

JAERI-Research

94-027



87F-2Aウラン・プルトニウム混合炭化物燃料
キャプセルの照射及び照射後試験

1994年11月

荒井康夫・岩井 孝・笹山龍雄・中島邦久
野村 勇・吉田武司・鈴木康文

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。

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

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

87F-2Aウラン・プルトニウム混合炭化物燃料
キャプセルの照射及び照射後試験

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部

荒井 康夫・岩井 孝・笹山 龍雄・中島 邦久

野村 勇⁺・吉田 武司⁺・鈴木 康文

(1994年10月3日受理)

超化学量論的組成のウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ペレットを充填した太径燃料ピン（外径9.4mm、長さ390mm）を87F-2Aキャプセルに組み込み、JMTRにおいて平均線出力60kW/mの条件で4.4%FIMAまで照射した。約4ヶ月間冷却したのち、照射キャプセルを東海研の燃料試験施設へ搬入して、計34項目の非破壊及び破壊試験を実施した。

照射後の燃料ピンに有害な欠陥は無く健全であった。燃料ピンの断面写真からは、当初存在していた燃料ペレットと被覆管の間のギャップが閉塞していることが確認された。熱安定型燃料ペレットの採用に起因して、従来の燃料に比較して極めて低い開気孔率とFPガス放出率、緩やかな組織変化等が観測された。最大で~0.06mmの被覆管の外径増加が観測されたが、燃料ピンの照射健全性に影響するものではなかった。また、被覆管内面の浸炭現象もみとめられなかった。

Post Irradiation Examinations of 87F-2A Capsule
Containing Uranium-plutonium Mixed Carbide Fuels

Yasuo ARAI, Takashi IWAI, Tatsuo SASAYAMA, Kunihisa NAKAJIMA
Isamu NOMURA⁺, Takeshi YOSHIDA⁺ and Yasufumi SUZUKI

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

(Received October 3, 1994)

One fuel pin filled with hyperstoichiometric uranium-plutonium mixed carbide pellets was encapsulated in 87F-2A and irradiated in JMTR up to 4.4 %FIMA at an average linear power of 60 kW/m. The capsule cooled for ~4 months was transported to Reactor Fuel Examination Facility and subjected to non-destructive and destructive post irradiation examinations.

It was found from the radial cross section of fuel pin that the helium gap between the pellets and the cladding tube was completely closed. Compared with the results obtained so far, very low open porosity and fission gas release rate as well as mild restructuring was observed owing to the adoption of thermally stable pellets.

The diametric increase of fuel pin reached ~0.06mm at the position of maximum reading, although it might not affect the fuel performance itself. The inner surface of cladding tube did not show signs of carburization.

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

⁺ Department of Hot Laboratories

目 次

1. まえがき	1
2. 照射用燃料ピン及びキャプセルの設計並びに製作	2
2.1 混合炭化物燃料ピン	2
2.2 87F-2Aキャプセル	2
3. JMTRによる照射	9
4. 照射後試験	11
4.1 照射後試験の概要	11
4.2 照射後試験の方法、結果並びに考察	11
5. まとめ	64
参考文献	66

Contents

1. Introduction	1
2. Design and Fabrication of Fuel Pin and Capsule	2
2.1 Mixed Carbide Fuel Pin	2
2.2 87F-2A Capsule	2
3. Irradiation in JMTR	9
4. Post Irradiation Examinations	11
4.1 Scheme of Post Irradiation Examinations	11
4.2 Methods, Results and Discussion	11
5. Summary	64
References	66

1. ま え が き

原研における、ウラン・プルトニウム混合炭化物（以下、混合炭化物と略す）燃料の照射試験は、高速炉用新型燃料の燃料挙動把握並びに健全性評価を目的として、昭和58年以降継続的に実施されてきている。これまでに、JRR-2及びJMTRを利用して5体のキャプセル、計9本の燃料ピンの照射を完了した。このうち、JRR-2で照射した2体のキャプセル（ICF-37H及びICF-47Hキャプセル）に組み込んだ4本の燃料ピン及びJMTRで照射した2体のキャプセル（84F-10A及び84F-12Aキャプセル）に組み込んだ4本の燃料ピンの照射後試験の結果については先に報告し、その照射挙動について検討を加えている¹⁻⁴⁾。

本報告書は、昭和63年10月から平成4年2月にかけて、JMTRで17サイクル、平均線出力60kW/mの条件の下で燃焼度4.4%FIMAまでキャプセル照射した混合炭化物燃料ピンの照射後試験の結果をまとめたものである。ただし、燃料ペレットのX線微小分析（EPMA）の結果については別に報告する予定である。今回照射した87F-2Aキャプセルは、従来のキャプセルとは異なり超化学量論的組成の燃料ペレットを充填した燃料ピン1本のみを格納している。それに伴い、燃料ピンの全長を従来の200mmの約2倍の390mmとした。また、燃料ペレットには従来通り理論密度86%の低密度ペレットを用いたが、その実現にあたっては高密度のマトリクス中に比較的大きな気孔を分散させた熱安定型方式を初めて採用した。なお、原研所内炉を利用した混合炭化物燃料の照射試験は今回のキャプセルを以て終了する予定である。当燃料ピンの特性その他については、既にその製作に関する報告書があるので、詳細に関しては参照して頂きたい⁵⁾。

2. 照射用燃料ピン及びキャプセルの設計並びに製作

2.1 混合炭化物燃料ピン

照射した燃料ピンの構成、寸法等はFig. 2.1に示すとおりである。燃料ピンの外径は、炭化物燃料の良好な熱伝導特性を生かすために9.4mmの太径を採用し、その全長は390mmである。以降、当燃料ピンを87F-02と呼称することとする。Table 2.1には87F-02燃料ピンの諸特性をまとめて示した。化学分析から求めた燃料ペレット中のC/(U+Pu)原子比は1.07、炭化物格子中への酸素の固溶を考慮した C_{eq} /(U+Pu)原子比は1.14、Pu/(U+Pu)原子比は0.196であり、超化学量論的組成を有している。燃料ペレットの密度は、照射下の燃料-被覆管機械的相互作用(FCMI)の緩和を目的として、86%T.D. (T.D.; 理論密度)と低密度を採用した。低密度ペレットの製造にあたっては、照射下の組織安定性を考慮して、従来の焼結条件を制御する方式に変え、高密度のマトリクス中に10~100 μm と比較的大きな気孔を分散させた、いわゆる熱安定型方式を採用した。直径が8.23mmの燃料ペレットと被覆管の間隙は直径で0.15mmとし、ボンディング材として1気圧のHeガスが充填されている。その結果、当燃料ピンのスミア密度は83%T.D.に相当する。混合炭化物燃料のスタック長は200mmであり、この両端に高さ8mmのUCペレットが断熱用に配置されている。被覆管には米国FFTFの第IV次炉心に採用された、外径9.4mm、肉厚0.51mmの316相当のステンレス鋼管を用いている。また、スプリングはインコネル合金製である。

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

2.2 87F-2Aキャプセル

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

87F-2Aキャプセルの断面図をFig. 2.2に示す。基本的には、燃料ピンが1本であることを除いて、これまでJRR-2及びJMTRで照射したキャプセルと同じ構造である。被覆管と304ステンレス鋼管内筒の間には、熱媒体としてNaK合金が充填されている。また、外筒も304ステンレス鋼製であり、内外筒間の熱媒体にはアルミニウム合金が用いられている。

87F-2Aキャプセルの組立図をFig. 2.3に示す。316ステンレス鋼シースのクロメル-アルメル熱電対10本のうち5本はNaK中に、残り5本はアルミニウム合金熱媒体中にそれぞれ挿入されている。また、熱及び速中性子用の中性子束モニタが、燃料ピンの燃料スタック中心位置及び両端の断熱ペレットの位置近くに組み込まれている。Fig. 2.3には、それらの位置関係も記載されている。

87F-2Aキャプセルの構成部品及び完成したキャプセルの本体部をPhoto. 2.3に示す。

Table 2.1 Characteristics of 87F-02 fuel pin

Fuel pin		87F-02
Pin length	(mm)	389.7
Mixed carbide fuel length	(mm)	200.1
Outer diameter	(mm)	9.39
Weight	(g)	200.0
Fuel pellet		
Material		(U,Pu)C
C/(U+Pu) ratio		1.07
C _{eq} /(U+Pu) ratio		1.14
Pu/(U+Pu) ratio		0.196
Pellet diameter	(mm)	8.23
Pellet density	(%T.D.)	86
Smear density	(%T.D.)	83
Cladding tube		
Clad material		20%CW SUS316
Clad thickness	(mm)	0.51
Pellet-clad diameter gap	(mm)	0.15
Bonding material		Helium

