

JAERI - M
91-192

照射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

1991年11月

鈴木 康文・前多 厚・岩井 孝
金沢 浩之・三村 英明・荒井 康夫

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(株)

照射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

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

鈴木 康文・前多 厚・岩井 孝・金沢 浩之⁺

三村 英明⁺・荒井 康夫

(1991年10月14日受理)

高速炉用新型燃料として期待されるウラン・プルトニウム混合炭化物燃料中のプルトニウムおよび核分裂生成物の燃料内挙動を主にX線微小分析によって調べた。試験対象には、JMTRで約3% FIMAまで照射した燃料を用いた。ウランおよびプルトニウムの他にキセノン、パラジウム、ジルコニウム、セリウム等の核分裂生成物が同定された。三二炭化物の析出に起因する微細なプルトニウムの偏析が見られたほか、燃料ペレット周辺部で燃焼に伴うプルトニウム濃度の低下が認められた。キセノンについては、燃料周辺部で生成したキセノンのほとんどが燃料内に拘束されているのに対して、中心部では有意量がプレナム部へ放出されていることを示す試験結果を得た。ネオジム等の多くの固体状核分裂生成物の分布については、燃料内の燃焼度分布に応じたプロフィールが観察された。

Behavior of Plutonium and Fission Products
in Irradiated Mixed Carbide Fuel

Yasufumi SUZUKI, Atsushi MAEDA, Takashi IWAI, Hiroyuki KANAZAWA⁺
Hideaki MIMURA⁺ and Yasuo ARAI

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

(Received October 14, 1991)

The behavior of plutonium and fission products in uranium-plutonium mixed carbide, which is of potential as an advanced FBR fuel, was examined mainly by X-ray microanalysis. The fuel pellet irradiated up to the burn-up of about 3% FIMA in JMTR was used in the present study. The fission products, such as Xe, Pd, Zr, Ce and so on, were identified in addition to plutonium. It was observed that plutonium concentration decreases in the outer region of the pellet after irradiation. Furthermore, plutonium was found to segregate finely by the precipitates of sesquicarbide. The Xe gas generated in the outer unrestructuring region was confirmed to be almost restrained in the fuel matrix, but a significant Xe gas release was determined in the central region. Some solid fission products, such as Nd, showed the radial distribution corresponding to the burn-up profile in the fuel pellet.

Keywords: FBR, Advanced Fuel, Uranium Carbide, Plutonium Carbide,
Carbide Fuel, Irradiation, FPs, EPMA, Americium, Segregation

⁺ Department of Hot Laboratories

目 次

1. はじめに	1
2. 試験方法	2
2.1 燃料特性	2
2.2 照射条件	2
2.3 観察方法および同定元素	2
2.4 燃焼度プロファイルの評価	3
3. アクチノイドの挙動	3
3.1 プルトニウムの挙動	3
3.2 アメリシウムの同定	5
4. 核分裂生成物の挙動	6
4.1 キセノンの挙動	6
4.2 固体状FP元素の挙動	7
5. まとめ	10
謝 辞	10
参考文献	11

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Characteristics of Fuel	2
2.2 Irradiation Conditions	2
2.3 Method of Measurement and Identified Elements	2
2.4 Estimation of Burn-up Profile	3
3. Behavior of Actinides	3
3.1 Behavior of Plutonium	3
3.2 Identification of Americium	5
4. Behavior of Fission Products	6
4.1 Behavior of Xenon	6
4.2 Behavior of Solid Fission Products	7
5. Summary	10
Acknowledgements	10
References	11

1. はじめに

ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料は、酸化物燃料と比べて熱伝導度が格段に優れていることのほか、高い核分裂性物質密度をもつなど、良好な核的・熱的特性を有しており、コンパクトな炉心を構成できるとともに、燃焼に伴う反応度欠損を小さくした燃料体系を実現できるなどの特徴をもち、高性能の高速炉用新型燃料のひとつとして期待されてきた⁽¹⁾。これらの炭化物の優れた燃料特性に着目して、原研ではその燃料製造および確性試験技術を確立し、同時に燃料特性の把握を進めてきた⁽²⁾。また、JRR-2およびJMTRを用いた照射試験を通じて照射下における燃料挙動の把握と燃料健全性の実証に努めてきた⁽³⁻⁵⁾。これまでに最高燃焼度として6% FIMAを目標として、5体のキャプセル、合計9本の燃料ピンを照射している。このうち8本の燃料ピンについては既に照射が終了しており、最高で約5% FIMAの燃焼度を達成したほか、破損した燃料ピンはなく、良好な燃料特性を示す内容の照射後試験結果を得つつある⁽⁶⁻⁸⁾。

炭化物燃料は優れた熱伝導性をもつため、8.5mmから9.4mmの太い外径の燃料ピンを用いて約80kW/mという高い線出力で照射しても燃料温度を2,000K以下に低く抑えることができる⁽¹⁾。このため、酸化物燃料で見られるような大きな温度勾配を駆動力とする激しい物質移動は起こりにくい。しかし、炭化物燃料では物質移動が穏やかな反面、クリープ率が小さく⁽⁹⁾、スエリング緩和を期待しにくいいため、燃焼度の伸長に伴って燃料と被覆管との機械的相互作用(F C M I)が厳しくなると予想されている。今後、高燃焼時における炭化物燃料の健全性を明らかにしていくためには、スエリングの他、照射下におけるボイドや物質の移行現象等の燃料内挙動の把握が重要である。しかし、炭化物燃料は酸化物燃料と比べて照射実績に乏しく、今後の照射データの蓄積が望まれている。例えば、一部の固体状核分裂生成物のなかには、照射条件あるいは燃料温度条件によって異なった径方向分布を示すことが指摘されている⁽¹⁾が、そのメカニズムは明らかでなく、炭化物燃料内の物質移動や偏析等の現象が十分に理解されているとは言い難い。また、炭化物燃料では100kW/m以下の線出力であれば、FPガス放出率を10% FIMAで20-50%程度と低く抑えることができる⁽¹⁰⁾が、燃料製造条件等によってその値に大きな相違の生じ得ることが認められており、合理的な燃料設計条件を定めるためには、正確なFPガス放出挙動の把握とFPガス放出率の予測が重要である。このように、炭化物燃料をその特性を生かした形で実用化するためには、燃料内のマイクロ挙動を解明していくことが欠かせない。

上述したような観点から、燃料内でのプルトニウムや核分裂生成物のマイクロ挙動を把握することを目標として、JMTRにおいて約3% FIMAまで燃焼させたウラン・プルトニウム混合炭化物燃料を試験対象とし、X線微小分析手法を活用して燃料内におけるプルトニウムやFPの挙動を調べた。本報告書では、この試験で得られた結果について紹介する。なお、X線微小分析以外の照射後試験の結果については別の報告書⁽⁸⁾にまとめられている。

2. 試験方法

2.1 燃料特性

今回の試験に供したウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの主要な特性をTable 1 にまとめて示した(5)。この燃料は炭素熱還元によって酸化物から転換して得た炭化物をボールミルによって粉碎し、さらに成型した後、その圧粉体を焼結することによって製造したものである。その燃料組成は $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C_{1.1}$ であり、一炭化物相に加えて、第2相として約20%の三二炭化物を含んでいる。ステンレス鋼(AISA Type316)被覆管に充填、溶接して燃料ピンとした後、一炭化物単相の燃料、 $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C_{1.0}$ ペレットを装荷した別の燃料ピンと抱き合わせる形で一体のキャプセル(キャプセル名; 84F-10A)に組み込み、JMTRで照射を行った。

照射試験燃料の設計、製造方法および確性試験結果、ならびに燃料ピン製作に関しては、既に詳細に報告されている(5)。

2.2 照射条件

試験対象燃料は、JMTRの照射孔[O-7]において約58.5kW/mのピーク線出力条件で合計12サイクル(第74から第85サイクル)照射したものであり、最高燃焼度は約3%FIMA(26GWd/t)となっている。燃料(断熱ペレット成分を含む)中の主要元素の存在量については、ORIGENコードを用いて計算し、照射終了直後および800日(約27ヵ月)冷却後における値をTable 2に示した。この結果から、ウラン(U)およびプルトニウム(Pu)の核燃料物質の他には、ジルコニウム(Zr)、モリブデン(Mo)、ルテニウム(Ru)、パラジウム(Pd)、キセノン(Xe)、セシウム(Cs)、セリウム(Ce)およびネオジウム(Nd)などの核分裂生成物の存在量が 5×10^{-4} gram·atoms以上であると評価された。アメリカシウム(Am)については、 ^{241}Pu の崩壊によって冷却期間中においても蓄積が進行するため、照射終了時点では 3×10^{-4} gram·atoms オーダであるが、X線微小分析を実施した800日冷却後では 6×10^{-4} gram·atoms以上の量になることが確認された。

2.3 観察方法および同定元素

燃料ピンを輪切り状に細切断した後、ポリエステル系の樹脂に埋め込んで研磨し、観察面を鏡面に仕上げた。燃料ピンの概略構造と試料の取り出し位置をFig. 1に示す。試料表面にはアルミニウムの真空蒸着を施した。蒸着処理後のペレット断面全体のマクロ写真をPhoto. 1に示す。この結果から径方向にクラックが大きく広がった炭化物燃料特有の組織の他、燃焼度の増加に伴って顕著となる微細な周方向のクラックの発生が観察される(8)。また、燃料中心部で

多孔質領域が生成しているとともに、温度の低い燃料外周部では燃料製造時の組織が残存していることが認められている。なお、良好な導電性を確保するために、被覆管と燃料ペレットの間に銀ペーストを塗布して観察に供した。今回の試験では、TAP、LiF、PET等の分光結晶を有した波長分散型のEPMA (Electron Probe Microanalyzer) を使用した。電子線の加速電圧としては、主に25kVを用いて試料面のマイクロ観察およびX線元素分析を実施した。

Figure 2 から 5 には、各種の分光結晶を用いて定点分析を実施した結果を示す。これからUおよびPuの燃料構成物質の他に、Xe、Pd、Ru、Mo、Zr、Nd等の核分裂生成物 (FP) 存在が確認されるなど、ORIGENコードによる計算で存在量が 5×10^{-4} gram·atoms 以上と評価された元素の大半が同定できた。CeおよびCsについては、微小であるが、その特性X線の波長位置にピークが認められており、その存在をほぼ確認することができた。なお、ヨウ素の波長位置 (約0.315 nm、Fig. 5 参照) に比較的大きなピークが認められたが、Puの高次の波長位置と重複しており、試料中のヨウ素の存在量が 1.2×10^{-4} gram·atoms と比較的小さいこと等から判断して、観察されたピーク強度に対するヨウ素の寄与は小さいものと結論づけた。

2.4 燃焼度プロファイルの評価

今回の照射は熱中性子条件で行われたものである。このため、燃料周辺部における中性子の吸収によって燃料中央部では中性子束の大幅な低下が起こる。SRACコードによる核計算の結果では、照射開始時点において燃料中心部で 1/4 程度に中性子束が低下すると評価されている。また、今回のJMTRでの照射は、炉内反射体領域で行われているため、燃料の周方向に対して中性子束は均一でなく、炉心方向と比較して、その反対側では20%程度の中性子束の低下が起こると予想された。

燃料内の径方向の燃焼度プロファイルについては、照射開始時点の中性子束分布から決めることができないため、今回の試験で得られたNdのような燃料内で移動しにくいと考えられている元素の径方向分布のデータを参考にしながら評価した。すなわち、後で述べるようにPd、ZrおよびMoの径方向分布は極めて類似しており、今回の低い燃料温度で照射した場合には、これらのFPは有為な移動を起こさないと判断することができる。このため、これらのFP分布は、そのまま燃焼度分布と対応しているものと考えられる。そのようすをFig. 6 に示すが、燃料周辺部において特に燃焼が進み、燃料中心部と比べた場合、2倍強の燃焼度が得られていると評価される。

3. アクチノイドの挙動

3.1 プルトニウムの挙動

燃料ペレットの径方向に電子線をスキャンさせ、得られたPuのMβ線の強度を約0.20mm間

多孔質領域が生成しているとともに、温度の低い燃料外周部では燃料製造時の組織が残存していることが認められている。なお、良好な導電性を確保するために、被覆管と燃料ペレットの間に銀ペーストを塗布して観察に供した。今回の試験では、TAP、LiF、PET等の分光結晶を有した波長分散型のEPMA (Electron Probe Microanalyzer) を使用した。電子線の加速電圧としては、主に25kVを用いて試料面のマイクロ観察およびX線元素分析を実施した。

