

JAERI-Research

JP0050314

2000-009



JMTR 照射混合窒化物燃料における
アクチノイド及び核分裂生成物の挙動
(88F-5A キャプセル)

2000年3月

岩井 孝・中島邦久・菊地啓修・木村康彦
金井塚文雄・関田憲昭・荒井康夫

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

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財團法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

JMTR 照射混合窒化物燃料における
アクチノイド及び核分裂生成物の挙動
(88F-5A キャプセル)

日本原子力研究所東海研究所エネルギーシステム研究部
岩井 孝・中島 邦久・菊地 啓修
木村 康彦⁺・金井塚 文雄⁺・関田 憲昭⁺・荒井 康夫

(2000年1月26日受理)

JMTRにおいて最高燃焼度 4.1%FIMAまで照射したウラン・プルトニウム混合窒化物燃料中のウラン、プルトニウム及び核分裂生成物の微視的な挙動を調べた。燃料ペレットのX線回折では、燃料マトリクスの格子定数が照射前に比べて 0.1~0.3%増加していたが、主に自己照射損傷の蓄積によるものと考えられる。アクチノイド及び核分裂生成物のペレット内での分布は、おおむねペレット内での熱中性子束に依存していたが、Pdについては数 μm 程度の析出が観察された。燃料と被覆管の境界にプルトニウムとニッケルを含む介在物が観察され、若干の化学的相互作用が生じた可能性が示唆された。

**Behavior of Actinides and Fission Products in Mixed Nitride Fuels
Irradiated in JMTR (88F-5A capsule)**

Takashi IWAI, Kunihisa NAKAJIMA, Hironobu KIKUCHI,
Yasuhiro KIMURA⁺, Fumio KANAIZUKA⁺, Noriaki SEKITA⁺ and Yasuo ARAI

Department of Nuclear Energy System
(Oarai Site)
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received January 26, 2000)

The microscopic behavior of uranium, plutonium and fission products in uranium-plutonium mixed nitride fuel pellets irradiated up to the maximum burnup of about 4.1%FIMA in JMTR was investigated. It was confirmed that the lattice parameter of fuel matrix increased by 0.1~0.3% mainly due to accumulation of self irradiation damage. Actinides and most of fission products showed the radial distributions corresponding to neutron fluence profile in the pellet, but some precipitations of palladium were observed. At the boundary of fuel pellet and cladding tube, a reaction zone including plutonium and nickel was observed, which suggested a slight fuel cladding chemical interaction (FCCI).

Keywords: Mixed Nitride, Irradiation, Actinides, Fission Products, Lattice Parameter, FCCI

+ Department of Hot Laboratories

目 次

1. はじめに	1
2. 試験方法	2
2.1 燃料特性	2
2.2 照射条件	2
2.3 試験条件	3
3. 試験結果及び考察	4
3.1 X線回折による相同意定及び格子定数測定	4
3.2 EPMAによる観察結果	5
3.2.1 燃料マクロ組織	5
3.2.2 存在元素の確認	5
3.2.3 アクチノイドの挙動	6
3.2.4 核分裂生成物の挙動	6
3.2.5 燃料と被覆管の化学的相互作用	7
4. まとめ	9
謝辞	10
参考文献	10

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental	2
2.1 Characterization of Fuels	2
2.2 Irradiation	2
2.3 Post-irradiation Examinations	3
3. Results and Discussion	4
3.1 Identification of Phases and Lattice Parameter by X-ray Diffraction Analysis	4
3.2 Observation by EPMA	5
3.2.1 Macro-structure of Fuel	5
3.2.2 Identification of Elements	5
3.2.3 Behavior of Actinides	6
3.2.4 Behavior of Fission Products	6
3.2.5 Chemical Interaction between Fuel and Cladding	7
4. Conclusions	9
Acknowledgement	10
References	10

1. はじめに

ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料は、金属燃料並の優れた熱伝導度を持ち、かつ、酸化物燃料に匹敵する高い融点を有する。また、核分裂性物質密度が大きく、核特性も良好であり、次世代の高速炉用燃料として期待されている⁽¹⁾。窒化物燃料の優れた核的及び熱的特性は、長寿命燃料や太径燃料ピンでの高線出力運転を可能とするばかりでなく、酸化物や金属燃料と同様の燃料設計を選択した場合には、Cold fuel concept⁽²⁾の適用が可能となり、低いFPガス放出の実現のほか、FP核種の燃料内での移行や組織再編を抑制することにより燃料設計の裕度を大きくとることができる⁽³⁾。そのほか、アクチノイドの一窒化物が共通してNaCl型面心立方晶構造をとることから、相互に固溶して安定な相状態が得られ、高速炉燃料としてばかりでなく、Np、Am、Cm等のマイナーアクチノイド消滅用燃料としても最適であると位置づけられている⁽⁴⁾。

窒化物燃料が優れた特性を有しているにもかかわらず、その照射試験の実績⁽⁵⁻⁷⁾は酸化物燃料や金属燃料と比べて極めて少ない。これまでに欧米で行われた照射試験から、窒化物燃料は良好な燃料挙動を示すことが明らかにされつつあるが、スエリング挙動の把握等の問題が今後の課題として挙げられている。燃料中のFPの挙動についても必ずしも十分に解明されていないのが実状である。このため、日本原子力研究所では、1984年から本格的な窒化物燃料の研究に着手し、燃料製造研究⁽⁸⁾、確性試験技術の確立⁽⁹⁾、物性測定^(10,11)等を進めてきたが、さらに照射下における燃料ふるまいを把握するため、1990年からJMTRを使ってウラン・プルトニウム混合窒化物燃料の照射試験を開始した。

窒化物燃料のJMTRにおける照射試験は2体のキャップセル(88F-5A及び89F-3A)^(12,13)を用いて行われているが、第1回目の照射試験である88F-5Aキャップセルの照射は、4.1%FIMAの最高燃焼度を達成して1992年度に終了し、同年度から東海研究所燃料試験施設において照射後試験が行われた。照射後試験項目のなかで、プロフィロメトリ、気孔率測定、燃料組織観察、FPガス放出、γ線スキャニング等に関する結果については、既に報告書にまとめられている⁽¹⁴⁾。本報告書は、燃料ペレット内におけるアクチノイドやFPの挙動のうち、微視的な項目に絞って燃料ふるまいを整理したものである。

なお、これまでに窒化物燃料と類似の照射挙動を示すとされている炭化物燃料についてもJRR-2やJMTRを用いた照射試験を実施してきた⁽¹⁵⁻¹⁹⁾。これらの研究成果についても報告されているので参考にしていただきたい。

2. 試験方法

2.1 燃料特性

今回の試験に供したウラン・プルトニウム混合窒化物燃料ピンは、大洗研究所燃料研究棟において製作されたものであり、燃料ピンの数は 2 本である。これらの燃料ピンは一体のキャップセル(88F-5A)に装荷されて JMTR で照射された。燃料ピンの概略仕様については、Table 1 に整理して示す。2 本の燃料ピンは、以下の記述ではそれぞれ 88F-5-1 及び 88F-5-2 と呼称する。なお、88F-5-2 燃料ピンには照射中の燃料中心温度の変化を測定するために燃料ペレット中心部に熱電対が挿入されている。

混合窒化物燃料ペレットは、まず、 UO_2 及び PuO_2 粉末を原料として、炭素熱還元法により窒化物、 $(\text{U},\text{Pu})\text{N}$ に転換し、これをボールミルにより再粉碎した後に成型し、その圧粉体を焼結することによって製造した。燃料製造に当たっては、気孔形成剤（ポアフォーマ）を添加して人為的に比較的大きな気孔を導入するとともに、燃料マトリクスを高密化した「熱安定型ペレット」を採用した。製造時の組織写真を Photo.1 に示す。燃料ペレットは、確性試験によってその特性を確認した後、オーステナイト系ステンレス鋼(SUS316)被覆管に充填され、端栓溶接を行って燃料ピンとした。照射試験燃料の設計、製造方法及び確性試験の結果等については、既に報告されているので参考していただきたい⁽¹²⁾。

2.2 照射条件

2 本の混合窒化物燃料ピンは、キャップセル(88F-5A)に組み込まれた後、JMTR の照射孔「O-7」に装荷され、第 90 サイクル(1990 年 3 月)から第 104 サイクル(1993 年 1 月)まで計 15 サイクル、延べ 7626 時間照射された。88F-5-1 及び 88F-5-2 燃料ピンの最高線出力は、それぞれ 650W/cm 及び 535W/cm である。また、最高燃焼度は、それぞれ 4.1%FIMA (35GWd/t) 及び 3.4%FIMA (29GWd/t) と評価される。照射条件の詳細については、別の報告書⁽¹⁴⁾を参照していただきたい。照射後試験は東海研究所燃料試験施設において実施された。

ORIGEN コードにより照射後試験時において燃料中に存在する主要な核種の量を評価した結果を Table 2 に示す。今回の照射は JMTR で行っているため、例えば 88F-5-1 燃料ピンのスタック中央における熱中性子照射量が $1.38 \times 10^{21}\text{n/cm}^3$ であるのに対して、高速中性子照射量は $3.38 \times 10^{20}\text{n/cm}^3$ であり、核分裂断面積の中性子スペクトル依存性を考慮すると熱中性子による核分裂が支配的である。このため、燃料ペレット断面を見た場合には、ペレット全体で均一に燃焼が起こらず、燃料周辺部がより多く燃焼する一方、燃料中心部では相対的に燃焼度は低下する。炭化物燃料に関する SRAC コードによる核計算結果では、照射開始時において燃料中心部では周辺部に比べて約 1/4 に中性子束が低下すると評価されており⁽²⁰⁾、今回の試験においても同様の傾向があるものと考えられる。また、照射孔「O-7」は炉心外の反射体領域にあるため、燃料ピンの炉心側はその反対側よりも高い中性子照射量となる。概略では、炉心側の中性子照射量はその反対側よりも約 20% 高いと推定される。

2.3 試験条件

試料中の相状態や存在元素の把握には、X線回折装置及びTAP、LIF等の分光結晶を有する波長分散型のEPMA(Electron Probe Microanalyzer)を用いた。X線回折用試料は、燃料ピンの粗切断の後、脱ミートを行い、ペレット部分のみを取り出したものを使用した。試料数は、88F-5-1燃料ピン及び88F-5-2燃料ピンそれぞれ1個ずつ、計2個とした。また、EPMA観察用試料は、燃焼度の高い88F-5-1燃料ピンを選び、粗切断した後樹脂注入し、さらに再切断した試料をホルダーに樹脂で埋め込み研磨したものを用いた。X線回折及びEPMA観察用試料の採取位置を、燃料ピンの概略構造とともにFig.1に示す。

X線回折用に採取したペレット片は、1個のアクリル樹脂製ホルダーに2試料(試料名51AP及び52AP)と一緒に埋め込み、表面を $7\mu\text{m}$ バフ研磨によって円滑に仕上げ、さらに酸化防止のために表面にエポキシ樹脂を塗布した。X線回折はペレットのほぼ中央位置で行った。測定条件は以下のとおりである。

ターゲット	Cu
管電圧	40 kV
管電流	40 mA
走査範囲	20~130° (2θ)
走査速度	0.25° (2θ)/min
サンプリング間隔	0.02°
モノクロメータ	グラファイト結晶

EPMA観察用の試料は、被覆管付きのまま細切断した試料(51B4)をポリエステル系の樹脂に埋め込んで研磨を行い、観察面を鏡面に仕上げ、さらに試料表面にアルミニウム金属を蒸着させた。測定の電子線加速電圧は主に25kVを用いた。分光結晶としては、TAP、MYR、LIF及びPETを使用した。

3. 試験結果及び考察

3.1 X線回折による相同定及び格子定数測定

2本の燃料ピンからそれぞれ1個ずつ採取した2個の燃料ペレット試料片についてX線回折を実施した結果を、Fig.2及びFig.3に示す。この結果は基本的にNaCl型面心立方晶構造の一窒化物の単相であることを示しており、測定条件の制約もあるが、X線回折からは第2相の存在は確認されていない。希ガス、白金族金属等を除くと、主要な核分裂生成物(FP)、すなわち希土類元素(La、Ce、Pr、Nd、Sm等)、Zr、Y等は一窒化物を形成するため、燃料マトリクス中に固溶していると考えられる。Ru、Rh、Pd等の白金族金属は、金属間化合物を形成して析出すると評価されているが、生成量はU及びPuの1.2%程度であり、検出感度から判断してX線回折では確認できなかったものと考えられる。そのほか、MoやTc及びTeについても金属状で存在する可能性があり、また、アルカリ金属(Cs、Rb)は金属状あるいはヨウ化物を形成することが考えられるが、いずれもU及びPuに対して1%以下の生成量である。金属状で存在すると考えられているこれらのFPの一部は、一窒化物相に固溶していることも考えられる。アルカリ土類金属(Sr、Ba)は二三窒化物を形成するが、X線回折ではその存在は確認できていない。このようにX線回折で一窒化物相のみが観察されたことについては、10%FIMAの燃焼度を模擬した燃料の試験⁽²¹⁾においても第2相が観察されていないことから、特に不合理ではないといえる。

X線回折結果から最小二乗法により評価した一窒化物相の格子定数は、88F-5-1及び88F-5-2燃料ピンでそれぞれ、 0.48965 ± 0.00032 及び 0.49060 ± 0.00033 nmであった。この値は、照射前の格子定数、 0.48917 ± 0.00002 nmと比較して有意に増加していることが明らかである。窒化物について照射による格子定数の増減要因としては、以下のことが考えられる。

- (1) 一窒化物への固体FP核種の固溶
- (2) 照射中における照射損傷の蓄積
- (3) 冷却中あるいは保管中における自己照射損傷の蓄積

窒化物の格子定数は、固溶するFP元素によって増加する場合と低下する場合があり、希土類の窒化物は(U,Pu)Nの格子定数を増加させるのに対して、Zrの固溶は格子定数を低下させる。このため、一窒化物への固体FP元素の固溶による格子定数の変化は、全体として相互に打ち消し合い、大きな変化を示さないことが指摘されている^(21,22)。また、侵入型元素の効果については、窒化物相への溶解度が分かっていないものが多く、よく知られていない。