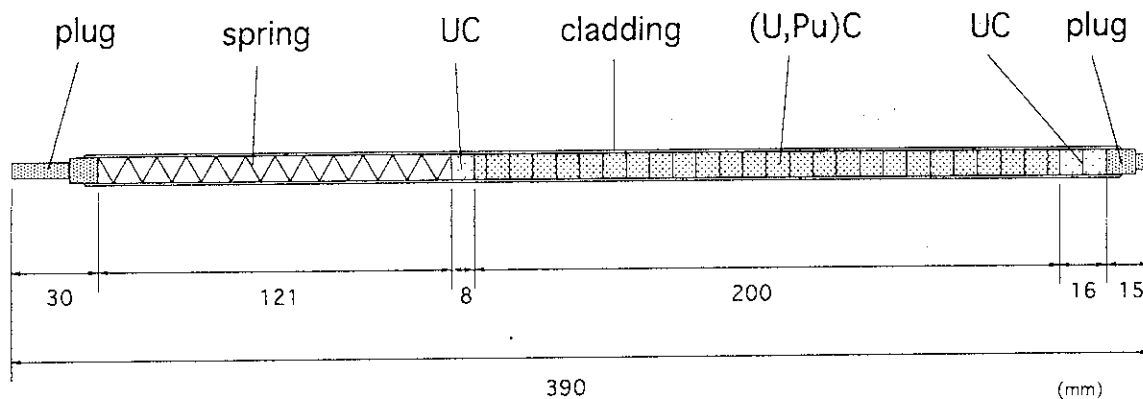


Fig. 2.1 Structure of mixed carbide fuel pin

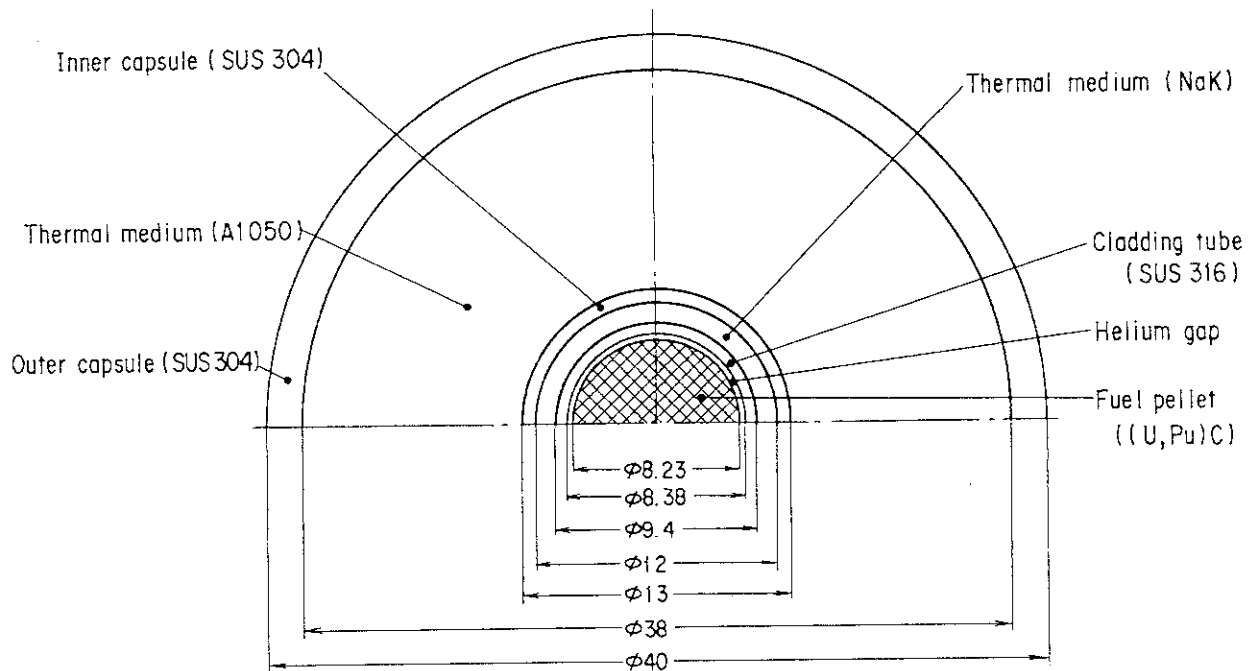


Fig. 2.2 Cross section of 87F-2A capsule

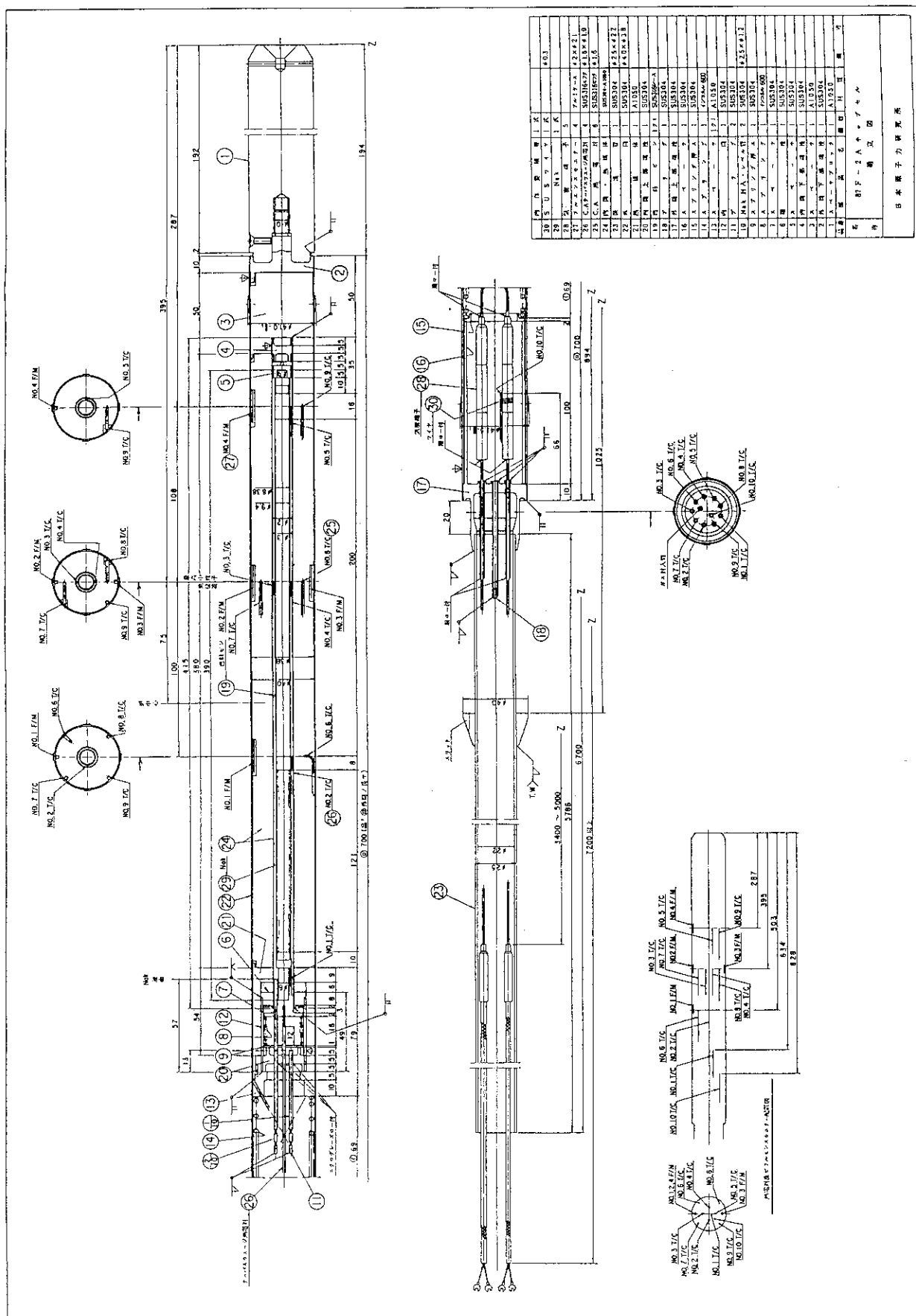


Fig. 2.3 Structure of 87F-2A capsule

図	名	部	材	寸	規	備	注		
20	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
21	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
22	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
23	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
24	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
25	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
26	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
27	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
28	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
29	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
30	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
31	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
32	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
33	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
34	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
35	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
36	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
37	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
38	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
39	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
40	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
41	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
42	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
43	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
44	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
45	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
46	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
47	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
48	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
49	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
50	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
51	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
52	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
53	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
54	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
55	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
56	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
57	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
58	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
59	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
60	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
61	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
62	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
63	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
64	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
65	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
66	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
67	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
68	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
69	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
70	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
71	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
72	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
73	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
74	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
75	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
76	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
77	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
78	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
79	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
80	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
81	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
82	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
83	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
84	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
85	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
86	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
87	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
88	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
89	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
90	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
91	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
92	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
93	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
94	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
95	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
96	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
97	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
98	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
99	S	U	S	9	1	Y	1	K	603
100	S	U	S	9	1	Y	1	K	603

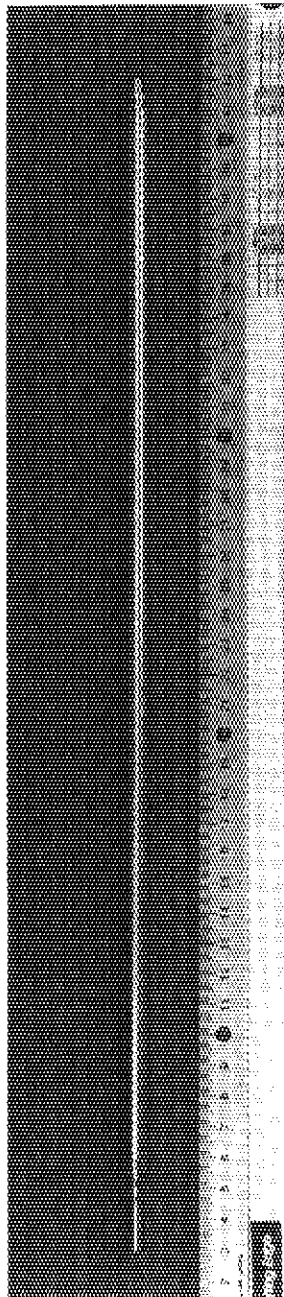
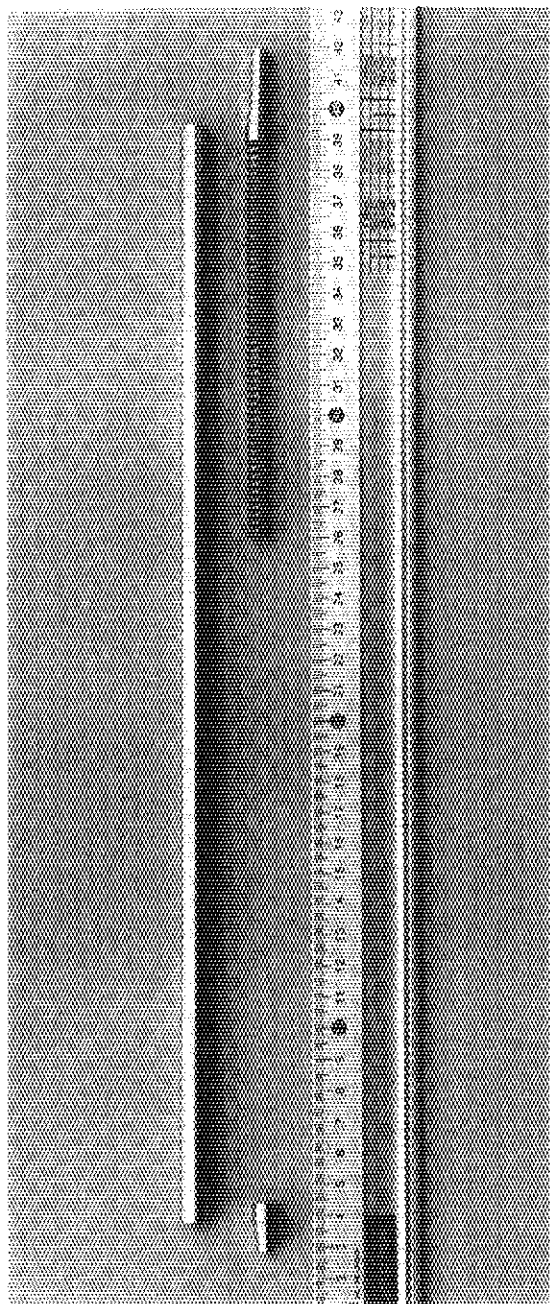