Figure 2 から 5 には、各種の分光結晶を用いて定点分析を実施した結果を示す。これからUおよびPuの燃料構成物質の他に、Xe、Pd、Ru、Mo、Zr、Nd等の核分裂生成物 (FP) 存在が確認されるなど、ORIGENコードによる計算で存在量が 5×10^{-4} gram·atoms 以上と評価された元素の大半が同定できた。CeおよびCsについては、微小であるが、その特性X線の波長位置にピークが認められており、その存在をほぼ確認することができた。なお、ヨウ素の波長位置 (約0.315 nm, Fig. 5 参照) に比較的大きなピークが認められたが、Puの高次の波長位置と重複しており、試料中のヨウ素の存在量が 1.2×10^{-4} gram·atoms と比較的小さいこと等から判断して、観察されたピーク強度に対するヨウ素の寄与は小さいものと結論づけた。

2.4 燃焼度プロファイルの評価

今回の照射は熱中性子条件で行われたものである。このため、燃料周辺部における中性子の吸収によって燃料中央部では中性子束の大幅な低下が起こる。SRACコードによる核計算の結果では、照射開始時点において燃料中心部で 1/4 程度に中性子束が低下すると評価されている。また、今回のJMTRでの照射は、炉内反射体領域で行われているため、燃料の周方向に対して中性子束は均一でなく、炉心方向と比較して、その反対側では20%程度の中性子束の低下が起こると予想された。

燃料内の径方向の燃焼度プロファイルについては、照射開始時点の中性子束分布から決めることができないため、今回の試験で得られたNdのような燃料内で移動しにくいと考えられている元素の径方向分布のデータを参考にしながら評価した。すなわち、後で述べるようにPd、ZrおよびMoの径方向分布は極めて類似しており、今回の低い燃料温度で照射した場合には、これらのFPは有為な移動を起こさないと判断することができる。このため、これらのFP分布は、そのまま燃焼度分布と対応しているものと考えられる。そのようすをFig. 6 に示すが、燃料周辺部において特に燃焼が進み、燃料中心部と比べた場合、2倍強の燃焼度が得られていると評価される。

3. アクチノイドの挙動

3.1 プルトニウムの挙動

燃料ペレットの径方向に電子線をスキャンさせ、得られたPuのMβ線の強度を約0.20mm間

隔で平均化してPuの径方向分布を評価した。その結果をFig. 7に示す。後述するように三二炭化物の析出に伴うPuの偏析があるため、Puの径方向分布は比較的大きな変動を示している。なお、クラックの影響についてはデータ処理の際に消去した。また、後に述べるFP核種の径方向分布についてもPuの場合と同様のデータ処理を行った。Figure 7から燃料周辺部でPu濃度の有意な低下が認められる。しかし、今回の試験結果は特異なものではなく、照射条件等の燃料環境から観察結果を説明することができる。まず、前述したように熱中性子による照射であり、燃料中心で中性子束の大幅な低下があることが挙げられる。このことは周辺部でのPuの選択的な燃焼に伴って濃度低下が起こることを示している。照射中にPuが移動しないと仮定してFig. 6に示した径方向の燃焼度プロファイルの評価結果からPu濃度を概算すると、燃料周辺部で15%、燃料中心で18%となり、約20%の濃度差が生ずることになる。Figure 7に示したラインスキャンの結果では、やはり20%程度の濃度差が観察されており、燃焼度プロファイルからの概略評価とよい一致を与えている。さらに、Pu分布の評価にあたって中性子束条件の他に、燃料温度の低いことを考慮しておく必要がある。今回の試験燃料はピーク線出力として58.5kW/mで照射されたが、E P M A観察に供した試料部分の線出力は炉内の軸方向中性子束分布から51.5kW/mと評価されている。このため、燃料中心温度はピーク線出力位置で約1,495K、試験燃料ペレットで1,415K（ペレット表面において約1,150Kとなる。この低い燃料温度と温度勾配のために、物質の移動速度は極めて緩慢であると予想され、中性子束分布に起因して生じたPu濃度の不均一が低い燃料温度のために十分に緩和されないで残留したものと考えられる。熱外中性子により、線出力110kW/m、燃料中心温度1,923Kの条件で行われた照射試験の結果では、Puの燃料内の不均一性は僅かであり、最大濃度を示すのは燃料中心から径方向に対して0.5-0.7Rの範囲と報告されている⁽¹¹⁾。今回の試験結果は従来の報告と必ずしも一致していないが、中性子スペクトルおよび燃料温度の相違に起因するものと考えられる。今回のような低い燃料温度条件で照射した場合には、Puの再分配は大きな問題とならないと結論づけられ、これまでの指摘⁽¹²⁾と一致する。

プルトニウムの分布については、Fig. 7に示したマクロ的な濃度勾配の他に、多数の微細な偏析の存在が認められる。Photo. 2にはPuに関して燃料周辺部で径方向のラインスキャンを行った結果の一部を示す。また、U、Puについて面分析を実施した結果をPhoto. 3に示した。これらの観察からも微細なPuの偏析が確認できる。さらに、UについてもPuと対照的に濃度の低い領域が存在していることが認められる。試験燃料は、製造時点で20%の三二炭化物を含んでおり、また、照射後試験における金相観察からも多数の三二炭化物の析出が認められている⁽⁸⁾。結晶粒の大きさは5~10 μ mであり、金相観察とE P M A観察の結果は概ね一致している。このような三二炭化物を含む系では、三二炭化物側にPuが濃縮することが知られており、今回観察された微細なPuの偏析は、この三二炭化物の析出に伴うものであると結論づけることができる。

未照射燃料での三二炭化物中のPu濃度は三二炭化物の存在量あるいは炭素含有量、U/Pu比および温度に依存する。(U_{0.85}, Pu_{0.15})C_{1.10}O_{0.02}組成の未照射炭化物燃料の場合について、熱力学による評価と実験から求められた三二炭化物中のPu濃度は1,550Kにおいて、それぞれ27%および20%であると報告されている⁽¹³⁾。今回の試験では、定量評価を実施して

いないが、X線強度比からPuの濃度比は約2倍と推測される。これは、これまでの報告結果と定性的によい一致を示す。また、未照射炭化物試料についてラインスキャンによる観察を行った報告⁽¹³⁾では、今回の照射試料で得られた結果と極めて類似したものとなっている。三二炭化物中へのPu偏析に対する照射の効果については、これまで明らかにされていないが、今回の試験結果からは照射によって大きな影響を受けないものと推測される。

Puの偏析については、上記の三二炭化物の析出ほかに、組織再編成に伴ってクラックの回復部分へPuが凝縮すると報告されている⁽¹⁴⁾。このために今回の試験においても、特に燃料中央部に近い領域でクラックの幅が狭くなっている部分についてPuの偏析の有無を調べたが、クラック回復現象に関連すると思われる偏析を見つけることはできなかった。クラックが回復するためには「蒸発-凝縮」機構が作用することが必要であると考えられているが、今回の試験では、高い温度や大きな温度勾配などの温度条件が満たされていなかったため、回復現象が進行しなかったものと考えられる。また、Puの偏析は三二炭化物以外の白金族元素を含む化合物の析出によっても生ずることが知られている⁽¹¹⁾。今回の試験でも一部の微細なPuの偏析部分とPd濃度の高い位置とが重なっていると思われる観察結果が得られているが、この点については次章で検討する。

3.2 アメリカシウムの同定

燃料製造のために用いたPu原料には、燃料ペレット製造時において 1.8×10^{-5} gram-atoms の²⁴¹Amが含まれていたほか、炉内においても中性子照射を受けることによってAmの蓄積が進行する。また、照射が終了した後も²⁴¹Puの崩壊に伴って時間の経過とともに²⁴¹Amの増加がおこる。これらの要因によって照射後試験時においては相当量のAmの蓄積が予想された。ORIGENコードによる評価結果 (Table 2 参照) によると、Amの存在量は照射終了後800日で 6.5×10^{-4} gram-atoms となっている。このAm蓄積量のうち、約40%は照射後の冷却期間中に²⁴¹Puの崩壊によって生成したものである。

他のFPの存在量と比較した場合、EPMAによってAmを同定できることが予測されたため、今回の試験でAmの同定を試みた。Amの特性X線のなかで、M α 線およびM β 線は、それぞれ0.3610 nmおよび0.3412 nmの波長をもつ⁽¹⁵⁾。このうち、M α 線については、Uの高次のX線とほぼ重複する。また、存在量がそれほど大きくないためにAmのピークは微小であり、照射試料の分析結果だけではAmの存在を確定することができなかった。このため、Am含有量の異なる未照射Pu試料について、PuM γ 線、AmM α 線およびAmM β 線の波長位置でX線強度を測定し、照射試料との比較を試みた。その結果をTable 3にまとめて示す。僅かに波長シフトが認められるが、0.3610 nmおよび0.3412 nmの位置で観察されたX線強度とAm量との関係に相関性が認められる。前述したようにAmM α 線がUの高次のX線と重複するため、Amの定量は行わなかったが、照射試料でこれらの波長位置において観察されたピークはほぼAmによるものと推測することができる。

今回の試験ではAmの存在量が小さいこと、および照射後の²⁴¹Puの崩壊に伴うAmの寄与が大きく、今回の試料条件では照射下のAmの挙動を正確に把握することは困難であると予想さ

れたため、Amの分布状況の観察は行わなかった。Amは希土類元素とともに燃料内の僅かに残留する酸素と化合物を形成して偏析する⁽¹²⁾こと等が報告されているが、これまでに炭化物燃料に限らず、燃料中でのAmの挙動はほとんど解明されていない。このため、今後、Amの挙動は重要課題のひとつであり、次回の燃焼の進んだ燃料（燃焼度；約40GWd/t、キャプセル名；84F-12A）の試験にあたっては、照射終了時点で今回の試験試料よりもAmの生成量が25%程度増加すると予想される等、試験条件の改善が見込まれるため、より詳細な観察を実施する予定としている。

4. 核分裂生成物の挙動

4.1 キセノンの挙動

燃料内におけるFPガスの挙動は、FPガス放出率とボイド・スエリングの評価にあたって極めて重要であり、この点に着目してXeの径方向分布を調べた。その結果をFig. 8に示したが、燃料中心部でXe濃度が有意に低下していることが認められた。これまでの欧米での照射試験に関しても燃料内のXe濃度をEPMA等によって分析した結果が報告されている^(11,16)。炭化物燃料は照射されることによって組織再編成を示し、周辺部では製造時の組織が残るのに対して、中心部で多孔質層を形成する。このような径方向の組織状態の変化を領域毎に3ないしは4区分することによって燃料挙動が説明されているが、多孔質層を形成する燃料中心側領域でXe濃度の低下すなわちXeガスのプレナムへの放出が顕著に起ることが指摘されている。この領域でのXeの挙動については、照射量および温度条件によって変化すると予想される。しかし、これまでのXe濃度分布についての報告は、100kW/m以上の高い線出力で照射された燃料に関するものであり、今回のように比較的低い線出力で、かつ、低い燃料温度条件で照射された燃料に関する報告例はない。

燃料の外周部については、高線出力で照射した場合でも、燃料温度が低いために製造時の燃料組織が残留し、Xe等のFPガスはほとんど全量が燃料マトリックス中に拘束されと考えられている⁽¹⁶⁾。照射条件を考慮すると、今回の試験試料においても、燃料製造時の組織が確保されていること等によって外周部において生成したXeがほぼ全量燃料中に拘束されていると判断される。今回観察されたXe濃度分布について、外周部におけるXe濃度を100%に基準化して燃料中央部における残留Xe濃度を概略評価すると30~35%程度に低下している。燃焼度については、Fig. 6に示したように外周部と比べて約40%の低下があると考えられるため、燃料中心部で生成したXeについては約80%が燃料内に拘束されているのに対して、残りの約20%のXeはプレナム等に放出されたことになる。また、今回のEPMA観察で得られたデータとFig. 6の燃焼度径方向分布との比較によりペレット断面全体についてXeの放出率を概略評価した結果では、15%から20%の間の放出率となる。別途実施したパンクチャー試験では、約15%のFPガス放出率が得られており⁽⁸⁾、EPMA観察からのXe放出に関する概略評価とよい一致を示すことが確認された。今回EPMA観察で得られたXeの径方向分布に関する測

