

JAERI - M
93-121

キャプセル照射用U-Si、U-Me (Me=Fe, Ni, Mn)系
A 1 分散型板状燃料(ミニプレート)の調製

1993 年 6 月

宇賀神光弘・伊藤 昭憲・赤堀 光雄

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）で複写による実費領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, 1993

編集兼発行	日本原子力研究所
印刷	いばらき印刷(株)

キャプセル照射用U-Si, U-Me (Me=Fe, Ni, Mn)系Al分散型
板状燃料(ミニプレート)の調製

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部
宇賀神光弘・伊藤 昭憲・赤堀 光雄

(1993年5月10日受理)

キャプセル照射用ウランシリサイド系燃料の調製について、調製ラインの新設・整備、調製法、最終製品の詳細について記述した。

シリサイド系1体目のJMTRキャプセル(88F-2A)及び2体目のキャプセル(89F-1A)に装荷された実験室規模のアルミニウム分散型板状燃料(ミニプレート)を主な対象としている。

キャプセルに装荷された燃料は、次の通りである。

(A) ウランシリサイド系合金

U_3Si_2 , Mo添加 U_3Si_2 , $U_3Si_2+U_3Si$, U_3Si_2+USi
 U_3Si , $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$, $U_3(Si_{0.6}Ge_{0.4})$

(B) より高いウラン密度を有する U_6Me 系合金

U_6Mn , U_6Ni , $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$, $U_6(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$

ミニプレートの調製には粉末冶金による額縁法(ピクチャーフレーム法)を採用した。同法によるミニプレートの調製技術を確立するとともに、キャプセル照射試料としての製品検査の結果、仕様を満足するミニプレートが調製できた。

Preparation of U-Si/U-Me (Me = Fe, Ni, Mn) Aluminum-dispersion
Plate-type Fuel (Miniplates) for Capsule Irradiation

Mitsuhiro UGAJIN, Akinori ITOH and Mitsuo AKABORI

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

(Received May 10, 1993)

Details of equipment installed, method adopted and final products were described on the preparation of uranium silicides and other fuels for capsule irradiation.

Main emphasis was placed on the preparation of laboratory-scale aluminum-dispersion plate-type fuel (miniplates) loaded to the first and second JMTR silicide capsules.

Fuels contained in the capsules are as follows:

(A) uranium-silicide base alloys

U_3Si_2 , Mo-added U_3Si_2 , $U_3Si_2+U_3Si$, U_3Si_2+USi ,
 U_3Si , $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$, $U_3(Si_{0.6}Ge_{0.4})$

(B) U_6Me -type alloys with higher uranium density

U_6Mn , U_6Ni , $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$, $U_6(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$

The powder-metallurgical picture-frame method was adopted and laboratory-scale technique was established for the preparation of miniplates. As a result of inspection for capsule irradiation, miniplates were prepared to meet the requirements of specification.

Keywords: Silicide, Plate-type Fuel, Preparation, Alloy, Uranium Density, Uranium, Aluminum, Manganese, Iron, Nickel, Molybdenum

目 次

1. 緒論	1
2. 核燃料としてのU合金系の相平衡	3
2.1 U-Si系とU-Si-Al系：燃料の特性	3
2.2 U-Mn系, U-Fe系とU-Ni系	4
3. 調製ラインの新設・整備	11
3.1 アーク溶解炉	11
3.2 燃料・アルミニウム粉末取扱用グローブボックス	11
3.3 グローブボックス内装機器	12
3.4 半自動溶接機	12
3.5 小型圧延機	13
3.6 その他の機器	13
4. ミニプレートの調製とその例	20
4.1 調製フローシートとそれぞれの工程	20
4.2 Al分散型 U_3Si_2 ミニプレートの調製例	25
5. キャプセル照射用ミニプレートの調製	32
5.1 キャプセル88F-2A用の燃料試料	32
5.2 キャプセル89F-1A用の燃料試料	46
6. 結論	60
謝 辞	61
参考文献	62
付録 調製ラインの各機器の主な仕様・性能	64

Contents

1. Introduction	1
2. Phase Equilibria of Uranium Alloys as Nuclear Fuel	3
2.1 U - Si and U - Si - Al Systems: Fuel Properties	3
2.2 U - Mn, U - Fe and U - Ni Systems	4
3. Installation of Equipment for Fuel Preparation	11
3.1 Arc Furnace	11
3.2 Glove Box for Handling Fuel/Aluminum Powders	11
3.3 Equipment Installed in Glove Box	12
3.4 Semi-automatic Welding Machine	12
3.5 Small Rolling Mill	13
3.6 Other Equipment	13
4. Preparation of Miniplates and its Example	20
4.1 Preparation Flow-sheet and Details of Each Process	20
4.2 An Example of U_3Si_2 -Al Miniplate Prepared	25
5. Preparation of Miniplates for Capsule Irradiation	32
5.1 Fuel Samples Loaded into 88F - 2A Capsule	32
5.2 Fuel Samples Loaded into 89F - 1A Capsule	46
6. Conclusions	60
Acknowledgments	61
References	62
Appendix Main Specification and Features of Equipment	
Installed for Fuel Preparation Line	64

1. 緒 論

原研 燃料開発研究室（現融体・燃料プロセス研究室）では、1988年4月（昭和63年4月）から、“合金燃料に関する研究”というテーマ名の中で、高ウラン密度合金燃料に関する研究がスタートした。

1989年3月末までに、研究内容の検討に引き続き、必要なすべての実験装置の整備を終了した。1988年11月末には、金属ウランとシリコンとのアーク溶解による合金化によって、シリサイド燃料の実験を開始した。

研究の目標は、ウラン シリサイド等各種のU合金燃料の炉外特性・原子炉内挙動を把握し、高ウラン密度化並びに高燃焼度化によって燃料の性能を向上させることにある。従って、在来型の燃料の改良と同時に、新燃料の探索的研究を行う事を目的としている。研究項目として、以下の項目が設定された。

- (I) U_3Si_2 等U-Si合金の他ウラン密度のより高い合金試料の自家調製
- (II) U系合金の相平衡・相安定性、アルミニウムとの共存性等の特性研究
- (III) キャプセル照射による高燃焼度下における燃料ふるまいの究明

従来、多くの試験・研究炉で、ウラン アルミナイド UAl_x 燃料^(1,2)が中・高濃縮ウラン燃料として使用されてきた（ $x \sim 3.0$ で、主成分 UAl_3 の他、 UAl_4 、 UAl_2 を含む）。

現在では、燃料のウラン濃縮度を低減化させる（ $^{235}U < 20\%$ ）という核不拡散上の要請から、よりウラン密度の高い燃料の開発が進められている。すなわち、中・高濃縮ウランを使用している試験・研究炉の燃料を、炉の性能を維持しつつ燃料要素の寸法・形状を大幅に変更せず低濃縮ウランに切り換えるには、燃料のウラン密度を高くする必要がある。

U_3Si_2 をベースとするシリサイド燃料は、高燃焼度における照射安定性、アルミニウムとの共存性の他、燃料サイクル上必須である再処理性の良好なことが示され、研究炉の次世代燃料として実用化の段階にある⁽³⁾。

最近では、 U_3Si_2 燃料を利用するANS（Advanced Neutron Source）炉の建設という新しいプロジェクトが、米国ORNLで強力に推進されようとしている。

U_3Si_2 のマクロ的な燃料挙動については、その実体が把握されているけれども、基礎的な面での特性解析、データベース量は必ずしも十分ではない。

また、より高中性子束を狙った将来の試験・研究炉燃料の開発には、 U_3Si_2 よりも高いウラン密度を有する合金燃料の開発が必要である。

これらの理由から、研究対象として、 U_3Si_2 、 U_3Si 、Mo添加 U_3Si_2 、 $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$ 、 $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.4})$ 等のウランシリサイド系合金及びより高いウラン密度を有する U_6Me 系合金 すなわち U_6Mn 、 U_6Ni 、 $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ 、 $U_6(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$ をとりあげた。

キャプセル照射用ウランシリサイド系燃料の調製については、既にその概要を報告しているが^(4,5)、ここでは調製ラインの新設・整備、調製法、最終製品の詳細について記述することを主な目的とした。実験室規模のアルミニウム分散型板状燃料（ミニプレ

ート)の調製に力点を置いているが、核燃料挙動を把握する上で重要なウラン合金系の相平衡等についてもふれた。ミニプレートの調製法として、著者らは粉末冶金による額縁法^(8, 9, 7)(ピクチャーフレーム法)を採用した。合計14枚のミニプレートが、上記(Ⅲ)の研究目標にそって調製され、シリサイド系1体目のキャプセル(88F-2A)及び2体目のキャプセル(89F-1A)に装荷されJMT Rで照射された。

2. 核燃料としてのU合金系の相平衡

本実験で取上げた高密度ウラン燃料の調製プロセス及びその冶金学的特性は、関連する物質系の相平衡に依存するので、本論に入る前にそれぞれについて状態図を基にその概要を述べる。

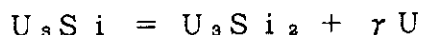
2.1 U-Si系とU-Si-Al系： 燃料の特性

U-Si系の状態図^(8,9)をFig. 1に、U-Al系の状態図⁽⁹⁾をFig. 2に、またウランシリサイド系化合物の主な性質をアルミナイドと比較して、Table 1に示す⁽¹⁰⁻¹²⁾。

現在、研究炉用分散型板状燃料として実用化の段階にあるシリサイドは、 U_3Si_2 （正方晶）である。1665℃で熔融を起こす迄、状態図上では一本の線（Si=7.3 wt%）で表される。このように、 U_3Si_2 は組成に幅がないのが特徴である。そのためアーク溶解のままでは、不純物相として、USi、 U_3Si 、あるいは金属ウラン（U固溶体）が含まれる場合がある。通常、金属ウランの存在は、照射下でスエリングを起こし好ましくないとされている。しかし、 U_3Si_2 -Al分散型板状燃料では、少量の金属ウランは、後述する熱間圧延あるいは照射の過程で耐照射性を有するUAl₃に変換されるので、スエリング上特に問題とはならないとされている⁽³⁾。

実際の燃料製造でのSi含有量の許容範囲は、メーカーの燃料コンセプトにより異なるが、例えば、Si=7.4-7.9wt%である。実験試料としての U_3Si_2 の調製では、 7.4 ± 0.1 wt%を目標としている例がある（この場合、結晶粒界に微量のUSiを含む可能性がある）。

一方、 U_3Si （Si=3.78wt%，面心正方晶）は、研究炉のうちカナダのNRU炉⁽¹³⁾のように円筒状燃料として用いられる場合もある（到達燃焼度は、 U_3Si_2 に比較して低い）。Fig. 1に示すように、 U_3Si には、930℃で U_3Si_2 とUとに分解する包析反応



が存在する。それ故、純粋な U_3Si を得るには、アーク（又は高周波）溶解した試料を、800℃程度で焼鈍して非平衡の U_3Si_2 及びU相を除去する必要がある（Fig. 3）。

USi（Si=10.6 wt%）は、照射安定性は良いが⁽³⁾ウラン密度が低い。従って、ウラン密度を上げると言う点で好ましくないので、 U_3Si_2 燃料では、USiの含有量は10~20%程度以下に限定される。

U-Si-Al 3元系における相平衡に関しては、Dwight による400℃での状態図⁽¹⁴⁾をFig. 4に示す。これによれば、 U_3Si_2 -Al、 U_3Si -Alの間に、共役線は存在しない。従って、平衡状態では、 U_3Si_2 と U_3Si はそれぞれアルミニウムとは共存し得ないことを示している。しかしながら、板状燃料を使用する研究炉の通常運転条件（燃料中心温度<約200℃）及び燃料寿命の時間間隔（約1600時間）では、シリサイドとアルミニウムは見掛け上安定して存在する。原子炉内では照射促進拡散によって、シリサイド粒子の周縁の、アルミニウムに対するFPのリコイル領域内に反応層が観察される。しかし、反応層は、通常数 μm （<10 μm ）の幅に限定されてお

り、板状燃料の寸法安定性の点で問題とはならない^(3, 16)。

シリサイドとアルミニウムとの共存性^(6, 18-19)は、原子炉内での照射健全性（特に異常高温における）だけでなく燃料板の製造過程での熱処理条件（例えば、後に述べる熱間圧延時の温度・時間）等の設定に重要な意味を持つことが分る。

2.2 U-Mn系、U-Fe系とU-Ni系

Figs. 5～7に U-Mn、U-FeとU-Ni各系の状態図を示す⁽⁹⁾。核燃料として注目されるのは、 U_3Fe 、 U_3Mn 、 U_3Ni であり、何れも正方晶構造を有する。

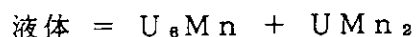
合金中のウラン密度は、 $U_3Si \sim 14.9$ 、 $U_3Si_2 \sim 11.3$ gU/cm³ に対して、 U_3Me では ~ 17.0 gU/cm³ である。ここで、MeはFe、Ni、Mnを指す。本実験で調製した燃料組成は、 U_3Mn 、 U_3Ni 、 $U_3(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ 、 $U_3(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$ である。

調製燃料のうち、 U_3Mn の冶金学的性質について、包晶反応の金属組織学上の反応メカニズム、X線回折による結晶構造の解析（ U_3Fe と同型の結晶構造：JCPDS 15-145相当）、化合物密度の測定等を行なった。

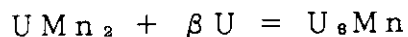
Fig. 5から分るように、 U_3Mn の726℃における包晶反応は次式で示される。



この包晶液は716℃において、次の共晶反応を起こす。



従って、 U_3Mn 組成を高温から急冷すると、見掛け上、次の反応



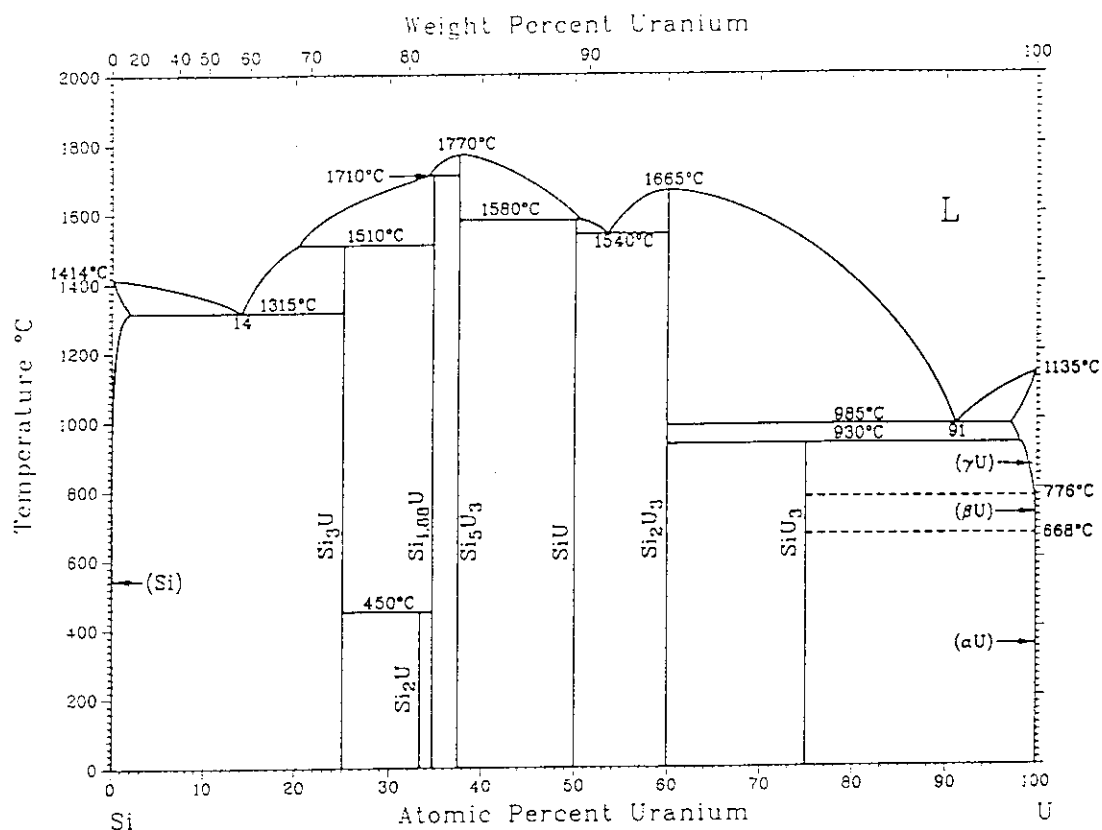
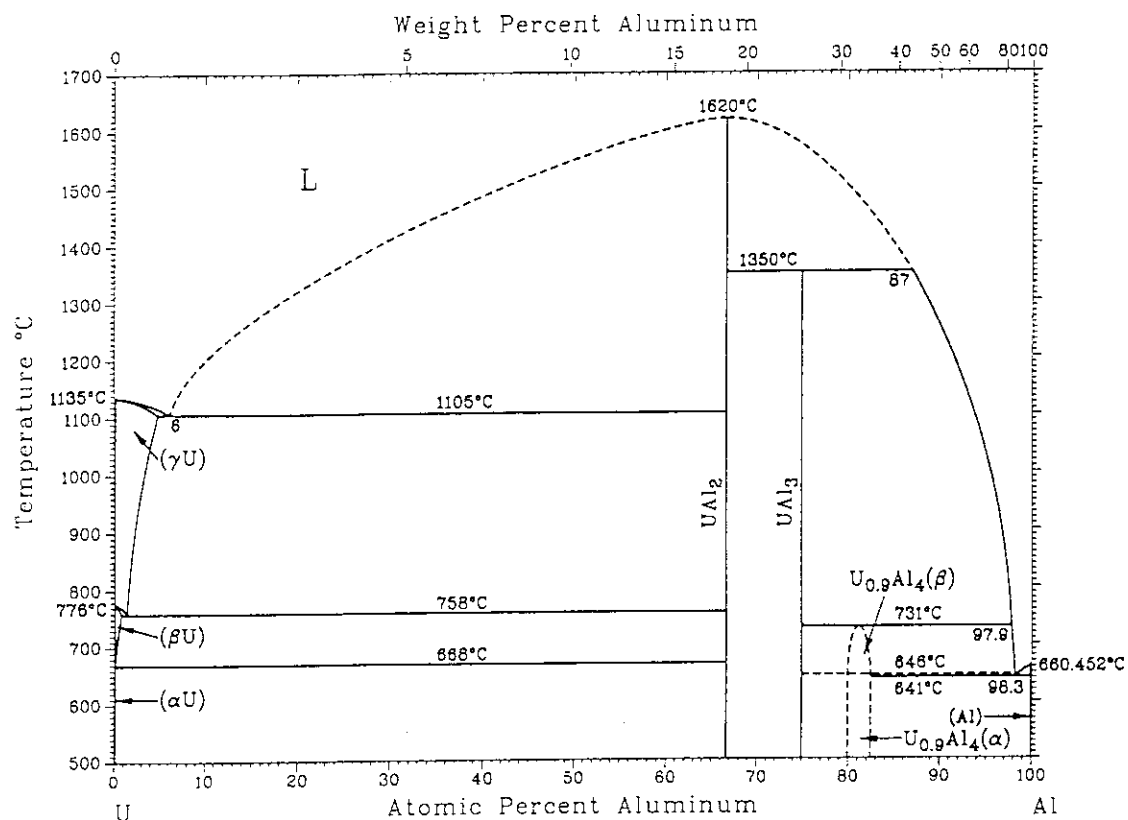
が生じ室温では、 UMn_2 とUとが非平衡で存在する（Fig. 8、①）。これを670℃で5日間アニールすると、ほぼ単相の U_3Mn 合金が得られる（Fig. 8、②③）。

U_3Fe 及び U_3Ni とも、 U_3Mn と同様な挙動を示すことが平衡状態図から示唆される。また、これらの合金は本実験で調製した組成範囲で、 U_3Me 型の固溶体を形成することが分った。

U_3Me 系合金は、 U_3Si とは対照的に室温で脆性破壊し易く粉末化が容易である。この特性は、後述するように、 U_3Me-A1 分散型燃料の製作に極めて有利な点となる。

Table 1 ウランシリサイドとアルミナイド燃料の基礎的性質

	U_3Si_2	U_3Si	U_3Si_2/Al	UAl_3	UAl_x/Al	Al
化合物密度 (g/cm^3)	12.2	15.58	6.5	6.8	3.95	2.7
U 密度 (gU/cm^3)	11.31	14.98	4.8	5.08	2.3	--
融点 ($^{\circ}C$)	1665	985	650	1350		660
包析温度 ($^{\circ}C$)		930				
熱伝導度 ($W/m \cdot K$) ($\sim 130^{\circ}C$)	~ 40.0	~ 15.0	40 (30-60)		20-54	220
比熱 ($cal/mol \cdot K$)	35.5	30.0		25.3	--	
生成自由エネルギー ($kcal/mol, 400^{\circ}C$)	-42.3	---		-24.9		