照射中の照射損傷については、燃料中心温度は照射末期でも1000°C前後あり、この温度条件では蓄積欠陥の照射中の回復が考えられる。一方、燃料外周部の温度は照射初期には1000°C前後あるが、燃料ペレットと被覆管のギャップがほとんど閉塞した照射末期では600°C前後まで低下しており、照射による損傷が回復されずに残存している可能性が高い。しかし、今回のX線回折試料は、燃料ペレットを丸ごと埋め込んだものであり、測定位置はペレット中心近傍である。このため、照射中の照射損傷による格子定数增加の影響は大きくない。

自己照射損傷による格子膨張については、PuNの α 線による自己照射損傷に関する試験結果が報告されており、室温において飽和状態で0.25%の格子定数増加が観察されている⁽²³⁾。今回観察

された格子定数の増加は 0.1%から 0.3%である。これらのことから、今回の格子定数増加は自己照射損傷による寄与が最も大きいと考えられる。照射後の自己照射損傷については、Pu や Am による寄与より、照射で生成した Cm 核種からの α 線によるものが大きいと評価される。いずれにしても、このような格子定数の増加の原因を明らかにするためには、照射後試験での加熱焼鈍試験により照射損傷回復挙動を調べることが必要である。

3.2 EPMA による観察結果

3.2.1 燃料マクロ組織

本試験で観察した燃料ペレット断面のマクロ写真を Photo.2 に示す。燃料組織は球状の高密度の領域を多孔質の領域が取り囲む異常な様子を示している。照射前の組織写真(Photo.1 参照)と比較すると大きな変化があったことがわかる。このような組織は、通常の燃料ペレットでは見られないものであり、燃料製造で使用したポアフォーマが均一に分散していなかったことが一因として生じたと考えられるが、詳細については検討中である。しかし、組織外観上は異常な様子を示しているものの、この燃料の FP ガス放出率は約 4%FIMA の燃焼度で 2~3%程度と極めて低いほか、被覆管との機械的相互作用についても特に問題となる事象は観察されておらず、優れた照射特性を示すことが確認されている。

Photo.3 には、燃料ペレット径方向に対して撮影した連続 SEM 写真を示す。右端は被覆管である。ペレットのどの位置でも細かなクラックはほとんど見られない。外周部から中心までほぼ同様の組織を示している。

3.2.2 存在元素の確認

熱中性子による照射のため、燃料ペレット断面の中でも燃焼度が相対的に高いと考えられる燃料ペレットの外周部を選んで、定点スペクトル分析を実施し、燃料中に存在する元素の同定を行った。その結果を Fig.4 から Fig.7 に示す。燃料物質である U 及び Pu が認められているほか、Zr、Cs、Ce、Pr、Nd、Sm、Mo、Tc、Ru、Rh、Pd、Xe 等の FP 元素の存在が確認できる。また、Am が認められるが、これは燃料製造時から Pu に随伴して存在するものに加えて、照射中に Pu 等の中性子吸収によって生成したもの及び照射終了時から照射後試験までの間に ^{241}Pu の崩壊により生成・蓄積したものを含んでいる。なお、Al については、測定前に試料表面に蒸着した Al 膜によるものであり、燃料中に存在するものではない。

定点分析の結果と ORIGEN コードによる存在量評価値(Table1 参照)と比較すると、FP については、 $10^3\text{gram} \cdot \text{atoms}$ 以上の元素についてはほぼ確認できているほか、 $10^4\text{gram} \cdot \text{atoms}$ オーダの Rh 及び Sm も検知されている。定点におけるスペクトル分析の結果は、ORIGEN コード計算による燃焼計算と基本的に一致するとみなすことができる。これらの結果は、これまでに実施してきたウラン・プルトニウム混合炭化物燃料に関する観察結果と基本的に同様である。

3.2.3 アクチノイドの挙動

U 及び Pu の特性 X 線に波長を固定して燃料ペレット断面の径方向にスキャンした結果を Fig.8 及び Fig.9 に示す。この図から、U が径方向に均一に分布しているのに対して、Pu はペレット外周部で濃度が低下していることが確認される。これは、JMTR 照射のため熱中性子による核分裂への寄与が大きく、燃料中心部と比べて外周部でより一層 Pu の燃焼が進んだことを示すものである。U については、天然ウランであることから燃焼に伴う濃度変化は無視でき、得られた均一な濃度プロファイルと整合している。また、燃料中心温度は照射初期において約 1500°C と評価され、それほど高くないことから、燃料中の温度勾配等を駆動力として Pu が移行するとは考えにくく、Fig.9 に示された Pu 濃度プロファイルは Pu の燃焼をそのまま反映したものと考えることができる。ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料中の Pu の観察結果では、三二炭化物相への Pu の偏析に起因する微細な濃度変化が観察されているが⁽²⁰⁾が、今回の窒化物燃料ではそのような現象は観察されていない。

3.2.4 核分裂生成物の挙動

Zr、Cs、Xe 等の主要な FP について、それらの特性 X 線に波長を固定して燃料ペレットの径方向にスキャンさせた結果を Fig.10 から Fig.15 に示す。これからすべての FP に共通しているのは、濃度がペレット外周部で高く、中心部で低くなっていることである。このような傾向はマイクロγ線スキャニングによる観察結果⁽¹⁴⁾でも確認されており、熱中性子照射に起因して燃料外周部で燃焼度が高くなっていることによるものである。なお、Mo について、両端で濃度が高くなっているのは、被覆管部分までスキャンしたことにより、被覆管材中に当初から含有されている Mo が検知されたものである。

希土類元素である Nd のプロファイル(Fig.10 参照)は、外周部で濃度が高くなっていることのほかには偏析等を示すピークは認められない。希土類元素は一窒化物を形成するので(U,Pu)N 相に固溶し、径方向への移動は無視できるものと考えられる。一方、希土類と同様に一窒化物を形成する Zr については、偏析は認められず、同様に外周部で濃度が高くなる傾向を示しているものの、外周部と中心部での濃度差が小さいことが特徴である(Fig.11 参照)。この傾向はマイクロγ線スキャニングでも観察されており、燃料中心部と外周部における強度比は、Rh や Pr の場合と比べて相対的に小さくなっている⁽¹⁴⁾。このことは、ZrN が(U,Pu)N 相に固溶しているものの、燃料中心部に向かって移行している可能性を示唆することができる。しかし、このような現象についてはこれまでに報告がなく、同じく一窒化物を形成する希土類元素と Zr の挙動が異なる理由については検討が必要である。生成自由エネルギーで比較すると、母材の(U,Pu)N と希土類元素の値は同じ程度であるのに対して、ZrN の値は明らかに大きい。今回観察された現象が、Zr が燃料中で窒化物として母材及び希土類元素より安定に存在することと関係している可能性がある。

希ガスの Xe については、そのプロファイル(Fig.12 参照)は Nd の場合と極めて類似している。希ガスはプレナムに移行しやすいことから、一般的には固体 FP と異なるプロファイルを示すこ

とが予想される。しかし、この燃料では FP ガス放出率が約 3%と極めて低く、ほとんどの希ガスが燃料内に拘束されていると考えることができる。その点で、今回の Xe のプロファイルは FP ガスの放出率データと良い一致を示している。Xe についてライン分析を行った結果の一例を Photo.4 に示す。観察場所としては、高密度領域と多孔質領域の境界部分としたが、多孔質領域でもしろ高い X 線強度が観察されている。しかし、X 線強度は試料表面状態の影響を受けるため、この結果が直ちに Xe の分布状況に対応すると結論することはできない。試料表面状態に起因する X 線強度変化については検討する必要がある。

Pd については、径方向プロファイルは Nd などと同様であるが、局所的に X 線強度の高い領域のあることが Fig.13 から示唆される。Photo.5 に燃料ペレット中間部における面分析の結果を示すが、U、Pu、Mo 及び Ru については、ほぼ均一に分布しているのに対して、Pd では数 μm 程度の大きさの偏析の起きていることが分かる。このような Pd の析出状況は、炭化物燃料の場合と類似している⁽²⁰⁾。従来では、Pd は U や Pu 等のアクチノイド及びその他の白金族金属と、金属間化合物、 $(\text{U},\text{Pu})(\text{Pd},\text{Ru},\text{Rh})_3$ を形成すると考えられてきた⁽¹⁾。しかし、今回の試験結果からは、U、Pu と Pd は共存している可能性があるが、Ru は共存していない。線出力等の照射条件の相違を念頭に置きつつ、従来の考え方を再検討する必要がある。

Mo は窒化物燃料中では他の金属との化合物や窒化物を形成せず、金属状態で存在すると考えられている⁽¹⁾。金属状で析出する場合、Pd と同じように偏析する可能性が考えられるが、Fig.14 から分かるように、今回の試験結果では Mo の分布は均一であり、偏析の兆候は観察されていない。このことから、Mo が一窒化物相に固溶していることも考えられるが、UN に対する Mo の固溶度は極めて小さく、PuN に対しても 0.1wt%以下のわずかな溶解を示すのみである⁽²²⁾。今回の試料中の Mo 量は(U+Pu)に対して約 0.3wt%であり固溶限度を超えていていることから、Mo は (U,Pu)N 相に固溶していると考えるよりは、金属状の Mo が均一に分散していると理解するほうが妥当である。

Cs に関するプロファイルは Fig.15 に示されているが、Nd、Mo、Xe 等と同じように、燃料中心部で濃度が低く、外周部で高いものとなっている。Cs は金属状あるいは CsI の形で存在すると考えられており、準揮発性物質とみなされる。今回の燃料は「熱安定型ペレット」を採用しており、低い FP ガス放出となる燃料特性をもっている。このため、Cs についても Xe と同じように燃料内に拘束され、顕著な移行を示す様子は見られない。ただし、Cs のプロファイルは変動幅が大きく、これが単に測定条件によるものか、あるいは試料に微細な不均一があるのかについては、明瞭でなく、ヨウ素の挙動と併せて今後検討していく必要がある。

3.2.5 燃料と被覆管の化学的相互作用

今回の観察で、燃料ペレットと被覆管とのギャップに介在物が存在することが確認された。特に介在物の生成が顕著に観察された場所における SEM 像と特性 X 線の線分析結果を Photo.6 に示す。この結果から、ギャップに有意量の Pu 及び Ni が存在すると考えられるほか、窒素についても存在している可能性が示唆される。今回の観察結果では情報が限定されており、ギャップにおける介在物の性質を説明することは難しいが、Pu と Ni を含む金属間化合物の生成が考えられ

る。特に、Pu と Ni は安定な金属間化合物、 PuNi_5 を形成することが知られており、混合窒化物中の Pu と被覆管材中の Ni が反応したことが想定される。

窒化物燃料と被覆管との化学的相互作用(FCCI)については、有意の被覆管の窒化反応もなく、炭化物燃料やその他の燃料に比べて問題が少ないと考えられている。しかし、燃料物質と被覆材構成材との反応については、熱力学的には十分考えられるものである。今回の結果は、燃料寿命に影響を与えるものではないが、高燃焼度までの健全性を考慮する上では、今後注目すべき研究課題である。

4. まとめ

JMTRにおいて約4%FIMAまで燃焼させたウラン・プルトニウム混合窒化物燃料について、X線回折及びX線微小分析を行い、燃料中のアクチノイド及びFP元素の挙動を観察した。その結果、以下のような知見を得た。

- (1) 照射したウラン・プルトニウム混合窒化物燃料のX線回折の結果、NaCl型面心立方晶構造の単相であり、その格子定数は照射前と比べて約0.1~0.3%の増加が認められた。この格子膨張は主に、自己照射損傷の蓄積によるものと考えられる。
- (2) X線微小分析の結果、燃料構成元素であるU及びPuのほかに、Am、Zr、Cs、Ce、Pr、Nd、Sm、Mo、Tc、Ru、Rh、Pd、Xeの存在が確認された。
- (3) Uの径方向濃度プロファイルは均一分布を示す一方、Puは外周部で濃度の低下が認められた。これは、アクチノイド元素の再分布を示すものではなく、燃料ペレット内での中性子照射量に依存するものと考えることができる。
- (4) FP元素の多くは、共通して、燃料外周部で濃度が高く、燃料中心部では濃度が低下するプロファイルを示すことが確認された。希ガスであるXeや準揮発物質と考えられるCsについても、極めて低いFPガス放出のために、固体FPと同様の濃度プロファイルを示した。その中でZrについては、燃料中心部と外周部における濃度比が小さく、径方向にZrが再分布している可能性がある。Pdについては、炭化物燃料の場合と同様に数 μm の析出物が偏析していることが確認された。PdがU及びPuに随伴している可能性はあるものの、Ruは共存していなかった。
- (5) 燃料と被覆管のギャップにPu及びNiを含む介在物の存在が確認され、燃料中のPuと被覆材中のNiの反応が示唆される。

窒化物燃料中のアクチノイドやFPの挙動に関する情報は極めて少ないので現状である。このため、今回の試験で得られた興味ある知見について、そのメカニズムを充分理解することが困難なものもあり、今後の課題として残されている。JMTRを用いたウラン・プルトニウム混合窒化物燃料の照射試験は、次回の89F-3Aキャプセルの照射試験をもって終了したが、そのほかに核燃料サイクル開発機構との共同研究により高速実験炉「常陽」における炭化物燃料及び窒化物燃料の照射試験が実施され、昨年9月に照射を終了し11月からは照射後試験が開始された。これらの照射試験及び照射後試験から、次世代の新型燃料として期待される窒化物燃料に関して、FP挙動などについてデータベースの一層の強化を図る予定である。

謝 辞

本試験の実施に当たり、ホット試験技術課及び実用燃料試験課の各位に多大のご尽力をいただいた。また、本研究に当たり、燃料製造から照射、照射後試験に至るまで新型燃料燃焼研究グループ鈴木康文前グループリーダーにご指導いただきました。関係各位に深く感謝いたします。