れたため、Amの分布状況の観察は行わなかった。Amは希土類元素とともに燃料内の僅かに残留する酸素と化合物を形成して偏析する⁽¹²⁾こと等が報告されているが、これまでに炭化物燃料に限らず、燃料中でのAmの挙動はほとんど解明されていない。このため、今後、Amの挙動は重要課題のひとつであり、次回の燃焼の進んだ燃料（燃焼度；約40GWd/t、キャプセル名；84F-12A）の試験にあたっては、照射終了時点で今回の試験試料よりもAmの生成量が25%程度増加すると予想される等、試験条件の改善が見込まれるため、より詳細な観察を実施する予定としている。

4. 核分裂生成物の挙動

4.1 キセノンの挙動

燃料内におけるFPガスの挙動は、FPガス放出率とボイド・スエリングの評価にあたって極めて重要であり、この点に着目してXeの径方向分布を調べた。その結果をFig. 8に示したが、燃料中心部でXe濃度が有意に低下していることが認められた。これまでの欧米での照射試験に関しても燃料内のXe濃度をEPMA等によって分析した結果が報告されている^(11,16)。炭化物燃料は照射されることによって組織再編成を示し、周辺部では製造時の組織が残るのに対して、中心部で多孔質層を形成する。このような径方向の組織状態の変化を領域毎に3ないしは4区分することによって燃料挙動が説明されているが、多孔質層を形成する燃料中心側領域でXe濃度の低下すなわちXeガスのプレナムへの放出が顕著に起ることが指摘されている。この領域でのXeの挙動については、照射量および温度条件によって変化すると予想される。しかし、これまでのXe濃度分布についての報告は、100kW/m以上の高い線出力で照射された燃料に関するものであり、今回のように比較的低い線出力で、かつ、低い燃料温度条件で照射された燃料に関する報告例はない。

燃料の外周部については、高線出力で照射した場合でも、燃料温度が低いために製造時の燃料組織が残留し、Xe等のFPガスはほとんど全量が燃料マトリックス中に拘束されと考えられている⁽¹⁶⁾。照射条件を考慮すると、今回の試験試料においても、燃料製造時の組織が確保されていること等によって外周部において生成したXeがほぼ全量燃料中に拘束されていると判断される。今回観察されたXe濃度分布について、外周部におけるXe濃度を100%に基準化して燃料中央部における残留Xe濃度を概略評価すると30~35%程度に低下している。燃焼度については、Fig. 6に示したように外周部と比べて約40%の低下があると考えられるため、燃料中心部で生成したXeについては約80%が燃料内に拘束されているのに対して、残りの約20%のXeはプレナム等に放出されたことになる。また、今回のEPMA観察で得られたデータとFig. 6の燃焼度径方向分布との比較によりペレット断面全体についてXeの放出率を概略評価した結果では、15%から20%の間の放出率となる。別途実施したパンクチャー試験では、約15%のFPガス放出率が得られており⁽⁸⁾、EPMA観察からのXe放出に関する概略評価とよい一致を示すことが確認された。今回EPMA観察で得られたXeの径方向分布に関する測

定結果は、照射条件を加味した場合、欧米の結果と一致した傾向をもち、E P M A 観察が F P ガスの放出挙動を解明するための有力な手段となることが明らかとなった。この手法を活用していくためには炭化物燃料中の X e の定量法の確立が不可欠であるが、60から80kW/mという標準的な線出力で照射した燃料に関する報告はこれまでになく、今後、高い燃焼度を達成した燃料を対象とした試験を通じて有意義な結果が得られるものと期待できる。

なお、今回の試験で X e の局所的な偏在は、特に認められなかった。また、F P ガスとしては X e の他にクリプトン (K r) があるが、その特性 X 線 ($L \alpha_1$) が U からの高次の特性 X 線と重複すること、およびその存在量 (1.0×10^{-4} gram·atoms) が小さいこと等から、今回の試験では検討対象に選定しなかった。

4.2 固体状 F P 元素の挙動

4.2.1 ジルコニウム

ジルコニウムは一炭化物、Z r C を形成し、U C および P u C と全率固溶することが知られており⁽¹⁷⁾、照射燃料においても燃料マトリックスに固溶すると報告されている⁽¹⁸⁾。また、高融点化合物であることから径方向の温度勾配に強く支配されることなく、燃焼度プロファイルに対応した径方向分布の得られることが期待された。しかし、Z r に関する測定結果は、Fig. 9 に示すように予想に反するものとなっている。すなわち、N d などの他の F P と異なり、Z r の分布プロファイルには大きな濃度勾配がなく、燃料中央部での濃度低下はごく僅かとなっている。この状況を説明するには、外周部で生成した Z r の燃料中心側への移行を仮定する必要があるが、このような Z r の再分配を指摘した報告はこれまでにない。

今回の試験では T A P 分光結晶を用いて Z r の径方向分布を測定した。Z r の存在量が大いいため十分に大きな X 線強度が得られているが、その反面、分光結晶と試料の位置との関係に起因して試料からの γ 線によるバックグラウンドの上昇があり、かつバックグラウンドのシフトも認められている。従って、今後、P E T 結晶を用いた測定を行う等、測定精度向上が検討課題として残されている。Z r の再分配に関する議論を行うためには、より精度の高い測定が望ましい。しかし、マイクロガンママスクの結果⁽⁸⁾も E P M A 観察の結果と類似しており、他の F P のような明瞭な径方向プロファイルを与えておらず、Z r が従来の指摘とは異なる燃料内挙動を示す可能性が十分に残っている。Z r の挙動把握のためには高い燃焼度の燃料を用いてより詳細な検討が今後必要である。なお、今回の試験で Z r の局所的な偏析は観察されていない。

4.2.2 白金族元素

白金族元素の R u や R h は、炭化物燃料中で燃料マトリックスに固溶せず、化合物を形成して析出することが知られている。生成する化学形態は炭素量や酸素量などの燃料組成に依存し、金属間化合物 A B あるいは A_3B_4 ($A = U, P u, L a, C e, P r, N d, P m, S m, B = T c, R u, R h$) および複合炭化物 $M_2(T c, R u, R h)C_2$ ($M = U, P u$) の生成が報告されている^(11,18)。後者の化合物については、P d を含む可能性がある。今回の試料では Table 2 に示したように R h

の存在量は小さいため、E P M Aの検出限界以下と考えて測定対象としなかったが、Ruについては十分な量が存在しており、検出が可能であった。このため、Ruの分布状況を調べたが、報告されているような偏析は見出せなかった。しかし、今回の試験でRuを含む化合物の析出が否定されたわけではなく、今後も詳細な検討を続けていくことが重要である。また、これらの白金族を含む化合物は燃料ペレットの一定温度領域にリング状になって析出することが知られているが、この領域には白金族元素と共存する形で希土類元素やテクネシウム (Tc) が濃縮される可能性があり、今後の試験では注目して行く必要がある。

RuやRhと比べ、Pdの挙動は必ずしも明確になっていない。U-Pd-CおよびPu-Pd-C平衡状態図からは、RuやRhのような複合炭化物を形成することがなく、金属間化合物が存在するのみと考えられる⁽¹⁹⁾。このため、Pdの照射炭化物燃料中での化学形としては、金属状態あるいはPdTeを想定した整理が行われている⁽²⁰⁾。Pdの径方向分布についてのE P M A測定結果をFig. 10に示す。燃料中央部でPd濃度の低下が見られ、燃焼度プロファイルと類似の分布となっている。また、この図では明確でないが、微細なPdの偏析も観察されており、そのようすをFig. 11に示す。このPdの偏析は燃料中央部には少なく、外周部に多く見られた。しかし、ラインスキャンの結果では、Pdの偏析に随伴する元素の存在については情報を得ることができなかった。

PuとPdについて同一領域で行ったE P M A面分析の結果をPhoto. 4には示す。この写真からPdおよびPuについて偏析が認められる。このうち、Puについては、前述したようにほとんどが三二炭化物の析出に伴うものと考えられる。また、Pdの偏析はPuよりも数が少なく、また、Puの偏析部分との対応もほとんど認められない。しかし、Pdの偏析を詳細に検討すると、その一部がPuの偏析部分と重複しているように見受けられるものがあり、PdがPuと共存している可能性が残されている。今回の試験でPuとPdの重複については最終的に結論づけることができなかった。しかし、PuはPdとPuPd₃₋₄などの金属間化合物を形成する⁽¹⁹⁾ため、PuとPdが化合物の形で共存する可能性が残されている。今回の試験では、これまでに報告されていない明瞭なPdの偏析が観察されており、今後、その化学形や生成機構を解明することにより、白金族元素等のリング状の蓄積現象を明らかにすることが期待できる。

4.2.3 モリブデン

モリブデンはMoCとして炭化物中に固溶し得るが、その固溶度は小さく、2,100 K以下の温度では固溶限を超えたMoがMMoC₂として析出する⁽²¹⁾。ラインスキャンで得られたMoの径方向分布の測定結果をFig. 12に示すが、全体としては燃焼度プロファイルに近い分布が得られている。なお、被覆材のステンレス鋼 (S U S 316) には、約2.5%のMoが含まれており、燃料マトリックスよりも強いX線強度を与えている。これに対してFig. 13およびPhoto. 5に示すように、燃料中心部で局部的に燃料マトリックスと比べて倍以上の濃度のMoの偏析が観察されている。これはMMoC₂の析出によるものと推測される。燃焼度が低く、Moの生成量が小さい燃料中央部でこのようなMMoC₂の析出が起きたことは一見不自然に見える。Fig. 13に示したようにMoについて径方向にラインスキャンを行った結果では、燃料周辺部でその濃度が高くなっている。したがって、Mo濃度と炭化物中へのMoCの固溶度を考慮すると、まず、燃料

周辺部で MMoC_2 の析出が発生することが自然である。試験結果が逆となった理由としては、温度条件を挙げるができる。燃料周辺部では温度が低く、仮に過剰のMoが生成したとしても拡散が遅く、E P M Aで観察されるような大きさの MMoC_2 に成長しなかった可能性がある。これに対して、燃料中心部ではMo濃度は相対的に低いが、燃料温度が高いため固溶限を超えたMoが析出物として容易に成長しえたものと考えられる。

4.2.4 ネオジウムおよびセリウム

ネオジウムの径方向分布を Fig. 14に示した。燃料外周部でNd濃度が上昇しているのに対して中央部でその濃度が低下していることが観察される。この傾向はPdやMoの場合と同様である。Ndは濃度が高い場合には三二炭化物として存在するが、濃度が低い条件では燃料マトリックスに固溶する。その燃料内の分布については、照射条件によって変化することが知られており、線出力が高い場合(119kW/m)にはNdが燃料外側に移動するのに対して、線出力が94kW/mでは均一の分布が得られる⁽¹⁾。これらのことは、標準的な線出力で照射した場合に発生する温度勾配の下ではNdの移動は無視し得ることを示唆している。従って、今回の燃料照射条件ではNdの径方向への移動は起こりにくいと考えられ、観察されたNdの径方向分布は燃焼度プロフィールを反映したものであると判断することができる。今回の試験では、Photo. 6の面分析の結果から分るようにNdの偏析は観察されておらず、Ndは炭化物を形成して燃料マトリックスに固溶するというこれまでの報告が裏付けられている。

セリウムは、他のランタノイド系列の元素と同様に炭化物を形成し、ウラン・プルトニウム混合炭化物に固溶することが知られている。このため、その挙動はNdと類似しているものと考えられる。今回の試験でCeを同定できることが確認されたが、特にE P M Aによる面分析等は実施しなかった。

4.2.5 セシウム

炭化物燃料中では、Csは金属状あるいはCsIの形で存在すると考えられており、準揮発性物質として燃料内を移動することが考えられる。これまでの試験でもCsの一部が燃料ペレットからプレナム部へ放出され、低温部に凝縮することが観察されている^(7,8)。今回の試験で燃料内のCsの偏析の有無を調べるためにE P M Aによる面分析を実施したが、Photo. 7に示すように均一な分布が得られた。このため、Csは析出物として偏在することなく、炭化物燃料中ではF P ガスと類似の挙動を示す可能性が高い。しかし、Csの移行機構は明らかにされていないので、今後径方向分布状況やギャップ部へのCsの蓄積の有無などについて調べていく必要がある。なお、プレナム低温部に凝縮したCsは、燃料の健全性に特に悪影響を及ぼすと考えられていない⁽²²⁾が、その析出の形態等の挙動は解明されておらず、今後の検討課題として残されている。

