

JAERI-M

9 6 4 4

被覆燃料粒子の照射挙動試験（IV）

(73F-12AキャップセルによるJMTR 照射)

1981年9月

福田 幸潮・鹿志村 悟・小川 徹
井川 勝市・岩本 多実・石本 清

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

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

被覆燃料粒子の照射挙動試験 (IV)
(73F-12A キャプセルによる JMTR 照射)

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
福田幸朔・鹿志村悟・小川 徹・井川勝市
岩本多実⁺・石本 清⁺⁺

(1981年8月5日受理)

昭和47年度から49年度にかけて試作された多目的高温ガス炉予備設計仕様の被覆燃料粒子が JMTR の 73F-12A キャプセルで照射された。この照射試験の主な目的は多目的炉用の TRISO 被覆燃料粒子の照射安定性を調べることである。

このキャップセルでは多目的炉用の被覆粒子以外に低密度燃料核（90%理論密度）を有する粒子、最外層PyCの異方性が高い粒子あるいはZrC被覆を有する粒子が照射された。照射は高速中性子照射量 $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$)、燃焼度 3.2% FIMA まで達した。照射後試験で明らかになったことは、多目的炉の通常運転状態に対応する照射下で 3 種類の TRISO 粒子のうち、1 種類の照射安定性は良好ではなかった。また異常時状態に対応する照射 ($> 1800^\circ\text{C}$) では、最大 6.7% (95% 信頼区間) の破損率を示したが、この破損の大部分はアーマー効果によるものであった。さらに変動状態に対応する照射 ($\sim 1500^\circ\text{C}$) では、4 種類の TRISO 粒子のうち、2 種類は非常に良好な安定性を示したが、微結晶優先方位の大きい最外層PyCを有する粒子および通常状態でも安定性の悪かった粒子は高い破損率を示した。

+) 実用燃料試験室
++) 研究炉管理部

Irradiation Behaviors of Coated Fuel Particles (IV)
(Irradiation by JMTR 73F-12A capsule)

Kousaku FUKUDA, Satoru KASHIMURA, Toru OGAWA, Katsuichi IKAWA
Kazumi IWAMOTO⁺ and Kiyoshi ISHIMOTO⁺⁺

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 5, 1981)

Loose coated fuel particles prepared in confirmity to a preliminary design for the multi-purpose VHTR in fiscal 1972-1974 were irradiated by 73F-12A capsule in JMTR. Main purpose for this irradiation experiment was to examine irradiation stability of the candidate TRISO coated fuel particles for the VHTR. Also the coated particles possessing low-density kernel(90 %TD), highly anisotropic OLTI-PyC and ZrC coating layer were loaded with the candidate particles in this capsule. The coated particles were irradiated upto 1.5×10^{21} n/cm² of fast neutron fluence($E > 0.18$ MeV) and 3.2 %FIMA of burnup. In the post irradiation examination it was observed that among three kinds of TRISO particles exposed to irradiation corresponding to the normal operating condition of the VHTR ones possessing poor characteristics of the coating layers did not show a good stability. The particles irradiated under abnormally high temperature condition ($> 1800^{\circ}\text{C}$) revealed 6.7 % of max. EOL failure fraction(95 % confidence limit). Most of these particles were failed by the amoeba effect. Furthermore, among four kinds of the TRISO particles exposed to irradiation corresponding to the transient condition of the VHTR($\sim 1500^{\circ}\text{C}$) the two showed a good stability, while the particles possessing highly anisotropic OLTI-PyC or poorly characteristic coating layers were not so good.

Keywords; TRISO coated fuel particles, JMTR, irradiation, 73F-12A capsule, failure fraction, PIE, amoeba effect, multi-purpose VHTR.

-
- +) Division of Reactor Fuel Examination, Tokai Research Establishment, JAERI
++) Division of Research Reactor Operation, Tokai Research Establishment,
JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. キャプセル	1
2.1 キャプセル全体構造	1
2.2 内部キャプセル	2
3. 被覆粒子燃料	2
4. 照 射	3
4.1 照射孔及び照射時間	3
4.2 照射温度	3
4.3 中性子照射量	4
4.4 燃焼度	4
5. 照射後試験	5
5.1 照射後試験の概要	5
5.2 外観, 金相およびX線ラジオグラフィ検査	6
5.2.1 検査方法	6
5.2.2 外観, 金相およびX線ラジオグラフィ検査の結果	6
5.3 硝酸浸出試験	10
5.4 被覆粒子の破壊強度測定	10
6. 考 察	11
6.1 被覆粒子破損	12
6.2 燃料核	13
6.3 バッファー層及び内部高密度PyC層	13
6.4 SiC層及び最外PyC層	14
7. 結 論	15
謝 辞	16
参考文献	17
附 錄	18

Contents

1. Introduction	1
2. Capsule	1
2.1 Structure of capsule	1
2.2 Inner capsule	2
3. Coated fuel particles	2
4. Irradiation	3
4.1 Irradiation hole and irradiation time	3
4.2 Irradiation temperature	3
4.3 Neutron fluence	4
4.4 Burnup	4
5. Post irradiation examination	5
5.1 Outline of post irradiation examination	5
5.2 Inspections by surface appearance, ceramography and X-ray microradiography	6
5.2.1 Methods	6
5.2.2 Results	6
5.3 Acid leaching test	10
5.4 Crushing strength test	10
6. Discussion	11
6.1 Failure of coated fuel particles	12
6.2 Kernel	13
6.3 Buffer layer and ILTI-PyC layer	13
6.4 SiC layer and OLTI-PyC layer	14
7. Conclusions	15
Acknowledgement	16
References	17
Appendix	18

1. はじめに

多目的高温ガス炉用の被覆燃料粒子の照射試験は昭和45年にJRR-2のHWL-1水ループを使って試験的に開始されたが、その後JMTRを使って本格的に進められ、現在まで照射が終了した粒子関係の密封キャップセルは7本にのぼっている。これらのキャップセルで照射された被覆粒子は、いわゆる予備設計粒子と呼ばれる粒径の小さなものの（公称値 $750 \mu\text{m}$ ）である。現在まで終了したキャップセルの照射結果は以下の報告書に記載されている。

- 1. 70 F - 4 A キャップセル JAERI - M 6480 (1976)⁽¹⁾
- 2. 71 F - 7 A キャップセル JAERI - M 6717 (1976)⁽²⁾
- 3. 72 F - 6 A, 72 F - 7 A キャップセル JAERI - M 8949 (1980)⁽³⁾

本報告は73 F - 12 A キャップセルで照射された予備設計仕様の被覆燃料粒子に関するもので、これらは昭和47年度から49年度にかけて試作されたものである。72 F - 6 A 及び 72 F - 7 A キャップセルでは被覆層の物性値 (BAF や PyC 結晶粒径など) をパラメトリックに変化させた被覆粒子を照射し、粒子の照射安定性に対する物性値の影響を調べた。

今回の73 F - 12 A キャップセルでは製造年度の異なる粒子の照射健全性を調べることを主目的としている。これらの被覆粒子は次のような特徴を有している。

- (i) 高密度PyCをプロパンから調製したもの (47, 48年度試作粒子) 及びプロピレン (49年度試作粒子) から調製したもの
- (ii) 燃料核密度 95% TD (標準) と 90% のもの
- (iii) 最外層PyCのBAF が 1.0 のものと 1.43 のもの

であり、これらの試料粒子の照射健全性を比較することも目的としている。このキャップセルは燃料領域 (K-10孔) で 34 から 36 サイクルまでの 3 サイクル照射されたもので高速中性子照射量は最大 $1.45 \times 10^{21} (\text{n/cm}^2, E > 0.18 \text{ MeV} \text{ (計算値)})$ であるが、熱電対指示による照射温度は 1850 °C にまで達しており、照射条件としてはかなり厳しいものであった。なお、本キャップセルには ZrC 被覆粒子が 3 種類装荷されているが、これらの照射挙動については別途報告されるであろう。

2. キャップセル

2.1 キャップセル全体構造

73 F-12 A キャップセルの全体の構造を Fig. 1 に、またこの完成写真と部品の写真をそれぞれ Fig. 2-1 及び Fig. 2-2 に示す。本キャップセルは独立した 3 個の内部キャップセルからなり、Fig. 1 に示すようにこれらの内部キャップセル内で上、中、下の 3 段に配されている。上段内部キャップセ

1. はじめに

多目的高温ガス炉用の被覆燃料粒子の照射試験は昭和45年にJRR-2のHWL-1水ループを使って試験的に開始されたが、その後JMTRを使って本格的に進められ、現在まで照射が終了した粒子関係の密封キャップセルは7本にのぼっている。これらのキャップセルで照射された被覆粒子は、いわゆる予備設計粒子と呼ばれる粒径の小さなものの（公称値 $750\mu\text{m}$ ）である。現在まで終了したキャップセルの照射結果は以下の報告書に記載されている。

- | | |
|----------------------------------|--------------------------------------|
| 1. 70 F - 4 A キャップセル | JAERI - M 6480 (1976) ⁽¹⁾ |
| 2. 71 F - 7 A キャップセル | JAERI - M 6717 (1976) ⁽²⁾ |
| 3. 72 F - 6 A, 72 F - 7 A キャップセル | JAERI - M 8949 (1980) ⁽³⁾ |

本報告は73 F - 12 A キャップセルで照射された予備設計仕様の被覆燃料粒子に関するもので、これらは昭和47年度から49年度にかけて試作されたものである。72 F - 6 A 及び 72 F - 7 A キャップセルでは被覆層の物性値 (BAF や PyC 結晶粒径など) をパラメトリックに変化させた被覆粒子を照射し、粒子の照射安定性に対する物性値の影響を調べた。

今回の73 F - 12 A キャップセルでは製造年度の異なる粒子の照射健全性を調べることを主目的としている。これらの被覆粒子は次のような特徴を有している。

(i) 高密度PyCをプロパンから調製したもの (47, 48年度試作粒子) 及びプロピレン (49年度試作粒子) から調製したもの

(ii) 燃料核密度 95% TD (標準) と 90% のもの

(iii) 最外層PyCのBAFが1.0のものと 1.43のもの

であり、これらの試料粒子の照射健全性を比較することも目的としている。このキャップセルは燃料領域 (K-10孔) で34から36サイクルまでの3サイクル照射されたもので高速中性子照射量は最大 $1.45 \times 10^{21} (\text{n/cm}^2, E > 0.18 \text{ MeV} \text{ (計算値)})$ であるが、熱電対指示による照射温度は1850 °C にまで達しており、照射条件としてはかなり厳しいものであった。なお、本キャップセルには ZrC 被覆粒子が3種類装荷されているが、これらの照射挙動については別途報告されるであろう。

2. キャップセル

2.1 キャップセル全体構造

73 F-12 A キャップセルの全体の構造をFig. 1 に、またこの完成写真と部品の写真をそれぞれ Fig. 2-1 及び Fig. 2-2 に示す。本キャップセルは独立した3個の内部キャップセルからなり、Fig. 1 に示すようにこれらの内部キャップセル内で上、中、下の3段に配されている。上段内部キャップセ

ルの試料部分は炉中心から上方 141 mm と 238 mm の間に位置し、中段内部キャプセルのそれは下方 3 mm と 94 mm、下段内部キャプセルは下方 204 mm と 298 mm の間に位置している。キャプセル外筒は SUS 304 で、内部キャプセルと外筒の間には Al 熱媒体があり、この中に中性子フルーエンス・モニター及び C / A 熱電対が配されている。また各内部キャプセル中心部に W-WRe 熱電対が配されており、この熱電対の指示により各内部キャプセルの真空温度制御が行われる。

2.2 内部キャプセル

Fig. 3 に 73 F - 12 A キャプセルの内部構造を示す。上、中、下段内部キャプセルとも同一構造をしており、それらは 2 重管構造になっている。外筒は SUS 304、内筒は Nb-1%Zr からなり、外筒と内筒の間の He 真空度を調節することにより、試料温度を制御することが出来る。内部キャプセルには、試料粒子を保持するための黒鉛ホルダー ($18\phi \times 50\ell$ mm) が各々 2 個づつ収納され、各黒鉛ホルダーには上面および下面からそれぞれ 4 体の穴 (2.3 mm $\phi \times 40$ mm) があけられている。キャプセル軸方向に対して上面からの穴を A、下面からの穴を B と区別する。これは A 及び B の穴に異った試料粒子が装荷されるためである。また上段の黒鉛ホルダーの中央部に試料温度測定用の穴があけられ、W-WRe 熱電対が挿入されている。2 個の黒鉛ホルダーは Mo 筒に収められ、これが Nb-1%Zr 内部キャプセルに納められている。Mo 筒は内部キャプセル内での温度を均一に保つための均熱材である。黒鉛ホルダーには上述のように 2 種類の試料粒子が装荷されるため、1 個の内部キャプセルには 4 種類の試料粒子が収納されている。黒鉛ホルダーの両端には ZrO₂ 断熱材、Zr 酸素ゲッター、Zr 反射板、Zr 酸素ゲッターの順に配され、軸方向の熱の逃げを防止してエンドプラグの温度上昇をくい止めている。

3. 被覆粒子燃料

73 F - 12 A キャプセルに装荷した試料粒子の特徴を Table 1 にまとめている。この中で 74 FC 2 及び 72FC 16 には ZrC 被覆が施されているが、これらの粒子の詳細な特徴については別に報告する。

Table 1 に示すように、本キャプセルで照射した試料粒子は全て 8% 濃縮 UO₂ 核からなり、それらの直径は ~ 500 μm (予備設計仕様) である。燃料核密度については 73FC 3 が 90 % TD である以外、全て 95 % TD である。第 1 層としての Buffer PyC 層はアセチレン (C₂H₂) から蒸着したもので、それらの密度は約 1.1 g/cm³ である。第 2 層及び第 4 層は LTI-PyC* であるが、74 FC 1 を除いて全てプロパン (C₃H₈) から調製したものであり、74FC 1 の高密度 PyC だけはプロピレン (C₃H₆) から得たものである。これらの PyC の密度は全て 1.7 g/cm³ 以上である。第 4 層の結晶粒径 (Lc) は 20 ~ 30 μm である。第 4 層の微結晶の優位配向性 (BAF) は 72FC 10 を除いて ~ 1.0 (等方性) であるが、72 FC 10 のそれは 1.43 と多少異方性を有している。

第 3 層 SiC はメチルトリクロロシラン (CH₃SiCl₃) から調製したもので、72FC 10 を除いて

*) LTI - PyC は Low Temperature Isotropic PyC の略

ルの試料部分は炉中心から上方 141 mm と 238 mm の間に位置し、中段内部キャップセルのそれは下方 3 mm と 94 mm、下段内部キャップセルは下方 204 mm と 298 mm の間に位置している。キャップセル外筒は SUS 304 で、内部キャップセルと外筒の間には Al 熱媒体があり、この中に中性子フルーエンス・モニター及び C / A 热電対が配されている。また各内部キャップセル中心部に W-WRe 热電対が配されており、この热電対の指示により各内部キャップセルの真空温度制御が行われる。

2.2 内部キャップセル

Fig. 3 に 73 F - 12 A キャップセルの内部構造を示す。上、中、下段内部キャップセルとも同一構造をしており、それらは 2 重管構造になっている。外筒は SUS 304、内筒は Nb-1%Zr からなり、外筒と内筒の間の He 真空度を調節することにより、試料温度を制御することが出来る。内部キャップセルには、試料粒子を保持するための黒鉛ホルダー ($18\phi \times 50\ell$ mm) が各々 2 個づつ収納され、各黒鉛ホルダーには上面および下面からそれぞれ 4 体の穴 (2.3 mm $\phi \times 40$ mm) があけられている。キャップセル軸方向に対して上面からの穴を A、下面からの穴を B と区別する。これは A 及び B の穴に異った試料粒子が装荷されるためである。また上段の黒鉛ホルダーの中央部に試料温度測定用の穴があけられ、W-WRe 热電対が挿入されている。2 個の黒鉛ホルダーは Mo 筒に収められ、これが Nb-1%Zr 内部キャップセルに納められている。Mo 筒は内部キャップセル内での温度を均一に保つための均熱材である。黒鉛ホルダーには上述のように 2 種類の試料粒子が装荷されるため、1 個の内部キャップセルには 4 種類の試料粒子が収納されている。黒鉛ホルダーの両端には ZrO₂ 断熱材、Zr 酸素ゲッター、Zr 反射板、Zr 酸素ゲッターの順に配され、軸方向の熱の逃げを防止してエンドプラグの温度上昇をくい止めている。

3. 被覆粒子燃料

73 F - 12 A キャップセルに装荷した試料粒子の特徴を Table 1 にまとめている。この中で 74 FC 2 及び 72FC 16 には ZrC 被覆が施されているが、これらの粒子の詳細な特徴については別に報告する。

Table 1 に示すように、本キャップセルで照射した試料粒子は全て 8% 濃縮 UO₂ 核からなり、それらの直径は ~ 500 μm (予備設計仕様) である。燃料核密度については 73FC 3 が 90 % TD である以外、全て 95 % TD である。第 1 層としての Buffer PyC 層はアセチレン (C₂H₂) から蒸着したもので、それらの密度は約 1.1 g/cm³ である。第 2 層及び第 4 層は LTI-PyC* であるが、74 FC 1 を除いて全てプロパン (C₃H₈) から調製したものであり、74FC 1 の高密度 PyC だけはプロピレン (C₃H₆) から得たものである。これらの PyC の密度は全て 1.7 g/cm³ 以上である。第 4 層の結晶粒径 (Lc) は 20 ~ 30 μm である。第 4 層の微結晶の優位配向性 (BAF) は 72FC 10 を除いて ~ 1.0 (等方性) であるが、72 FC 10 のそれは 1.43 と多少異方性を有している。

第 3 層 SiC はメチルトリクロロシラン (CH₃SiCl₃) から調製したもので、72FC 10 を除いて

*) LTI-PyC は Low Temperature Isotropic PyC の略

3.19g/cm³ 以上の高密度を有している。47年度には被覆粒子燃料検査法が確立していなかったため、72 FC 10 のSiC層密度は3.15 - 3.20の幅として示している。

4. 照射

73 F - 12A キャップセルにおける試料粒子の照射条件についてはTable 2にまとめている。キャップセル内では同種の試料粒子が異った場所で照射されており、試料粒子の照射結果の説明で混乱をまねく恐れがあるので、以後の試料粒子の記号にはTable 2に示すように試料名と黒鉛ホルダーの穴の番号(Table 1にも Sample holder として示している)とを併記する。このキャップセルでの照射条件は以下のとおりである。

4.1 照射孔及び照射時間

このキャップセルはJMTR K-10孔(燃料領域)で#34から#36サイクルの3サイクルにわたって照射された。Fig.4からFig.6には、#34～#36サイクルまでのJMTR運転実績⁽⁴⁾を示すが、50MW出力時でのこのキャップセルの実効照射時間は1500.5時間(62.5 EEPD)であった。

4.2 照射温度

熱電対指示による73 F - 12 A キャップセルの各内筒の照射温度履歴をFig.7に示す。Fig.1やFig.4に示したように試料粒子の温度計測用の熱電対(W/WRe)は黒鉛ホルダーの中心に位置しているが、試料粒子はこの熱電対の円周状に位置する穴の中に収納されている。このため試料粒子の温度は熱電対の指示による温度とは若干異なる。GENGTCコードによるこの温度補正値(ΔT =熱電対温度-試料粒子温度)は上段及び下段内で約30°C、中段内筒で約40°Cである。⁽⁴⁾Table 2に示す照射サイクル毎の各内筒の温度は熱電対指示値から温度補正を行ったものである。Fig.7の熱電対指示に示すように、#34サイクルでは3本の熱電対とも健全であったが、#35サイクルに入り下段内筒の熱電対が断線したため、これ以降は残り2本の熱電対から下段内筒温度を推定した。

Table 2とFig.7に示すように、上段内筒では#34サイクルで1160°C(max)になったのち、#35サイクルで若干温度が上昇したが、#36サイクルでは840°C(max)まで低下した。中段内筒の温度は#34サイクルでは1200～1400°Cの間で変化していたが#34サイクルで1800°Cに達する一時的な温度上昇が生じた。#35サイクルではこの温度上昇が恒常的になった。この熱電対指示温度が正常であったかどうかの疑問が残るが、照射後試験で観察したAl熱媒体の状態から、この熱電対指示温度は正常であったと考えられる。#36サイクルではHeダンプ状態^{*}で運転したため、試料温度は～1000°Cまで低下した。一方、下段内筒の温度については、上述のように#34サイクルでは、1470°C(max)に達した。この温度は中段内筒と上段内筒のほぼ中間の温度である。しかし#35及び#36サイクルでは熱電対が断念したため、上段及び中段内筒

* 真空温度制御用のギャップ(Fig.3参照)を真空状態にせず、Heを充満させて熱の逃げを助ける状態。

3.19g/cm³ 以上の高密度を有している。47年度には被覆粒子燃料検査法が確立していなかったため、72 FC 10 のSiC 層密度は 3.15 – 3.20 の幅として示している。

4. 照射

73 F – 12A キャップセルにおける試料粒子の照射条件についてはTable 2 にまとめている。キャップセル内では同種の試料粒子が異った場所で照射されており、試料粒子の照射結果の説明で混乱をまねく恐れがあるので、以後の試料粒子の記号には Table 2 に示すように試料名と黒鉛ホルダーの穴の番号 (Table 1 にも Sample holder として示している) とを併記する。このキャップセルでの照射条件は以下のとおりである。

4.1 照射孔及び照射時間

このキャップセルはJMTR K-10孔（燃料領域）で #34 から #36サイクルの3サイクルにわたって照射された。Fig. 4 から Fig. 6 には、#34 ~ #36 サイクルまでのJMTR 運転実績⁽⁴⁾を示すが、50 MW 出力時でのこのキャップセルの実効照射時間は 1500.5 時間 (62.5 EEPD) であった。

4.2 照射温度

熱電対指示による 73 F – 12 A キャップセルの各内筒の照射温度履歴をFig. 7 に示す。Fig. 1 や Fig. 4 に示したように試料粒子の温度計測用の熱電対 (W/WRe) は黒鉛ホルダーの中心に位置しているが、試料粒子はこの熱電対の円周状に位置する穴の中に収納されている。このため試料粒子の温度は熱電対の指示による温度とは若干異なる。GENGTC コードによるこの温度補正値 (ΔT = 热電対温度 – 試料粒子温度) は上段及び下段内で約 30 °C, 中段内筒で約 40 °C である。⁽⁴⁾ Table 2 に示す照射サイクル毎の各内筒の温度は熱電対指示値から温度補正を行ったものである。Fig. 7 の熱電対指示に示すように、#34 サイクルでは 3 本の熱電対とも健全であったが、#35 サイクルに入り下段内筒の熱電対が断線したため、これ以降は残り 2 本の熱電対から下段内筒温度を推定した。

Table 2 と Fig. 7 に示すように、上段内筒では #34 サイクルで 1160 °C (max) になったのち、#35 サイクルで若干温度が上昇したが、#36 サイクルでは 840 °C (max) まで低下した。中段内筒の温度は #34 サイクルでは 1200 ~ 1400 °C の間で変化していたが #34 サイクルで 1800 °C に達する一時的な温度上昇が生じた。#35 サイクルではこの温度上昇が恒常的になった。この熱電対指示温度が正常であったかどうかの疑問が残るが、照射後試験で観察した Al 熱媒体の状態から、この熱電対指示温度は正常であったと考えられる。#36 サイクルでは He ダンプ状態^{*}で運転したため、試料温度は ~1000 °C まで低下した。一方、下段内筒の温度については、上述のように #34 サイクルでは、1470 °C (max) に達した。この温度は中段内筒と上段内筒のほぼ中間の温度である。しかし #35 及び #36 サイクルでは熱電対が断念したため、上段及び中段内筒

^{*}) 真空温度制御用のギャップ (Fig. 3 参照) を真空状態にせず、He を充満させて熱の逃げを助ける状態。

からの温度で推定したが、#35サイクルでは約1470°C(max), #36サイクルでは1000°C以下になったものと思われる。

4.3 中性子照射量

このキャップセルのAl熱媒体には高速中性子測定用として、Feモニターワイヤー、熱中性子測定用としてCoモニターワイヤーが装荷されていた。しかし上述したように、キャップセル温度が上昇したため、照射後試験においてこれらのモニターワイヤーの取出しを行うことが出来なかった。これはモニターワイヤーを収納していたAl管と熱媒体とが溶着したためである。このため中性子照射量の評価は材料試験炉部計画課においてTHERMOS-JMTRコードを使って行われた。この結果はTable 2に示しているが、またFig. 8には高速中性子照射量(n/cm^2 , $E > 0.18$ MeV)とキャップセル内の試料位置との関係を示している。計算で求めた中性子照射量は中段内筒の下方に位置する黒鉛試料容器で最大であった。この位置での熱中性子照射量は $1.5 \times 10^{21} n/cm^2$ ($E < 0.625$ eV)、高速中性子照射量は $1.45 \times 10^{21} n/cm^2$ ($E > 0.18$ MeV)であった。また最小の照射量は上段内筒の上方に位置する試料容器で、熱中性子照射量で $8.3 \times 10^{20} n/cm^2$ 、高速中性子照射量で $8.0 \times 10^{20} n/cm^2$ であった。

4.4 燃焼度

73F-12Aキャップセルで照射した試料粒子(74FC1-4B)の燃焼度の測定は燃焼率測定開発室で行われた。しかし上述したように、この試料粒子は1800°Cを越える高温で照射されたため、被覆層には破損が生じて、Csが逃げたり、また健全な粒子でも拡散によるCsの放出が著しかったため、当初の推定値と比較しても極端に低い燃焼度しか得られず、この値は妥当とは思われなかった。そこで燃焼度も中性子照射量と同様に計算で求めた。

燃焼度の計算は材料試験炉部計画課⁽⁵⁾において行われた。この詳細については後述の附録に示すが、燃焼度の計算はCITATIONコードを使って得られるキャップセル発熱量に基づいており、また燃焼度はガンマ一発熱を除いた核分裂発熱のみから求めている。従来のキャップセルの測定値とCITATIONコードを用いた計算値との比較を附録のFig.A 1に示すが、この結果、従来の実測値とCITATIONコードによる計算値との関係は次式で示されることがわかった。

$$B_m = 0.9479 \times B_c - 0.2256$$

ここで B_m 測定値の燃焼度 (% FIMA)

B_c CITATION 計算値の燃焼度 (%FIMA)

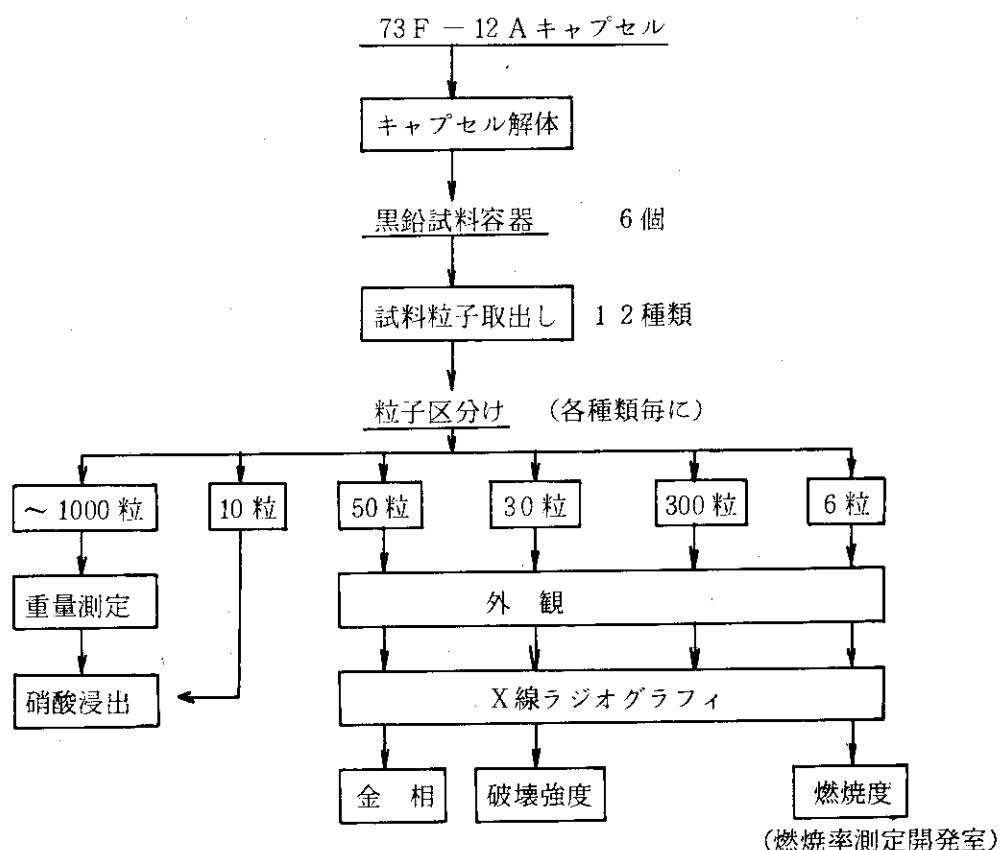
Table 2の各試料粒子の燃焼度はCITATION計算で得られた値を上式に入れて補正したものを見ている。CITATIONコードによる計算では ^{238}U から変換した ^{239}Pu の核分裂が考慮されていないが、測定値の方では ^{239}Pu 核分裂をも含んだ値であるため、計算値を上式で補正すること