Photo. 2.1 External view of mixed carbide fuel pin before irradiation

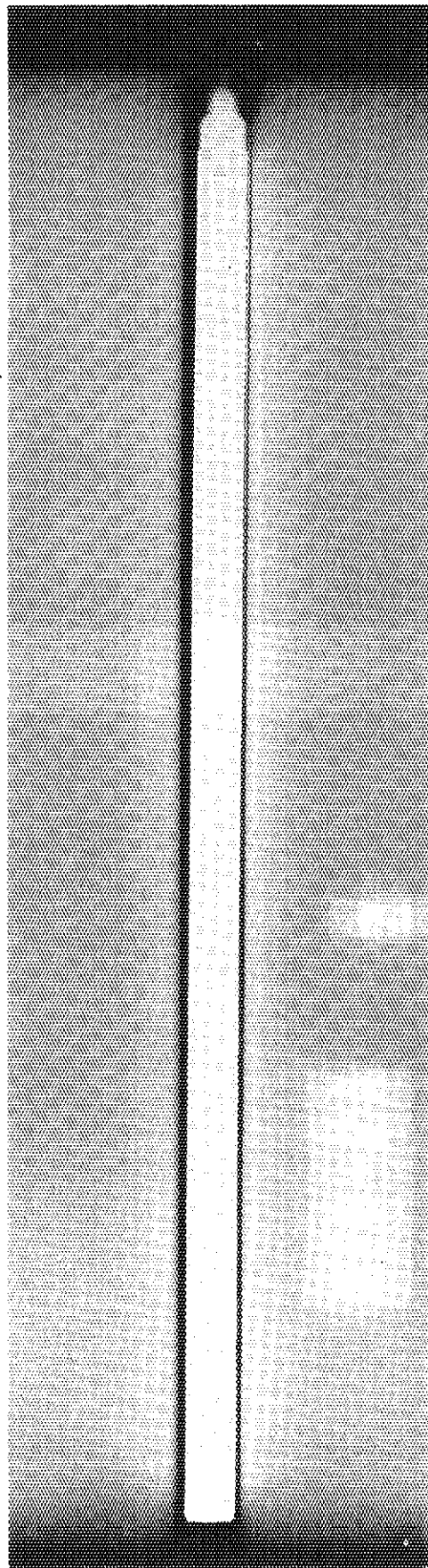
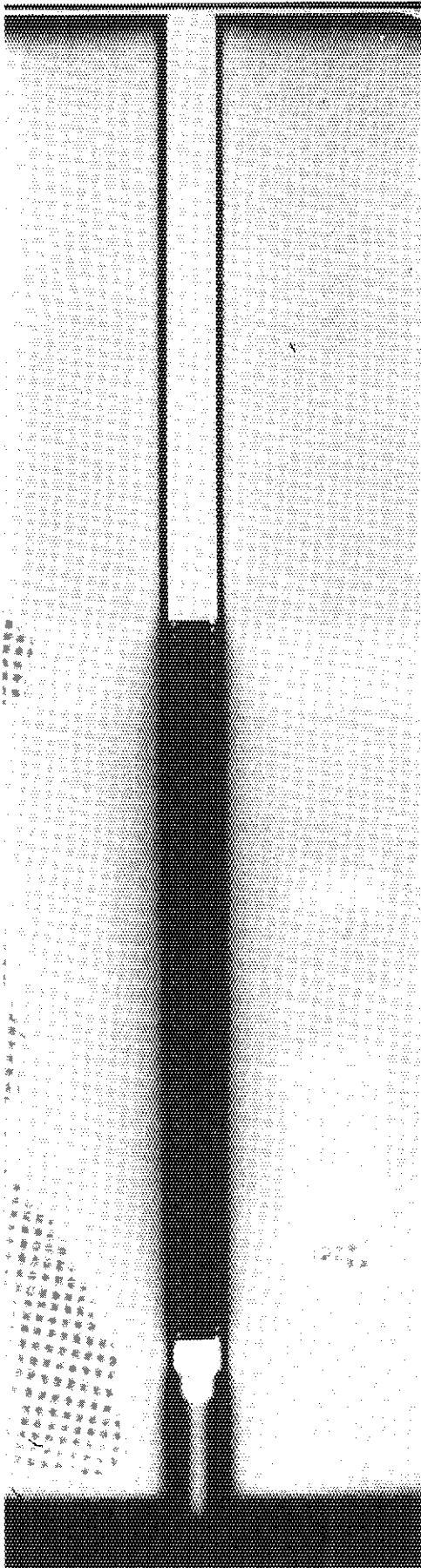


Photo. 2.2 X-ray radiograph of mixed carbide fuel pin before irradiation

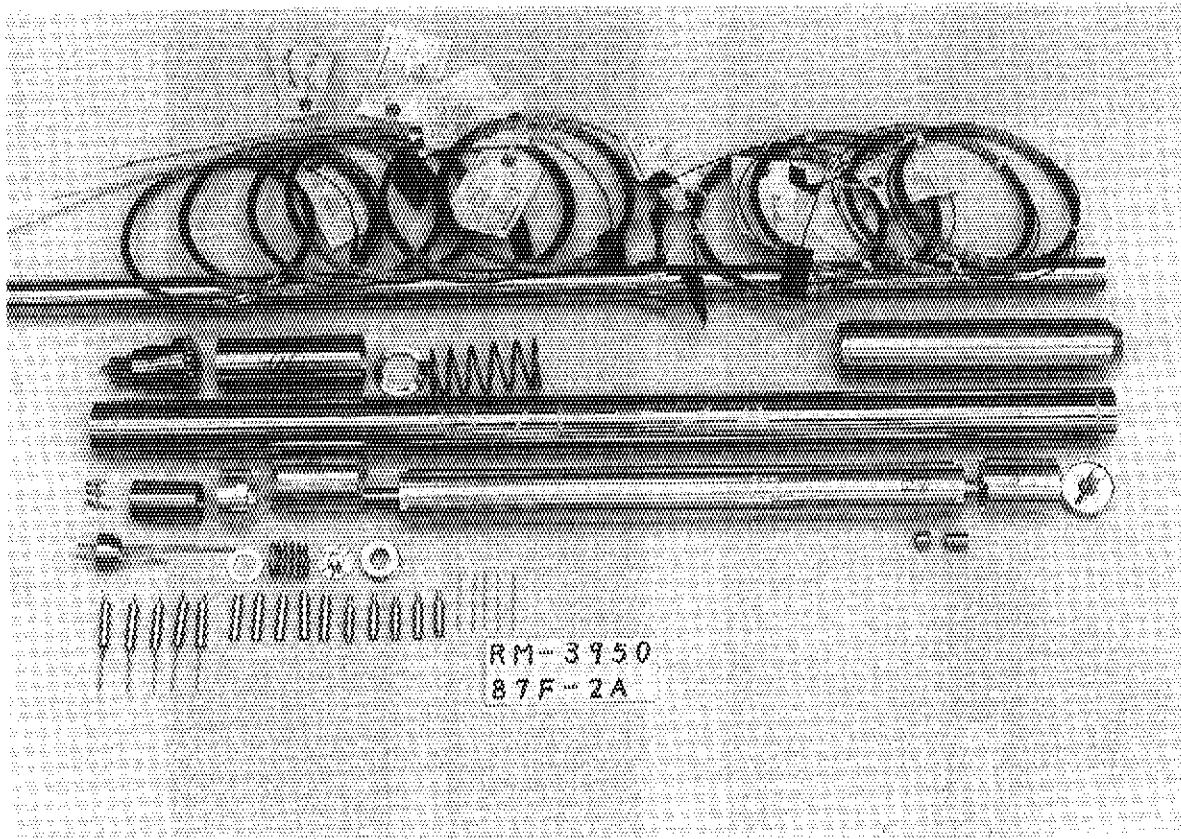
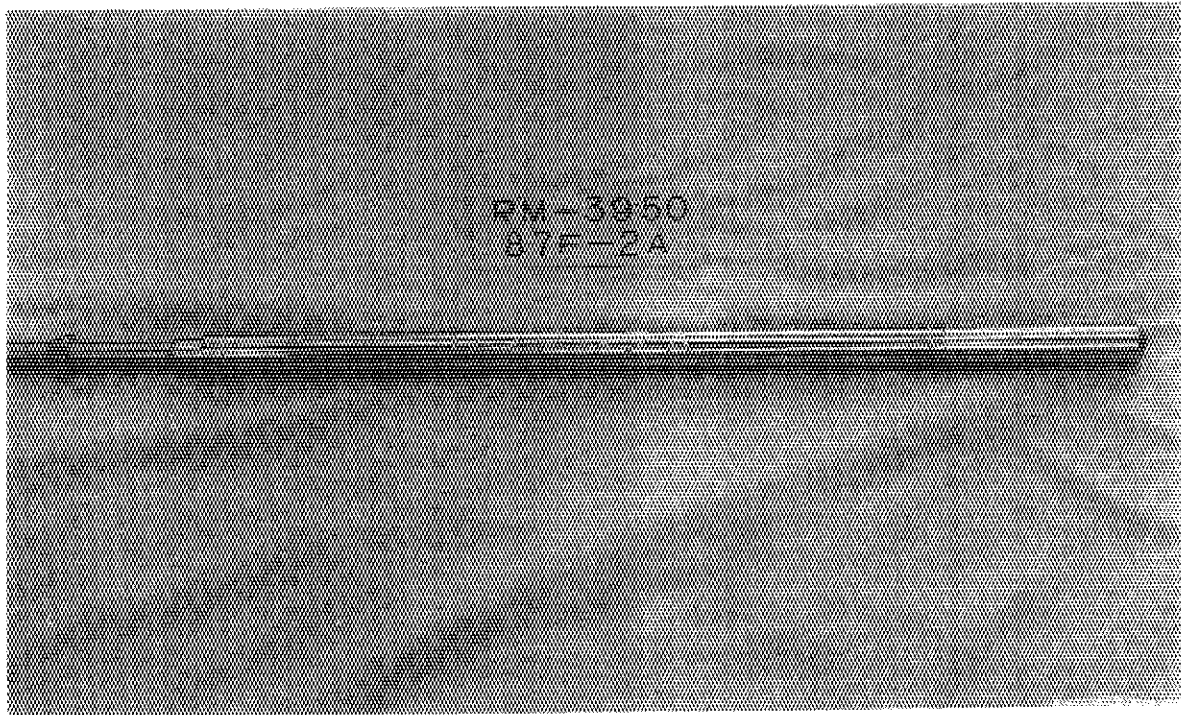