5. まとめ

本試験に供したウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の燃焼度は約3% FIMAであり、一部の核種を除いて特性X線強度は弱く、試験手法を十分に活かすだけのデータの集約を行うことができなかった。しかし、以下に示すように重要な知見を得ることができた。

1. Puは、熱中性子照射によって燃料周辺部で濃度低下を示す。しかし、燃料温度の低い場合にはこのPuの濃度勾配は解消されない。また、三二炭化物の析出に伴う微細なPuの偏析が照射後も残留し、熱力学による評価や未照射燃料に関するEPMA観察結果とよい一致を示した。そのほか、EPMAによってAmを同定できることを確認した。
2. Xeの径方向分布に関する測定結果から、外周部ではXeがほぼ全量燃料中に拘束されているのに対して、燃料中心部で約20%、ペレット断面全体で約15~20%のXeが放出されていると評価され、この結果はパンクチャー試験から得られたFPガス放出率の結果と比較的よい一致を示していることが確認された。
3. PdおよびMoについて局部的に微細な偏析が観察された。このうち、Pdについては、Puを含む化合物を形成している可能性が残されている。また、Moの偏析についてはMMoC₂の析出によるものと考えられるが、析出状況からMo濃度のほかに温度条件に影響されるものと判断される。
4. その他、固体状FPとしてZr、Ru、Nd、Ce、Csなどが観察された。Zrを除いてこれらのFPの径方向分布は燃料内の燃焼度プロファイルを反映したものであった。

今後、5% FIMAを超えるような燃焼度の混合炭化物燃料を試験する予定となっている。燃焼度の伸長に伴って燃料中のFP存在量が大きくなるため、定量法の確立や測定精度の向上等によって一層充実したデータの蓄積が可能であり、今後、炭化物燃料中の物質移行現象などの解明が期待できる。

謝 辞

本試験の遂行に当たっては、ホット試験室、ホット試験技術課および実用燃料試験課の皆さんの並々ならぬご協力を頂いた。また、プルトニウム燃料研究室室員がそれぞれの役割り分担を果たして研究に対応した。特に、塩沢憲一氏には未照射Pu試料のEPMA観察に協力頂いた。関係各位に深く感謝する。

また、本研究にあたり貴重な助言を頂いた近藤達男燃料・材料工学部長、伊丹宏治ホット試験室長および半田宗男燃料・材料工学部次長に厚くお礼申し上げる。

5. まとめ

本試験に供したウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の燃焼度は約3% FIMAであり、一部の核種を除いて特性X線強度は弱く、試験手法を十分に活かしきだけのデータの集約を行うことができなかつた。しかし、以下に示すように重要な知見を得ることができた。

1. Puは、熱中性子照射によって燃料周辺部で濃度低下を示す。しかし、燃料温度の低い場合にはこのPuの濃度勾配は解消されない。また、三二炭化物の析出に伴う微細なPuの偏析が照射後も残留し、熱力学による評価や未照射燃料に関するEPMA観察結果とよい一致を示した。そのほか、EPMAによってAmを同定できることを確認した。
2. Xeの径方向分布に関する測定結果から、外周部ではXeがほぼ全量燃料中に拘束されているのに対して、燃料中心部で約20%、ペレット断面全体で約15~20%のXeが放出されていると評価され、この結果はパンクチャー試験から得られたFPガス放出率の結果と比較的よい一致を示していることが確認された。
3. PdおよびMoについて局部的に微細な偏析が観察された。このうち、Pdについては、Puを含む化合物を形成している可能性が残されている。また、Moの偏析についてはMMoC₂の析出によるものと考えられるが、析出状況からMo濃度のほかに温度条件に影響されるものと判断される。
4. その他、固体状FPとしてZr、Ru、Nd、Ce、Csなどが観察された。Zrを除いてこれらのFPの径方向分布は燃料内の燃焼度プロファイルを反映したものであった。

今後、5% FIMAを超えるような燃焼度の混合炭化物燃料を試験する予定となっている。燃焼度の伸長に伴って燃料中のFP存在量が大きくなるため、定量法の確立や測定精度の向上等によって一層充実したデータの蓄積が可能であり、今後、炭化物燃料中の物質移行現象などの解明が期待できる。

謝 辞

本試験の遂行に当たっては、ホット試験室、ホット試験技術課および実用燃料試験課の皆さんの並々ならぬご協力を頂いた。また、プルトニウム燃料研究室室員がそれぞれの役割り分担を果たして研究に対応した。特に、塩沢憲一氏には未照射Pu試料のEPMA観察に協力頂いた。関係各位に深く感謝する。

また、本研究にあたり貴重な助言を頂いた近藤達男燃料・材料工学部長、伊丹宏治ホット試験室長および半田宗男燃料・材料工学部次長に厚くお礼申し上げる。

参考文献

1. HJ. Matzke, "Science of Advanced LMFBR Fuels", North-Holland, Amsterdam (1986).
2. 半田 宗男、鈴木 康文、"高速炉用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の開発現状"、日本原子力学会誌 26, 2 (1984).
3. 半田 宗男、大道 敏彦、福島 奨、笹山 龍雄他、"照射用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作"、JAERI-M 83-206 (1983).
4. 荒井 康夫、岩井 孝、前多 厚、笹山 龍雄他、"高出力照射試験用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作"、JAERI-M 86-094 (1986).
5. 荒井 康夫、岩井 孝、前多 厚、笹山 龍雄他、"JMTR照射キャプセル(84F-10A, 84F-12A, 87F-2A)用混合炭化物燃料ピンの製作"、JAERI-M 89-060 (1989).
6. 前多 厚、笹山 龍雄、岩井 孝、相沢 作衛他、"ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低線出力(第1回)照射及び照射後試験"、JAERI-M 88-219 (1988).
7. 岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、相沢 作衛他、"ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の中線出力(第2回)照射及び照射後試験"、JAERI-M 89-186 (1989).
8. 荒井 康夫、鈴木 康文、笹山 龍雄、岩井 孝、関田 憲昭他、"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"、JAERI-M (印刷中).
9. I. Muller-Lyda, W. Dienst, "A Measurement of the Irradiation-induced Creep of Mixed Carbide Nuclear Fuel", J. Nucl. Mater., 90, 232 (1980).
10. R. J. Herbst, R. W. Straton, "LMR Advanced Fuels - (U, Pu)-Carbide Fabrication, Performance and Reliability", Proc. on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Sept. 7-11, Tucson (1986).
11. H. Kleykamp, "The Chemical State of Irradiated Carbide Fuel Pins", Proc. on Advanced LMFBR Fuels, Oct. 10-13, Tucson, 166 (1977).
12. T. W. Latimer, J. O. Barner, J. F. Kerrisk, J. L. Green, "Postirradiation Results and Evaluation of Helium-Bonded Uranium-Plutonium Carbide Fuel Elements Irradiated in EBR-II, Interim Report", LA-6249-MS (1976).
13. P. E. Potter, W. G. Roberts, "Inhomogeneity in Sintered Uranium-plutonium Carbide and Oxycarbide", AERE-R 5661 (1968).
14. C. Sari, "Simulation Study of the Restructuring of Advanced Fuel Heated in a Radial Temperature Gradient", Nucl. Technol., 35, 145 (1977).
15. A. G. Miller, "Analytical Utility of the M Series X-ray Emission Lines Applied to Uranium, Neptunium, Plutonium, and Americium", Anal. Chem., 48, 176 (1975).
16. M. Coquerelle, C. T. Walker, "Fission Gas Release and Microscopic Swelling in Highly Rated Advanced Fuels", Nucl. Technol., 48, 43 (1980).
17. U. Benedict, "Solid Solubility of Fission-product and other Transition Elements

- in Carbides and Nitrides of Uranium and Plutonium", Proc.on Thermodynamics of Nuclear Materials, 1979, IAEA, Vienna, vol.1, 453 (1980).
18. H.Kleykamp, "Mikrosondenuntersuchungen an Bestrahlten Urancarbid", J. Nucl.Mater., 47, 271 (1973).
 19. H.Holleck, "Ternaere Carbidsysteme der Actinoiden mit den Ubergangsmetallen der 4. bis 8. Gruppe", J. Nucl. Mater., 124, 129 (1984).
 20. M.H.Bradbury, Hj.Matzke, "Self-diffusion of Plutonium in High Burn-up Simulated (U,Pu)(CN) and (U,Pu)N", J.Nucl. Mater., 91, 13 (1980).
 21. W.Chubb, "Ternary Peritectics between Tungsten, Molybdenun, and Uranium Monocarbide", J. Nucl. Mater., 23, 336 (1967).
 22. U.P.Nayak, P.J.Levin, A.Boltax, "Irradiation Behavior of Helium-Bonded Mixed Carbide Fuel Pins", Trans. Am. Soc., 39, 412 (1981).

Table 1 Characteristics of uranium-plutonium mixed carbide fuel pin irradiated in JMTR.

Fuel pellet	
Material	(U,Pu)C
Pu/(U+Pu)	0.197
Carbon content (wt.%)	5.16
Oxygen content (wt.%)	0.12
$C_{eq}/(U+Pu)$	1.10
Density (g/cm ³)	11.0
Diameter (mm)	8.23
X-ray diffraction analysis	
Phases identified	(U,Pu)C & (U,Pu) ₂ C ₃
Lattice parameter	
MC (nm)	0.4964
M ₂ C ₃ (nm)	0.8098
Cladding	
Material	316 SS
Diameter (mm)	9.40
Thickness (mm)	0.51
Fuel pin	
Gap (mm)	0.15
Fuel stack (mm)	116
Pin length (mm)	250
Bonding material	He

* C_{eq} : carbon equivalent

Table 2 Build-up of actinides and fission-products in mixed carbide fuel after irradiation up to 3%FIMA.

Elements	Concentration(gram atoms)		
	BOL ^{*1}	EOL ^{*2}	800d cooling after discharge
U	2.25x10 ⁻¹	2.24x10 ⁻¹	2.24x10 ⁻¹
Pu	4.59x10 ⁻²	4.02x10 ⁻²	4.00x10 ⁻²
Am	1.83x10 ⁻⁵	3.81x10 ⁻⁴	6.47x10 ⁻³
Zr	-	1.18x10 ⁻³	1.17x10 ⁻³
Mo	-	1.35x10 ⁻³	1.39x10 ⁻³
Tc	-	3.61x10 ⁻⁴	3.65x10 ⁻⁴
Ru	-	1.17x10 ⁻³	1.07x10 ⁻³
Rh	-	2.90x10 ⁻⁴	3.15x10 ⁻⁴
Pd	-	8.60x10 ⁻⁴	9.40x10 ⁻⁴
Te	-	2.32x10 ⁻⁴	2.27x10 ⁻⁴
Xe	-	1.53x10 ⁻³	1.53x10 ⁻³
Cs	-	1.01x10 ⁻³	1.00x10 ⁻³
Ba	-	4.10x10 ⁻⁴	4.18x10 ⁻⁴
La	-	3.48x10 ⁻⁴	3.46x10 ⁻⁴
Ce	-	7.10x10 ⁻⁴	6.39x10 ⁻⁴
Pr	-	2.91x10 ⁻⁴	3.01x10 ⁻⁴
Nd	-	9.22x10 ⁻⁴	9.94x10 ⁻⁴
Sm	-	2.21x10 ⁻⁴	2.53x10 ⁻⁴

*¹ Beginning of life*² End of life

Table 3 Comparison of X-ray intensities of plutonium and americium in irradiated carbide pellet and plutonium samples containing different americium content.

	Irradiated carbide fuel	Unirradiated fuel	
		Sample containing lower Am content	Sample containing higher Am content
Am content (Am/Pu)	0.017	0.002	0.011
Wave length (nm) ^{*1}			
0.331 (PuM γ)	100	100	100
0.341 (AmM β)	34	7	18
0.361 (AmM α)	39	11	20

*¹ X-ray intensity of PuM γ is normalized to 100.

