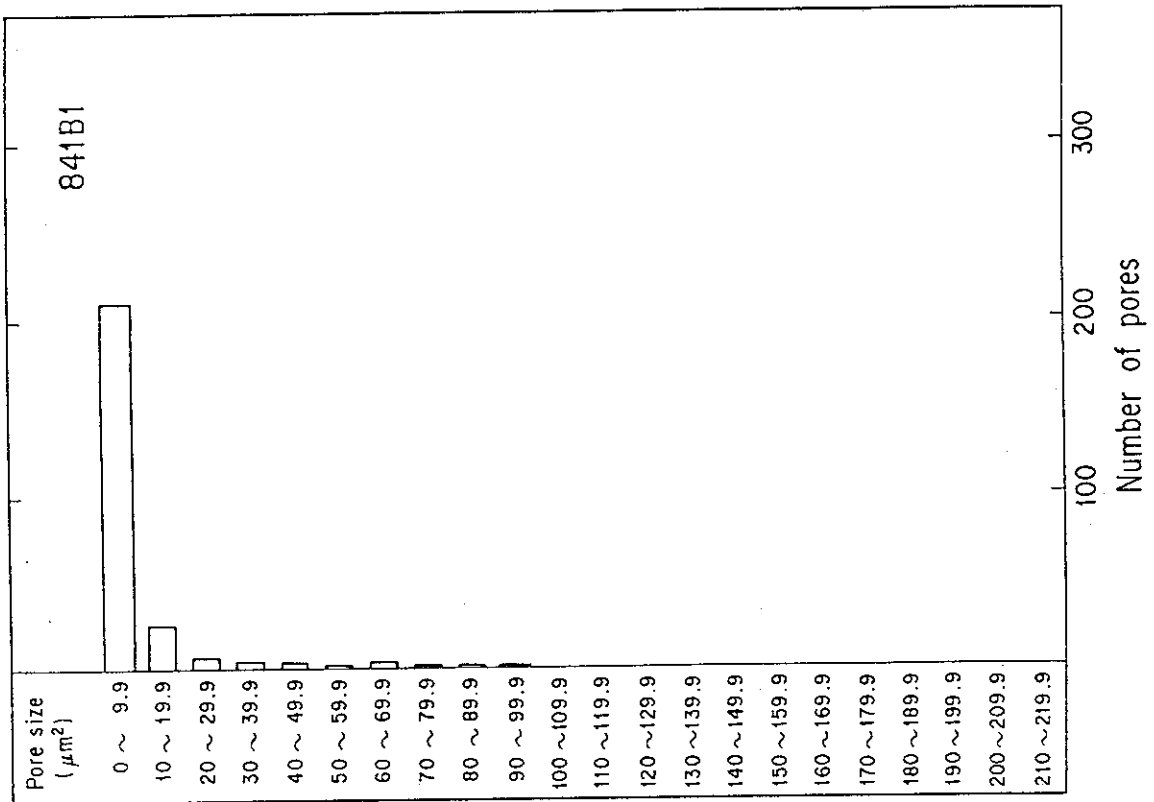


Fig. 4.29 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B1, CENTER)

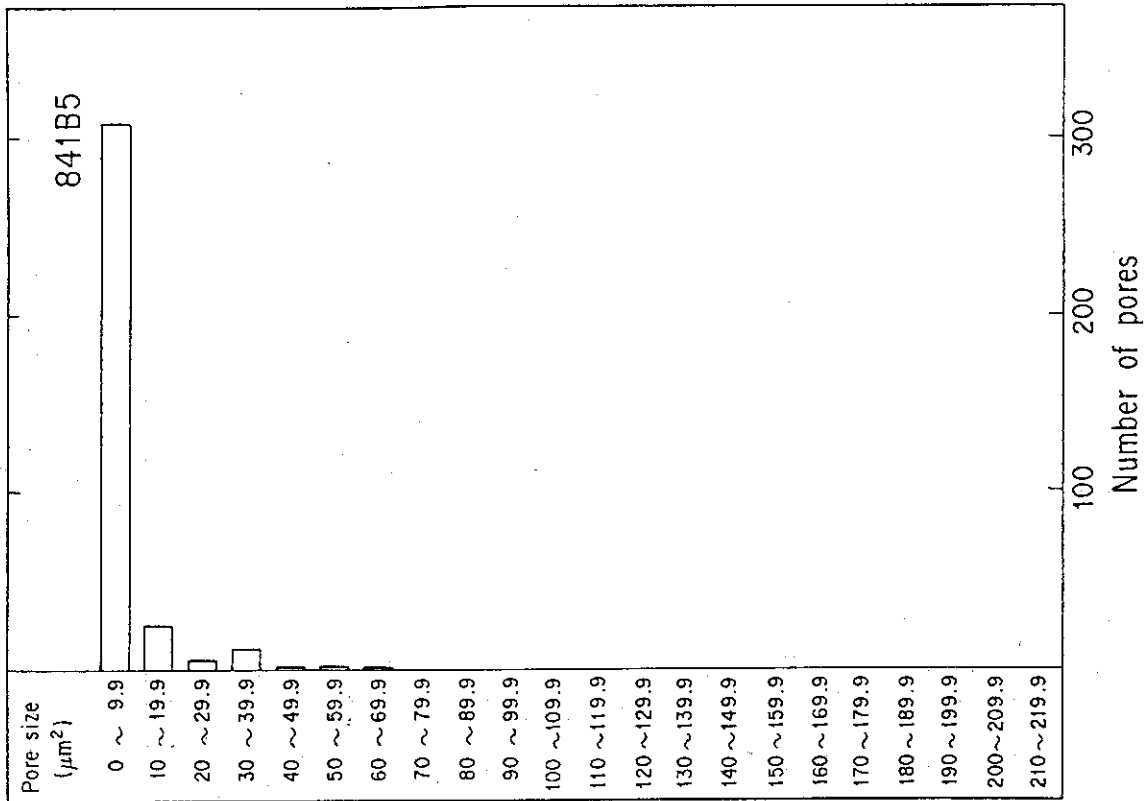


Fig. 4.32 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B5, CENTER)

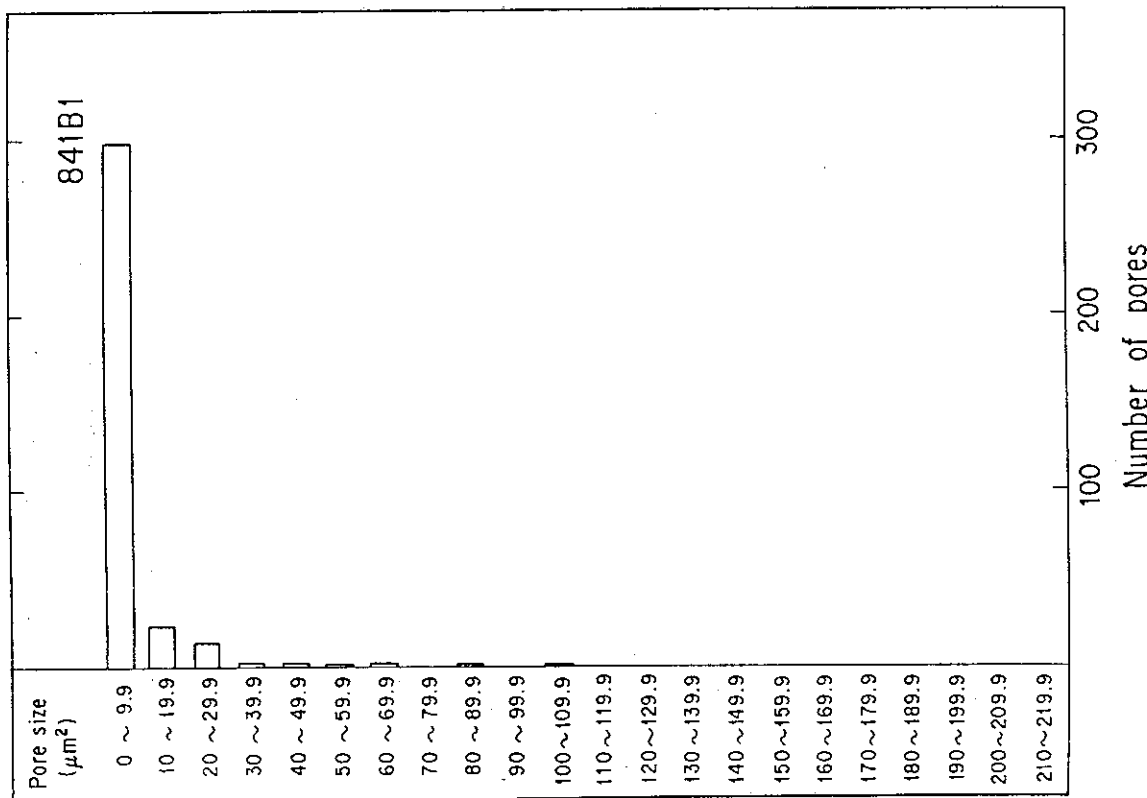


Fig. 4.31 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B1, OUTER)

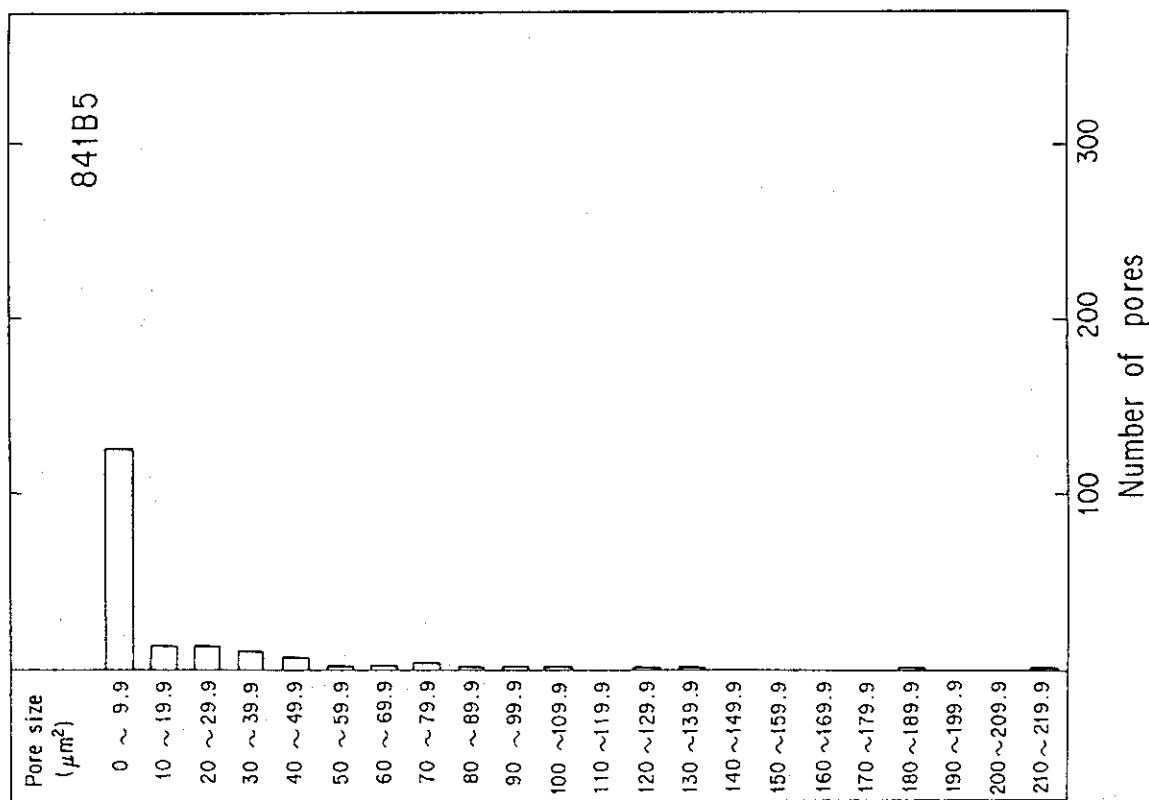


Fig. 4.33 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B5, INTERMEDIATE)

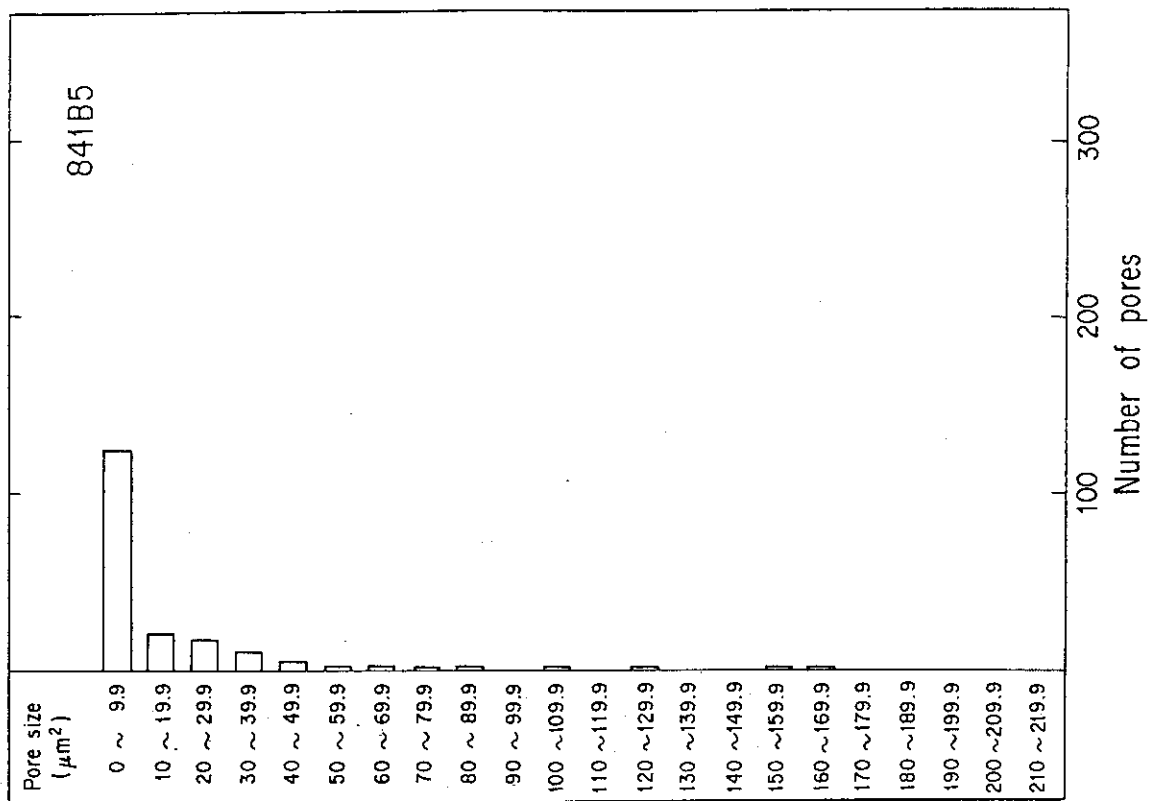


Fig. 4.34 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B5, OUTER)

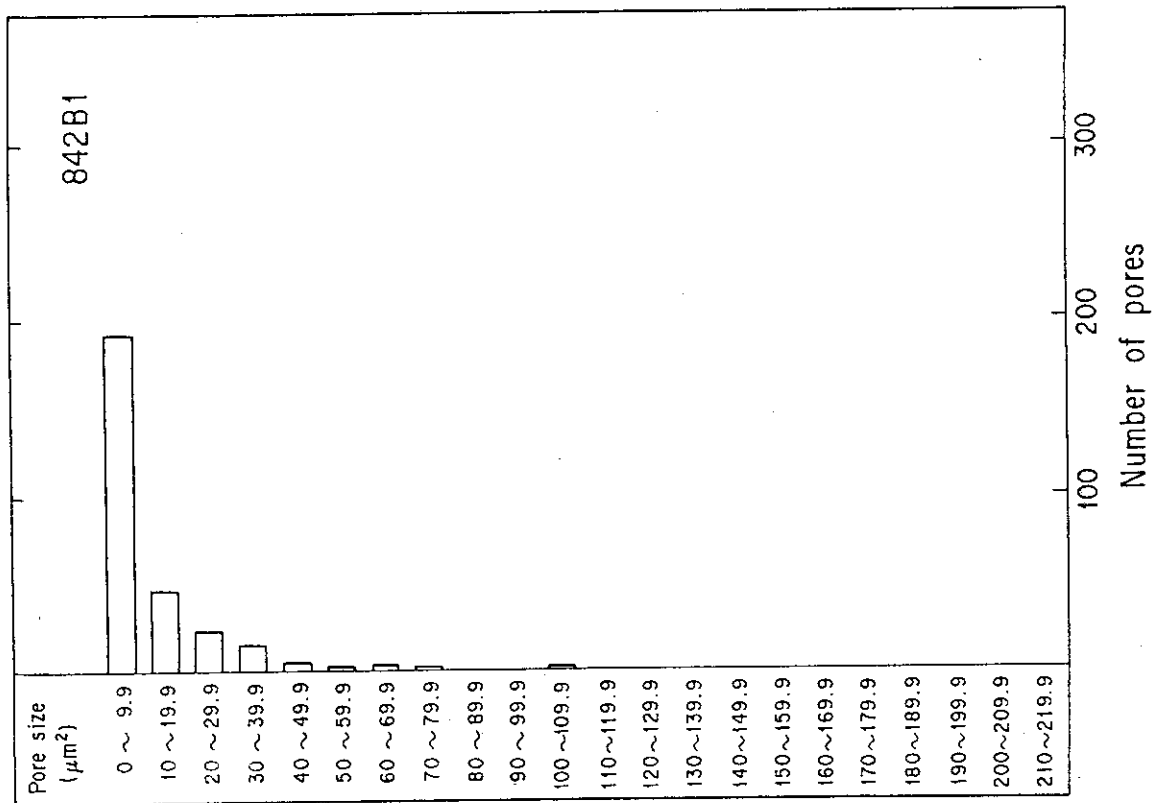


Fig. 4.35 Pore distribution of (U,Pu) $C_{1.1}$ fuel pellet (842B1, CENTER)