により²³⁹Puを考慮した値を求めることが出来る。CITATIONで計算し、上式で補正した各試料粒子の燃焼度はTable 2に示されている。この結果、最も燃焼度が高いのは中段内筒の試料で3.2%FIMA、また上段及び下段内筒の最も燃焼度の低いものでも2.0%FIMAに達していることがわかった。

5. 照射後試験

5.1 照射後試験の概要

照射済み73F-12Aキャップセルは昭和52年1月20日に大洗研究所ホットラボから東海研究所ホットラボへ搬入され、同年の六月以降に照射後試験が実施された。次の図は73F-12Aキャップセルの照射後試験の流れ図を示したものである。

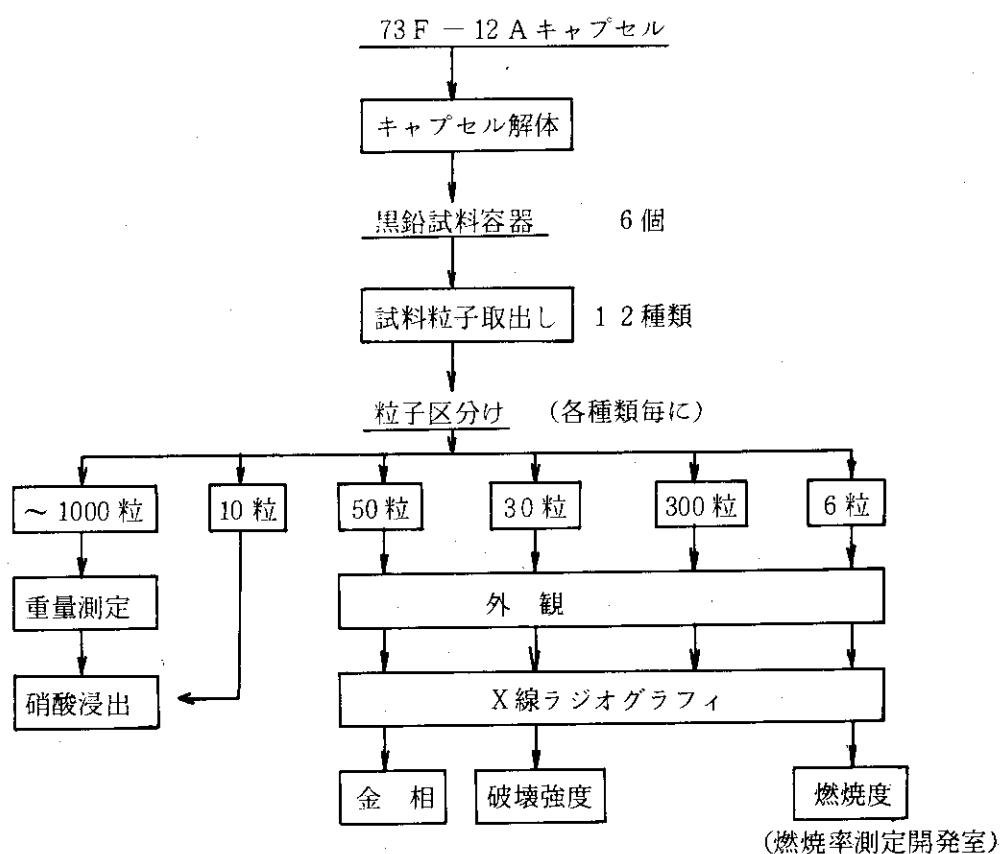


により²³⁹Puを考慮した値を求めることが出来る。CITATIONで計算し、上式で補正した各試料粒子の燃焼度はTable 2に示されている。この結果、最も燃焼度が高いのは中段内筒の試料で3.2%FIMA、また上段及び下段内筒の最も燃焼度の低いものでも2.0%FIMAに達していることがわかった。

5. 照射後試験

5.1 照射後試験の概要

照射済み73F-12Aキャップセルは昭和52年1月20日に大洗研究所ホットラボから東海研究所ホットラボへ搬入され、同年の六月以降に照射後試験が実施された。次の図は73F-12Aキャップセルの照射後試験の流れ図を示したものである。



5.2 外観, 金相及びX線ラジオグラフィ検査

5.2.1 検査方法

流れ図に示すように被覆粒子の外観検査には区分けされた300粒が用られた。この検査には被覆粒子検査用ペレスコープ（島津製作所, 型式M-150）が使われ、20倍と40倍とで被覆粒子の表面状態を調べた。

金相検査は鉛セルラインNo.5からNo.12で行われた。試料粒子約50粒をエポキシ系樹脂に押込んで気泡抜きして硬化させた後、エメリー紙、ダイヤモンド・ディスク・プレート、及びダイヤモンド・ペーストを使ったテックスメットクロスの順に研磨された。研磨後の金相観察はTELATOM型金属顕微鏡(Reichert GmbH AUSTRIA)で行われた。

X線ラジオグラフィ検査には外観検査を終えた300粒が使われた。この検査はホットラボ・ジュニアセルに設置してあるX線マイクロラジオグラフィ装置⁽⁶⁾によって行われた。

5.2.2 外観, 金相およびX線ラジオグラフィ検査の結果

外観及びX線ラジオグラフィ検査による粒子破損率についてはTable 3にまとめている。この中で粒子破損率が高かったものは73FC1-4A, 74FC1-4B, 74FC1-5B, 74FC1-2Bで、特に74FC1粒子の高い破損率が目立っている。以下に金相、外観およびX線ラジオグラフィ検査結果を各試料毎に記す。

73 FC 3-1 B (Fig. 9(A), (B) および(C)) [照射条件: 1180 °C - 700 °C, 2 % FIMA,
 $8.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$]*

Table 1に示すように、73FC3粒子は燃料核密度が90%TDであり、標準の粒子(9.5%TD)より低密度になっている。Fig.9(A)の金相写真にみられるこの粒子の燃料核は明らかに焼きしまりによる収縮を示している。(例えば後述のFig.10(A)の73FC1-2Aと比較しても明確な差が見られる) 焼きしまりは照射時間と同時に始まり、結晶粒径や照射温度によっても異なるが、大体0.6~1%FIMAで完結し、スウェーリングへと移行する。⁽⁷⁾ この試料は2%FIMAまで燃焼しているが、この燃焼度でも収縮の状態にあることは、低密度のため焼きしまりが他の標準粒子の燃料核より大きいことを示している。Fig.9(A)でも明らかなように、燃料核の収縮とともにバッファー層が内部高密度PyC層から剥離している現象が現われ、またこれが内部高密度PyC層の損傷の原因(Fig.9(A) Photo.1)ともなるので、低密度燃料核は被覆粒子の照射安定性にとってあまり好ましくない。外観検査では、被覆粒子表面に際立った変化は認められなかったが、破損した被覆層片が認められた。X線ラジオグラフィー検査(Fig.9(C))でも特に大きな変化は見られなかった。Fig.9(C)のPhoto.1に見られるようにバッファー層と内部高密度PyCの間にギャップのようなものが見られるが、これはFig.9(A)のPhoto.5に見られるギャップに相当するものと思われる。このことはバッファー層の剥離が照射によって生じていることを示している。以上の観察結果から、73FC3-1Bの照射の大きな特徴は燃料核の収縮であると言える。

* 照射条件は照射温度、燃焼度および高速中性子照射量($E > 0.18 \text{ MeV}$)を示す。

73 FC 1-2A (Fig. 10 (A), (B) および(C)) [照射条件: 1180 °C - 700 °C, 2.5 % FIMA,
 $9.6 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

この試料粒子は 72F-6A キャプセルでも照射され、比較的良好な照射安定性を示したものである。Fig. 10 (A) に示すように、大多数の粒子はバッファー層を除いてほぼ健全性を示した。この場合も、バッファー層の劣化は燃料核の焼きしまりによる収縮が原因している（特に Fig. 10(A) Photo. 6）ことが認められる。Fig. 10 (B) に示す外観検査では被覆層破片が 1 個見られ (Photo. 1 及び 3)，また粒子表面にしみ状の変色が見られたが、この“しみ状”の変化は、従来の照射後試験の経験からすると、内部から反応して来たものではなく、むしろ照射後試験で何かが付着したものと考えられる。X 線検査によっても外観で認められた被覆層破損が 1 個見られた以外、照射健全性に係わる変化はなかった。ただ Fig. 10 (C) の Photo. 4 に示すようにバッファー層と内部 PyC 層の間にギャップが認められ、照射による剥離が生じていることを示している。

74FC 1-2B (Fig. 11 (A), (B) および(C)) [照射条件: 1180 - 700 °C, 2.5 % FIMA,
 $9.6 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$]

74FC 1-2B では Fig. 11 (A) で金相に示すようにバッファー層の剥離及び内部 PyC 層が SiC 層から剥離する現象が見られた。前者の場合は 73 FC 3 や 73FC 1 と同様に燃料核の収縮にともなう剥離であるが、後者の場合は燃料核、バッファー層及び内部高密度 PyC 層の三層が密着したために生じた現象である。このような現象が生じると SiC 層は薄くなり劣化が生じる。SiC 劣化の原因としては CO-CO₂ ガスによる SiC 腐食⁽⁹⁾ 及び FP 塩化物と SiC との反応⁽¹⁰⁾ などが考えられる。後者の場合、SiC 層蒸着の際にメチルトリクロロシラン (CH₃SiCl₃) の熱分解によって Cl₂ ガスが粒内にとじ込められ、これが FP 塩化物として SiC 層内面に移行し、SiC 層と反応する機構である。しかし、この機構は今回のように SiC 層内面のギャップの生成にかかわらず、SiC を劣化せしめるものであり、また高燃焼度で顕著になるとと考えられる。Fig. 11 (A) Photo. 2, 3, 5 のようにギャップが生じた時のみ、SiC の薄化が生じるとゆうことは CO-CO₂ ガスによる腐食であると考えられる。この劣化は SiC 層と内部 PyC 層の間にギャップが生じると必ず現われることから、被覆粒子の照射健全性を保持するためには、このようなギャップの発生は避けなければならない。

外観検査では破損を含めた異常粒子が 3 粒認められ、また X 線検査では被覆層破片が 1 個認められた。

73 FC 1-4A (Fig. 12 (A), (B) および(C)) [照射条件: 1810 °C - 900 °C, 3.2 % FIMA,
 $1.45 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

この試料粒子は 1800 °C 以上の高温で照射されたもので、このため粒子破損は顕著である。Fig. 12 (A) に示すように金相ではほとんどの粒子内に燃料核移動（アーベー効果）が認められた。この移動量はバッファー層の厚み (42.6 μm) あるいはそれ以上である。これは定常時における許容核移動距離 (40 μm) を越えており、また過出力時における移動距離 (45 μm) を越えているものも多い。ただしコンパクト化しない粒子の照射のため、この定量的関係を明確にすることは出来ない。Fig. 12 (A) Photo. 4 に示す被覆粒子では外部 PyC 層に化学的損傷がみられるが、これは他のアーベー効果破損粒子から影響を受けたものと見られる。Photo. 5 では SiC 層の劣化の部分を示すが、この周辺には UO₂, PyC, SiC 以外には別な相は見られず、前に記した様に SiC が CO ガスによる気相反応によって腐食されていることを示している。また Photo. 6 では

UO_2 核が塑性流動のようにバッファ一層のギャップに押し出されている様子が見られる。このような現象は 71 F - 7 A キャプセル（最高 1200°C ）⁽²⁾ で照射された粒子にも観察されている。外観検査では、内圧などによる物理的破損はほとんど見られず、Fig. 12(B)に示すように破損粒子の大部分はアメーバ効果によると思われる貫通孔が見られる。X 線ラジオグラフィ検査では Fig. 12(C) Photo. 1 に見られるように粒子内が空洞になって被覆層だけが残ったものが見られるが、このように破損粒子が空洞化される現象は他のキャプセル照射においても観察されている。しかしこのメカニズムについては明確でない。また Photo. 2 では、燃料核物質が粒内に拡散して広がっている様子が見られるが、これはアメーバ効果により被覆層が破れ、燃料核が炭化されたために起った現象であると思われる。他の X 線ラジオグラフではほとんどの粒子内でアメーバ効果による核移動が起っている様子が見られる。

74 FC 1-4 B (Fig. 13 (A), (B) および (C)) [照射条件: $1810^\circ\text{C} - 900^\circ\text{C}$, 3.2% FIMA,
 $1.45 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

この試料粒子も 73 FC 1 - 4 A と同じ条件で照射されたものであるが、この場合の粒子破損の状況は 73 FC 1 - 4 A と若干異っている。Fig. 13(A)に見られるように粒子内ではアメーバ効果が顕著に見られる。特に Photo. 2, 4 および 5 では SiC 層が CO ガスと反応して半円状に除去されている様子が見られる。また Photo. 5 で明らかなように、SiC と反応した CO ガスは外部 PyC とも反応している様子が見られる。一方、Photo. 6 では腐食された SiC 層付近に異種物質が現われているのが観察された。この相の中には UO_2 結晶が固溶せずに混在しているのが観察されている。この析出相がどのような物質であるかを同定することはここでは出来なかったが、考えられるものとして SiC と CO との反応で生じた SiO (気相) が何らかの原因で再び SiC として析出したか、あるいは燃料核が UC_2 あるいは UCO といったものへと還元されたものと思われる。外観検査ではこのようなアメーバ破損以外に物理的に破損した粒子がいくつか見られた。Fig. 13 (B) の Photo. 2 及び 3 に示す粒子にはリングクラック⁽¹⁾ が生じており、これは典型的な外圧破損であることを示している。このような破損は照射キャプセルの試料ホルダー内で被覆粒子へ何らかの圧縮力が作用したものと思われる。このような破損は粒子の照射健全性とは関係なく、むしろキャプセルの構造を改良しなければならない。Fig. 13 (C) の X 線ラジオグラフィ検査ではこのような破損で生じた外部 PyC 層の欠けが見られる (Photo. 1)。また Photo. 2 では被覆層がガス透過性になったため燃料核が炭化され、ウランが被覆層中に拡散して広がっている様子が見られる。

73 FC 1-5 A (Fig. 14 (A), (B) および (C)) [照射条件: $1470^\circ\text{C} - 800^\circ\text{C}$, 2.4% FIMA
 $1.17 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

この試料粒子の照射条件は 73 FC 1 - 4 A に比べるとかなりゆるやかであるが、Fig. 14 (A) に示すように大部分の粒子にアメーバ効果が発生している様子が認められた。特に注目されることは Photo. 4 に見られるように最高温度が 1470°C 程度であるにもかかわらず、バッファ一層に発生した亀裂の中に燃料核が塑性流動的に入っていることである。71 F - 7 A キャプセル⁽²⁾ で照射した被覆粒子にも同様な現象が見られたが、この発生原因は現在のところ明確でない。一方、Photo. 6 に見られるように析出炭素相には 2 種類あるように思われるが、これについては同様な現象が見られた 73 FC 3 - 6 A で述べる。

外観検査やX線検査では被覆層に破損が生じている粒子は認められなかったが、Fig. 14 (B)に示すように粒子表面に変色が生じている粒子が300粒中8粒子見られた。このような変色は73 FC 1-2Aに見られた変色と異って、キャプセル内で隣接していた粒子がアーベル破損を生じて孔があき、その影響で粒子表面にしみが発生したものと考えられる。これについては次にも記述する。

74 FC 1-5B (Fig. 15 (A), (B) および(C)) [照射条件: 1470 °C - 800 °C, 2.4 % FIMA, $1.17 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

この試料粒子にも顕著なアーベル効果が認められた。Fig. 15(A) Photo. 1 では低温側の燃料核中の開気孔内に炭素相が析出し、これが燃料核を高温側へ押し上げるとともに、一部のUO₂結晶を炭素相内に取り残している様子が見られる。Photo. 3 はアーベル効果を核移動方向の低温側から観察したもので、燃料核の開気孔中に炭素相が析出している様子が見られる。またPhoto. 5 及び 6 ではSiC層と内部PyC層との間にギャップが生じ、このためSiC層がCOガスと反応して劣化している様子が認められる。

外観検査では Fig. 15(B) の Photo. 1 に見られるように 74FC 1-4B と同様なリングクラックが現れており、この場合も外圧による破損であることを示している。また Photo. 2 ではアーベル効果により破損した粒子が隣接する粒子に付着している様子を示しているが、このことは Photo. 3 に示す変色や付着物及び 73 FC 1-5 A での変色が隣接する粒子のアーベル破損によって生じていることを示したものである。Fig. 15 (C) の X 線ラジオグラフでは多数の粒子にアーベル効果が発生している様子が認められるが、特に Photo. 1 には粒子に穴があき、燃料核物質の大部分が飛散し、内部が空洞になっている様子が見られる。

73 FC 3-6A (Fig. 16 (A), (B) および(C)) [照射条件: 1470 °C - 800 °C, 2.0 % FIMA, $1.0 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

前述したように 73 FC 3 粒子の燃料核は 90 % TD と標準粒子の燃料核に比べて低いが、73FC 3-1B (Fig. 9(A)) に見られたような顕著な核の収縮はこの試料には見られなかった。Fig. 16 (A) に見られるようにこの試料粒子にはアーベル効果がわずかに生じているが、被覆層に穴があくほどの破損は見られなかった。

Fig. 16 (A) Photo. 6 や Fig. 14 (A) Photo. 6 に見られるように、アーベル効果により粒子内の低温側に析出した炭素相には 2 種類があるようと思われる。つまり燃料核移動方向のすぐ後側に析出した相とバッファー層の亀裂の間に析出した相である。異った 2 つの形態の炭素相が析出する原因は現在のところわからないが、燃料核と接して析出する相は燃料核の開気孔内に析出する相と同じようであり、バッファー層の亀裂の間に析出する相に比べてウラン含有率が高いのではないかと考えられる。これについては XMAなどを使って確かめなければならない。

外観やX線検査では Fig. 16(B) に見られるように表面が若干変色していたり、Fig. 16(C) に見られるように若干のアーベル効果が見られた以外には特別な照射変化はなかった。

72 FC 10-6B (Fig. 17 (A), (B) および(C)) [照射条件: 1470 °C - 800 °C, 20 % FIMA, $1.0 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$]

Fig. 17(A) に見られるようにこの試料にもわずかながらアーベル効果が見られる。Table 1 に示したようにこの粒子の最外層のBAF 値は 1.43 であるにもかかわらず、研磨による最外層の亀

裂の発生は見られなかった。72 F - 6 A 及び 72 F - 7 A キャップセルで照射した結晶優位配向性の高いほとんどの粒子には放射状の亀裂が発生したが、ここで亀裂が発生しなかったことは前者の粒子ほど大きい内部応力の発生がなかった事を意味している。これは前のキャップセルに比べて照射温度が比較的高かったため、PyCの照射クリープが大きく作用して内部応力を低める結果になったものと思われる。このような亀裂の問題は今後さらに調べていく予定である。Fig. 17(B)では“しみ状”の斑点が現れたり、粒子破片が4個見られた。またFig. 17(C)に示すようにX線ではラジオグラフィ検査では被覆層の一部が欠け落ちている様子が見られたが、この粒子の燃料核は健全であることから、恐らくこれは照射後試験の取扱い中に破損したものと考えられる。

5.3 硝酸浸出試験

酸浸出試験には外観検査及びX線ラジオグラフィ検査を終えた300粒を使用した。従って同一試料のためTable 3に出示す外観及びX線ラジオグラフィ破損率と酸浸出率を直接比較する事が出来る。300粒を6mol硝酸浸出液で1時間煮沸した後、粒子から浸出液を分離し、その全ガンマ線強度を測定した。またこれらの粒子とは別に分離していた10粒子の全ガンマ線を測定し、これを300粒子分のガンマ線強度に変換し、その比(R)を求めた。このR値が $\geq 10^{-4}$ の場合、さらにガンマースペクトロメリーによる測定を行い、Cs-137の浸出率を求めた。これによって得たR値及びCs-137浸出率をTable 4に示す。この表に示すようにR値はCs-137浸出率に比して約2倍以内の大きさの値を示している。つまりCs-137は破損粒子からは放出されやすいことを意味している。しかし浸出率を破損率と見放すためには健全粒子及び破損粒子ともCs-137が100%粒内に捕獲され酸浸出により破損粒子のみから全Cs-137が溶出されることという前提に基づくものである。しかしFig. 12(B)～Fig. 15(B)の外観写真で見られたような穴があいた破損粒子内に100%のCs-137がとどまっているとは考えられないし、またFig. 12(C)Photo. 1やFig. 15(C) Photo. 1に見られるように燃料核そのものさえも破損粒子内に存在していない。このような破損を生じている粒子の浸出率から破損率を求める事は無意味であり、Table 4に示す試料粒子のうち特に照射温度が高かった中段及び下段内筒の浸出率と破損率の対応は困難である。しかし上段内筒に封入された73 FC1-2 A 及び 74 FC1-2 B の場合は照射温度そのものが高くなかったため(max. 1180°C)、ある程度の対応は可能である。この三つの試料についてはR値とCs-137浸出率はほぼ同じである。しかしTable 3に示す外観破損率と比較するとCs-137浸出率は1/2～1/5程度であり、恐らくこの違いは破損粒子からのCs-137の逃げ及び燃料核が完全に溶出していないことによるものと思われる。また73 FC1-6 A の場合Cs-137浸出液のガンマ線計数率は測定限界以下であり、外観やX線検査結果と比較しても健全であったと思われる。

5.4 被覆粒子の破壊強度測定

照射済被覆粒子の破壊強度は最大荷重10kg、最大変位1mmの被覆燃料粒子破壊装置によつて測定された。この測定方法については前報⁽³⁾に詳細に記したが、概略的に言えば、被覆燃料

粒子に圧縮荷重を加え、その変位と破壊荷重を測定するものである。この測定に供した粒子燃料は5種類でそれらの粒子名、粒子数およびその測定結果をTable 5に示す。この中で73 FC 1粒子については72 F-6 Aキャップセルでも照射しており、その結果についてはすでに報告している⁽³⁾。Table 5に示す今回の結果から次のことが言える。

1) 73 FC 1と73 FC 3の平均破壊荷重を比較すると、未照射の場合前者で2.4 kg、後者が3.2 kg、照射された場合で前者が~1.7 kg、後者が2.3 kgであり、73 FC 3の方が明かに強度が大きい。Table 1に示すように両者の物性はほとんど同じであるが、第4層PyCの厚みでは73 FC 3の方が若干厚い。Lacbey⁽¹⁾の実験によると、粒子破壊強度は第4層PyCが蒸着されるとSiC層までの粒子に比べて大幅に増加するという結果が得られており、73 FC 1と73 FC 3の強度の違いもこの第4層の厚みの違いから起因しているとも考えられる。

2) 前報⁽³⁾でも報告したように被覆層破壊強度は照射開始と同時に急激に低下するが、 $\sim 10^{21}$ n/cm ($E > 0.18$ MeV)以上になると強度の低下はゆるやかになり、 1.5×10^{21} n/cmで未照射の破壊荷重の約70%となる。炉外加熱においても強度の低下は起るが⁽²⁾、これは加熱によるSiC層の強度の低下に起因しているものと考えられる。しかしSiC層だけの強度についてみると、照射(室温)によってむしろ強度は増加するという結果⁽¹³⁾も得られており、照射済粒子の強度の低下が炉外加熱による粒子強度低下と同じようには考えられない。

またFig. 18には73 FC 3粒子の個々の破壊荷重と被覆粒子直径との関係を一例として示すが、これより

3) 照射及び未照射粒子を問わず、同一バッチ内では粒子径は被覆層破壊荷重にほとんど影響を及さない。

また全被覆層厚さと破壊荷重との関係については一例としてFig. 19に示すように

4) 変位量と破壊荷重は比例的な関係を示し変位量の大きいものほど破壊荷重が大きくなる傾向が見られる。なお被覆粒子破壊強度については後に別途、詳細に報告する予定である。

6. 考 察

この照射実験の特徴は特に中段内筒に装荷された試料粒子が#35サイクルで著しい高温(> 1700 °C)にさらされたことである。また燃焼度も前回の72 F-6 Aキャップセルに比べて若干増加している。しかし高速中性子照射量は前回の場合とほとんど同じで、最大 1.45×10^{21} n/cm² ($E > 0.18$ MeV)であった。

この照射条件は照射日数を除けば現在進められている多目的高温ガス実験炉の諸条件を十分カバーするものである。上段内筒の試料は実験炉通常運転時の照射条件に近く、中段内筒のそれは異常時の条件、また下段内筒試料は変動状態における条件に近い。このような照射を受けた試料粒子について以下に示す項目について考察を行った。

粒子に圧縮荷重を加え、その変位と破壊荷重を測定するものである。この測定に供した粒子燃料は5種類でそれらの粒子名、粒子数およびその測定結果をTable 5に示す。この中で73 FC 1粒子については72 F-6 A キャプセルでも照射しており、その結果についてはすでに報告している⁽³⁾。Table 5に示す今回の結果から次のことが言える。

1) 73 FC 1と73 FC 3の平均破壊荷重を比較すると、未照射の場合前者で2.4 kg、後者が3.2 kg、照射された場合で前者が～1.7 kg、後者が2.3 kgであり、73 FC 3の方が明かに強度が大きい。Table 1に示すように両者の物性はほとんど同じであるが、第4層PyCの厚みでは73 FC 3の方が若干厚い。Lacbey⁽¹⁰⁾の実験によると、粒子破壊強度は第4層PyCが蒸着されるとSiC層までの粒子に比べて大幅に増加するという結果が得られており、73 FC 1と73 FC 3の強度の違いもこの第4層の厚みの違いから起因しているとも考えられる。

2) 前報⁽³⁾でも報告したように被覆層破壊強度は照射開始と同時に急激に低下するが、 $\sim 10^{21}$ n/cm ($E > 0.18$ MeV)以上になると強度の低下はゆるやかになり、 1.5×10^{21} n/cmで未照射の破壊荷重の約70%となる。炉外加熱においても強度の低下は起るが⁽²⁾、これは加熱によるSiC層の強度の低下に起因しているものと考えられる。しかしSiC層だけの強度についてみると、照射(室温)によってむしろ強度は増加するという結果⁽¹¹⁾も得られており、照射済粒子の強度の低下が炉外加熱による粒子強度低下と同じようには考えられない。

またFig. 18には73 FC 3粒子の個々の破壊荷重と被覆粒子直径との関係を一例として示すが、これより

3) 照射及び未照射粒子を問わず、同一バッチ内では粒子径は被覆層破壊荷重にほとんど影響を及さない。

また全被覆層厚さと破壊荷重との関係については一例としてFig. 19に示すように

4) 変位量と破壊荷重は比例的な関係を示し変位量の大きいものほど破壊荷重が大きくなる傾向が見られる。なお被覆粒子破壊強度については後に別途、詳細に報告する予定である。

6. 考 察

この照射実験の特徴は特に中段内筒に装荷された試料粒子が#35サイクルで著しい高温(> 1700 °C)にさらされたことである。また燃焼度も前回の72 F-6 A キャプセルに比べて若干増加している。しかし高速中性子照射量は前回の場合とほとんど同じで、最大 1.45×10^{21} n/cm² ($E > 0.18$ MeV)であった。

この照射条件は照射日数を除けば現在進められている多目的高温ガス実験炉の諸条件を十分カバーするものである。上段内筒の試料は実験炉通常運転時の照射条件に近く、中段内筒のそれは異常時の条件、また下段内筒試料は変動状態における条件に近い。このような照射を受けた試料粒子について以下に示す項目について考察を行った。

6.1 被覆粒子破損

照射済被覆粒子の破損形態にはアメーバ効果による化学的な破損と被覆層にクラックが発生する物理的破損とに分類出来るが、特に後者の場合、73 F - 12 A キャプセルでは照射に起因した破損と照射とは直接関係のない破損（試料ホルダーの穴の中で試料粒子が何らかの点接触による圧縮荷重を受けて破損したもの）が観察された。たとえば 74 FC 1-4B (Fig. 13(B) Photo. 2 及び 3) の表面に見られたようなリングクラックは圧縮荷量による破損を示しており、またこの Photo. 3 には Hertian コーンクラック⁽¹¹⁾ らしきものもその中央部に見られる。このような圧縮荷重の発生原因については現在のところ明らかではない。たとえば FP ガスや CO ガスなどから内圧を受けた被覆粒子が熱膨張を起し、これがキャプセルの試料ホルダー内で、互いに圧縮し合って、外部 PyC に破損を生じせしめたいとも考えられる。しかし GA で行われた照射下での TRISO 型被覆粒子の体積変化の計算⁽¹⁴⁾によると、TRISO 粒子は照射量の増加と共にわずかながら体積減少を示しており、上記の推察は成り立たない。また黒鉛試料ホルダーの照射収縮により試料保持用の孔の径が減少し、このため粒子に圧縮荷重が作用したとも考えられるが、粒子の照射収縮を考慮すると孔の径の減少で粒子を破壊せしめる程の荷重（～2 kg 以上）が発生するかどうか疑問である。いずれにしてもこの種の破損は外部からの応力の作用で発生したものであり、実際に多目的炉で使用されるコンパクトの状態ではこれは起り得ない破損である。この外圧による破損は 74 FC 1-4B と 74 FC 1-5B といった 74FC 1 粒子にのみ観察されており、外観検査で確認されたものだけでも前者が 2 個 (Fig. 13(B))、後者が 1 個 (Fig. 15(B)) あった。従ってこの両試料については Table 3 に示す外観破損率が実際には若干小さくなる。