Photo. 2.3 External view of 87F-2A capsule before irradiation

3. JMTRによる照射

87F-2Aキャプセルは、昭和63年10月12日から平成4年2月9日まで、JMTRの炉心外照射孔「0-9」で17サイクル（延べ8,924時間）照射された。その照射履歴をTable 3.1に示す。

計装された10本の熱電対のうち、燃料スタック中心近くのNaK中に挿入した熱電対（T/C No.3及びT/C No.4）及び内外筒間の熱媒体中に挿入した熱電対（T/C No.7及びT/C No.8）の温度指示記録をTable 3.2に示す。No.3とNo.4及びNo.7とNo.8の指示値の差は、主に原子炉の炉心方向との関係に起因するものと考えられる。すなわち、燃料の炉心側は反対側に比べて入射する中性子束が高く、従って核分裂密度も高く発熱量が多いからである。照射初期と照射末期での温度指示の比較では、有意な温度差は見られなかった。

線出力及び到達燃焼度は核計算をベースにしたJMTRの「燃料試料推定発熱量」の表から計算した。それによると17サイクル平均のピーク線出力は64kW/m、燃料ピン軸方向最大係数で除した平均線出力は60kW/mとなる。これらから燃焼度を計算すると、ピーク値で4.67%FIMA(40,200MWd/t)、平均では4.38%FIMA(37,700MWd/t)に到達する。また、GENGTCコードによるキャプセル内の半径方向温度分布からは、燃料ペレット中心温度はBOLで約1240°Cと評価された。なお、後述するように、燃焼度についてはより正確な値を実験的に求めることを目的として、照射済のペレットから微量試料を採取（マイクロサンプリング）することとした。

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

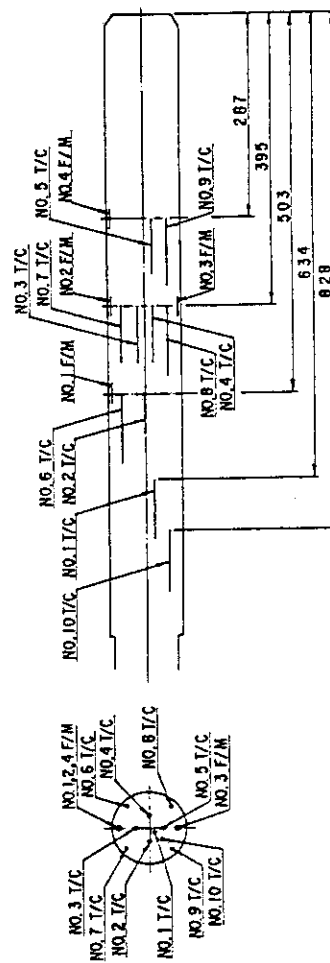
Table 3.1 Irradiation history of 87F-2A capsule in JMTR

	Irradiation cycle	Irradiation time (hr)
83 cycle	1988.10.12~1988.11.6	473
84 cycle	11.29~12.24	527
85 cycle	1989.2.1~1989.2.26	524
86 cycle	3.22~4.16	532
87 cycle	6.6~7.1	504
88 cycle	11.24~12.19	530
89 cycle	1990.1.25~1990.2.21	533
90 cycle	3.17~3.28	532
91 cycle	5.9~6.3	525
92 cycle	10.5~10.30	523
93 cycle	11.22~12.17	531
94 cycle	1991.1.19~1991.2.13	528
95 cycle	3.8~4.2	532
96 cycle	5.10~6.4	533
97 cycle	9.20~10.15	534
98 cycle	11.9~12.4	531
99 cycle	1992.1.15~1992.2.9	532

Total irradiation time: 8924 hrs

Table 3.2 Temperature records of 87F-2A capsule under irradiation

Cycle	83	84	85	86	87	88	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99
No.3 T/C	max.(°C)	311	296	287	314	311	314	307	284	283	305	284	282	281	281	286	333
	min.(°C)	294	279	273	294	285	295	291	272	274	287	272	275	270	272	273	298
	ave.(°C)	301	288	278	301	294	301	297	277	279	296	277	278	276	277	279	305
No.4 T/C	max.(°C)	292	281	276	306	302	299	292	276	273	293	278	276	275	278	282	331
	min.(°C)	275	268	265	287	279	284	278	265	265	274	266	269	265	269	273	302
	ave.(°C)	279	274	269	293	286	290	285	269	269	285	277	271	272	271	274	308
No.7 T/C	max.(°C)	185	181	180	195	196	189	188	180	178	183	175	174	176	177	177	203
	min.(°C)	179	176	173	185	182	178	176	170	172	176	171	168	170	168	171	180
	ave.(°C)	182	178	176	189	187	183	181	173	175	180	174	171	172	173	173	184
No.8 T/C	max.(°C)	173	170	169	179	180	180	176	171	170	175	173	168	169	170	172	189
	min.(°C)	167	165	163	173	171	169	167	163	166	168	165	162	165	163	166	175
	ave.(°C)	170	167	166	175	174	174	171	166	168	172	168	165	167	168	169	178



4. 照射後試験

照射後試験は、これまでの試験と同様に東海研燃料試験施設において実施した。同施設のセル等の配置については既に報告しているので参照されたい¹⁾。

4.1 照射後試験の概要

照射後試験に先立ち、関係課室と協議の上、照射後試験計画書を作成した。試験内容は前回までとほぼ同様であるが、今回新たに燃焼率測定用試料採取のためのマイクロサンプリングを追加した。試験項目は全体で34にのぼる。

試料番号、試料数と合わせて照射後試験のフローをFig. 4.1に示す。このうち作業番号1~8は $\beta \cdot \gamma$ コンクリートセルで行い、引き続き試料を $\alpha \cdot \gamma$ セルに搬入した後、作業番号9以降の作業を同セル内で行った。被覆管についての作業番号30~33は $\alpha \cdot \gamma$ セルまたは $\beta \cdot \gamma$ セルで行った。照射後試験計画書に記載された試験は全て平成5年度内に終了した。 $\alpha \cdot \gamma$ セル内の試験雰囲気としては、作業番号11の寸法測定以前及び作業番号20の金相試験前処理以降は空気雰囲気、作業番号12の燃料ピンガス捕集試験から作業番号19の燃料ペレット気孔率測定までをアルゴンガス雰囲気とした。

4.2 照射後試験の方法、結果並びに考察

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

4.2.1 キャプセル外観検査

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

キャプセル表面に有害な変形、変色、損傷等はみとめられなかった。また、キャプセルに刻印されているキャプセル番号及びカッティングマークが確認できた。

4.2.2 外筒解体及び中性子束モニタ回収

作業は以下の手順で行った（Fig. 2.3のキャプセル構造図参照のこと）。

- 1) 外筒上部端栓部のカッティングマーク位置をハックソーで切断した。
- 2) 熱電対を引き抜きながらスペーサ、スプリングを取り出した。
- 3) 内筒熱媒体を外筒より取り出した。
- 4) 内筒熱媒体を取り出しながら中性子束モニタ（4個）を順次、回収した。
- 5) 最後に熱電対のリード線を切断した。

外筒からの内筒熱媒体の引抜き作業は、前回あるいは前々回のキャプセルと異なり、一部にスムーズに行かない箇所があった。

4.2.3 中性子束モニタ搬出及び中性子照射量評価

87F-2Aキャプセルの積算中性子照射量を求めるために、内筒外表面組み込んだ中性子束モニタ4個を外筒解体時に回収した。回収した中性子束モニタは、小型キャスクに収納の上、L型輸送容器に梱包してJMT Rまで輸送して、材料試験炉部計画課で放射能測定を行うことにより、キャプセルの中性子照射量を算出した。

中性子束モニタの装荷位置については、Fig. 2.3のキャプセル構造図中にも示されている。熱及び速中性子の積算照射量をFig. 4.2、Fig. 4.3中にそれぞれ示す。燃料ピンの燃料スタック中央部に対応する位置に2組、燃料スタック両端に対応する位置に1組ずつの中性子束モニタが配置された。算出された積算照射量は熱中性子フルエンス $1.54 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ （燃料スタック中心、炉心内側）、 $1.04 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ （燃料スタック中心、炉心外側）、 $1.57 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ （燃料ピン上部端栓側）、 $1.49 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ （燃料ピン下部端栓側）、高速中性子フルエンス $4.14 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ （燃料スタック中心、炉心内側）、 $3.42 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ （燃料スタック中心、炉心外側）、 $3.43 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ （燃料ピン上部端栓側）であった。なお、燃料ピン下部端栓側に配置された高速中性子用のモニタについては、製作上の問題があったと判断されたため評価から除外した。また、積算照射量についての炉心内側に対する炉心外側の比は、熱中性子では0.68、高速中性子では0.83であった。

4.2.4 内筒外観検査

取り出した内筒表面の外観検査を目視により行った。検査の結果、変色変形等の有害な欠陥は認められず、良好であった。内筒表面をアルコールで拭き取り、中性子束モニタ取付け部を 0° として 0° 及び 180° の2側面からの写真撮影を行った。外観写真をPhoto. 4.2に示す。なお、内筒熱媒体にスリ傷が見られるのは、内筒解体時のハンドリングで生じたものである。

4.2.5 内筒解体及びNaK 処理

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

- 1) 内筒をNaK キャプセル開封処理装置にセットし、品番②内筒上部端栓と品番⑦スペーサの間を切断した。
- 2) スペーサが抜けないため、再度スペーサ部で切断を行った。
- 3) 燃料ピンはスムーズに抜けてきたが、装置本体の切断槽と燃料ピンの長さの関係で取り出しが不可能であったため、燃料ピンを内筒内に戻し、内筒と共に処理槽に移した。
- 4) 処理槽内で燃料ピンの切離しと内筒内の残留NaK の処理を行った。
- 5) 切断槽内の流出NaK をn-ブタノールで少量ずつ反応させて処理した。

4.2.6 燃料ピン外観検査

燃料ピンの外観観察は、マクロ観察ステージに燃料ピンをセットし、ステージを移動させて、燃料ピンの全面について行った。外観写真撮影は、 0° 及び 180° の2方向について行った。燃料ピンの外観をPhoto. 4.3に示す。

燃料ピンの表面は、上部端栓、下部端栓及び被覆管部ともステンレス鋼状の金属光沢を有して

いるものの、上部端栓より約190 mm付近のほぼ全周部に幅約20mmの変色部分がみとめられた。また、上部端栓溶接部の周方向にも僅かな変色部分がみとめられた。そのほかには特異な箇所は観察されなかったが、被覆管の全長にわたって軸方向に浅いすり傷がみとめられた。