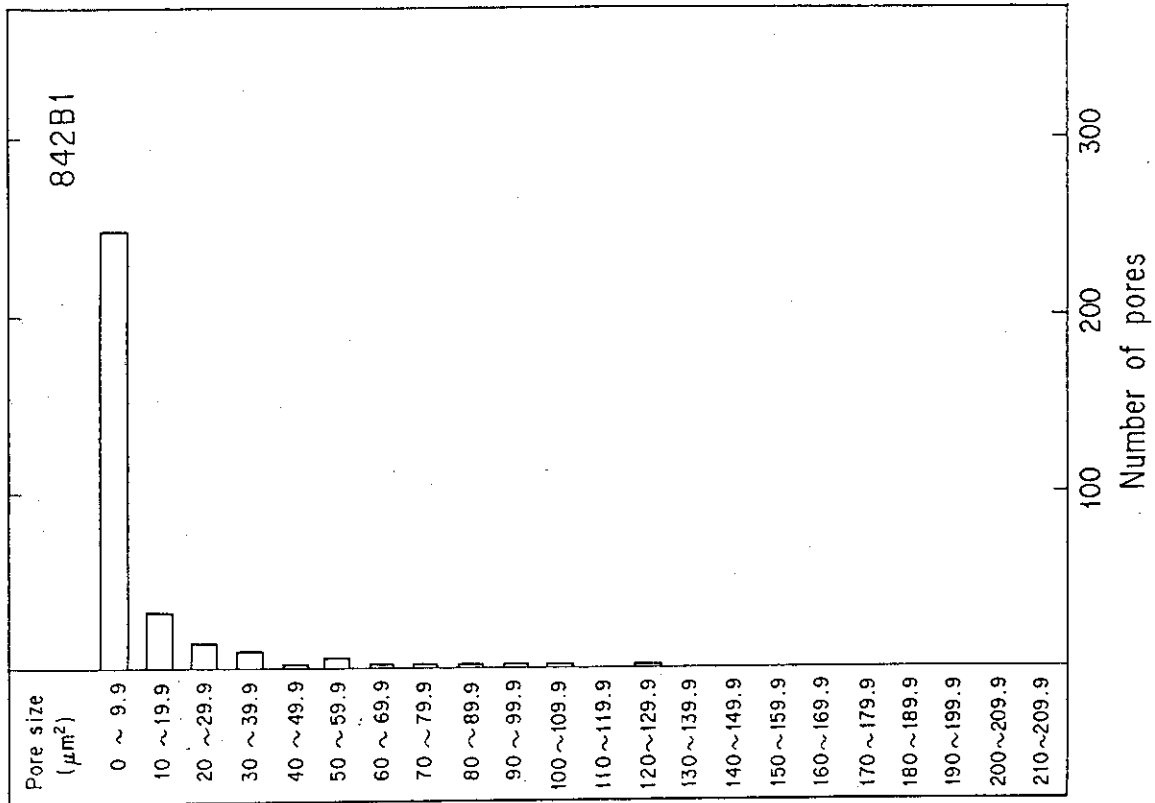


Fig. 4.36 Pore distribution of (U,Pu) $C_{1.1}$ fuel pellet (842B1, INTERMEDIATE)

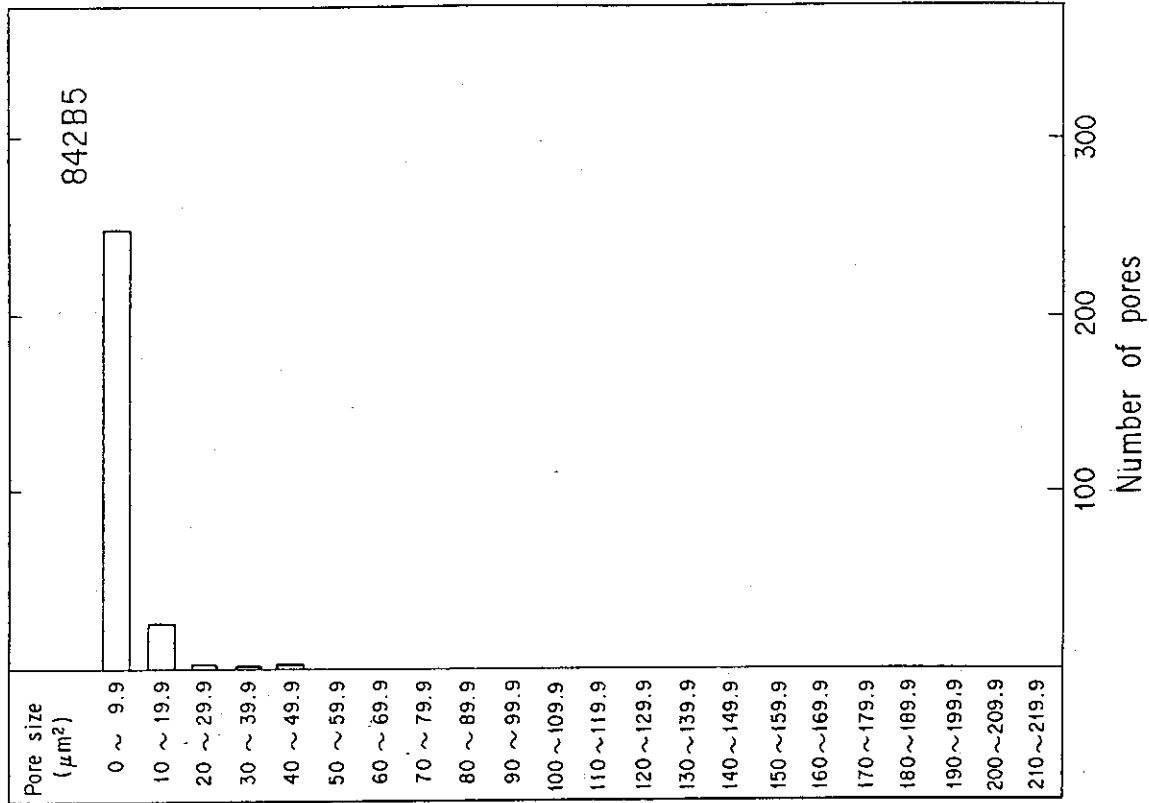


Fig. 4.38 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B5, CENTER)

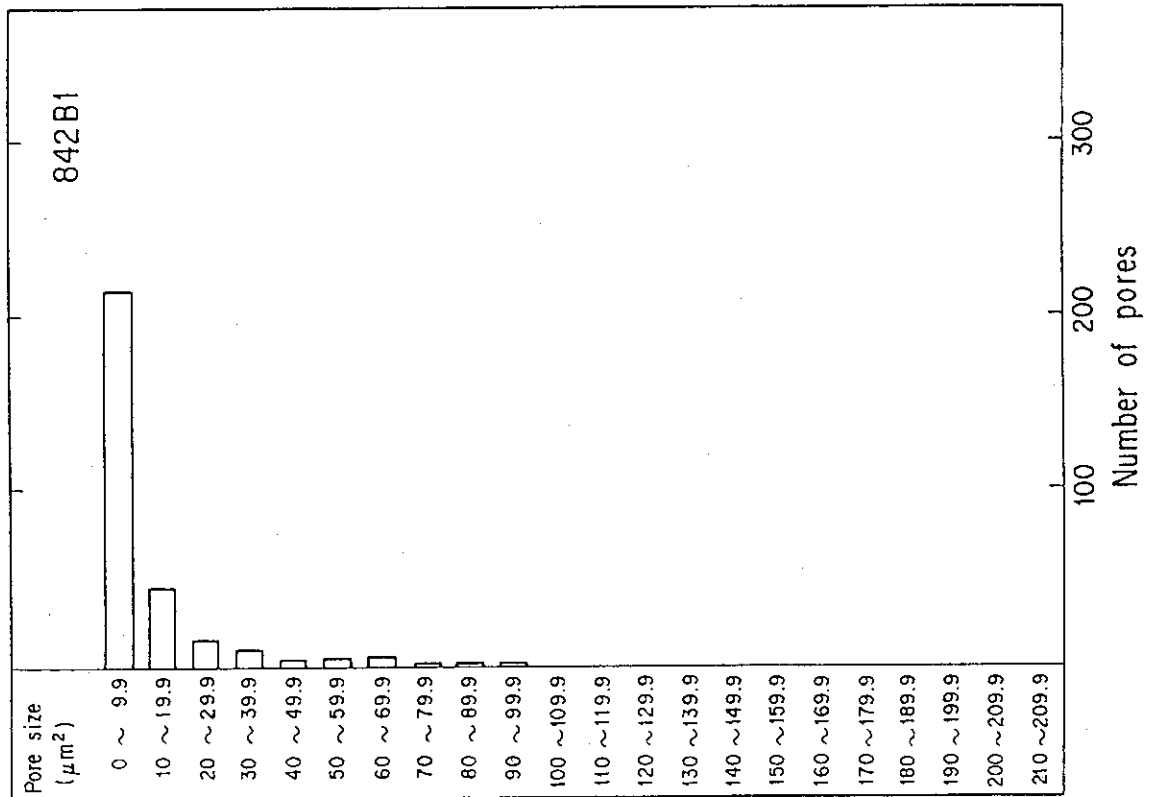


Fig. 4.37 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B1, OUTER)

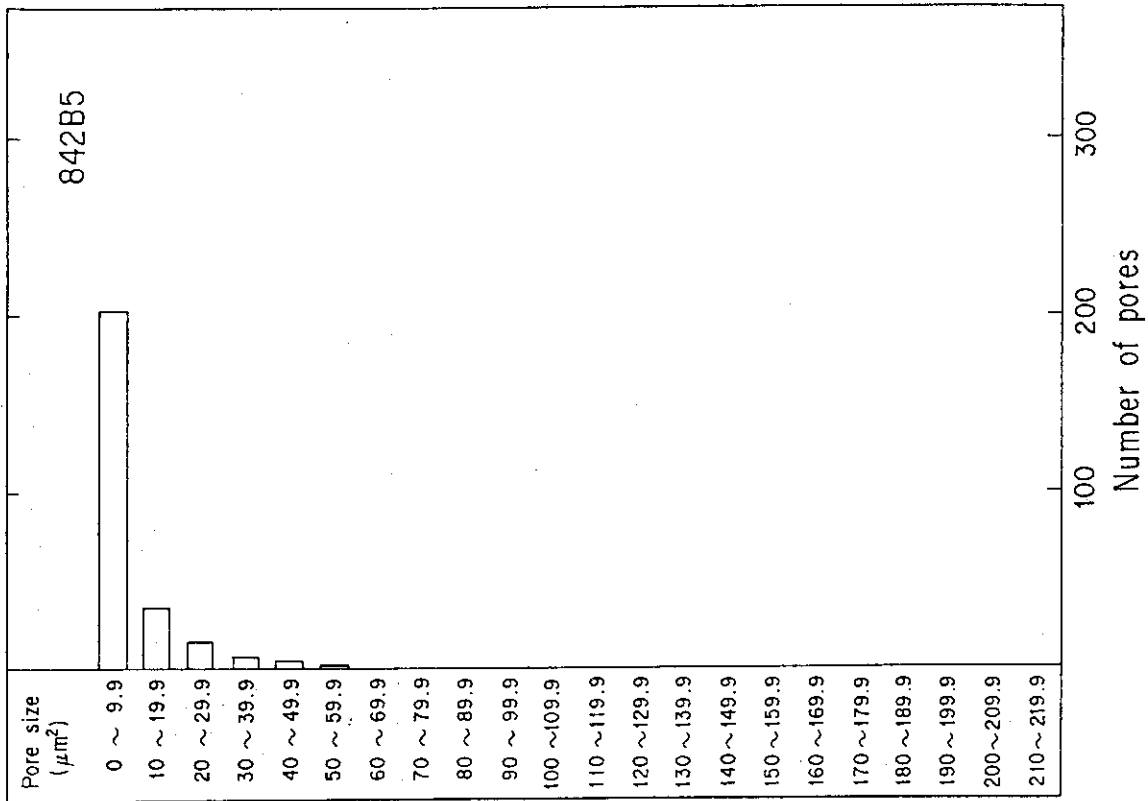


Fig. 4.40 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B5, OUTER)

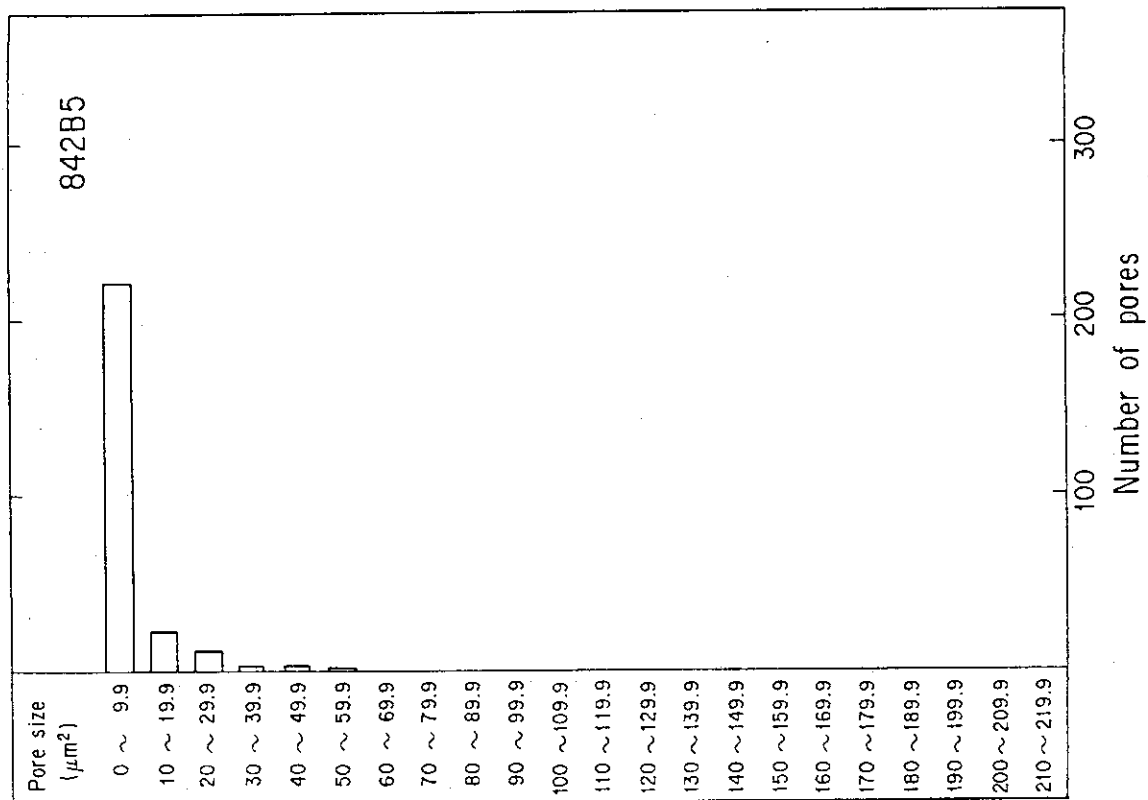


Fig. 4.39 Pore distribution of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B5, INTERMEDIATE)