Table 3 に示す外観破損率及び X 線ラジオグラフィによる破損率では中段内筒の試料 (73 FC1 - 4 A, 74 FC1 - 4 B) 及び下段内筒の 74FC1 - 5B が特に大きな値を示している。上述したように 74FC 1 粒子については外圧破損も 1 ~ 2 粒子含まれるが、金相で観察されたように大部分の試料粒子は照射に起因したアメーバ効果によるものであった。照射下でのアメーバ効果の特徴は、核分裂により UO₂結晶構造がくずれ、酸素が粒内に放出されるため、CO ガス圧が炉外加熱に比べて高く、同一条件でも炉外加熱に比べてアメーバ効果が起りやすいことである。これらの試料の高い破損率は～1800 °C (中段内筒温度) や～1500 °C (下段内筒温度) といった高温照射にさらされたことと試料粒子用のホルダーにおいて個々の粒子内にかなり大きな温度勾配 (推定で > 100 °C) がついたことがその原因である。最初にも記したように、このような高温照射は実験炉の異常時や変動状態でなければ実現されないものであり、この観点から 73FC 1 - 4 A や 74 FC 1 - 4 B の破損率 (Table 3) は異常時におけるもの、また 73 FC 1 - 5 B, 73 FC 3 - 6 A, 72 FC 10 - 6 B の破損率は変動状態におけるものと見做すことが出来る。従って異常時に 1800 °C の超高温が約 20 日間 (Fig. 7 参照) 続いたとして、約 2% FIMA の燃焼度 (#35 サイクル終了時) での粒子破損率の最大値は Table 3 に見られるように 73 FC1 - 4 A で 4.7%，74 FC 1 - 4 B で 6.7% (いずれも 95% 信頼区間) の最大値を越えないものとみられる。74 FC 1 - 4 B では先に記した外圧破損を除いても最大破損率は 6% 以上となる。一方、下段内筒の粒子破損率は 1500 °C で約 20 間の変動状態が続いた時の破損率と見做すことが出来るが、粒子試料によって破損率には大きな差が見られる。73 FC 1 - 5 A や 73 FC 3 - 6 A といった 48 年度試作粒

子は検査個数 300 粒中破損粒子はまったく認められず、照射安定性は良好であった。また 72 FC 10 - 6 B では Table 1 に示すように最外 PyC 層の BAF 値が 1.43 と結晶配向の異方性の大きいものを使ったため、照射安定性は良くなく、最大で 1.3 % の破損率を示した。しかし 74 FC 1-5B は 73 FC 1-5A とまったく同じ条件で照射されたにもかかわらず、破損率が最大で 8.4 % (X線検査) にも達する高い値を示している。Fig. 14(A) および Fig. 15(A) に見られるように、73 FC 1-5A および 74 FC 1-5B ともアメーバ効果の発生が認められるが、74 FC 1-5B の粒子破損率が高かったことは燃料核の移動速度が 73 FC 1-5A に比べて大きかったことを意味している。つまり 74 FC 1-5B 被覆層のアメーバ効果による侵食速度が 73 FC 1-5A のそれより大きかったと言える。同一照射条件下ではこの速度は被覆層の特性に依存するか、74 FC 1 の内部高密度 PyC 層の密度が 73 FC 1 のそれより低かったこと (Table 1) もその侵食速度が大きかった原因の 1 つと考えられる。

上段内筒で照射された 73 FC 3-1B, 73 FC 1-2A および 74 FC 1-2B は実験炉内で通常運転時の最高照射条件 (燃焼度 2.2 %FIMA, 高速中性子照射量 $7 \times 10^{20} \text{ n/cm}^3$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$), 公称最高温度 1300°C)⁽¹⁵⁾ に近い条件で照射されたが (Table 2 参照), 73 FC 3-1B, 73 FC 1-2A については外観検査で被覆層破片が 1 個見られただけで、破損粒子は認められなかった。しかし検査個数が 300 粒であったため、95 % 信頼区間での最大破損率は 1.6 % にも達した。一方 74 FC 1-2B ではアメーバ効果による破損は認められなかったが、外観検査では物理的に破損した粒子が 3 粒認められ、95 % 信頼区間での最大破損率は 2.6 % にも達した。74 FC 1 粒子についてはどの照射条件においても照射安定性は良くなかったが、PyC 及び SiC のパラメトリックな研究の中でその原因を追求していく予定である。

6.2 燃料核

本試料粒子の中で 73 FC 3 粒子の燃料核密度は 90 % TD であるのに対し他は 95 % TD であった。この核密度の違いが粒子照射安定性に及ぼす効果については明確には現われなかった。しかし定性的には次の事が言える。Fig. 9(A) に示すように 73 FC 3-1B の 90 % TD 燃料核は他の粒子のそれに比して著しい収縮を示しているが、Fig. 16(A) にみられるように 73 FC 3-6A ではむしろスエリングの傾向 (たとえば Photo. 4 ではバッファー層のギャップに燃料核が入っている) さえみられる。これらの燃焼度は共に 2.0 % FIME (Table 2) で、高速中性子照射量もほとんど同じである。照射温度は 73 FC 3-1B の場合、最高 1180°C であるのに対し、73 FC 3-6A では 1470°C であった。前者が焼きしまり、後者がスエリングの状態にあるとの違いは恐らく照射温度から来るものと思われる。前者が多目的炉の通常運転状態に対応し、後者が変動状態に対応している。前者の 73 FC 3-1B では核収縮のためバッファー層や内部 PyC 層の剥離が発生していることを考えると、90 % TD 燃料核は多目的炉通常運転状態においては不適当であると言わざるを得ない。

6.3 バッファー層及び内部高密度 PyC 層

バッファー層や内部高密度 PyC の剥離を防ぐために、前回の報告⁽³⁾ では内部高密度 PyC の密

度を従来より上げ、バッファー層の密度を低げるという改良被覆粒子を提案した。これは燃料核とバッファ層の密着性を下げ、バッファー層と内部高密度PyC層の密着性を上げることにより、SiC層から内側の粒子を安定させることを目指したものである。しかし、PyCの蒸着機構を考慮すると密着性の問題は密度と共に蒸着温度も関連してくるようである。バッファー層を蒸着した後、内部高密度PyCの蒸着の際にはバッファー層の開気孔の中に炭素が浸透してバッファー層の密度を若干高めるという報告がある。⁽¹⁰⁾ これによると、炭素浸透の度合は蒸着密度が高いほど少なくなるようであり、それだけバッファ層と内部PyC層との密着性が減少することを意味している。73 F - 12 A キャプセルで使用した粒子の内部高密度PyCはC₃H₈（蒸着温度～1400 °C）およびC₃H₆（蒸着温度～1350 °C）で得られたものであり、先の報告⁽¹⁰⁾からすると、これらの粒子ではバッファー層への炭素の浸透は十分に起っており、これらの密着性も良いはずである。事実、Fig. 10 (A) Photo. 6にみられるように、バッファー層と内部高密度PyC層は剥離はしているが、これらの層の境界から剥離しているのではなく、バッファ層内に一部クラックが入って割れている現象が認められ、これらの境界の密着性は良いようである。このようなバッファー層内のクラックによる剥離は数多く見られた。この事から剥離の現象はバッファー層と燃料核との間の密着性が最も原因していると考えられる。この密着の機構として考えられるのは、

- (1) バッファー層／内部PyC層間の密着と同じように燃料核の開気孔に炭素が浸透して生ずる。
- (2) UO₂ 燃料核の表面でUO₂／UCO (or UC₂)／Cの薄い層が出来て、バッファー層と燃料核の密着を起している。

前回の72 F - 6 A キャプセルで照射した一部の試料粒子には燃料核表面に炭化ウランの様な相が現われていたが、バッファー層／燃料核の密着は起っていなかった。このことから(1)が原因しているように思われる。もし(1)が原因であり、また内部PyC蒸着の際、バッファー層への炭素の浸透の機構が燃料核への炭素の浸透機構と同じであれば、このような剥離を避ける手段としてはバッファー層蒸着温度を従来（～1300 °C）より100～200 °C程度高める必要がある。これによりバッファー層と燃料核の密着性を減少することが出来る。

6.4 SiC 層及び最外 PyC 層

今回の照射ではSiC層はかなり良好な安定性を示したと言えよう。SiCの劣化には(i)粒内のCOガスと反応してSiOとしてガス化される。(ii) SiC層内に微小な気孔が発生するといったものであるが、今回は(ii)の劣化はまったく見られなかった。(i)の劣化はアメーバ効果発生による場合 (Fig. 13 (A) Photo. 4, 5, 6) と内部PyCがSiC層から剥離した状態でSiC層内面がガス相と接した場合 (Fig. 15(A) Photo. 5, 6) とに起っている。しかし中段内筒で照射された試料粒子は～1800 °Cの高温にさらされたにもかかわらず、もしアメーバ効果の発生がなければ、SiCの劣化はほとんどなかったものと思われる。このような高温安定性を示したことはSiCを高密度 (>3.19 g/cm³) にしたためである。

今回照射した最外PyC層の特徴は(i)プロパン 及びプロピレン蒸着のPyC、(ii) BAFが1.0の標準PyC及び1.43の異方性PyCが含まれている。74 FC 1の最外層はプロピレン蒸着によるもので

あるが、最外層PyCだけを注目した場合 74 FC 1—2 B, 74 FC 1—4 B, 74 FC 1—5 B のそれらは他に比べてクラック発生は見られず、最外層PyCの照射安定性は良かった。一方、1.43 のBAF を有する 72 FC 10—6 B の最外層PyCにもクラック発生はなかった。72 F—6 A キャプセルの場合、この程度の異方性を有する最外層PyCには金相の研磨の際、放射状のクラックが発生していたが、5.2.2 で記した様にこの試料にクラックの発生がなかった事は照射温度が比較的高かったため、最外層PyCに生じた引張り応力を緩和するような照射クリープが作用したためと考えられる。なお、被覆層の応力とこのようなクラック発生との関係については現在研究中であり、その結果については近い将来に報告する予定である。

7. 結 論

73 F—12 A キャプセルでは上段内筒試料が多目的高温ガス実験炉の通常状態、中段内筒試料が異常高温状態、下段内筒試料が変動状態に対応するような照射条件であった。このような照射に対して以下の結論が得られた。

- (1) 上段内筒（通常状態対応）による48年度、49年度試作粒子のX線、外観検査による粒子破損率は95%信頼区間で max. 1 ~ 3%, min. 0 ~ 0.9% であった。この最大値は多目的炉設計による破損率 (EOLで max. 0.1%)⁽¹⁷⁾ をはるかに越えている。しかし検査粒子料が少なかった事やコンパクトにしない粒子のまま試料ホルダーの穴の中で照射したという特殊な条件から 95% 信頼区間の破損率が増えたものと思われ、むしろ今後、照射方法や照射後試験方法を改良しなければならない。
- (2) 中段内筒（異常高温状態）によるX線、外観検査による破損率は 95% 信頼区間で max. 4.7 ~ 6.7% に達していたが、アーベラ効果によるこれらの粒子の破損を考慮すると（設計値では過渡出力時で最大 45 μm の移動で破損とみなす）、粒子破損率は数十%に達すると思われる。しかし、今回の場合、コンパクト化しない粒子のままの照射であったため、通常のコンパクト内での粒子の温度勾配に比してはるかに高い温度勾配がついているものと思われる。
- (3) 下段内筒（変動状態対応）での試料粒子破損率も 95% 信頼区間で max. 1 ~ 8.4% にも達した。これもアーベラ効果による破損が多く見られた。
- (4) 90% 密度の燃料核は多目的炉設計の通常運転時の最大照射条件に対応する状態で、焼きしまりによる収縮が 95% のものに比して大きかった。このため、剥離による粒内破損が発生しやすく、燃料核としては密度の高い方が良いことが明らかになった。
- (5) プロパン及びプロピレン蒸着によるPyCの照射挙動には違いは認められなかった。
- (6) 被覆層の圧縮破壊強度は未照射に比べて中性子照射量が $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) で約 70% まで減少する。

あるが、最外層PyCだけを注目した場合 74 FC 1—2 B, 74 FC 1—4 B, 74 FC 1—5 B のそれらは他に比べてクラック発生は見られず、最外層PyCの照射安定性は良かった。一方、1.43 の BAF を有する 72 FC 10—6 B の最外層PyCにもクラック発生はなかった。72 F—6 A キャプセルの場合、この程度の異方性を有する最外層PyCには金相の研磨の際、放射状のクラックが発生していたが、5.2.2 で記した様にこの試料にクラックの発生がなかった事は照射温度が比較的高かったため、最外層PyCに生じた引張り応力を緩和するような照射クリープが作用したためと考えられる。なお、被覆層の応力とこのようなクラック発生との関係については現在研究中であり、その結果については近い将来に報告する予定である。

7. 結論

73 F—12 A キャプセルでは上段内筒試料が多目的高温ガス実験炉の通常状態、中段内筒試料が異常高温状態、下段内筒試料が変動状態に対応するような照射条件であった。このような照射に対して以下の結論が得られた。

- (1) 上段内筒（通常状態対応）による48年度、49年度試作粒子のX線、外観検査による粒子破損率は95%信頼区間で max. 1 ~ 3%, min. 0 ~ 0.9% であった。この最大値は多目的炉設計による破損率 (EOLで max. 0.1%)⁽¹⁷⁾ をはるかに越えている。しかし検査粒子料が少なかった事やコンパクトにしない粒子のまま試料ホルダーの穴の中で照射したという特殊な条件から 95% 信頼区間の破損率が増えたものと思われ、むしろ今後、照射方法や照射後試験方法を改良しなければならない。
- (2) 中段内筒（異常高温状態）によるX線、外観検査による破損率は 95% 信頼区間で max. 4.7 ~ 6.7% に達していたが、アーベー効果によるこれらの粒子の破損を考慮すると（設計値では過渡出力時で最大 45 μm の移動で破損とみなす）、粒子破損率は数十%に達すると思われる。しかし、今回の場合、コンパクト化しない粒子のままの照射であったため、通常のコンパクト内での粒子の温度勾配に比してはるかに高い温度勾配がついているものと思われる。
- (3) 下段内筒（変動状態対応）での試料粒子破損率も 95% 信頼区間で max. 1 ~ 8.4% にも達した。これもアーベー効果による破損が多く見られた。
- (4) 90% 密度の燃料核は多目的炉設計の通常運転時の最大照射条件に対応する状態で、焼きしまりによる収縮が 95% のものに比して大きかった。このため、剥離による粒内破損が発生しやすく、燃料核としては密度の高い方が良いことが明らかになった。
- (5) プロパン及びプロピレン蒸着によるPyCの照射挙動には違いは認められなかった。
- (6) 被覆層の圧縮破壊強度は未照射に比べて中性子照射量が $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) で約 70% まで減少する。

謝　　辞

本キャプセルの照射試料実施にあって御協力を賜わった事に対し、特に次の課室の諸兄に謝意を表したい。

(1) キャプセル設計、製作、照射

大洗研究所材料試験炉部照射一課、同二課、同三課、計画課

東海研究所技術部工作課

(2) 照射後試験

大洗研究所材料試験炉部ホットラボ課

(3) 燃焼度測定

東海研究所化学部燃焼率測定開発室

最後に本報告を書くにあたって御激励を賜わった燃料工学部下川純一部長に謝意を表する。

参考文献

- (1) 岩本多実, 福田幸朔, 鹿志村悟, 菊地章, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(I) (70 F - 4 A キャプセルによるJMTR 照射)”, JAERI - M 6480 (1976).
- (2) 岩本多実, 福田幸朔, 鹿志村悟, 菊地章, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(II) (71 F - 4 A キャプセルによるJMTR 照射)”, JAERI - M 6717 (1976).
- (3) 福田幸朔, 鹿志村悟, 岩本多実, 井川勝一, “被覆燃料粒子の照射挙動試験(III) (72 F - 6 A 及び 72 F - 7 A キャプセルによるJMTR 照射)”, JAERI - M 8949 (1980).
- (4) 野村靖, 私信 (1976).
- (5) 桜井文雄, 大島邦男, 私信 (1981, 3月).
- (6) 鹿志村悟, 岩本多実, 飯田省三, 斎藤光男, JAERI - M 6332 (1975).
- (7) 古屋広高, 私信 (1979).
- (8) M.O. Marlowe, NEDO-12440 (1973), TRANS. ANS. 17 (1973) 166.
- (9) F.J. Homan and E.L. Long, Jr., ORNL/TM-5502 (1976).
- (10) H. Grübmeier, A. Naoumidis and B.A. Thiele, Jü1-1382 (1977).
- (11) A. Briggs, R.W. Davidge et al., J. Nucl. Mater. 61 (1976) 233.
- (12) W.J. Lackey, D.P. Stinfon et al., Nucl. Technol., 31 (1976) 191.
- (13) K. Minato, K. Fukuda and K. Ikawa, J. Nucl. Sci. Technol., 投稿中 (1981).
- (14) C.B. Scott and D.P. Harmon, GA-A 13267 (1975).
- (15) 多目的高温ガス実験炉設計室; “原子炉設置許可申請書添付書類八資料” (1980).
- (16) H.W. Pehin, W.J. Lackey, J.D. Sease and W.P. Eatherly, ORNL-5165 (1977).
- (17) 荒井長利, (私信)

附 錄

JMT Rにおける被覆粒子の燃焼度は次式により求められた。

$$\text{燃焼度 } (\% \text{FIMA}) = \sum_{i=1}^n (\bar{Q}_i \times T_i) \times F_z \times \left(\frac{\ell}{u} \right) \times F_{UO_2} \times F_{\text{FIMA}}$$

ここで

\bar{Q}_i : i サイクルの軸平均発熱量 (w/cm)

$$= \frac{Q_{pes} - r_{\text{発熱}}}{P_{fac}}$$

Q_{pes} : 核計算 (CITATION) による最大発熱量 (w/cm)

T_i : i サイクルの 50 MW 出力換算相当運転日数 (day)

P_{fac} : 軸方向ピーキングファクター

F_z : 照射孔及び試料の軸方向位置における係数

I : 試料長さ (cm)

U : ウラン量 (g)

F_{UO_2} : U 量と UO_2 量の換算係数

F_{FIMA} : 燃焼度 ($MWD/T_{of UO_2}$) から (%FIMA) への換算係数 ($= 1.2 \times 10^{-4}$)

ここで計算できる燃焼度には $^{238}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Pu} \rightarrow \text{Fission}$ よる発熱は考慮されていない。従って計算値そのものを燃焼度と決定するには多少無理がある。そこで従来のキャプセル (70 F - 4 A, 71 F - 7 A, 72 F - 6 A, 72 F - 8 A, 72 F - 9 A) で照射した試料粒子の実測燃焼度とここで計算値との対比から燃焼度を求めた。実測燃焼度と計算値との関係を Fig.A1 に示すが、最小 2乗法から得られるこの関係は

$$\text{燃焼度 (実測)} = 0.9479 \times \text{燃焼度 (計算)} - 0.2256 \quad (\% \text{FIMA})$$

で示される。従って計算で求めた燃焼度を上式に入れ補正することによって ^{239}Pu の燃焼も考慮した燃焼度を求めることが出来る。

Table 1 Characterization of coated fuel particles irradiated in 73F-12A capsule.

Inner capsule		I			II			III			
Sample holder		A	B	A	B	A	B	A	B	A	
Name of sample	74FC2 (ZrC, No.143)	73FC3	73FC1	74FC1 *	74FC2 (ZrC, No.143)	72FC16 (ZrC, No.130)	73FC1	74FC1 *	73FC1	73FC3	
UO ₂ kernel	mean diameter (μm) fraction O/U density (% TD) enrichment (% ²³⁵ U)	514.8 2.006 96.58 7.933	489.0 2.005 90.45 8.127	514.8 2.006 96.58 7.953	514.8 2.006 96.58 7.953	502.0 2.008 95.25 7.912	487.8 2.007 96.58 8.127	514.8 2.006 95.25 7.953	487.8 2.007 96.58 8.127	514.8 2.006 90.45 7.953	489.0 2.005 90.45 8.127
1st layer (PyC)	mean thickness (μm) density (g/cm ³) deposition gas	43.1 1.185 C ₂ H ₂	36.7 1.04 C ₂ H ₂	42.6 1.105 C ₂ H ₂	40.6 1.1795 C ₂ H ₂	43.1 1.185 C ₂ H ₂	36.0 1.105 C ₂ H ₂	42.6 1.1795 C ₂ H ₂	40.6 1.105 C ₂ H ₂	42.6 1.1795 C ₂ H ₂	40.6 1.105 C ₂ H ₂
2nd layer (LTI-PyC)	mean thickness (μm) density (g/cm ³) deposition gas	27.9 1.807 C ₃ H ₆	27.3 1.834 C ₃ H ₈	27.0 1.844 C ₃ H ₈	30.8 1.786 C ₃ H ₆	27.9 1.807 C ₃ H ₈	26.0 1.75-1.80 C ₃ H ₆	27.0 1.844 C ₃ H ₈	30.8 1.786 C ₃ H ₈	30.8 1.786 C ₃ H ₈	30.8 1.75-1.80 C ₃ H ₈
Coating 1 layer	mean thickness (μm) density (g/cm ³) deposition gas	50(ZrC)	28.8	28.1	26.0	50(ZrC)	30(ZrC)	28.1	26.0	28.1	26.0
3rd layer (SiC)	mean thickness (μm) density (g/cm ³) deposition gas	3.199 CH ₃ SiCl ₃	3.198 CH ₃ SiCl ₃	3.213 CH ₃ SiCl ₃	—	—	3.198 CH ₃ SiCl ₃	3.213 CH ₃ SiCl ₃	3.198 CH ₃ SiCl ₃	3.213 CH ₃ SiCl ₃	3.199 CH ₃ SiCl ₃
4th layer (LTI-PyC)	mean thickness (μm) density (g/cm ³) deposition gas	— 1.810 C ₃ H ₈	— 1.8095 C ₃ H ₈	— 1.800 C ₃ H ₆	— 28.5 23.625	— 41.7 44.4	— 1.8095 C ₃ H ₈	— 28.5 23.625	— 41.7 44.4	— 41.7 44.4	— 43.9 43.0
BAF	L _c (Å)	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025	— 1.025
Mean diameter of particles (μm)	745	750.0	751.8	796.5	745	685	751.8	796.5	751.8	796.5	750.0
Density of particles (g/cm ³)	— 1.7129	4.3 1.5611	4.3 1.5921	4.5 1.5757	— 1.7125	— 2.0384	4.3 1.5926	4.5 1.5752	4.3 1.5925	4.5 1.5751	4.3 1.5603
Weight of sample (g)	0.9433	0.9398	0.9393	0.9430	0.9430	0.941	0.9396	0.9428	0.9396	0.9426	0.9393
Content of uranium in sample (g)	— 0.602	— 0.590	— 0.5985	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —
Uranium content per 1g particles (g)	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —	— —

* 74 FC 1は2度製造されたが、73F-12Aチャップセルに装荷されたものは第1回目に製造されたものである。

Table 2 Irradiation data of 73F-12A capsule.

JAERI - M 9644

Inner capsule Sample holder	Remarks	I		II		III	
		1	2	3	4	5	6
Coated fuel particles	Particles prepared from 1972 to 1974	74FC2-1A 73FC3-1B	73FC1-2A 74FC1-2B	74FC2-3A 72FC16-3B	73FC1-4A 74FC1-4B	73FC1-5A 74FC1-5B	73FC3-6A 72FC10-6B
Fuel burnup (% FIMA)	Calculated *	2.0	2.5	3.2	3.2	2.4	2.0
Thermal neutron fluence (cm^{-2} , $E < 0.625\text{eV}$)	Calculated	8.3×10^{20}	1.0×10^{21}	1.46×10^{21}	1.5×10^{21}	1.25×10^{21}	1.07×10^{21}
Fast neutron fluence (cm^{-2} , $E > 0.18\text{MeV}$)	Calculated	8×10^{20}	9.6×10^{20}	1.43×10^{21}	1.45×10^{21}	1.17×10^{21}	1.0×10^{21}
#34	former	max. 1160 - min. 840	max. 1420 - min. 1110	max. 1420 - min. 1110	max. 1260 - min. 970		
	latter	1140 - 850	1810 - 1150	1810 - 1150	1470 - 990	**	
#35	former	1180 - 820	1780 - 1110	1780 - 1110	1470 - 970	**	
	latter	1170 - 840	1680 - 1080	1680 - 1080	1410 - 970	**	
	former	820 - 700	1060 - 900	1060 - 900	920 - 800	**	
#36	latter	840 - 760	970 - 960	970 - 960	910 - 870	**	
Irradiation duration (hr)		1500.5 (62.5 EFPD)					
Irradiation hole		K-10 (fuel zone)					
Irradiation performance		from 12 October, 1975 to 30 April, 1976					

* calculated and then calibrated. See Appendix.

** estimated.

Table 3 Failure fraction observed by surface appearance and X-ray microradiography inspections.

Coated particles	Surface appearance inspection		X-ray microradiography inspection	
	X_1	X_2	Y_1	Y_2
73FC3-1B	3.3×10^{-3}	$1.6 \times 10^{-2} - 1.7 \times 10^{-4}$	0	$9.9 \times 10^{-3} - 0$
73FC1-2A	3.3×10^{-3}	$1.6 \times 10^{-2} - 1.7 \times 10^{-4}$	3.3×10^{-3}	$1.6 \times 10^{-2} - 1.7 \times 10^{-4}$
74FC1-2B	1.0×10^{-2}	$2.6 \times 10^{-2} - 2.7 \times 10^{-3}$	2.0×10^{-2}	$3.0 \times 10^{-2} - 8.8 \times 10^{-3}$
73FC1-4A	2.7×10^{-2}	$4.7 \times 10^{-2} - 1.3 \times 10^{-2}$	2.7×10^{-2}	$4.7 \times 10^{-2} - 1.3 \times 10^{-2}$
74FC1-4B	3.0×10^{-2}	$5.2 \times 10^{-2} - 1.6 \times 10^{-2}$	4.3×10^{-2}	$6.7 \times 10^{-2} - 2.3 \times 10^{-2}$
73FC1-5A	0	$9.9 \times 10^{-3} - 0$	0	$9.9 \times 10^{-3} - 0$
74FC1-5B	3.3×10^{-2}	$5.6 \times 10^{-2} - 1.8 \times 10^{-2}$	6.0×10^{-2}	$8.4 \times 10^{-2} - 3.9 \times 10^{-2}$
73FC3-6A	0	$9.9 \times 10^{-3} - 0$	0	$9.9 \times 10^{-3} - 0$
72FC10-6B	1.3×10^{-2}	$3.1 \times 10^{-2} - 4.6 \times 10^{-3}$	—	—

X_1 and Y_1 indicate failure fraction in 300 or 299 particles.

X_2 and Y_2 indicate 95% confidence limit of the failure fraction.

Table 4 Results of acid-leaching test for the coated particles irradiated by 73F-12A capsule.

Coated particles	R value*	Cs-137 leaching fraction
73FC3-1B	1.3×10^{-3}	1.2×10^{-3}
73FC1-2A	1.3×10^{-3}	1.6×10^{-3}
74FC1-2B	2.7×10^{-3}	2.1×10^{-3}
73FC1-4A	9.6×10^{-3}	4.5×10^{-3}
74FC1-4B	5.9×10^{-2}	4.3×10^{-2}
73FC1-5A	1.0×10^{-3}	5.1×10^{-4}
74FC1-5B	2.7×10^{-3}	1.9×10^{-3}
73FC3-6A	-	-
72FC10-6B	9.3×10^{-3}	5.5×10^{-3}

* defined as (gross gamma activities in leaching solution)/(gross gamma activities in coated particles).

Table 5 Crushing load for the coated fuel particles irradiated by 73F-12A capsule.