Fig. 1 U-Si系の平衡状態図^(8, 9)Fig. 2 U-Al系の平衡状態図⁽⁹⁾

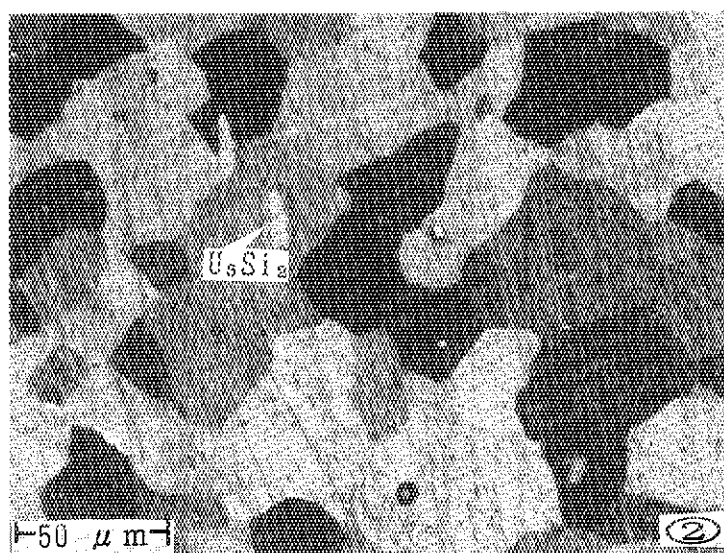
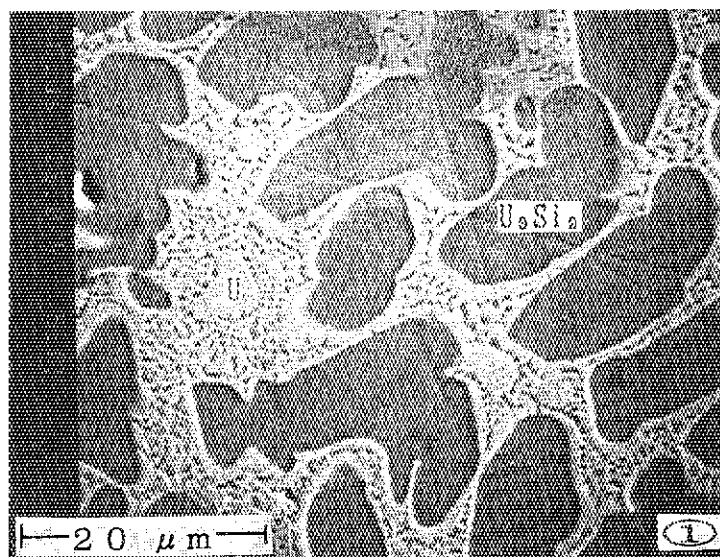
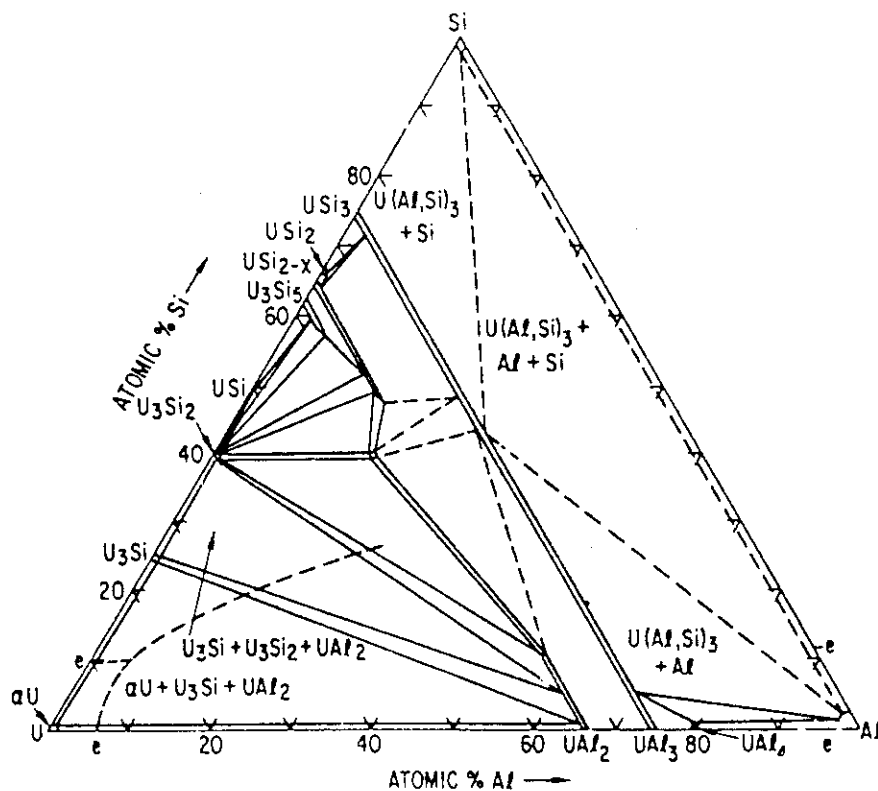
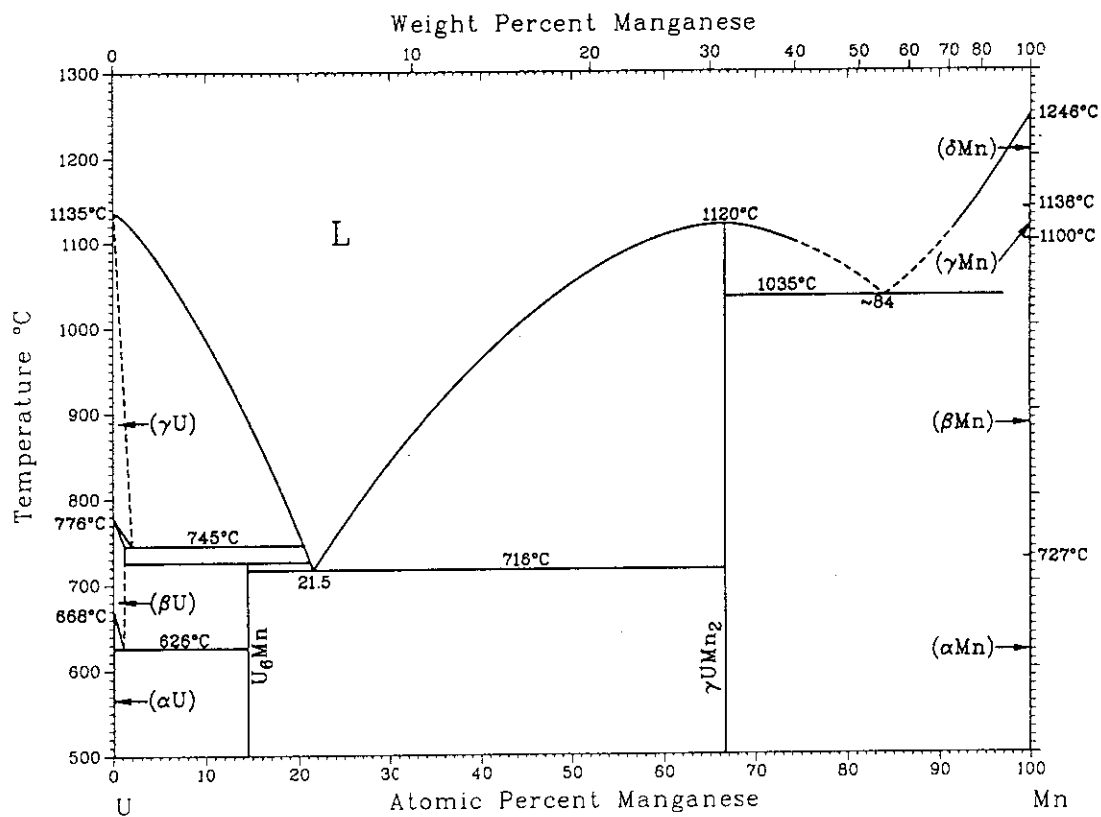


Fig. 3 U_3Si の包析反応 : $U_3Si = U_3Si_2 + \gamma U$

- ① アーク溶解のまま（反射電子線像） : $U_3Si_2 + U$
- ② アーク溶解試料を850℃で2日間加熱 :
 U_3Si （微量の U_3Si_2 を含む）

Fig. 4 U-Si-Al系における相平衡 (400°C) ⁽¹⁴⁾Fig. 5 U-Mn系の平衡状態図 ⁽⁹⁾

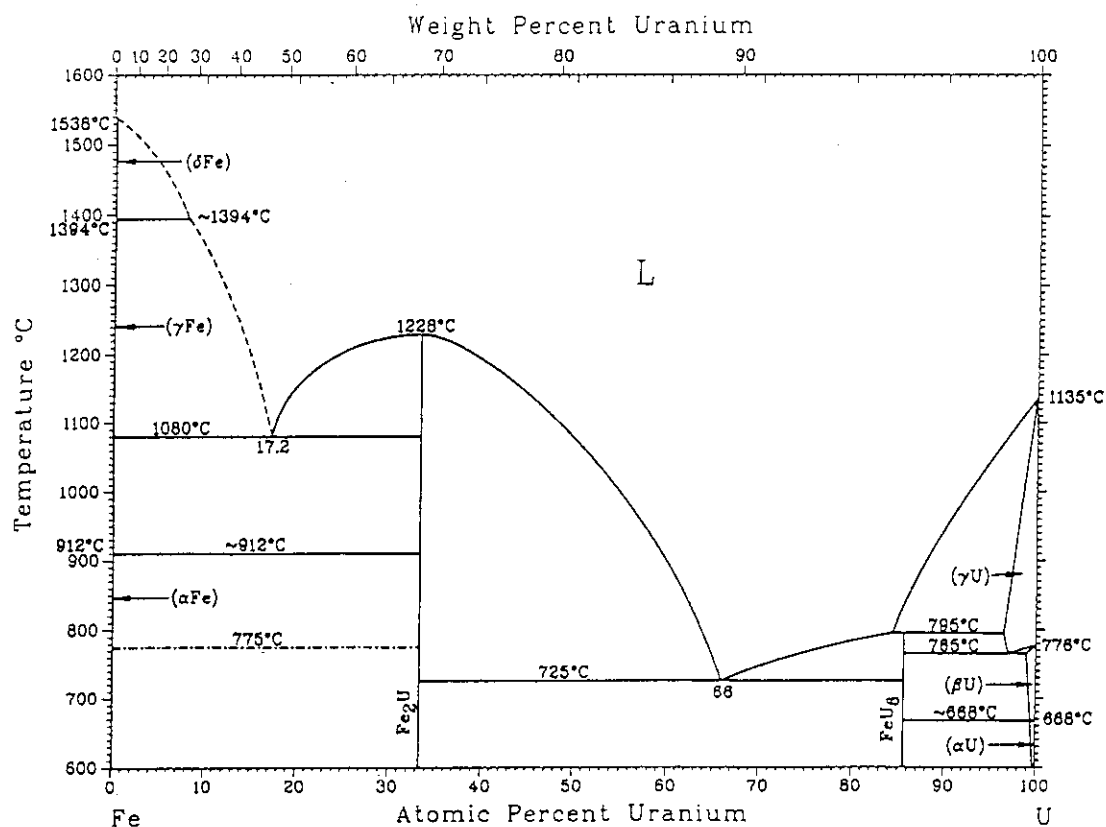
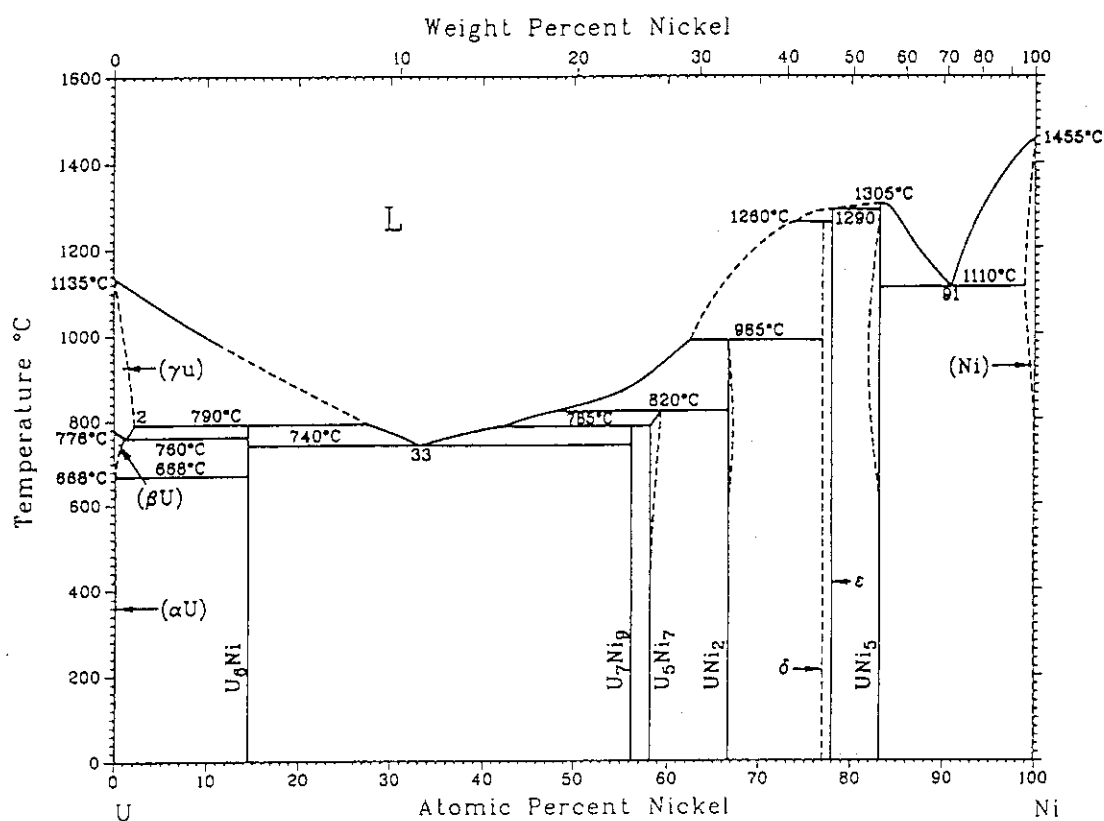
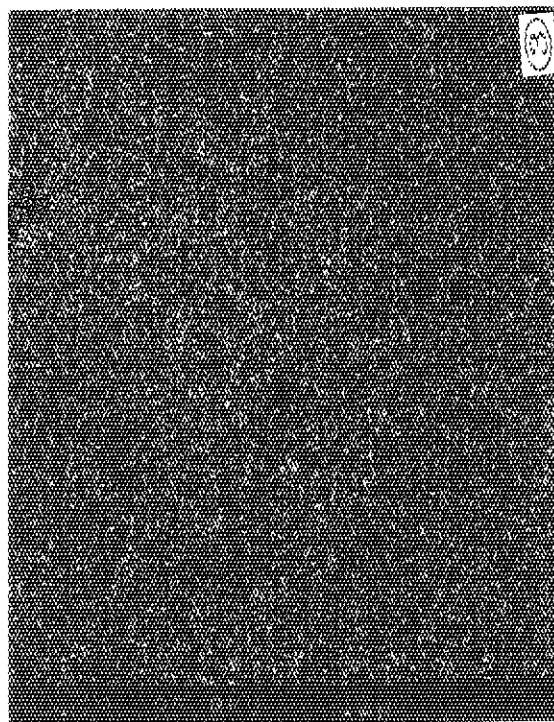
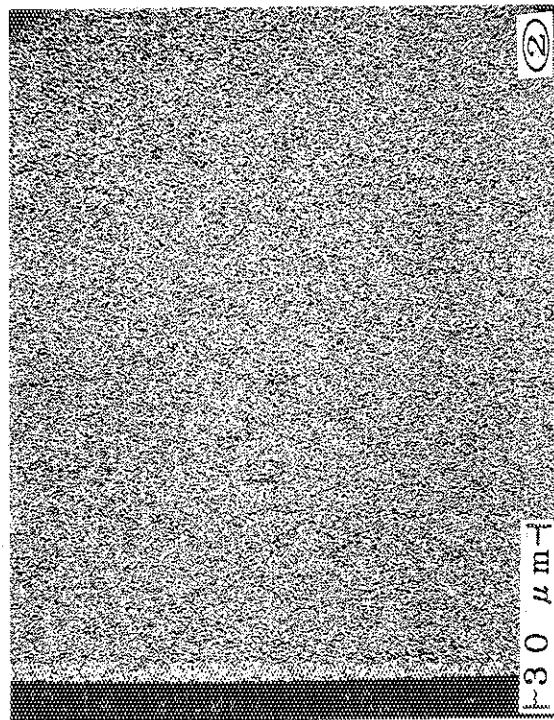
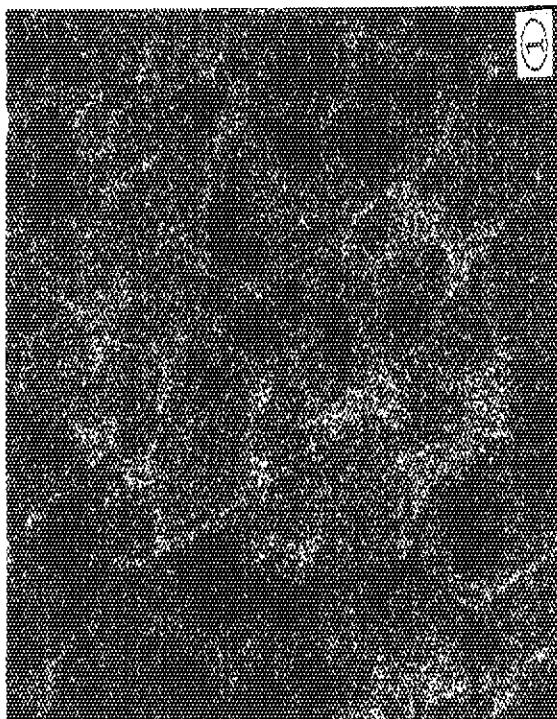
Fig. 6 U-Fe系の平衡状態図⁽⁹⁾Fig. 7 U-Ni系の平衡状態図⁽⁹⁾

Fig. 8 U_6Mn の見掛けの包析反応: $U_6Mn = UMn_2 + U$
 ① U_6Mn 合金 (アーク溶解のまま) の
 EPMA Mn特性X線像: $UMn_2 + U + U_6Mn$
 ② EPMA U特性X線像 (熱処理後): U_6Mn
 ③ EPMA Mn特性X線像 (熱処理後): U_6Mn



3. 調製ラインの新設・整備

本研究室に設置済みの燃料試料調製ラインは、アーク溶解炉、アルゴンガス循環・精製装置付の燃料・アルミニウム粉末取扱用グローブボックス（水分・酸素分析計及びその内装機器として粉碎機、V字型混合器、燃料コンパクト成型用プレス等を含む）、半自動溶接機、小型圧延機、X線透過装置等から構成されている。

原研・材料試験炉 J M T R で使用されるような実用規模の燃料板は、厚みが約 1.3 mm であり、板の長さとは幅はそれぞれ約 780 mm、70 mm である。また、後述する燃料ミート（芯材とも言う）については、その厚みは約 0.5 mm で、幅は約 62 mm である。

本実験で調製したミニプレートは、厚みが約 1.3～1.4 mm であり、長さとは幅はそれぞれ約 30 mm、20 mm である。燃料ミートの厚みは、約 0.5～0.7 mm であり、幅は約 3.3 mm ある。このように、板の厚み方向の寸法は、フルサイズの燃料板と同様となるよう模擬性に留意した。

なお、試料のキャラクタリゼーション用機器として、X線マイクロアナライザー（E P M A）、X線回折装置（マイクロディフラクトメーター付）、走査電子顕微鏡（S E M）及び光学顕微鏡等が設置されている。

以下に調製ラインの各機器について、その用途・特徴等について述べる（仕様の詳細、性能については、付録を参照されたい）。

3.1 アーク溶解炉

金属ウラン、シリコンとその他の燃料構成元素を原料として、目的とするウラン合金（ボタン状試料）をアーク溶解によって調製する。アーク溶解炉の外観写真を Fig. 9 に示す。

3.2 燃料・アルミニウム粉末取扱用グローブボックス

粉末状の A l 及び U - S i、U₃M e 合金は活性であり、室温下でも空気中では、酸素又は水分との反応または吸蔵が起こると予測される。従って、照射用試料調製工程のうち、粉末を取扱う合金燃料の粗・微粉碎、燃料粉末の分級、秤量、アルミニウム粉末との混合及び燃料コンパクトの加圧成形の各工程は、不活性雰囲気中で行う必要がある。

このため、グローブボックスの雰囲気として、アルゴンガスを循環させ、その不純物除去用に精製装置を循環系に付加した。グローブボックスの外観写真を Fig. 10 に示す。グローブボックスは、片面操作型で、操作性を考慮しアクリル窓面を後に若干傾斜させた形式となっている。

グローブボックス本体の概形を Fig. 11 に、配管系統を Fig. 12 に示す。アルゴンガス循環精製装置のプロワー能力が大き過ぎるので、グローブボックス内のアルゴンガス流量を調節するためバイパス回路を設けている。

3.3 グローブボックス内装機器

グローブボックス内装機器には、国内外の市販品の中から最もコンパクトな型式のものを選んだ。なお、成形プレスは、加圧部と油圧ポンプ・操作盤が一体であった標準品を分離型に設計変更し、加圧部のみをグローブボックス内に設置した。

(1) ジョークラッシャー

アーク溶解で調製されたボタン状の合金燃料を粗粉碎して、粗い粒子にするのに用いる。

(2) モルターグラインダ

粗粉碎された燃料粒子をさらに微粉碎するのに用いる。

(3) ふるい振とう器

燃料粉末を粒子サイズ毎にふるい分け（分級）するのに用いる。

(4) 電子天秤

燃料粉末やアルミニウム粉末を秤量するのに用いる。

(5) V字型混合器

燃料粉末とアルミニウム粉末とを所定の割合で混合するのに用いる。

(6) 燃料コンパクト成型用プレス

燃料粉末とアルミニウム粉末との混合物を加圧成型して、燃料コンパクトを作製するのに用いる。

3.4 半自動溶接機

A1分散型板状燃料のアセンブリー（アルミニウム合金製カバー2枚、燃料コンパクト入りフレーム1枚の合計3枚組）の周辺溶接のため不活性ガス中での溶接に用いる。半自動溶接機の外観写真をFig. 13に示す。

溶接機の溶接室を 2×10^{-5} mmHg 以下に排気し、高純度Heを充填してから溶接を行う。溶接試料は、外部から電動によって直線移動と回転が出来る。従って、ミニプレート調製の間段階で重要なアセンブリーの4辺の溶接が、1辺毎に溶接室のフランジを開閉せずに可能である。即ち、試料の溶接辺のセットは最初に一度だけすれば良く、これが本装置の特徴の一つである。また、溶接時に燃料コンパクト部分が高温にならないように、電極部治具を水冷している。溶接トーチは、試料との間隙の微調節が可能であり、また溶接室の外部から操作できる駆動モーターによりその移行（溶接）速度が調節される。

なお、本装置は燃料ピン端栓の溶接にも使用できるよう設計されている。

3.5 小型圧延機

溶接済みアセンブリーを熱間（～500℃）及び冷間で、目的とする厚みのミニプレートに圧延するのに用いる。一般に板の圧延性を考慮すると、ある程度ロール直径の大きい圧延機が望ましい⁽²⁰⁾。しかし、実験室のスペースの関係で、装置としては出来るだけ小型（装置重量230kg，幅60cm×長さ70cm×高さ120cm）の市販品（改良機）を採用した。小型圧延機の外観写真をFig. 14に示す。