別添-4
 PIN No. 84F-10-1
 SPECIMEN No. 841B4
 POSITION (0, 0)
 DATE 1990-08-21

V = 00
 H = 00

PHA-SPECTOL

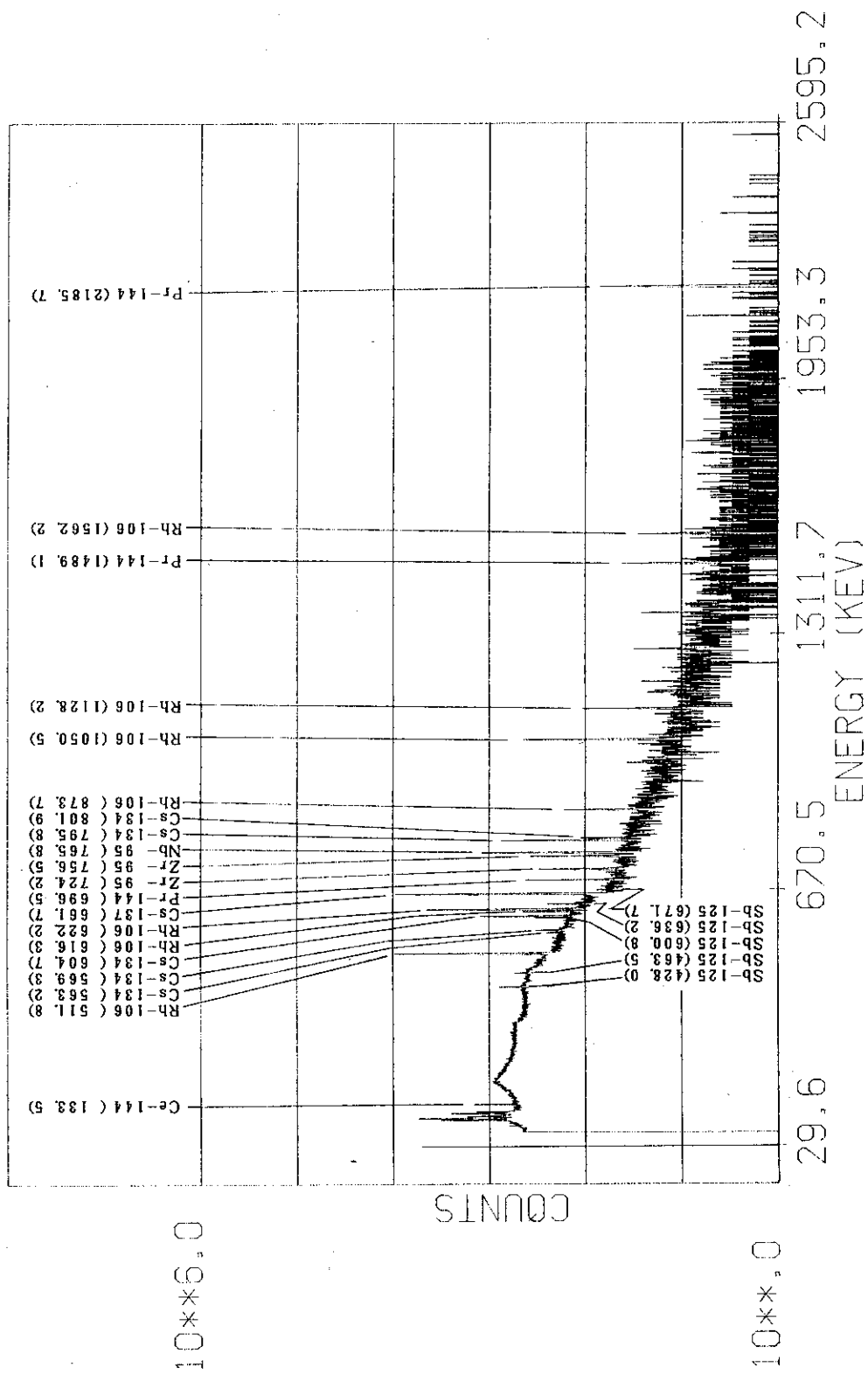


Fig. 4.41 Gamma ray spectrum at the center of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet

V = 00
 H = 00
 PHA-SPECTOL

PIN No. 84F-10-2
 SPECIMEN No. 842B4
 POSITION (0.0)
 DATE 1990-11-21

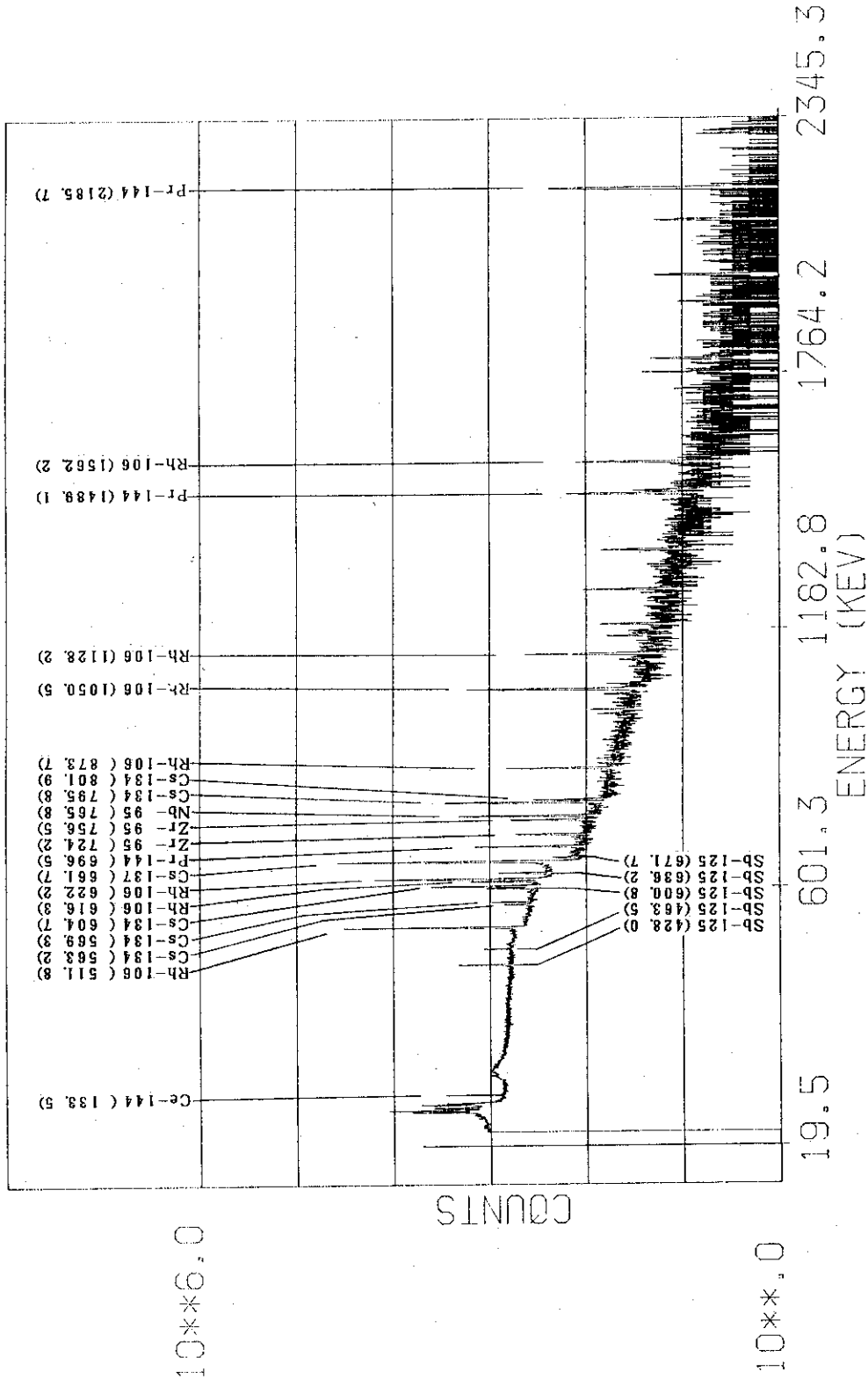


Fig. 4.42 Gamma ray spectrum at the center of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet

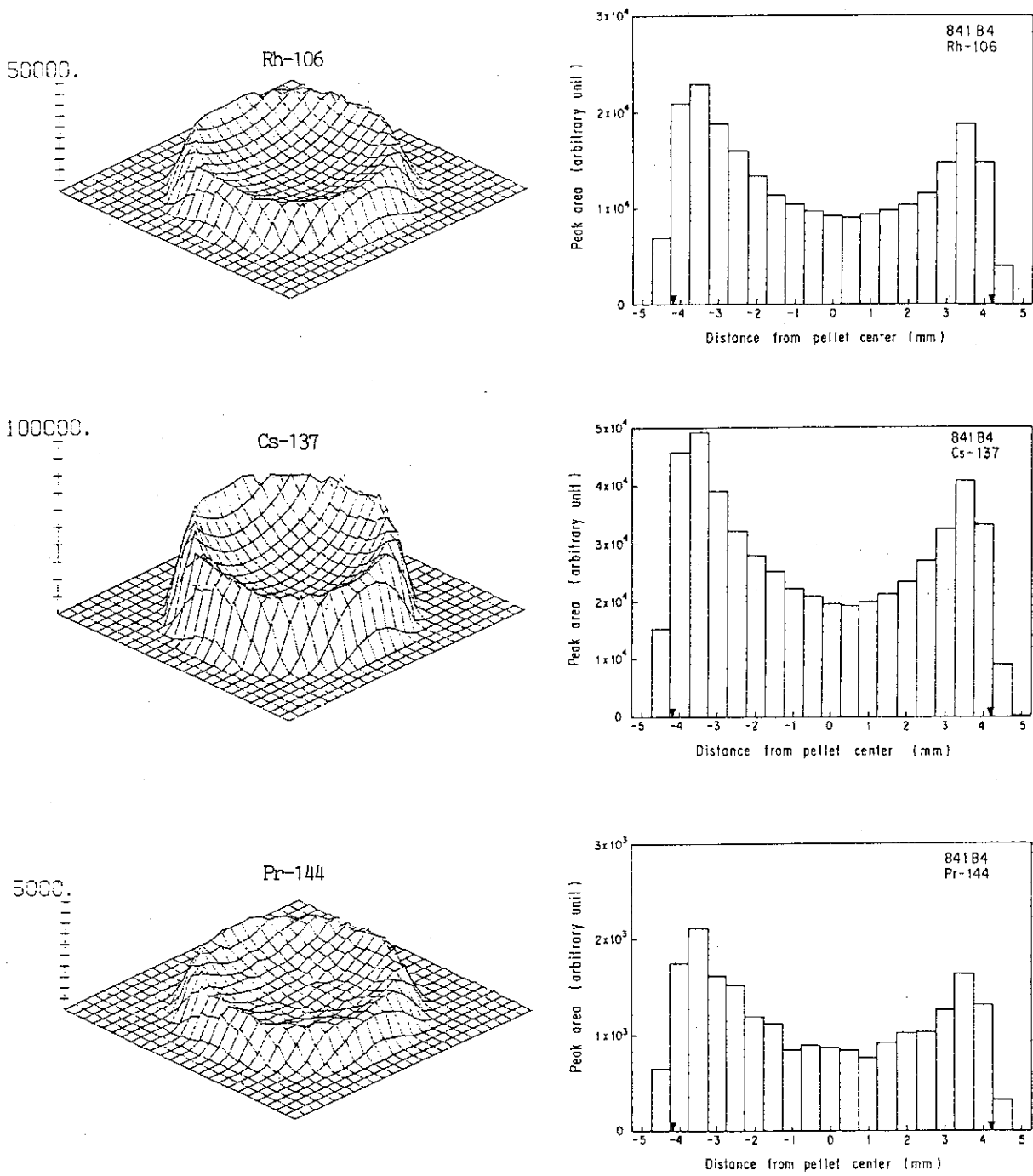


Fig. 4.43 Radial distribution of ¹⁰⁶Rh, ¹³⁷Cs, ¹⁴⁴Pr, ⁹⁵Zr and ¹³⁴Cs in (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet

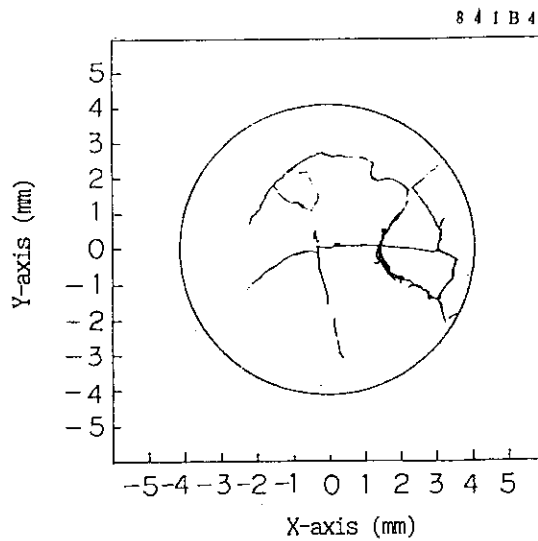
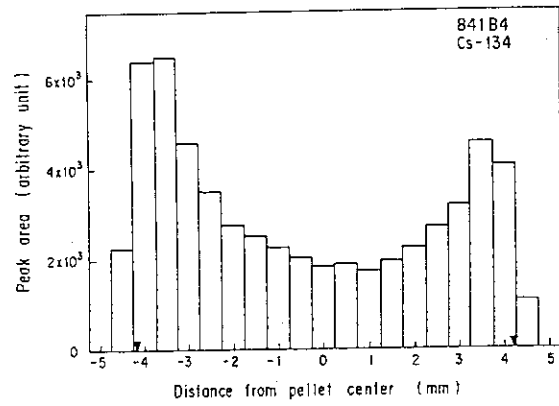
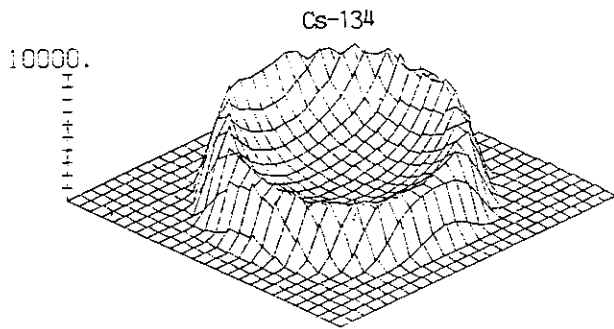
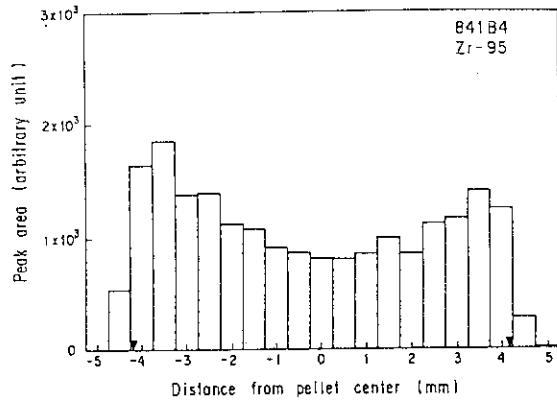
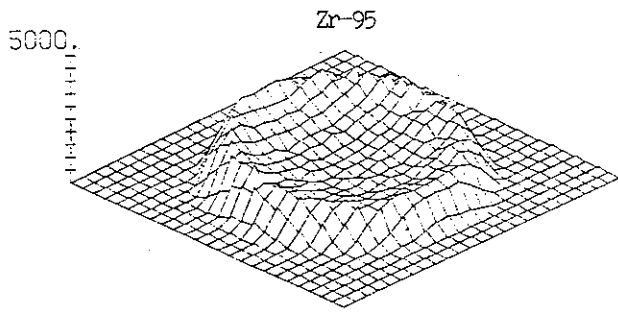


Fig. 4.43 (continued)

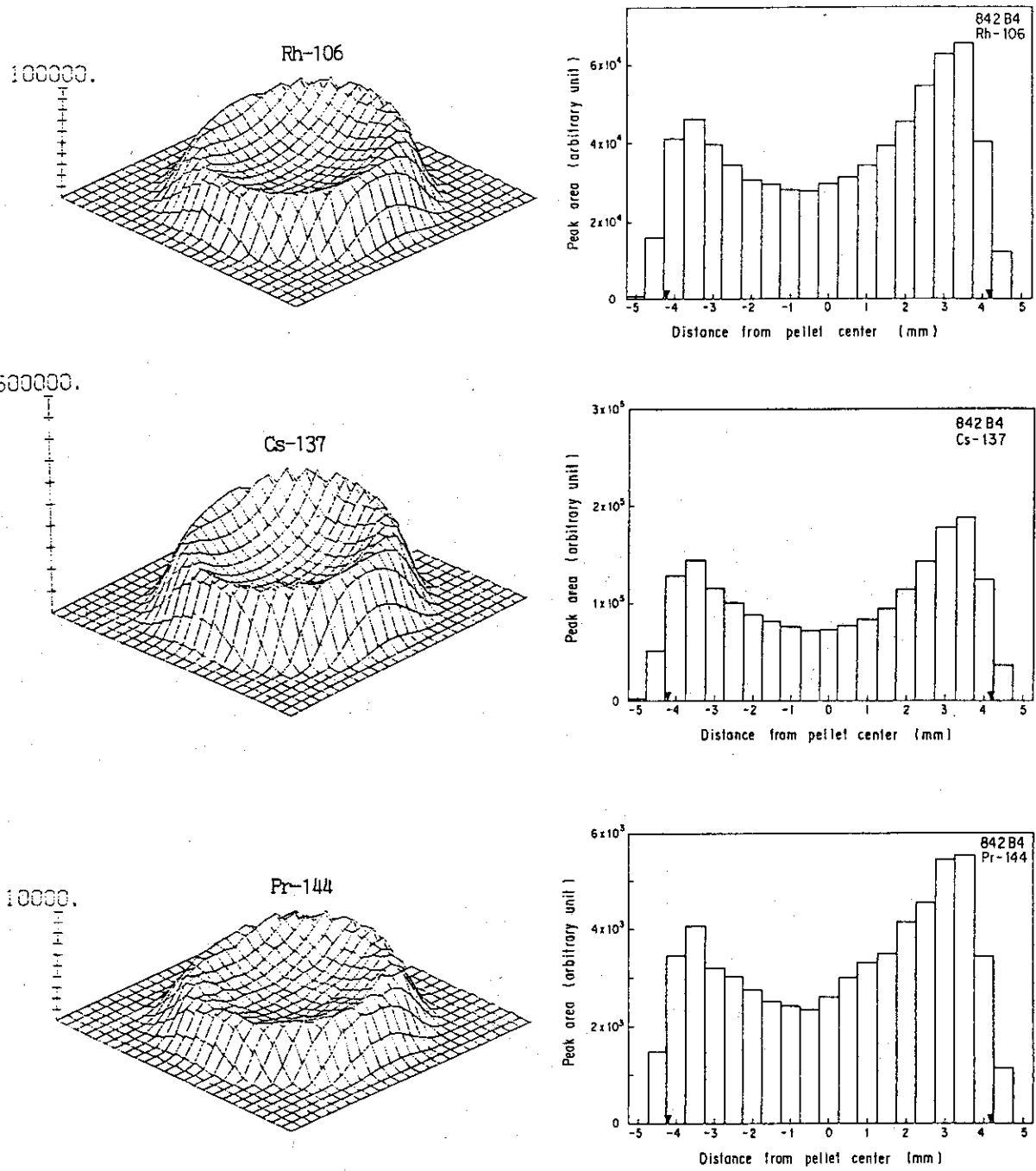


Fig. 4.44 Radial distribution of ^{106}Rh , ^{137}Cs , ^{144}Pr , ^{95}Zr and ^{134}Cs in $(\text{U,Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pellet