4.2.7 燃料ピン放射線測定

燃料ピンの放射線測定は、燃料ピンをセル内で鉛直に保持し、燃料ピン上端より下方向約19cm（中央部）の位置において表面より水平方向に25cm間隔で4点（燃料ピン表面は除く）を行った。得られた結果をTable 4.1 に示す。前報⁴⁾中の、84F-12-1或いは84F-12-2ピンと比較すると約2倍の線量率を示した。これはほぼ同一の燃焼度ながら、冷却期間が約1ヶ月短かったこと並びに燃料ピンの全長が約2倍になったことに起因するものと考えられた。

4.2.8 燃料ピンX線透過撮影

燃料ピン方向が刻印されている面がフィルム側に向いた方向を0°として、0°及び90°の2方向のX線透過撮影を行った。撮影条件は、X線管電圧380 kV、X線管電流4 mA、フィルム速度9 mm/min、X線管焦点～被写体間距離1300 mm、被写体～フィルム間距離300 mmとした。燃料ピンのX線透過像をPhoto. 4.4に示す。照射後の燃料ピンの健全性が確認された一方で、燃料ペレット間の境界は不明瞭であり、ペレットと被覆管のギャップはほとんどみとめられなかった。フィルムから読み取った照射後の燃料ペレットスタック長は200.5 mmであり、照射前の燃料ピンへの挿入時のスタック長200.1 mmと比較すると、伸びは約0.2%とごく僅かであった。

4.2.9 燃料ピン重量測定

燃料ピン表面をエチルアルコールを用いて拭き取り、洗浄したのち、上皿電子天秤（スイス・メトラー社製、PL1200型）を使用して重量を測定した。照射後の燃料ピンの重量は、200.5gであった。製作時は200.0gであり、ごく僅かな重量増加が観測された。

4.2.10 燃料ピンγ線スキャンニング

燃料ピンをγ線スキャンニング装置に装着し、燃料ピンの軸方向についてγ線スキャンニングを行うとともに、3箇所の定点においてγ線スペクトル分析を行った。上部端栓位置をゼロとして、その点からコリメータスリット軸芯までの距離を上下位置とした。全γ線の測定では、軸方向に一定速度（25mm/min）で燃料ピンを移動させながらその強度分布を連続測定した。また、代表的なFP元素である¹⁰⁸Rh(622keV)、¹³⁷Cs(662keV)、¹⁴⁴Pr(697keV)、⁹⁵Zr(757keV)及び¹³⁴Cs(796keV)についてもγ線スキャンニングを行った。この場合は、測定開始点より一定間隔(0.5mm)毎に一定時間測定する方法（ステップスキャン）で行った。

軸方向の全γ線スキャンニングの結果を¹³⁷Csについての結果と合わせてFig. 4.4に示す。上下のUC断熱ペレットと(U,Pu)C燃料ペレットとの境界で鋭いピーキングが起きているのが観察される。このピーク強度は(U,Pu)C燃料ペレット位置の平均強度に比べて約2割程高い値を示している。このようなピーキングは、軸方向からの中性子が両端の(U,Pu)Cペレットに入射するために生じたものである。燃料スタック部のγ線量率は全体として平坦であるが、上部側から下部側に

かけてゆるやかな減少傾向を示す。これは軸方向の炉心中心位置が燃料スタック中心よりも上部側にあることに起因したものである。また、燃料ピンの上部端栓部に小さな γ 線のピークが観察された。

Fig. 4.5には、前述した代表的なFP元素の γ 線スキャンの結果を示す。どの元素についてもほぼ全量がUC断熱ペレット及び(U, Pu)C燃料ペレット上のみが存在していること、それらの分布は全 γ 線強度の測定結果と類似していることがわかる。これまでの照射後試験結果^{9, 4)}では、特に超化学量論的組成の燃料において、ペレットから放出されたCsが温度勾配にしたがって低温のプレナム部及び端栓部に移行している現象が観察されたが、今回の試験結果ではそのような現象はみとめられなかった。その原因については、後述するFPガス放出同様に熱安定型ペレットの採用に起因して、Csの放出量が少なかったであろうことが挙げられる。

定点の γ 線スペクトル分析は次の位置で実施した。

燃料ピン	測定部位	上下位置(mm)
87F-02	a. 上部端栓部	6
	b. ピン上部UC断熱ペレット部	128
	c. (U, Pu)C スタック中央部	232

代表例として燃料ペレット中央部での結果をFig. 4.6に、上述した小さなピークが観察された燃料ピンの上部端栓部での結果をFig. 4.7に示す。Fig. 4.6では、代表的なFP元素であるCs, Pr, Zr, Nb, Rh等のピークが見られているほか、被覆材の放射化によるものと推定される⁵⁴Mn, ⁵⁸Co及び⁶⁰Coも検出されている。一方、上部端栓部での γ 線スペクトル (Fig. 4.7) では、上述の被覆材の放射化による以外のピークは観察されなかった。

4.2.11 燃料ピン寸法及び曲り測定

燃料ピンの長さ測定は600 mmのノギスを用いて行い、その測定精度は ± 0.1 mmである。測定結果をTable 4.2 に示す。照射前の値と比較しても、有意な寸法変化はみとめられていない。

燃料ピンの直径及び曲りの測定はプロフィロメトリにより行い、測定精度は直径については ± 0.005 mm、曲りは ± 0.05 mmである。87F-02燃料ピンについて、 0° 、 45° 、 90° 及び 135° の4方向について測定した直径のデータをFig. 4.8及びFig. 4.9に、また、曲りのデータをFig. 4.10からFig. 4.13までに示す。

直径については、照射後の(U, Pu)Cスタック上の最大箇所では ~ 0.06 mm ($\Delta D/D$ では $\sim 0.6\%$)の増加が見られた。この直径増加率はこれまでの混合炭化物燃料の照射試験の中で観測された値としては最も大きいものであった。これまでの試験結果から直径増加率の最大値は一定の燃焼度以上では燃焼度にほぼ比例することが確かめられており、ペレットから被覆管にかかる応力に関係したものである可能性が強い。しかし、今回観測された直径増加率の値は最大でも0.6%程度であり、燃料ピンの健全性には支障をきたす程のものではないと考えられる。

燃料ピンの曲りは、最大で ~ 0.6 mm観察された。この曲りもこれまでの混合炭化物燃料の照射試

験の中で観測された値としては最も大きいものであった。その原因としては、燃料ピンの全長が従来の250 mmから390 mmに約1.5 倍程長くなったことが考えられる。

4.2.12 燃料ピンガス捕集試験

燃料ピンガス捕集試験（パンクチャ試験）では、燃料ピンに穿孔を施した後にピン内のガスを捕集してその体積の推定を行った。

α ・ γ セル内に穿孔機構部があり、配管を介してセル外のガス捕集部の容器内にガスが捕集される¹⁾。ガス捕集では2本の捕集容器（内容積150cm³）を用い、プレナム部（上部端栓上面より46mmの位置）を穿孔後、1本目は平衡させた圧力でガスを採取し、2本目は残ったガスをテブラーポンプで汲み上げて採取した。燃料ピン内部空隙容積についての測定精度は $\pm 0.1\text{cm}^3$ 、ガス圧力についての測定精度は $\pm 1 \times 10^2 \text{ Pa}$ である。

今回の燃料ピンについて得られたパンクチャ試験に関する結果をTable 4.3 に示す。燃料ピン内の全ガス量（製作時に封入したHeガス及び放出されたFPガスに相当する）は、標準状態において7.1cm³であった。ガスの組成分析については次項で述べる。

4.2.13 燃料ピンFPガス分析

パンクチャ試験で捕集したガスの組成分析を、ガスクロマト質量分析計を用いて行った。得られた結果をTable 4.4 に示す。表中の酸素及び窒素は主としてガス捕集系における空気の漏れ込みによるものと推定される。少量のArも検出されているが、これは燃料ピン製作時にグローブボックスをHeガスに置換した際に残存したものによると考えられる。

今回の燃料ピンについて求められたXe/Kr比は17.8であった。この値はORIGENコードで計算した生成量の比（15.8）よりは若干大きいものの、従来の燃料同様にキセノンとクリプトンの放出率に関しては大きな差は無いことが確認された。

測定されたガス組成にTable 4.3 中に示したガス捕集量を乗じることにより、捕集されたXe及びKrの量を求めたところ、両者の合計は0.77cm³であった。この値を、線出力を入力してORIGENコードで計算した生成量125.49 cm³で除すことにより、FPガスの放出率として0.6%の値を得た。この値を燃料中心温度が今回の試験とほぼ同一であったと推定される84F-10-1ピン（燃焼度3.0%FIMA、放出率6.1%）、84F-10-2ピン（燃焼度3.0%FIMA、放出率13.7%）、84F-12-1ピン（燃焼度4.5%FIMA、放出率7.1%）及び84F-12-2ピン（燃焼度3.7%FIMA、放出率15.5%）の4本の燃料ピンの結果と比較すると今回の結果は極端に低い。従来の試験結果から、FPガスの放出率は燃焼度、化学組成のほか、燃料ペレット中の開気孔率に大きく影響されることが示唆されてきた。今回採用した熱安定型ペレットは、前述したように高密度のマトリクス中に比較的大きな閉気孔が分散しているものである。従って、後述する気孔率に関する試験結果の中で触れるように、燃料ペレット中の開気孔率は極めて低い。84F-12-1ピンあるいは84F-12-2ピンと同程度の燃焼度、燃料中心温度であるのに対し、今回0.6%と極端に低いFPガスの放出率が得られたのは、熱安定型ペレットを採用したためであろうと推定できる。

4.2.14 燃料ピン粗切断

破壊試験用の試料作製のため、アルゴンガス雰囲気中で乾式法により燃料ピンの粗切断を行った。切断位置をFig. 4.14 の上半分に示す。粗切断後、破壊試験に供した①、②、③の部分それぞれ 02A、02B、02C と称することとする。Fig. 4.1のフローに示したように、02B 及び 02C は燃料ペレットの密度、気孔率測定及び被覆管の金相試験等に用いた。一方、02A は樹脂注入を経て細切断後、燃料ペレットの金相試験等に供した。

4.2.15 燃料ピン樹脂注入

試料02A にポリエステル樹脂を最大加圧 $6\text{kg}/\text{cm}^2$ 、加圧時間5分の条件で注入した。しかし、ペレットと被覆管の間のギャップが閉塞していたため、完全な樹脂注入は不可能であった。

4.2.16 燃料ピン細切断

樹脂注入を行った試料 (02A) について、金相試験のために径方向及び軸方向の細切断を湿式法により行った。細切断位置及び新たに設けた試料番号をFig. 4.14 の下半分に示す。各試料について実施した試験項目はFig. 4.1中に記載されている。