参考文献

1. Hj.Matzke: "Science of Advanced LMFBR Fuels", North-Hollands, Amsterdam (1986).
2. H. Blank : J.Less-comm Met., 121(1985)583.
3. W.F.Lyon, R.B.Baker, R.D.Leggett : Proc. on Fast Reactors and Related Fuel Cycle, Kyoto, Oct.28-Nov.1 (1991)236.
4. Y.Suzuku, T.Ogawa, M.Handa : 3rd Inter. Mtg. on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Cadarache, Dec.12-14 (1994).
5. A.A.Bauer, J.B.Brown, E.O.Fromn, V.W.Storhok: Proc. on Fast Reactor Fuel Element Technology, New Orleans, Apr. 13-15 (1971)785.
6. A.A.Bauer, P.Cybulskis, R.L.Petty, N.S.DeMuth: Proc. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, Mar. 5-8 (1979)827.
7. H.Bank, U.Benedic, M.Bradbury, F.Calingara, M.Coquerelle, G.Gabolde, G.Giacchetti, M.Mandler, Hj.Matzke, K.Richter, C.Ronchi, C.Sari, H.E.Schmidt: Proc. European Nuclear Conf., Paris, Apr. 21-25 (1975)380.
8. Y.Arai, S.Fukushima, K.Shiozawa, M.Handa : J. Nucl. Mater. 168 (1989) 280.
9. M.Handa, K.Shiozawa, T.Iwai, Y.Arai : Anal. Chemical Acta 239 (1990) 107.
10. Y.Arai, Y.Suzuki, T.Iwai, T.Ohmichi : J. Nucl. Mater. 195 (1992) 37.
11. Y.Suzuki, A.Maeda, Y.Arai, T.Ohmichi : J. Nucl. Mater. 188 (1992) 239.
12. 鈴木 康文、岩井 孝、荒井 康夫、笹山 龍雄、塩沢 憲一、大道 敏彦、半田 宗男: JAERI-M 90-116, "第1回 JMTR 照射用ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料ピン(88F-5A)の製作" (1990).
13. 鈴木 康文、岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、荒井 康夫、塩沢 憲一、大道 敏彦: JAERI-M 91-078, "第2回 JMTR 照射用ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料ピン(89F-3A)の製作" (1991).
14. 荒井 康夫、岩井 孝、笹山 龍雄、岡本 芳浩、中島 邦久、新見 素二、助川 友英、山原 武、鈴木 康文: JAERI-Research 95-008, "JMTR 照射ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料の照射後試験(88F-5A キャプセル)" (1995).
15. 前多 厚、笹山 龍雄、岩井 孝、相沢 作衛、大和田 功、相沢 雅夫、半田 宗男: JAERI-M 88-219, "ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低線出力(第1回) 照射及び照射後試験" (1988).
16. 岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、相沢 作衛、川崎 公靖、相沢 雅夫、半田 宗男: JAERI-M

- 89-186, "ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の中線出力(第2回)照射及び照射後試験" (1989).
17. 荒井 康夫、鈴木 康文、笹山 龍雄、岩井 孝、関田 憲昭、大和田 功、新見 素二、大道 敏彦: JAERI-M 91-191, "84F-10A ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャップセルの照射及び照射後試験" (1991).
 18. 岩井 孝、荒井 康夫、前多 厚、笹山 龍雄、関田 憲昭、野村 勇、鈴木 康文: JAERI-M 94-036, "84F-12A ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャップセルの照射及び照射後試験" (1994).
 19. 荒井 康夫、岩井 孝、笹山 龍雄、中島 邦久、野村 勇、吉田 武、鈴木 康文: JAERI-Research 94-027, "87F-2A ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャップセルの照射及び照射後試験" (1994).
 20. 岩井 孝、荒井 康夫、中島 邦久、木村 康彦、助川 友英、鈴木 康文: JAERI-Research 96-066, "JMTR 照射熱安定型混合炭化物燃料中のプルトニウム及び核分裂生成物の挙動" (1996).
 21. M.H.Bradbury, Hj.Matzke : J. Nucl. Mater. 91 (1980) 13.
 22. U.Benedict : Proc. on Thermodynamics of Nuclear Materials 1979, Julich, Jan.29-Feb.2 (1979) 453.
 23. Y.Okamoto, A.Maeda, Y.Suzuki : J. Nucl. Mater. 206 (1993) 94.

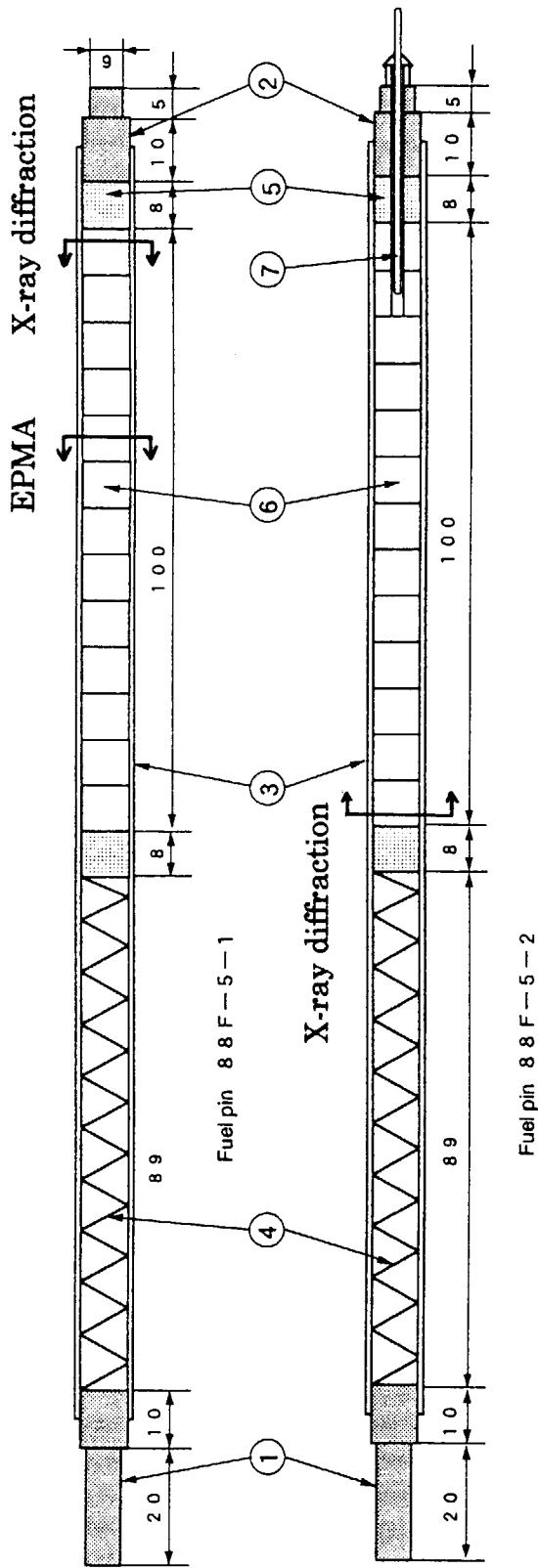
Table 1 Characteristics of fuel pins irradiated in JMTR

pin No.	88F-5-1	88F-5-2
Fuel pin		
Pin length (mm)	249.8	256.0
Mixed nitride fuel length (mm)	100.00	99.85
Outer diameter (mm)	9.40	9.40
Fuel pellet		
Material	(U,Pu)N	(U,Pu)N
Pu/(U+Pu) ratio	0.196	0.196
$N_{eq}/(U+Pu)$ ratio	1.03	1.03
Pellet diameter (mm)	8.18	8.23
Pellet density (%T.D.)	83.1	83.0
Smear density (%T.D.)	79.2	80.1
Cladding tube		
Material	20% CW austenitic SS	
Thickness (mm)	0.51	0.51
Inter diameter (mm)	8.38	8.38
Pellet-clad diameter gap (mm)	0.20	0.15
Bonding material	He	He

* N_{eq} : N+14/16O*T.D. : Theoretical density ; 14.29 g/cm³ for (U_{0.8}Pu_{0.2})N, 14.32 g/cm³ for UN

**Table 2 Build up of actinides and fission products in mixed nitride fuel
after irradiation at 640 W/cm**

Elements	Concentration ($\times 10^3$ gram atoms)		
	BOL	EOL	338 day cooling after discharge
Kr	—	0.31	0.30
Rb	—	0.25	0.25
Sr	—	0.68	0.65
Y	—	0.33	0.32
Zr	—	3.61	3.59
Mo	—	4.23	4.30
Tc	—	1.12	1.13
Ru	—	3.54	3.37
Rh	—	0.93	0.97
Pd	—	2.69	2.83
Ag	—	0.24	0.24
Cd	—	0.11	0.11
Te	—	0.71	0.70
I	—	0.39	0.38
Xe	—	4.82	4.83
Cs	—	3.03	3.02
Ba	—	1.25	1.26
La	—	1.07	1.07
Ce	—	2.15	2.03
Pr	—	0.91	0.93
Nd	—	2.89	3.02
Pm	—	0.21	0.16
Sm	—	0.69	0.74
Eu	—	0.10	0.10
^{235}U	3.42	3.02	3.02
^{238}U	4.72×10^2	4.71×10^2	4.71×10^2
^{239}Pu	7.50×10	5.21×10	5.21×10
^{240}Pu	2.03×10	2.27×10	2.27×10
^{241}Pu	2.14	4.81	4.60
^{242}Pu	0.68	1.00	1.00
^{241}Am	1.04	1.31	1.51



No	Items	Materials	Dimension (mm)
1	Upper endplug	SUS316L	
2	Lower endplug	SUS316L	
3	Cladding tube	SUS316	9.40φ × 0.51 t
4	Spring	Inconel - X	104 (Free length)
5	Insulator pellet	UN	8.18(88F-5-1), 8.23(88F-5-2) φ × 8.01
6	Fuel pellet	(U,Pu)N	8.18(88F-5-1), 8.23(88F-5-2) φ × 8.01
7	Thermocouple	W5Re-W26Re	1.6φ (Sheathed diameter)

Fig. 1 Structure of fuel pins. Observed cross section are shown by arrows.