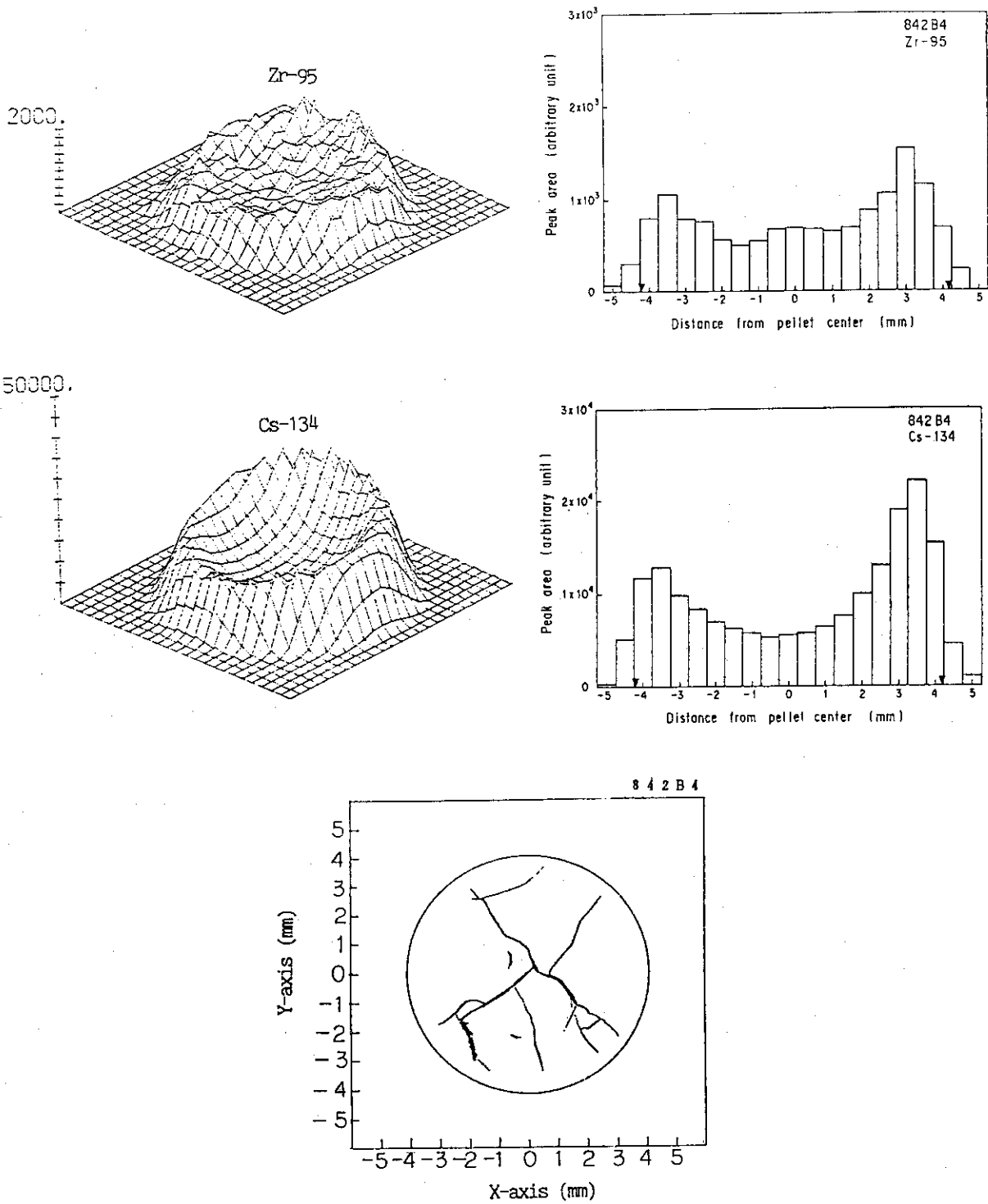


Fig. 4.44 (continued)