Coated particles	Number of particles	Mean crushing load (Kg)	SD (Kg)	Mean particle diam. (μm)	Mean deflection (μm)
Unirrad. 73FC1	22	2.433	0.40	658.0	28.5
73FC1-2A	28	1.714	0.37	682.9	23.0
73FC1-4A	30	1.674	0.80	681.6	22.4
73FC1-5A	30	1.745	0.42	673.2	21.2
Unirrad. 73FC3	20	3.219	0.94	660.4	31.5
73FC3-6A	29	2.338	0.76	660.0	25.0

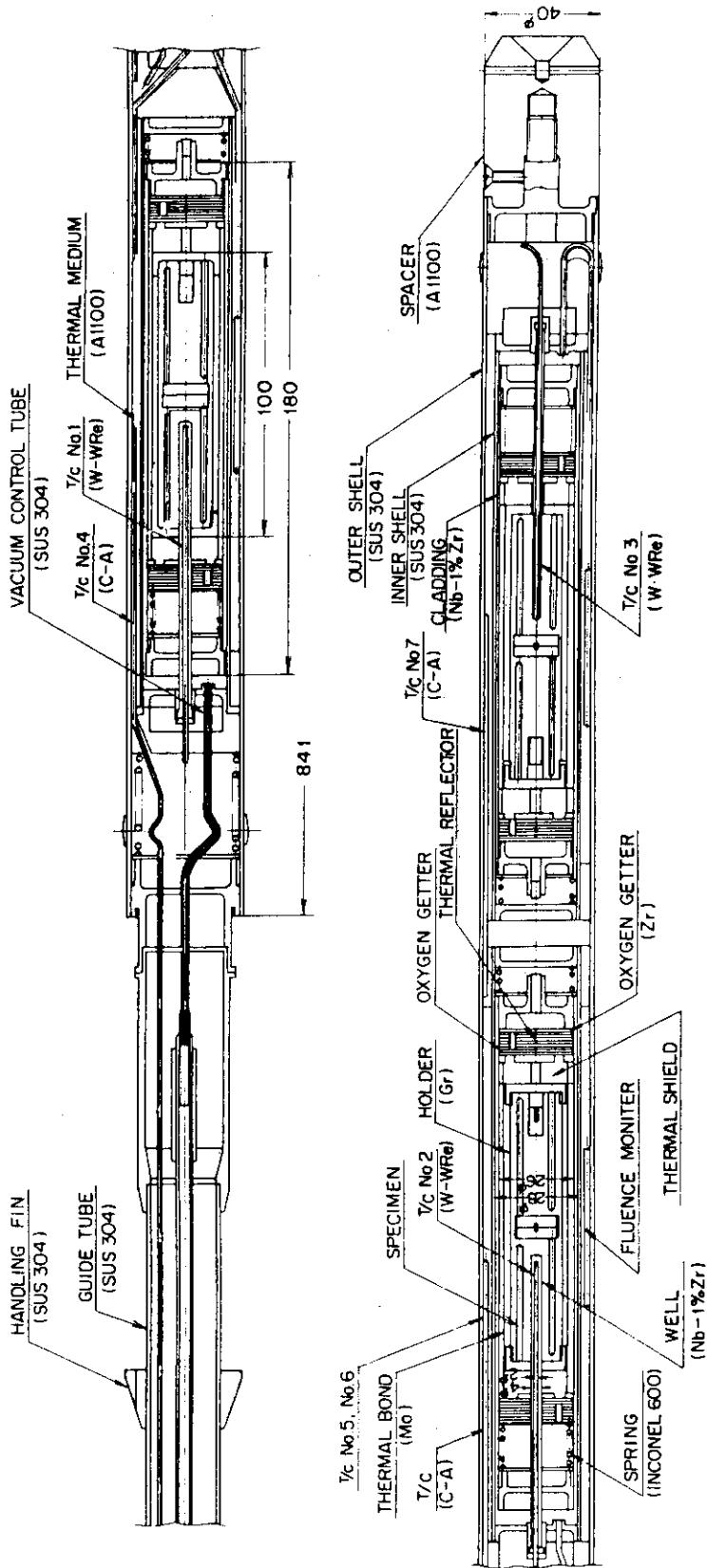


Fig. 1 Structure of 73F-12A capsule.

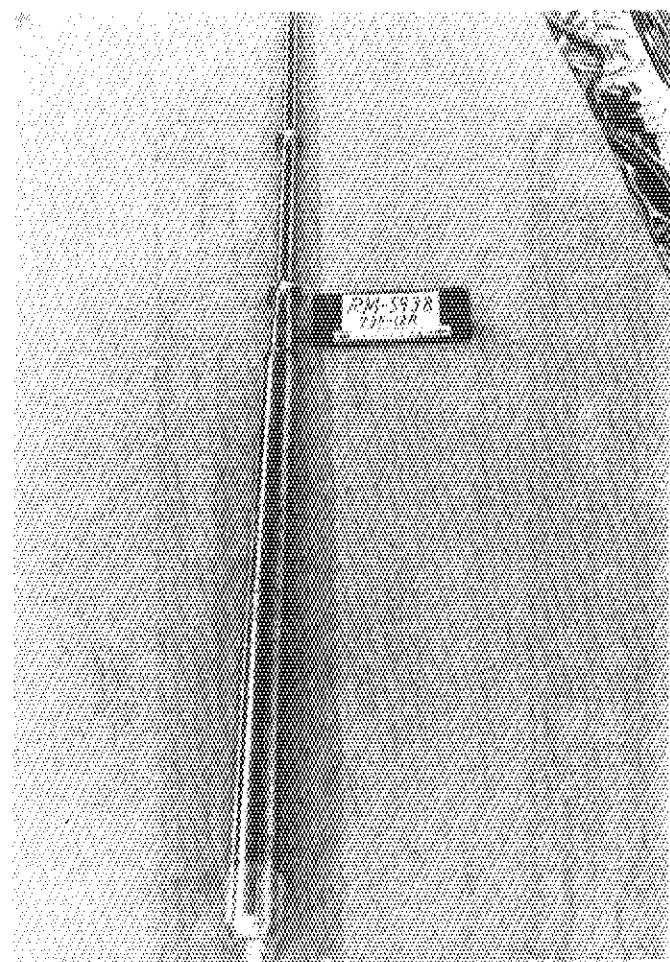


FIG. 2-1 ASSEMBLY OF 73F-12A CAPSULE.

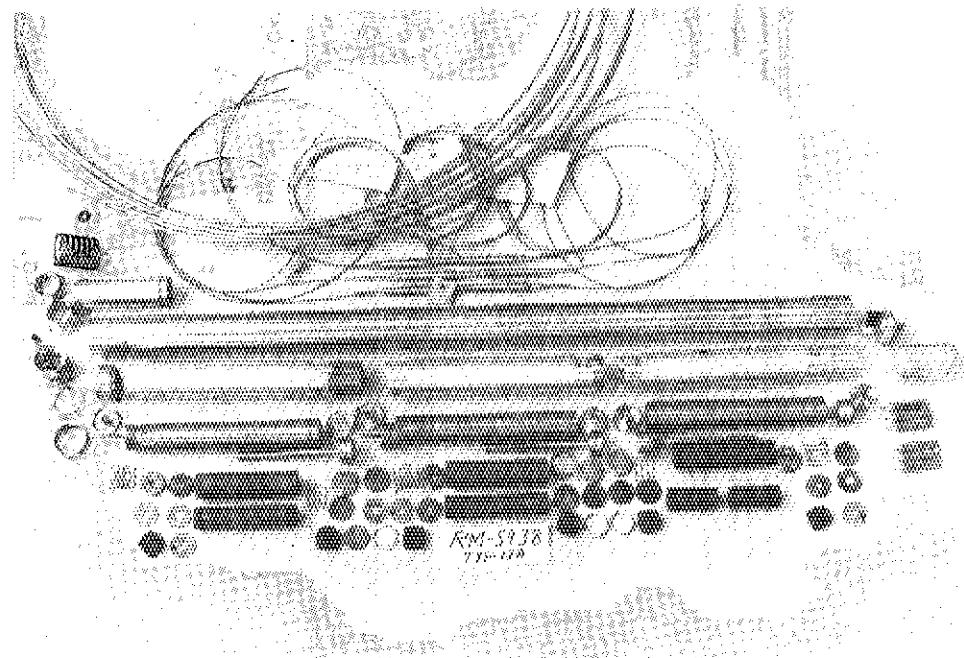


FIG. 2-2 PARTS OF 73F-12A CAPSULE.

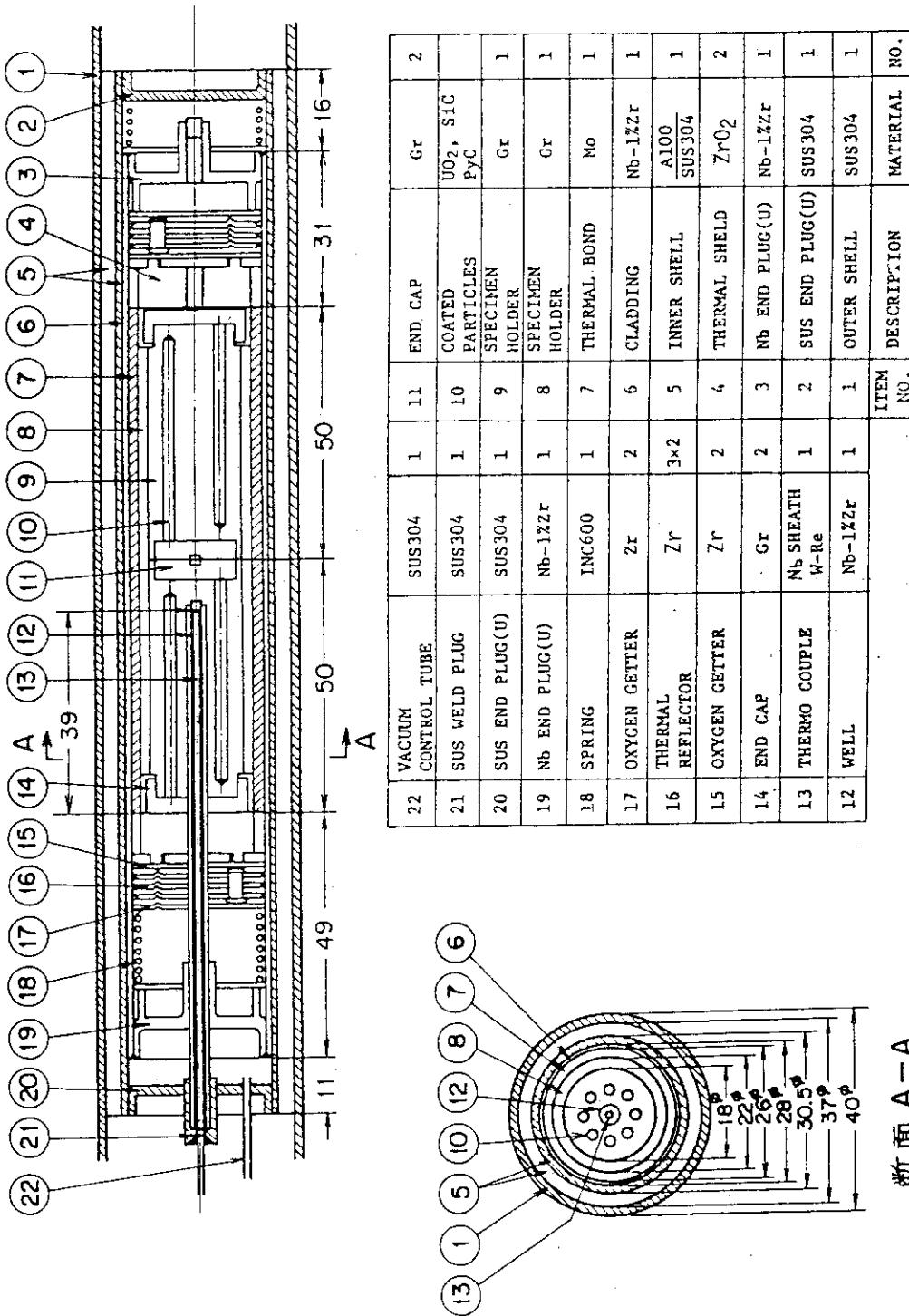


Fig. 3 Inner capsule of 73F-12A capsule.

Fig. 4-1 JMTR 第34サイクル原子炉運転実績表(1)

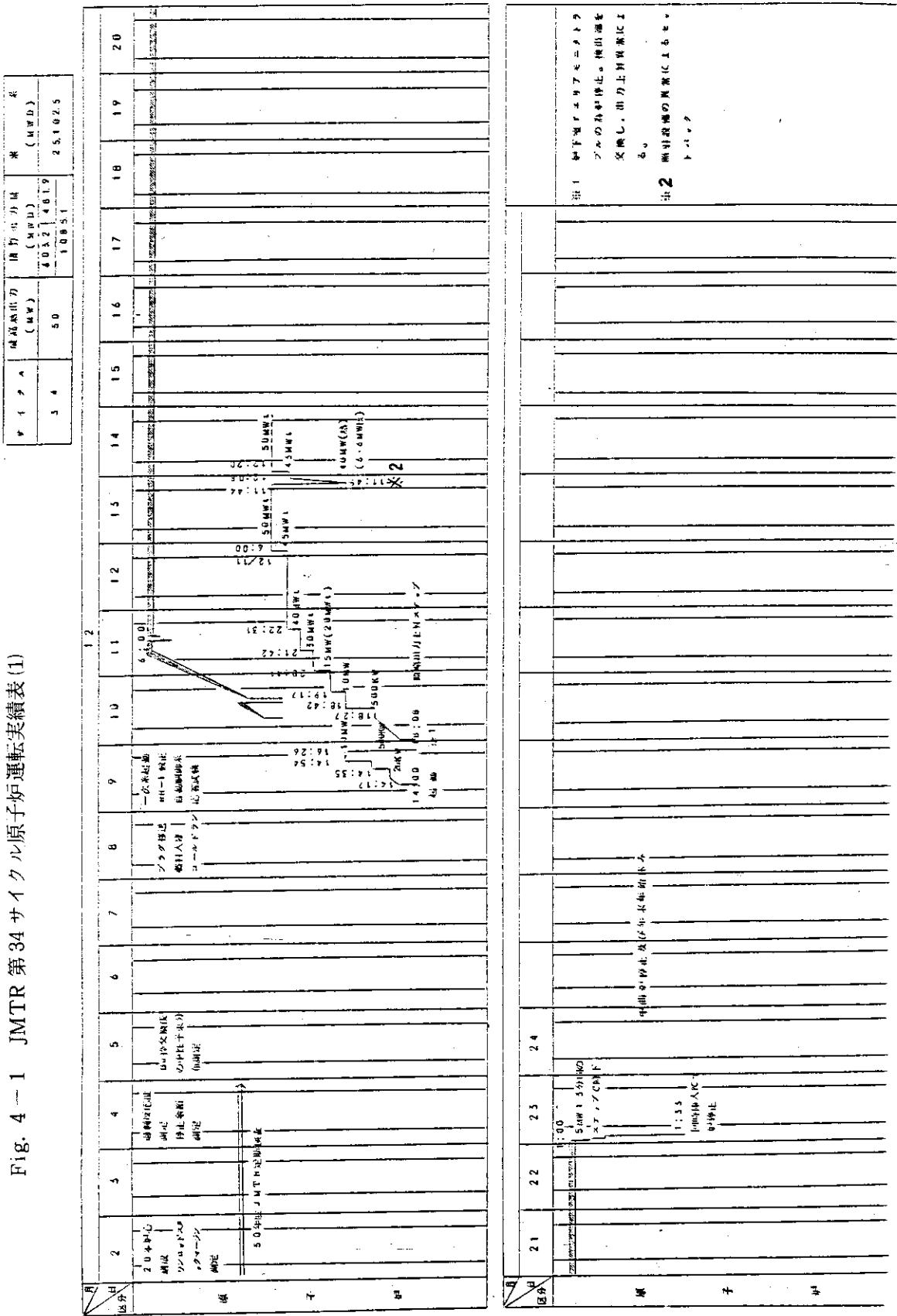


Fig. 4-2 JMTR 第34サイクル原子炉運転実績表(2)

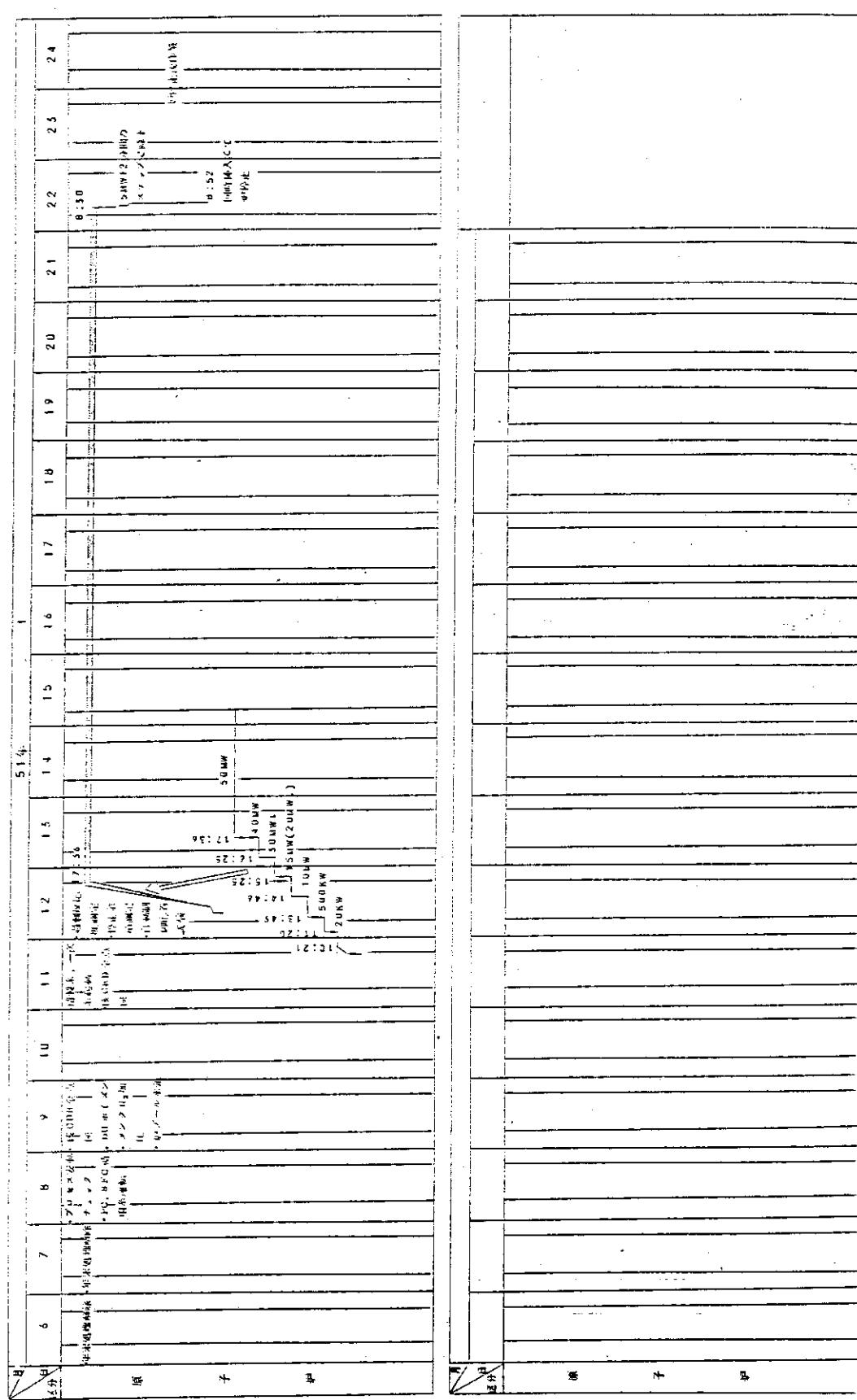


Fig. 5 JMTR 第35サイクル原子炉運転実績表

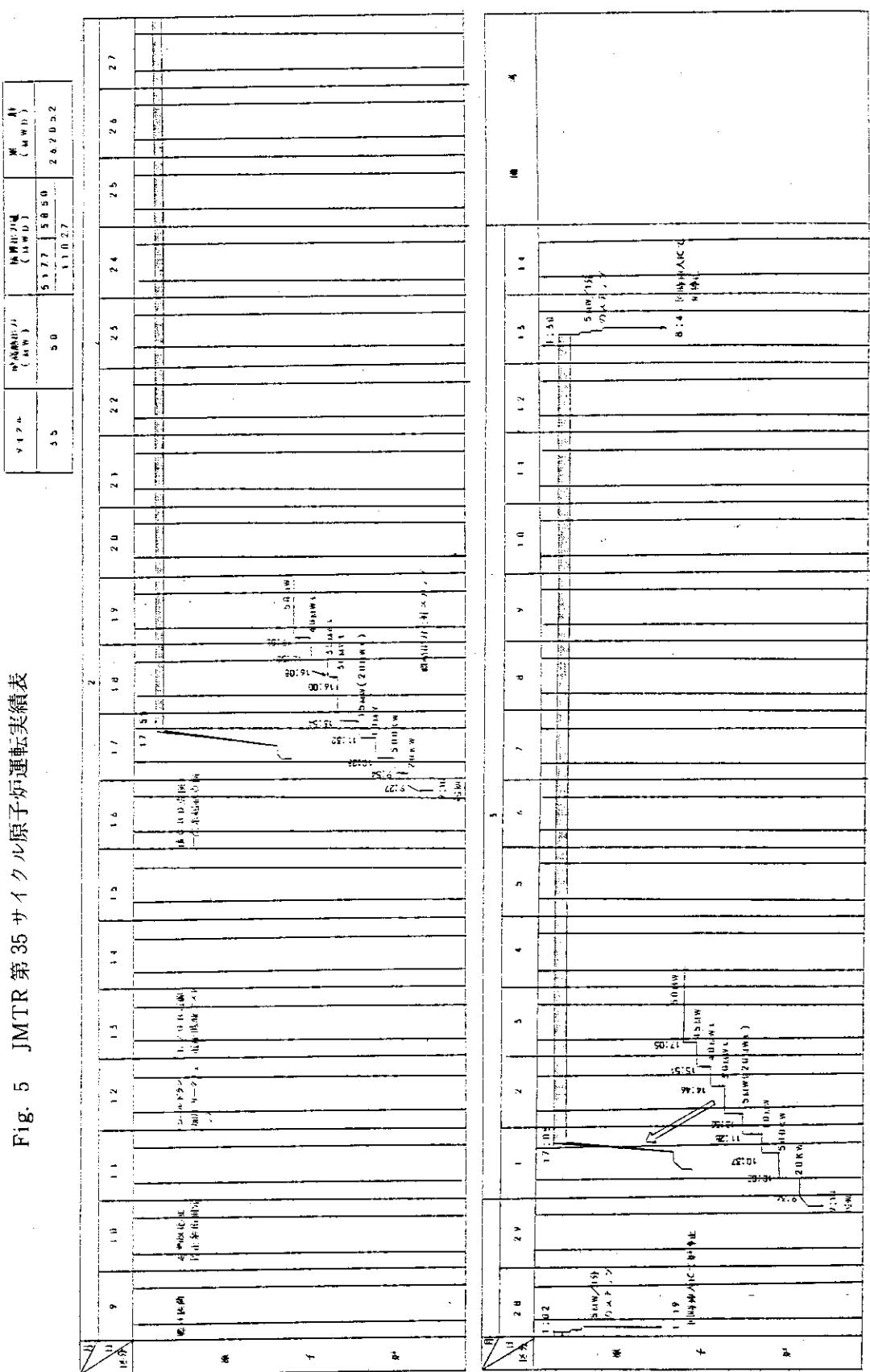
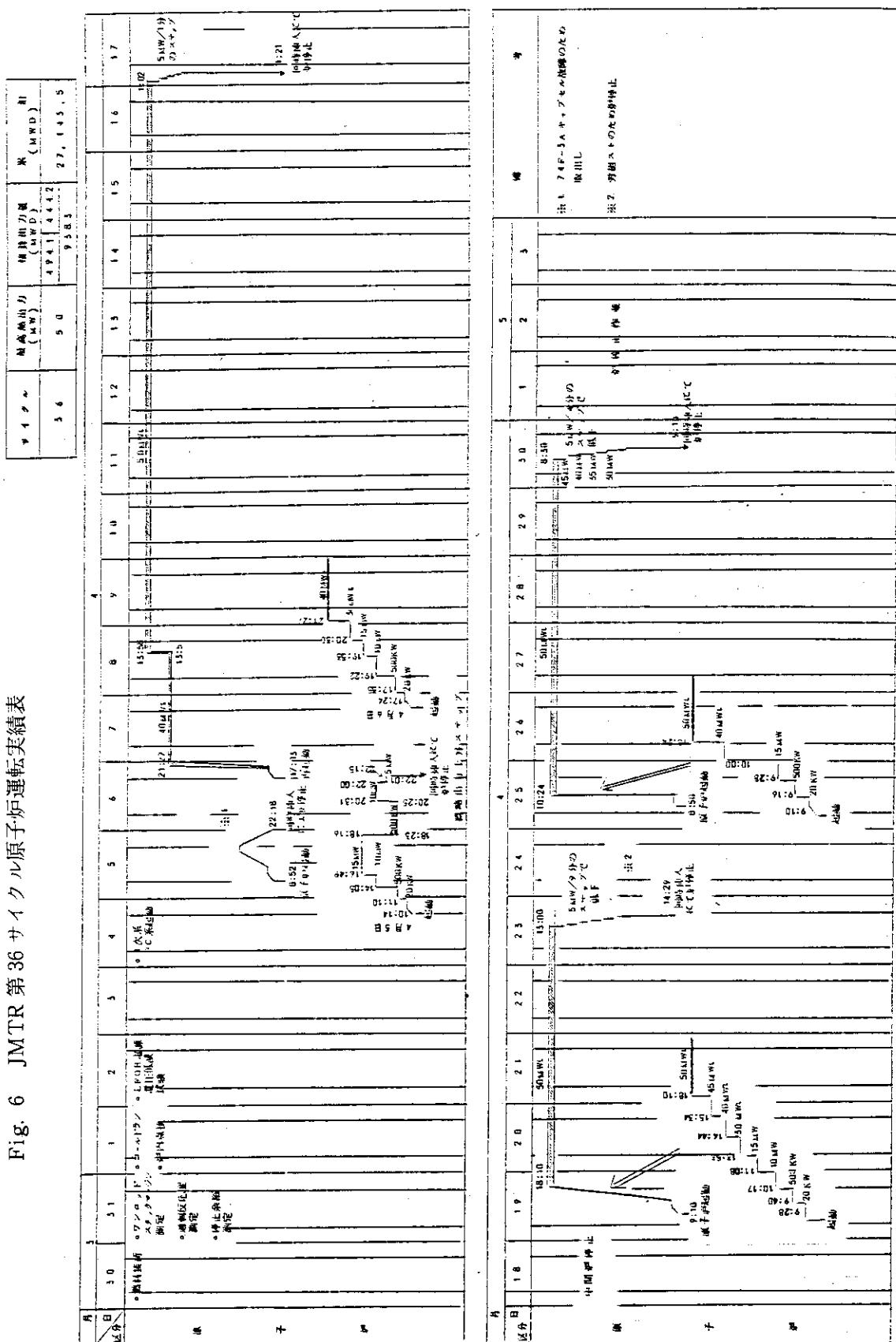


Fig. 6 JMTR 第36サイクル原子炉運転実績表



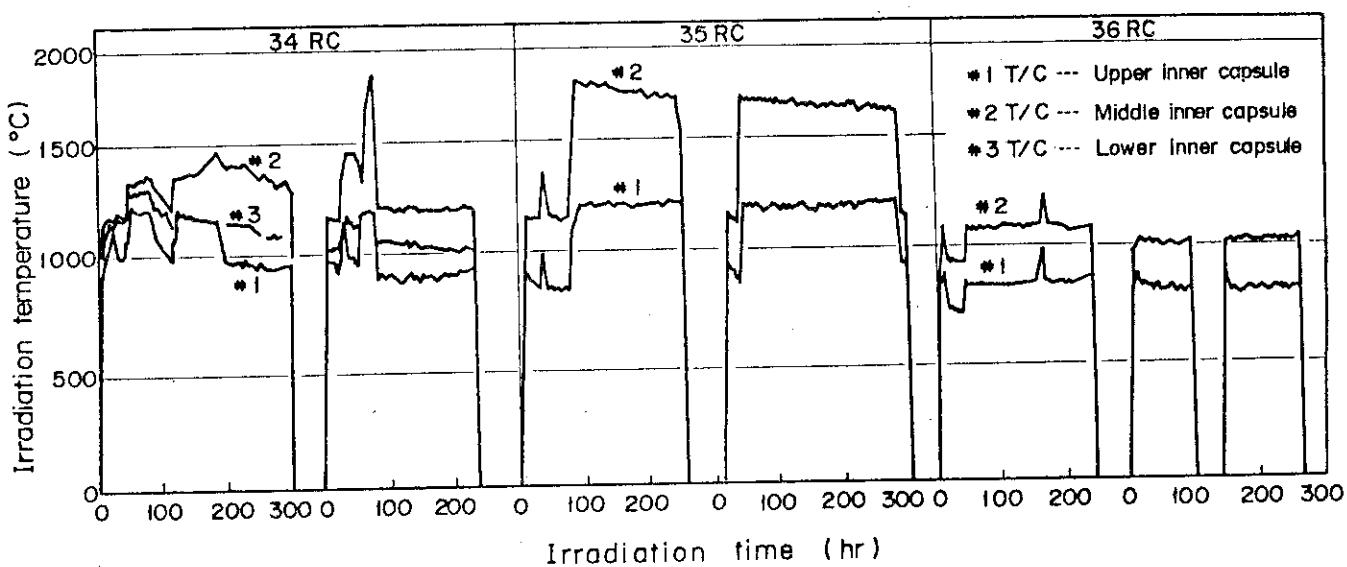


Fig. 7 Variation of fuel temperature with irradiation time.