3.6 その他の機器

その他の機器として、燃料ミートの寸法・結合状態・ウラン分布等を調べるためのX線透過装置がある。

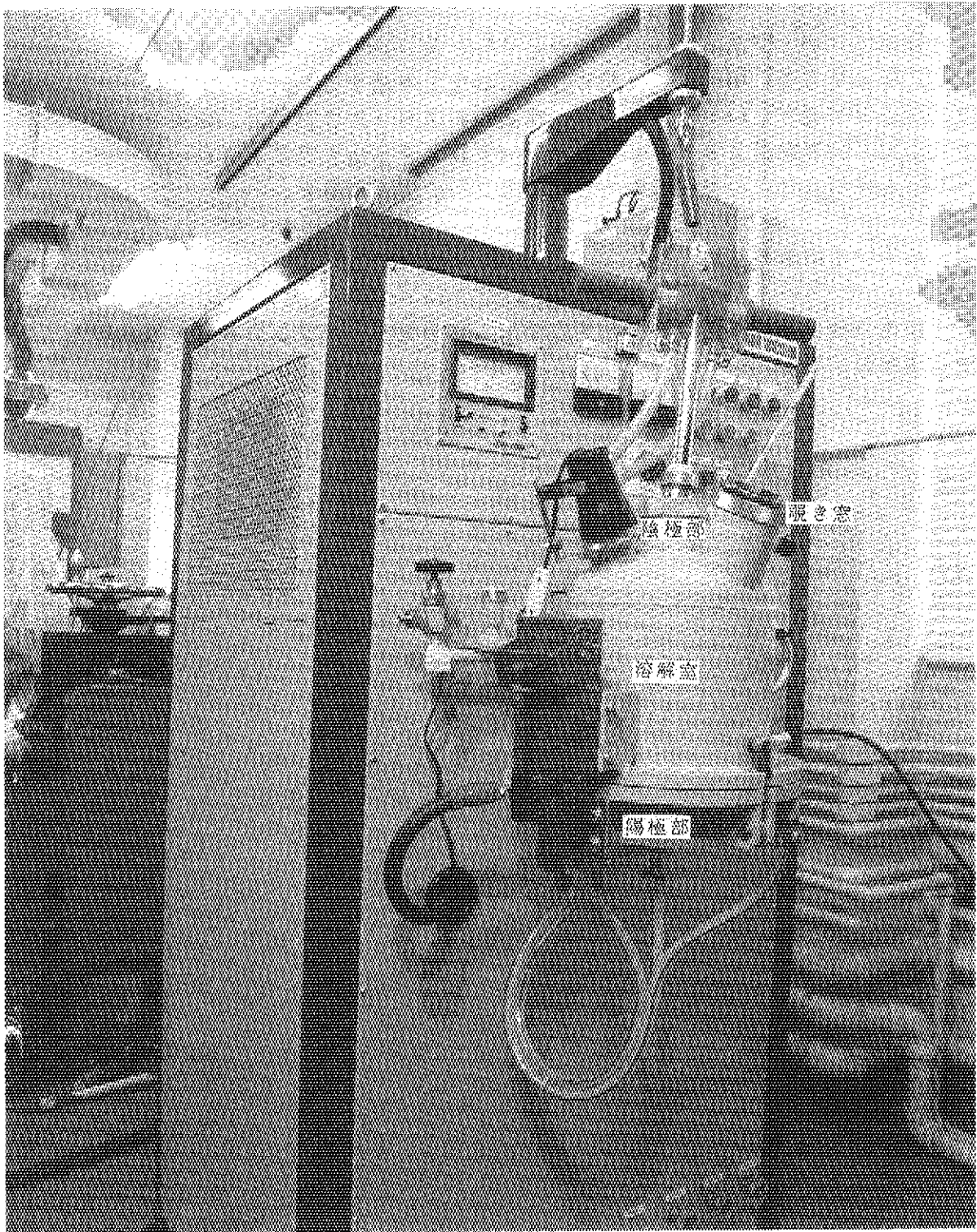


Fig. 9 燃料調製ラインの主要設備：アーク溶解炉の外観写真

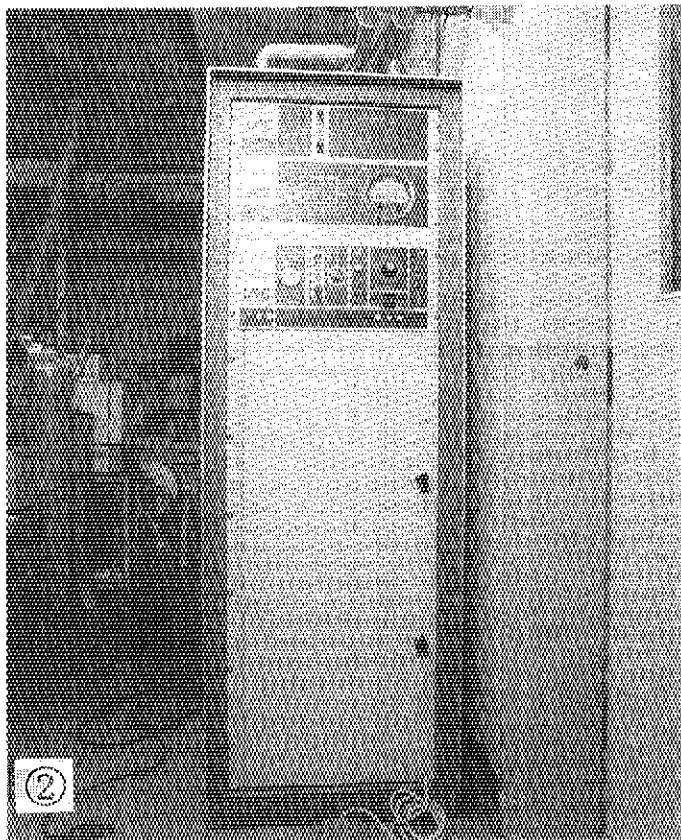
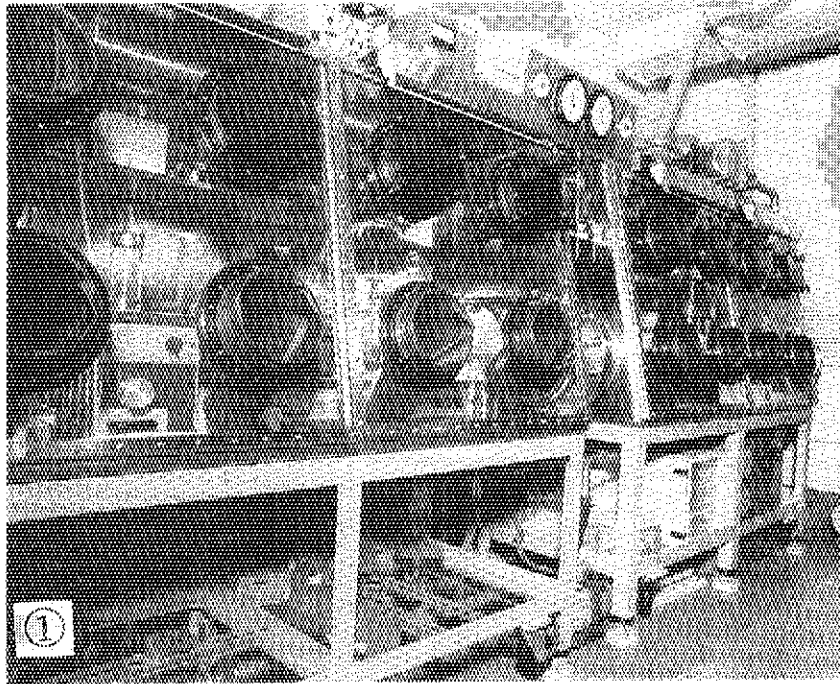


Fig. 10 燃料調製ラインの主要設備：

- ① 燃料・アルミニウム粉末取扱用グローブボックスの外観写真
- ② Arガス循環・精製装置の外観写真

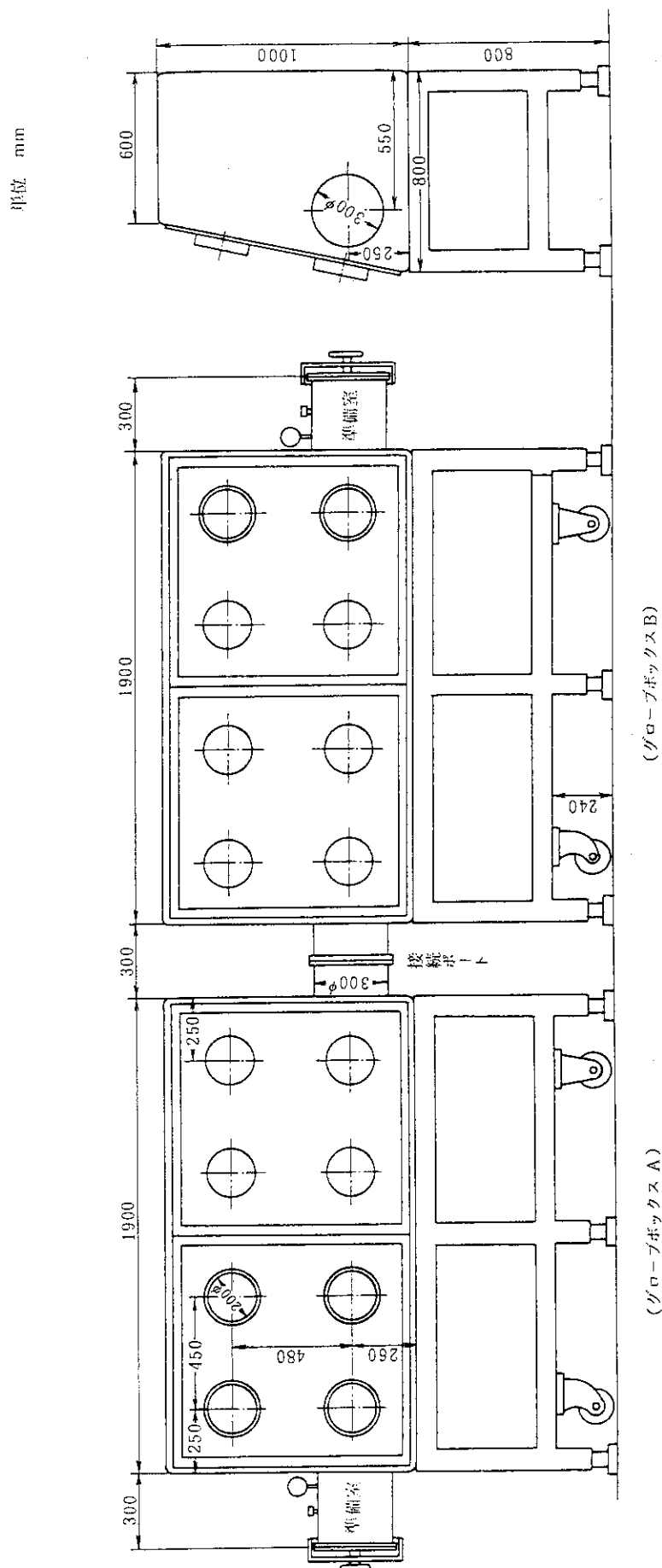


Fig. 11 グローブボックス本体の概形

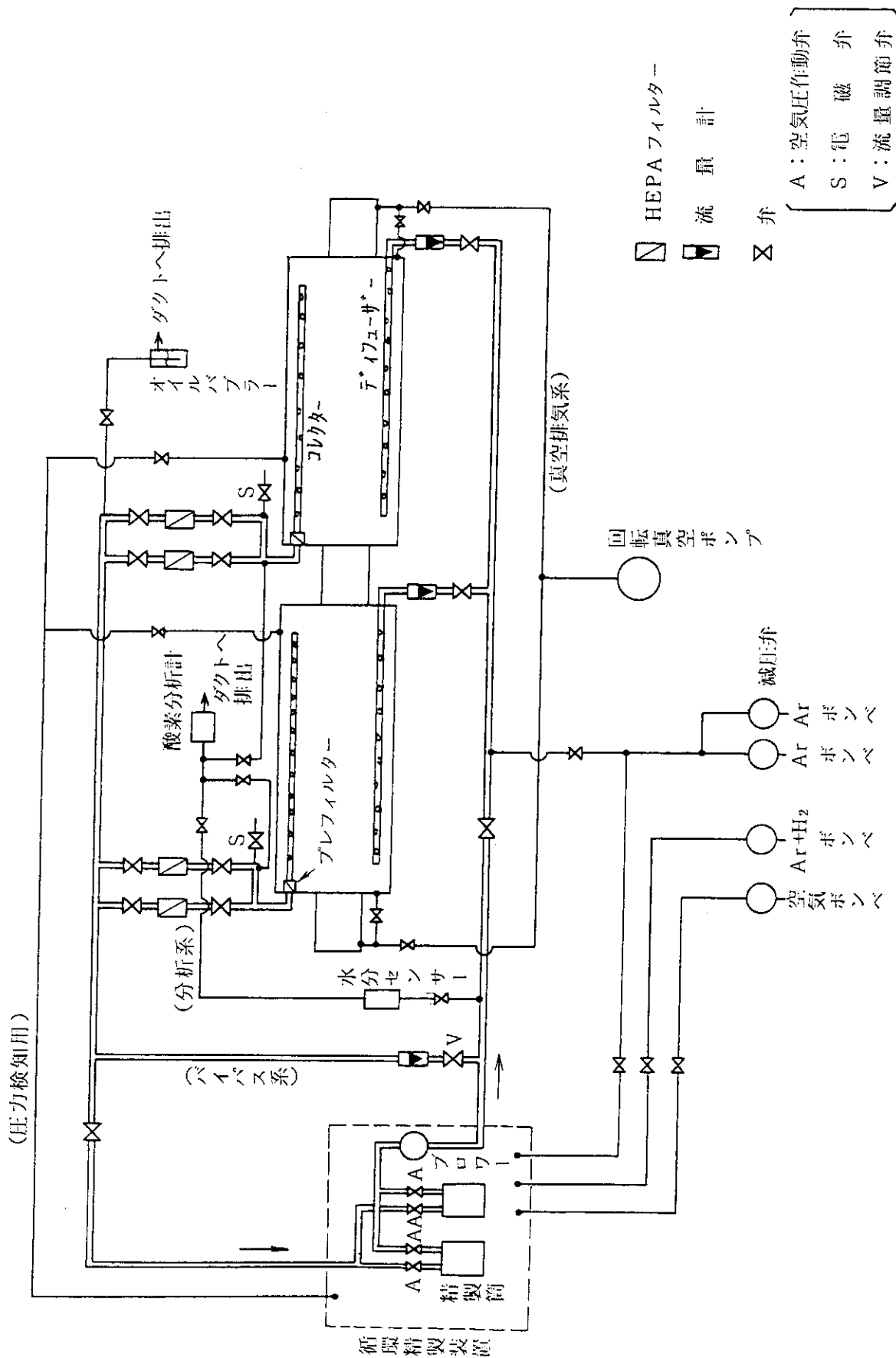


Fig. 12 グローブボックスの配管系統

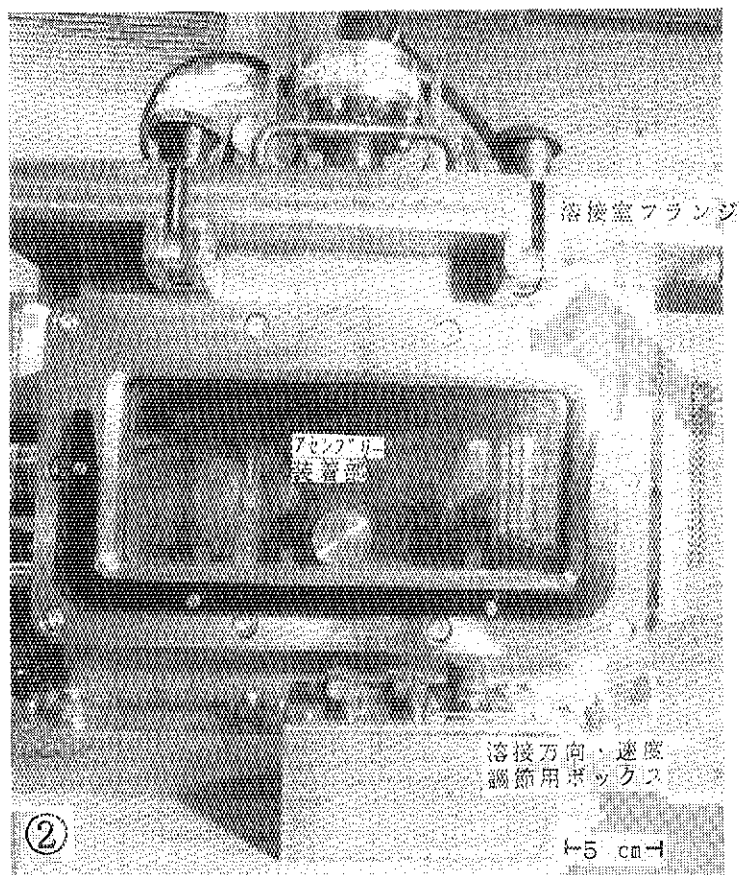
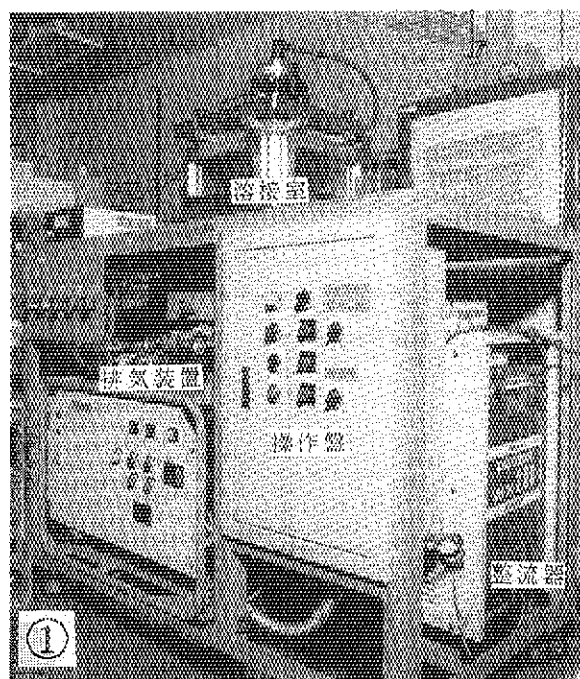


Fig. 13 燃料調製ラインの主要設備：半自動溶接機の外観写真

- ① 装置全体（溶接室，整流器，排気装置，操作盤）
- ② 溶接室

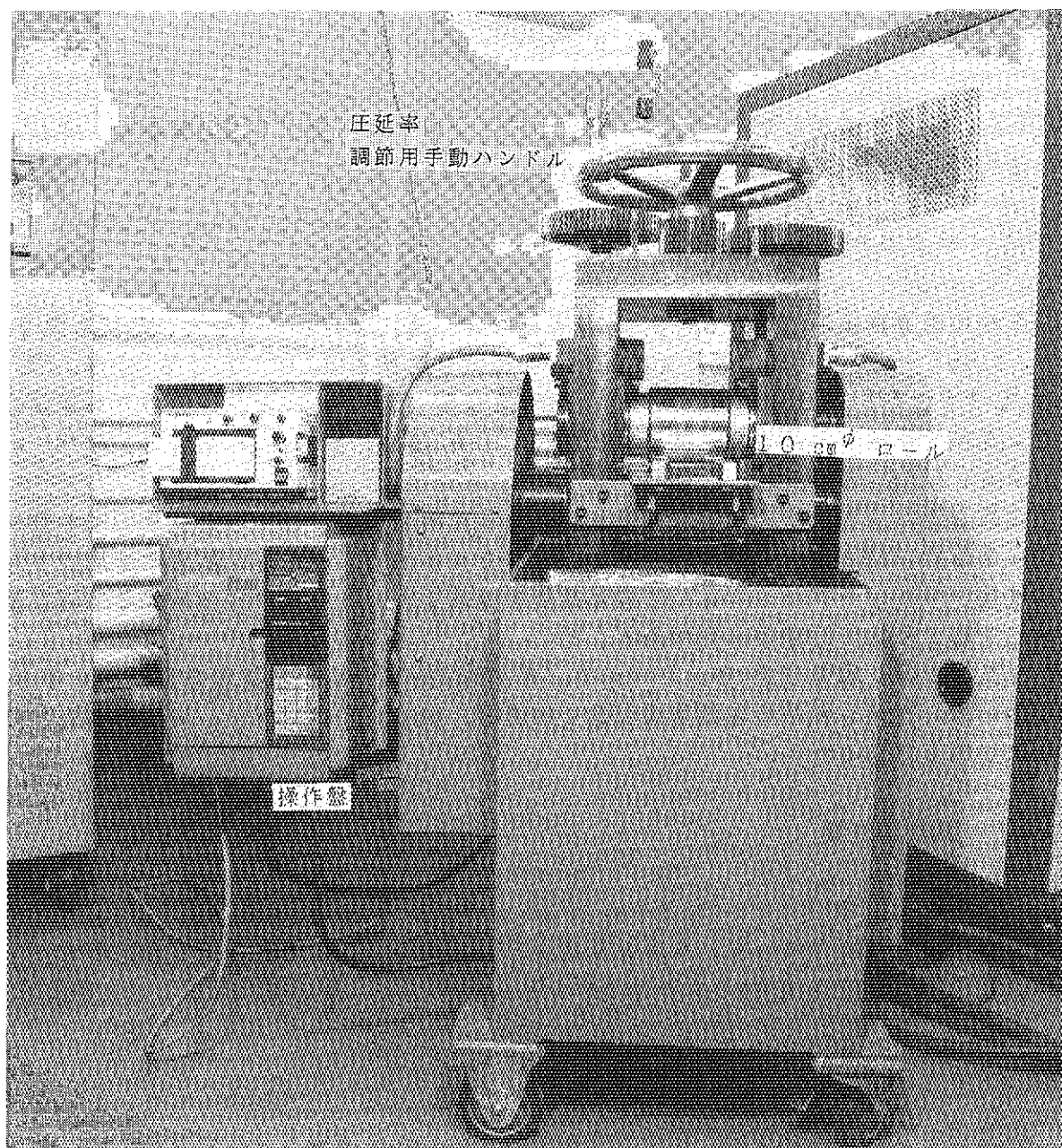


Fig.14 燃料調製ラインの主要設備：小型圧延機の外観写真

4. ミニプレートの調製とその例

4. 1 調製フローシートとそれぞれの工程

Fig. 15 に、使用したミニプレート調製ラインのフローシート概略を示し、主な工程のそれぞれについて以下に説明する。

(1) 合金のアーク溶製のための原料の準備

原料の低濃縮金属ウランは、英国 UKAEA HARWELL 製で、形状は厚さ約 1.3 mm、一辺約 7 mm の板片であった。同位体の重量%は、 ^{235}U 19.40、 ^{234}U 0.232、 ^{236}U 0.076、 ^{238}U 80.292 wt% であった。確認のため原研分析センターで実施した質量分析結果は、 ^{235}U 19.39、 ^{234}U 0.232、 ^{236}U 0.078、 ^{238}U 80.299 wt% であった。

金属ウラン中の主要不純物は、 $\text{Mg} < 30$ 、 $\text{C} = 215$ 、 $\text{N} = 52$ 、 $\text{Pb} < 40$ 、 $\text{Fe} = 250$ 、 $\text{Mo} = 100$ 、 $\text{Cd} < 1$ 、 $\text{B} < 1 \text{ ppm}$ であった。これらの金属ウランは、酸洗後、ワイヤーブラッシュして酸化被膜を除去した。（空气中に放置すると再び表面酸化を起こすので注意が必要である。）

シリコンは、純度 99.999 wt% で、厚さ約 1～2 mm の鱗片状の市販品をそのまま用いた。使用したその他の金属元素の純度は、 Mo 、 Fe 、 Ni 、 Mn の何れも 99.5 wt% 以上であった。

(2) 原料の秤量

原料の秤量においては、 U_3Si_2 、 U_3Si 等のウランシリサイド及び U_3Me 系合金の化学量論組成比に従って、ウラン及びシリコンあるいは鉄等を秤量した。ボタン 1 個の重量は、約 13～15 g となるようにした。

(3) アーク溶解

金属ウランとシリコンは、シリコンを下敷きにして水冷銅ハースに装荷した。次いで、炉内を約 3×10^{-6} mmHg の真空度に引いた後、高純度アルゴンで置換した。アルゴンガスの充填は、溶解中に炉内圧力が上昇するのを考慮して、室温で約 -250 mmHg 迄とした。このような条件で、原料を最高約 150～200 アンペア、約 20～15 ボルト程度で溶かした。溶解毎に 6～7 回試料を反転し、組成及び組織上可能な限り均一なボタンを得るようにした。アーク放電は、アークスターターの使用によって、タングステン陰極と陽極銅ハース（あるいは被溶解物）とを直接接触させることなく発生させることが出来る。

初めの 2～3 回は、比較的低い電流で溶解した。ボタン全体で合金化が徐々に進むように、回を重ねるに従い電流を上げた。試料が均一に融け始めるようになる時点を溶解

の最終段階に対する一つの目安とした。

アーク溶解したボタン及び電極棒をそれぞれ秤量し、溶解前後における試料及びタングステン電極棒の重量変化を調べた。試料の重量変化（減少）は、約 5 mg 以下であった。また、タングステンの重量変化は、天秤による測定誤差の範囲内にあり、電極による試料成分のピックアップは、無視し得る。また、E P M A 分析の結果、試料へのタングステンの混入も認められなかった。従って、本実験では、合金組成としてアーク溶解時の公称値を採用している。