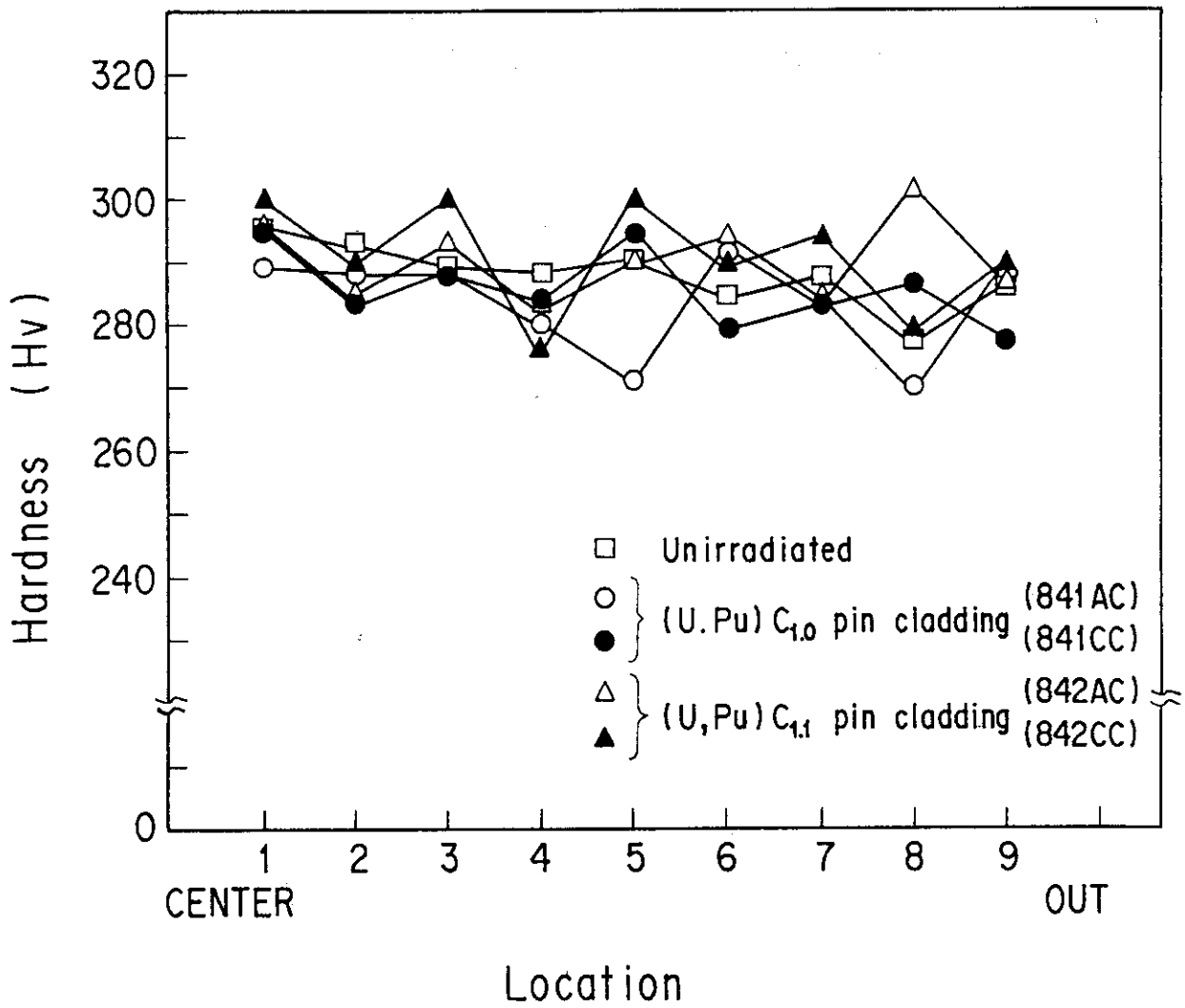


Fig. 4.45 Results of hardness measurements of cladding tubes

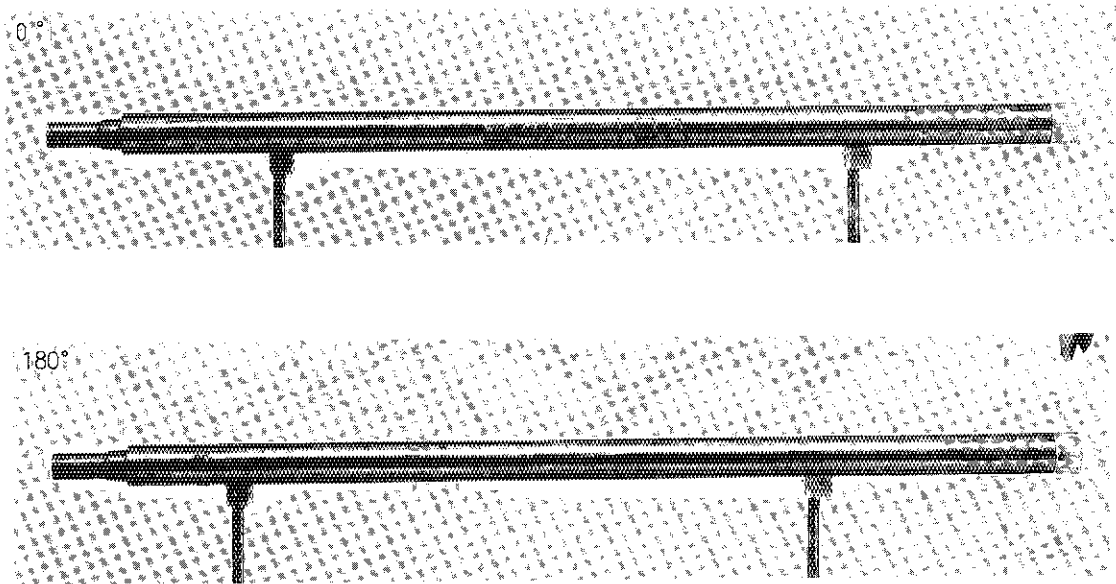


Photo. 4.1 Appearance of 84F-10A capsule after irradiation

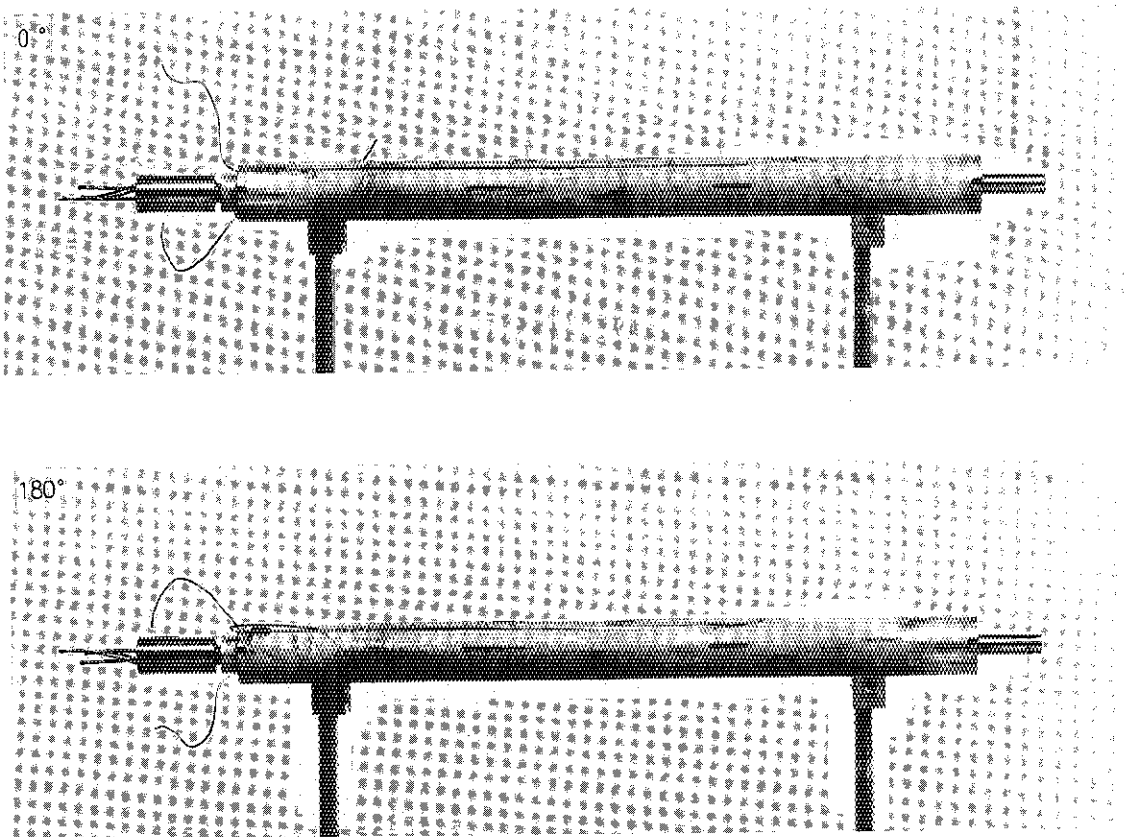


Photo. 4.3 Appearance of inner tube of 84F-10A capsule

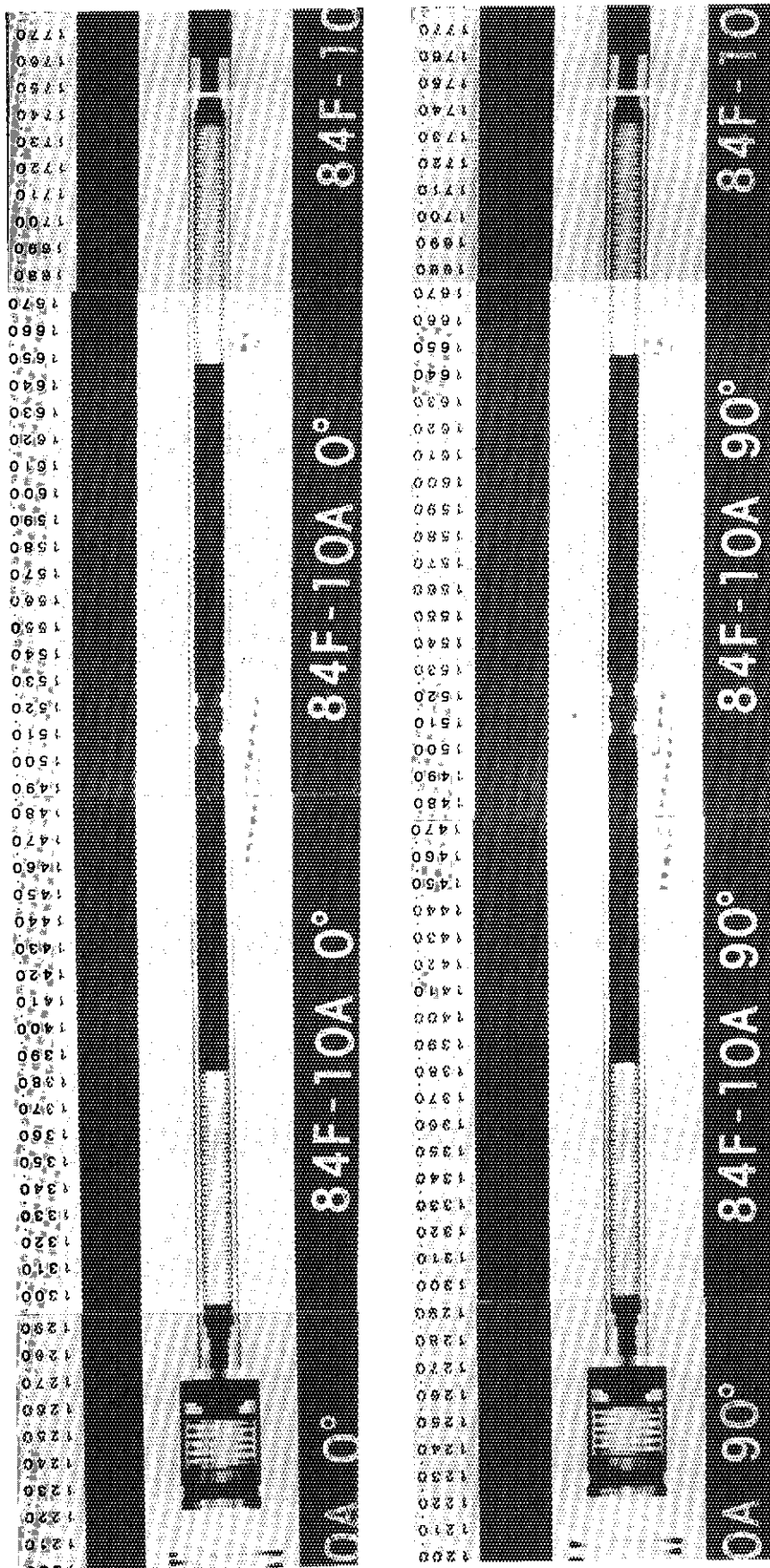


Photo. 4.2 X-ray radiograph of 84F-10A capsule

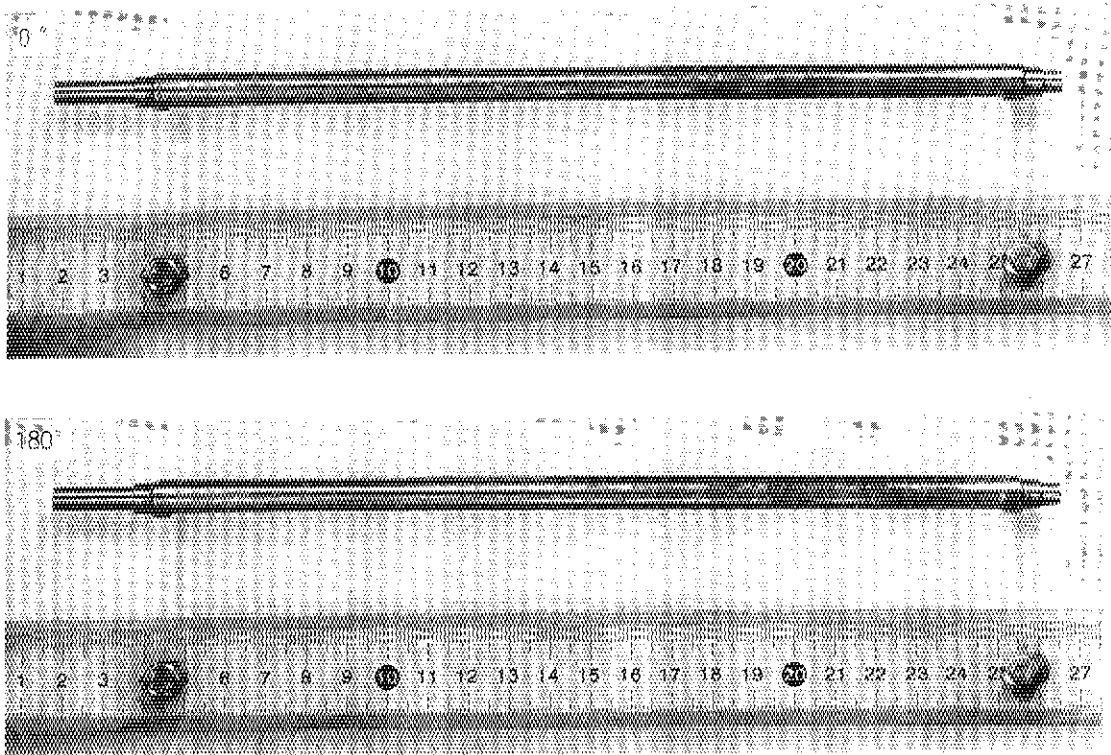


Photo. 4.4 Appearance of (U,Pu)C_{1.0} fuel pin

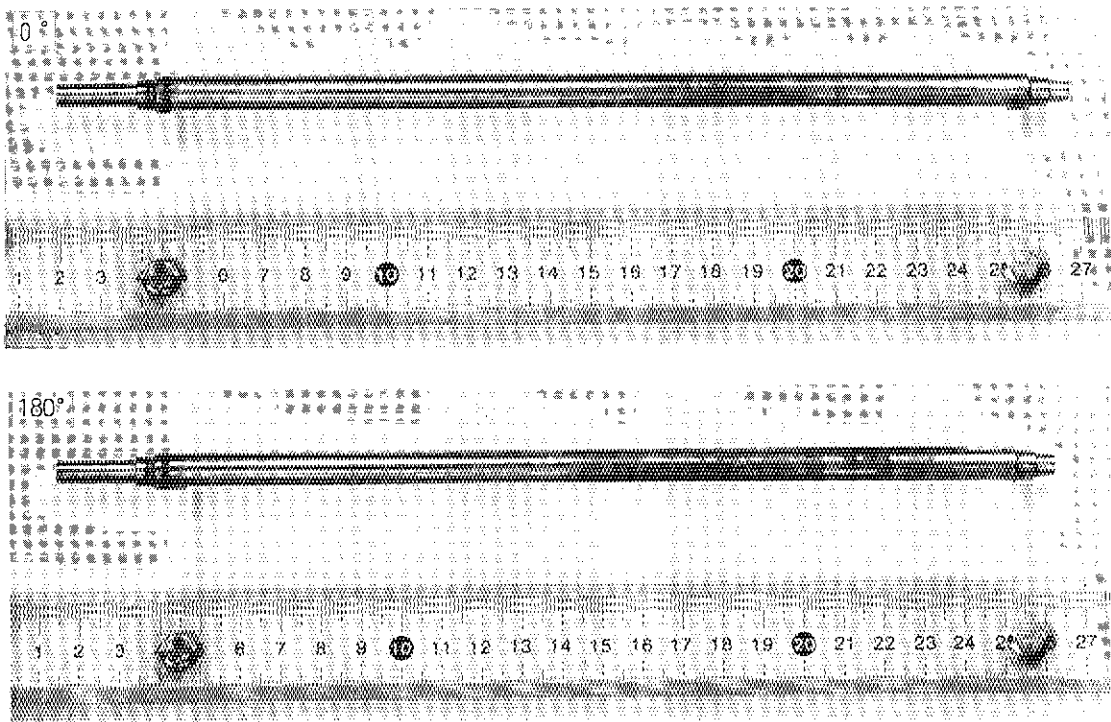


Photo. 4.5 Appearance of (U,Pu)C_{1.1} fuel pin

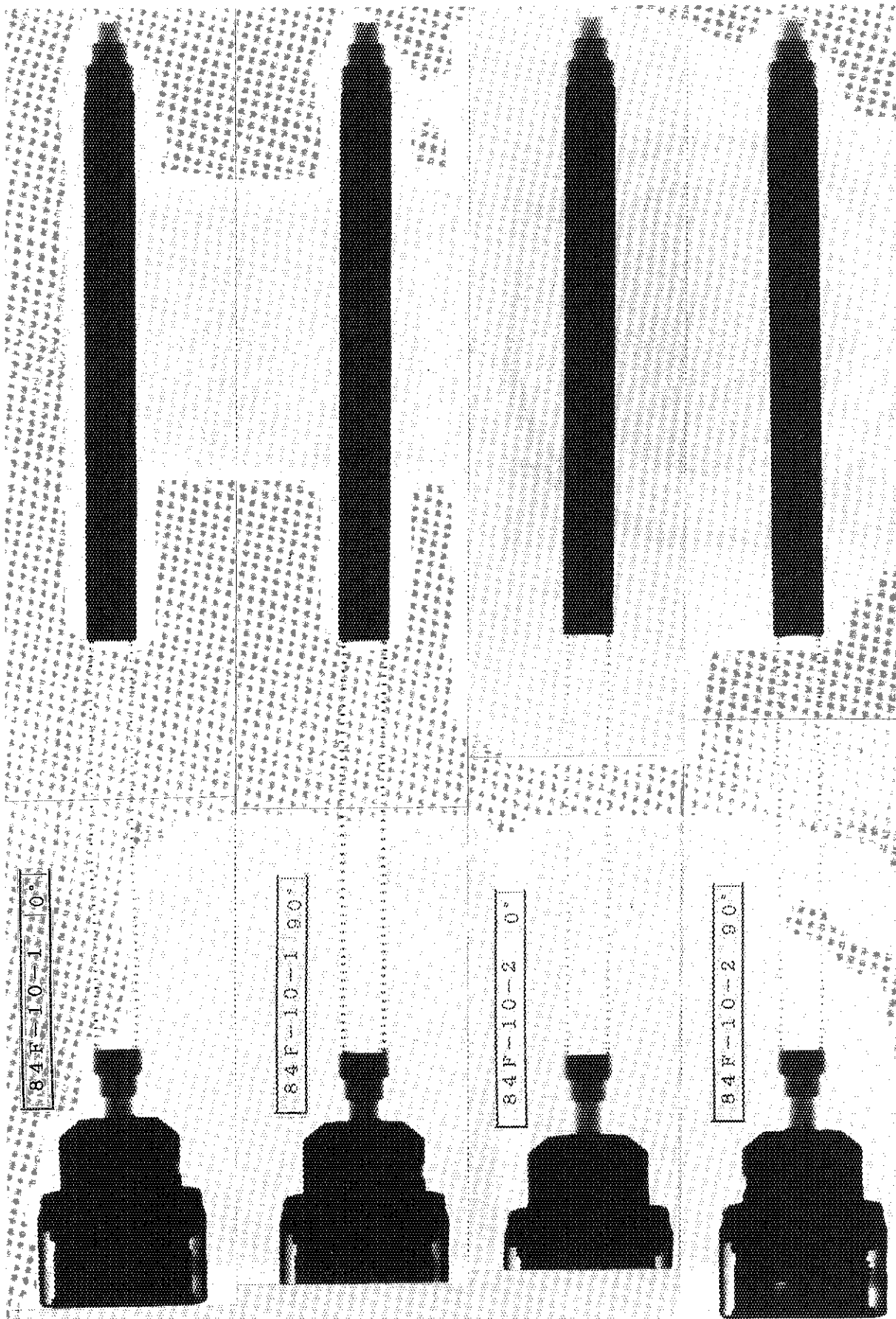
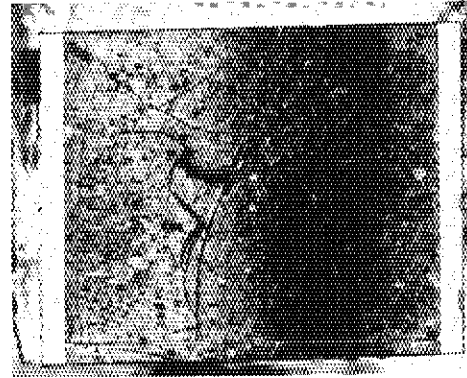
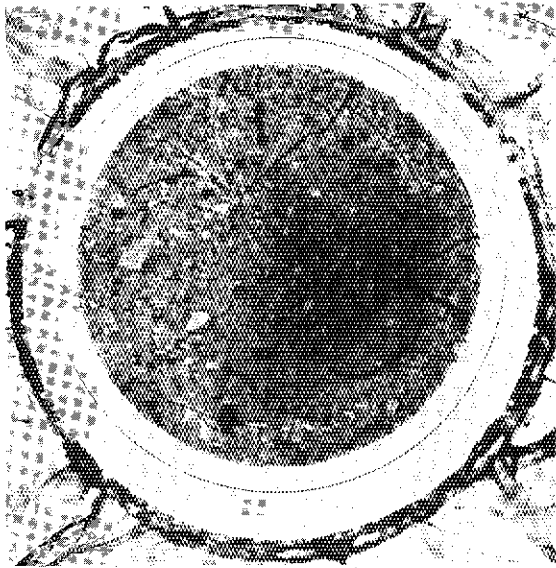


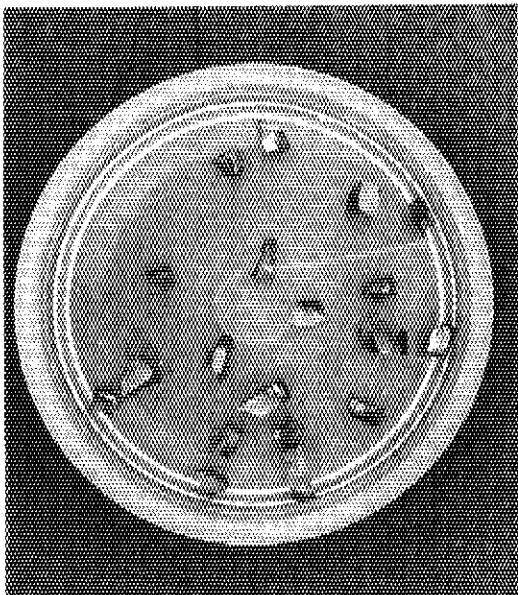
Photo. 4.6 X-ray radiograph of fuel pins



2 mm

Photo. 4.8 Macroscopic photograph of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet

841CP



842CP

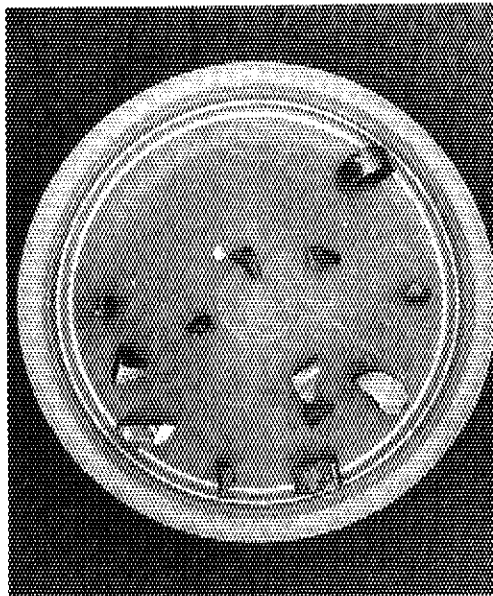


Photo. 4.7 Appearance of fragments of fuel pellets after removal from fuel pins

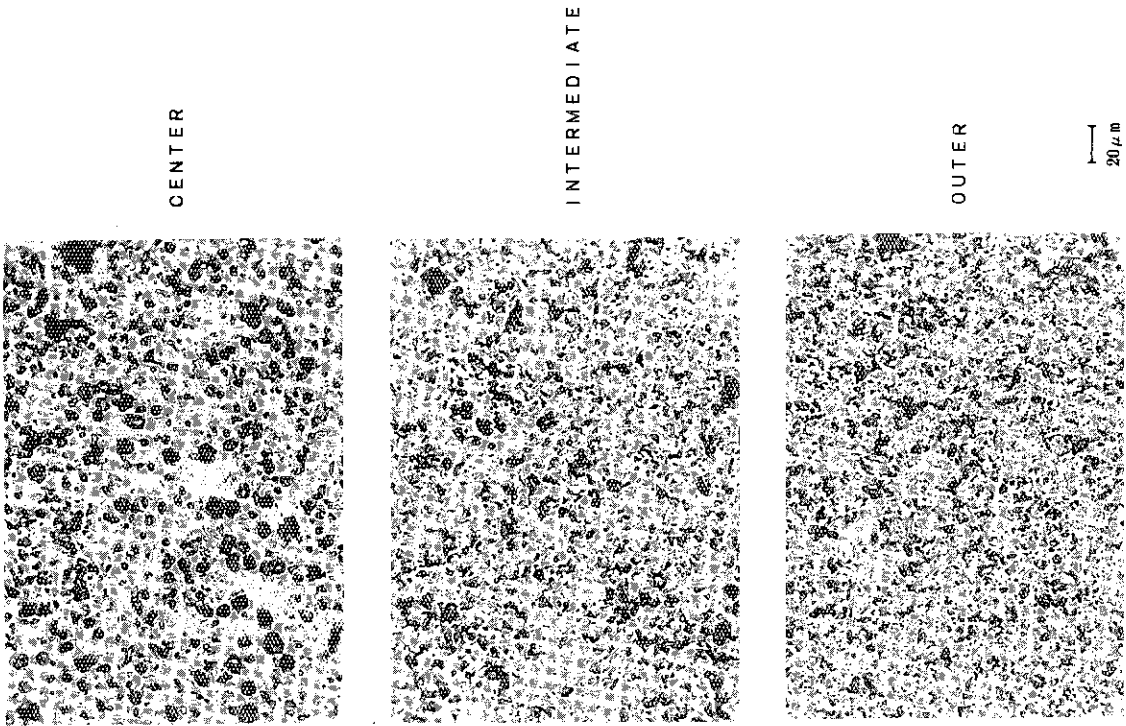


Photo. 4.10 Photograph of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet for pore distribution analysis (841B1)