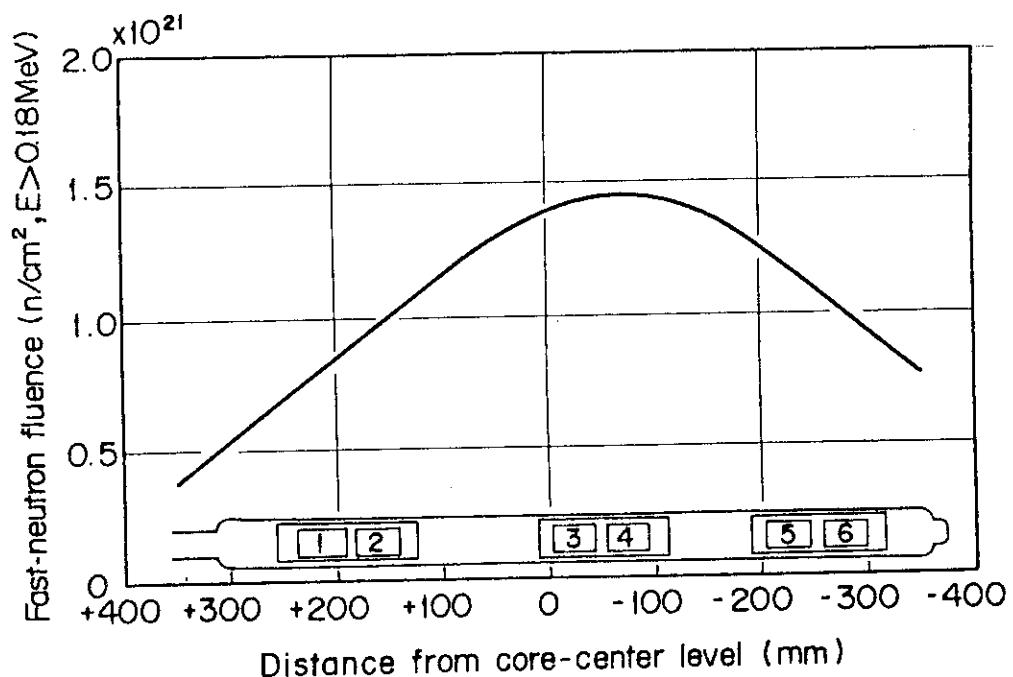


Fig. 8 Distribution of fast neutron fluence through 73F-12A capsule.
It was computed using THERMOS-JMTR code.

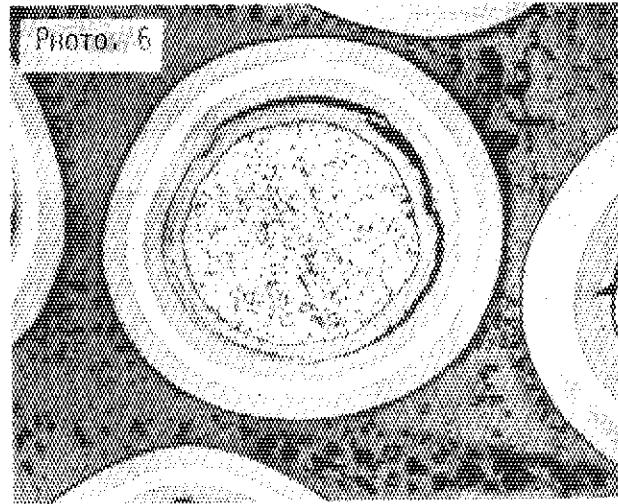
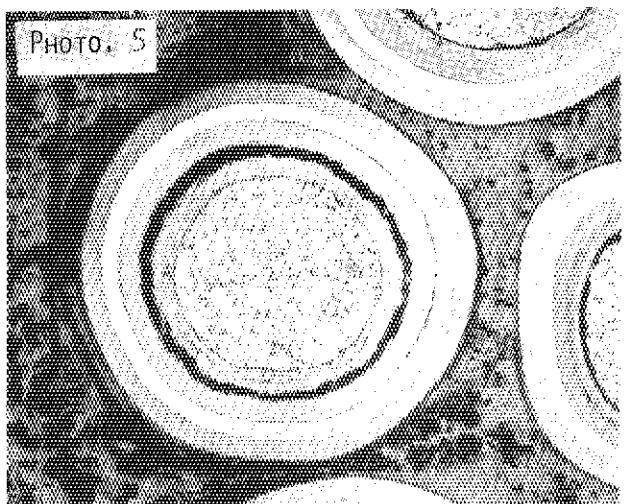
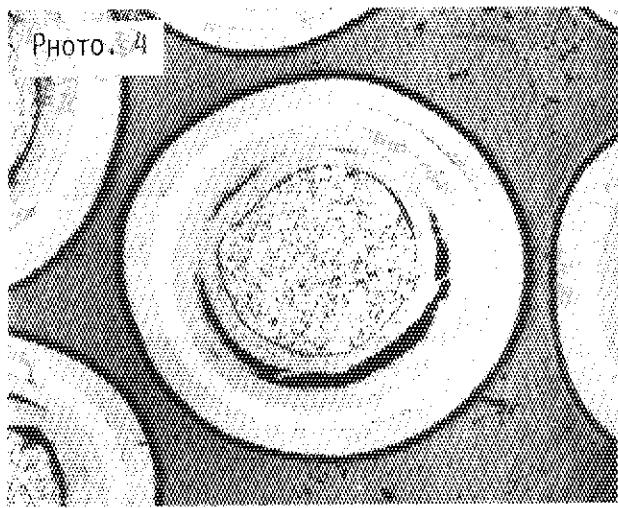
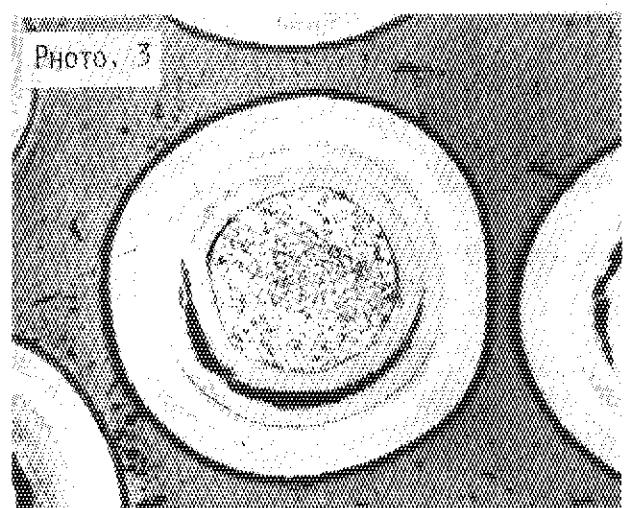
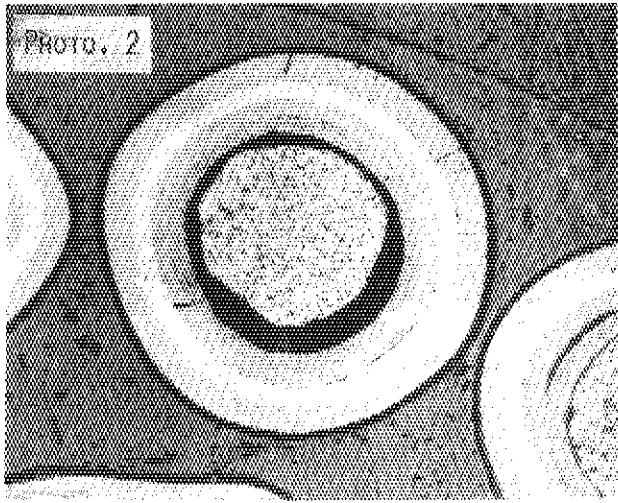
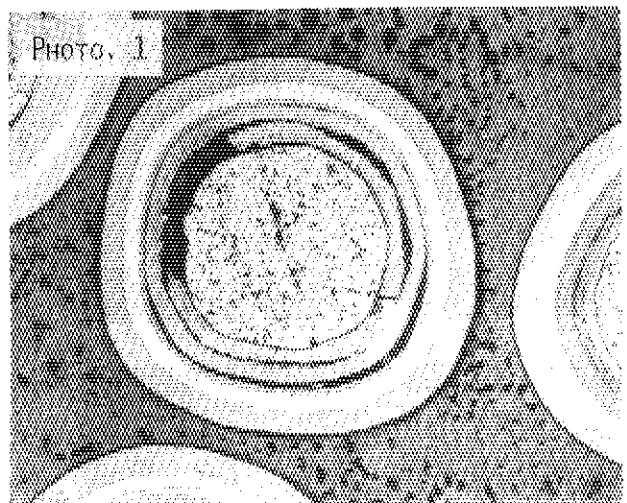


FIG. 9(A) CROSS SECTION OF 73FC3-1B,

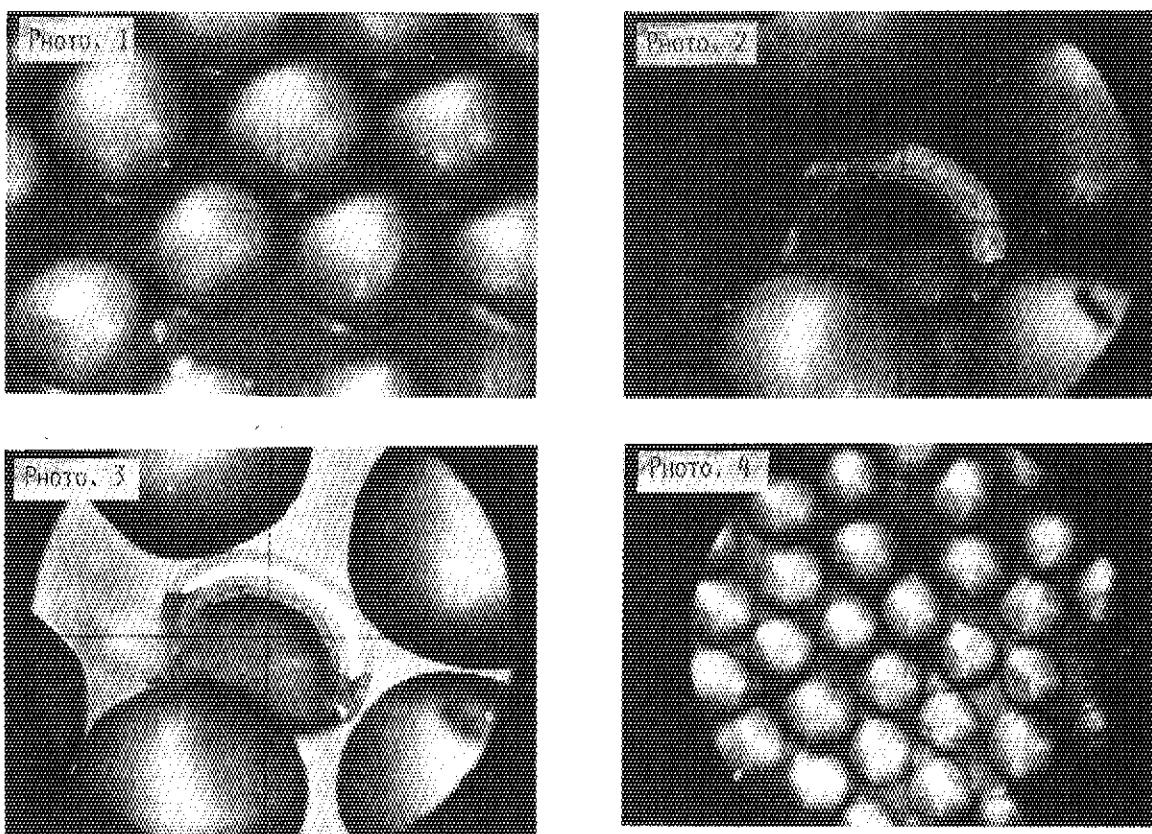


FIG. 9(B) SURFACE APPEARANCE OF 73FC3-1B.

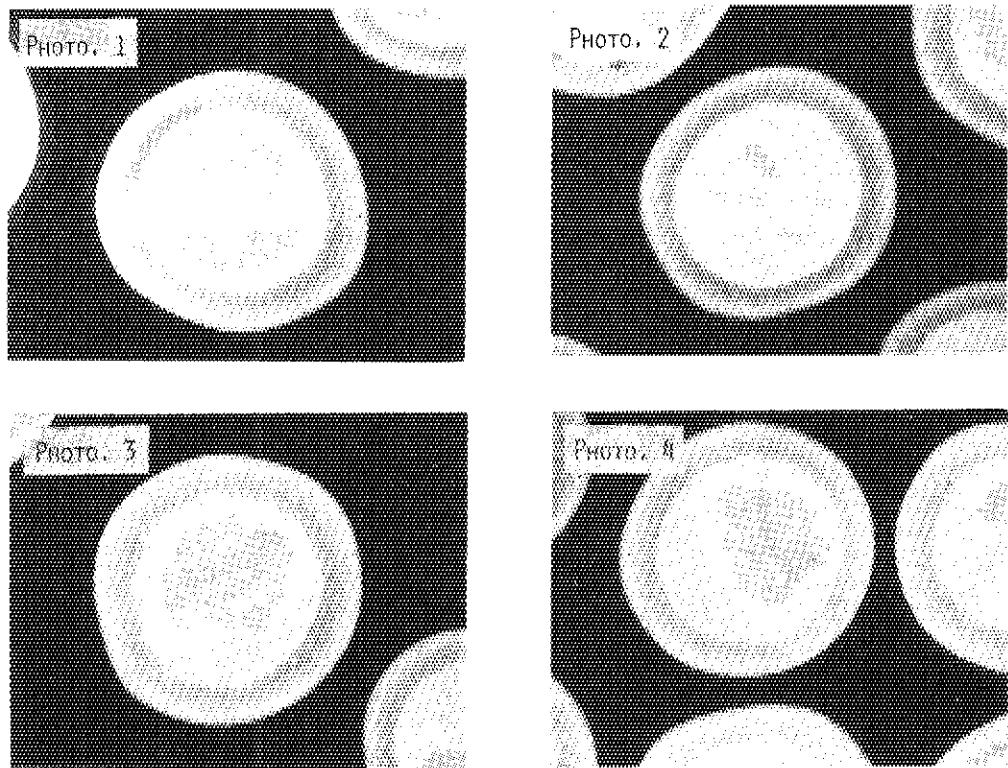


FIG. 9(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 73FC3-1B.

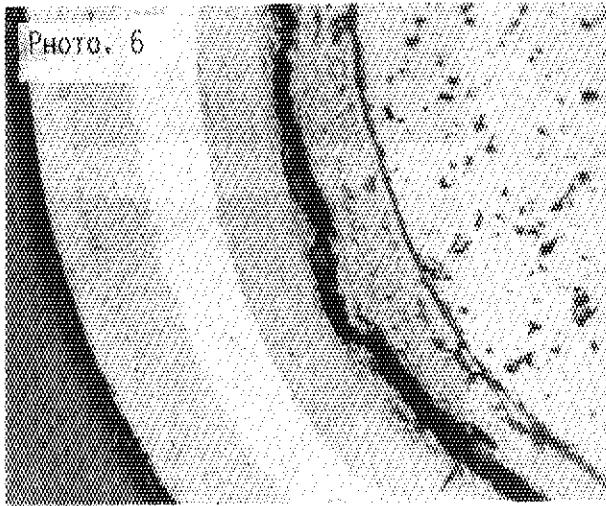
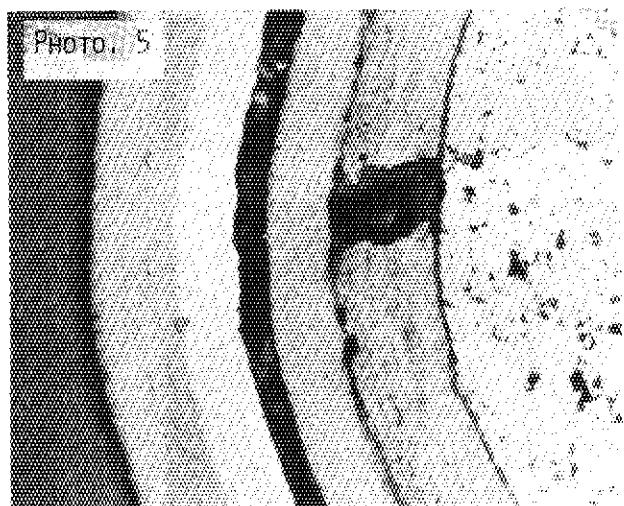
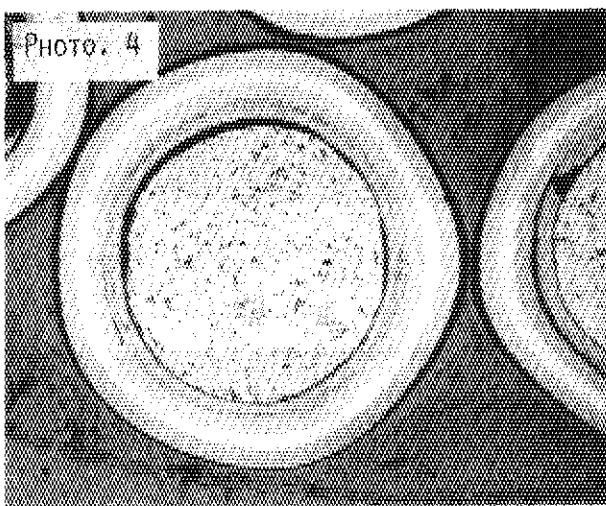
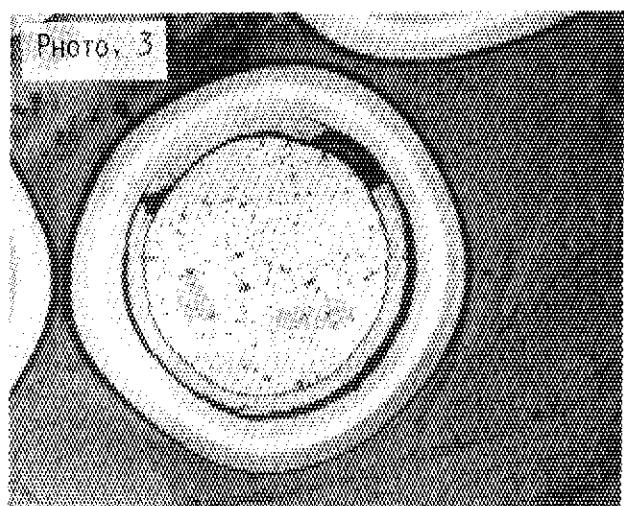
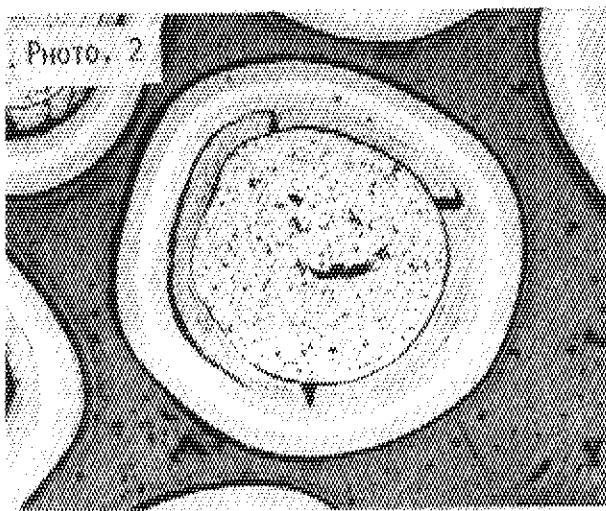
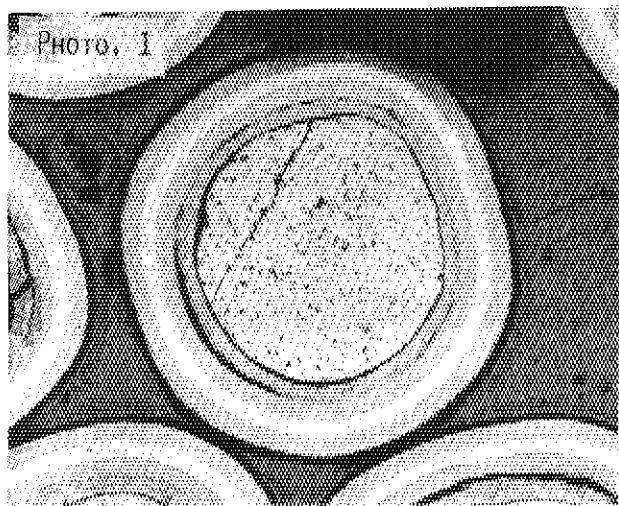


FIG. 10(A) CROSS SECTION OF 73FC1-2A,

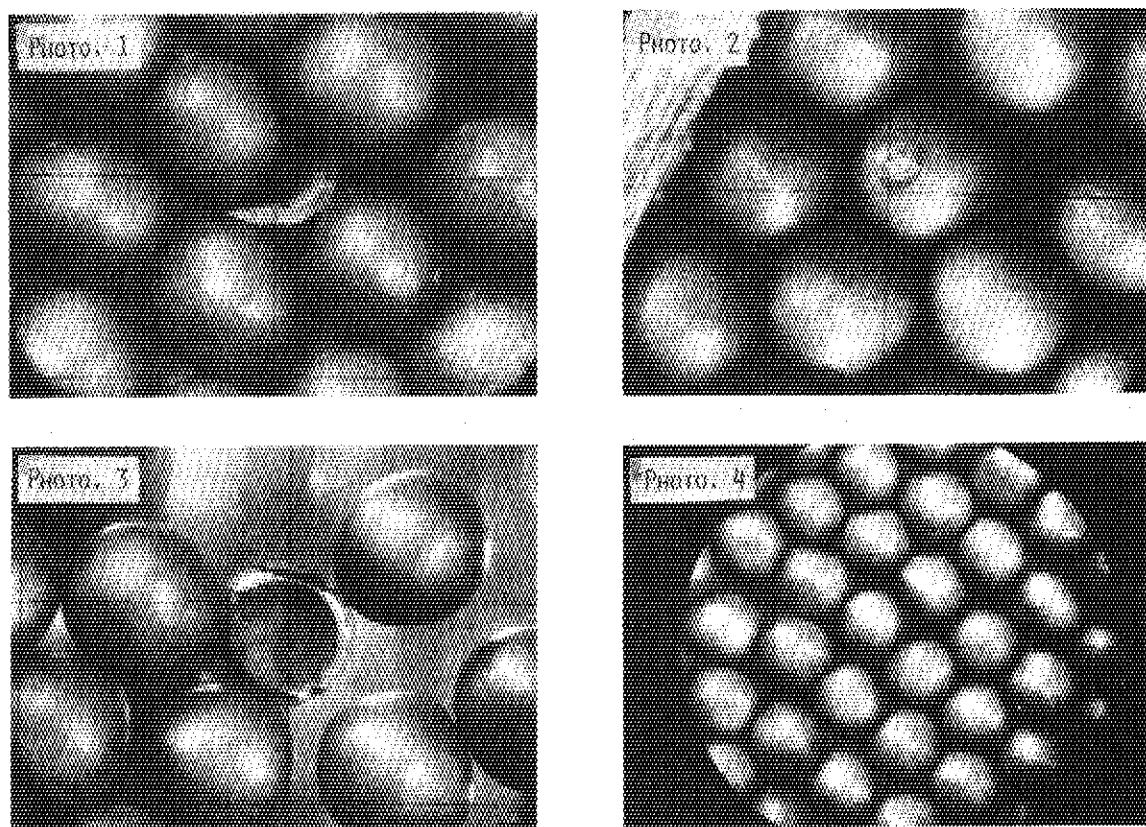


FIG. 10(B) SURFACE APPEARANCE OF 73FC1-2A.

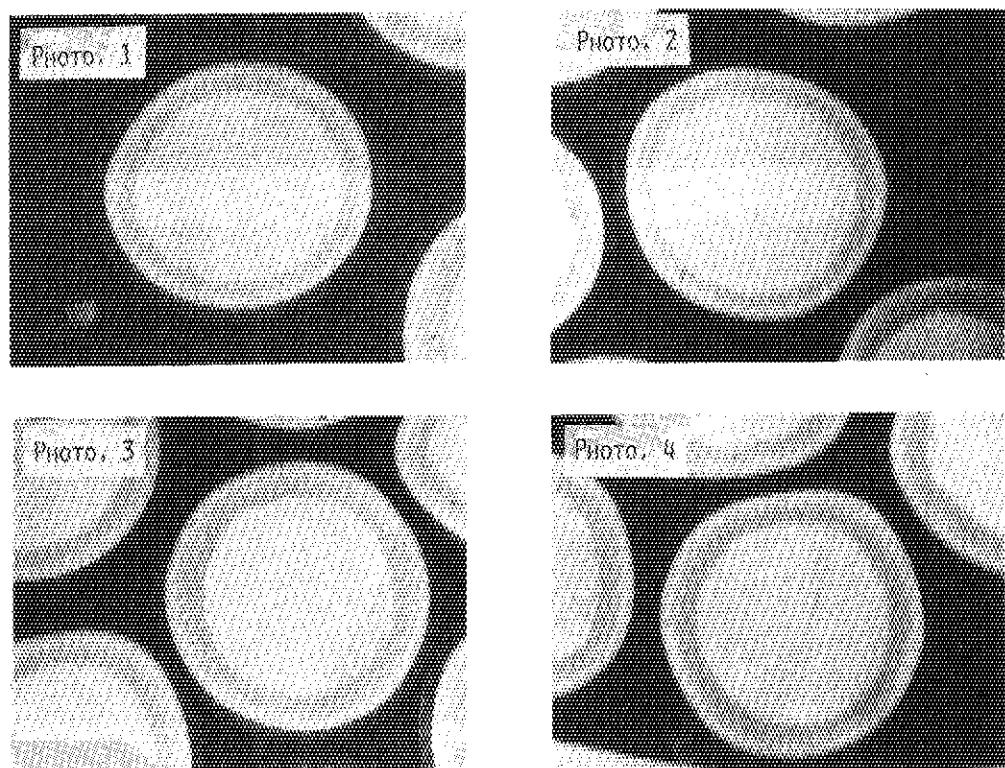


FIG. 10(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 73FC1-2A.