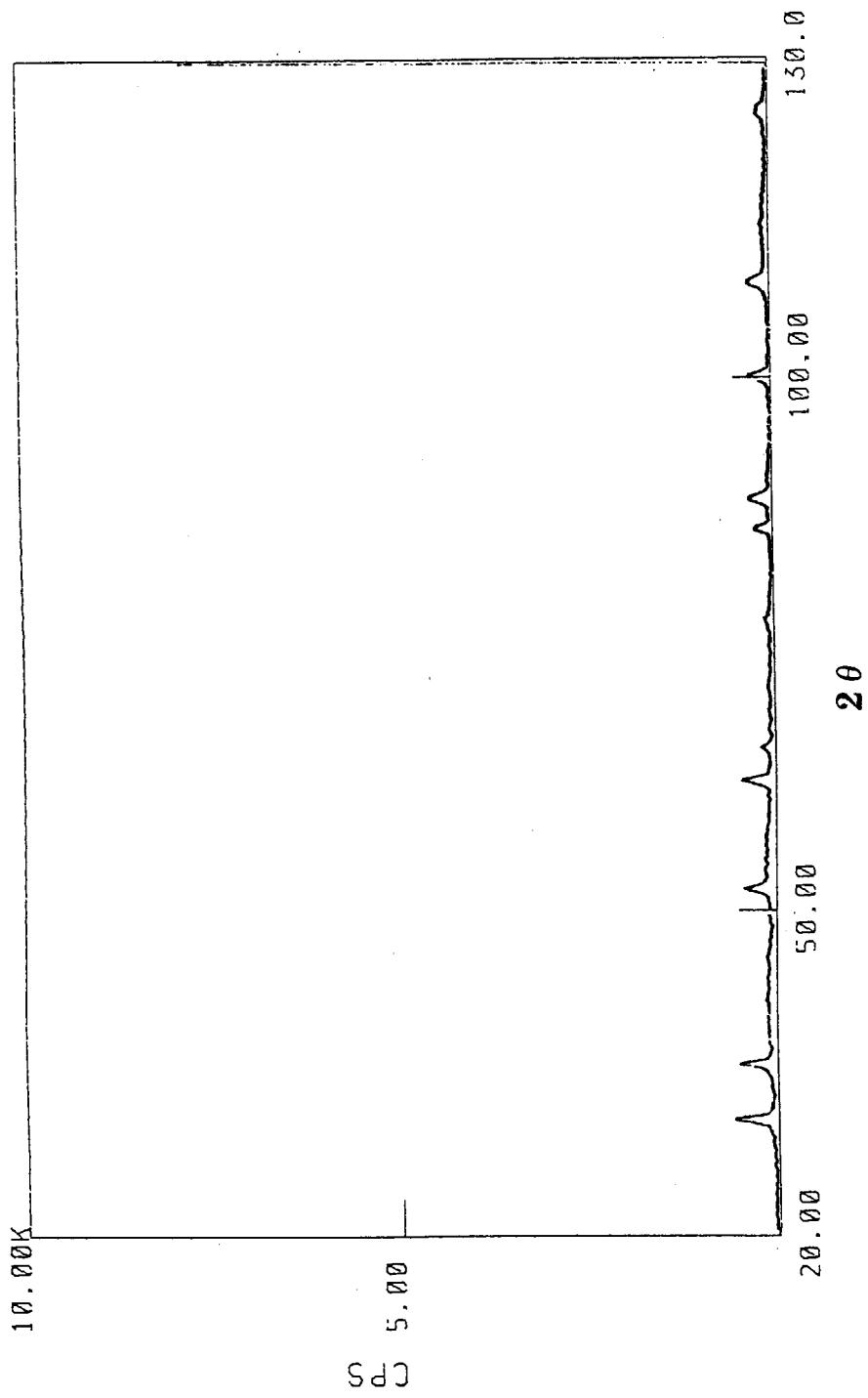


Fig.2 X-ray diffraction pattern of pellet for 88F-5-1 fuel pin

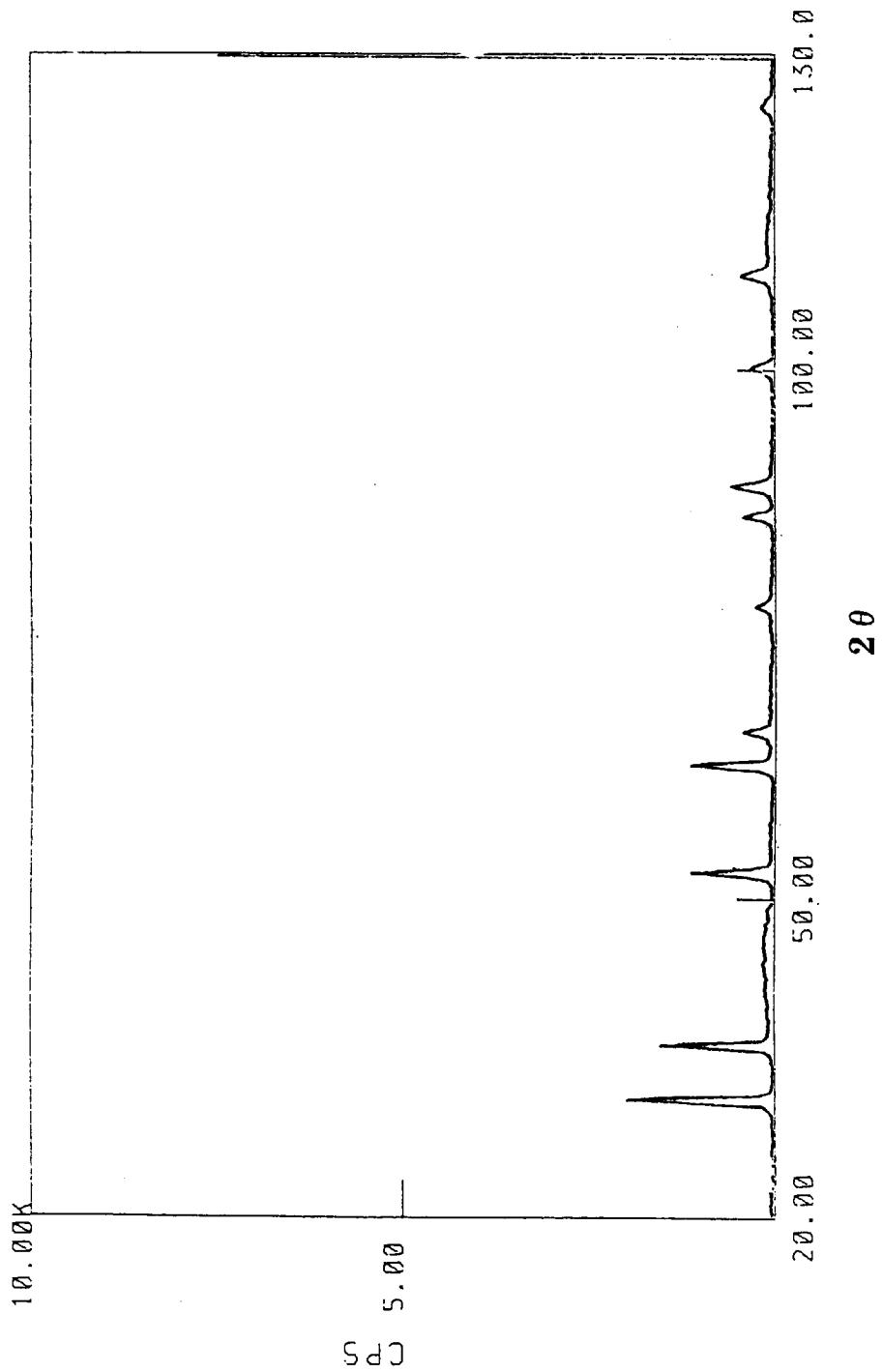


Fig.3 X-ray diffraction pattern of pellet for 88F-5-2 fuel pin

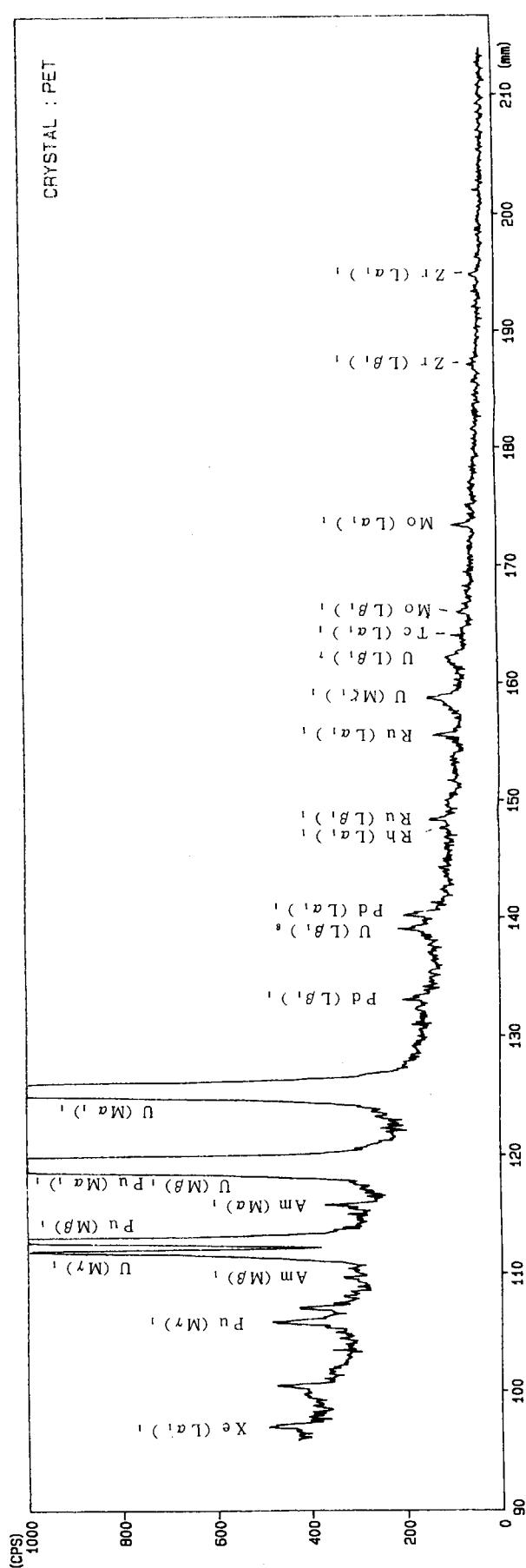


Fig.4 X-ray spectra measured by using PET crystal

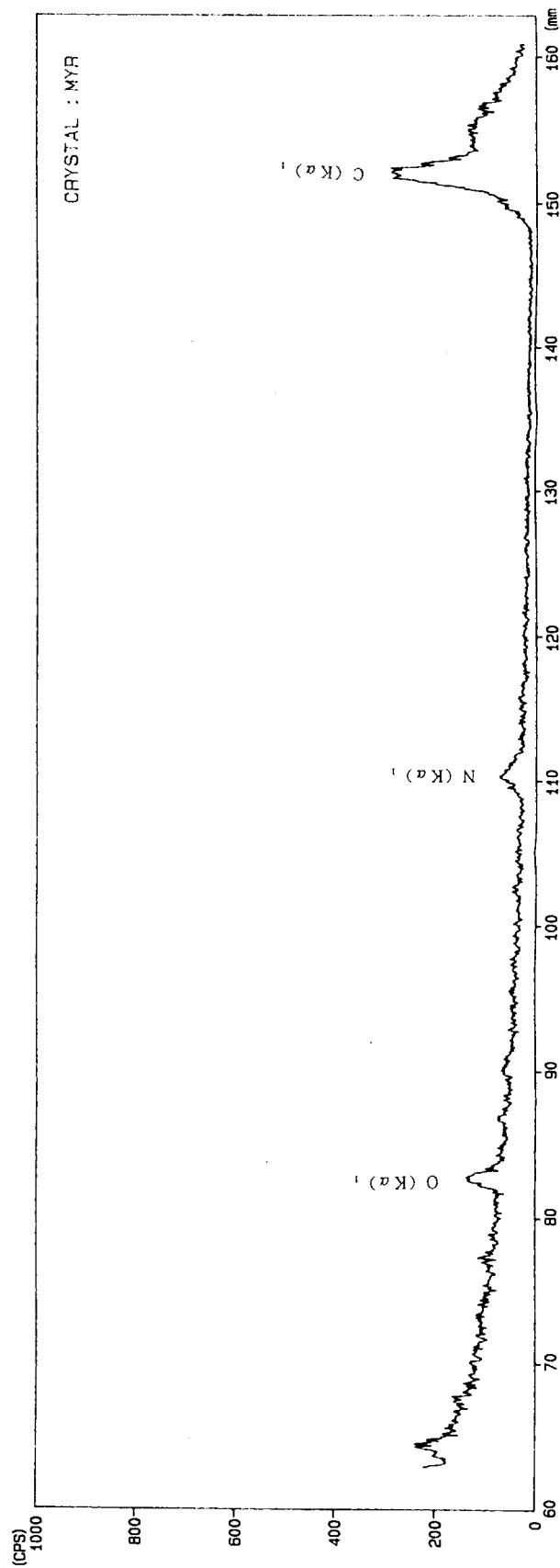


Fig.5 X-ray spectra measured by using MYR crystal

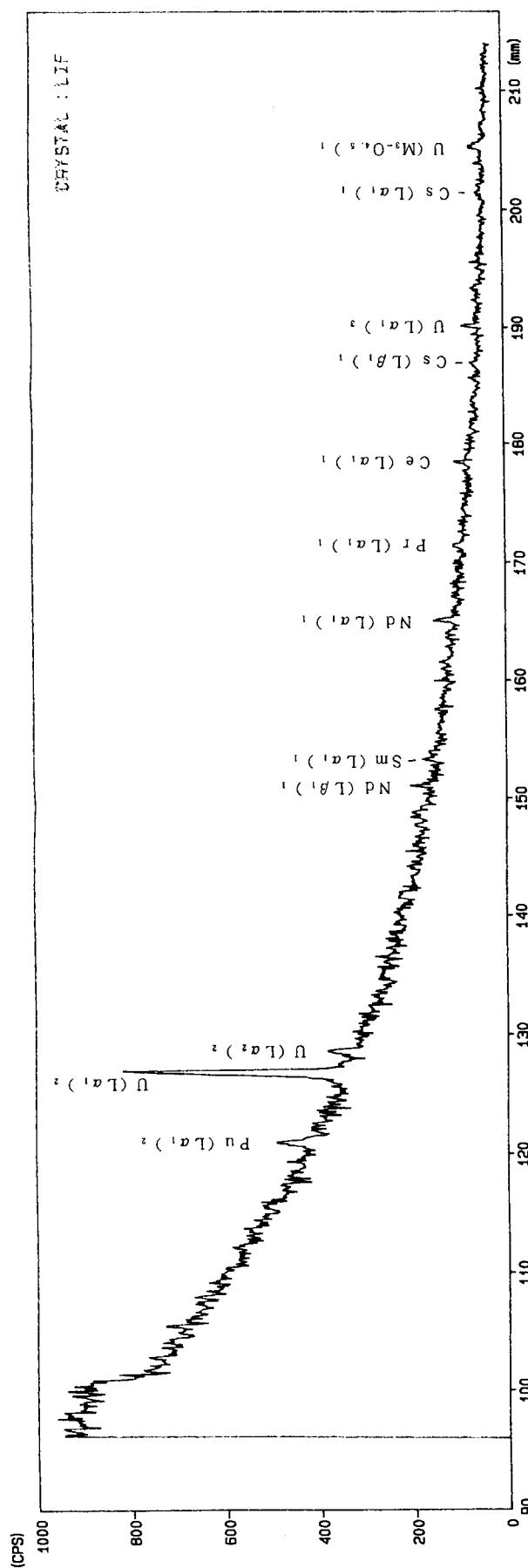


Fig. 6 X-ray spectra measured by using LiIF crystal

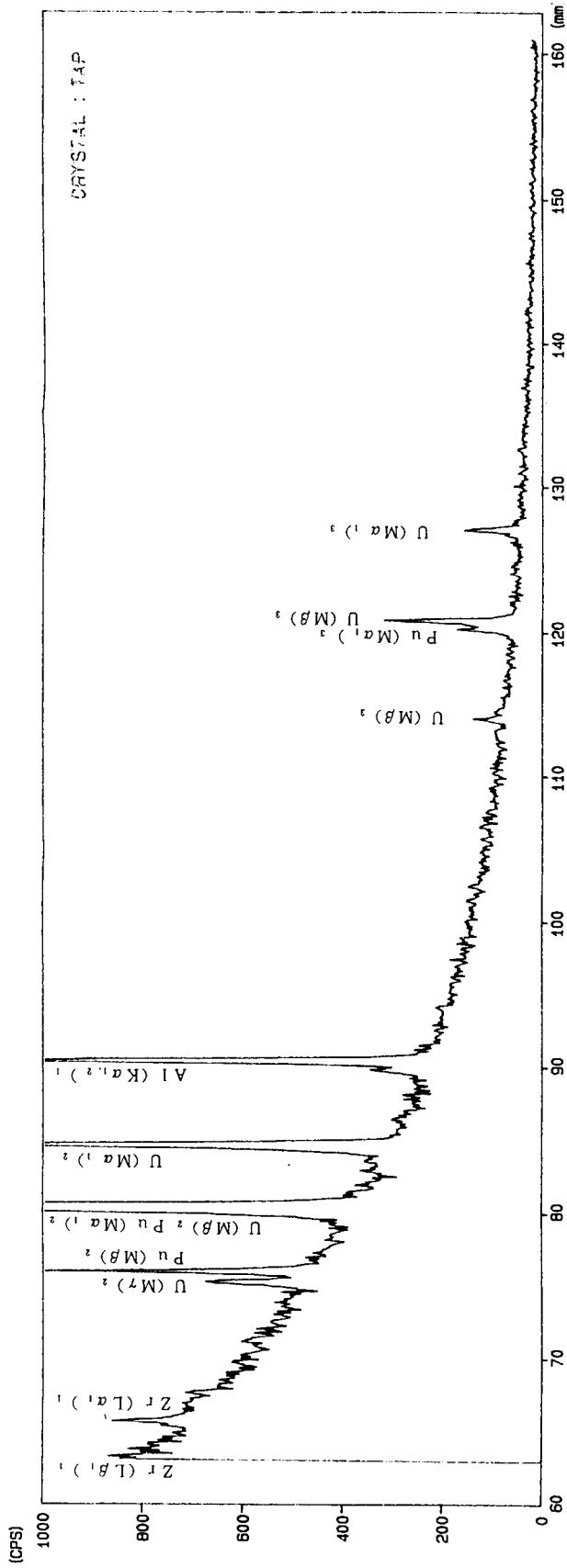