(4) アーク溶解したボタン状合金の焼鈍

アーク溶解ボタンの焼鈍は、ボタンを Mo 箔で包み、石英管に He 封入した状態でマッフル炉で加熱して行った。U-Si 系合金では、組織の均一化のため 850℃ で 2 日間加熱した。特に、Si 含有量が 7.3 wt% 以下の U-Si 合金は、前述のようにアーク溶解の状態で残留している非平衡の金属ウランを除去するため、この焼鈍が必要である。

U-Me 系合金の U_3Mn 、 U_3Ni 、 $U_3(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ 、 $U_3(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$ に対しては、アーク溶解ボタンを 670℃ で 5～10 日間焼鈍した。

(5) ボタンの粗粉碎

焼鈍済みのアーク溶解ボタンは、アルゴン雰囲気グローブボックス中で、初めに、万力によって手で粗い破片に割るか砕く。これを原料として、ジョークラッシャーに装荷し、約 1～2 mm の粒子に破碎する。 U_3Si を多く含むに依り粒子化が困難になるが、 U_3Si 含有量が 20 wt% 程度の U_3Si_2 合金では、この方法で粉碎の問題は起こらなかった。

なお、以下の工程 (6)～(10) も、アルゴン雰囲気グローブボックス中での実験操作である。

(6) ボタンの微粉碎

通例、A1 分散型板状燃料の燃料コンパクト調製に用いられる燃料粒子のサイズは、150 μm 以下である。従って、粗粉碎されたボタンの粒子は、メノー粉碎機によって、さらに 150 μm 以下に粉碎される。 U_3Si_2 及び USi を含む U_3Si_2 では、粉碎が容易である。このため、粉碎圧力と粉碎時間を適当に調節して、微粒子（特に $\sim 40 \mu m$ 以下の粒子）のみが過剰に生じないように注意する必要がある。従って、粉碎の適当な時期に、篩い分けして微粒子をその都度回収する。

このようにする目的は、粒子サイズ毎の収率が、次に述べる予め設定された粒子サイズ毎の混合割合に依存するためである。

(7) 燃料粒子の篩い分け

本実験では、振動式の篩い分け機によって燃料粒子を次の4段階のサイズに分けた。

150～106 μm
 106～75 μm
 75～45 μm
 45 μm 以下

(8) 燃料粒子とアルミニウム粉末の秤量

燃料粒子とアルミニウム粉末（高純度化学研究所製、純度99.9wt%以上）は、燃料コンパクト1個の体積と燃料ミート中の燃料粒子／アルミニウム体積比によって、それぞれ必要量を計算し秤量した。

各燃料粒子サイズに対する重量比を次の4段階に分け、各プレートではほぼ一定となるように配慮した。

150～106 μm	35～40 wt%
106～75 μm	25～20 wt%
75～45 μm	～20 wt%
45 μm 以下	～20 wt%

これは、照射挙動に対する燃料粒子サイズの効果を各プレートではほぼ同じにする意図からであった。

150～106 μm の粒子の割合を故意に大きくしたが、それはホットラボでの照射後試験におけるEPMA観察等による相の同定をより容易にする目的のためである。また、原料アルミニウム粉末粒のサイズは、20 μm 以下であった。

(9) 燃料粒子とアルミニウム粉末との混合

設置したV字形ブレンダーは、アクリル製容器へのアルミニウム粉末の付着や少量の混合には容器が大き過ぎる等、今後工夫する必要がある問題が残った。このため、今回の実験では、アルミニウム箔に燃料粒子とアルミニウム粉末を入れ、その包みを手で良く振って混合した。

シリサイド燃料(U_3Si_2)とAlとの密度の差が大きいのので(12.2に対し2.70 g/cm^3)、燃料粒子とアルミニウム粉末との混合はしにくい傾向にある。(参考迄に述べると、中・高濃縮ウランの燃料粒子として使われる U_3O_8 や UAl_3 は、密度がそれぞれ8.39 g/cm^3 、6.8 g/cm^3 であり、密度の点からはアルミニウムとの混合がし易い傾向にあると言えよう。)

混合が仮に良く出来たとしても、次の工程(10)で、混合粉末をモールドに流し込む際に燃料粒子とアルミニウム粉末が分離する傾向があるので注意が必要である。これは、当然ながら燃料粒子サイズが大きいとますます顕著になる傾向にある。

(10) 粉末混合体の成形プレス（燃料コンパクトの作製）

燃料粒子とアルミニウムとの粉末混合体を金型（モールド）本体の中央にある四角い穴（3.0 mm x 5.0 mm）に流し込み、金型の押出し棒を挿入する。これを、下方から押上げる方式で、4.0～7.0 ton/cm² の圧力でプレスした。

こうして出来るコンパクトの厚みは、次に述べるフレームの厚みとほぼ等しいか、少なくとも、若干薄くなければならない。このために加圧力等の調整を必要とする。

(11) フレーム／カバー／燃料コンパクト アセンブリーの組立

フレームとカバーの材質には、実際に研究炉用板状燃料の被覆材として使用されている Al-Mg 合金の Al6061（日本軽金属製）を用いた。

化学成分は、Al-0.61Si-0.44Fe-0.28Cu-0.01Mn-1.0Mg-0.24Cr-0.04Ti wt% であった。また、受入れ時の状態で、引張り強さは 12.5 kg/mm² (122.5 MPa)、伸びは 38% であった。

フレーム：厚さ	2.0	～	2.2	mm
縦	30.0			mm
横	20.0			mm
カバー：厚さ	1.7			mm
縦	30.0			mm
横	20.0			mm

フレームの中央にある縦 5.0 x 横 3.0 mm の四角い穴に燃料コンパクトをはめ込む。この際、シリサイドとアルミニウムの圧粉体である燃料コンパクトは、端部の微小部分が割れて剥離し易いので注意しなければならない。この燃料コンパクトの強度は、前工程におけるプレス圧及びアルミニウムと燃料の体積比によって影響を受ける。即ち、プレス圧とアルミニウムの燃料に対する体積比が大きい程、端部は欠けにくくなる。

Fig. 16 に、燃料コンパクト（ここでは純アルミニウム製の模擬品）、フレームとカバーを例示した。

(12) アセンブリーの溶接

半自動溶接機を用いて、フレーム、カバー、燃料コンパクトから成るアセンブリーを溶接機のチャックに挟み、アセンブリー周辺にそって溶接を行った。溶接トーチは、アセンブリーの 3 枚の板のうち中央のフレーム部分の直上を走らせる。

周辺の点溶接のみでは、圧延に対してアセンブリーの強度が弱く、剪断応力を受けて 3 枚の板が互にずれ分離してしまうので、ここでは全周溶接とした。実際には、熱間圧延の最初のパスで 3 枚の板の結合と同時に内部に残留していた気体を逃すため、ドリルを用いて直径数 mm の大きさのガス逃し口を溶接板に設けた。

溶接に先立って、各板材の接触面をアセトン等を用いて洗浄した後、ワイヤーブラッシュによって表面を磨きフレッシュな面を出しておく必要がある。これは、次の工程で

ある圧延による板材の結合、板材と燃料コンパクトとの結合にとって必須である。

(13) 熱間・冷間圧延

溶接したアセンブリー（長さ30.0mm×幅20.0mm×厚み約5.6mm）を、マッフル炉で加熱し500℃に達したとき、速やかに圧延機にかける。圧延の均一性を増すために、板の圧延方向をパス毎に逆方向にした。また、パス毎に板の表と裏を逆転した。初めの数パスは、1パス当りの圧下率を約25%とした（圧下率が、約20%以下では、圧延によるボンディングが悪い）。最終圧延は冷間で行なった。

板の全圧延率（目標値）は約75%であった。最終圧延後の板の厚みは、約1.35～1.4mmである。なお、圧延時のロール荷重は最大約8tonであった。

(14) 圧延板の矯正

圧延機のロール直径が10cmと小さいので、長さ方向に板が若干湾曲する場合があった。この湾曲は、再圧延によって除く事ができる。しかし、板厚の制限から圧延による湾曲の矯正が出来ない時は、板を500℃で数分間アニールし、プレスで平坦となるように矯正した。

Fig. 17には、最終圧延のままの板のX線透過写真及び次の(15)、(16)の工程を経た最終製品のミニプレートのX線透過写真を例示した。

(15) 圧延板の切断

圧延したままの板について、不要な両端部を小型切断機を用いて切断・トリミングした。板の中心部を長さ方向のX線透過写真で確認して、燃料ミートが板の中心にくるように切断機上で位置決めし、最終製品（長さ30.0mm×幅20.0mm）の寸法より少し大きめに切り取った。

(16) 研磨・最終製品ミニプレート

JMTR密封キャプセルへの組込のために作製した燃料板については、燃料板の厚み制限が1.30～1.40mm以内と予め設定されていた。1.4mmを超えたものについては、厚み方向のX線透過写真を撮影し、目視で確認しながら、厚み方向の両側から最高で約20μm程度エメリー研磨した。試料表面の最終仕上は、ダイヤモンドペースト（3μm）を用いてバフ研磨し鏡面仕上とした。

4.2 A1分散型 U_3Si_2 ミニプレートの調製例

Figs. 18～20は、Fig. 17で例示したミニプレート（最終製品）を切断し、内部を観察したもので、被覆材や燃料部分の顕微鏡写真を示している。

Fig. 18は、圧延方向切断面の組織写真及びその左端部と中央寄りの部分を拡大した光学顕微鏡写真である。Fig. 19は燃料ミート内部を、Fig. 20は燃料ミートと被覆アルミニウム合金との境界部をそれぞれさらに拡大して示したものである。これらから、カバー（2枚）とフレーム（1枚）、被覆材と燃料ミート中のアルミニウム素地、燃料粒子とアルミニウムとの結合がそれぞれ良好なことが分る。

板状燃料では燃料ミートを構成する燃料粒子とマトリックスを形成するアルミニウム及びそのアルミニウムと被覆材とは、結合・密着性が保持されるように製造する必要がある。密着性が良好に保たれないと、熱伝導性が低下し冷却能力がおちるため照射中に燃料温度が異常に上昇する可能性がある。

一般に、粉末冶金法で製造された板状燃料では、燃料粒子の対アルミニウム体積比が増すと、圧延抵抗が増大し燃料ミートの端部が厚くなる（逆に被覆は薄くなる）、いわゆるドッグボーン（Dog bone）を起こし易い。本例では、長さ方向での燃料ミートの厚みは均一であり、ドッグボーンも認められていない。アルミニウムと燃料粒子との反応は無く、当初懸念された圧延過程での燃料粒子の空気による酸化も観察されていない。

さらに、サイズの大きい燃料粒子を故意に多く加えているが、燃料粒子のアルミニウム素地全体への分散度は良い。これは、圧延過程でアルミニウムの塑性流動がスムーズに行われた証拠である。また、Figs. 19～20で燃料粒子の形態を見ると、圧延による若干のクラックは認められるが、圧延後もほぼ粒子の原形が維持されているようである。

ここに例示したミニプレートのウラン密度及び製造時のボイド率は、それぞれ 4.69 gU/cm^3 、 13.1% であった。ウラン密度とボイド率は、メタキシレンを置換液として用いた液浸法によって測定された⁽²¹⁾。

商業ベースで製造されるフルサイズの燃料板のウラン密度は、最大約 4.8 gU/cm^3 である。また、製造時のボイドは、燃料メーカーによって異なるが通常 $4 \sim 13\%$ である。従って、Figs. 17～20に例示したミニプレートは、ウラン密度と製造時のボイド率に関しては、 U_3Si_2 -A1分散型板状燃料の典型的な例であると言えよう。

なお、粉末混合時の体積比は、アルミニウム 52% 、 U_3Si_2 48% であり、 U_3Si_2 粒子の混合時のサイズ（PS）分布は、重量％で表すと以下のようであった。

$PS \leq 45 \mu\text{m}$: 19% 、 $45 < PS \leq 75 \mu\text{m}$: 20% 、 $75 < PS \leq 106 \mu\text{m}$: 21% 、 $106 < PS \leq 150 \mu\text{m}$: 40% 。

A1分散型 U_3Si_2 ミニプレートの調製の一例について記述したが、その数値データを以下にまとめて示す。

燃料コンパクトの寸法	3.0 mm x 5.0 mm x 2.14 mm (厚み)
プレス圧力	3.7 ton/cm ²

ミニプレートの寸法	30 mm x 20 mm x 1.40 mm (厚み)
ミニプレートの体積	0.8109 cm ³
ミニプレートの重量	2.3059 g

フレーム・カバーの重量 2.1153 g

燃料コンパクトの重量	0.1906 g
アルミニウム粉末の重量	0.0372 g
燃料 (U ₃ Si ₂) 粉末の重量	0.1534 g
燃料粉末総ウラン重量	0.1422 g

燃料の重量混合比	80.46 %
アルミニウムの重量混合比	19.54 %

燃料の体積混合比	47.69 %
アルミニウムの体積混合比	52.31 %

ウラン 密度	4.687 gU/cm ³
ボイド 体積率	13.095 %

次章に述べる、調製した一連の照射用ミニプレートの外形寸法や燃料ミートの寸法・ウラン密度等は、本例が示すようにJMTRにおける密封キャプセルの照射条件（燃料板中心温度約200℃、到達燃焼度約40～60%等）に適合するように設計された。

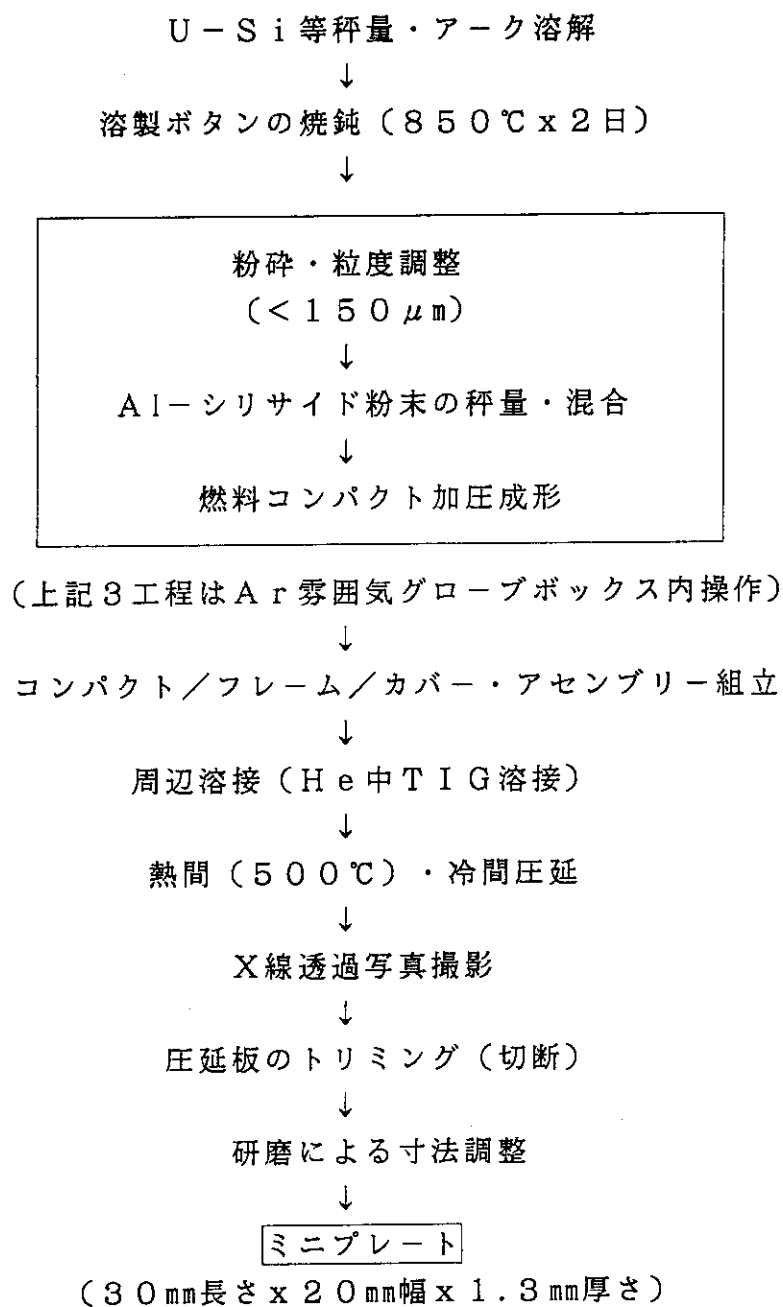


Fig. 15 使用した実験室規模のミニプレート調製ラインのフローシート概略：
粉末冶金を用いた額縁法（ピクチャーフレーム法）

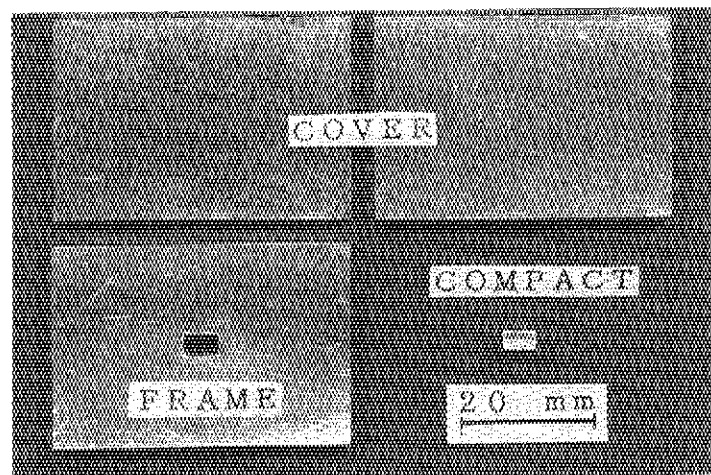


Fig. 16 燃料コンパクト（ここではアルミニウムの模擬品），フレームとカバーの例示

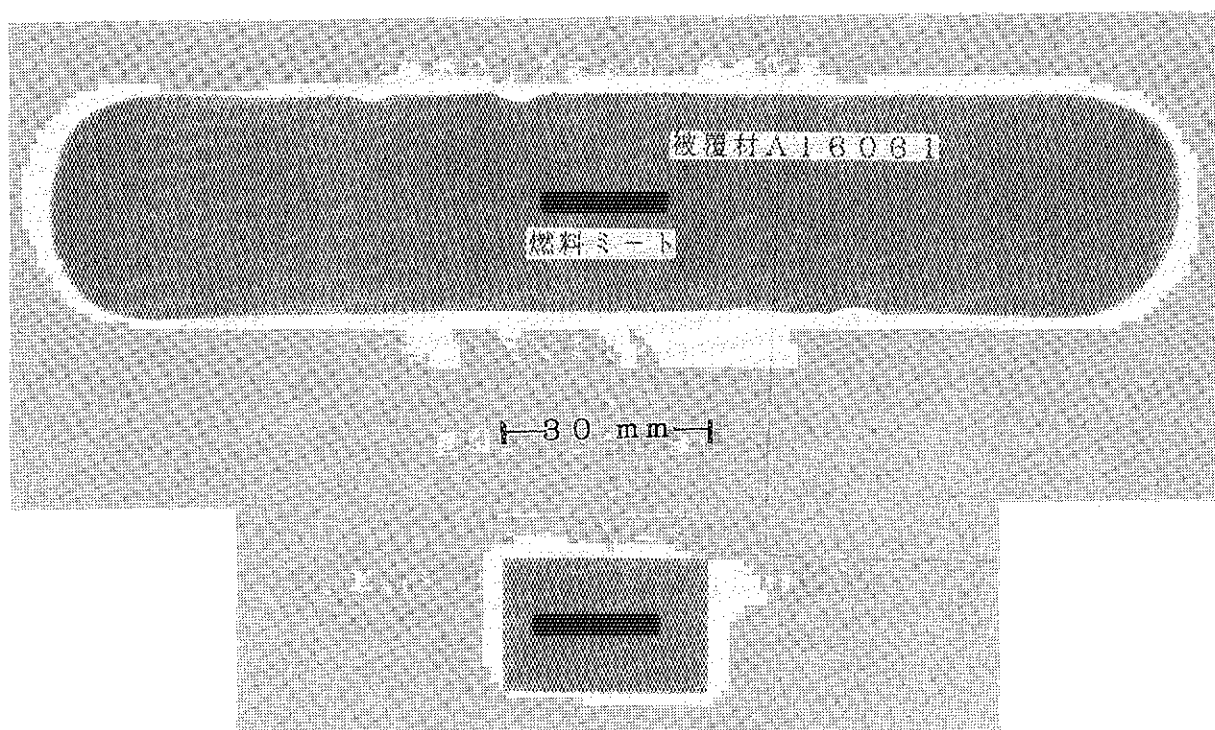


Fig. 17 U_3Si_2 -Al ミニプレート：圧延板の X 線透過写真及び最終製品の X 線透過写真

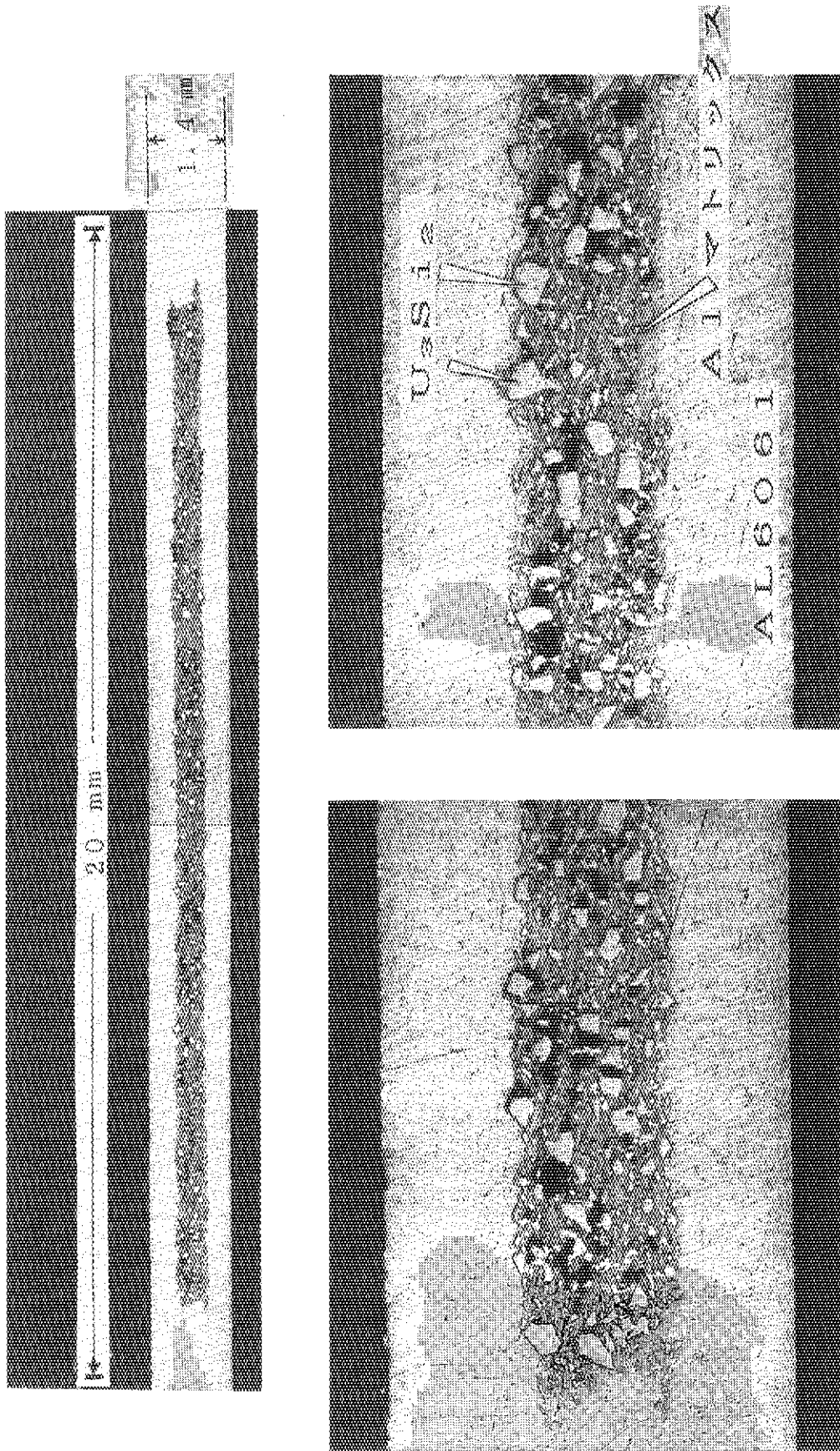


Fig. 18 ミニプレート (Fig. 17) の圧延方向切断面及びその左端部と比較的中央部分の拡大光学顕微鏡写真 (ミニプレートの厚み=1.40mm)