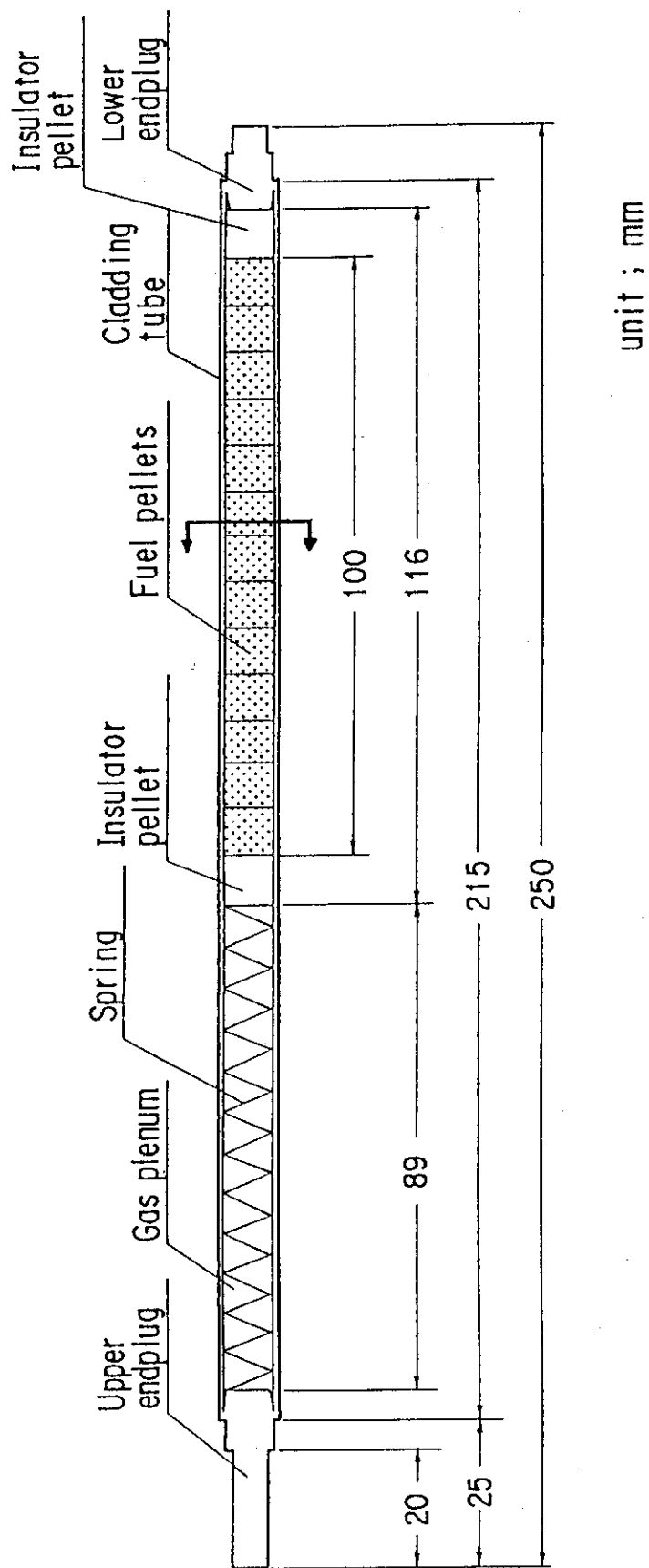


Fig. 1 Design of mixed carbide fuel pin examined in the present study.
Observed cross-section is shown by arrows.

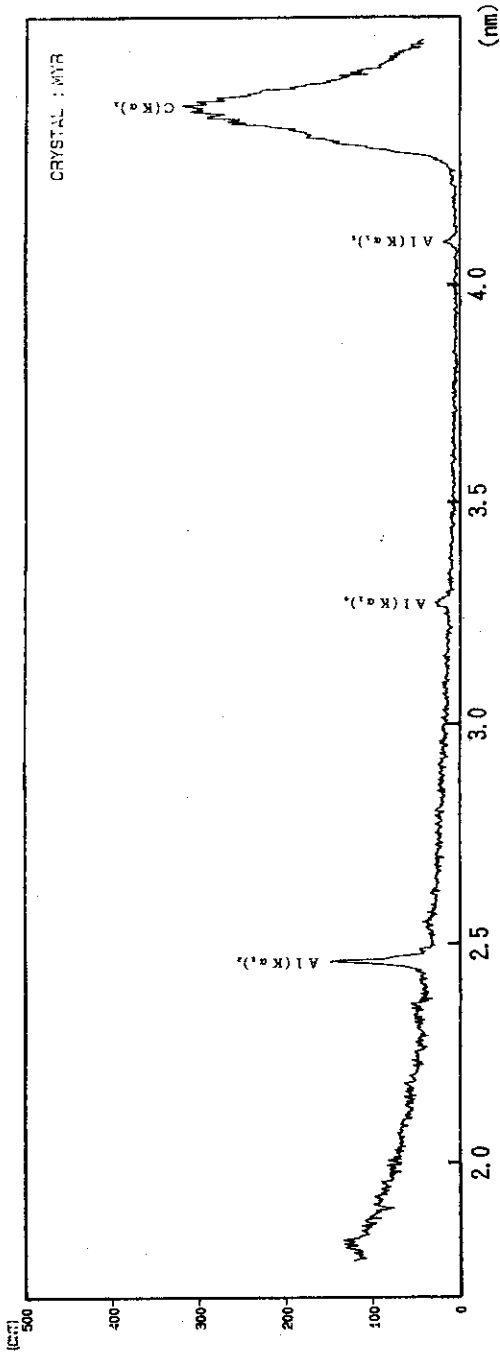


Fig. 2 X-ray spectra measured by using MYR crystal.

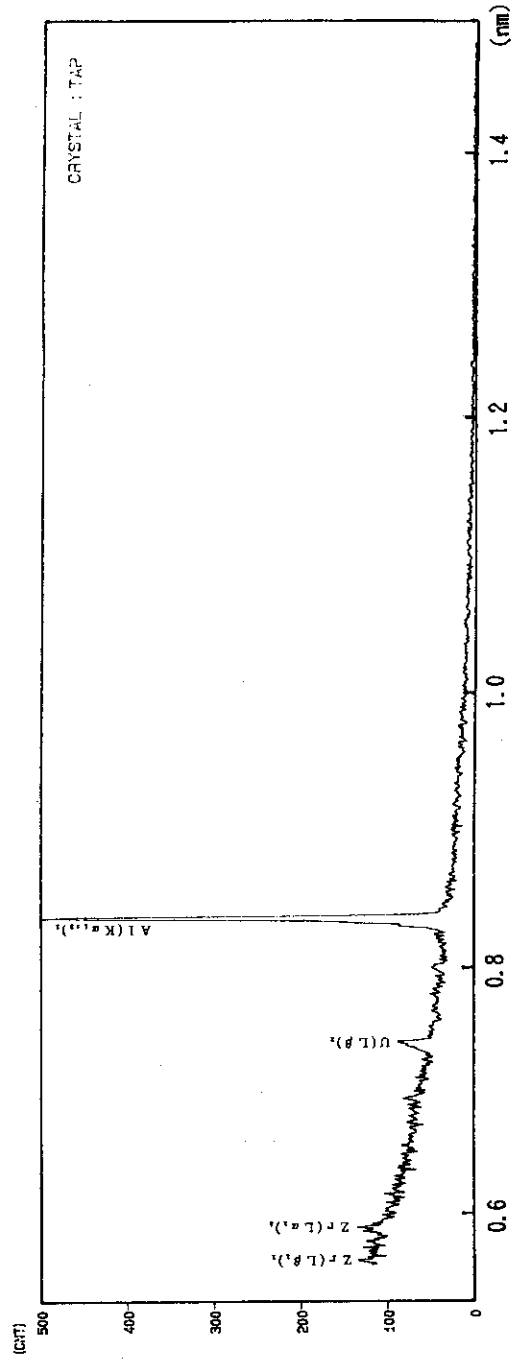


Fig. 3 X-ray spectra measured by using TAP crystal.

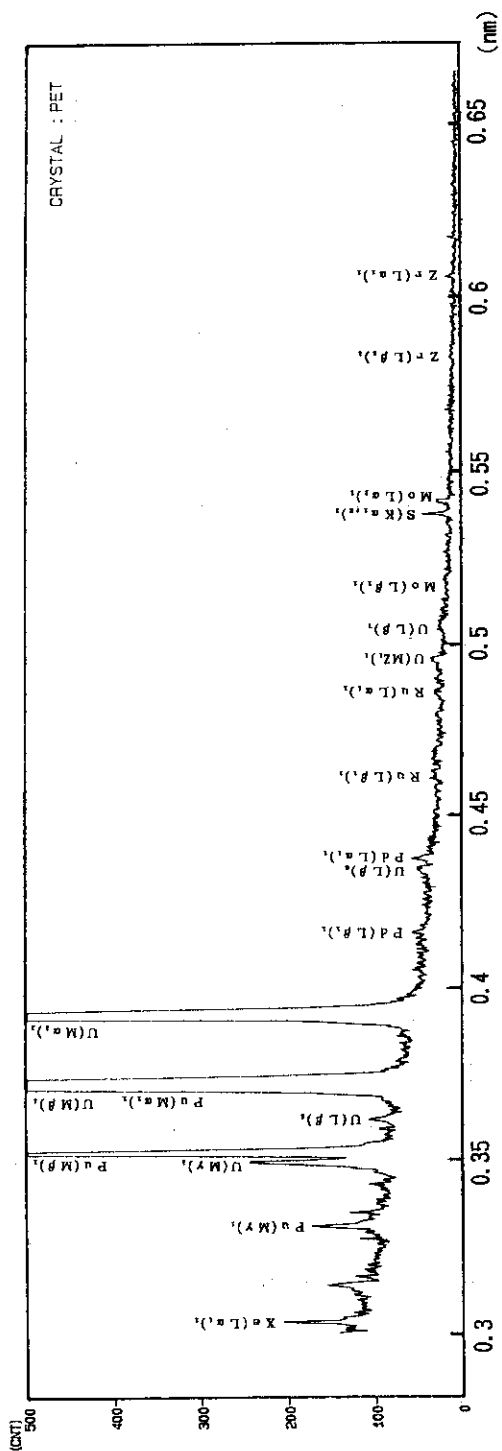


Fig. 4 X-ray spectra measured by using PET crystal.

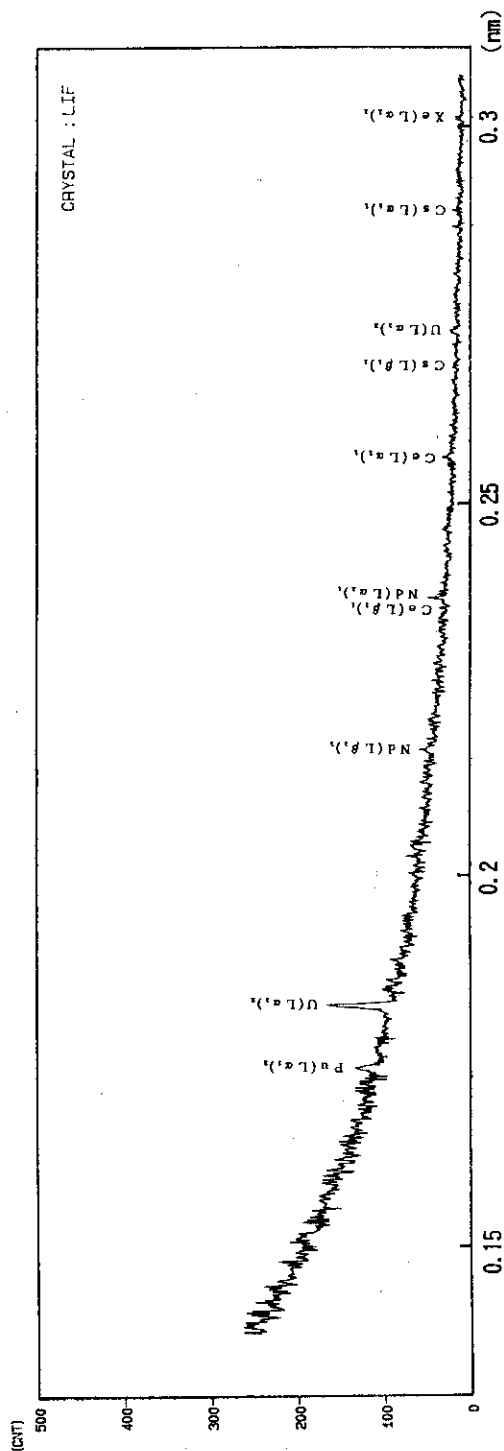


Fig. 5 X-ray spectra measured by using LiF crystal.