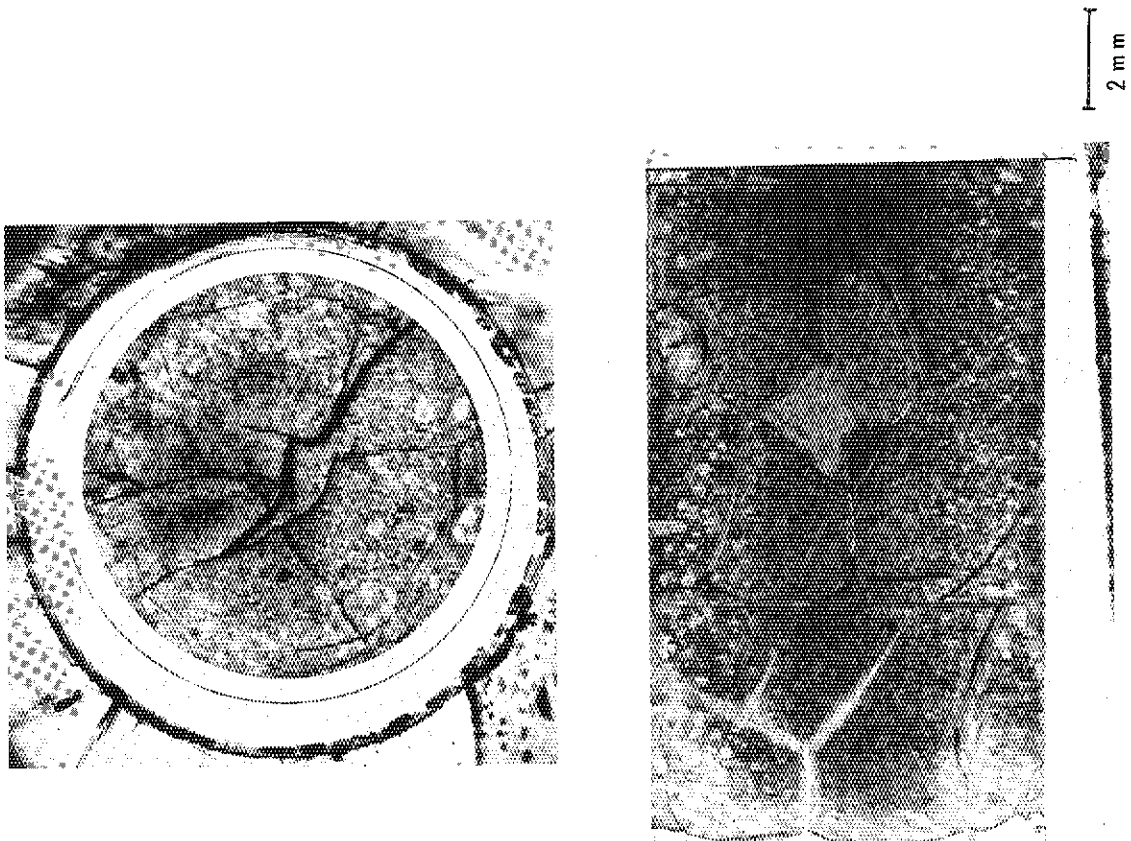


Photo. 4.9 Macroscopic photograph of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet

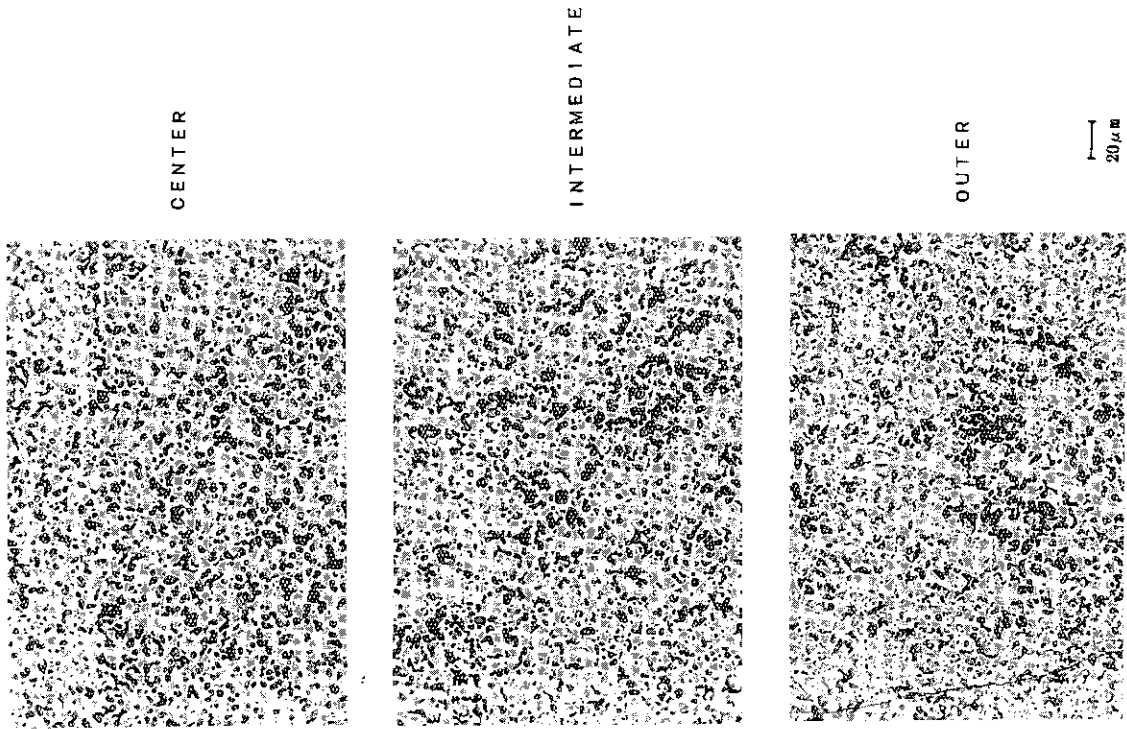


Photo. 4.12 Photograph of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet for pore distribution analysis (842B1)

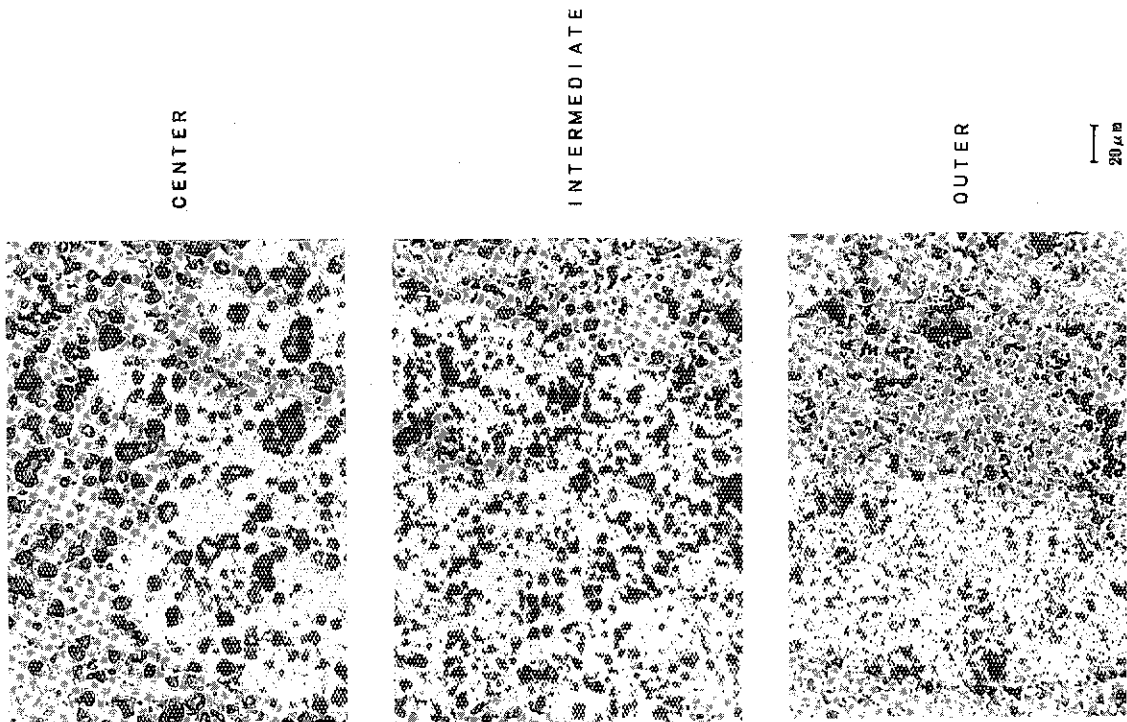


Photo. 4.11 Photograph of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet for pore distribution analysis (841B5)

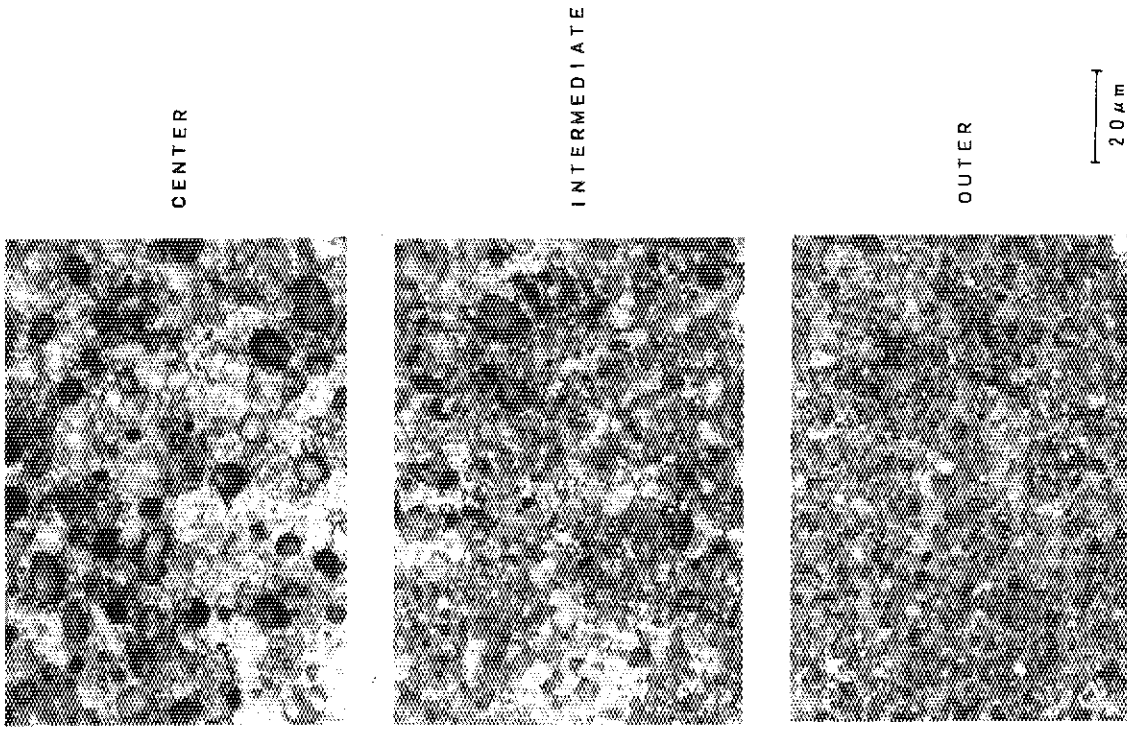


Photo. 4.14 Microstructure of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B1)

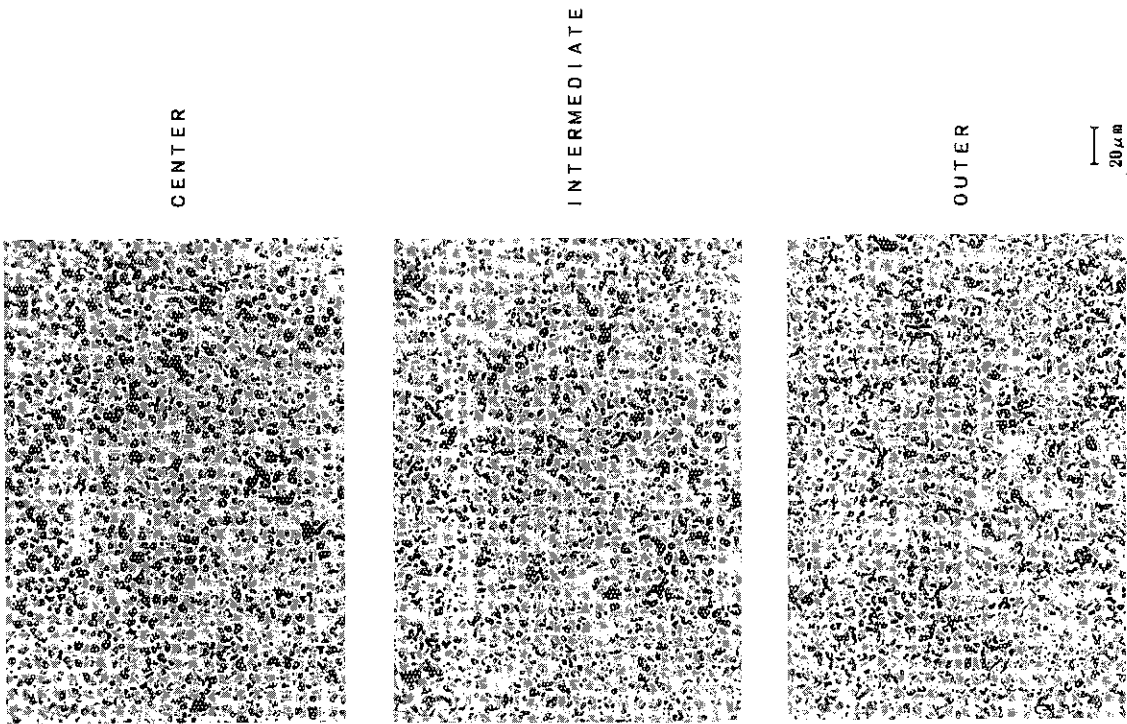


Photo. 4.13 Photograph of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet for pore distribution analysis (842B5)

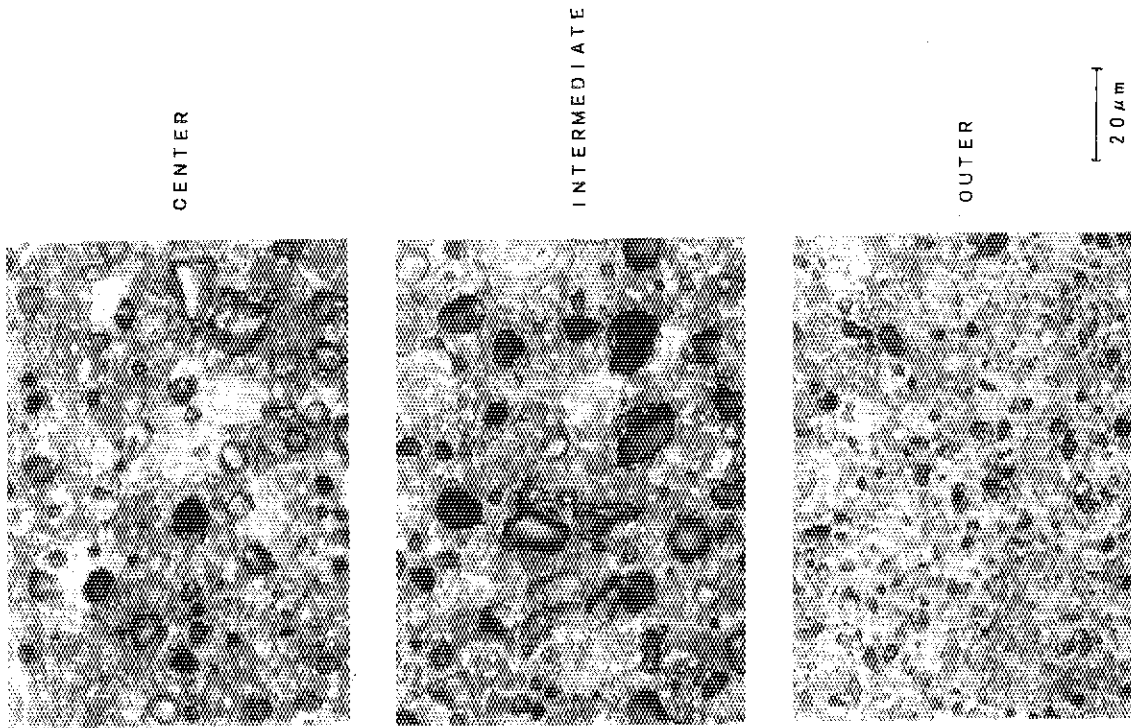


Photo. 4.16 Microstructure of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B5)

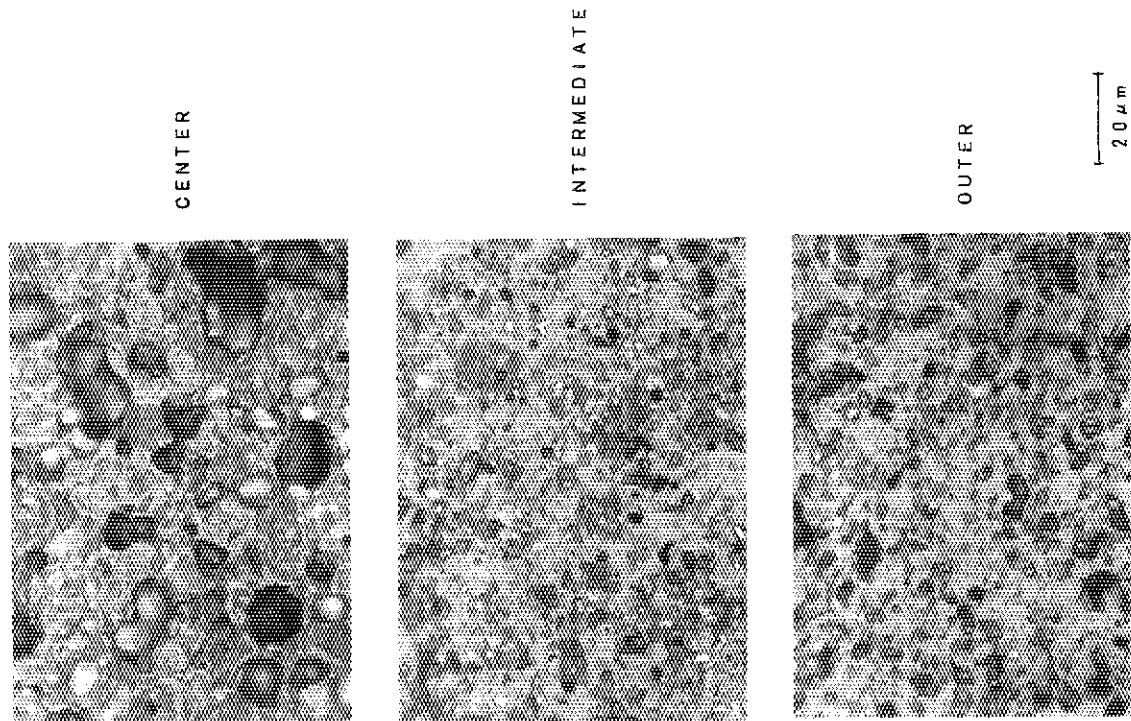


Photo. 4.15 Microstructure of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet (841B3)