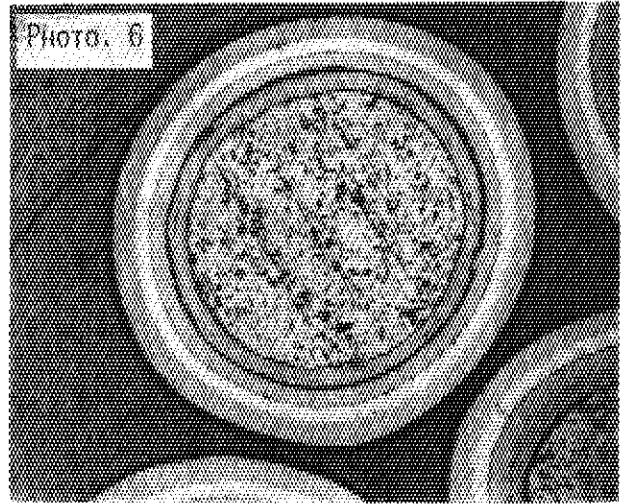
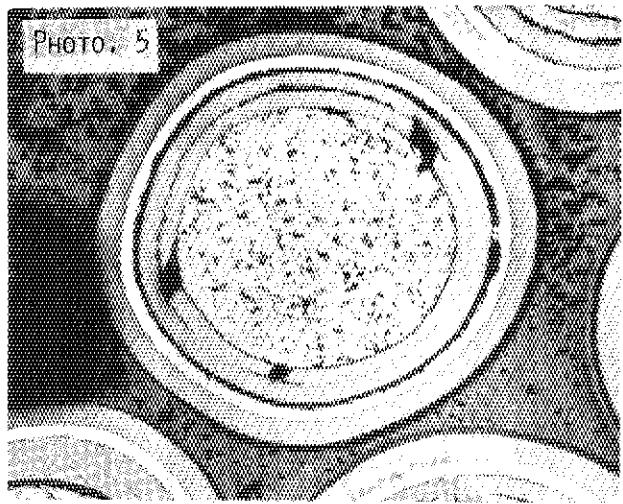
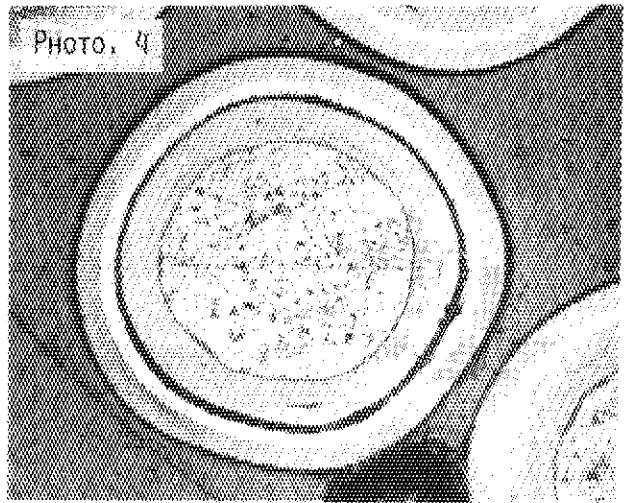
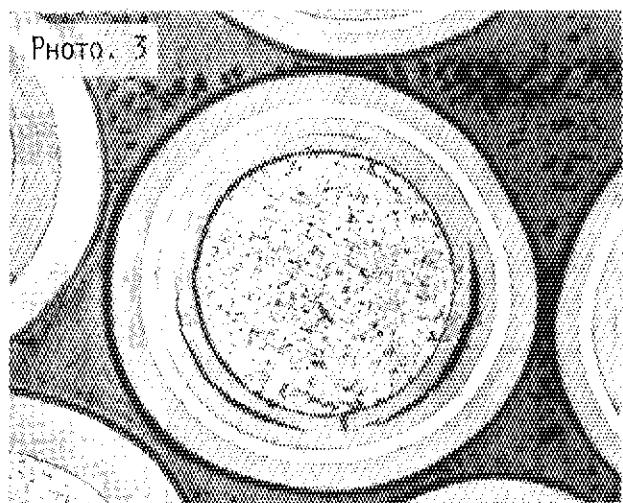
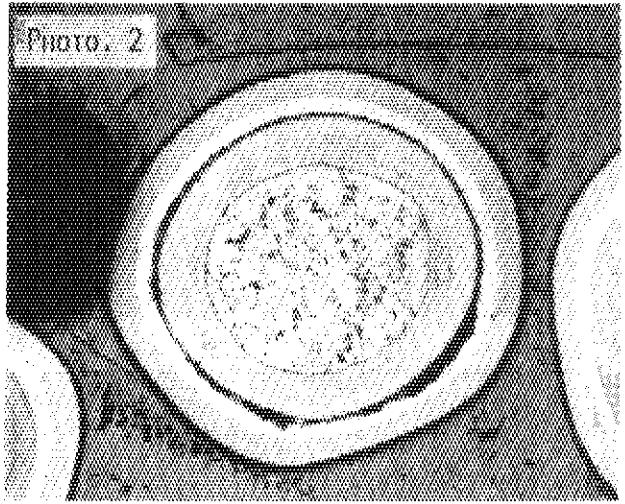
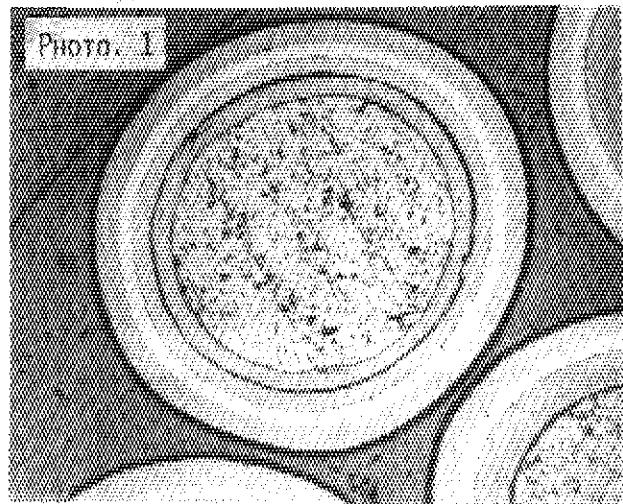


FIG. 11(A) CROSS SECTION OF 74FC1-2B.

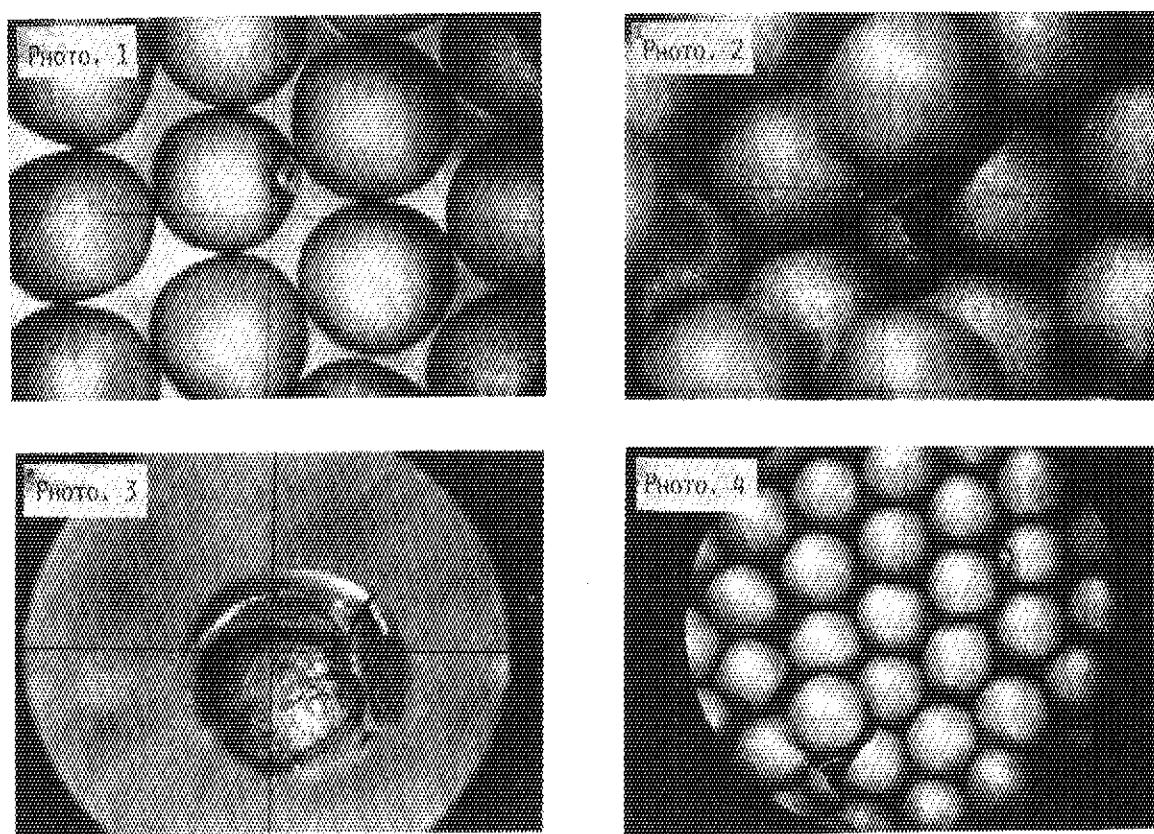


FIG. 11(B) SURFACE APPEARANCE OF 74FC1-2B .

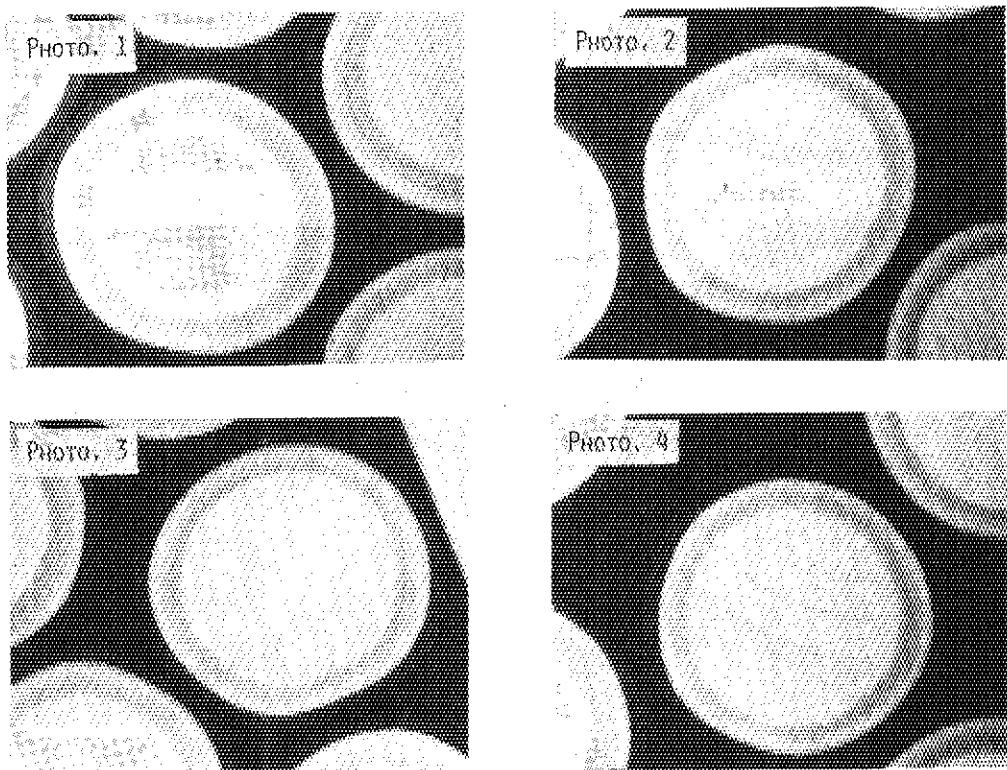


FIG. 11(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 74FC1-2B .

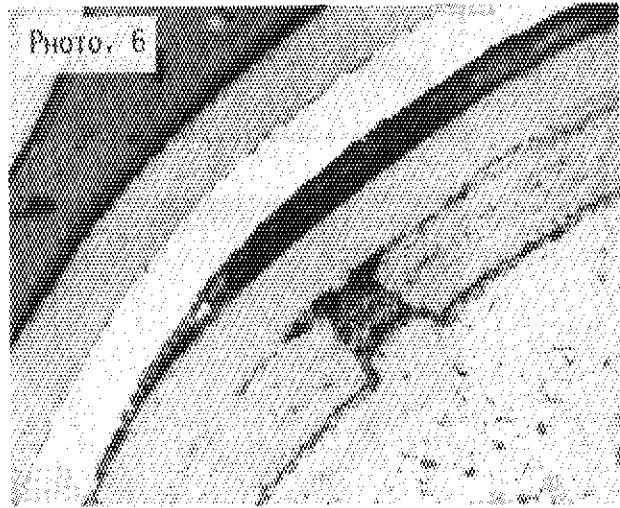
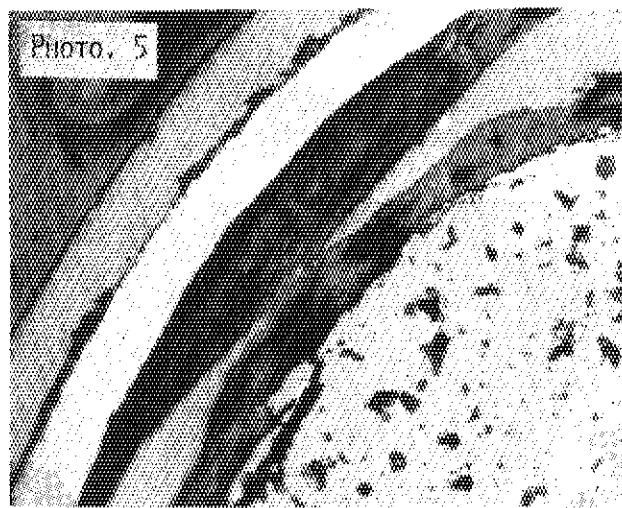
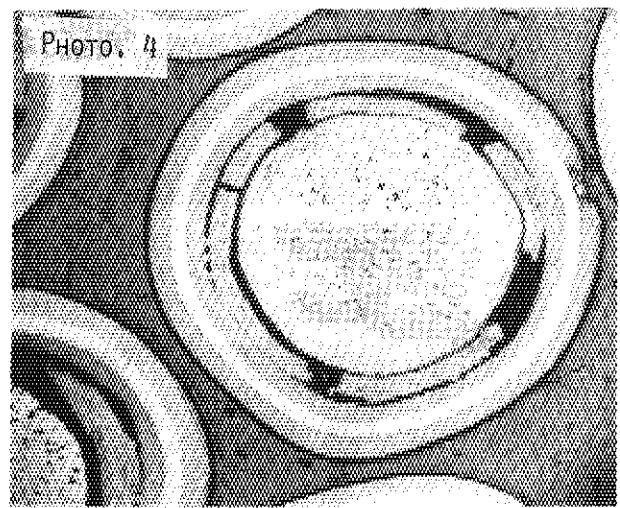
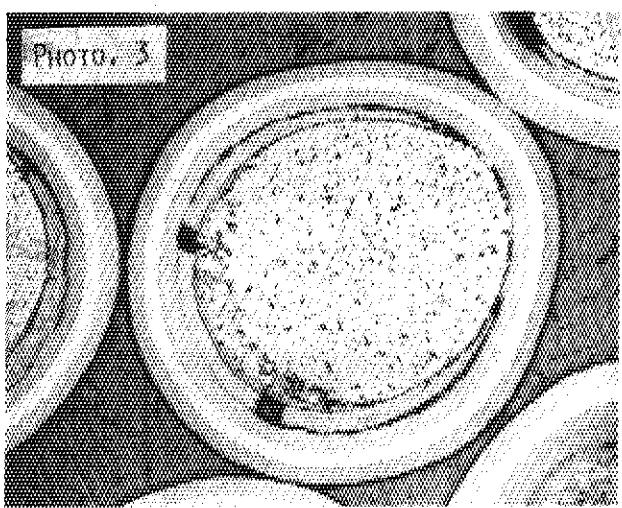
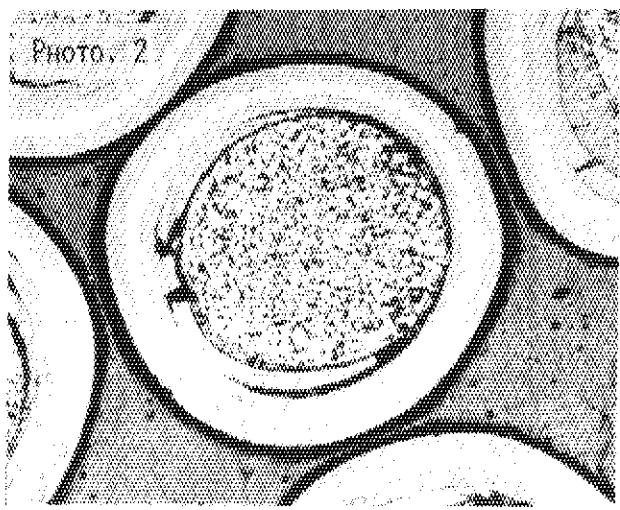
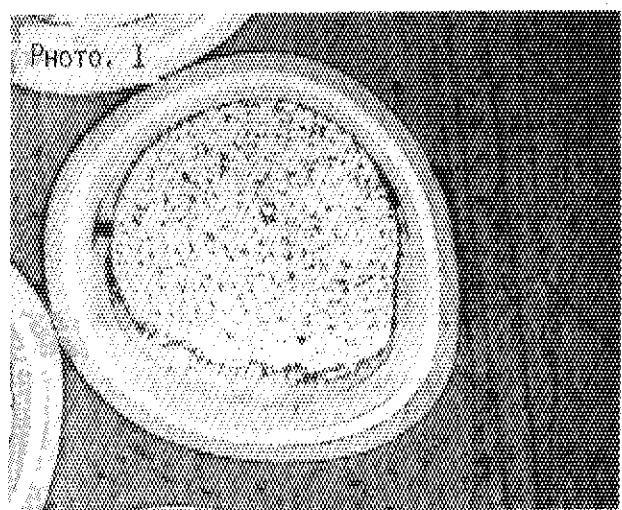


FIG. 12(A) CROSS SECTION OF 73FC1-4A ,

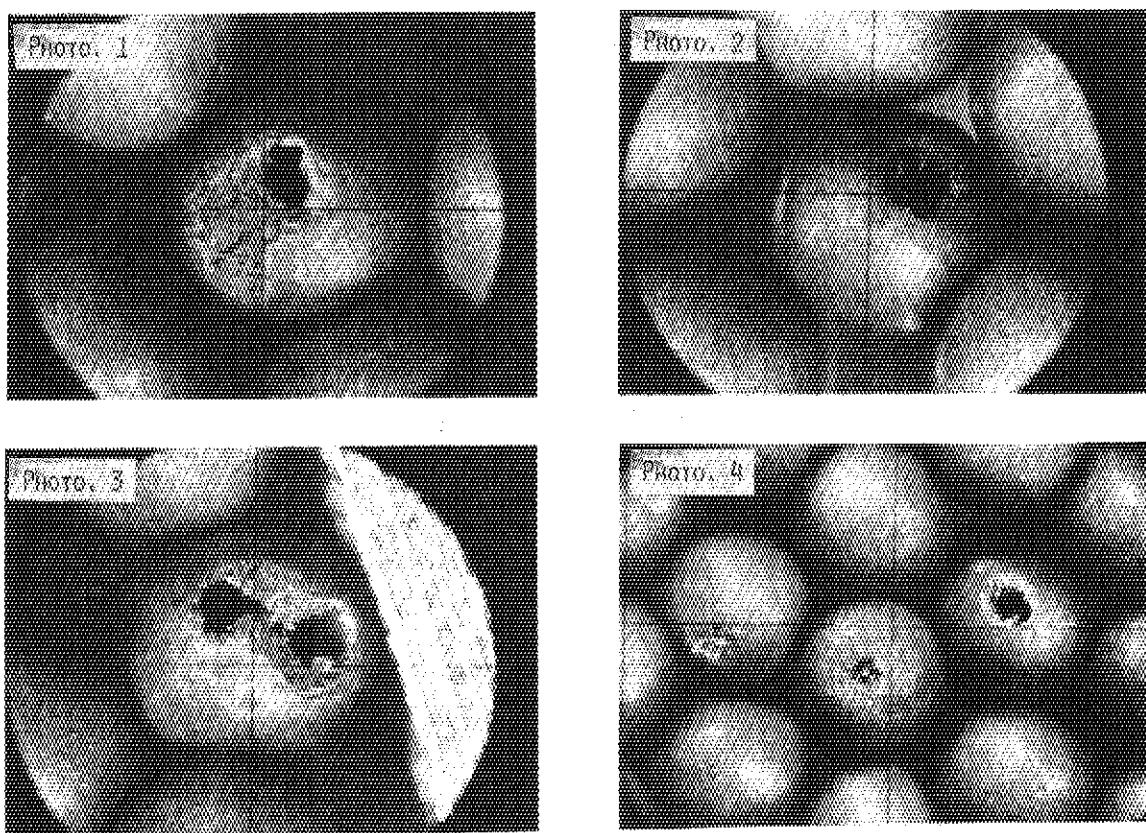


FIG. 12(B) SURFACE APPEARANCE OF 73FC1-4A .

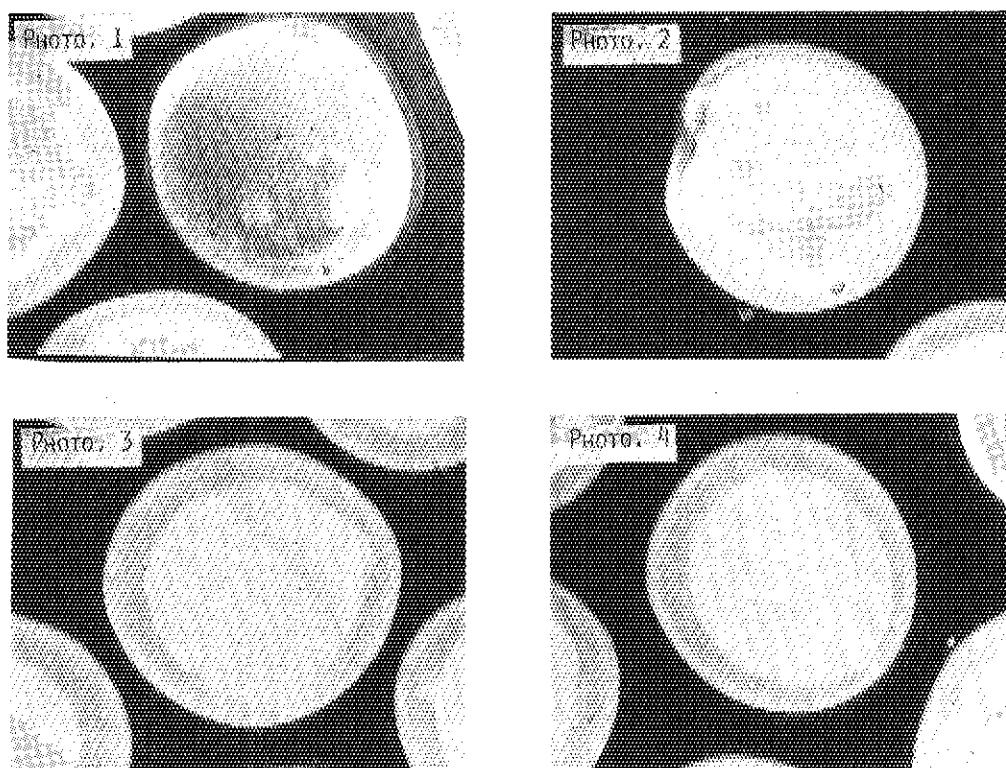


FIG. 12(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 73FC1-4A .

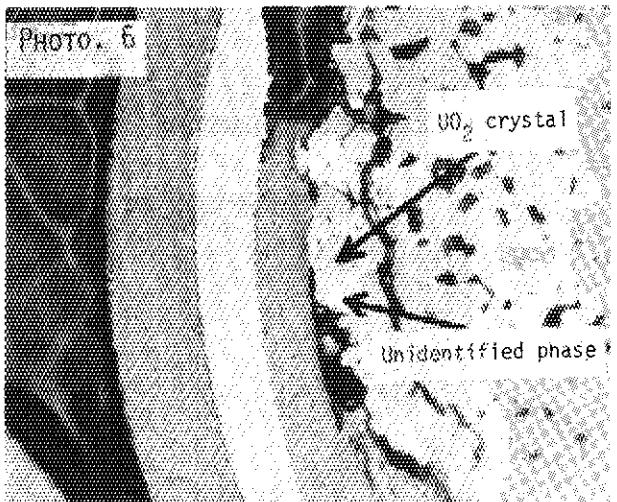
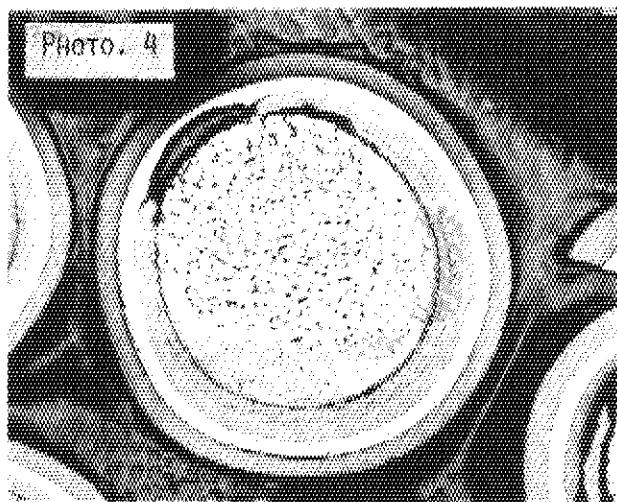
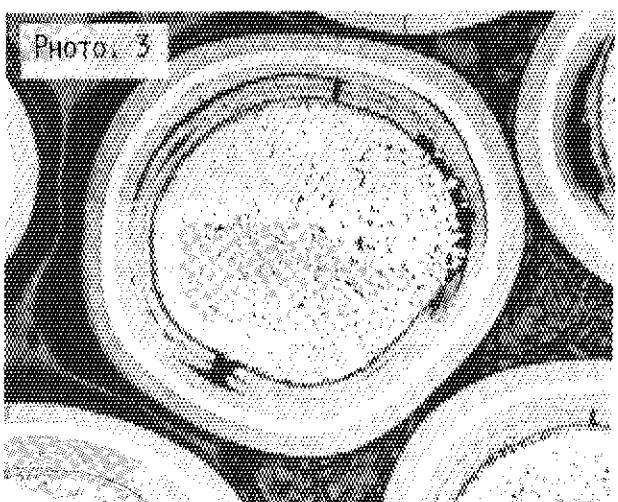
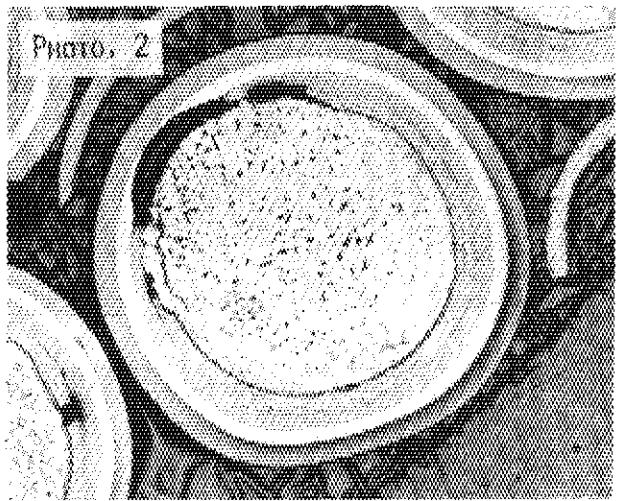
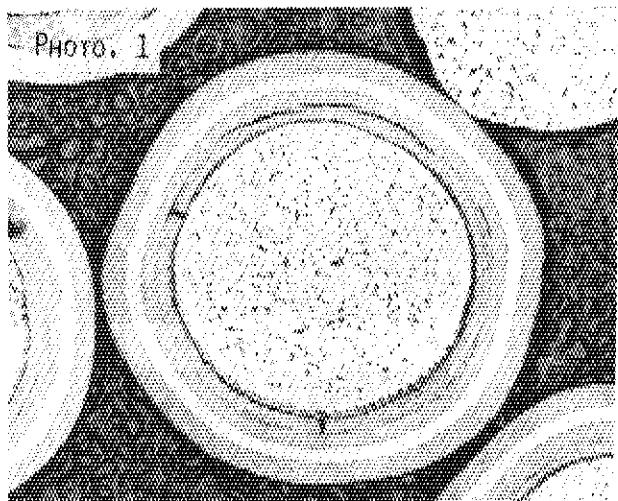


FIG. 13(A) CROSS SECTION OF 74FC1-4B

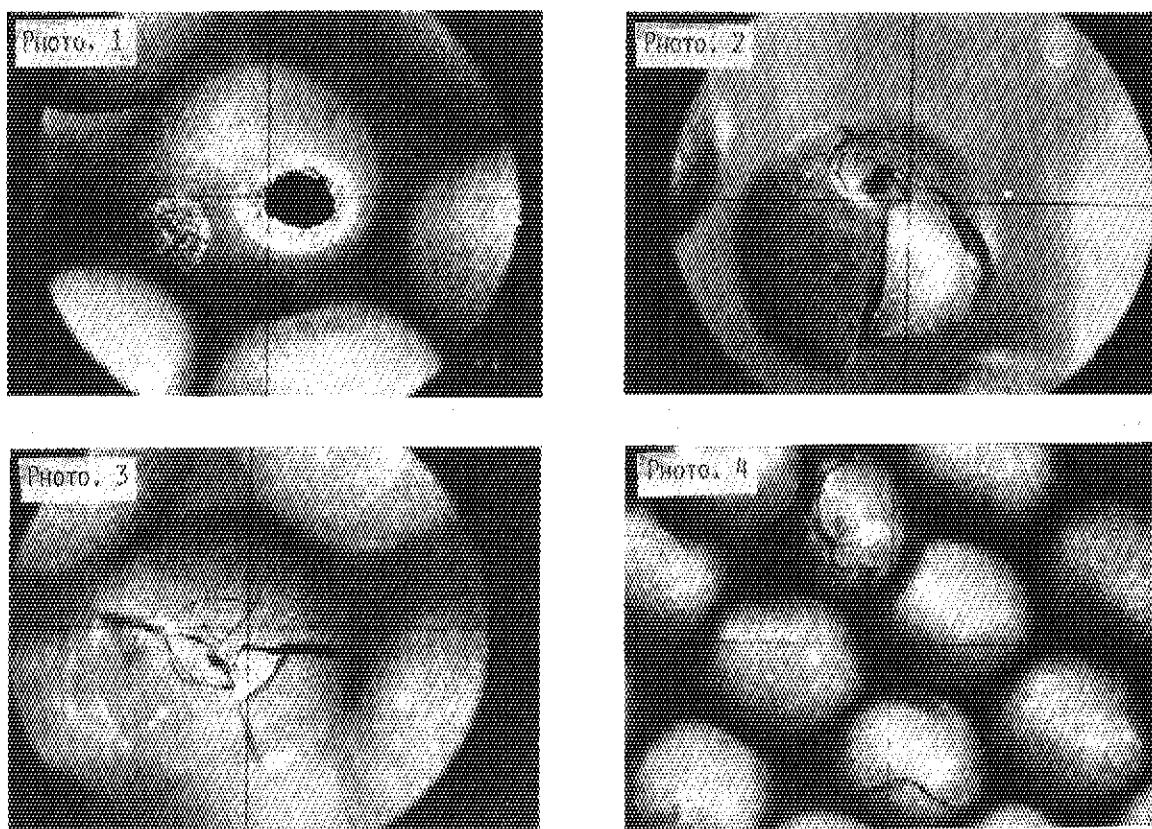


FIG. 13(B) SURFACE APPEARANCE OF 74FC1-4B.