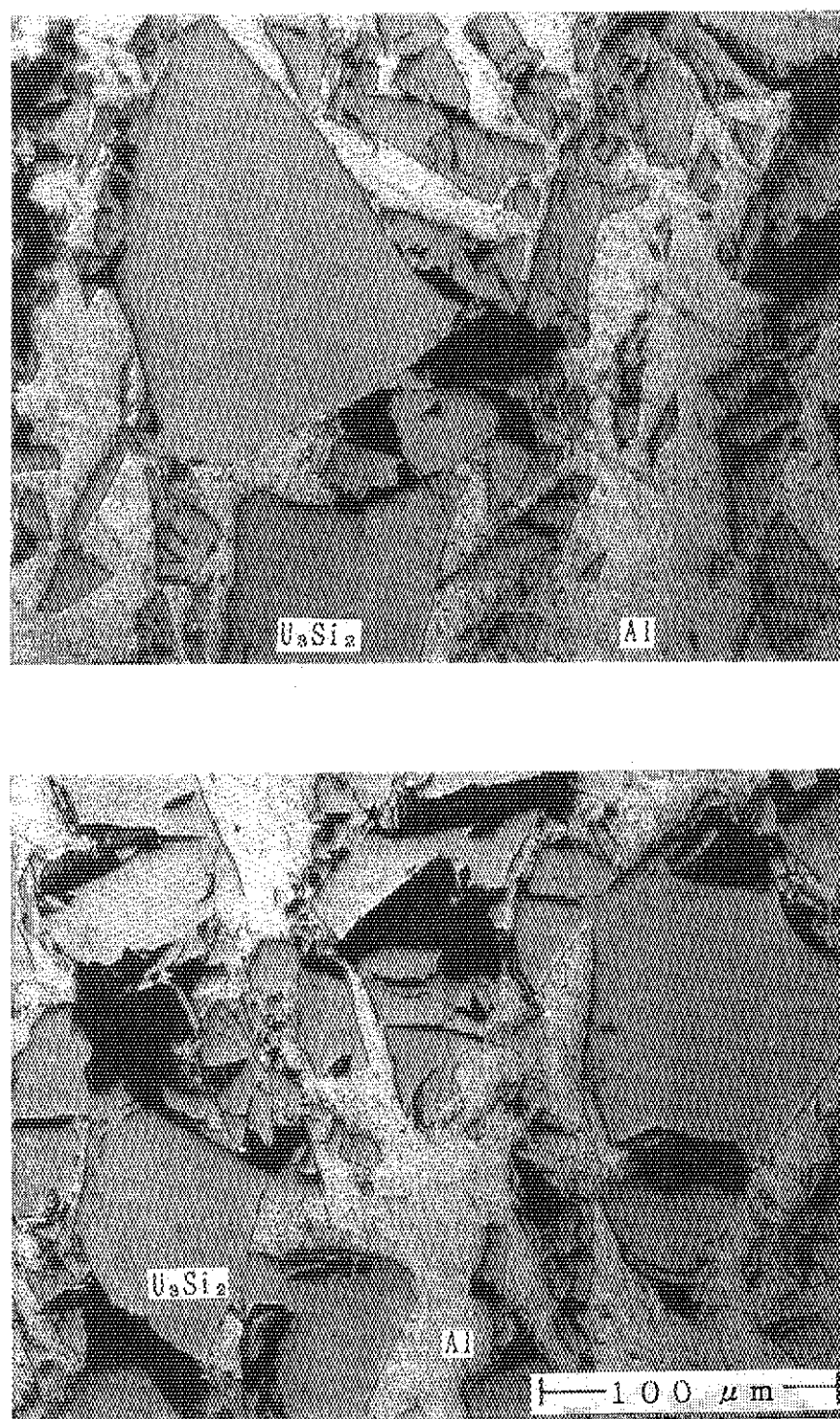


Fig. 19 燃料ミート部 (Fig. 18) をさらに拡大したもの : Alマトリックスに分散した U_3Si_2 粒子

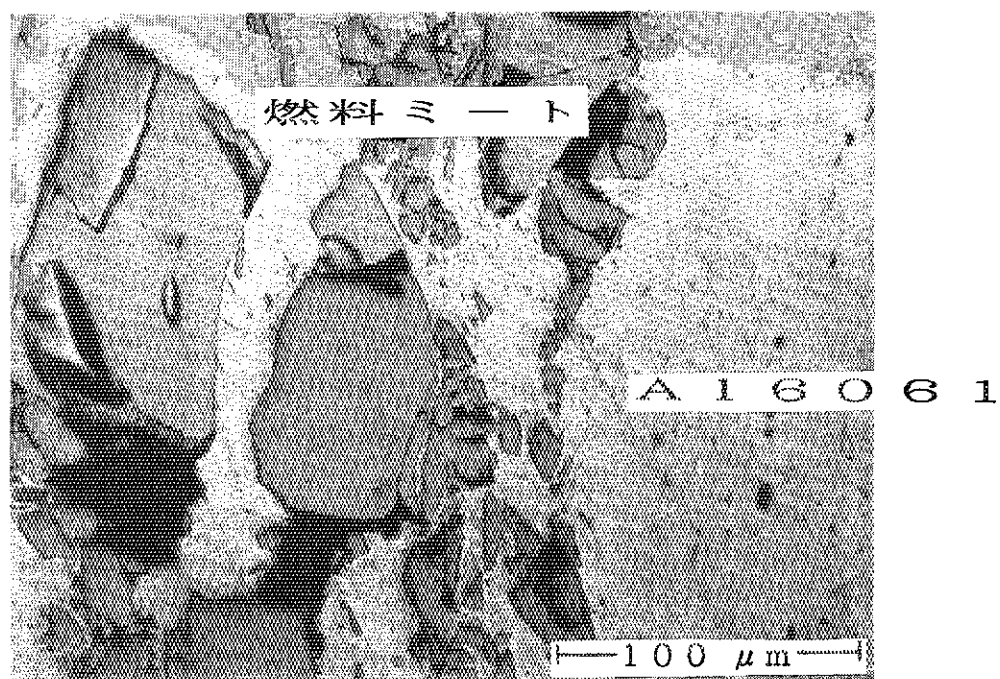


Fig. 20 燃料ミート部 (Fig. 18) をさらに拡大したもの : 燃料ミートと A16061被覆材との境界

5. キャプセル照射用ミニプレートの調製

2体の密封キャプセルに装荷された照射用ミニプレート（合計14枚）の調製について、キャプセル88F-2Aとキャプセル89F-1A用の試料とに分けて説明する。

ミニプレート調製の必要条件としては、燃料照射温度、一定期間における到達燃焼度等の照射パラメーターを満足させるため、密封キャプセルの長さ方向1cm当りのウラン（ ^{235}U ）の装荷量に特に留意した。また、ミニプレートの外形寸法はJMT R照射孔に対応した密封キャプセルの寸法（直径・長さ）、内筒や熱媒体との寸法・位置関係により制限を受けた。

5.1 キャプセル88F-2A用の燃料試料

88F-2A キャプセル用の試料（ミニプレート4枚）は、1989年11月迄に調製を完了した。次いで1990年5月から1991年5月迄、JMT Rにおいて、5サイクルの照射を終了した。照射後試験は、大洗研ホットラボにおいて1991年10月から開始され現在も進行中である。

当該キャプセルに包含されたミニプレート型燃料の組成は、以下の4種である。

U_3Si_2 , $\text{U}_3\text{Si}_2 + 20\text{wt}\% \text{U}_3\text{Si}$, $\text{U}_3\text{Si}_2 + 20\text{wt}\% \text{USi}$,
Mo (0.5wt%) 添加 U_3Si_2

Table 2に、燃料ミート中の燃料粒子の組成（U, Si, Mo含有量）を示す。

Fig. 21に、これら4種の合金（アーク溶解後、850℃で2日間加熱したもの）の顕微鏡組織を示す。ここで、 U_3Si_2 へのMoの添加は、次の2つの目的による。

- ・ Moは主要なFP元素であるのでその化学形を調べる
- ・ Alとの共存性、燃料スエリングに対するMo添加の影響を調べる

Fig. 22に、Mo添加 U_3Si_2 合金中の存在相に関連して、これ迄の実験により初めて明らかにした U-Mo-Si 3元系における部分的な相状態図⁽²²⁾を示す。

Moを0.5wt%添加した U_3Si_2 合金はその組成が U_3Si_2 -Mo 線上にあり、Fig. 21④で観察される析出相は、新しく見出した3元化合物 U_3MoSi_2 である。なお、 U_3Si_2 へのMoの固溶は殆ど認められていない（EPMAの検出限界以下）。

また、 $\text{U}_3\text{Si}_2 + 20\text{wt}\% \text{USi}$ の20wt% USiは、JMT Rのシリサイド炉心燃料に想定されている U_3Si_2 中のUSi含有量のほぼ上限値に対応している。

以下に、キャプセル照射試料としての製品検査について、検査項目に従って述べる。Figure・Tableの中で1, 2, 3, 4は、プレートの識別番号である。

Fig. 23に、JMT Rキャプセル88F-2Aに装荷したミニプレート4枚について、その表面と側面からのX線透過写真（側面からの拡大写真を含む）を示す。X線透過写真から燃料ミート内でのウランの均一分散性及び燃料ミートと被覆材との結合性が良好なことが分る（結合していない場合、境界部分に黒い筋が認められるようになる）。

Fig. 23に示すX線透過の拡大写真からは、各ミニプレートでドッグボーンの程度は顕著ではないこと、また、燃料ミートの先端の上下部分が圧延方向に流れる傾向を示し

ていることが分る。これはフレームとカバーとの間に燃料コンパクトの一部が、圧延の初めの段階で引き込まれたために生じたと考えられる。

Fig. 24に、ミニプレート4枚の外観写真（表面・裏面と側面）を示す。4枚とも板としてのたわみは極めて少なく、以下に述べる寸法測定結果とも合せると、ミニプレートの平板度・表面平滑度はともに良好なことが分る。

Table 3に、燃料ミート中の燃料組織、総ウラン量、 ^{235}U 量、ボイド率、ウラン密度を示す。 ^{235}U 量、ウラン密度（ $4.4 \sim 4.6 \text{ gU/cm}^3$ ）、ボイド率（ $4 \sim 8\%$ ）とも適切な値が得られている。

ミニプレート中に残留している製造時のボイドは、照射による燃料の膨れ（スエリング）を吸収しこれを緩和する事が期待される。実用のフルサイズの燃料板においても、燃料ミート中に $4 \sim 13\%$ 程度のボイドが残留していることは既に述べた。

Table 4に燃料コンパクト作製に用いた燃料粒子の粒度分布を $45 \mu\text{m}$ 以下、 $45 \sim 75 \mu\text{m}$ 、 $75 \sim 106 \mu\text{m}$ 、 $106 \sim 150 \mu\text{m}$ に分けて示す。参考として、フルサイズの板状燃料の仕様例では燃料粒子サイズは $150 \mu\text{m}$ 以下であり、そのうち $\sim 40 \mu\text{m}$ 以下の、いわゆる微粒子（Fines）の存在割合は 50% 以下とされている。

Table 5に、ミニプレートの総重量、フレーム／カバー重量及び燃料ミートの重量をそれぞれ示す。

Table 6に、マイクロメーターによるミニプレートの外形寸法（長さ、幅、厚さ）の測定結果を示す。各板の厚みは、 $1.32 \sim 1.35 \text{ mm}$ の範囲であった。特に重要なミニプレートの場所による厚みの違いは、 $\pm 0.005 \text{ mm}$ 以内であり、満足な値を得ている。照射下における燃料スエリングは板の厚み増加で評価されるので、ミニプレートの表面平滑度は重要なファクターである。

Table 7に、X線透過写真の密着及び10倍拡大写真を用いた、ノギスによる燃料ミートの寸法（長さ、幅、厚さ）測定結果を示す。燃料ミートの厚みは、端部を除いた平坦部では $0.53 \sim 0.58 \text{ mm}$ である。端部の厚みは、プレートNo.1を除いて、やや大きく $0.60 \sim 0.74 \text{ mm}$ である。燃料ミートの幅は、板間の差は無く 3.3 mm と一定である。また、燃料ミートの長さは $18.2 \sim 18.8 \text{ mm}$ である。

圧延前の燃料コンパクトの幅と長さは、それぞれ 3.0 mm 、 5.0 mm であった。従って、圧延による幅方向の伸び率は 10% とほぼ一定であり、長さ方向の伸び率から計算した圧延率は、約 $73 \sim 74\%$ となる。燃料ミート部の被覆材の厚みは、全体では $0.27 \sim 0.365 \text{ mm}$ の範囲にあり燃料ミートの平坦部に限定すると $0.33 \sim 0.35 \text{ mm}$ となり、それぞれ妥当な値が得られている。

以上の他、照射前試料の健全性を予め評価するため、同じ方法で調製した試料について、加熱試験及び剝離試験を実施した。

加熱試験では、燃料ミート端部の片方にドッグボーン（最小被覆厚さ： 0.15 mm ）を有する $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-A1}$ ミニプレートを対象に、マッフル炉を用いて 450°C で1時間、空気中加熱を行った。加熱後のX線透過検査（Fig. 25）及び断面組織観察の結果（Fig. 26）では、加熱による寸法変化（厚み増加）、被覆材からの燃料ミートの剝離、燃料粒子とアルミニウムとの反応のいずれも認められなかった。

剥離試験として、1枚の圧延板の中で製品ミニプレートの採取位置に近い所から切取った被覆材を室温でおよそ180度曲げ、被覆材が元のカバーとフレームに分離するかどうかを調べた。Fig. 27から、A16061板は曲げ試験後も一体となっており、また接合前の板の境界も認められず、結合性が良好なことが示された。

Table 2 JMTR照射キャプセル88F-2Aに装荷したミニプレートの燃料粒子の組成 (U, Si, Mo含有量)

プレート No.	組成 (wt %)			*
	U	Si	Mo	
1	92.7	7.3	0.0	
2	92.0	8.0	0.0	
3	92.2	7.3	0.5	
4	93.4	6.6	0.0	

* アーク溶解時の公称値

Table 3 燃料ミート中の燃料組織, 総ウラン量, ^{235}U 量, ボイド率, ウラン密度

プレートNo.	燃料組織	総ウラン量 (g)	^{235}U 量 (g)	ボイド率 (%)	ウラン密度 (g U/cm^3)
1	U_3Si_2	0.1348	0.0261	6	4.4
2	$\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{USi}$	0.1245	0.0242	5	4.4
3 ^{*1}	$\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{U}_3\text{MoSi}_2$	0.1125	0.0218	4	4.6
4	$\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{U}_3\text{Si}$	0.1279	0.0248	8	4.6

*¹ Mo含有量 = 0.5 wt%

Table 4 燃料コンパクト製作時の燃料粒子の粒度分布

プレートNo.	粒 度 分 布* (wt%)			
	150~106 μ m	106~75 μ m	75~45 μ m	<45 μ m
1	37	24	20	19
2	39	24	19	18
3	37	23	23	17
4	36	24	21	19

*アルミニウム粉末との混合時の粒度分布

Table 5 ミニプレートの重量：プレート総重量、フレーム/カバー重量及び燃料ミート重量

プレートNo.	総 重 量 (g)	フレーム重量 (g)	燃料ミート重量 (g)
1	2.2508	2.0595	0.1913
2	2.2748	2.0970	0.1778
3	2.2447	2.0865	0.1582
4	2.2669	2.0906	0.1763

Table 6 マイクロメーターによるミニプレートの外形寸法 (幅, 長さ, 厚さ)
測定結果

プレートNo.	幅 (mm)	長さ (mm)	厚 さ * (mm)							
			①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	平均 ①~④/⑤~⑥
1	20.0	30.0	1.320	1.320	1.320	1.321	1.323	1.322	1.324	1.321 1.324
2	20.0	30.0	1.344	1.346	1.347	1.347	1.349	1.346	1.343	1.347 1.346
3	20.0	30.0	1.330	1.331	1.327	1.329	1.329	1.331	1.336	1.329 1.333
4	20.0 ₅	30.0	1.346	1.344	1.344	1.339	1.339	1.350	1.335	1.343 1.344

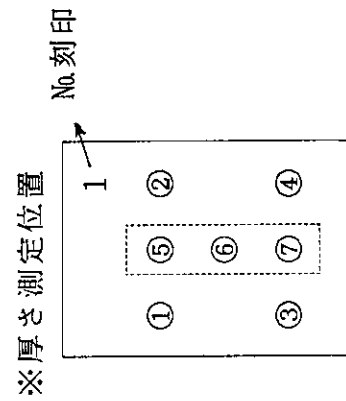


Table 7 X線透過写真の密着及び10倍拡大写真を用いた、ノギスによる燃料ミートの寸法（幅、長さ、厚さ）測定結果

プレートNo.	燃料ミート厚さ * ¹ (mm)		燃料ミート * ² (mm)		被覆材（薄肉部分）厚さ * ¹ (mm)	
	左端部（最大）	中央部 右端部（最大）	幅	長さ	左端部（最大）	中央部 右端部（最大）
1	0.60	0.58 0.55	3.3	18.8	0.32	0.33 0.30
2	0.63	0.58 0.56	3.3	18.5	0.35	0.33 0.27
3	0.575	0.525 0.535	3.3	18.2	0.365	0.35 0.30
4	0.71	0.565 0.575	3.3	18.3	0.28	0.33 0.28

*1 X線透過写真（10倍拡大）を用いてノギスにより測定した。

*2 X線透過写真（密着）を用いてノギスにより測定した。
右端部はNo. 刻印のある方を指す。

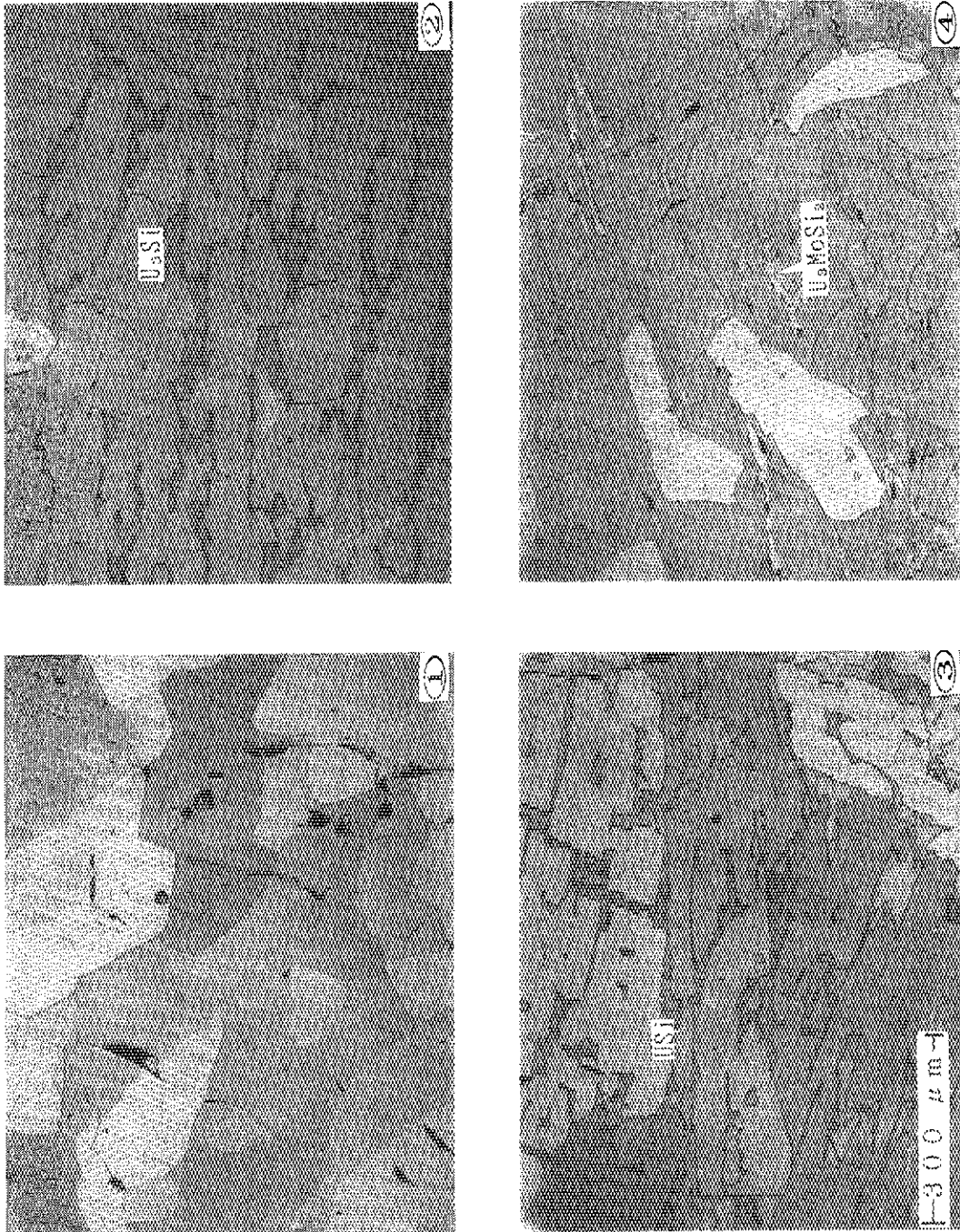


Fig. 21 U_3Si_2 (①), $U_3Si_2 + 20wt\% U_3Si$ (②), $U_3Si_2 + 20wt\% U_3Si + 0.5wt\% Mo$ (③), $U_3Si_2 + 20wt\% U_3MoSi_2$ (④) 各合金の顕微鏡組織 (アーク溶解後, 850°Cで2日間加熱したもの)