4.2.17 脱ミート

従来採用してきたスクリー押出し法による脱ミートでは、今回、ペレットと被覆管の付着が強固であり試料の採取が不可能であったため、燃料ピンを背割り切断する方法をとった。試料をバイスに固定した上で、被覆管片側面を軸方向に切断し、さらに切断部を拡げ、バット内で試料端部を数回軽く打ち突けペレット片を容器に採取した。

採取したペレット片から密度測定に用いる一定の大きさ以上のものを選別して (02BPで12ヶ、02CPで12ヶ)、それらをm-キシレン中で洗浄後、P型ペリスコープで写真撮影を行った。従来の低密度ペレットの照射試料と比較すると、金属光沢を呈して大きめのペレット片が採取された。採取した02BP及び02CP試料の外観をPhoto 4.5 に示す。

4.2.18 燃料ペレット密度測定

上記試料の洗浄後、さらに3時間以上の真空乾燥を行なった後に密度測定を実施した。測定はm-キシレンを置換液に用いた液浸法により行った。試料重量の測定精度は $\pm 0.0002\text{g}$ 、また密度の測定精度は $\pm 0.01\text{g}/\text{cm}^3$ である。02BP及び02CP試料についての測定結果をTable 4.5 中に示す。開気孔中には置換液が侵入するため、表中の密度はTable 2.1 中の形状密度の値とは異なり気孔としては閉気孔のみを考慮した値である。

4.2.19 燃料ペレット気孔率測定

上記の密度測定を行った試料を3時間以上真空乾燥した後に、水銀ピクノメータ法により開気孔を含む密度測定を行った。水銀加圧力は $1.333 \times 10^5\text{Pa}$ であり、開気孔測定装置の測定体積精度は $\pm 0.0058\text{cm}^3$ である。本法による測定結果及び液浸法による測定結果から計算した燃料ペレットの開気孔率及び閉気孔率を合わせてTable 4.5 中に示す。

水銀ピクノメータ法で求めた燃料ペレット（試料番号02BP及び02CP）の密度は、双方とも84.7 %T. D. であった。これを照射前の当該ペレットの平均密度、86.5 %T. D. 及び86.8 %T. D. と比較すると、それぞれ1.8 %T. D. 及び2.1 %T. D. 減少している。これは、その分だけ体積が見かけ上増加したことで同等である。これらを燃焼度（%FIMA）当たりのスエリング率に換算すると、0.4~0.5%に相当する。この値は、同じくJMTRで照射され、ペレットと被覆管のギャップが閉塞した状態であった前回あるいは前々回の試験結果よりも若干低い^{3, 4)}。

水銀ピクノメータ法による試料体積、液浸法による試料体積及び試料の理論体積から計算で求めた開気孔率は、02BP、02CP試料とも極めて低く、水銀ピクノメータ法による試料体積測定値の変動幅で規定される測定限界以下であったため、Table 4.5 中には参考値のみを記載した。その原因としては、熱安定型燃料ペレット調製に際しては焼結時に焼結助剤のニッケルを添加してマトリクスの密度を95 %T. D. 以上にしており⁵⁾、また照射によって開気孔と閉気孔の割合が大きく変化することは考えにくいため、照射前のペレット特性を受け継いだものであると言える。前述したように、前報までの結果から開気孔率とPPガスの放出率の間には相関関係が存在することが示唆されてきたが、今回の燃料での極めて低いPPガスの放出率はPPガスの放出の経路と成り得る開気孔が極めて少なかったことに起因したものであると考えられる。

4.2.20 燃料ペレット等金相試験前処理

細切断した燃料ペレットを、金相試験、マイクロ線分析等の各種試験に供するために、樹脂埋め込み、研磨及びエッチング等を行った。埋込管（アクリル材）のほぼ中央にポリエステル樹脂で埋め込んだ試料を研磨して鏡面仕上げを行い、一部については化学エッチングを行った。エッチング条件は下記のとおりである。

(U, Pu)C 燃料ペレット試料

エッチング液： $\text{HNO}_3:\text{H}_2\text{O}:\text{CH}_3\text{COOH} = 2.5:1:2$ の混合溶液

エッチング時間：15~20秒

被覆管試料

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

エッチング時間：30~70秒

試験雰囲気としては、試料の切断まではアルゴンガス雰囲気を採用し、それ以降は空気雰囲気とした。

4.2.21 燃料ペレットマクロ写真撮影

燃料ペレットの軸方向及び径方向の研磨断面をP型ペリスコープを用いて観察するとともに、マクロ写真を撮影した。断面写真及びその状況については、後の4.2.24のモザイク写真撮影の項で述べる。

4.2.22 燃料ペレット気孔分布測定

前項のマクロ写真撮影に続いて、燃料ペレット径方向断面（試料番号02A1及び02A5）を遠隔操作型万能顕微鏡を用いて、ペレット中央部、中間部さらに外周部について倍率400倍のマイクロ写

真撮影を行った。各試料についての写真をPhoto 4.6、Photo 4.7に示す。写真上に85mm×85mmの枠を設けて画像解析を行い、気孔の大きさ及び数を求めた。両者の気孔分布測定結果をTable 4.6及びTable 4.7に示す。また、表に示した結果を棒グラフにしてFig. 4.15及びFig. 4.16に示す。なお、ここでは写真の枠の大きさの関係で、気孔形成剤の添加によって形成された気孔については意図的に画像解析対象場所から除外した。従って表中に記載された平均気孔径、気孔率についてはそれ以外の気孔に関するものである。また、図から読み取れる気孔分布も、気孔形成剤の添加によって形成された以外の気孔分布を表したものである。

02A1及び02A5双方の試料について特徴的なことは、全気孔の9割以上が直径 $\sim 3\mu\text{m}$ 未満の微小気孔であること、ペレット中心領域においてその微小気孔の数が他の領域に比べて多く観測されていること、それに伴い気孔率も中心領域において高くなっていること等である。一方で、平均気孔径については領域間での差はみとめられなかった。これまでの試験結果から、外周部の気孔分布は、ほぼ照射前のものに近いと推定される²⁾。従来の試験では特に化学量論的組成の燃料において、比較的温度の高いペレット中心領域で拡散が促進されて微小気孔が一部消滅する傾向が見られたが、今回の試験結果は明らかにこれとは異なっている。また、検出された気孔の絶対数も従来のものと比較すると、1桁程度少なくなっている。その原因としては化学量論性の効果のほか、今回の燃料ではマトリクスが製造時に十分焼結されており、焼きしまり現象がほとんど起き得なかったことが上げられる。また、02A1、02A5双方の試料で燃料中心領域で直径 $\sim 3\mu\text{m}$ 未満の気孔の数が増加している点については次の2つの解釈が考えられる。1つには元々存在していた画像解析装置の検出限界未満の微小気孔が、中心領域では移動、結合して検出される大きさにまで成長したこと、別の解釈としては一定の温度と燃焼度の条件を満たしたPPガス気泡がマイクロサイズにまで成長して、光学顕微鏡写真上の画像解析では気孔として検出されるようになったことである。いずれにしろ、ペレット中心領域での気孔率の相対的な増加は上述した結果を反映したものである。

4.2.23 燃料ペレット金相写真撮影

燃料ペレットの研磨面についてエッチングを行い、径方向（試料番号02A1及び02A5）及び軸方向（試料番号02A3）断面の組織写真撮影を行った。倍率は、径方向断面については400倍、軸方向断面については100倍及び400倍とした。代表的な各部の組織をPhoto 4.8からPhoto 4.10に示す。このうち、Photo 4.8及び4.9は径方向断面、Photo 4.10は軸方向断面のものである。

金相写真上で白く見えるのが第二相の三二炭化物である。従来の照射後試験結果では、超化学量論的組成の燃料において、三二炭化物相の割合がペレット中心部で少なくなっている傾向が指摘されているが^{3, 4)}、今回の径方向断面の組織では、外周部と中心部での三二炭化物の存在割合に有意な差はみとめられていない。一方、軸方向断面の組織では、ペレット境界や気孔形成剤によって形成された比較的大きな気孔周辺の一部に三二炭化物相が凝縮しているのがみとめられた。

4.2.24 燃料ペレットモザイク写真撮影

エッチング前の径方向（試料番号02A1）及び軸方向（試料番号02A3）断面を倍率100倍で写真撮影し、その局所写真から構成したモザイク写真を作成した。代表的な径方向及び軸方向の断面

写真をPhoto 4.11、Photo 4.12にそれぞれ示す。径方向断面については、ペレットと被覆管のギャップが閉塞していることが確認されるとともに、直径方向に大きなクラックが数本、さらにはそこから枝分かれしたと見られる小さなクラックが生じ、円周方向にもほぼ全外周領域においてクラックが生じているのがみとめられる。一方、軸方向断面についても、縦方向、横方向に数多くのクラックが発生しているのがみとめられるとともに、一部ペレット境界が消失している箇所が見られた。径方向断面、軸方向断面ともペレット製造時に導入した比較的大きな気孔はほぼそのままの形で残存していることがわかる。しかしながら、それらの照射下での移動についてはこのモザイク写真からだけでは正確には判断できない。なお、写真上では試料の埋込、研磨の段階でペレットのかけらが欠落した箇所が黒く焼き付けられている。

4.2.25 燃料ペレット結晶粒度測定

上記の燃料ペレットの径方向断面（試料番号02A1及び02A5）の金相写真上に65mm×65mmの大きさの枠を設けて画像解析を行い、結晶粒度の測定を行った。測定結果をTable 4.8 に示す。

照射後の試料の各部の一炭化物相の結晶粒度は、いずれも10~11 μm 程度であり試料間及び断面内の位置による差は見られなかった。この値は、照射前の値にはほぼ等しいものである。従来の試験では、前記の気孔分布の変化同様に、特に化学量論的組成の燃料ペレットにおいて温度の高い中心領域で結晶粒が照射により成長する傾向が見られた。今回、同様な結果が得られなかったのは、燃料がもともと三二炭化物相を含む超化学量論的組成であった点と、燃料製造時に焼結助剤のニッケルを添加して予め十分に粒成長させたペレットを採用した点が上げられる。