Fig. 7 X-ray spectra measured by using TAP crystal

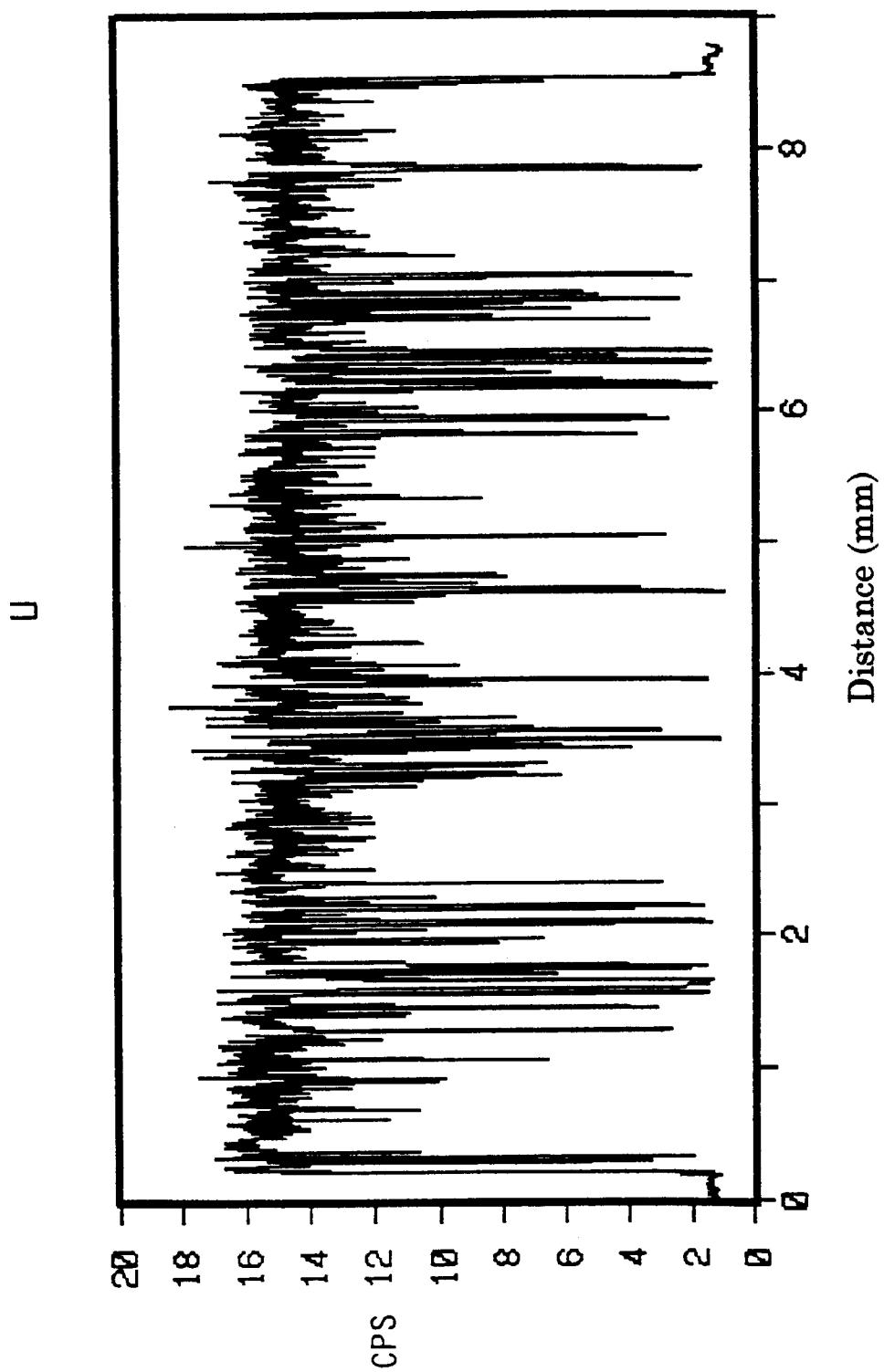


Fig. 8 Radial profile of $U(M\alpha_1)$ in irradiated mixed nitride fuel pellet

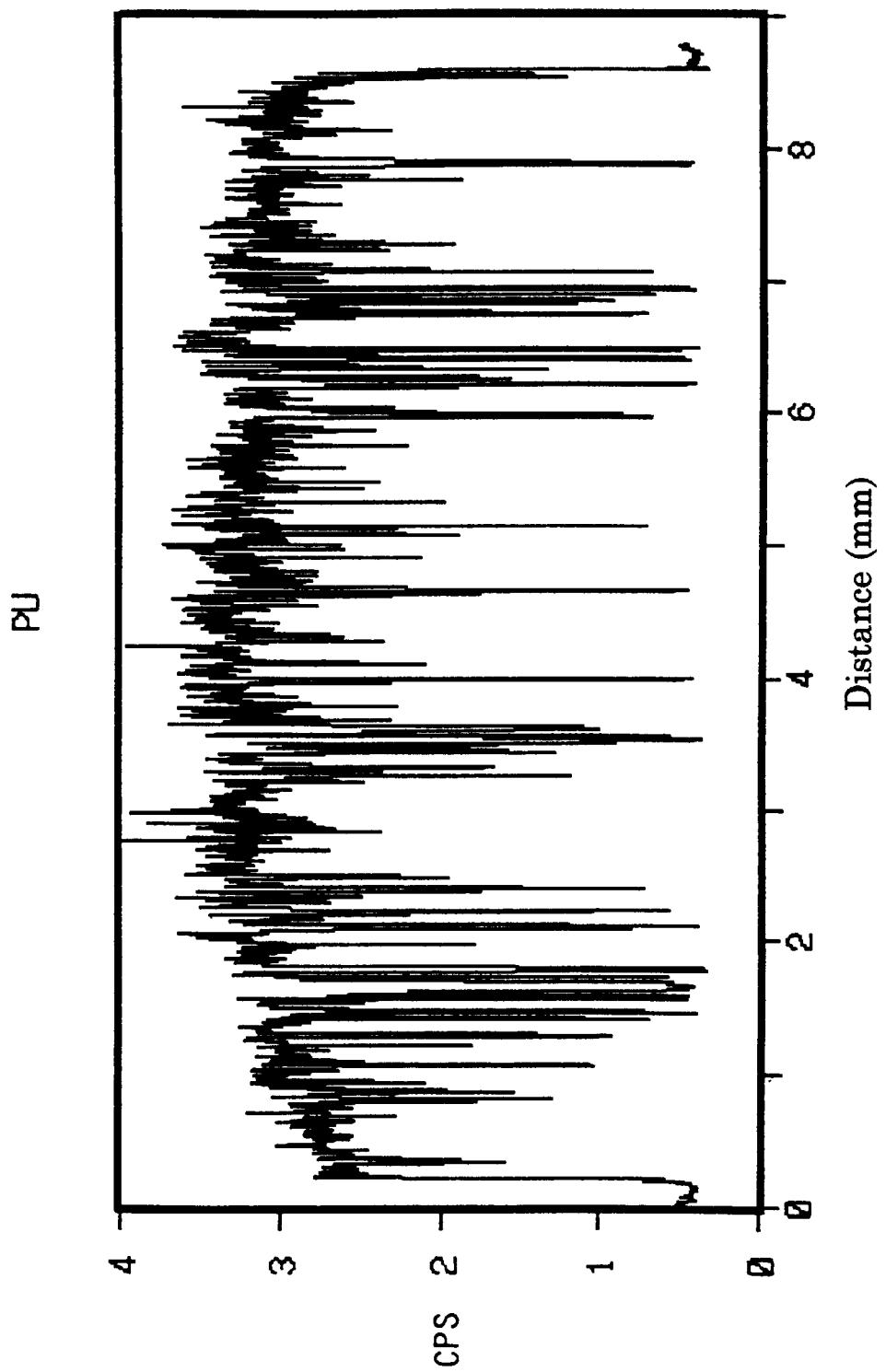


Fig.9 Radial profile of Pu ($M\beta_1$) in irradiated mixed nitride fuel pellet

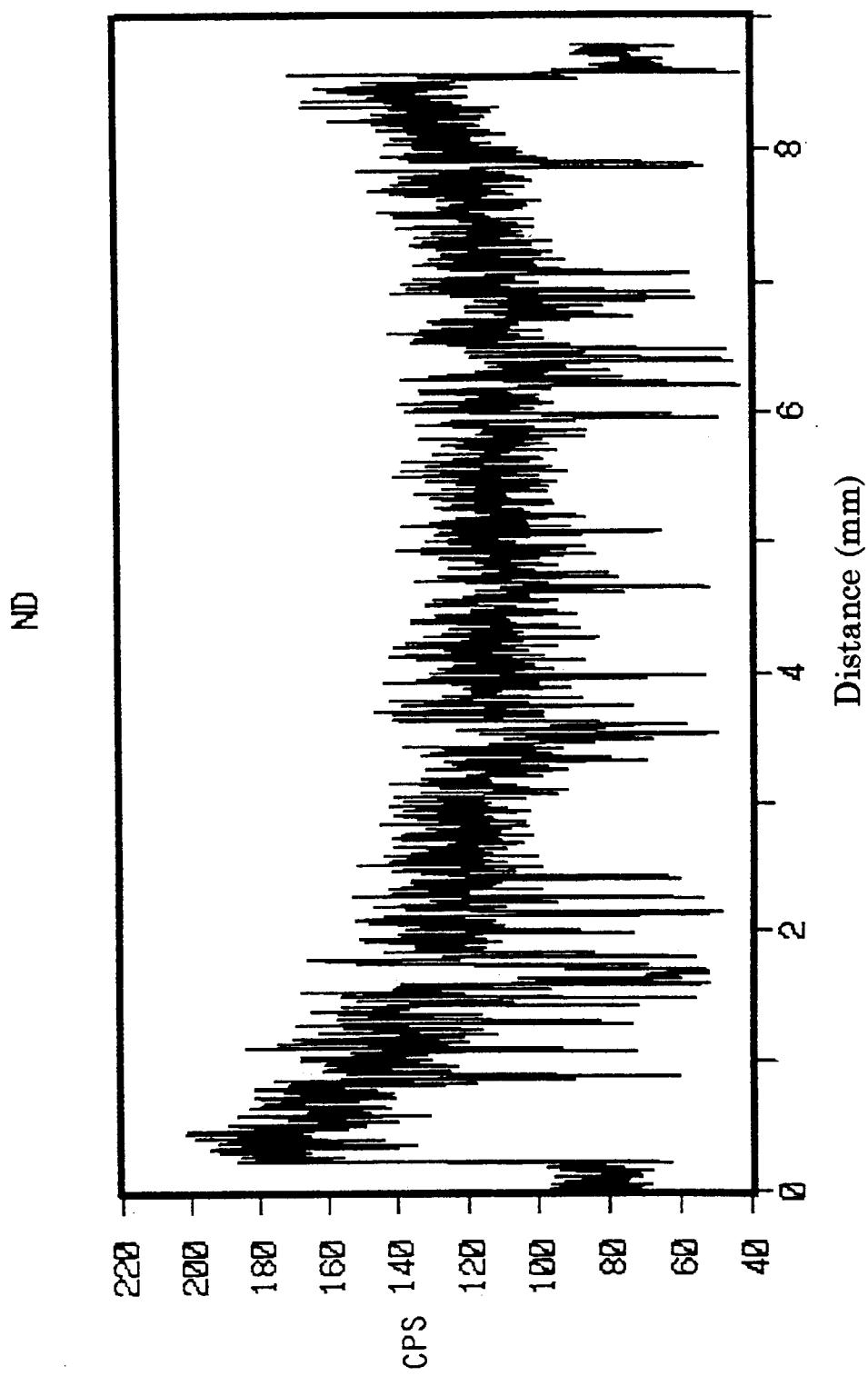


Fig.10 Radial profile of Nd ($L\alpha_1$) in irradiated mixed nitride fuel pellet

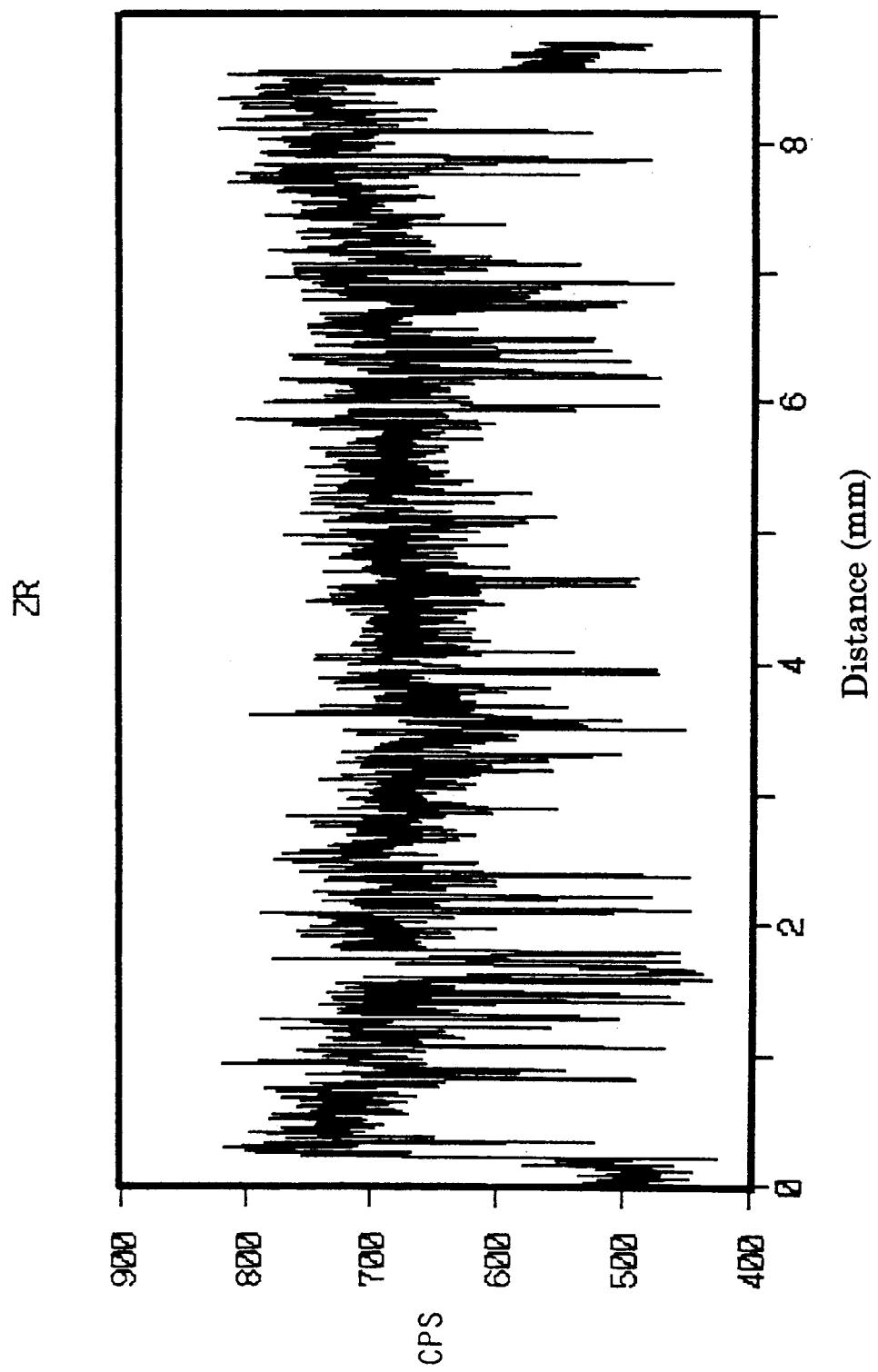


Fig.11 Radial profile of Zr ($L\alpha_1$) in irradiated mixed nitride fuel pellet