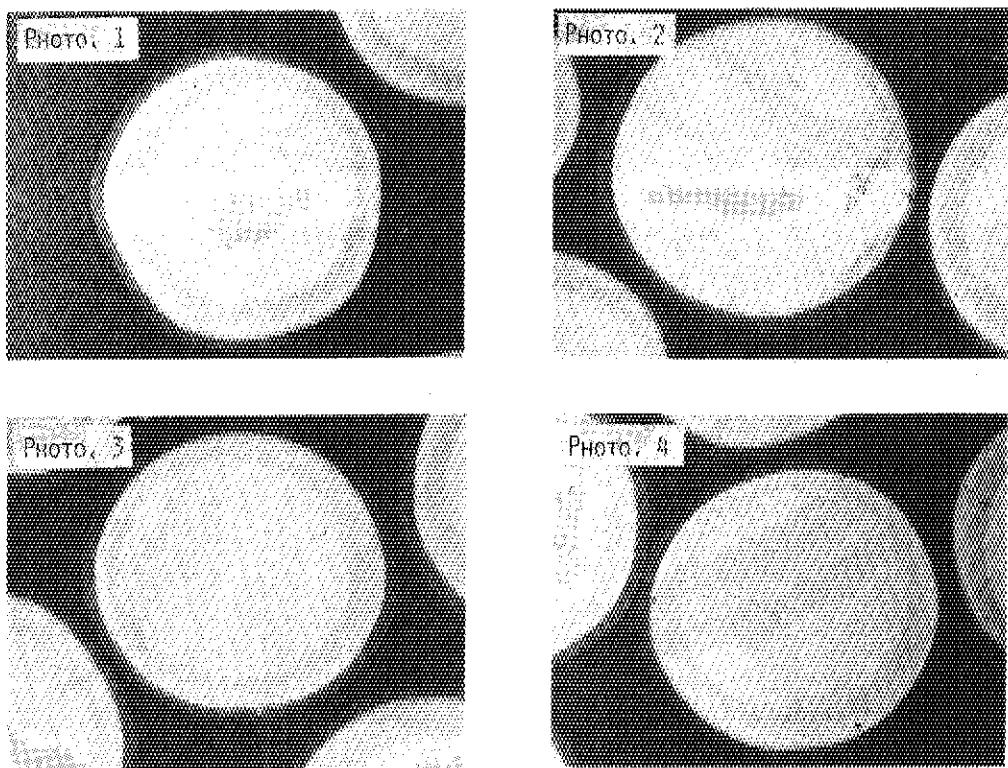


FIG. 13(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 74FC1-4B.

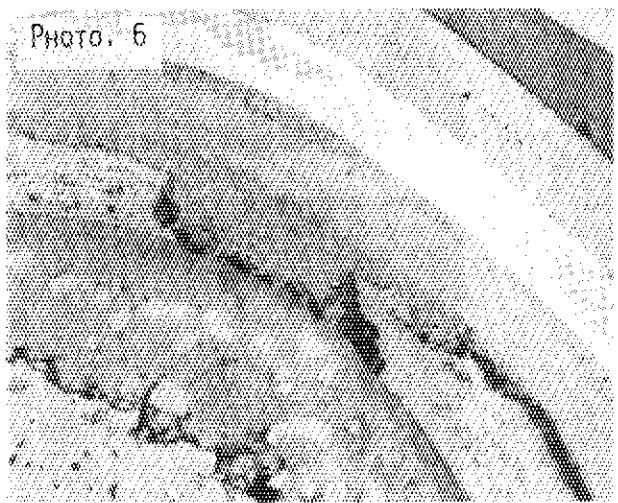
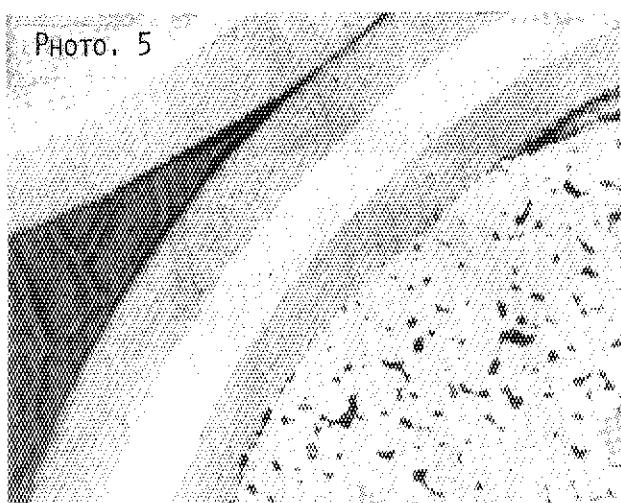
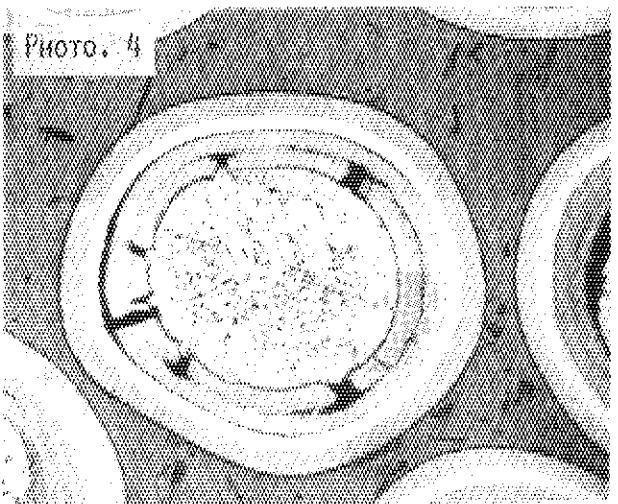
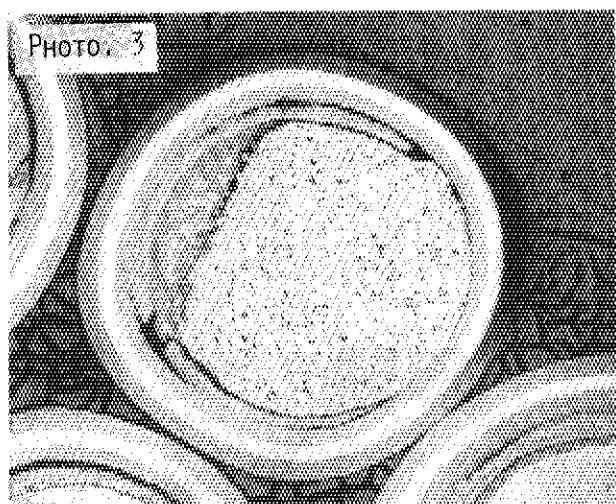
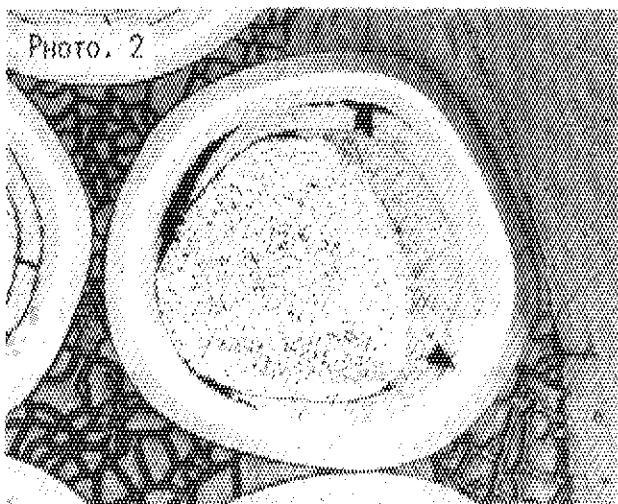
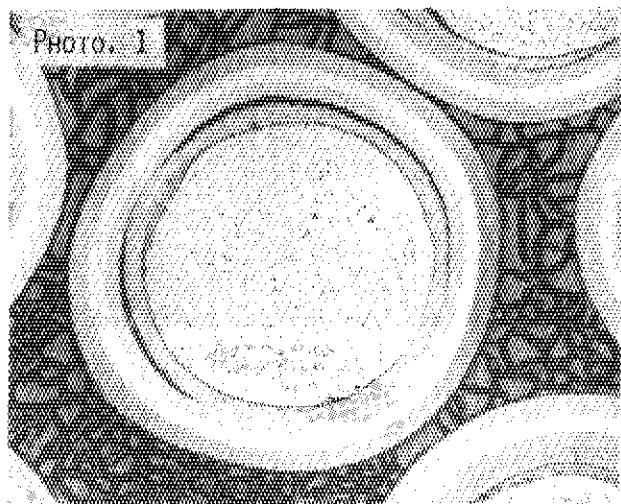


FIG. 14(A) CROSS SECTION OF 73FC1-5A.

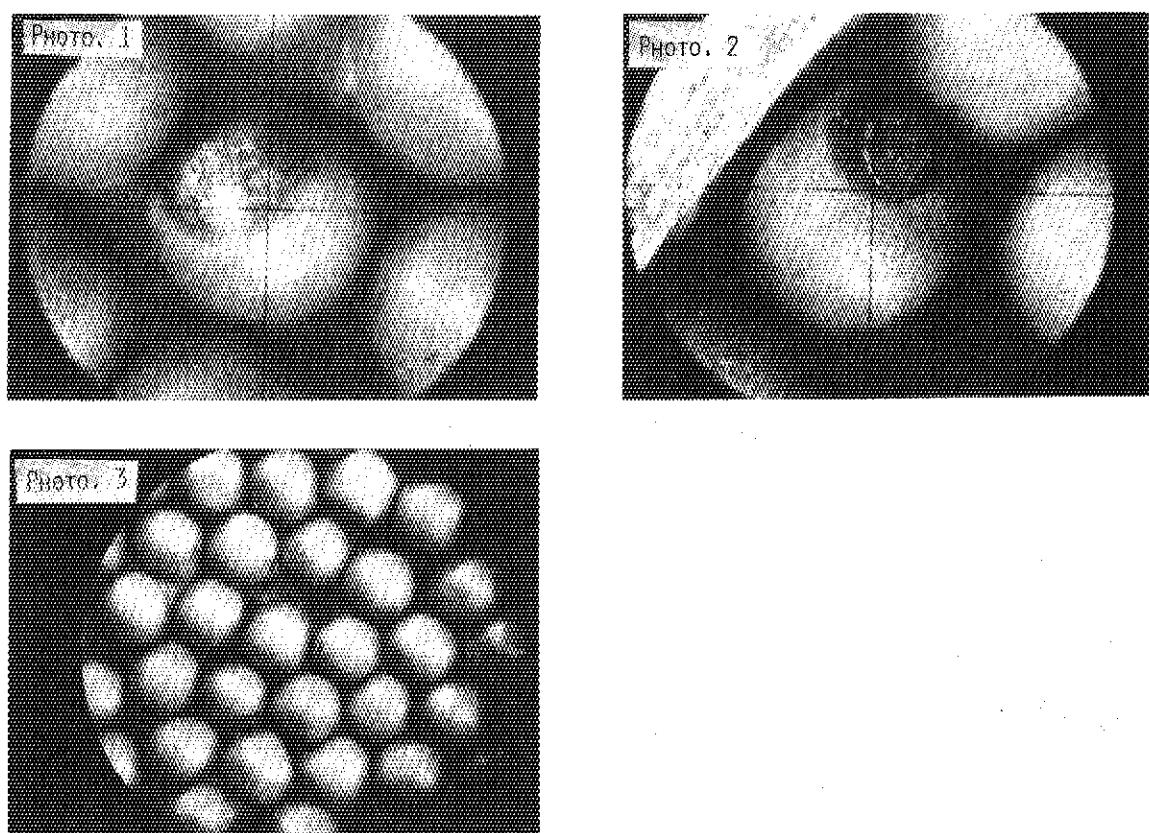


FIG. 14(B) SURFACE APPEARANCE OF 73FC1-5A.

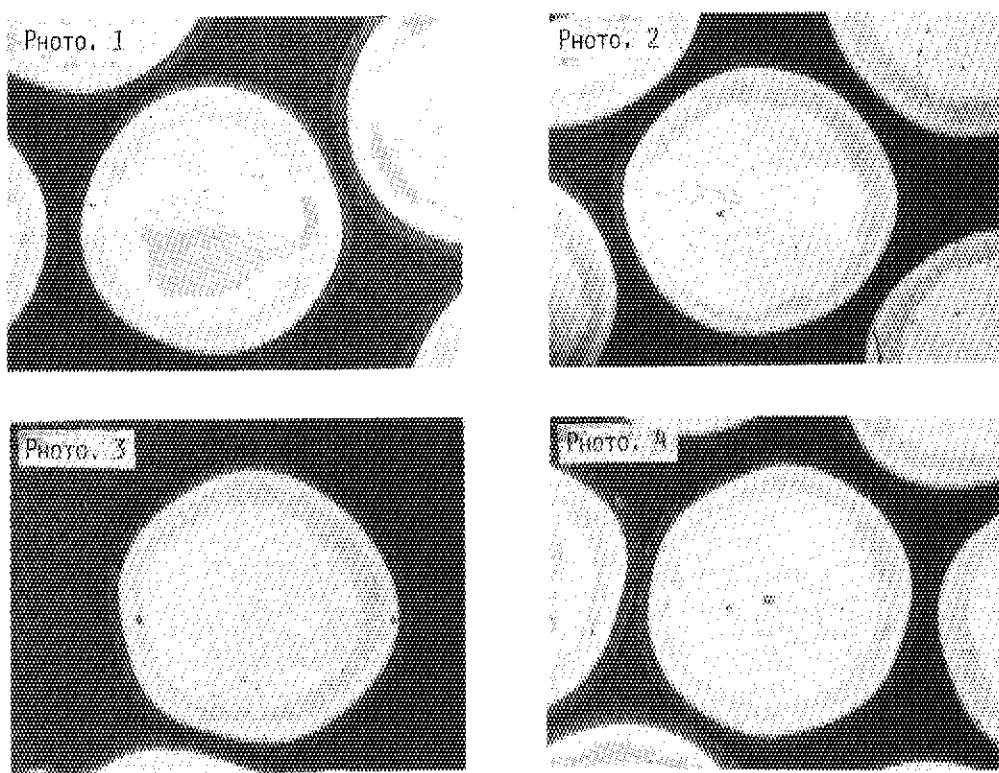


FIG. 14(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 73FC1-5A.

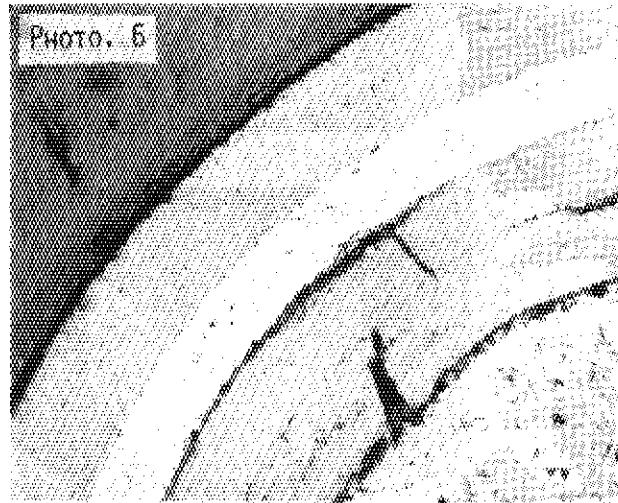
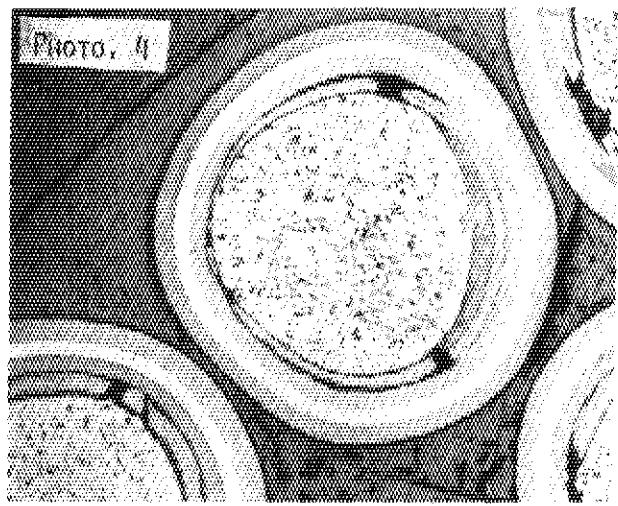
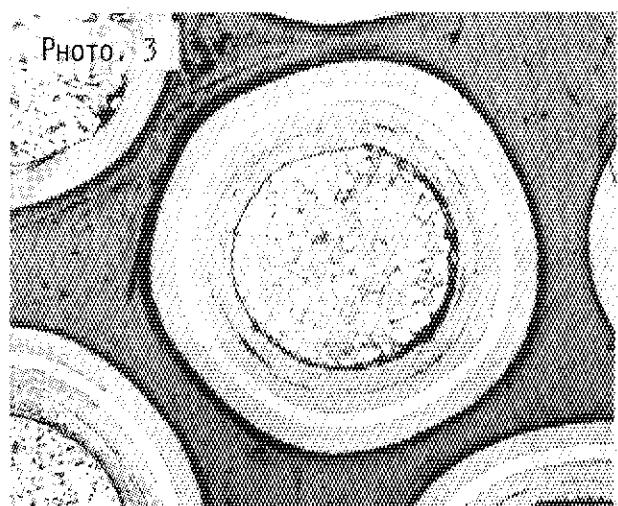
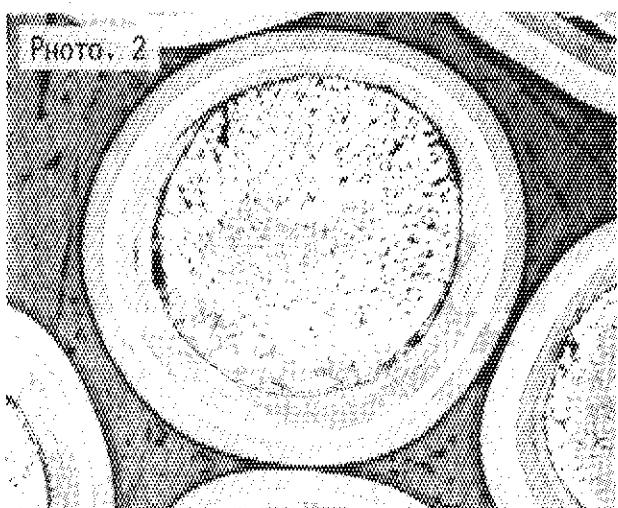
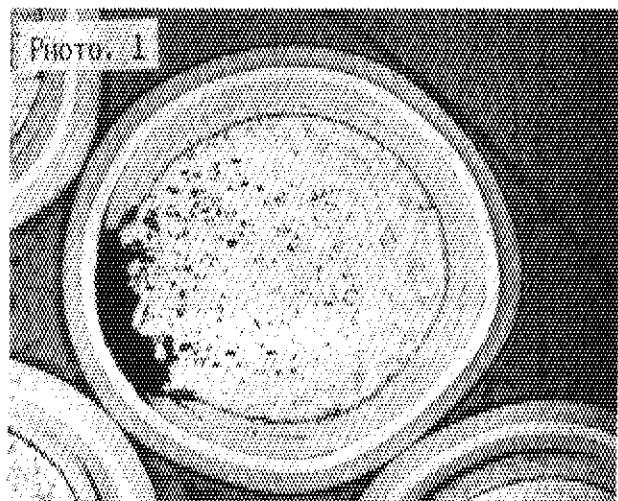


FIG. 15(A) CROSS SECTION OF 74FC1-5B.

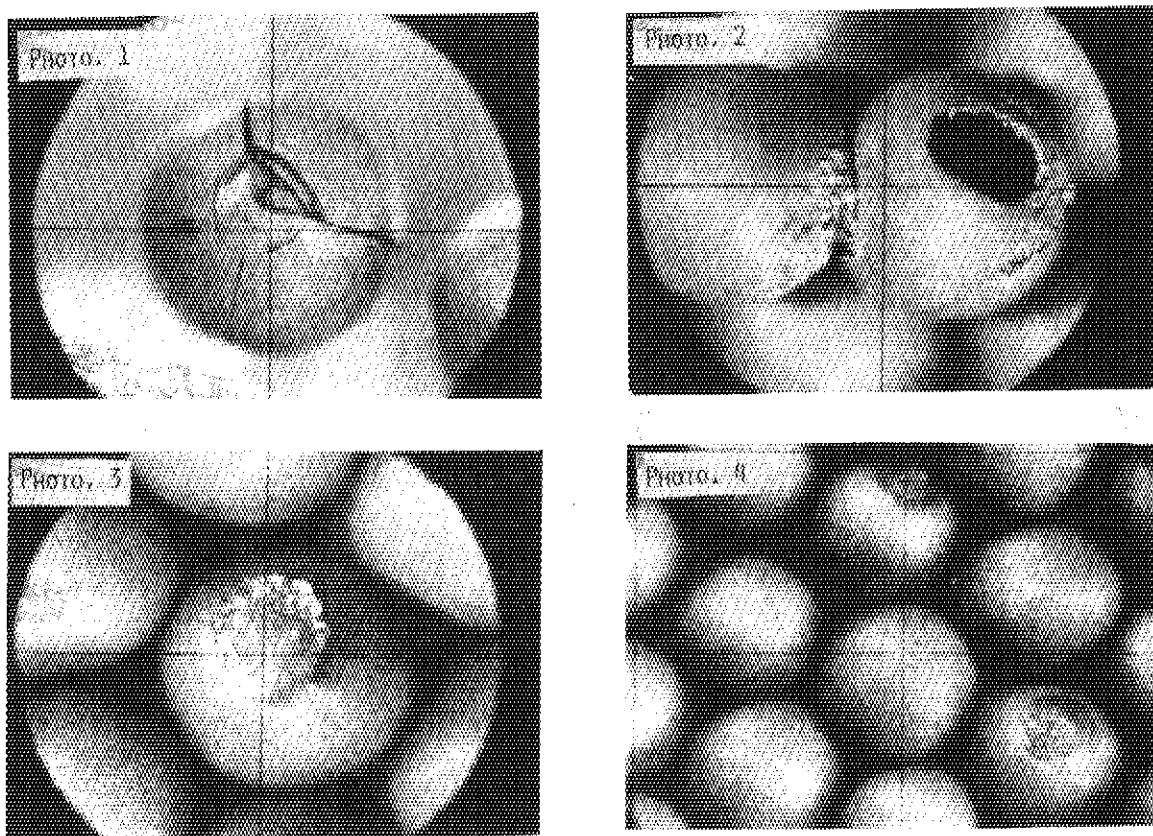


FIG. 15(B) SURFACE APPEARANCE OF 74FC1-5B.

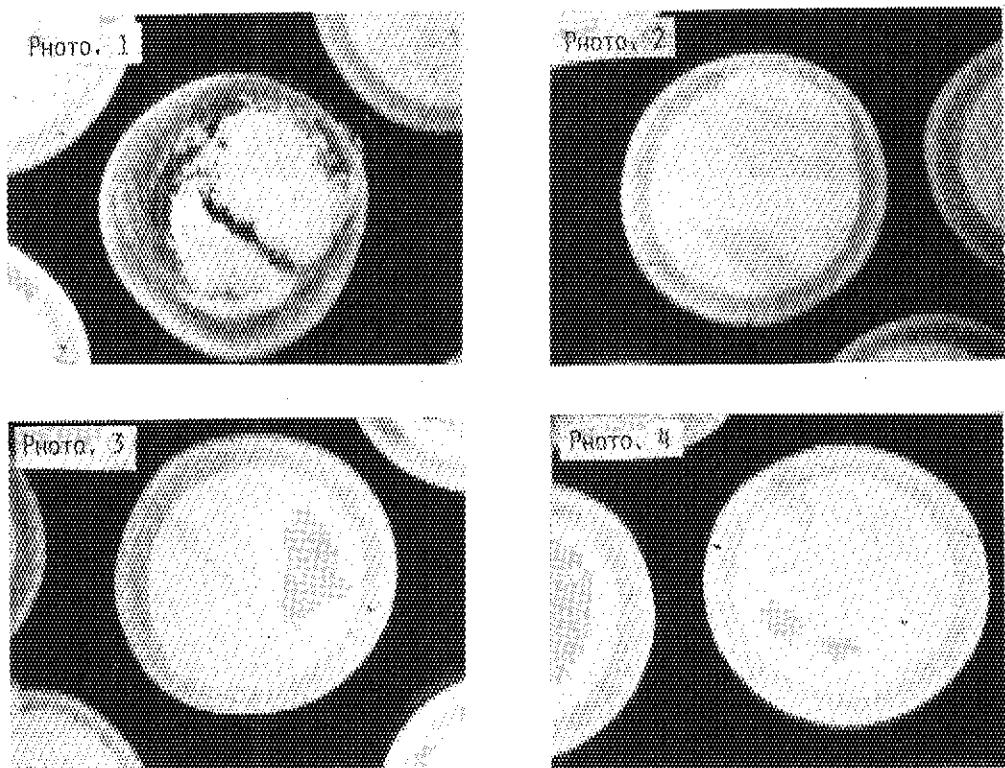


FIG. 15(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 74FC1-5B.