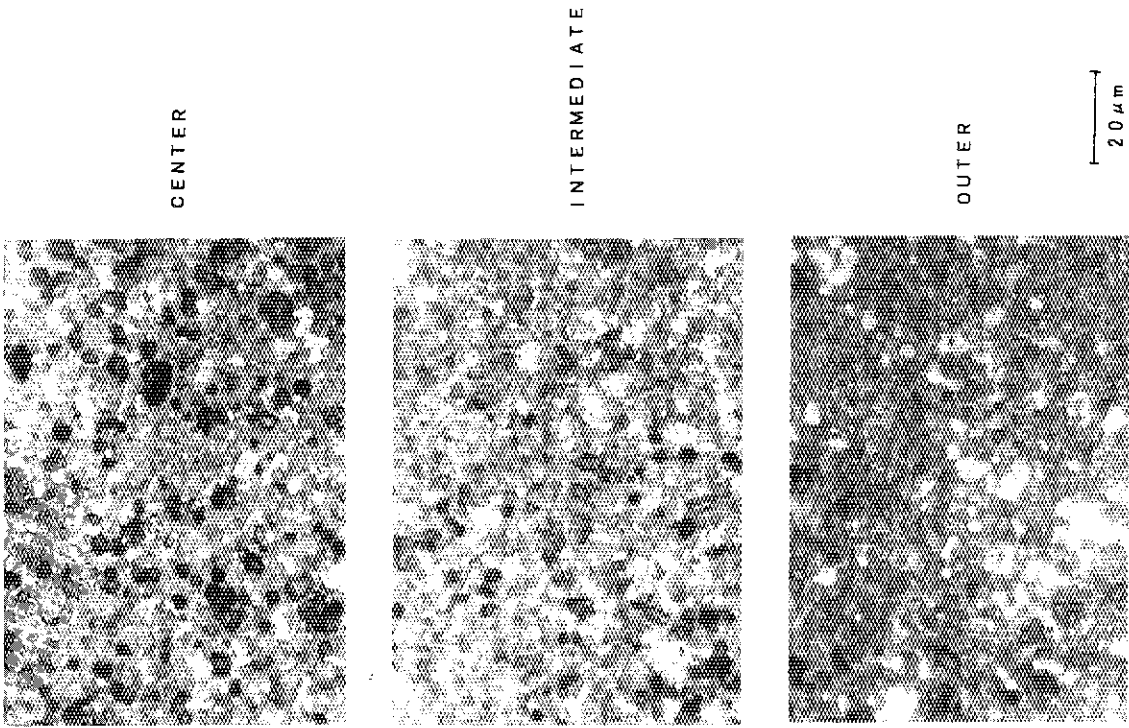


Photo. 4.18 Microstructure of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B3)

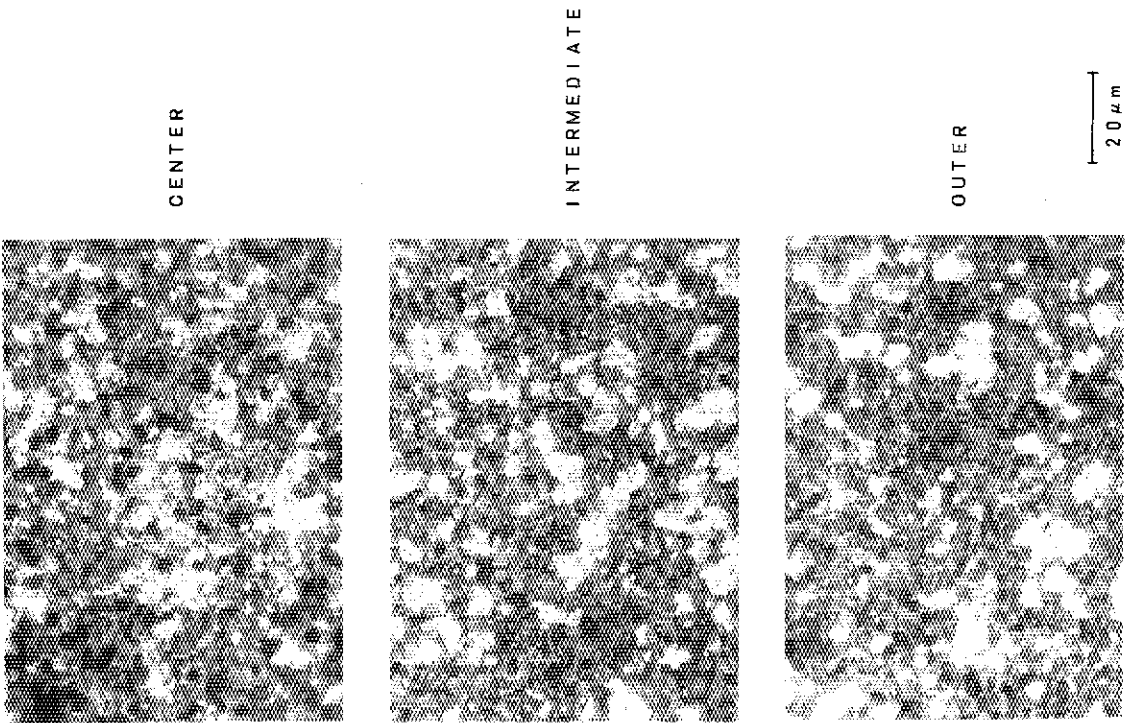


Photo. 4.17 Microstructure of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B1)

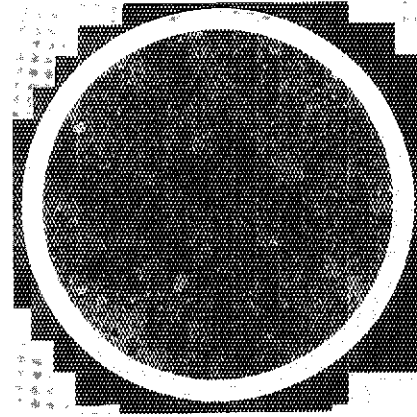


Photo. 4.20 Mosaic photograph of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet

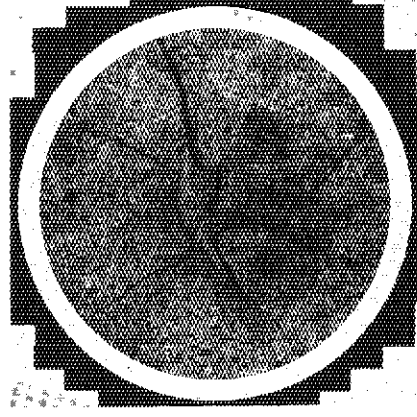


Photo. 4.21 Mosaic photograph of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet

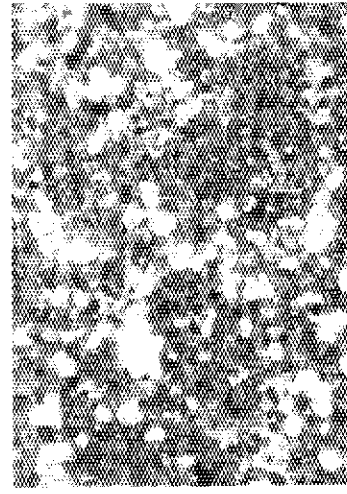
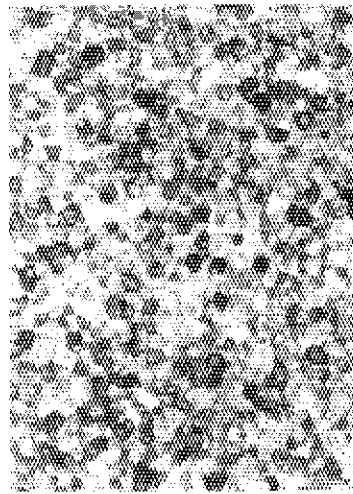
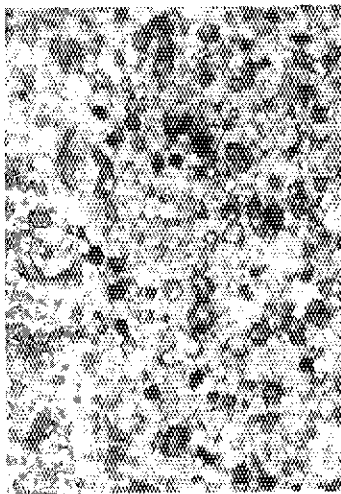


Photo. 4.19 Microstructure of (U,Pu)C_{1.1} fuel pellet (842B5)

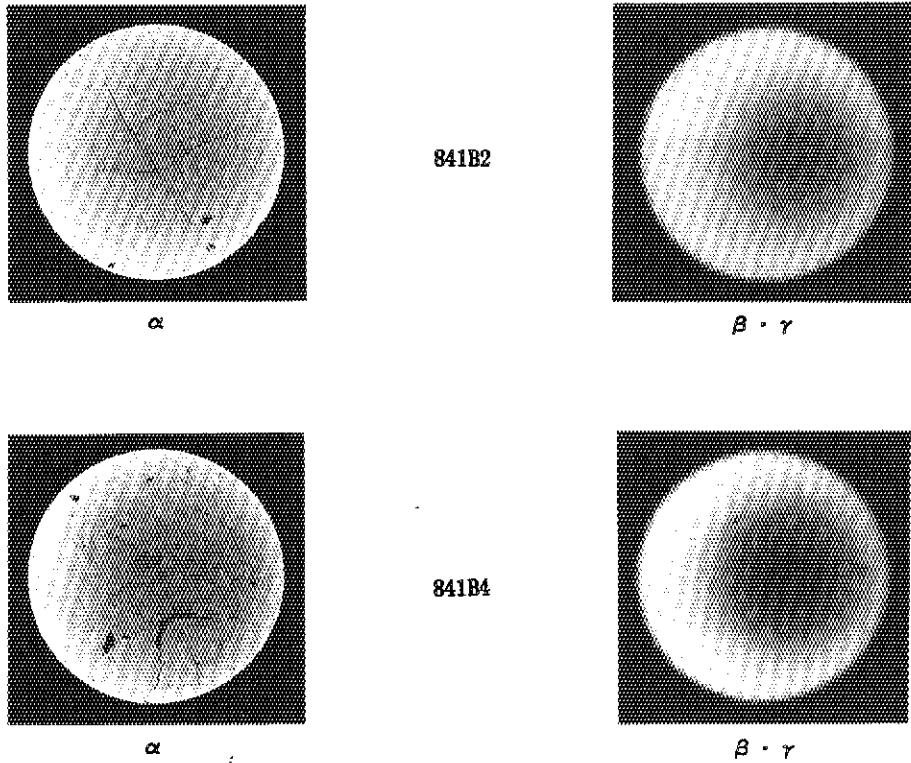


Photo. 4.22 Alpha and beta-gamma radiograph of $(U,Pu)C_{1.0}$ fuel pellets

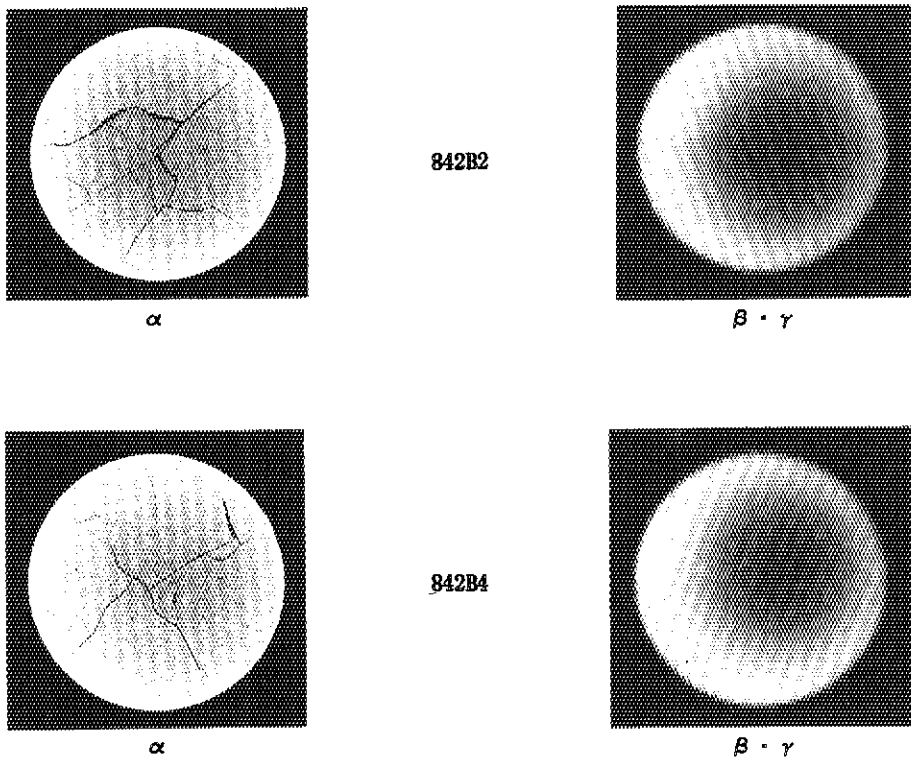


Photo. 4.23 Alpha and beta-gamma radiograph of $(U,Pu)C_{1.1}$ fuel pellets

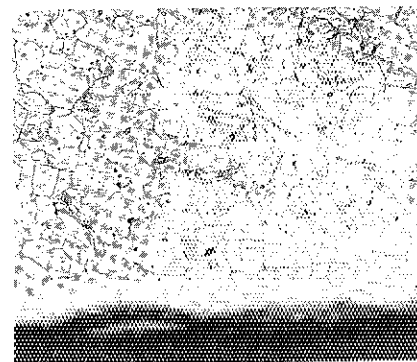
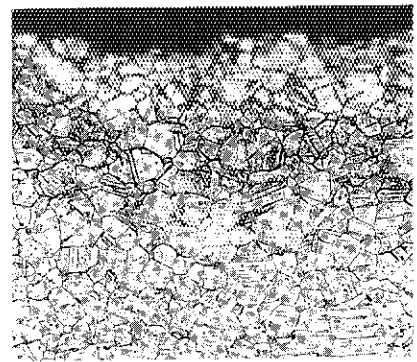
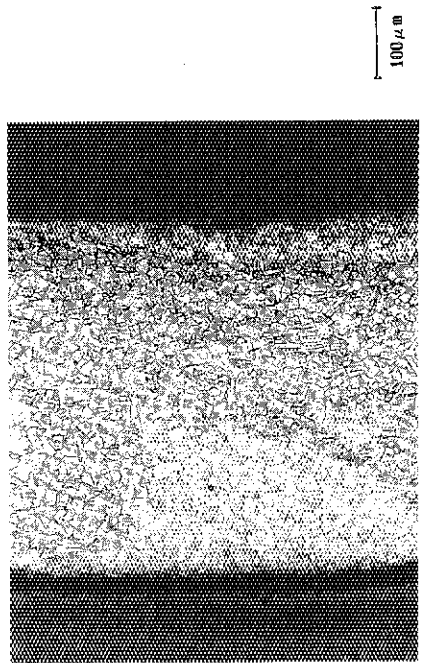
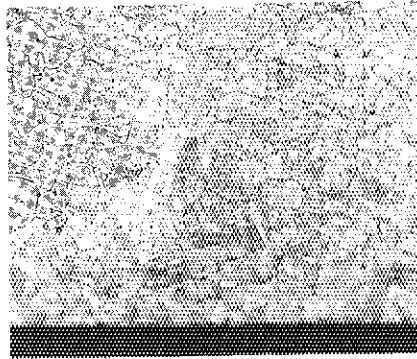
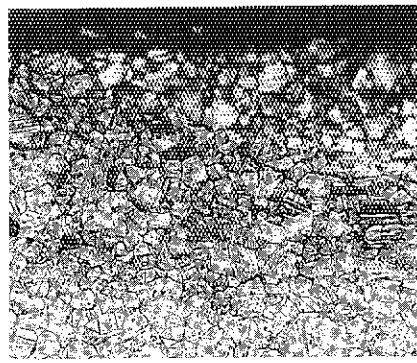
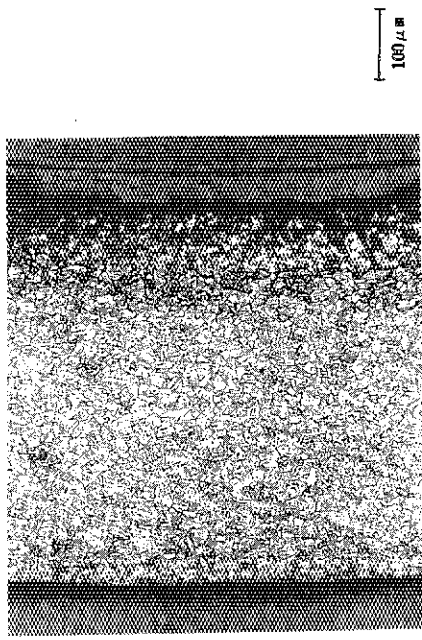