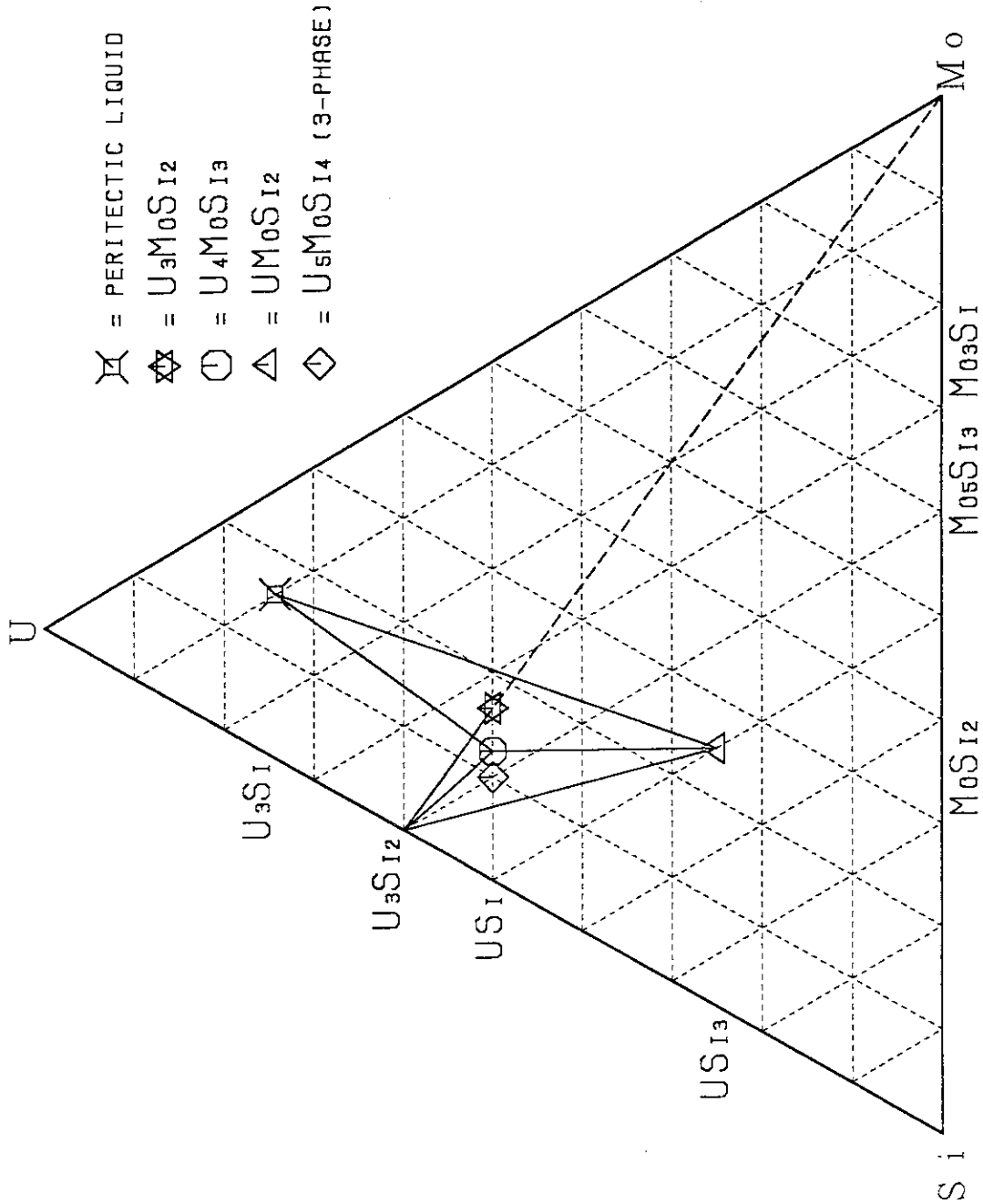


Fig. 22 U-Mo-Si 3 元系における部分的相状態図⁽²²⁾
 (U_3MoSi_2 の 3 元包晶反応面を含む, 850°C 以上の高温からの投影図)

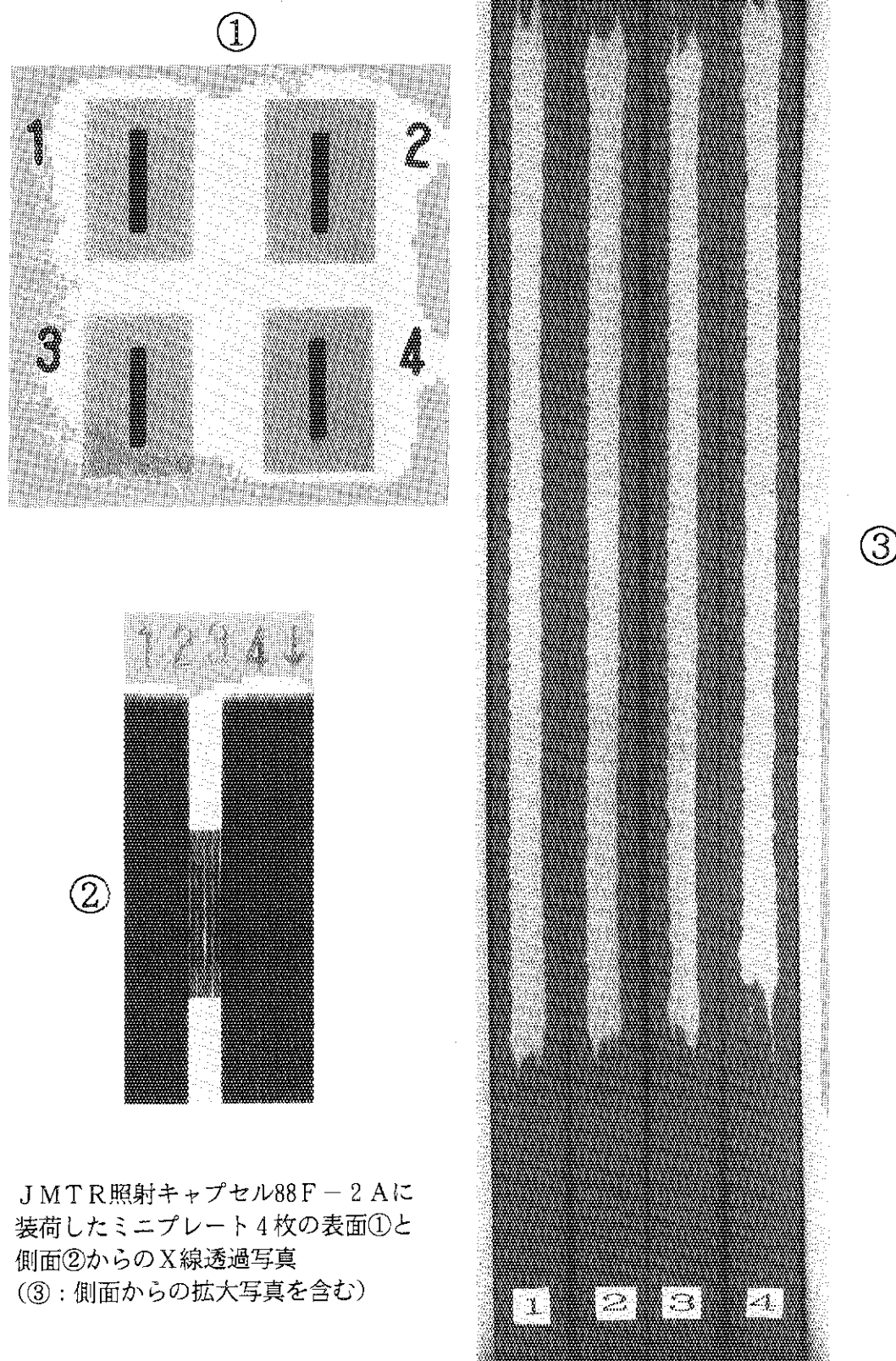


Fig. 23 JMTR照射キャプセル88F-2Aに
 装荷したミニプレート4枚の表面①と
 側面②からのX線透過写真
 (③:側面からの拡大写真を含む)

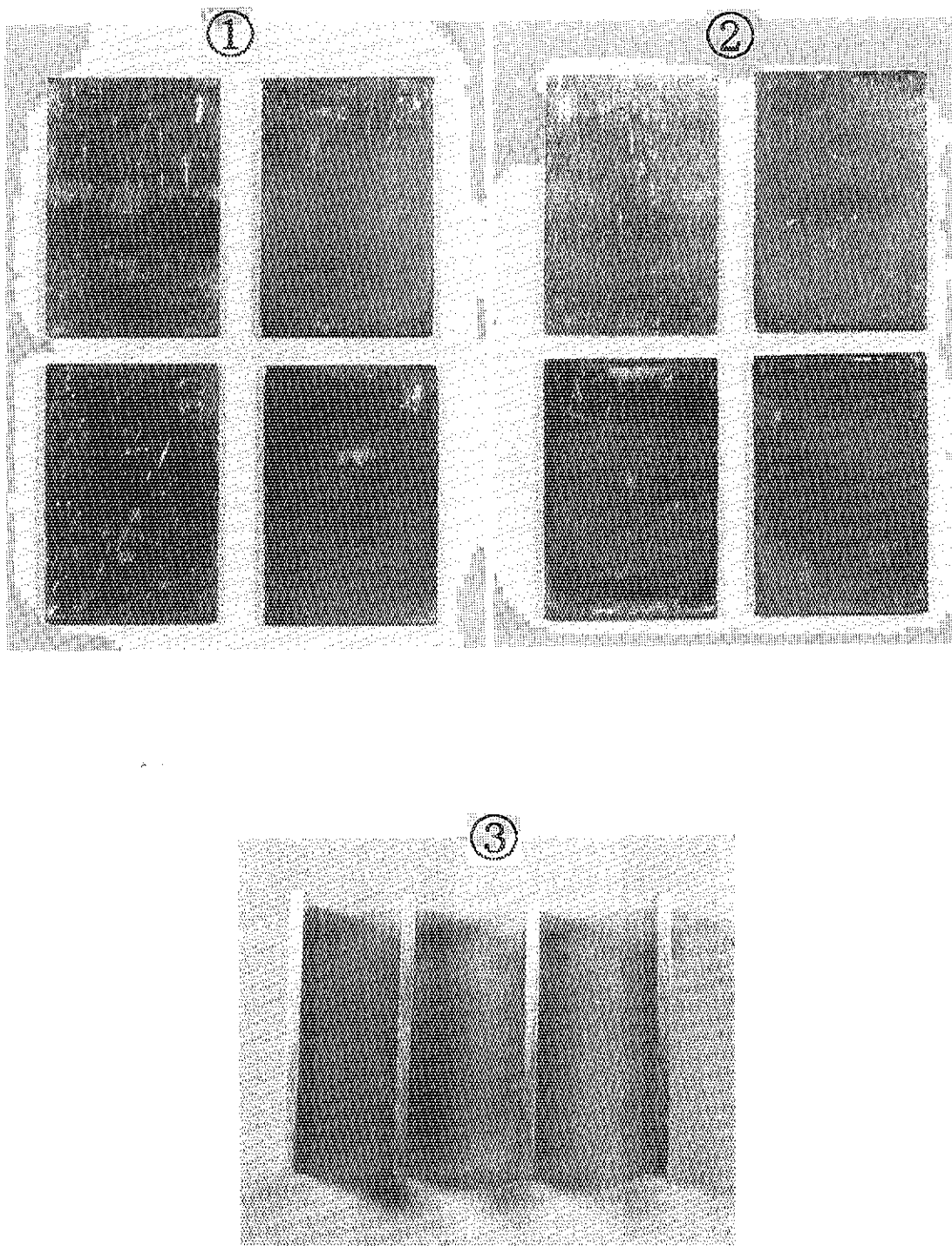


Fig. 24 ミニプレート4枚 (30mm長さ x 20mm幅 x 1.32~1.35mm厚) の外観写真
(表面①・裏面②と側面③)

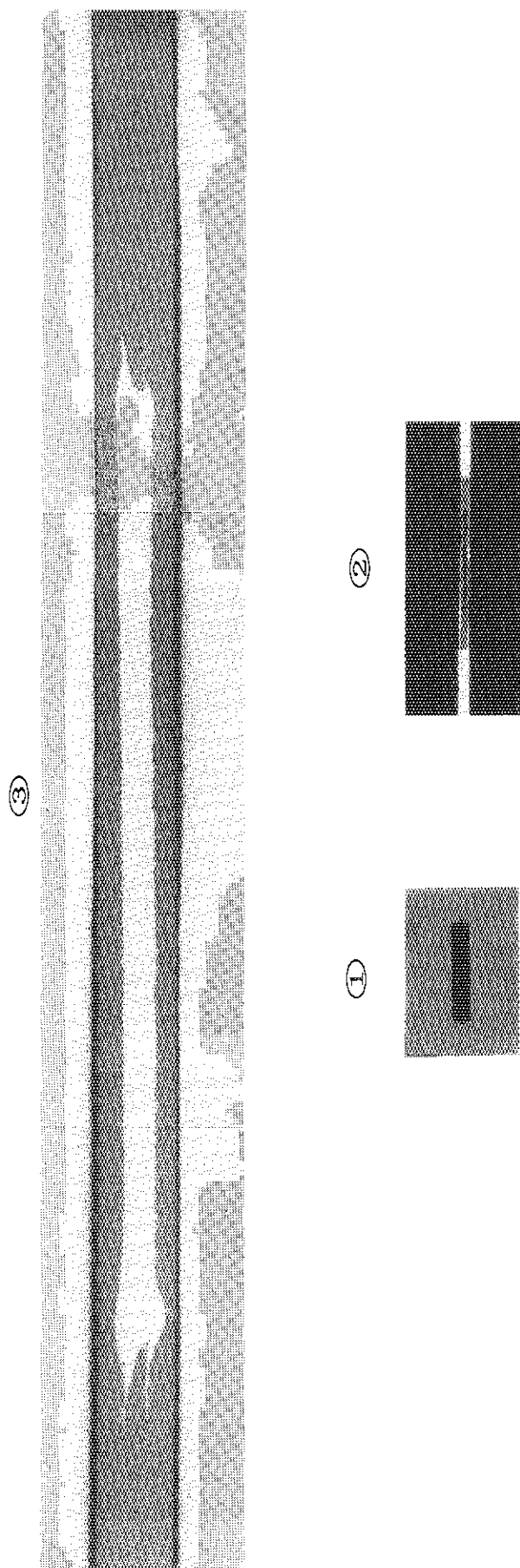


Fig. 25 U_3Si_2-A1 ミニプレート (30mm長さ x 20mm幅 x 1.36厚) の加熱 (ブリスター) 試験 (450°Cで1時間, 空気中加熱) 後のX線透過検査:
表面①, 側面②及び側面からの拡大写真③

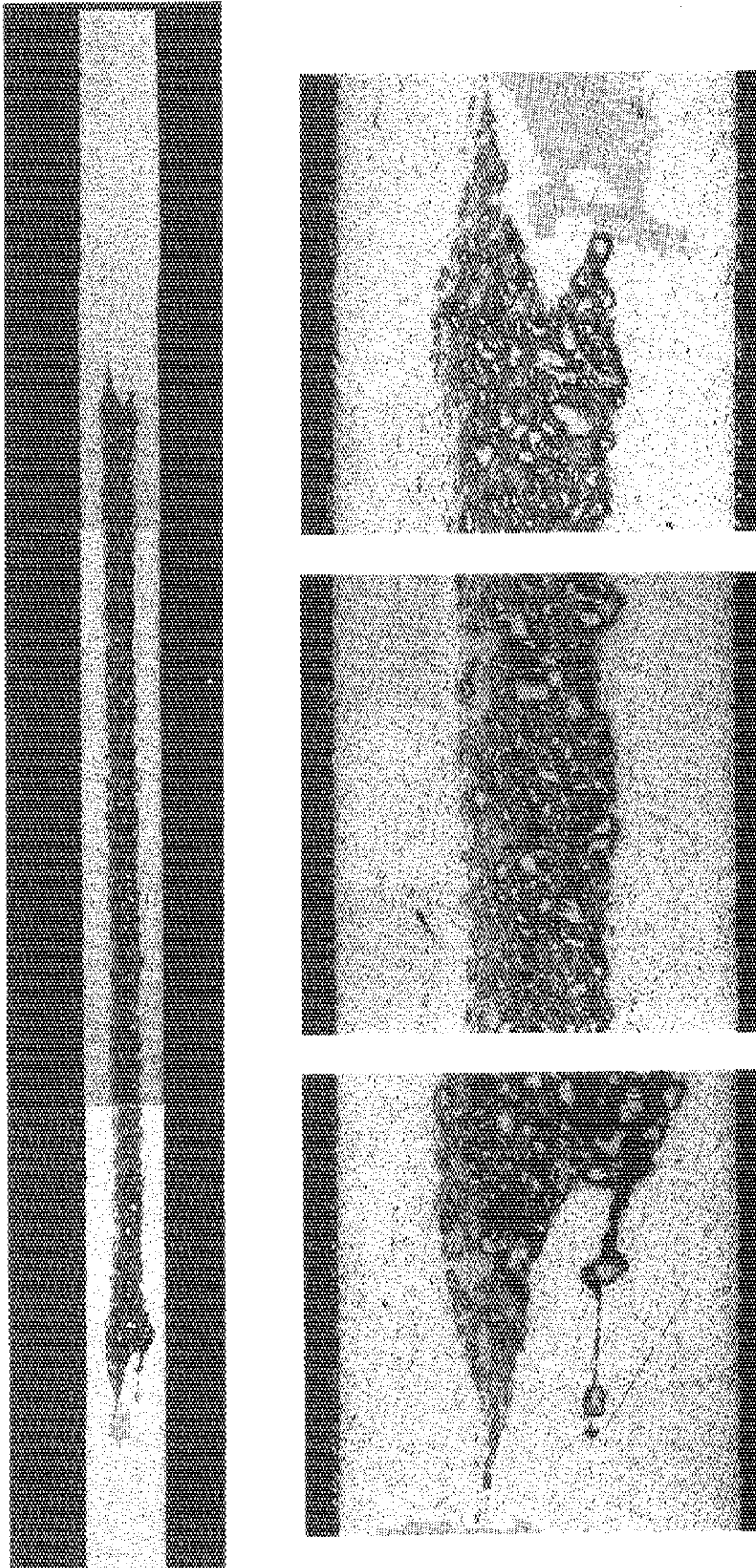


Fig. 26 U_3Si_2 -Alミニプレート (Fig. 25と同一試料) の加熱試験後の
断面組織観察

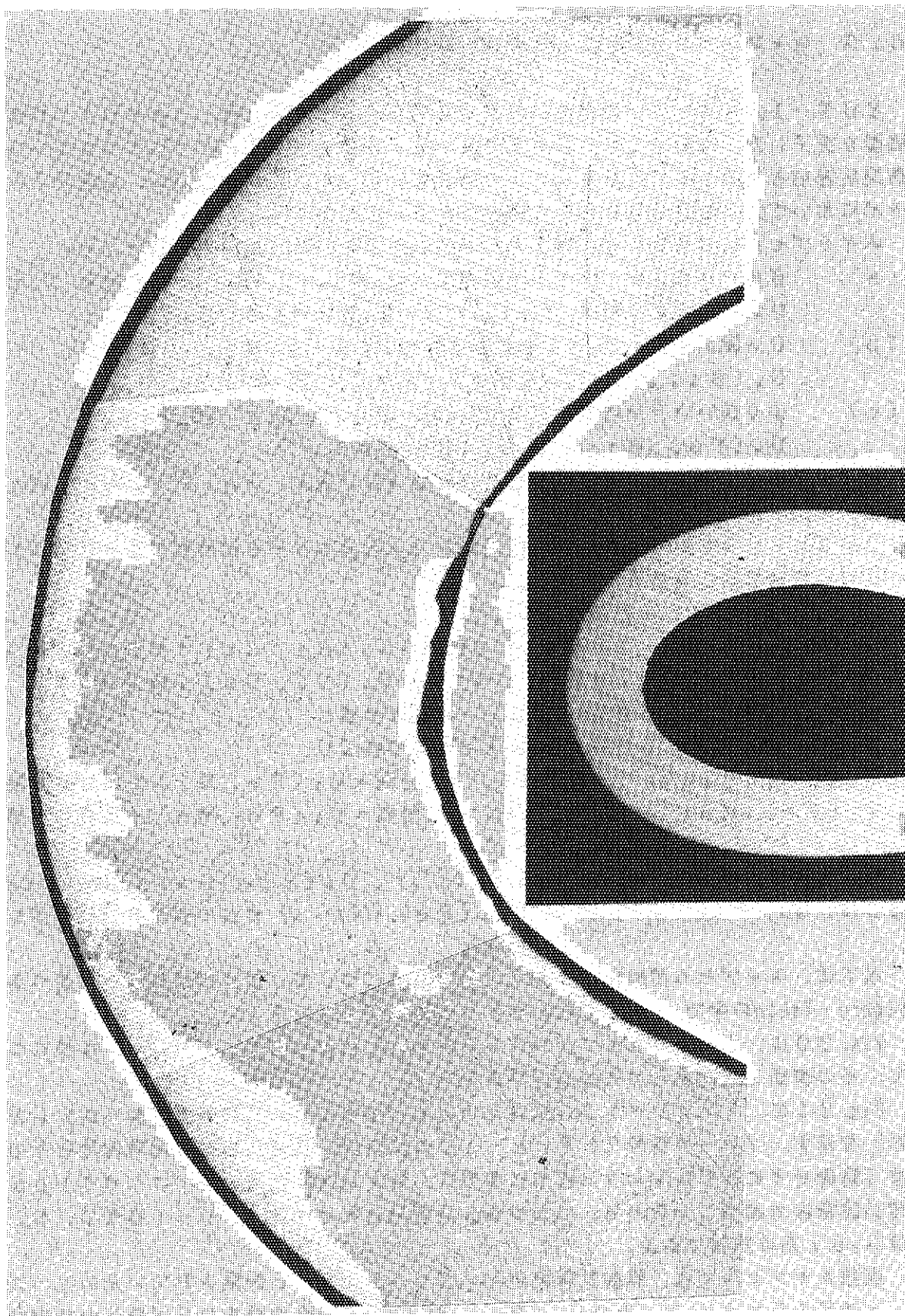


Fig. 27 U_3Si_2 -Alミニプレート剥離試験：
 圧延板端部から採取した被覆材A16061（厚さ1.32mm）を、
 室温でおよそ180度曲げた状態の断面組織

5.2 キャプセル89F-1A用の燃料試料

89F-1A キャプセル用の試料（ミニプレート10枚）は、1990年7月迄に調製を完了した。次いで1990年11月から1992年7月迄、JMTRにおいて高燃焼度達成を目的として10サイクルの照射を終了した。照射後試験は、大洗研ホットラボにおいて、1993年6月から開始される予定である。

本キャプセルに包含されるミニプレート型燃料の組成は、以下の3種である。

- (a) 88F-2Aキャプセルと同組成の U_3Si_2 、 $U_3Si_2 + 20\text{wt}\% U_3Si$ 、 $U_3Si_2 + 20\text{wt}\% USi$ 、Mo (0.5wt%) 添加 U_3Si_2
- (b) Ge添加による U_3Si の改善を目的とした $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$ 、 $U_3(Si_{0.6}Ge_{0.4})$ 及びリファレンス U_3Si
- (c) より高いウラン密度を有する U_6Me 系合金 U_6Mn 、 U_6Ni 、 $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ 、 $U_6(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$

Table 8に、燃料ミート中の燃料粒子の組成（U, Si, Ge, Fe, Ni, Mn含有量）を示す。

上記(b), (c)のそれぞれの低濃縮ウラン合金のアーク溶解後の熱処理条件と存在相の同定結果は、次の通りである。

U_3Si : 850℃、2日間＝单相 U_3Si

$U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$: 850℃、9日間＝ $U_3(Si, Ge)$ + 微量の U_3Si_2