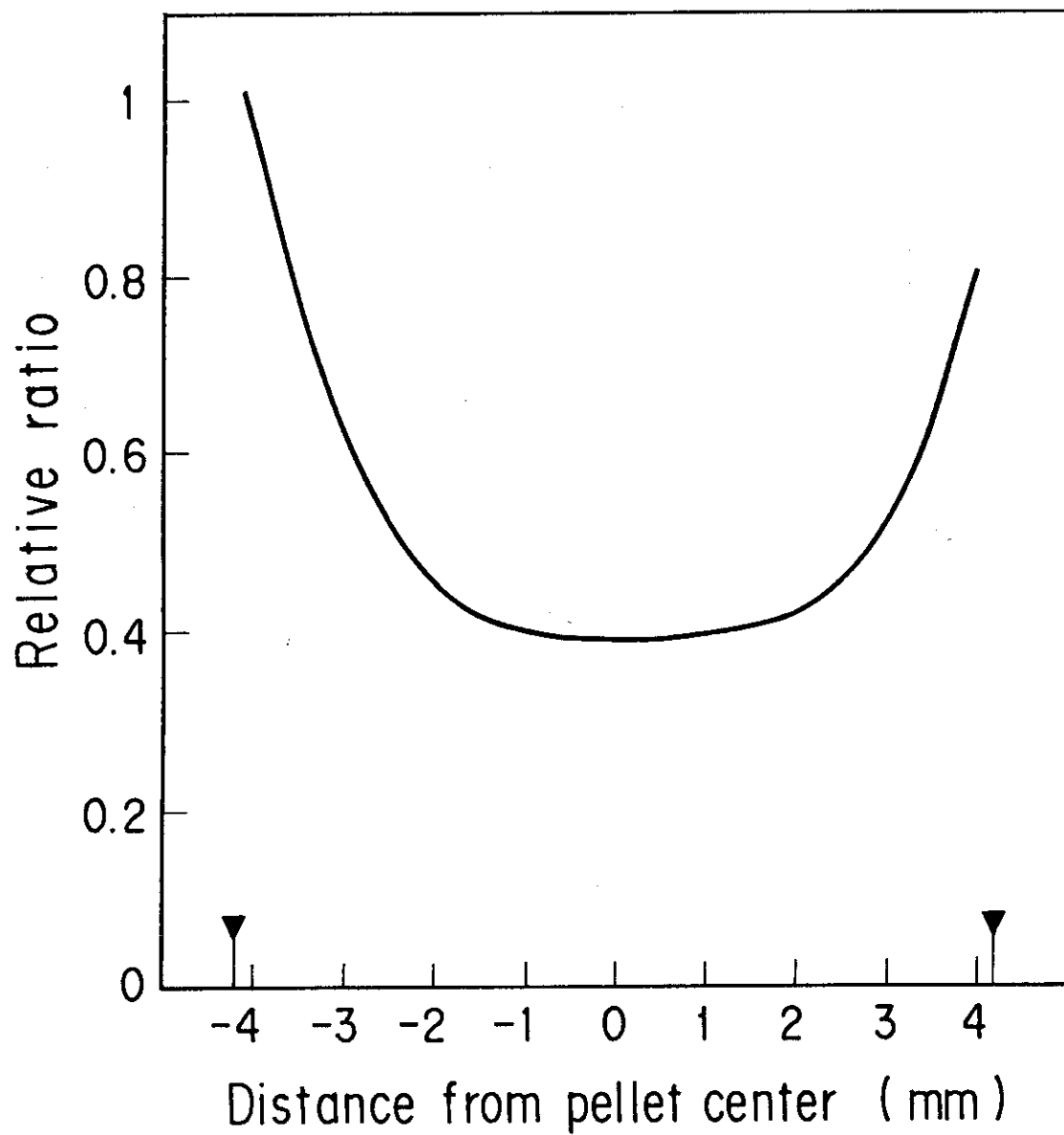


Fig. 6 Radial burn-up profile in mixed carbide pellet irradiated up to 3%FIMA in JMTR.

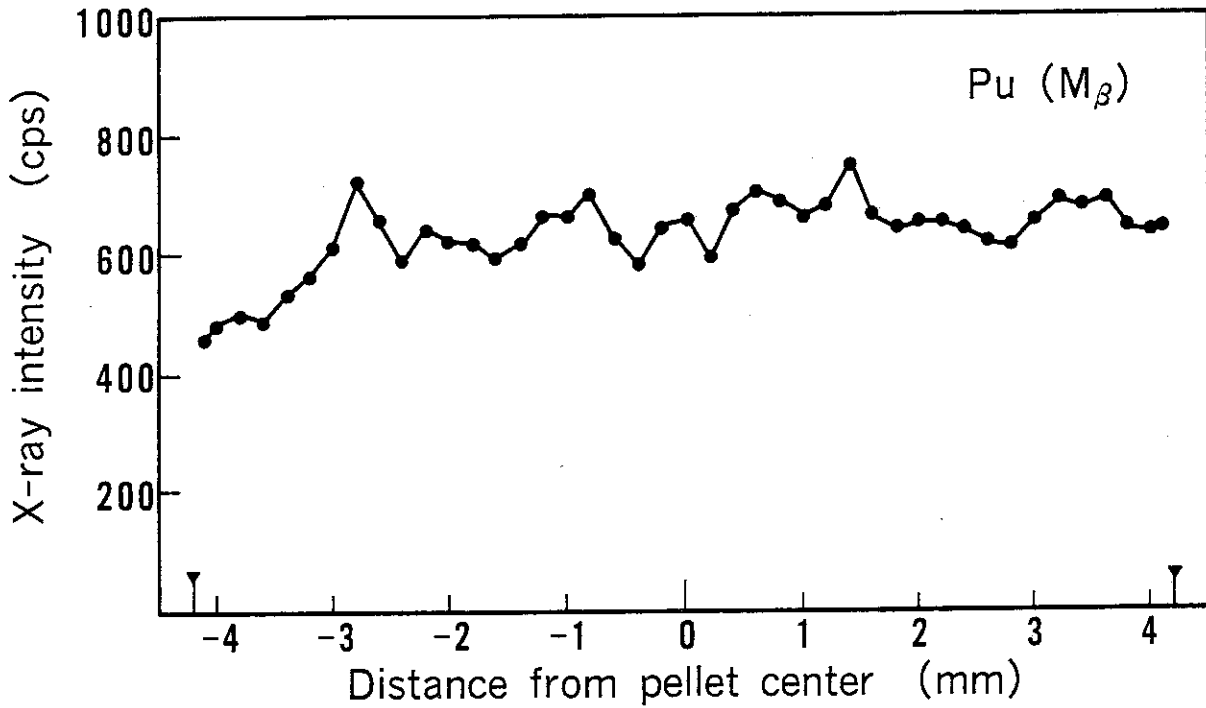


Fig. 7 Radial distribution of plutonium in irradiated mixed carbide pellet. Decrease of plutonium concentration can be seen in outer region.

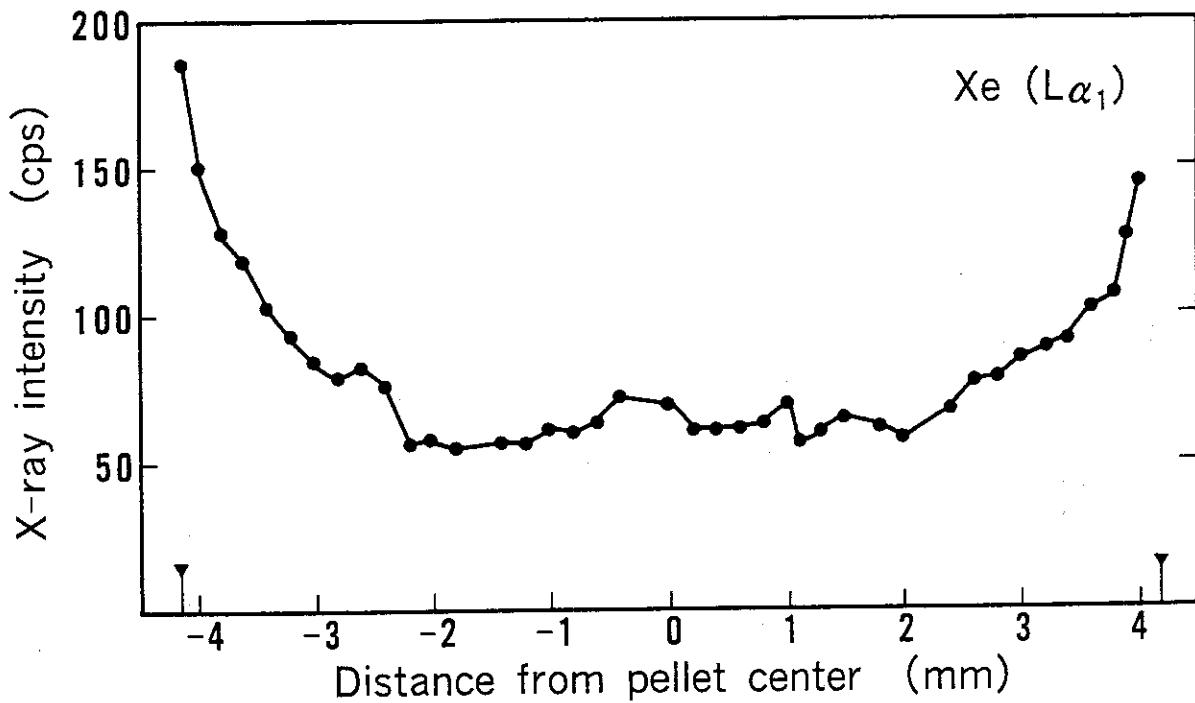


Fig. 8 Radial distribution of xenon in irradiated mixed carbide pellet. Lowering of Xenon concentration can be seen in central zone.

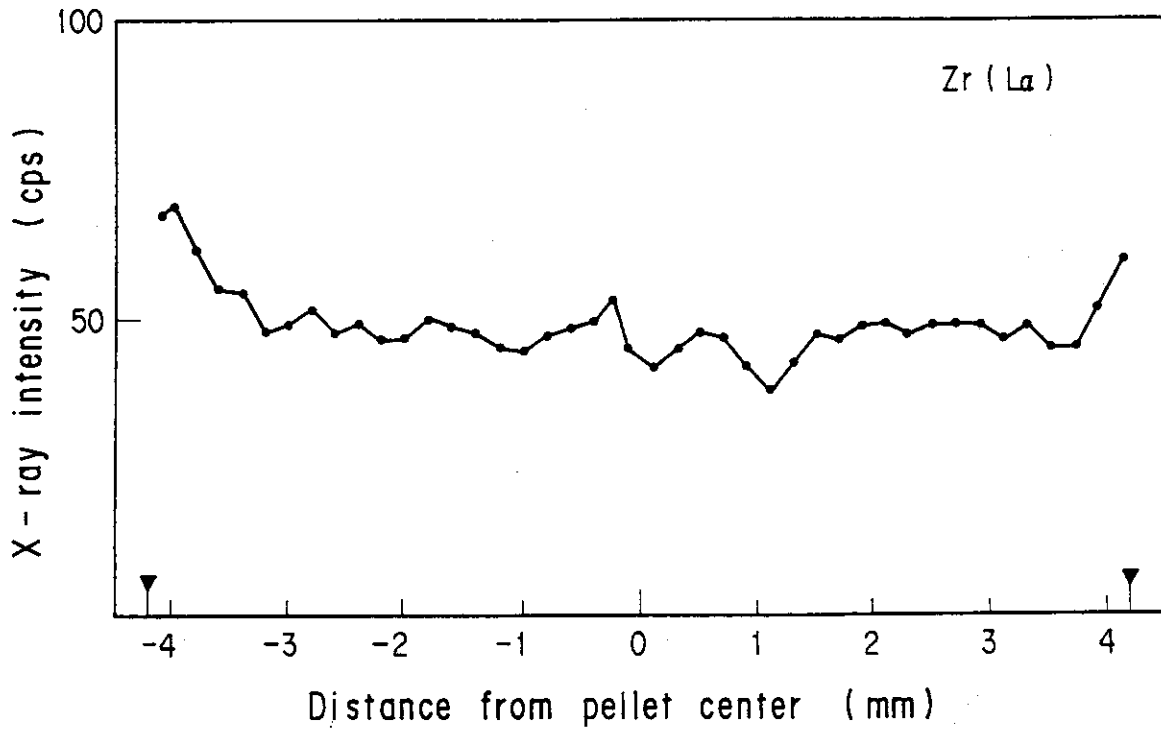


Fig. 9 Radial distribution of zirconium in irradiated mixed carbide pellet.