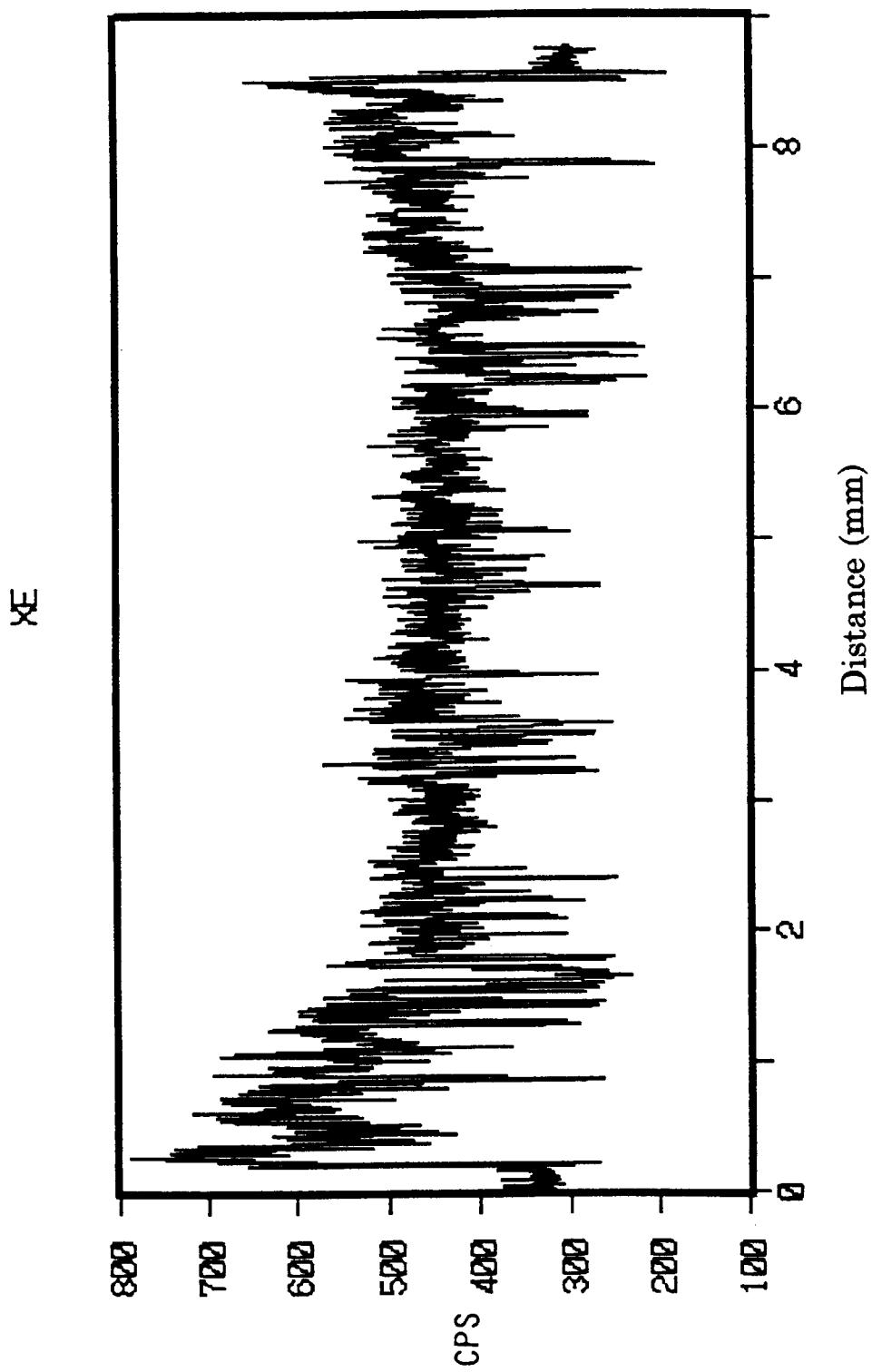


Fig.12 Radial profile of Xe ($L\alpha_1$) in irradiated mixed nitride fuel pellet

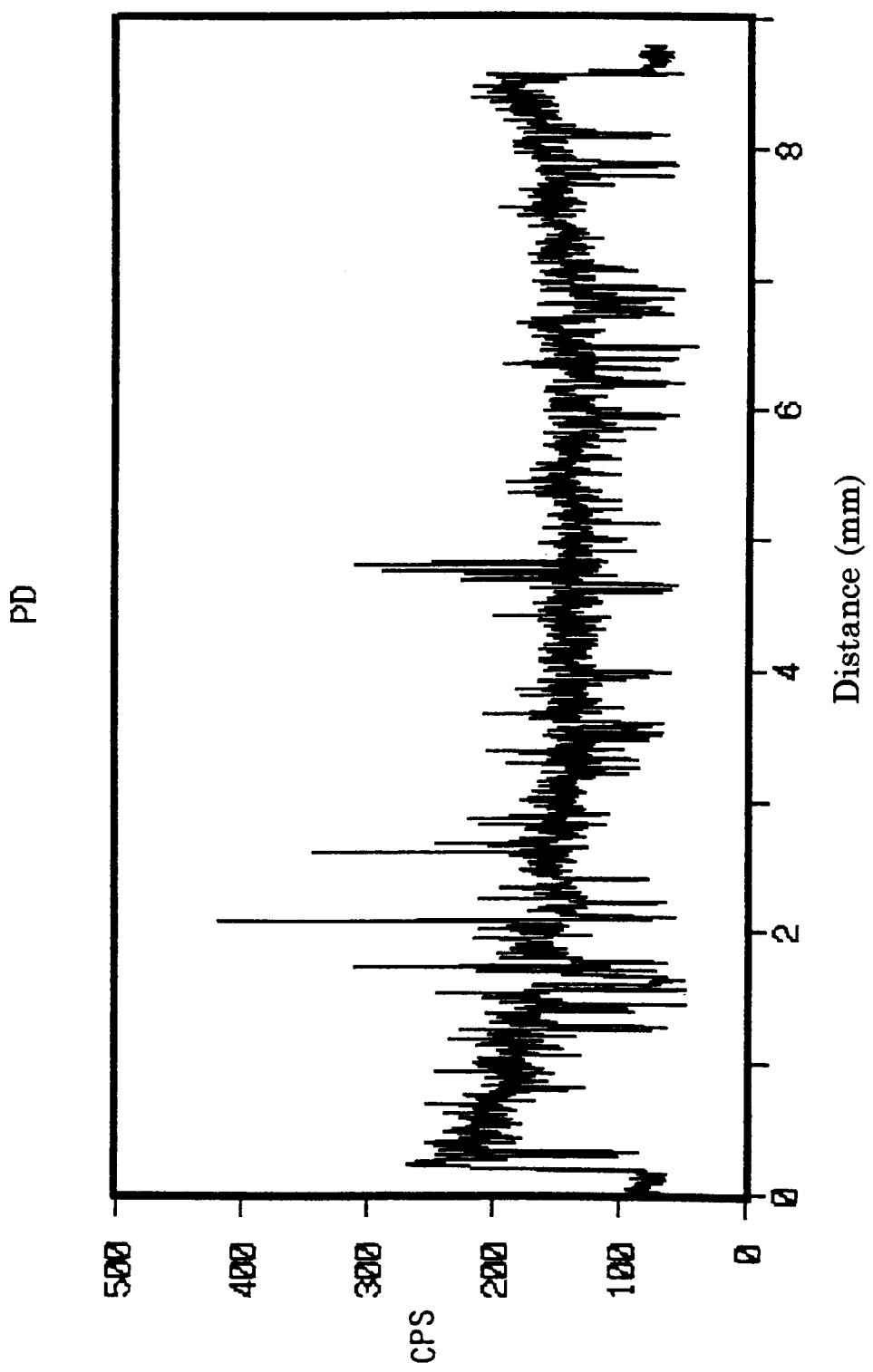


Fig.13 Radial profile of Pd (L_{α_1}) in irradiated mixed nitride fuel pellet

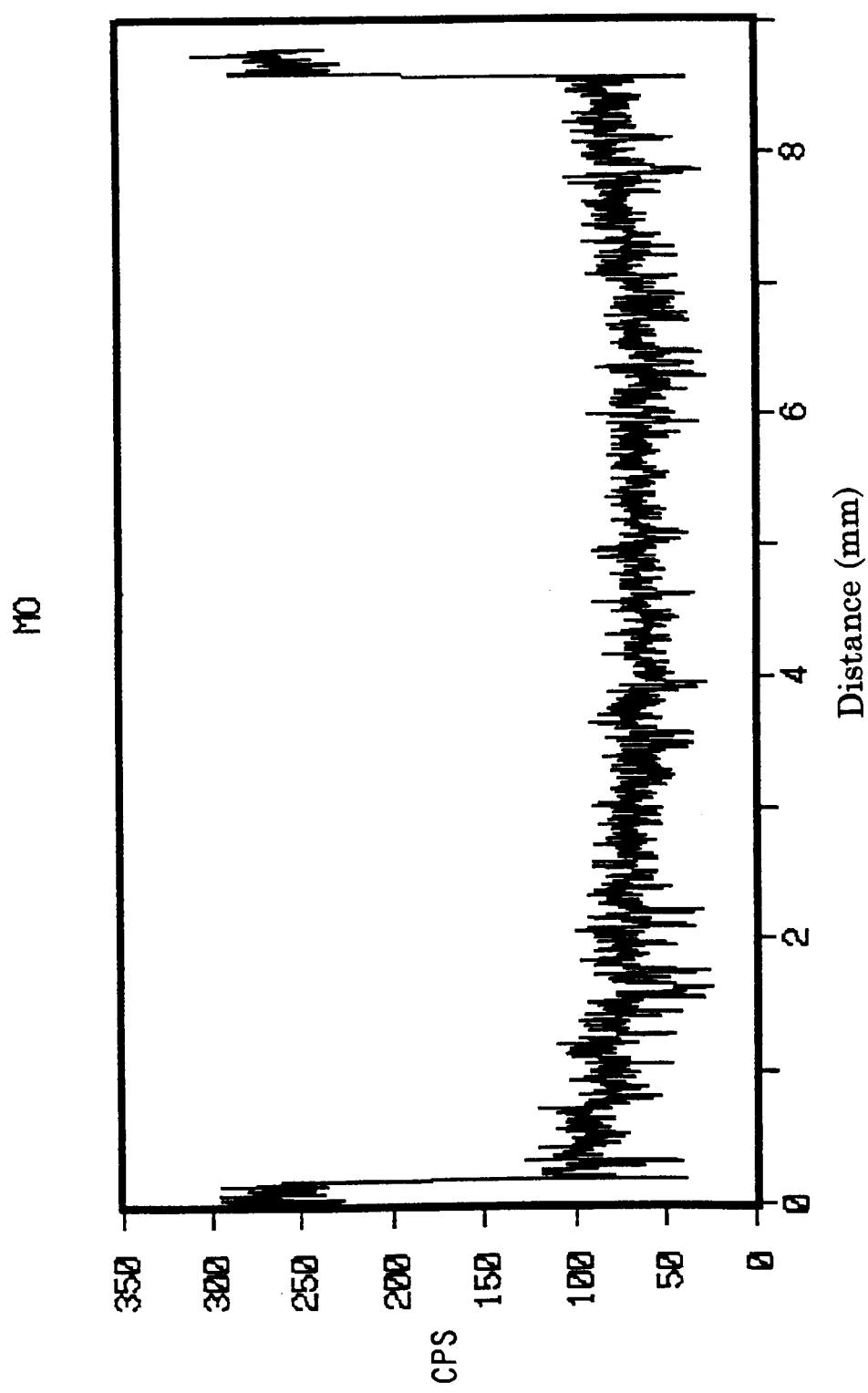


Fig.14 Radial profile of Mo ($L\alpha_1$) in irradiated mixed nitride fuel pellet