4.2.26 燃料ペレットオートラジオグラフ

燃料ペレット径方向断面の α 及び $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフを実施した（試料番号02A2）。前者はKODAK 社製CN-85 Type B型のニトロセルローズをニッケル箔（厚さ7.5 μm ）及びマイラ膜（厚さ4 μm ）で包み、埋め込んだ燃料ペレットの研磨面を約1kgの荷重で押しつけ、30秒間露出させた。一方、後者ではKODAK 社製HRP 型乾板をアルミニウム箔（厚さ15 μm ）及びマイラ膜（厚さ4 μm ）で包み、研磨面を約1kgの荷重で押しつけ、6秒間露出させた。現像後に得られた像をまとめてPhoto 4.13に示す。ちなみに α オートラジオグラフの露出時間は前回の試験時の1/3、また $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフの露出時間は、前回の試験時の1/5であった。

α オートラジオグラフは、燃料ペレット中のTRU 元素（照射済燃料中では主として ^{242}Cm からの寄与が支配的）の分布状況を表しているが、ペレット中央部に比較して外周部の濃度が高いことがわかる。ここで ^{242}Cm は、U及びPuの同位体の中性子捕獲によって生成する核種であり、その分布は外周部で高く、中央部で低いというペレット内の中性子分布に起因している。

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

また、 α 、 $\beta \cdot \gamma$ オートラジオグラフともペレット内で左右対称でない分布がみとめられる。これは照射が炉心外照射孔で行われたため、4.2.3の中性子照射量評価の項で述べたように、中性子束が炉心側で高く、反対側で低い勾配に起因したものである。これを利用して、オートラジ

オグラフの結果から、照射時の炉心方向を推定することができる。

4.2.27 燃料ペレットマイクロ γ 線スキャンニング

上記のオートラジオグラフを行った試料について、ペレット径方向断面のそれぞれのPP元素の分布を見るためにマイクロ γ 線スキャンニングを行った（試料番号02A2）。分析は、まず定点における γ 線スペクトル分析を行い、続いて全面マイクロ γ 線スキャンニングを実施した。

定点分析は燃料ペレット中心位置で行い、測定時間は10800秒とした。測定されたスペクトルをFig. 4.17に示す。

全面マイクロ γ 線スキャンニングでは、定点分析で同定された核種の中で代表的なPPであると考えられた ^{106}Rh , ^{137}Cs , ^{144}Pr , ^{95}Zr 及び ^{134}Cs を選び、断面を0.5mmピッチで行った。測定時間は1点につき3000秒、その位置精度は $\pm 1\text{mm}$ であり、全面マイクロ γ 線スキャンニングはペレット中心を座標軸の原点として表示する。その測定結果をFig. 4.18に示すが、図中の棒グラフは、 $Y=0$ （X軸）に沿った直径上の放射能強度を示している。すべてのPP元素についてペレット中央部での凹みが見られること及び炉心側（X軸のマイナス側）で強度が高く反対側で低いのは、前項までに述べてきたペレット内での中性子束分布に対応している。

4.2.28 燃料ペレットX線微小分析

燃料ペレット内におけるアクチニドあるいはPP元素の分布に着目し、詳細な観察、元素分析を通して燃料挙動の解明に資する目的で燃料ペレットX線微小分析を行った（試料番号02A4）。前述したように、その結果については、別の報告書の中で詳細に検討する予定である。

4.2.29 マイクロサンプリング

今回の照射後試験において初めての試みとして、平成6年度以降に予定されている燃焼度評価のための分析用試料として、燃料ペレットから微小試料をサンプリングした。マイクロサンプリングは以下の手順に従って実施した。

- (1)サンプリング試料保管容器の重量測定を行う。
- (2)精研磨した試料をマイクロサンプリングのステージにセットし、サンプリング位置を決める。
- (3)サンプリング位置を穿孔する（湿式）。
- (4)サンプリング試料をスポイトで採取して、容器に移す。
- (5)水分を乾燥させ、容器重量の測定を行う。

採取位置は、ペレット中心、中間、外周の3箇所とした。分析は原研分析センターにおいて行う予定であり、採取済試料は現在は燃料試験施設で保管中である。

4.2.30 被覆管硬さ測定

硬さ測定にはマイクロビッカス法を採用して、 $3\mu\text{m}$ 仕上げをしたステンレス鋼被覆管（試料番号02BC）について、試験荷重100g、荷重保持時間15秒の条件で実施した。1箇所につき半径方向に9点測定し、 90° ずつ位置をずらして4箇所測定した。代表的な圧痕部跡をPhoto 4.14に示し、測定結果をTable 4.9に示す。また、4箇所の硬度を図示したものをFig. 4.19に示す。

照射前のステンレス鋼被覆管のビッカス硬度は280~290 Hv程度であるので、照射による硬度の変化は特にみとめられていない。また、測定データにばらつきはあるものの、被覆管内面側と外面側の硬度にも系統的な差はみとめられない。なお、硬度測定のも最も内面側の点はペレット境界から約50 μm の位置にある。

4.2.31 被覆管金相写真撮影

燃料ペレットとステンレス鋼被覆管の化学的相互作用等について調べるために、エッチング処理を行った被覆管（試料番号02BC）の写真撮影を行った。倍率は100倍（全体）及び600倍（局部）とした。100倍並びに600倍で撮影した写真をPhoto 4.15に示す。被覆管内表面には、燃料ペレットの一部が固着している形跡が見られた。

4.2.32 被覆管腐食厚さ

前項の金相写真から被覆管内壁の腐食厚みを推定したが、被覆管内表面に腐食を示す兆候はみとめられなかった。今回の試験では従来に比べて酸素含有量の多い（約5000 ppm）燃料ペレットが使用されたが、今回の照射条件の下では被覆管の腐食（浸炭）の面から特に燃料ピンの照射健全性に及ぼすものではないことがわかった。但し、被覆管の外周部と内周部ではエッチングに対する感受性の差がみとめられた。

4.2.33 被覆管結晶粒度測定

4.2.31項で撮影した600倍の写真に77mm \times 77mmの枠を設けた上で画像処理を施して、被覆管の結晶粒径を測定した。その結果をTable 4.10に示す。照射後の試料で、内周部と外周部の間の平均粒径にはほとんど差が見られていない。また、未照射試料に比べて照射後試料の粒径の方が大きい、これは前報⁴⁾中でも述べたように照射に直接起因したものであると断定するには至らない。

4.2.34 被覆管X線微小分析

被覆管内周部の二次電子線像観察、元素分析を行い燃料-被覆管化学的相互作用(FCCI)評価に役立てる目的で被覆管のEPMA観察を実施した（試料番号02A4）が、燃料ペレットと被覆管内面の間にFCCIの兆候を示す反応層は同定できなかった。

Table 4.1 Radiation dose rate of fuel pin.

Distance (cm)		Dose rate (Sv/h)
X	Z	
25	19	5.41
50	19	1.80
75	19	0.84
100	19	0.47

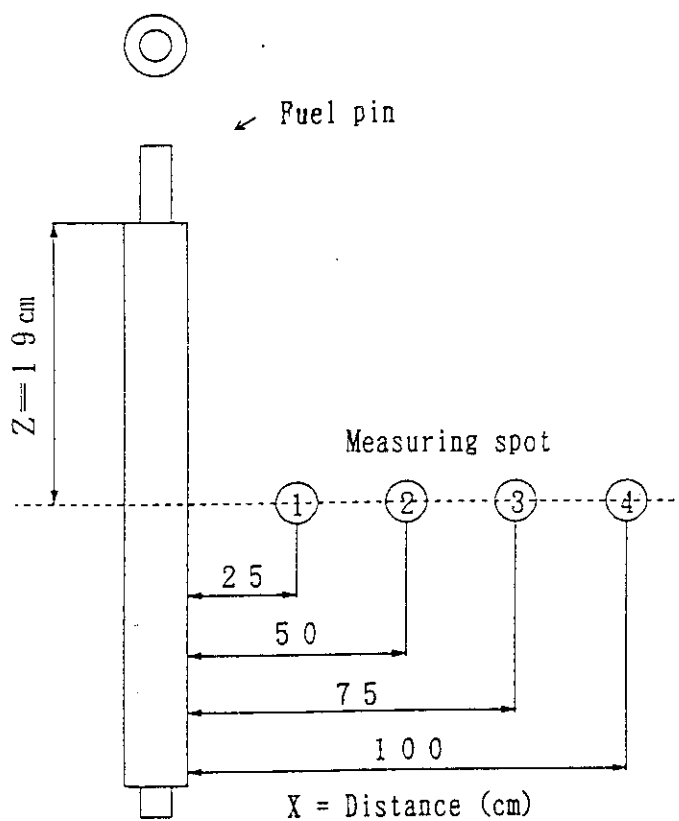
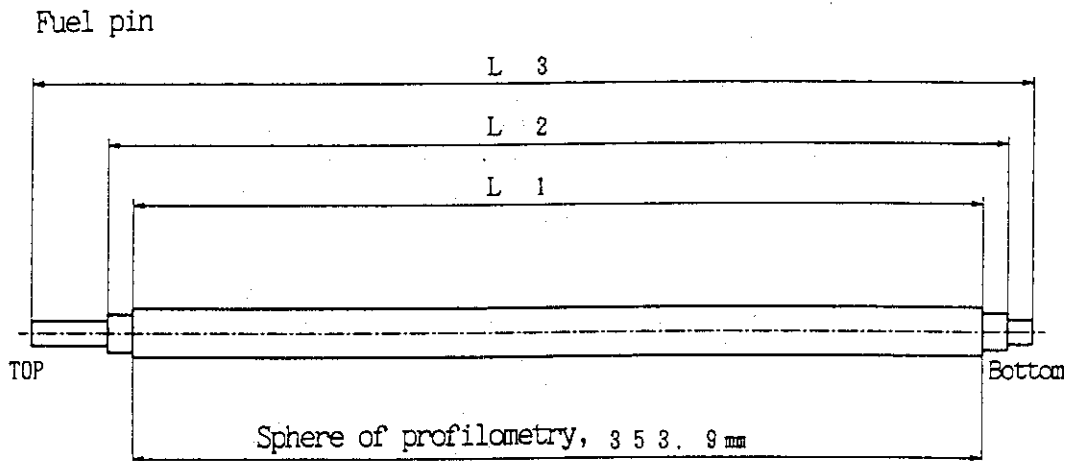


Table 4.2 Axial length of (U,Pu)C fuel pin

Fuel pin	L 1(mm)	L 2(mm)	L 3(mm)
87F-02	365.6	365.2	390.3



Direction angle (looking from the upper endplug side)