$U_3(Si_{0.6}Ge_{0.4})$: 850℃、9日間＝ $U_3(Si, Ge)$ + 微量の金属U

U_6Mn : 670℃、5日間＝ U_6Mn + 微量の金属U

U_6Ni : 670℃、5日間＝ U_6Ni + 微量の金属U

$U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$: 670℃、10日間＝ $U_6(Fe, Ni)$ + 微量の金属U

$U_6(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$: 670℃、10日間＝ $U_6(Fe, Mn)$ + 微量の金属U

Fig. 28に、 U_3Si 、 $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$ 、 $U_3(Si_{0.6}Ge_{0.4})$ の、またFig. 29に、 $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ 及び $U_6(Fe_{0.6}Mn_{0.4})$ 合金の顕微鏡組織を示した。

以下に、キャプセル照射試料としての製品検査について、検査項目に従って述べる。Figure・Tableの中で1～10は、プレートの識別番号である。

Fig. 30に、JMTRキャプセル89F-1Aに装荷したミニプレート10枚について、その表面と側面からのX線透過写真を示す。

Fig. 31に、ミニプレート10試料について、側面からのX線透過写真（拡大したもの）を示す。プレート番号7、8、9、10の試料は、合金からなる燃料薄片をそのまま（粉碎せずに）アルミニウム粉末に埋め込んでプレスしたものを、コンパクトとして用い額縁法で調製したもので、いわゆる分散型燃料ではない。プレート番号7、8、9は U_3Si 系の試料である。

当該キャプセルでは、照射試料数がミニプレート10枚と制限されていたので、プレート番号10では U_6Ni 及び $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ 合金は粉末化せず薄片の状態と一緒に組込まれた。プレート番号10については、Fig. 31で上部が U_6Ni 、下部が $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$

($\text{Fe}_{0.4}\text{Ni}_{0.6}$)である。

Fig. 31から、燃料薄片は圧延過程で分割・切断され圧延方向に分散しているのが分る。

プレートNo. 1～6については、X線透過写真から燃料ミート内でのウランの均一分散性及び燃料ミートと被覆材との結合性が良好なことが分る。しかし、拡大写真(Fig. 31)で明らかのように、プレートNo. 6でドッグボーンの程度が比較的大きい。一方、88F-2Aキャプセルと同様に、燃料ミートの先端の上下部分が圧延方向に流れる傾向を示している。

一般に圧延過程では、燃料ミートから離れて被覆材中に迷い込んだ U_3Si_2 粒子、いわゆる“Stray particle”を生ずる場合がある⁽³⁾。これは、燃料コンパクトの端部が割れて燃料粒子あるいは燃料ミートの一部が剥離し被覆材中に巻き込まれることに起因している。これらの粒子は、X線透過写真(ポジ)では白い点として観察される。この白点(White spots)は実質的な被覆の厚みを薄くするので、実用燃料では好ましくなくその大きさや存在範囲が制限されている。今回調製した88F-2A及び89F-1A用試料には、白点が圧延方向の先端部に若干認められたが燃料ミートの厚み方向には観察されていない。

Fig. 32に、ミニプレート10枚の外観写真(表面・裏面と側面)を示す。10枚とも板のたわみは極めて少なく、以下に述べる寸法測定結果とも合せると、ミニプレートの平板度・表面平滑度はともに良好である。

Table 9に、燃料ミート中の燃料組織、総ウラン量、 ^{235}U 量、ボイド率、ウラン密度を示す。 ^{235}U 量、ウラン密度($4.0 \sim 6.3 \text{ gU/cm}^3$)、ボイド率($11.0 \sim 16.0\%$)とも妥当な値が得られている。このTableから分るように U_3Me 系合金では、 6.0 gU/cm^3 以上のウラン密度のミニプレートが、通常用いられる粉末冶金による額縁法で容易に調製できることが実証された。これは、前に述べたように U_3Me 系合金の粒子化が容易であるという技術的メリットによるものである。

比較対象となる $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$ 板状燃料では、通例 6.0 gU/cm^3 程度がウラン密度のターゲットとなる(既述のように $\text{U}_3\text{Si}_2-\text{Al}$ 板状燃料では $\sim 4.8 \text{ gU/cm}^3$)。 U_3Si ボタンの粒子化は、 U_3Si_2 とは対照的に極めて困難である。大量製造を余儀なくされる商業ベースでは、これが一つの技術上の課題となっている。

U_3Si の粉末化には、切削・細粒化法の採用あるいはアトマイズ法等の新しい方法が実施もしくは提案・試験されているが、何れも調製工程を複雑化するのは免れない。著者らは、グローブボックス内で U_3Si ボタンを鋼鉄製ヤスリを用いて削ることにより粒子化する方法を試みた。削ることは可能であったが、粒子の形状は扁平で、表面状態はギザギザしており不純物(鉄)の混入もあり、好ましい粒子は得られなかった。

Table 10にコンパクト作製に用いた燃料粒子の粒度分布を $45 \mu\text{m}$ 以下、 $45 \sim 75 \mu\text{m}$ 、 $75 \sim 106 \mu\text{m}$ 、 $106 \sim 150 \mu\text{m}$ に分けて示す。

Table 11に、ミニプレートの総重量、フレーム/カバー重量及び燃料ミート重量、燃料ミート中のアルミニウム重量をそれぞれ示す。

Table 12に、マイクロメーターによるミニプレートの外形寸法(幅、長さ、厚さ)の測定結果を示す。各ミニプレートの厚みは、 $1.30 \sim 1.35 \text{ mm}$ の範囲であった。特

に重要な板の場所による厚みの違いは ± 0.010 mm以内で、88F-2Aより若干悪いが、ほぼ満足な値であった。

Table 13に、X線透過写真の密着及び10倍拡大写真を用いた、ノギスによる燃料ミートの寸法（幅、長さ、厚さ）測定結果を示す。燃料ミートの厚みは、端部を除いた平坦部では $0.62 \sim 0.68$ mmである。端部の厚みは、プレートNo.1, 2, 4を除いて、やや大きく $0.81 \sim 0.98$ mmでる。燃料ミートの幅は、ミニプレート間の差は無く 3.2 mmと一定である。また、燃料ミートの長さは $18.8 \sim 19.0$ mmである。圧延前の燃料コンパクトの幅と長さは、それぞれ 3.0 、 5.0 mmであった。従って、圧延による幅方向の伸び率は 6.7% とほぼ一定であり、長さ方向の伸び率から計算した圧延率は、約 $73 \sim 74\%$ となる。

燃料ミート部の被覆材の厚みは、全体として $0.15 \sim 0.30$ mmの範囲にあり燃料ミートの平坦部に限定すると $0.22 \sim 0.30$ mmである。プレートNo.6では、ドッグボーンの発生が顕著なため被覆材の厚さは 0.15 mmと薄くなっている。

最近では、 U_3Si_2 -Al分散型燃料板の ^{235}U 装荷量を高めるために従来よりも燃料ミートを厚くしようという試みがある。それは、被覆材の厚みを従来の $0.3 \sim 0.4$ mm（例えば、JMT-Rでの設計値は 0.38 mm）に対して、 $0.2 \sim 0.3$ mmという薄い被覆材（Thin clad）にした燃料板の開発研究である。

Table 7とTable 13のプレートNo.1～4から分るように、燃料ミートの厚みあるいはミート部の被覆材の薄さという観点では、意図的に作ったものではないが、89F-1Aの方が88F-2Aよりも全体とし“Thin clad”の傾向を持っている。

Table 8 JMTR照射キャプセル89F-1Aに装荷したミニプレートの
燃料の組成 (U, Si, Ge, Fe, Ni, Mn含有量)

プレート No.	組成 (wt %)					
	U	Si	Ge	Fe	Ni	Mn
1	92.7	7.3	0.0	0.0	0.0	0.0
2	92.0	8.0	0.0	0.0	0.0	0.0
3 ^{*1}	92.2	7.3	0.0	0.0	0.0	0.0
4	93.4	6.6	0.0	0.0	0.0	0.0
5	96.3	0.0	0.0	0.0	0.0	3.7
6	96.3	0.0	0.0	2.2	0.0	1.5
7	96.2	3.8	0.0	0.0	0.0	0.0
8	95.1	3.0	1.9	0.0	0.0	0.0
9	94.0	2.2	3.8	0.0	0.0	0.0
10 ^{*2} ^{*3}	96.1 96.1	0.0 0.0	0.0 0.0	0.0 1.5	3.9 2.4	0.0 0.0

* アーク溶解時の公称値

*¹ Mo含有量 = 0.5 wt%

*² U₈Ni

*³ U₆Fe_{0.4}Ni_{0.6}

Table 9 燃料ミート中の燃料組織, 総ウラン量, ^{235}U 量, ボイド率, ウラン密度

プレートNo.	燃料組織	総ウラン量 (g)	^{235}U 量 (g)	ボイド率 (%)	ウラン密度 (g U/cm^3)
1	U_3Si_2	0.1408	0.0273	13	4.0
2	$\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{USi}$	0.1389	0.0269	11	4.0
3*	$\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{U}_3\text{MoSi}_2$	0.1454	0.0282	11.4	4.15
4	$\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{U}_3\text{Si}$	0.1515	0.0294	13	4.4
5	U_6Mn	0.2105	0.0408	13	6.3
6	$\text{U}_6\text{Fe}_{0.8}\text{Mn}_{0.4}$	0.2065	0.0401	16	6.0
7	U_3Si	0.0402	0.0078	-	-
8	$\text{U}_3\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.2}$	0.0366	0.0071	-	-
9	$\text{U}_3\text{Si}_{0.8}\text{Ge}_{0.4}$	0.0357	0.0069	-	-
10	$\text{U}_6\text{Ni} + \text{U}_6\text{Fe}_{0.4}\text{Ni}_{0.8}$	0.0374	0.0073	-	-

*¹ Mo含有量 = 0.5 wt %

Table 10 燃料コンパクト作製時の燃料粒子の粒度分布

プレートNo.	粒 度 分 布* (w t %)				
	150~106 μ m	106~75 μ m	75~45 μ m	45 μ m	<45 μ m
1	37	24	21		19
2	41	21	21		17
3	38	22	21		19
4	36	24	21		19
5	36	25	20		19
6	39	22	20		19

*アルミニウム粉末との混合時の粒度分布

Table 11 ミニプレートの重量：プレート総重量，フレーム／カバー重量，燃料ミート重量，燃料ミート中のアルミニウム重量

プレートNo.	総重量 (g)	フレーム重量 (g)	燃料ミート重量 (g)	アルミニウム重量 (g)
1	2.2204	2.0222	0.1982	0.0463
2	2.2518	2.0523	0.1995	0.0485
3	2.2223	2.0160	0.2063	0.0486
4	2.2641	2.0556	0.2085	0.0463
5	2.2784	2.0144	0.2640	0.0454
6	2.3152	2.0556	0.2596	0.0450
7	2.1465	2.1047	0.0418	--
8	2.1198	2.0813	0.0385	--
9	2.1392	2.1012	0.0380	--
10	2.1450	2.1061	0.0187 ^{*1} 0.0202 ^{*2}	-- --

*1 ${}^{\text{U}}_{\text{e}}\text{Ni}$ の重量*2 ${}^{\text{U}}_{\text{e}}\text{Fe}_{0.4}\text{Ni}_{0.6}$ の重量

Table 12 マイクロメーター測定によるミニプレートの外形寸法 (幅, 長さ, 厚さ) の測定結果

プレート No.	幅 (mm)	長さ (mm)	厚 ざ * (mm)							平均 ①~④/⑤~⑦
			①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	
1	19.9 ₅	30.0	1.308	1.309	1.314	1.312	1.309	1.312	1.313	1.311 1.311
2	20.0	30.0	1.335	1.336	1.325	1.334	1.336	1.334	1.322	1.333 1.331
3	19.9 ₅	30.0	1.315	1.307	1.315	1.310	1.305	1.311	1.310	1.312 1.309
4	20.0	30.0	1.321	1.321	1.322	1.323	1.324	1.326	1.327	1.322 1.326
5	20.0	29.9 ₅	1.319	1.310	1.318	1.310	1.310	1.306	1.311	1.316 1.309
6	19.9 ₅	29.9	1.339	1.335	1.339	1.338	1.343	1.346	1.346	1.338 1.345
7	20.0	30.0	1.320	1.317	1.324	1.323	1.316	1.324	1.323	1.321 1.321
8	19.9	29.9 ₅	1.320	1.314	1.305	1.310	1.320	1.324	1.313	1.312 1.319
9	19.9 ₅	29.9 ₅	1.322	1.323	1.319	1.316	1.328	1.336	1.308	1.320 1.324
10	19.9 ₅	30.0	1.326	1.325	1.330	1.331	1.328	1.334	1.331	1.328 1.331

※厚さ測定位置は、88F-2Aの場合と同じである。

Table 13 X線透過写真の密着及び10倍拡大写真を用いた、ノギスによる燃料ミートの寸法（幅、長さ、厚さ）測定結果

プレートNo.	燃料ミート厚さ * ¹ (mm)		燃料ミート * ² (mm)		被覆材（薄肉部分）厚さ * ¹ (mm)	
	左端部（最大）	中央部	幅	長さ	左端部（最大）	中央部
1	0.77	0.65	3.2	19.0	0.22	0.28
2	0.72	0.64	3.2	18.8	0.25	0.30
3	0.81	0.62	3.2	18.8	0.20	0.28
4	0.70	0.62	3.2	19.0	0.30	0.30
5	0.76	0.68	3.2	19.0	0.26	0.22
6	0.98	0.64	3.2	18.8	0.15	0.30
7	0.21	-	3.0	12.5	0.45	-
8	0.19	-	3.0	12.3	0.42	-
9	0.20	-	3.0	11.7	0.48	-
10	0.20	-	2.9	12.8	0.50	-

*1 燃料ミート及び被覆材厚さは、X線透過写真（側面、10倍拡大）よりノギスを用いて測定した。

*2 プレート10については、プレートの上部に U_0Ni 、下部に $U_0Fe_{0.4}Ni_{0.6}$ が存在する。番号10は、この部分の密着を測定した。燃料ミートの寸法（幅、長さ）は、X線透過写真（平面、密着）よりノギスを用いて測定した。プレートNo. 7~10は、ミートが薄板状で分割・分散しているため、最大値を記載した。

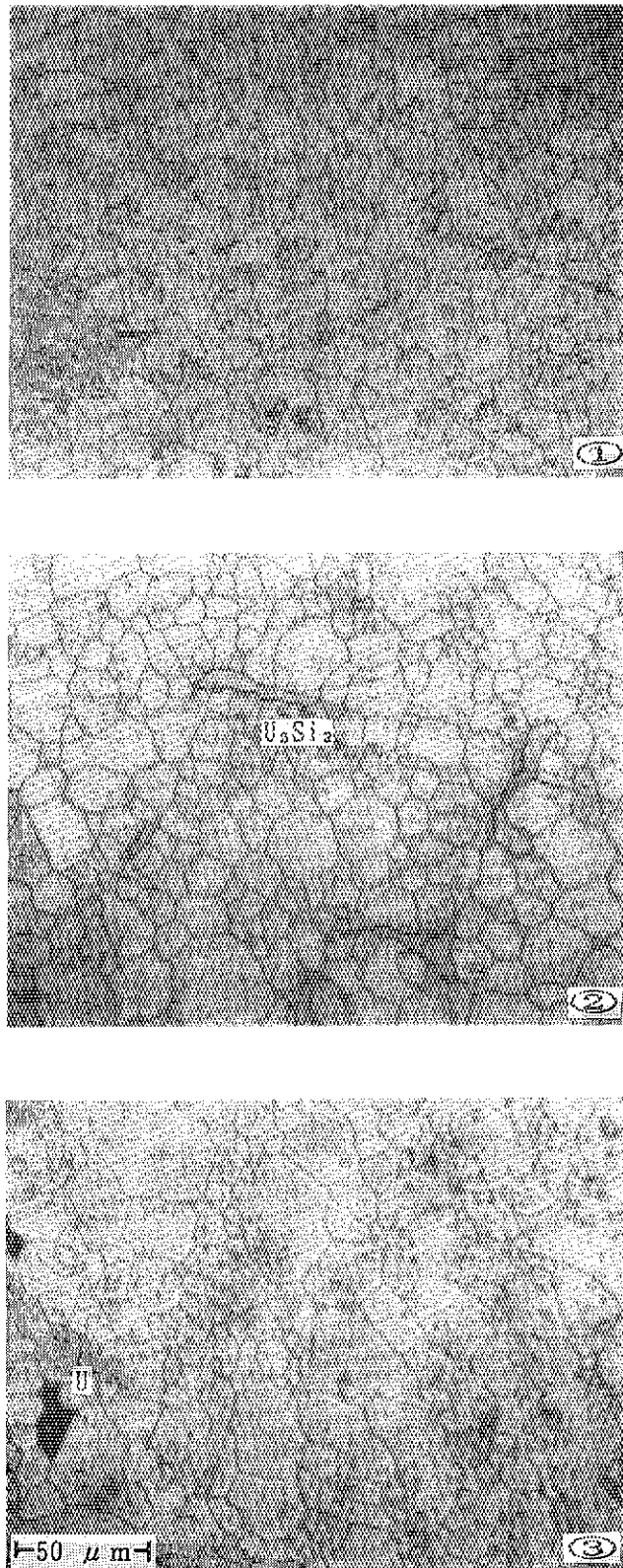


Fig. 28 U_3Si (①), $U_3(Si_{0.8}Ge_{0.2})$ (②) 及び $U_3(Si_{0.6}Ge_{0.4})$ (③) 各合金の顕微鏡組織:

②: 部分的に微量の U_3Si_2 を含む, ③: 部分的に微量の金属 U を含む

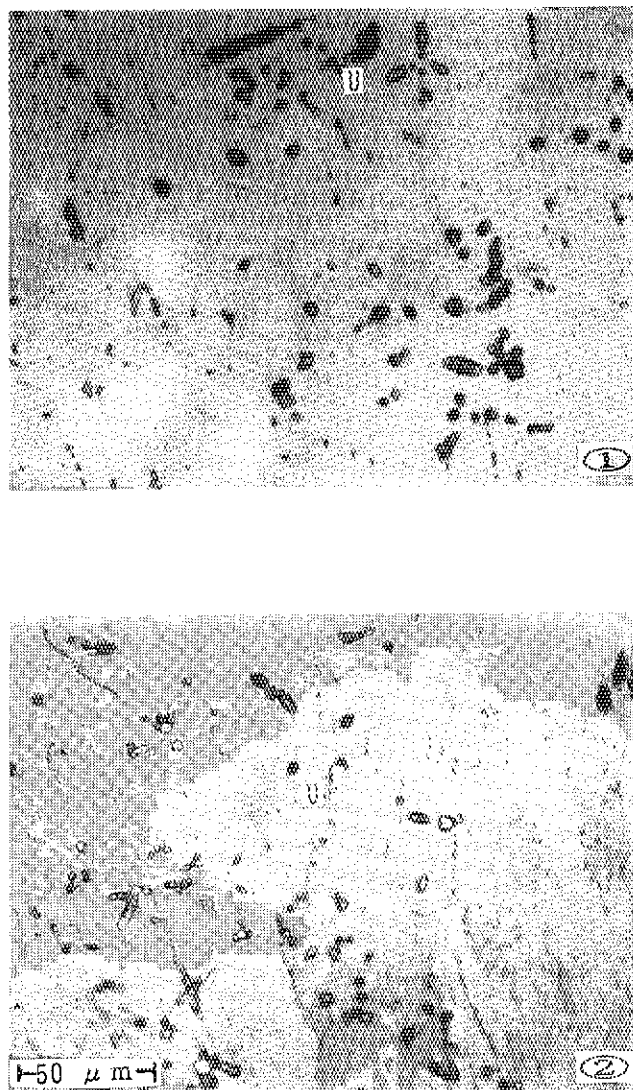


Fig. 29 $U_6(Fe_{0.4}Ni_{0.6})$ (①) 及び $U_6(Fe_{0.8}Mn_{0.4})$ (②) 合金の顕微鏡組織:

①, ②: 部分的に微量の金属Uを含む

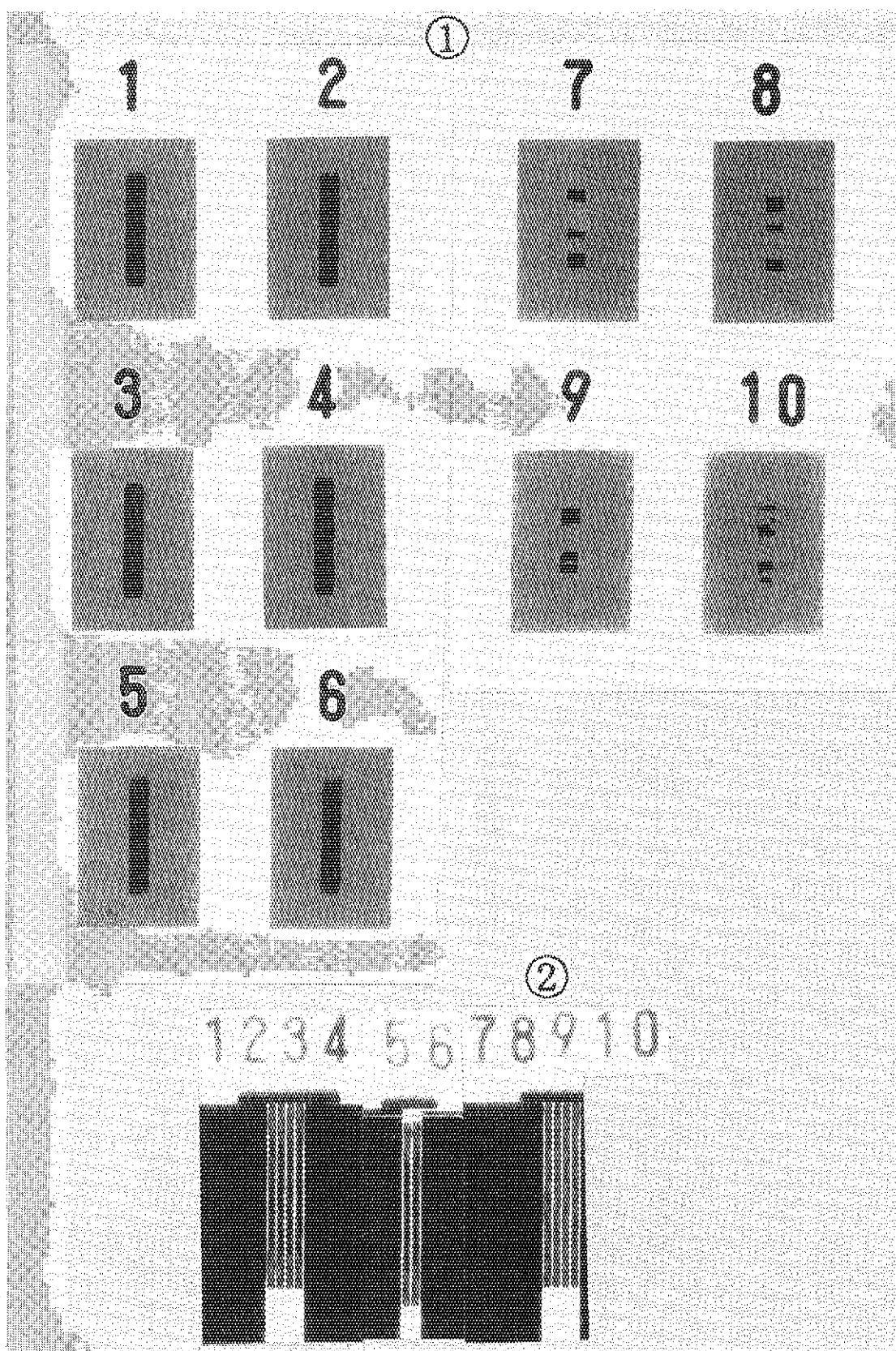


Fig. 30 J MTR照射キャプセル89F-1 Aに装荷したミニプレート10枚
の表面 (①) と側面 (②) からのX線透過写真

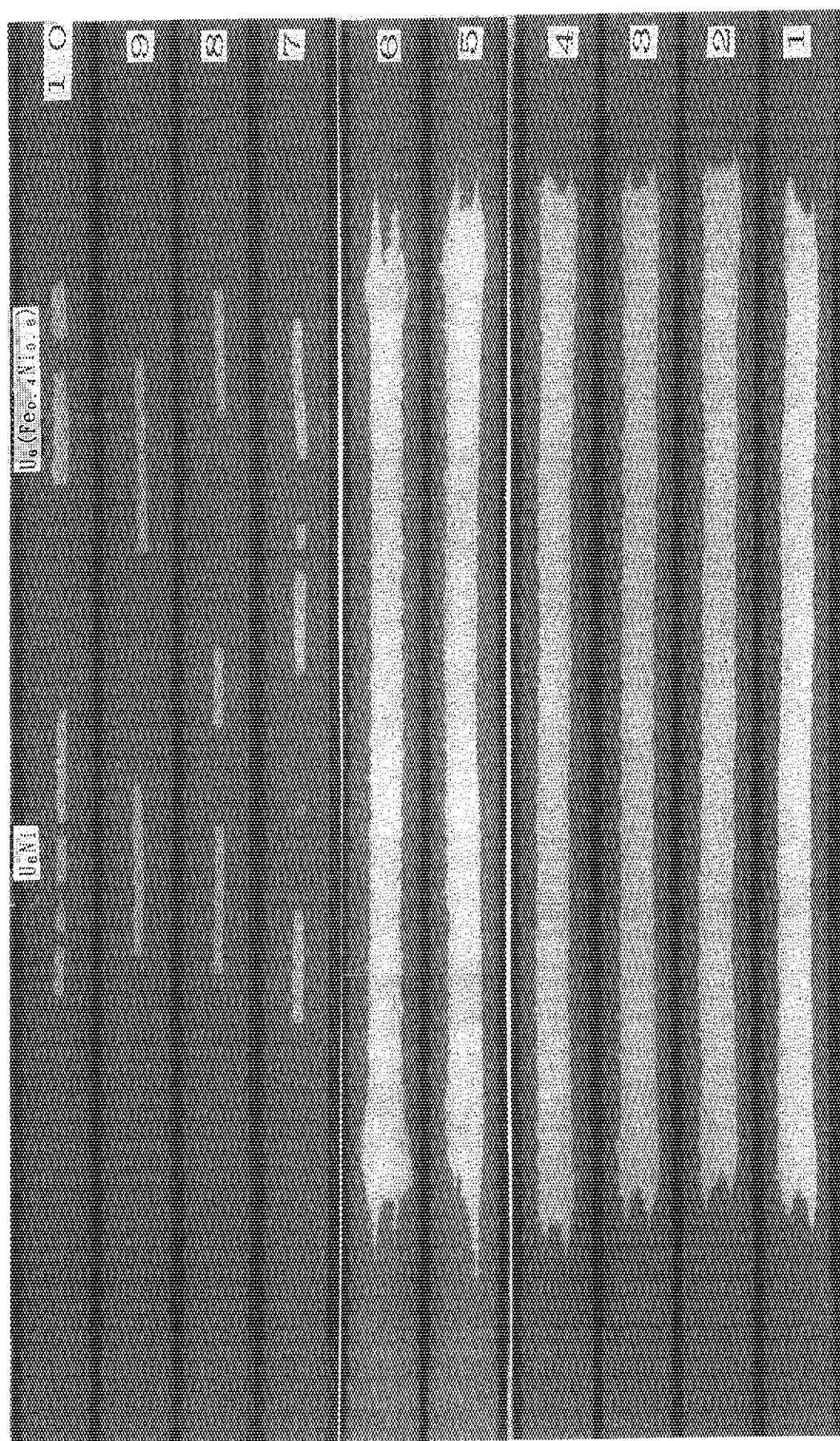


Fig. 31 ミニプレート10試料の側面からのX線透過写真 (拡大写真)

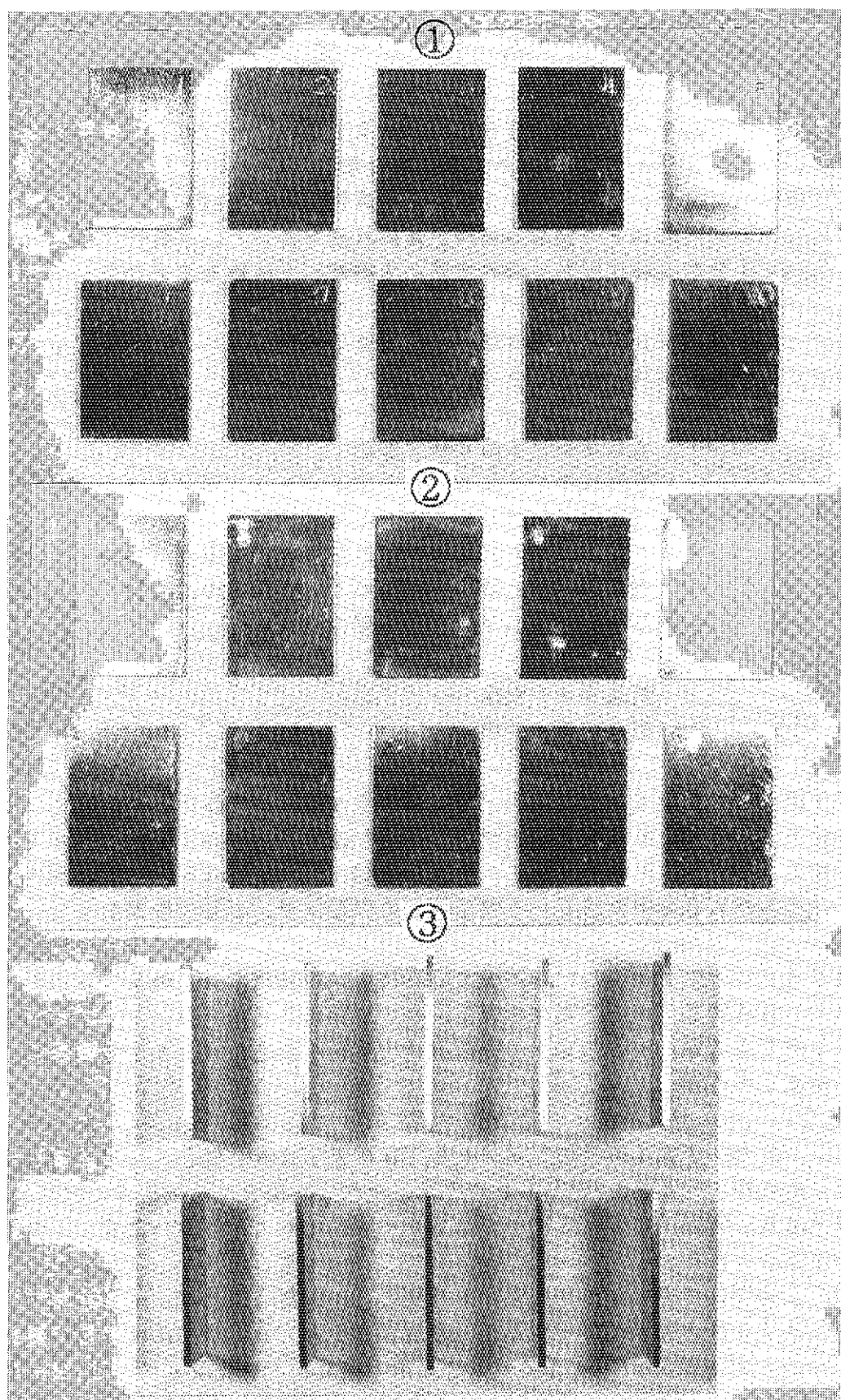


Fig. 32 ミニプレート10枚 (30mm長さ x 20mm幅 x 1.30~1.35mm厚) の外観写真
(表面①・裏面②と側面③)

6. 結 論

JMTR密封照射キャプセル(88F-2A及び89F-1A)に装荷することを目的として、U-Si系及びU₃Me系合金を含む板状燃料(ミニプレート)を粉末冶金の手法で額縁(ピクチャーフレーム)法により調製した。U₃Si₂-Al分散型板状燃料については、国内的にその調製の経験が無い状態であった。本報告は、実験室規模のU₃Si₂-Al分散型板状燃料を国内で初めて調製した経験をまとめたものである。

キャプセル照射試料としての照射前の製品検査の結果、ミニプレートについて以下の点で満足すべき照射試料が調製できた。

- ・ ミニプレートの寸法・形状
- ・ 燃料粒子のアルミニウムマトリックスへの均一分散性
- ・ 燃料粒子とアルミニウムとの密着性
- ・ アルミニウムに対する燃料粒子の相安定性の維持
- ・ 燃料ミートと被覆アルミニウム合金との結合性
- ・ 被覆アルミニウム合金相互の結合性
- ・ ²³⁵U含有量
- ・ 到達ウラン密度
- ・ 製造時ボイド率

高温・空気中において活性な燃料/アルミニウム粉末の圧粉体とアルミニウム合金とを酸化させずにどのようにして冶金学的な結合を達成させるか、3枚のアルミニウム合金板を高温の空気中で結合させ得るか、また強制冷却下にある回転可能な燃料試料直近でのアルミニウム合金の溶接という機器性能の問題など、当初の課題を一つ一つ克服できた。

調製の各プロセスで微視的に起こっている冶金学的諸現象は、物質の取扱量・装置の規模に拘わらず同じであると考えられる。ここで開発した技術は、ミニプレートを対象としたものであるが、実機用のAl分散型板状燃料を製造しようとする場合に、有益な情報を与えるだろう。

なお、シリサイド系1体目のキャプセル(88F-2A)は、JMTRで5サイクルの照射(燃焼度:~42%²³⁵U)を完了し、現在JMTRホットラボで照射後試験を実施中である。照射下におけるウランシリサイド系燃料のふるまいに関する貴重なデータが得られつつある。

また、JMTRで平成4年7月まで10サイクル照射(燃焼度:~60%²³⁵U)されたシリサイド系2体目のキャプセル(89F-1A)は、現在JMTRで照射後試験のため冷却中である。ウランシリサイドの他、超高密度ウラン燃料 U₃Me (Me=Fe, Ni, Mn) が含まれており、これら新しい燃料物質の照射特性の解明が待たれる。

謝 辞

本実験が当初のスケジュールに沿って遂行できたのは、技術部工作課、材料試験炉部計画課、照射一課及び検査技術課の関係の皆様の御助言と御協力による所が大きい。本報告書を作製するにあたり、原子炉安全工学部・反応度安全研究室の柳澤和章主任研究員に種々コメントを頂いた。

また、東海研究所近藤達男副所長（元燃料・材料工学部長）、燃料研究部立川圓造部長、半田宗男次長並びに小川徹融体・燃料プロセス研究室長に御激励を賜った。

以上の方々に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- [1] J. M. Beeston, R. R. Hobbins, G. W. Gibson and W. C. Francis,
"Development and irradiation performance of uranium aluminide fuels in
test reactors", Nucl. Tech.49(1980) p.136-149
- [2] W. Dienst, S. Nazare, and F. Thummler, "Irradiation behavior of UAl_x -Al
dispersion fuels for thermal high flux reactors",
J.Nucl. Mater. 64(1977)1
- [3] U.S.Nuclear Regulatory Commission, Office of Nuclear Reactor Regulation
NUREG-1313
"Safety Evaluation Report related to the evaluation of
low-enriched uranium silicide-aluminum dispersion fuel for use in
non-power reactors" (July 1988)
Appendix A: J. L. Snelgrove et al. ANL/RERTR/TM-11 (1987)
"The use of U_3Si_2 dispersed in aluminum in plate-type fuel elements
for research and test reactors"
Appendix B: H. G. L. Copeland et al. ANL/RERTR/TM-10 (1987)
"Performance of low-enriched U_3Si_2 -aluminum dispersion fuel elements
in the Oak Ridge research reactor"
- [4] 宇賀神、伊藤、赤堀、井川 "キャプセル照射用シリサイド燃料の調製"
日本原子力学会、秋の分科会(1989年、10月) 要旨集 No. K57
- [5] M. Ugajin, A. Itoh, M. Akabori,
"Basic research on high uranium density fuels for research and test
reactors", Presented at the 3rd Asian symposium on research and test
reactors, (Hitachi) November 1991: JAERI-M 92-028 (March 1992) p.393-400
- [6] R.F. Domagala et al., "U-Si and U-Si-Al dispersion fuel alloy
development for research and test reactors", Nucl.Technol. 62(1983)353
- [7] B. R. T. Frost., "Nuclear fuel elements: design, fabrication and
performance", Pergamon press, 1982
- [8] R.F. Domagala, "Phases in U-Si alloys", Int. Mtg. on Reduced Enrichment
for Research and Test Reactor, Gatlinburg, TN, 3-6 November, 1986
- [9] T. B. Massalski et al. ed.

"Binary alloy phase diagrams, second edition", 1990

- [10] P.E. Potter, in GMELIN 1983, U Suppl. Vol. C13, 15 "Uranium and Silicon"
- [11] R. K. Williams et al., "Thermal conductivities of U_3Si and U_3Si_2 -Al dispersioin fuels", CONF-851021-1
- [12] P. Chiotti et al. "The chemical thermodynamics of actinide elements and compounds, Part 5 The actinide binary alloys", IAEA, Vienna 1981
- [13] D. F. Sears, The 14th Int. Mtg. on Reduced Enrichment for Research and Test Reactor, 4-7 November, 1991 Jakarta, Indonesia
"Development and irradiation testing of Al- U_3Si_2 fuel at Chalk River laboratories"
- [14] A. E. Dwight, ANL-82-14 (September, 1982), "A study of the uranium-aluminum-silicon system"
- [15] H. Sakai, T. Iwai, A. Sakakura, M. Saito, Int. Mtg. on RERTR (1986),
"Post-irradiation examination of LEU miniplates in the JMTR"
- [16] T.C. Wiencek et al., "Thermal compatibility studies of unirradiated uranium silicide dispersed in aluminum", Nucl. Technol. 71 (1985) 608
- [17] S. Nazare J. Nucl. Mater. 124 (1984) 14,
"Low enrichment dispersion fuels for research and test reactors"
- [18] R.F. Domagala et al., "Differential thermal analysis of U_3Si -Al and U_3Si_2 -Al reactions", Am. Cer. Soc. Bull. 65(1986)1164
- [19] 大岡、金谷、江藤、山下、"高温における U_3Si_2 とアルミニウムの両立性に関する炉外試験"、軽金属溶接 Vol.28(1990), No. 8 P.339-347
- [20] 宇賀神、JAERI-memo(公開) 第2544 (Dec., 1966) "Al-U合金の超音波鑄造"
- [21] M. Ugajin, JAERI-M 91-069 (May 1991),
"Basic program to compute uranium density and void fraction in laboratory-scale uranium silicide aluminum dispersion plate-type fuel"
- [22] 宇賀神、伊藤： 未発表

付録 調製ラインの各機器の主な仕様・性能

1. アーク溶解炉

大亜真空技研(株)製 ACM-01型

溶解用電源 ダイヘン製 MRH-500型:

1次電圧/相数=200V/3 ϕ

定格1次入力 23.0 kVA

出力電流 10~500 A

出力電圧 24 V

アークスターター: 火花発振式直列重畳形高周波発生装置

溶解炉(縦型水冷ジャケット溶解室)本体寸法: 8B x 高さ240 mm

材質 SUS 304

到達真空度: 3×10^{-8} mmHg

電気容量(最大): 200 A x 30 V

陰極: 水冷タングステン棒(直径 10 mm, 長さ 60 mm)

電極絶縁ユニバーサルシール方式により溶解操作過程で上下・水平方向に移動可能

陽極: 水冷銅ハース、ボタン5個溶解可能

溶解量: ボタンの大きさ=直径約15, 25, 30 mm x 厚さ10 mm

付属品: 反転棒(ACM-01-RB-8型)、連成計、ガス導入系

排気系: 回転ポンプの排気系に乾式トラップ(大阪空気機械(株)製 T-200型)
付属

2. 燃料・アルミニウム粉末取扱用グローブボックス

(1) グローブボックス本体

本体の寸法: 幅190x奥行き80~60x高さ100 cm 2基(以下 GB-A、Bと表記する)

GB-A、Bは接続ポート(30 ϕ x 30cm)で連結

本体の材質: 主要部 SUS 304(厚さ 4 mm)、窓 透明アクリル(厚さ 10 mm)

グローブ ネオプレン(厚さ 0.4 mm)

準備室: 30 ϕ x 30cm、真空排気可能な構造

気密扉: 準備室及び接続ポートの両側に計 6枚

架台の高さ: 80 cm

配管系: 主循環系 40A(内径 41.6mm ϕ 、SUS 304)真空排気系 20A(内径 21.6mm ϕ 、SUS 304)

配管距離: グローブボックス~循環精製装置間 約 9 m(片道)

ダストの除去: プレフィルター(グラスウール)及びHEPAフィルター

流量計: 最大目盛 500 l/min 3本(GB-A、Bの入口側及びバイパス系に設置)

循環流量 : 最大 900 l/min (GB-A、B 合計)、換気回数 約 20 回/h

(2) 循環精製装置

米国、Vacuum Atmospheres Company 製、MO40-2V型 循環精製装置

ブロー能力: アルゴン 1.13 m³/min

精製筒 : 2 筒 (運転・再生交互使用)

精製剤 酸素 銅分散アルミナ粒子、水分 モレキュラシーブ

精製能力 酸素 1 ppm 以下、水分 1 ppm 以下

精製容量 酸素 10.4 l (STP)、水分 225 g、(1筒当り)

圧力調節 : 設定範囲 ± 127 mmH₂O、上下限 2 位置制御

リーク速度 : 3×10^{-10} cm³/sec 以下

(3) 不純物分析及び到達不純物濃度

酸素分析計 (米国、Delta F corporation 製 Oxygen meter type A、KOH 水溶液
電気化学セル方式)

測定範囲 : 0~10/0~100/0~1000 ppm O₂ (3レンジ切換)

所要ガス流量: 0.23~1.35 l/min (サンプルガス吸入用ポンプ付)

ガス採取位置: GB-A、B 出口及び循環精製装置出口

水分計 (英国、SHAW社製 SHA-3C型、水蒸気感応エレメントのインピーダンス測定方式)

測定範囲 : 露点 -80 ~ 0 °C (アナログメーター表示: 1~ 6000 ppm)

検出器位置 : GB-A、B 上部及び循環精製装置出口

グローブボックス・主循環系の酸素リーク速度: -60 mmH₂O において、約 10 ppm/h
(循環精製装置系を除いて測定)

グローブボックスの到達不純物濃度: 酸素 3 ppm 以下、水分 20 ppm 以下
(次項で述べる内装機器を収納した通常の使用条件下で測定)

3. グローブボックス内装機器

(1) ジョークラッシャー (独、Retsch社製、BB0型)

ジョー材質: タングステンカーバイド (WC) コーティング鋼鉄

粉碎ギャップ幅: 0~10 mm 可変

試料投入口: 65x50 mm 粉碎処理量: 最大 75 kg/h

寸法: 幅410x 奥行480x 高さ480 mm

(2) モルターグラインダ (Retsch社製、RMO-150ml型)

乳鉢: 外径160φ x 深さ65 mm、有効容積 150ml 乳棒: 外径68mmφ 材質: メノー

粉碎粒度: 1μm 供給試料限界粒度: 6 mm 寸法: 幅400x 奥行300x 高さ400 mm

(3) ふるい振とう器 (Retsch社製、VIBRO型)

ふるい径：200mmφ 振動振幅：0～3mm 寸法：幅300x奥行350x高さ720 mm

(4) 電子天秤 (メトラー社製、AE240型)

読取限度：0.01 mg 秤量限界：205 g 寸法：幅205x奥行410x高さ290 mm

(5) V字型混合器 (筒井理化製、W-1型)

ガラス容器容量：約 50及び 90 ml 回転数：25～70 rpm

寸法：幅500x奥行350x高さ230 mm

(6) 燃料コンパクト成型用プレス (前川試験機製、M-30-BRP-E特殊型)

最大容量：30 tonf ラムストローク：50 mm ラムスピード：0～60 mm/min

上下加圧板間隔：45～150 mm 上部加圧板：90 mmφ 下部加圧板：156x160 mm

加圧部寸法：幅366x奥行383x高さ760 mm

使用ダイス (進栄工機製、片押しタイプ)：

本体SK5製、タングステンカーバイドライニング

押し棒 (タングステンカーバイド製) 3.0mm x 5.0mm x 26.0 mm長さ

4. 半自動溶接機

宮盛製作所 (株) 製

松下電器産業 (株) 製 交直両用TIG溶接機 (TIG STAR:YC-200 TWX改造型) 使用

電源：AC 200 V-11.4 kVA

付属機器：真空排気装置、He充填用配管系

被溶接体 (アルミニウム合金板) 寸法：最大 40 mm x 40 mm x 6 mm (厚み)

被溶接体 (SUS製円筒容器：燃料ピンの端栓溶接) 寸法：

最大 6.3mm (外径) x 5.5mm (内径) x 50～60mm (長さ)

溶接トーチ：トリタン (W-Th) 製、直径 約 1.5 mm

溶接トーチと試料との間隔：約 1～2 mm (調節可能)

5. 小型圧延機

日本クロス圧延 (株) 製 100φ x 100w 型 冷熱間兼用2段圧延機

標準の圧延素材寸法 (最大)：厚み 約 6.0mm x 幅 約 40.0mm

圧延精度：± 0.02 mm (板厚 1.0～2.0mmに対して)

ロール寸法：100φ x 100w (mm)

ロール材質：熱間ダイス鋼 SKD-62、硬度 HRC 約56

ロール軸受：ニードルローラベアリング

(定格 6.2 ton x 2 = 12.4 ton)

ロール耐荷重：最大 10 ton

ロールの隙間の設定：手動ハンドル圧下方式（1 目盛 = 0.083 mm）

圧延速度： 0～14 m/min 可変

ミルモーター： AC 2.2 kW

計測装置： 圧下力計（歪ゲージ式ロードセル，10 ton用）

付属装置： マッフル炉（熱間圧延用） ヤマト科学（株）製 FP21 型

加熱部（有効内容積） 10 cm x 10 cm x 15 cm

最高使用温度 1150 °C（1.1 kW）

6. その他の機器

X線透過装置： リガク（株）製 100-GSB 型

X線発生部： 空冷・ガス絶縁型

最大出力： 100 kV - 5 mA

出力範囲： 20～100 kV

焦点寸法： 1 x 1 mm