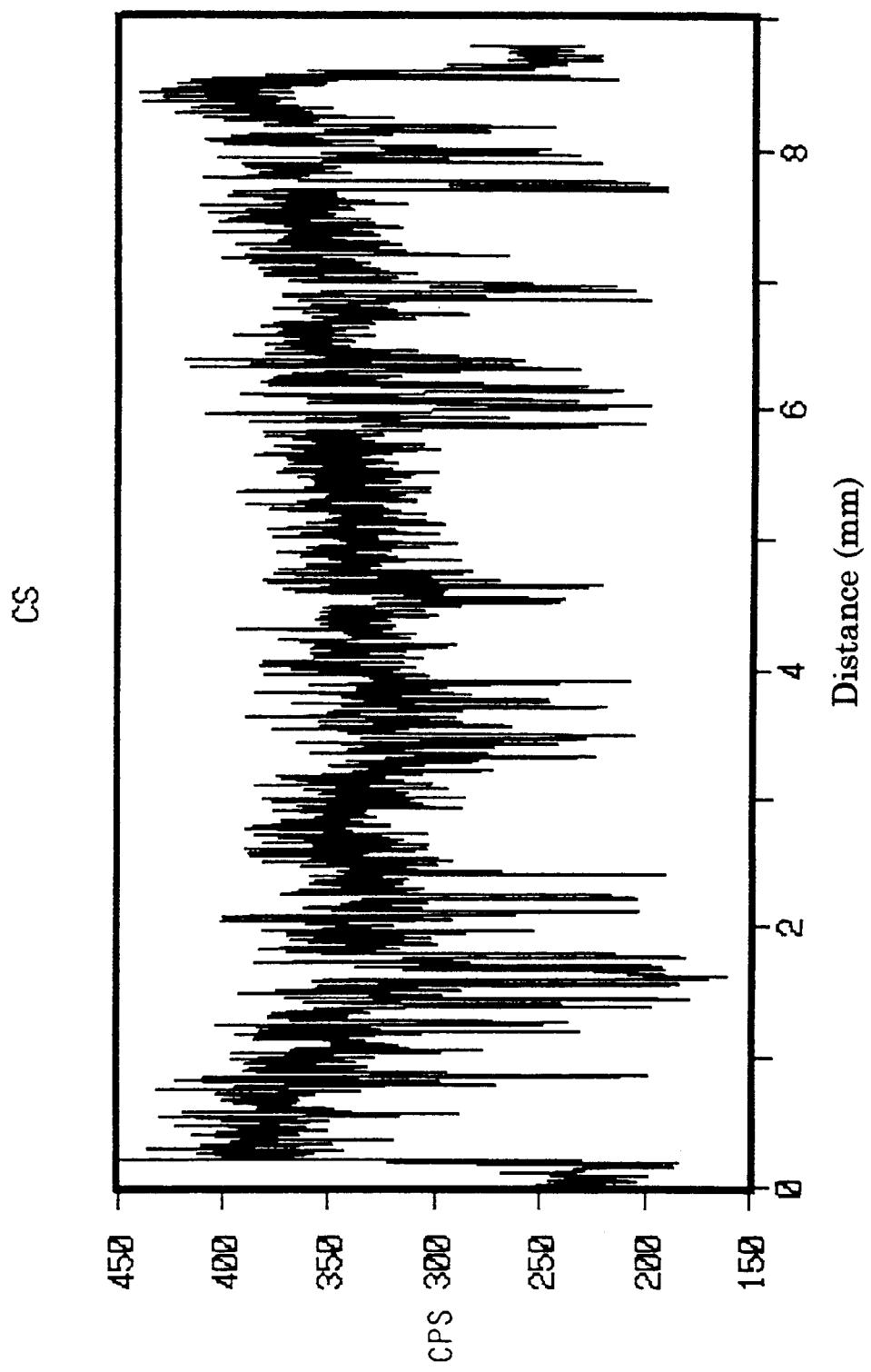


Fig.15 Radial profile of $\text{Cs}(\text{L}\alpha_1)$ in irradiated mixed nitride fuel pellet

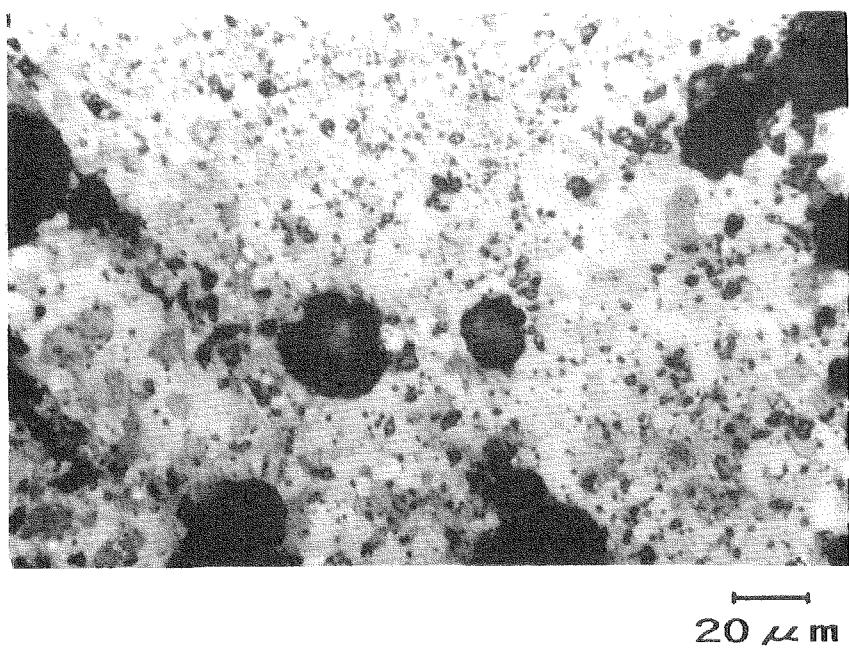


Photo.1 Microstructure of mixed nitride pellet before irradiation

reactor core

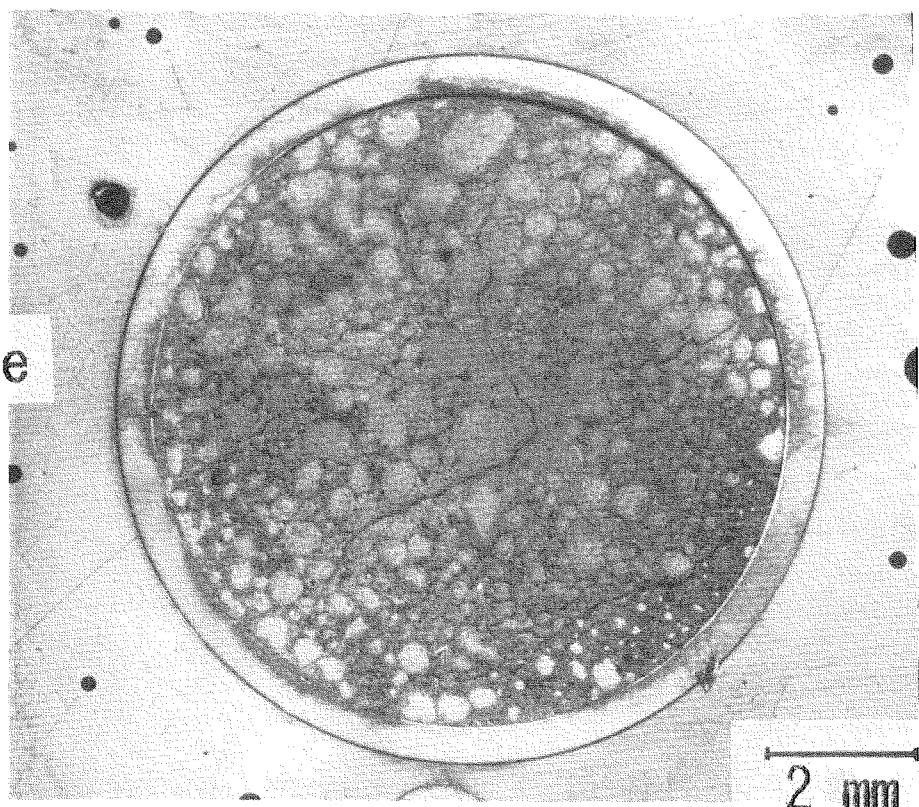


Photo.2 Cross-section of mixed nitride pellet used for EPMA

cladding

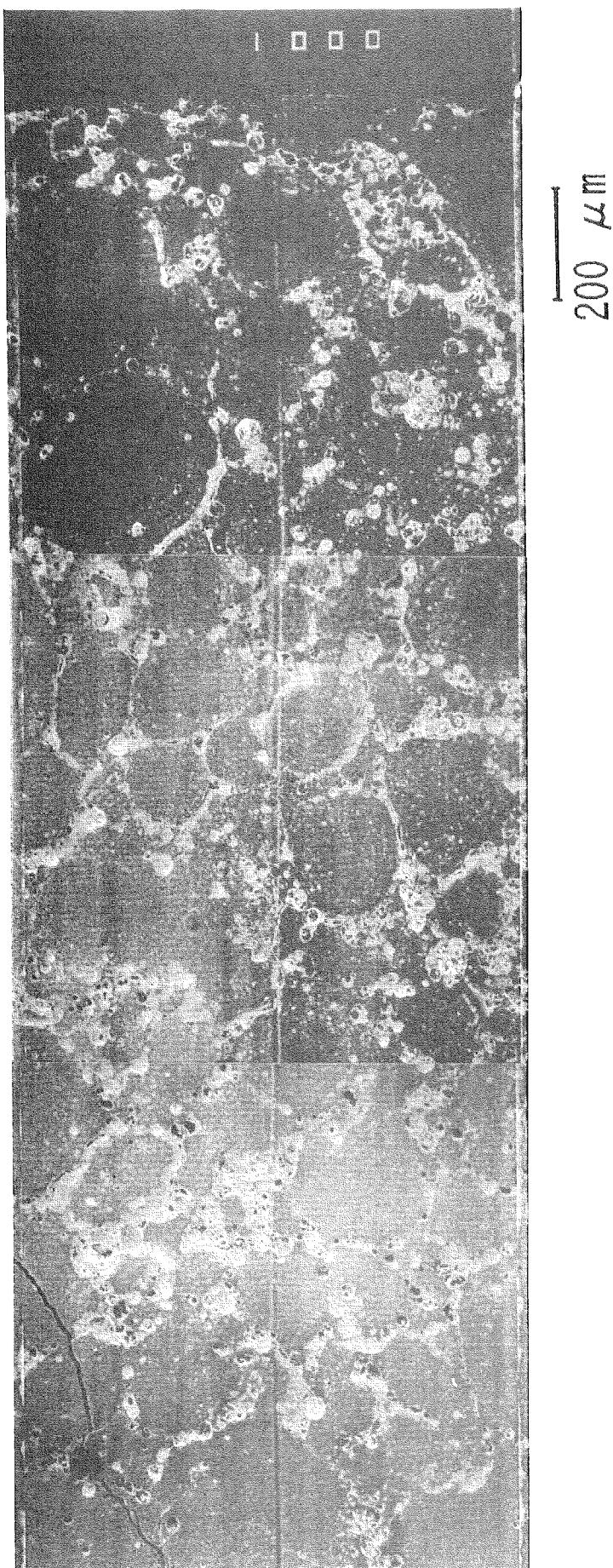


Photo.3 Radial scanning SE image of irradiated mixed nitride pellet

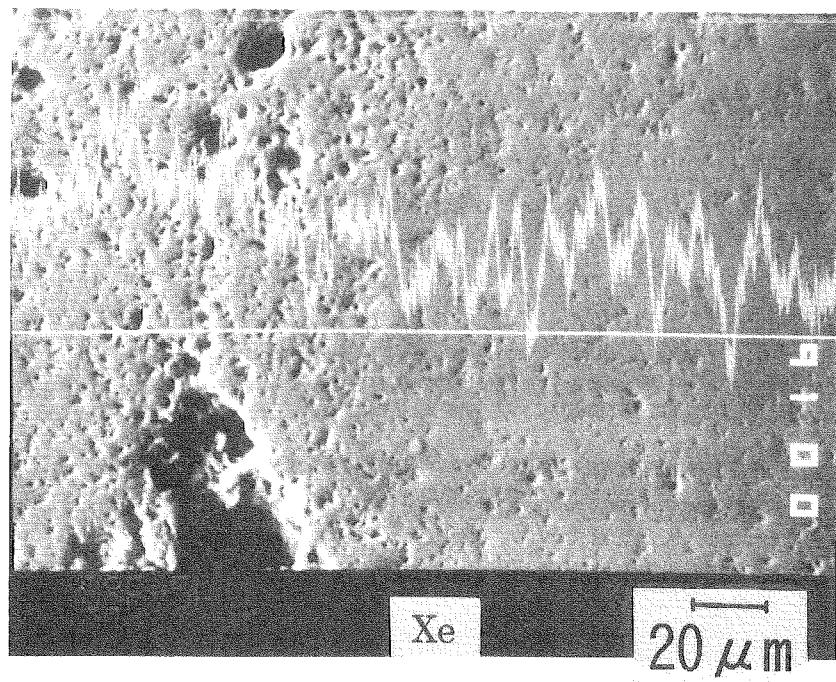


Photo.4 SE image and line scanning of X-ray for Xe ($L\alpha_1$)

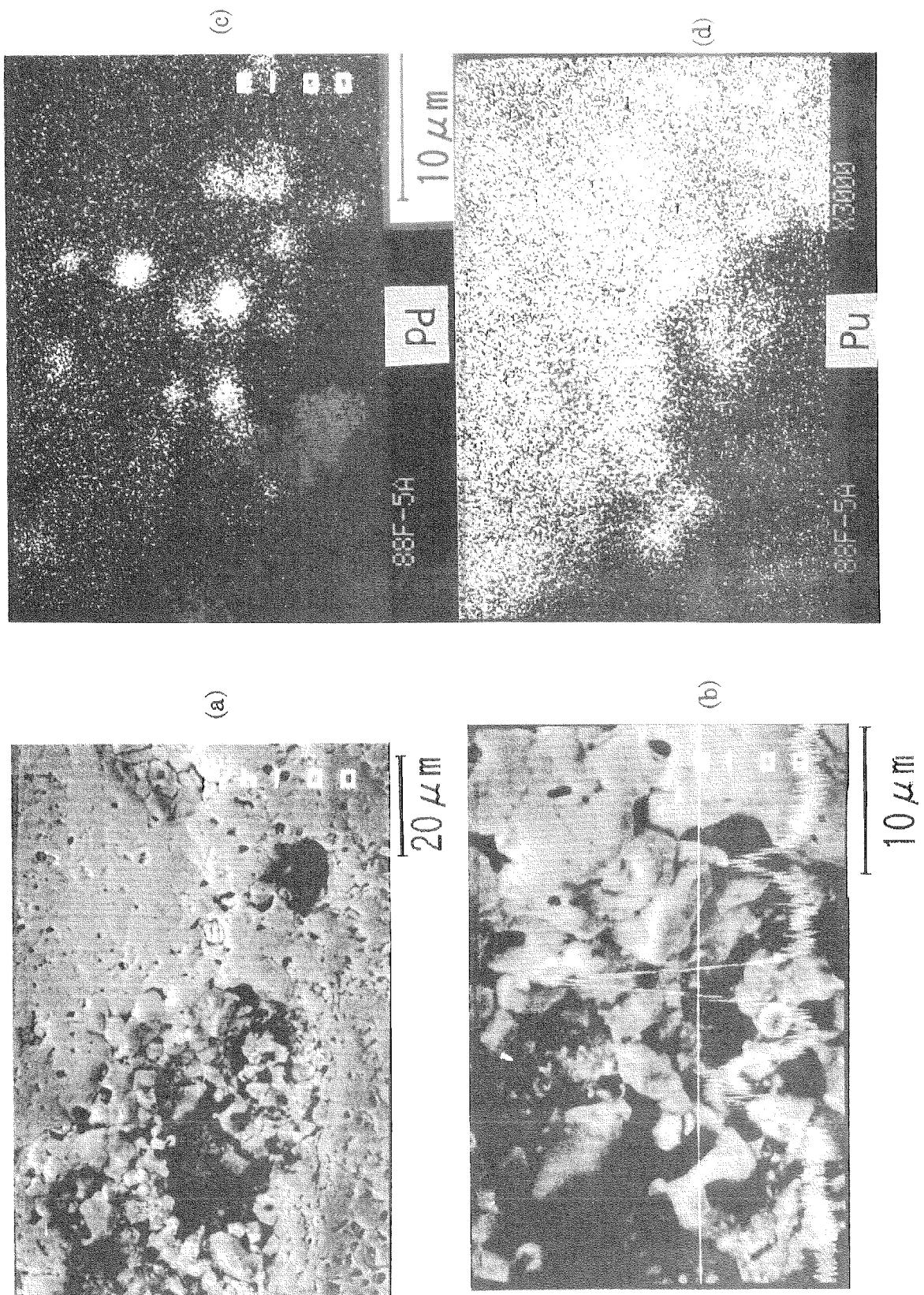


Photo.5 SE and X-ray images of mixed nitride pellet.