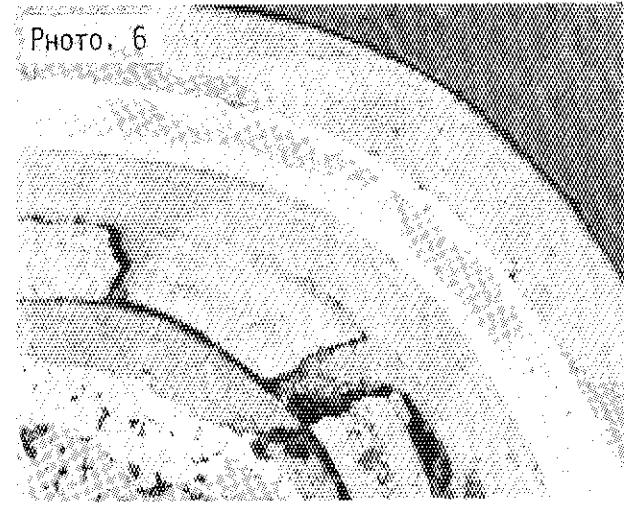
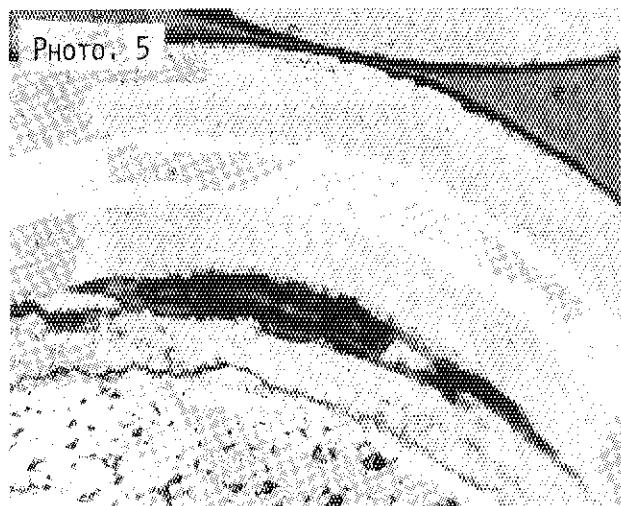
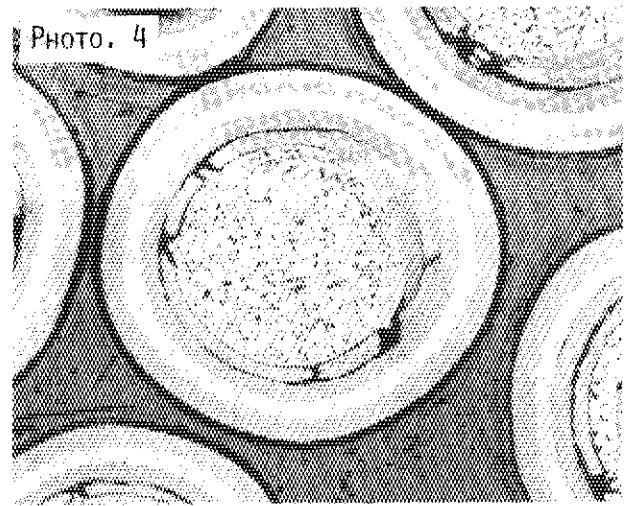
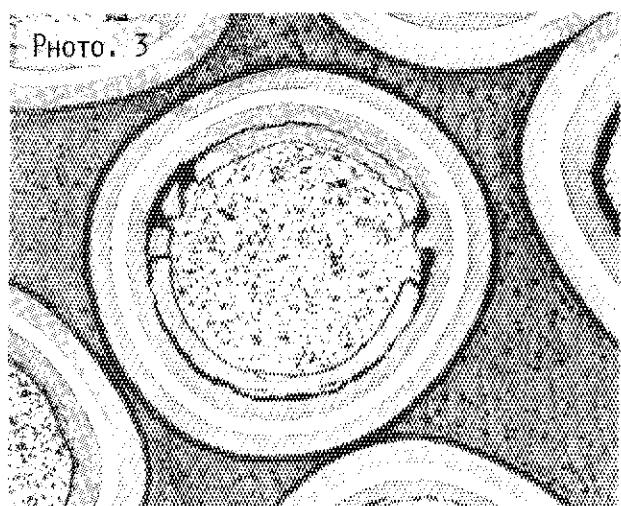
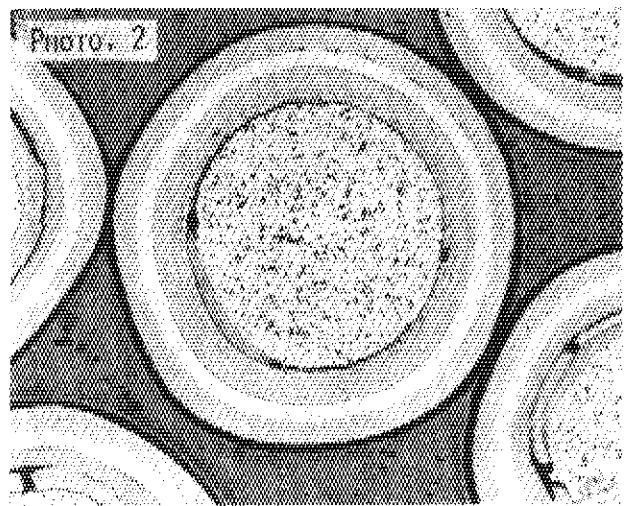
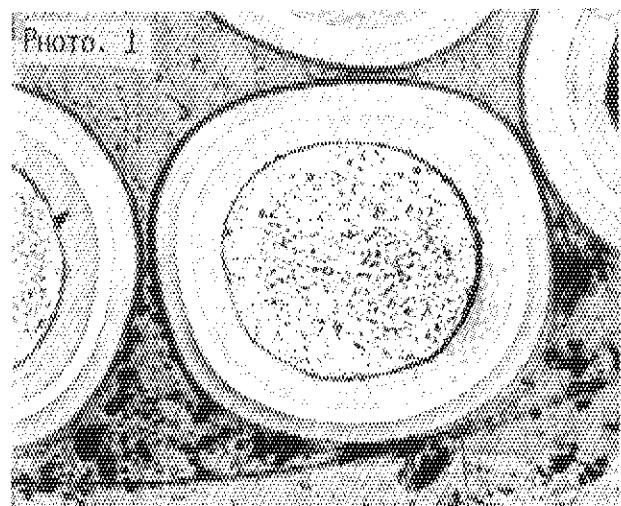


FIG. 16(A) CROSS SECTION OF 73FC3-6A.

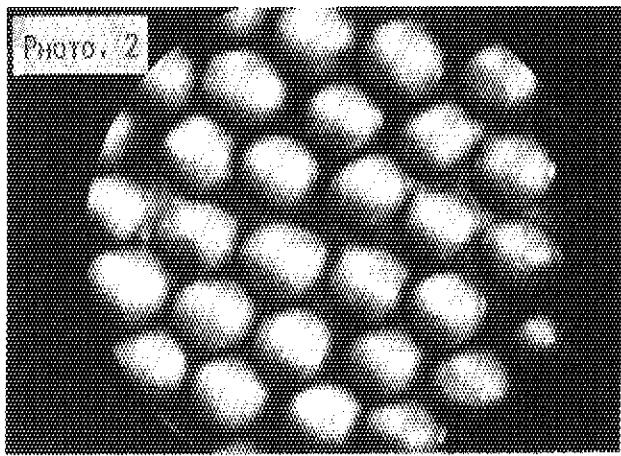
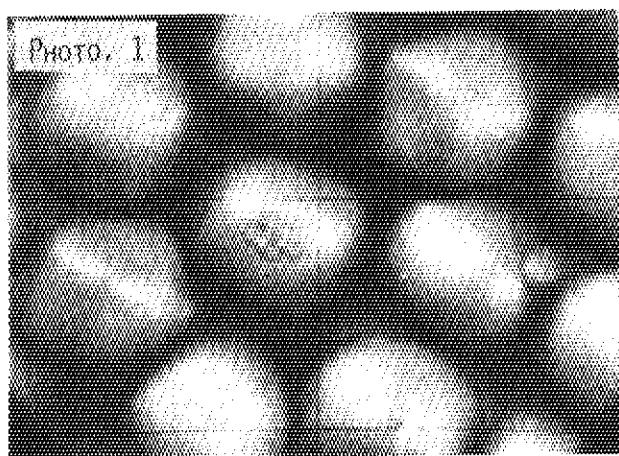


FIG. 16(B) SURFACE APPEARANCE OF 73FC3-6A.

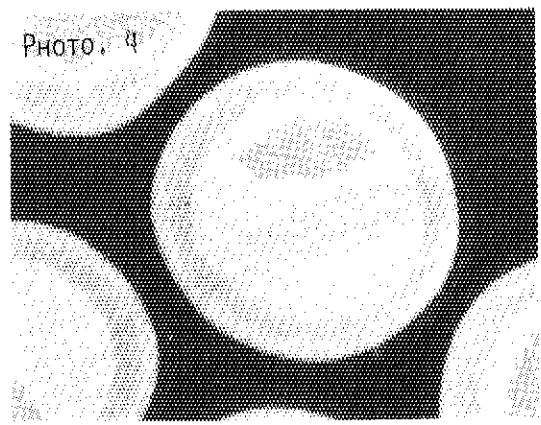
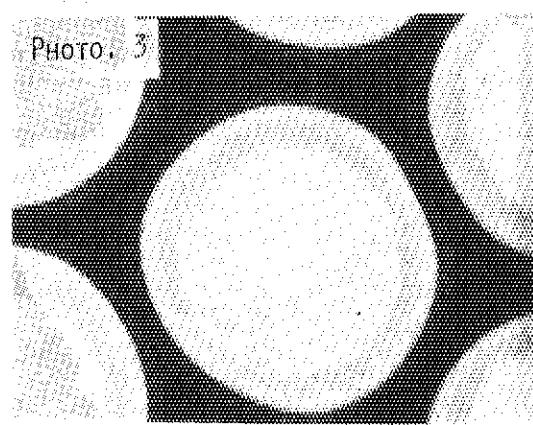
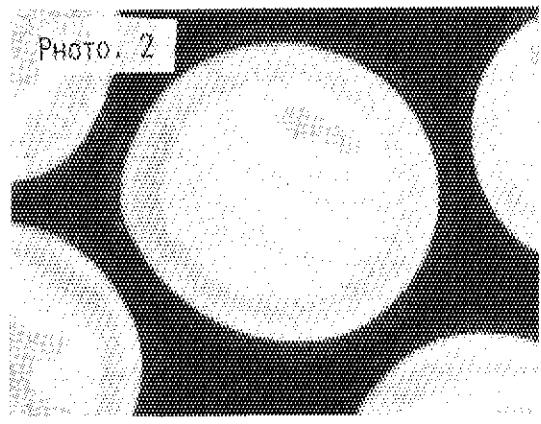
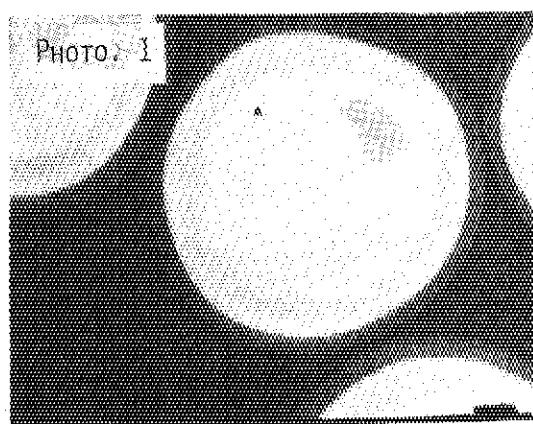


FIG. 16(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 73FC3-6A.

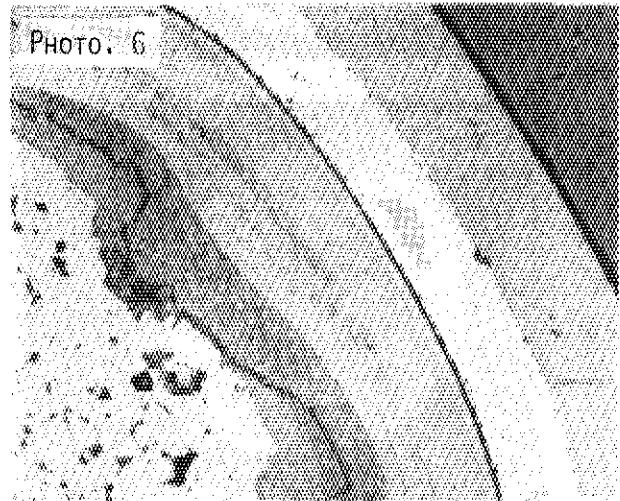
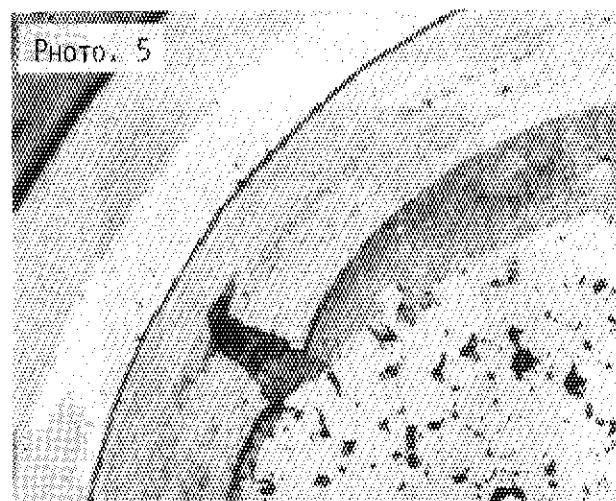
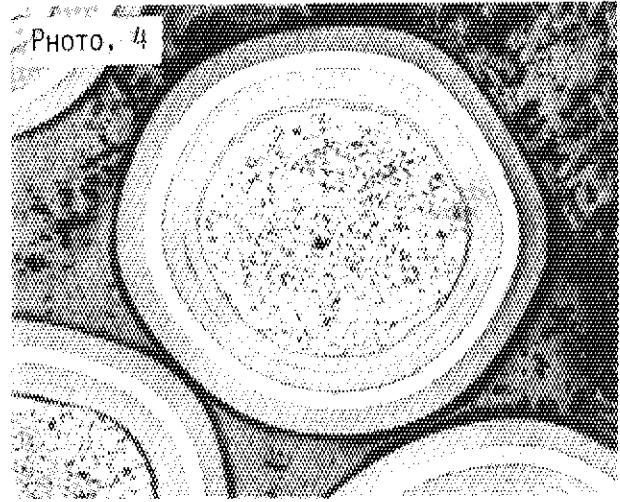
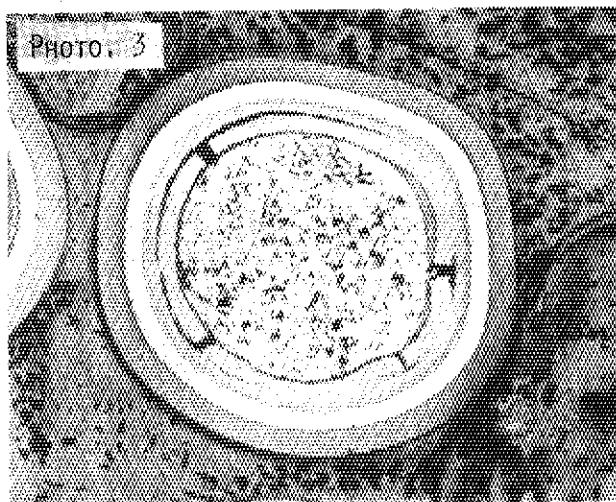
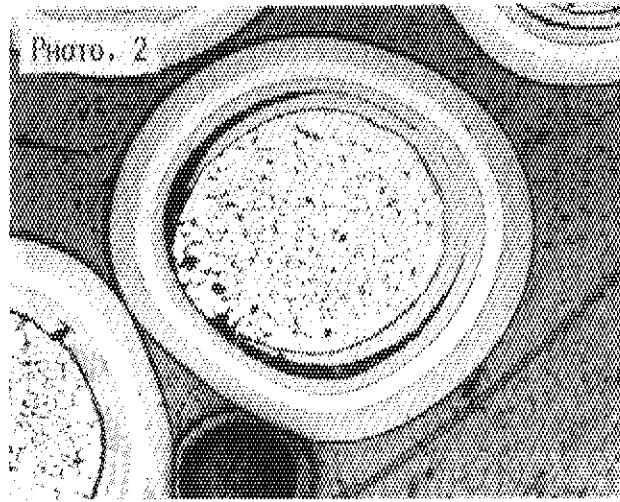
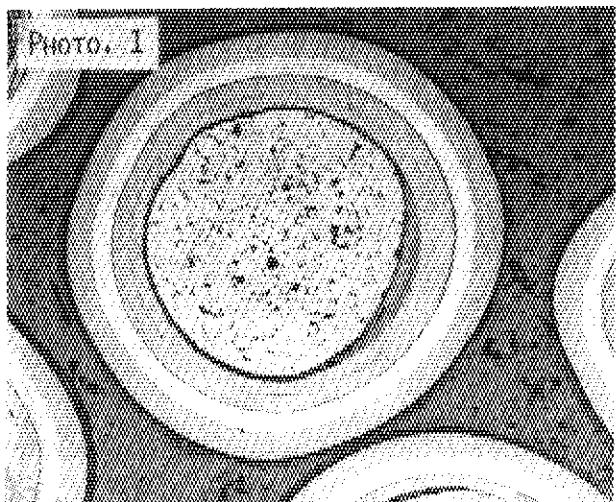


FIG. 17(A) CROSS SECTION OF 72FC10-6B.

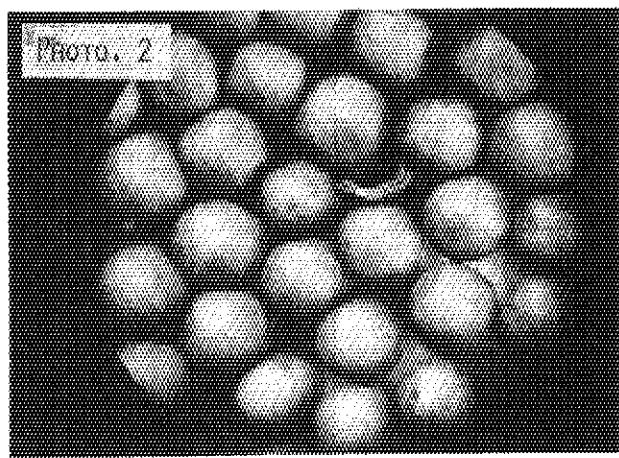
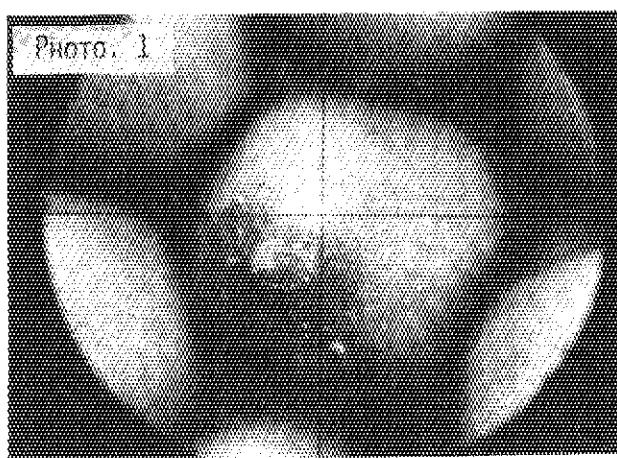


FIG. 17(B) SURFACE APPEARANCE OF 72FC10-6B.

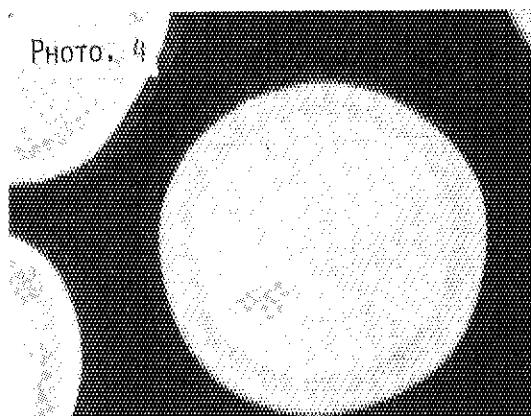
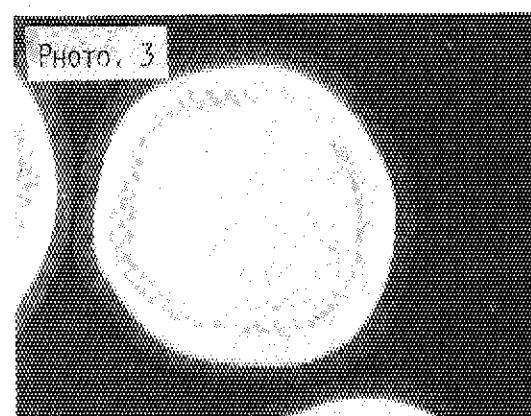
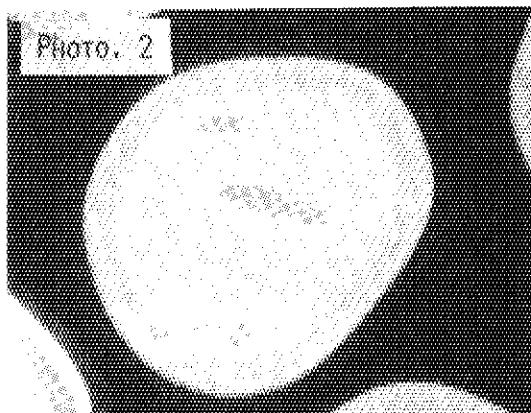
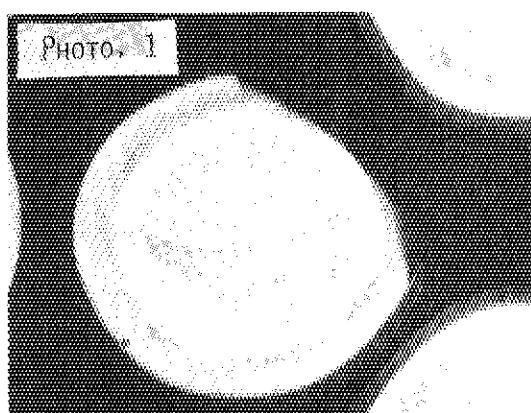


FIG. 17(C) X-RAY MICRORADIOGRAPH OF 72FC10-6B.

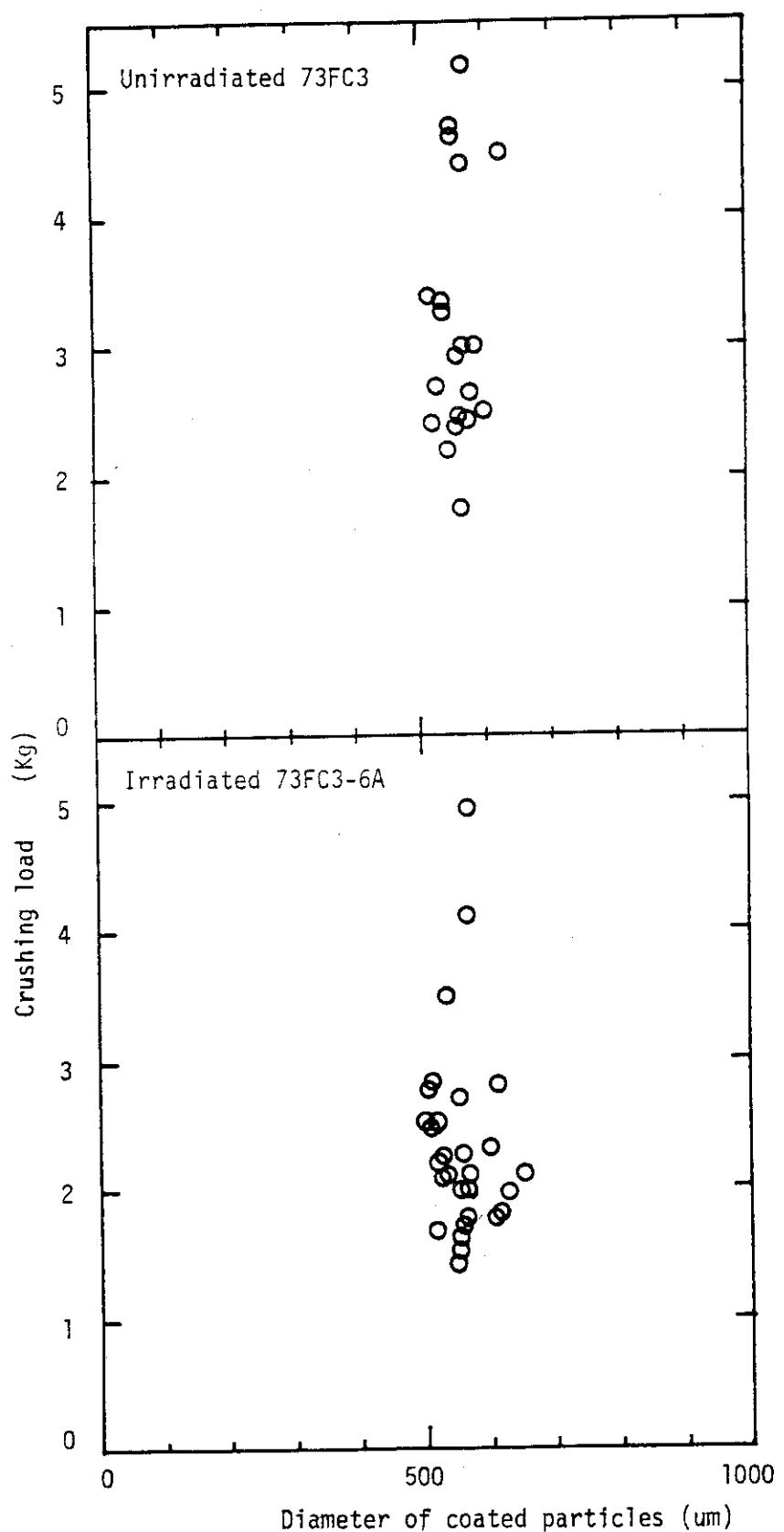


Fig. 18 Relation between crushing load and diameter of coated particles.

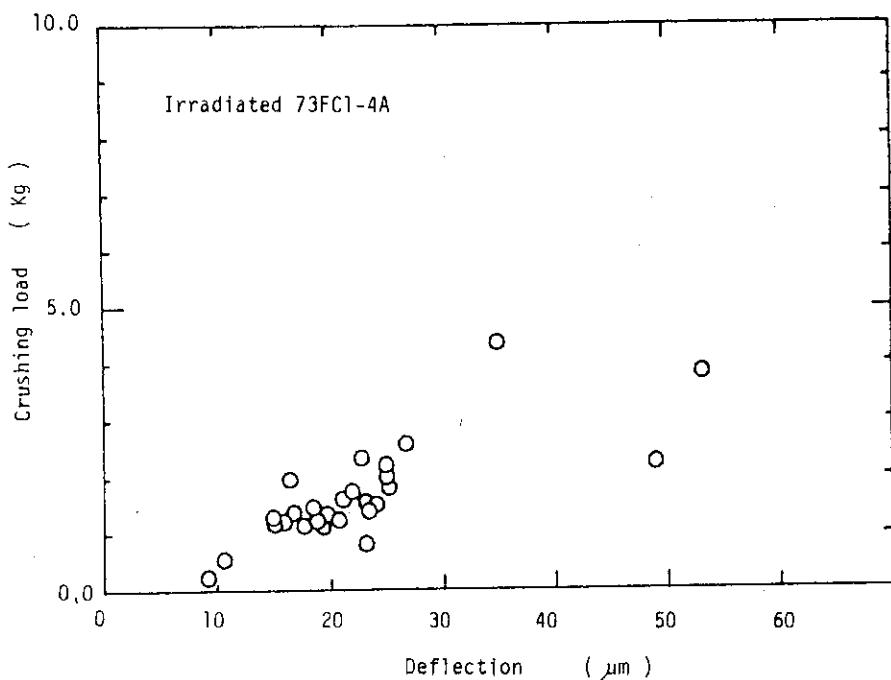


Fig. 19 Relation between crushing load and deflection
of the coated particles.

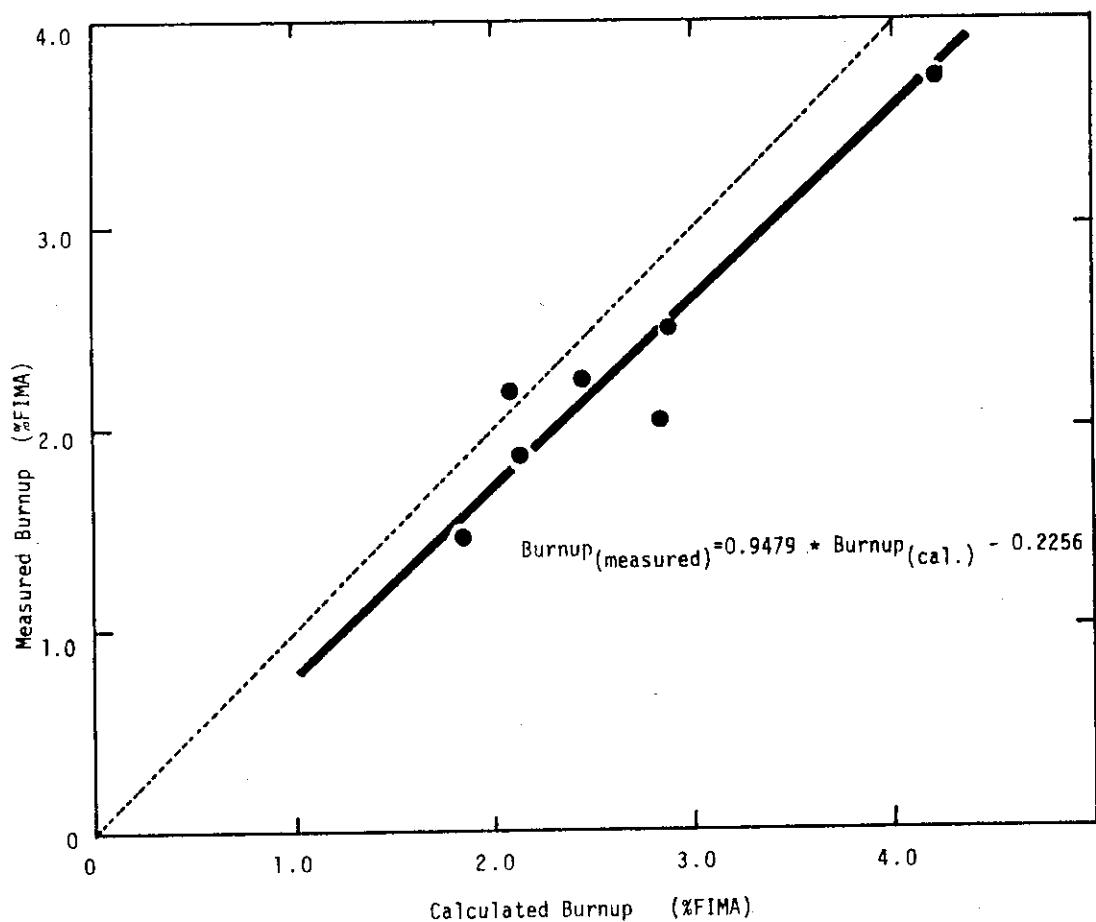


Fig. A-1 Relation between calculated burnup and measured one.