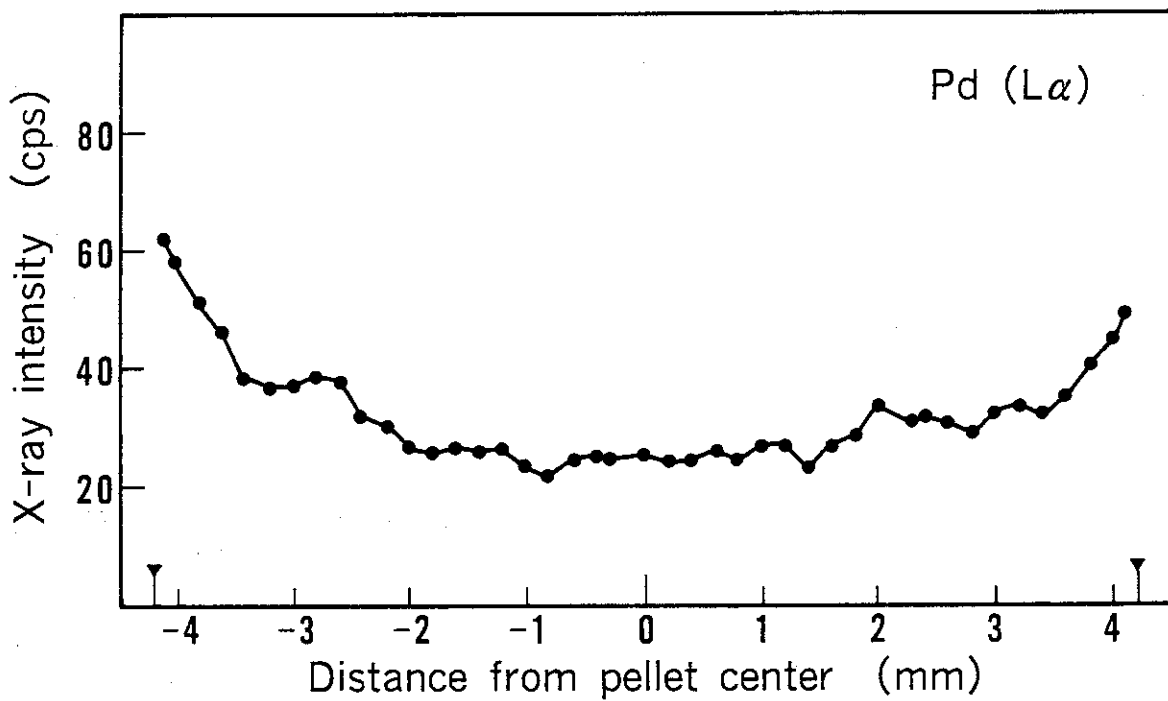


Fig. 10 Radial distribution of palladium in irradiated mixed carbide pellet.

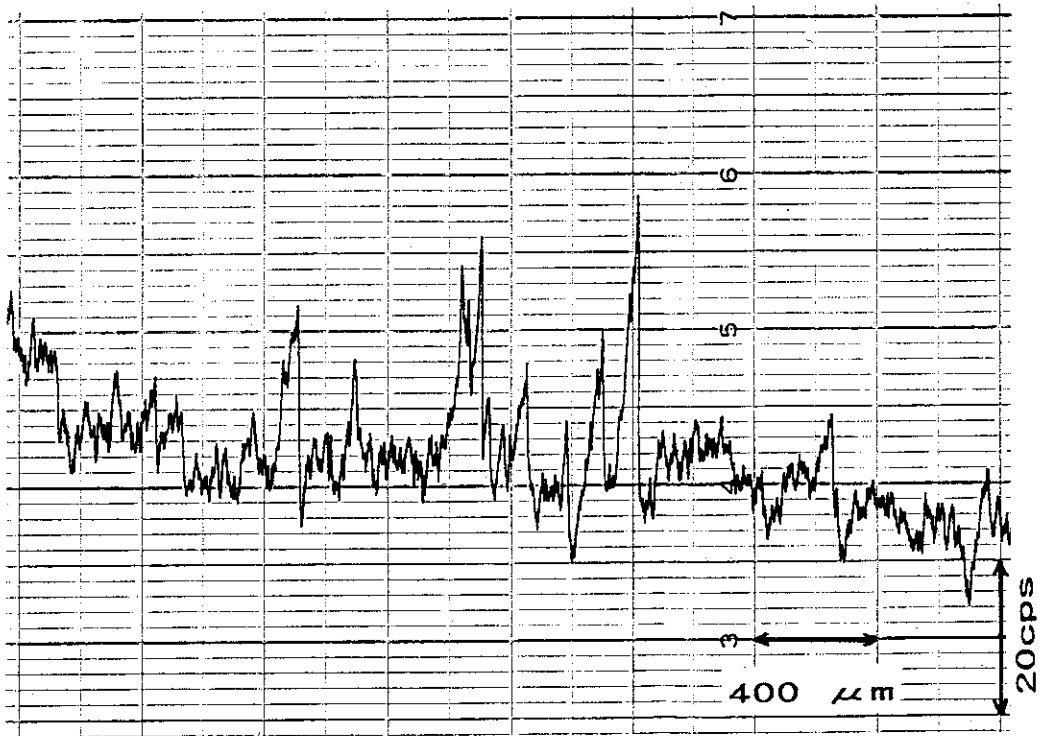


Fig. 11 Segregation of palladium in irradiated mixed carbide pellet; line scan.

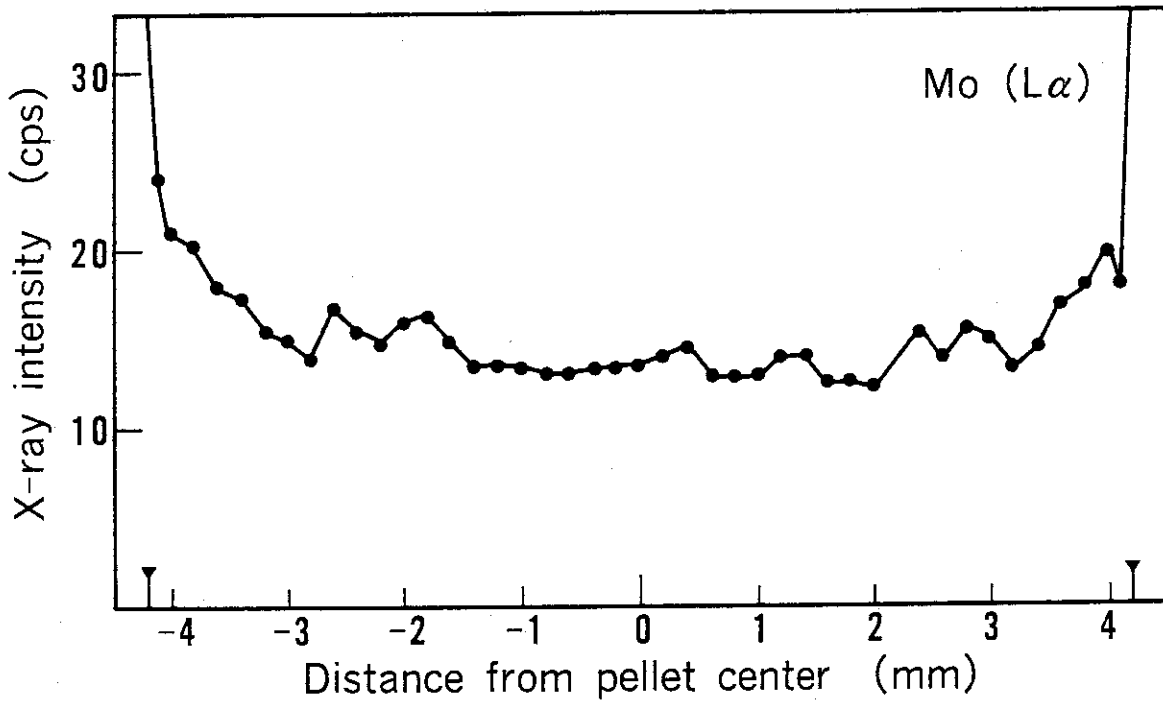


Fig. 12 Radial distribution of molybdenum in irradiated mixed carbide pellet.

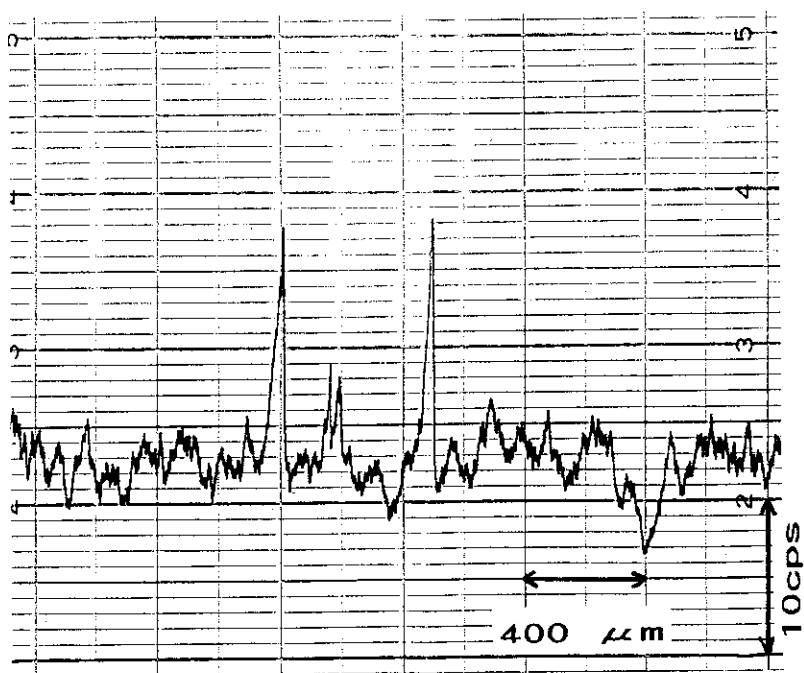


Fig. 13 Segregation of molybdenum in irradiated mixed carbide; line scan.

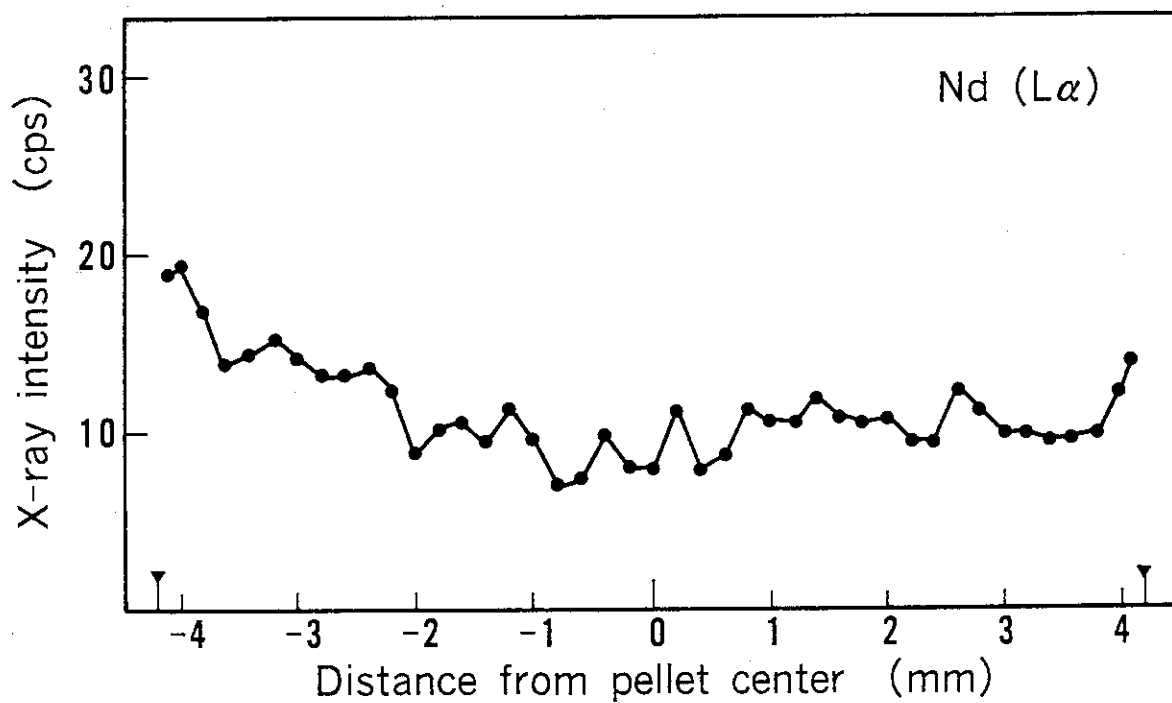


Fig. 14 Radial distribution of neodymium in irradiated mixed carbide pellet.