- (a) SE image around a pore
- (b) SE image and line scanning of X-ray for Pd (L_{α_1})
- (c) X-ray image of Pd (L_{α_1})
- (d) X-ray image of Pu (M_{β_1})

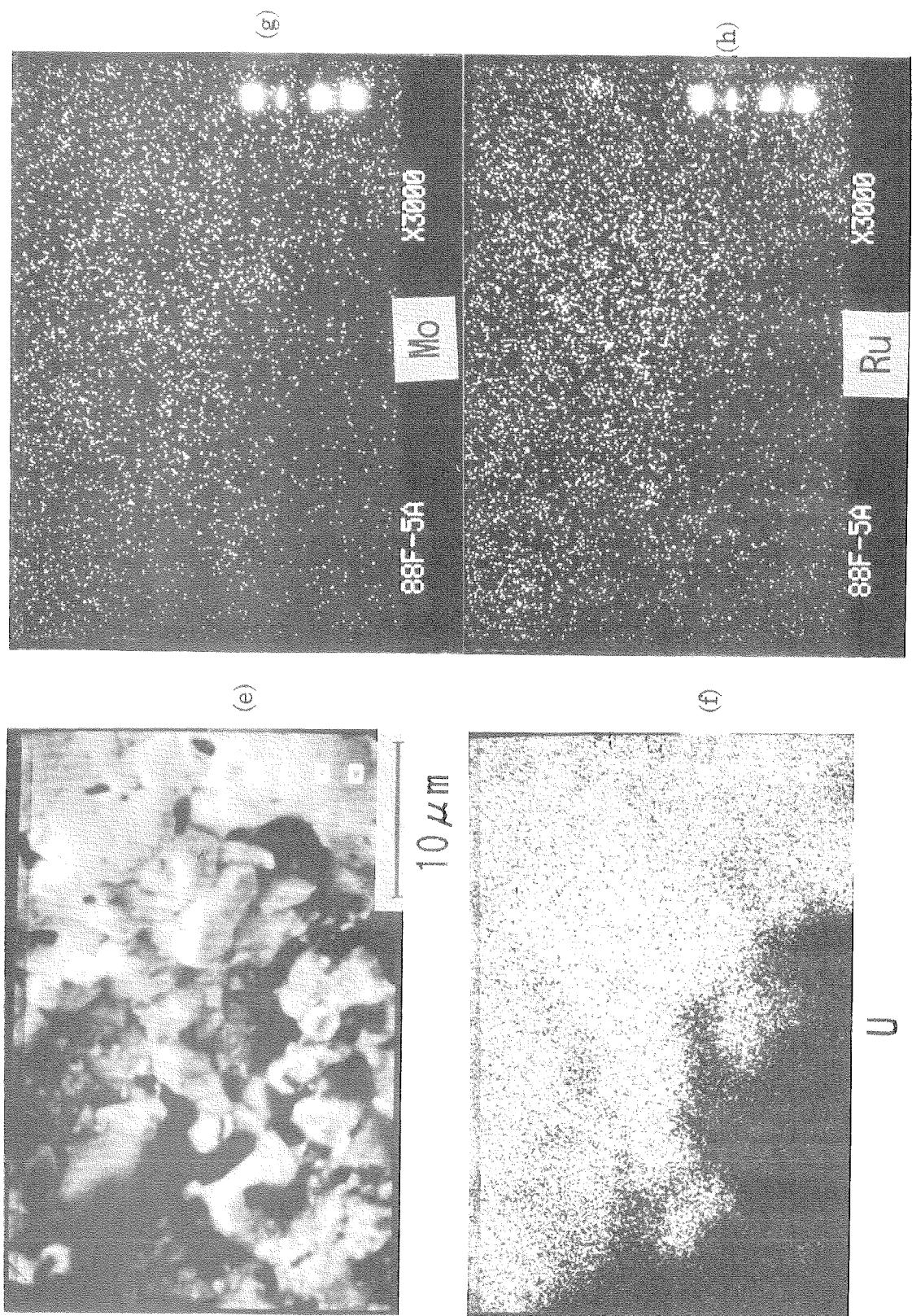
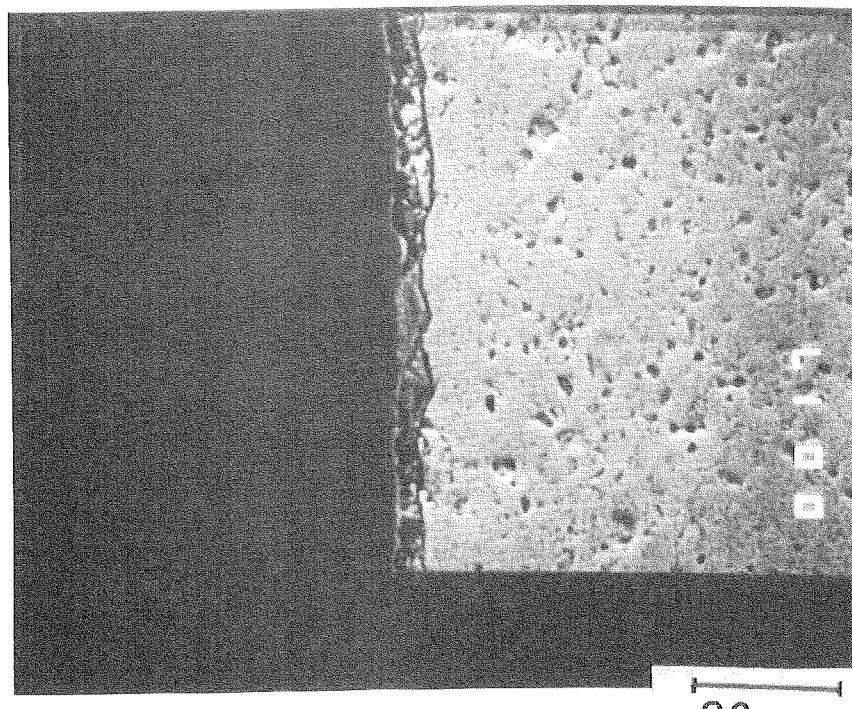


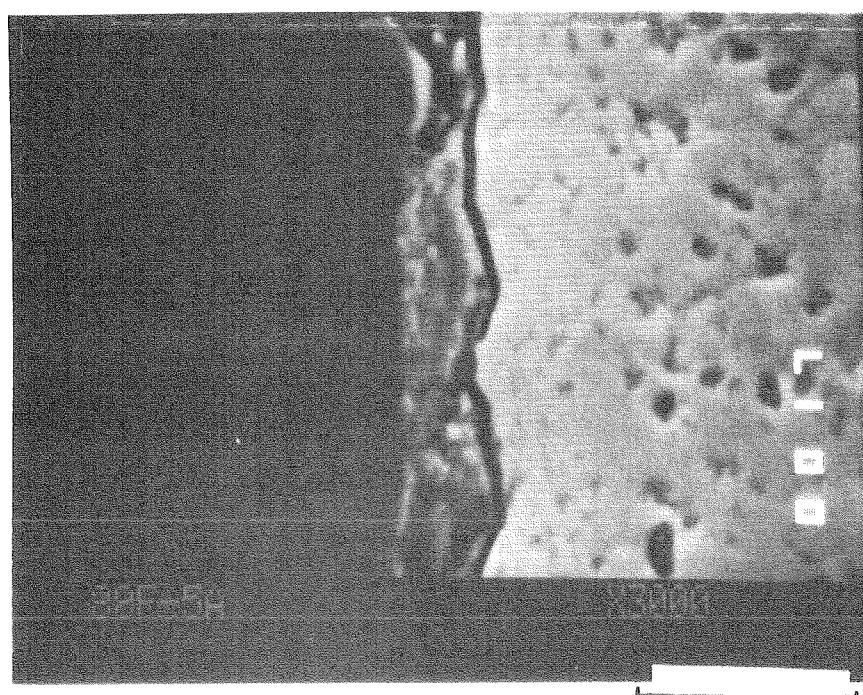
Photo.5 (continued)

- (e) SE image around a pore
- (f) X-ray image of U ($\text{L}\alpha_1$)
- (g) X-ray image of Mo ($\text{L}\alpha_1$)
- (h) X-ray image of Ru ($\text{L}\alpha_1$)

cladding fuel



(a)



(b)

Photo.6 SE images and line scanning at the boundary of fuel pellet and cladding
(a) (b) SE images

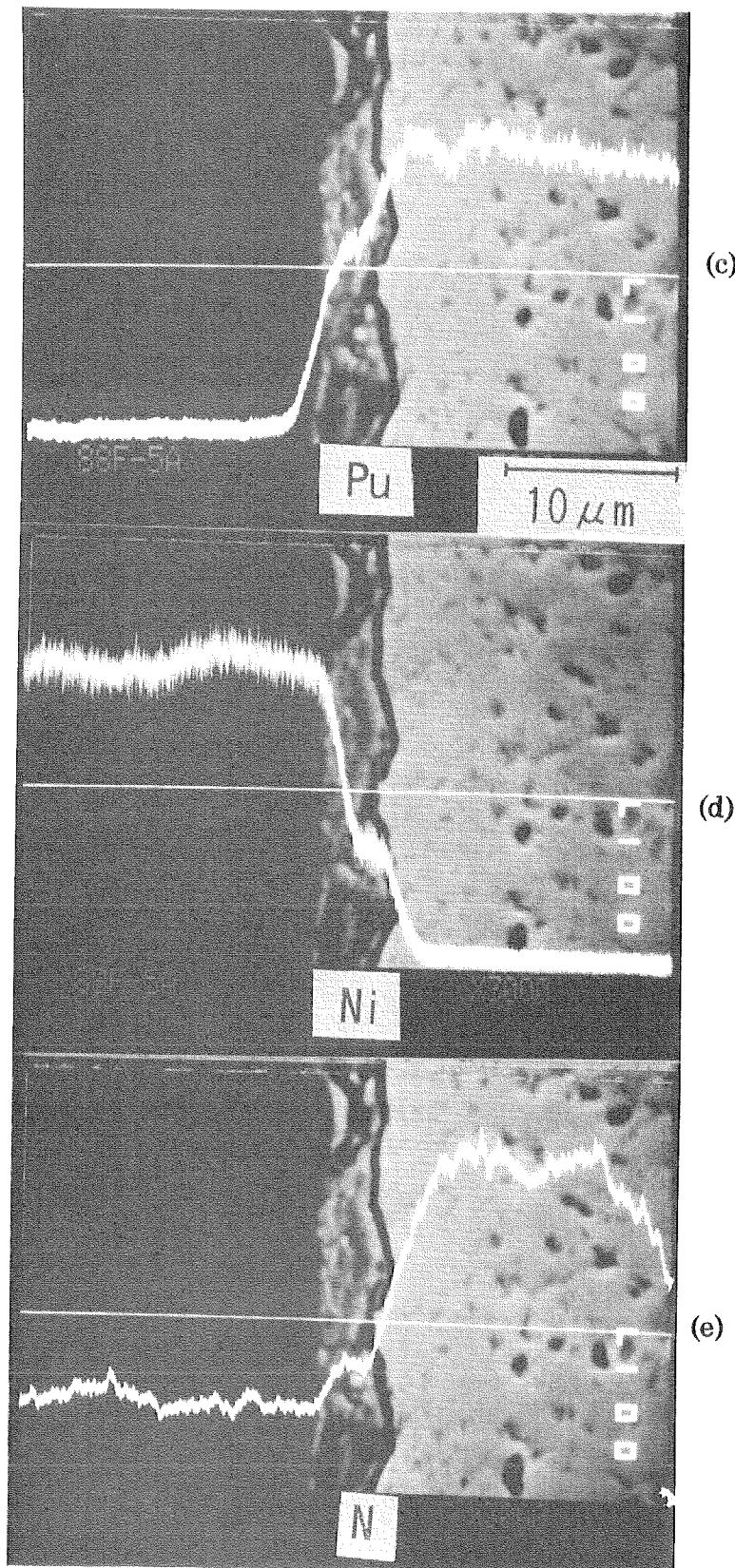


Photo.6 (continued)

- (c) line scanning of Pu ($M\beta_1$)
- (d) line scanning of Ni ($K\alpha_1$)
- (e) line scanning of N ($K\alpha_1$)

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名 称	記 号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名 称	記 号
オングストローム	Å
バーン	b
バール	bar
ガル	Gal
キュリ	Ci
レンントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換 算 表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s} (\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P} (\text{ポアズ}) (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St} (\text{ストークス}) (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
0.0980665	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
0.101325	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
1.33322×10^{-4}	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
6.89476×10^{-3}	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法) = 4.184 J (熱化学) = 4.1855 J (15 °C) = 4.1868 J (国際蒸気表)
	1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}	
9.80665	1	2.20462	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{19}	
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}		
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}	仕事率 1 PS (仏馬力)	
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}	= 735.499 W	
1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1		

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270×10^{-11}		1	1
3.7×10^{10}		1		0.01	1

照 射 線 量	C/kg	R	線 量 當 量	Sv	rem
	1	3876		1	100
	2.58×10^{-4}	1		0.01	1

(86年12月26日現在)