Photo. 4.25 Macro- and microstructures of cladding tube for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin

Photo. 4.24 Macro- and microstructures of cladding tube for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin

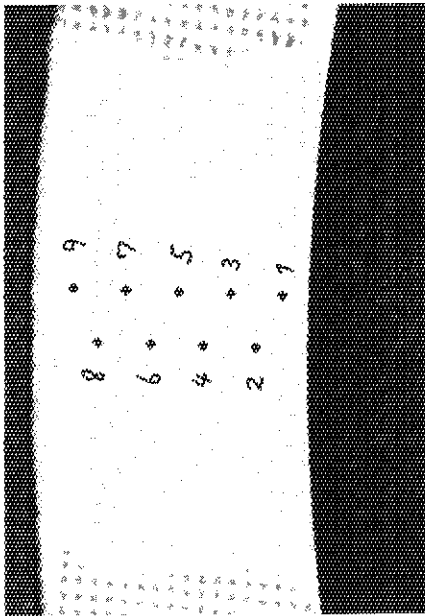
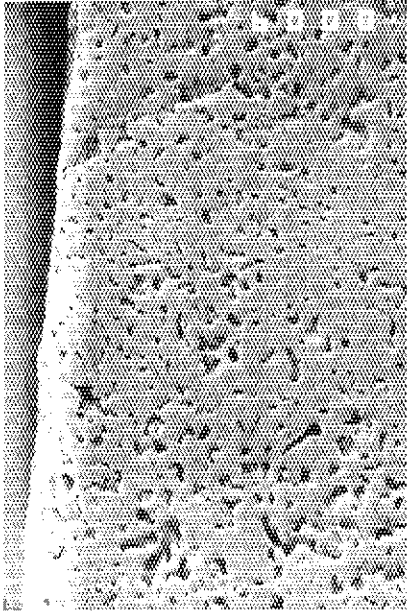


Photo. 4.26 Traces of vickers hardness measurement on cladding tube



20 μ m

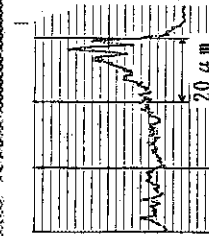
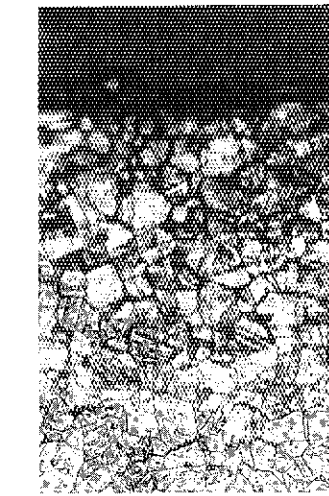
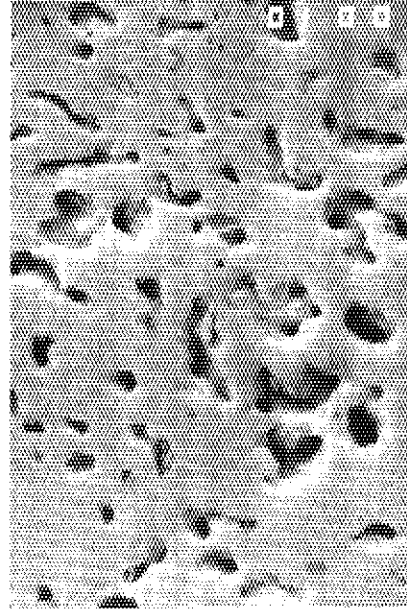
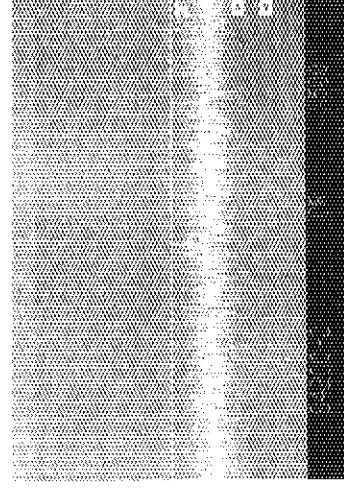
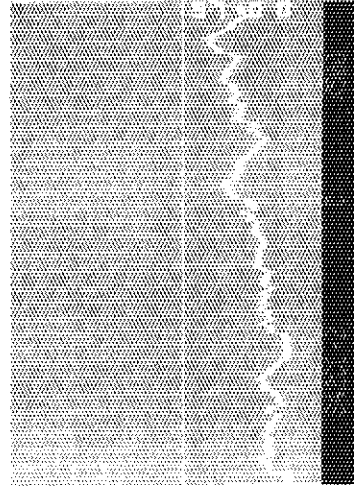


Photo. 4.29 Result of carbon analysis at the specific position near the inner surface of cladding tube for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin



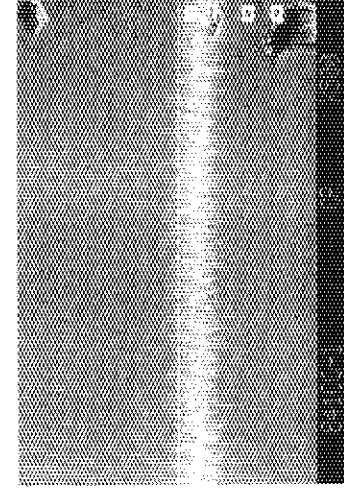
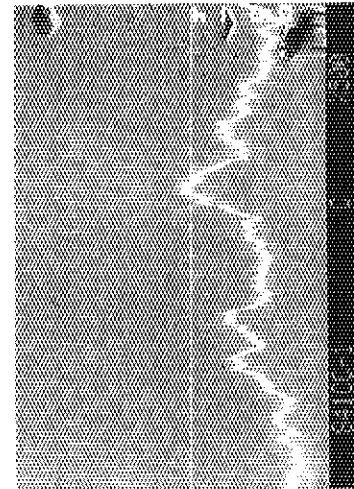
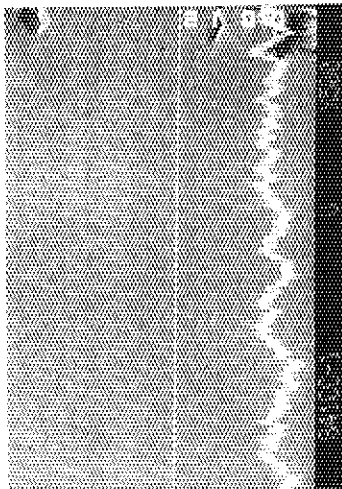
5 μ m

Photo. 4.30 SEM image of (U,Pu)C_{1.0} fuel pellet



20 μm

Photo. 4.28 Results of line profile for U, C and Cr on cladding tube for (U,Pu)C_{1.1} fuel pin



20 μm

Photo. 4.27 Results of line profile for U, C and Cr on cladding tube for (U,Pu)C_{1.0} fuel pin

5. まとめ

(1) 混合炭化物燃料ピン

化学量論的組成及び超化学量論的組成の混合炭化物ペレット ((U, Pu)C_{1.0}及び(U, Pu)C_{1.1}) を 316 ステンレス鋼被覆管 (外径9.40mm、肉厚0.51mm) に充填した短尺燃料ピン (燃料スタック長 100mm、ピン全長250mm) 2本を大洗研燃料研究棟で製作した。

(2) 照射キャプセル

上記の燃料ピンを J M T R に輸送して、2本の燃料ピンの下部端栓を突き合わせた形で照射キャプセル84F-10A に組み込んだ。

(3) 照射

84F-10A キャプセルは、J M T R 炉心外照射孔0-7 において、昭和61年5月から平成元年2月までの12サイクル (集積照射時間6143時間、熱中性子照射量 (フラックスモニタ最大位置で) $9 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ 、高速中性子照射量 (フラックスモニタ最大位置で) $4 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$)、ピーク線出力 59kW/m の条件下で、3.0%FIMA (26,000MWd/t) まで照射された。照射初期の燃料中心温度は約1220℃と推定された。

(4) 照射後試験

照射済燃料を東海研まで輸送して、燃料試験施設で照射後試験を実施した。非破壊試験は β ・ γ セルで、破壊試験は α ・ γ セルで行った。破壊試験の前半の工程では、アルゴンガス雰囲気を採用した。キャプセルの搬入から被覆管のEPMA観察に至るまで37項目について行った。

(5) 照射後試験結果

2本の燃料ピンには有害な欠陥等はみとめられず、燃料としての健全性が保たれていた。主要な照射後試験結果を以下に要約する。

(a)燃料ピンの γ 線スキニング

FP元素のうち、一部のCsが燃料ペレットからプレナム部へ移行していることが観察された。

(b)燃料ピンの直径変化

(U, Pu)C 燃料スタック部において、最大 $\sim 0.03 \text{mm}$ ($\Delta D/D$ では $\sim 0.3\%$) の照射による直径増加が観察された。

(c)FPガス放出率及びその組成

FPガス放出率は(U, Pu)C_{1.0}燃料ピンで6.1%、(U, Pu)C_{1.1}燃料ピンでは13.7% であり、両者の間に有意な差が見られた。一方、放出されたガス中のXe/Kr 比については、両者とも生成量の比にほぼ一致していた。

(d)燃料ペレットの密度変化

照射による燃料ペレットの密度変化は、%FIMA 当たり $-0.6 \sim 0.9\%$ であり、この値は被覆管に拘束された状態下での見かけ上のスエリング率に相当するものと考えられた。

(e)燃料ペレットの気孔率

照射後の(U, Pu)C_{1.0}燃料ペレット及び(U, Pu)C_{1.1}燃料ペレットの閉気孔率は8~9%でほぼ一致していたのに対し、開気孔率は前者では9.7%、後者では12.3% であった。両者の燃料温度に大きな差はないと考えられるので、(U, Pu)C_{1.1}燃料ピンでFPガス放出率が有意に高いのは、この

開気孔率の差に起因していると推定された。

(f)燃料ペレット中の気孔分布

ペレット中心部で、照射による微小な気孔の消滅が観察された。これは、照射促進拡散に起因する一種の焼きしまりであると推定された。

(g)燃料ペレットの結晶粒径

照射後の燃料ペレットでは、外周部及び中間部ではほぼ製造時の結晶粒径が保たれていたのに対し、温度の高い中心部では結晶粒の若干の成長が観測された。

(h)燃料ペレットのモザイク写真

径方向に数本の大きなクラックが見られ、さらにそこから小枝のようなクラックが生じていた。燃料ペレットと被覆管のギャップは完全に閉塞しており、外周部では円周方向に沿った細かいクラックの発生が見られた。この段階ではクラックのヒーリングはみとめられなかった。

(i)燃料ペレットのオートラジオグラフ

燃料ペレット中心部での中性子束の減衰を反映して、外周部ほど ^{242}Cm やFP元素の濃度が高いことがわかった。また、炉内照射位置での中性子束の勾配に起因した結果も得られた。

(j)燃料ペレットのマイクロ γ 線スキャンニング

いずれのFP元素も外周部ほど濃度の高いことがわかった。しかし、中心部と外周部での γ 線強度比(0.30~0.45)は、計算から推定された熱中性子束の比(0.25)ほど極端なものではなかった。

(k)被覆管内面の腐食

被覆管内面の腐食はみとめられず、試験中に欠落等の現象も起こらなかった。しかし、外周部では、主に(U,Pu)C_{1.1}燃料ピンで炭素の被覆管の結晶粒界への移行が観察された。

(l)被覆管の硬さ

照射による硬さの変化はみとめられなかった。

(m)被覆管のBPMA観察

浸炭による炭化物相の析出やUとステンレス鋼の反応相はみとめられなかった。一部の試料では、被覆管内エッジから20 μm 程、炭素の濃度が高い箇所があることが確認された。

以上が主要な結果であるが、今回の照射後試験では第1回照射(JRR-2、細径ピン、1.2%FIMA)或いは第2回照射(JRR-2、太径ピン、1.5%FIMA)で見られなかった新しい知見が数多く得られた。今回の試験結果から推定すると、本燃料ピンはペレットと被覆管間のギャップが閉塞されてから間もない段階のものであろう。得られた知見の大半が燃焼度依存の事象であることを考えれば、今後は、より高燃焼度での組織再編や、FPガス放出挙動、さらにはFCMI関連の試験結果が待たれる。一方、燃料ペレットと被覆管の化学的相互作用(FCCI)は、第2回の試験結果からの進行はほとんど見られなかった。これは、この現象自体が温度依存性が強いためであると考えられる。今回の結果からは燃料ピンの健全性に影響する程のFCCIは観測されなかったが、その確認のためには、より高線出力下での照射が望まれる。またFCCIに関しては、製造時に燃料ペレット中の不純物酸素の含有量の低減化を図ることも課題であろう。

原研の炭化物燃料の照射試験は、すでに6本の燃料ピンの照射後試験を終了し、現時点では燃

焼度約5%FIMAを達成した燃料ピン2本が照射後試験が進行中、1本がJMTTRで照射中である。さらに、平成5年度からは、動燃事業団との共同研究により高速実験炉JOYOを用いた長尺燃料ピンの照射も計画されている。これらの試験結果から、高燃焼度、高線出力、高速中性子束条件下での炭化物燃料の照射挙動について、さらに一層多くの知見が得られることが期待される。

おわりに、本試験の遂行に際して御指導及び御助言をいただいた東海研近藤達男燃料・材料工学部長、半田宗男同次長、伊丹宏治ホット試験室長、大洗研二村嘉明材料試験炉部長、大久保義春元管理部長に厚く感謝いたします。また照射用燃料ピンの製作では大洗研燃料研究棟の皆様、キャプセル設計・製作では材料試験炉部照射1課並びに技術部工作課、照射では材料試験炉部計画課、照射後試験ではホット試験室、使用済核燃料の保管廃棄では保健物理部放射性汚染処理2課の諸氏に並々ならぬ御支援をいただきました。ここに心からお礼申し上げます。

参考文献

- 1) 前多 厚、笹山 龍雄、岩井 孝、相沢 作衛、大和田 功他、“ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低出力(第1回)照射及び照射後試験”、JAERI-M 88-219 (1988).
- 2) 岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、相沢 作衛、川崎 公靖他、“ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の中出力(第2回)照射及び照射後試験”、JAERI-M 89-186 (1989).
- 3) 荒井 康夫、岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、塩沢 憲一他、“JMTTR照射用キャプセル(84F-10A, 84F-12A, 87F-2A)用混合炭化物燃料ピンの製作”、JAERI-M 89-060 (1989).
- 4) 燃料・材料工学部、実用燃料試験室、“中燃焼度(第3回)照射ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料照射後試験計画書”(1989).
- 5) 鈴木 康文、前多 厚、岩井 孝、金沢 浩之、三村 英明他、“混合炭化物燃料中でのプルトニウムおよび核分裂生成物の挙動”、JAERI-M 91-192 (1991).

焼度約5%FIMAを達成した燃料ピン2本が照射後試験が進行中、1本がJMT Rで照射中である。さらに、平成5年度からは、動燃事業団との共同研究により高速実験炉JOYOを用いた長尺燃料ピンの照射も計画されている。これらの試験結果から、高燃焼度、高線出力、高速中性子束条件下での炭化物燃料の照射挙動について、さらに一層多くの知見が得られることが期待される。

おわりに、本試験の遂行に際して御指導及び御助言をいただいた東海研近藤達男燃料・材料工学科長、半田宗男同次長、伊丹宏治ホット試験室長、大洗研二村嘉明材料試験炉部長、大久保義春元管理部長に厚く感謝いたします。また照射用燃料ピンの製作では大洗研燃料研究棟の皆様、キャプセル設計・製作では材料試験炉部照射1課並びに技術部工作課、照射では材料試験炉部計画課、照射後試験ではホット試験室、使用済核燃料の保管廃棄では保健物理部放射性汚染処理2課の諸氏に並々ならぬ御支援をいただきました。ここに心からお礼申し上げます。

参考文献

- 1) 前多 厚、笹山 龍雄、岩井 孝、相沢 作衛、大和田 功他、“ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低出力(第1回)照射及び照射後試験”、JAERI-M 88-219 (1988).
- 2) 岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、相沢 作衛、川崎 公靖他、“ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の中出力(第2回)照射及び照射後試験”、JAERI-M 89-186 (1989).
- 3) 荒井 康夫、岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、塩沢 憲一他、“JMT R照射用キャプセル(84F-10A, 84F-12A, 87F-2A)用混合炭化物燃料ピンの製作”、JAERI-M 89-060 (1989).
- 4) 燃料・材料工学科、実用燃料試験室、“中燃焼度(第3回)照射ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料照射後試験計画書”(1989).
- 5) 鈴木 康文、前多 厚、岩井 孝、金沢 浩之、三村 英明他、“混合炭化物燃料中でのプルトニウムおよび核分裂生成物の挙動”、JAERI-M 91-192 (1991).