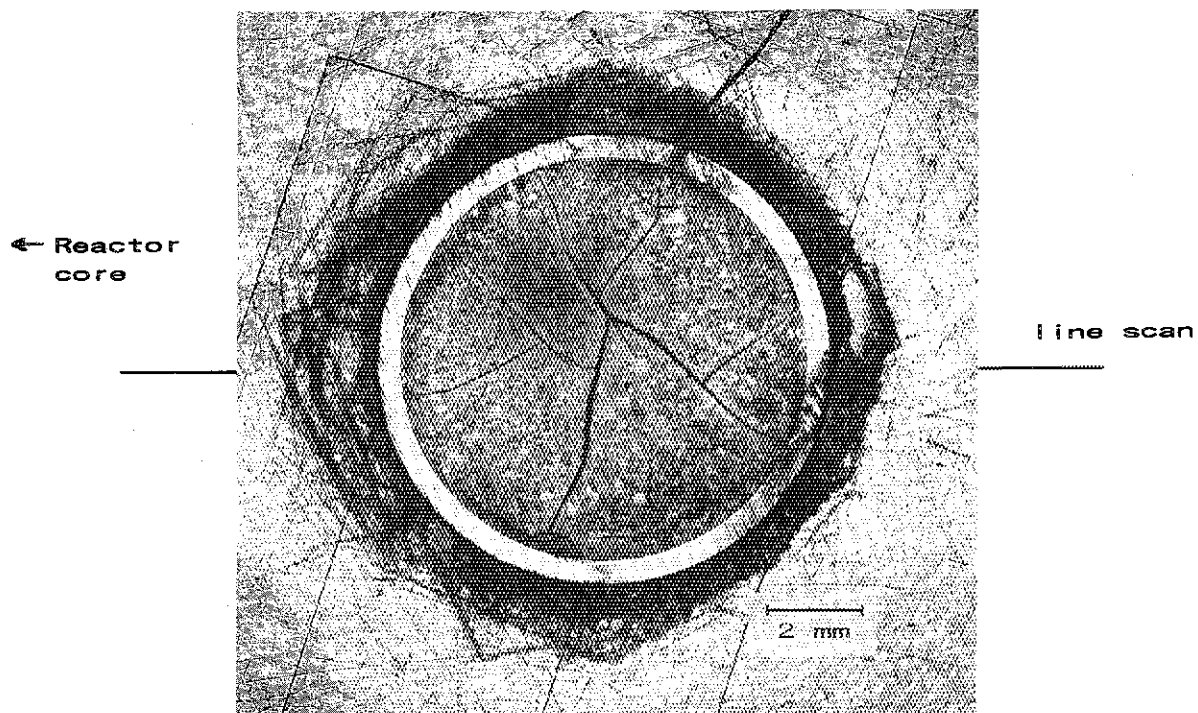


Photo. 1 Microphotograph of mixed carbide pellet irradiated up to 3%FIMA in JMTR.

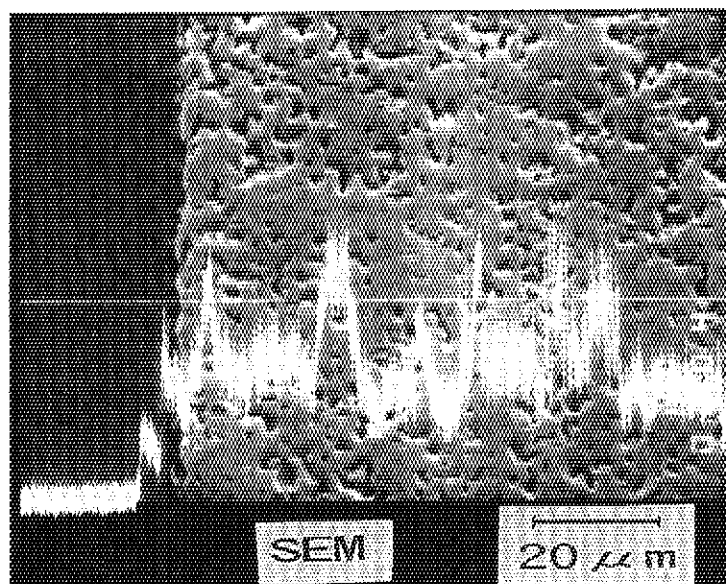


Photo. 2 Plutonium segregation in irradiated mixed carbide pellet; line scan for Pu.

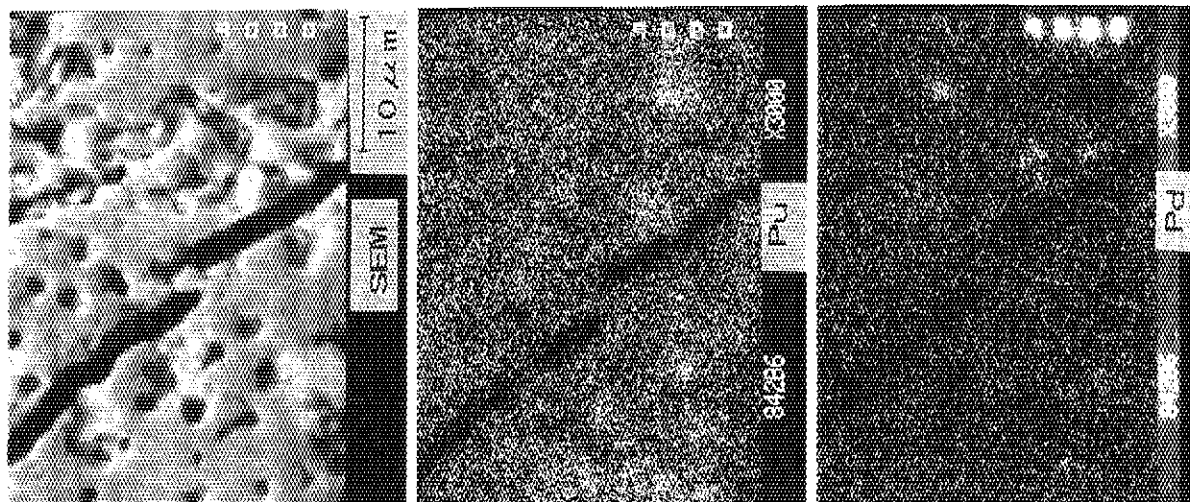


Photo. 4 XMA image of characteristic X-ray of plutonium and palladium in irradiated mixed carbide pellet.

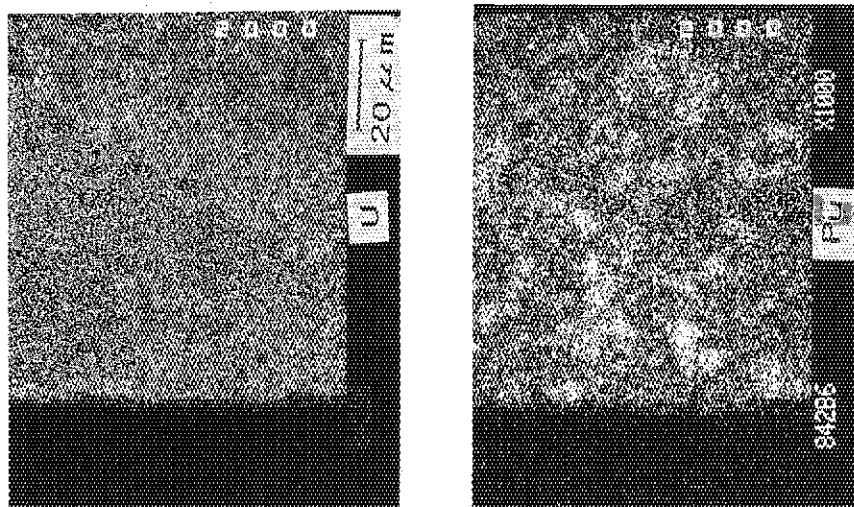


Photo. 3 XMA image of characteristic X-ray of uranium and plutonium in irradiated mixed carbide pellet.

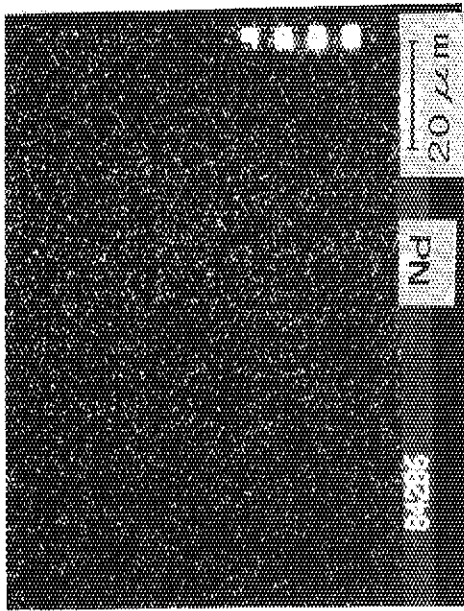


Photo. 6 XMA image of characteristic X-ray of neodymium showing homogeneous distribution.

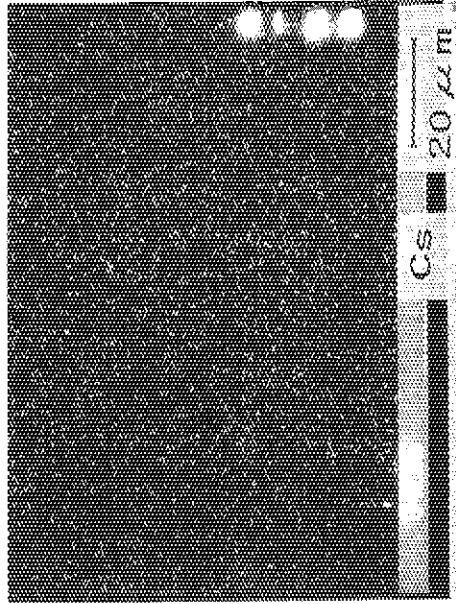


Photo. 7 XMA image of characteristic X-ray of cesium showing homogeneous distribution.

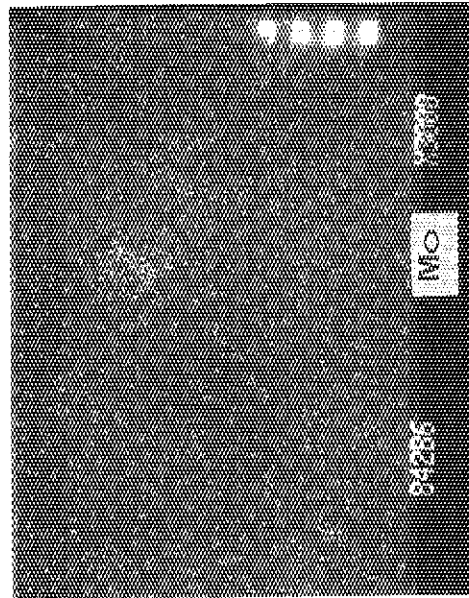
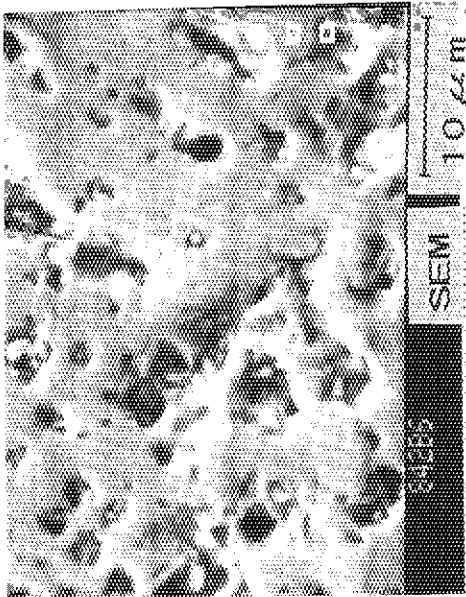


Photo. 5 XMA image of characteristic X-ray showing segregation of molybdenum.