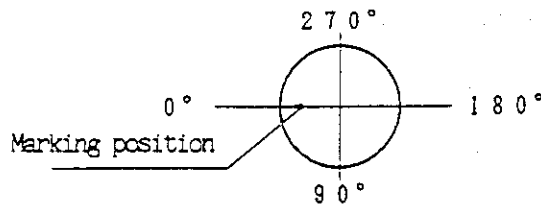


Table 4.3 Results of puncture test

Fuel pin	87F-02
Void volume before puncturing (cm ³)	73.48
Void volume after puncturing (cm ³)	79.75
Void volume in fuel pin (cm ³)	6.27
Vacuum pressure before puncturing (Pa)	1.07 × 10 ⁻²
Equilibrated gas pressure (Pa)	6.20 × 10 ³
Pressure in fuel pin (Pa)	1.24 × 10 ⁵
Temperature at puncturing (°C)	22.7
Total gas volume (STD, cm ³)	7.06

Table 4.4 Determination of the composition and volume of FP gas

Fuel pin		87F-02
Gas composition (vol.%)	He	Base
	N ₂	1.2
	O ₂	0.3
	CO	<0.1
	Ar	1.5
	Kr	0.58
	Xe	10.3
FP gas isotopic ratio (vol.%)	83-Kr	15.9
	Kr 84-Kr	30.9
	85-Kr	6.6
	86-Kr	46.6
	131-Xe	12.2
Xe 132-Xe	19.9	
	134-Xe	26.8
	136-Xe	41.1
Collected volume (Kr+Xe) (STP.cm ³)		0.77
Produced volume* (Kr+Xe) (STP.cm ³)		125.49
FP gas release rate (%)		0.61

* Calculated by ORIGEN code

Table 4.5 Density and porosity of fuel pellets

Sample	02BP	02CP
Number of fragments	12	12
Total weight of sample (g)	2.4546	2.5142
Density of sample (g/cm ³) (%T.D) (Archimedes' method, m-xylene)	11.41 83.9	11.50 84.6
Density of sample (g/cm ³) (%T.D) (Picnometer method, mercury)	11.52 84.7	11.52 84.7
Open porosity (%)	≤1.8	≤2.5
Closed porosity (%)	15.6	14.8
Density before irradiation (%TD)	86.5	86.8

Table 4.6 Results of pore distribution analysis in fuel pellet (I)

Sample; 02A1

Diameter of pores (μm)	Number of pores		
	Outer	Intermediate	Center
~ 0.99	20	38	151
0.99 ~ 1.66	51	23	79
1.66 ~ 2.32	23	16	33
2.32 ~ 2.99	3	5	13
2.99 ~ 3.65	1	4	6
3.65 ~ 4.31	2	1	9
4.31 ~ 4.98	2	1	6
4.98 ~ 5.64	1	0	2
5.64 ~ 6.31	1	0	2
6.31 ~ 6.97	0	0	1
6.97 ~ 7.64	0	0	0
7.64 ~ 8.30	0	1	0
8.30 ~ 8.96	0	0	0
8.96 ~ 9.63	0	0	0
9.63 ~ 10.29	0	0	1
10.29 ~ 10.96	0	0	0
10.96 ~ 11.62	0	0	0
11.62 ~ 12.29	0	0	0
12.29 ~ 12.95	0	0	1
Total pore number	104	89	304
Average diameter (μm)	1.77	1.95	1.95
Porosity (%)	0.73	0.78	2.96

Table 4.7 Results of pore distribution analysis in fuel pellet (II)

Sample; O2A5

Diameter of pores (μm)	Number of pores		
	Outer	Intermediate	Center
~ 0.99	42	42	52
0.99 ~ 1.66	24	26	87
1.66 ~ 2.32	9	7	39
2.32 ~ 2.99	3	4	8
2.99 ~ 3.65	0	0	4
3.65 ~ 4.31	1	1	1
4.31 ~ 4.98	0	0	1
4.98 ~ 5.64	1	0	0
5.64 ~ 6.31	0	0	0
6.31 ~ 6.97	0	0	0
6.97 ~ 7.64	0	0	0
7.64 ~ 8.30	0	0	0
8.30 ~ 8.96	0	0	0
8.96 ~ 9.63	0	0	0
9.63 ~ 10.29	0	0	0
10.29 ~ 10.96	0	0	0
10.96 ~ 11.62	1	0	0
11.62 ~ 12.29	0	0	0
12.29 ~ 12.95	0	1	0
Total pore number	81	81	193
Average diameter (μm)	1.79	1.79	1.61
Porosity (%)	0.74	0.73	1.03

Table 4.8 Results of grain size measurement for fuel pellets

Sample	Position	Average grain diameter (μm)	
Fuel pellet	02A1	Outer	10.2
		Intermediate	9.8
		Center	11.0
	02A5	Outer	10.9
		Intermediate	11.4
		Center	10.7

Table 4.9 Micro vickers hardness of cladding tube

Sample	Position	Micro vickers hardness (Hv)				
		0°	90°	180°	270°	Average
02BC	1 (inner)	279	269	295	296	285
	2	287	271	288	261	277
	3	285	285	282	244	274
	4	269	276	285	296	282
	5	289	281	292	296	290
	6	282	277	288	290	284
	7	262	269	293	286	278
	8	280	256	293	285	279
	9 (outer)	274	256	277	292	275
Average		279	271	288	283	

Table 4.10 Results of grain size measurement for cladding tube

Sample	Position	Average grain diameter (μm)
02BC	Outer	14.9
	Inner	14.6
Unirradiated	—	10.7

Specimen	Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
Irradiation capsule	1	Inspection of capsule appearance	1	Capsule 87F-2A
	2	Disassembly of outer tube and recovery of neutron fluence monitors	1	
	3	Transportation of neutron fluence monitors	1	
	4	Inspection of inner tube appearance	1	
	5	Disassembly of inner tube and treatment of NaK	1	
Carbide fuel pin	6	Inspection of fuel pin appearance	1	Fuel pin 87F-02
	7	Radiation dose rate measurement	1	
	8	X-ray radiography	1	
	9	Weight measurement of fuel pin	1	
	10	γ-scanning	1	
	11	Profilometry of fuel pin	1	
	12	Puncture test	1	
	13	Analysis of FP gas	1	
	14	Cutting of fuel pin	1	
	15	Filling of resin into fuel pin	1	
	16	Sectioning of fuel pin	2	

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

Specimen	Working No.	Examination item	Number	Flow of examination
Carbide fuel pin	17	Removal of fuel pellets	3	
	18	Density measurement	2	
Fuel pellets	19	Open porosity measurement	2	
	20	Sample preparation for metallography	6	
	21	Macroscopic photography	4	
	22	Measurement of pore distribution	2	
	23	Microscopic photography	3	
	24	Mosaic photography	1	
	25	Measurement of grain size	2	
	26	Micro γ -scanning	1	
	27	Auto radiography	1	
	28	Analysis by EPMA	1	
	29	Micro-sampling	1	
	Cladding tube	30	Measurement of hardness	1
31		Microscopic photography	2	
32		Measurement of corrosion depth	1	
33		Measurement of grain size	1	
34		Analysis by EPMA	1	

Fig. 4.1 (Continued)

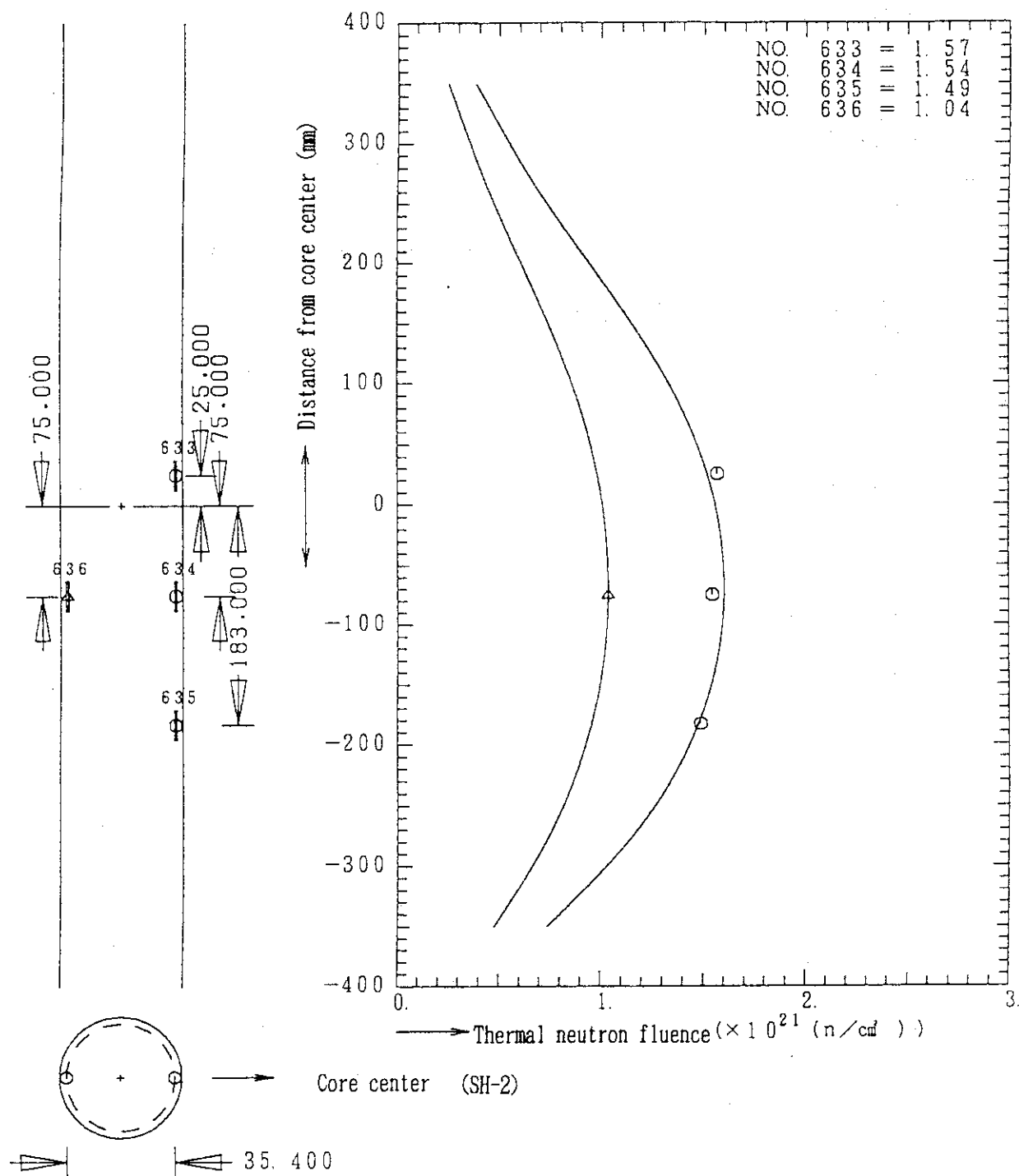


Fig. 4.2 Thermal neutron fluence on 87F-2A capsule

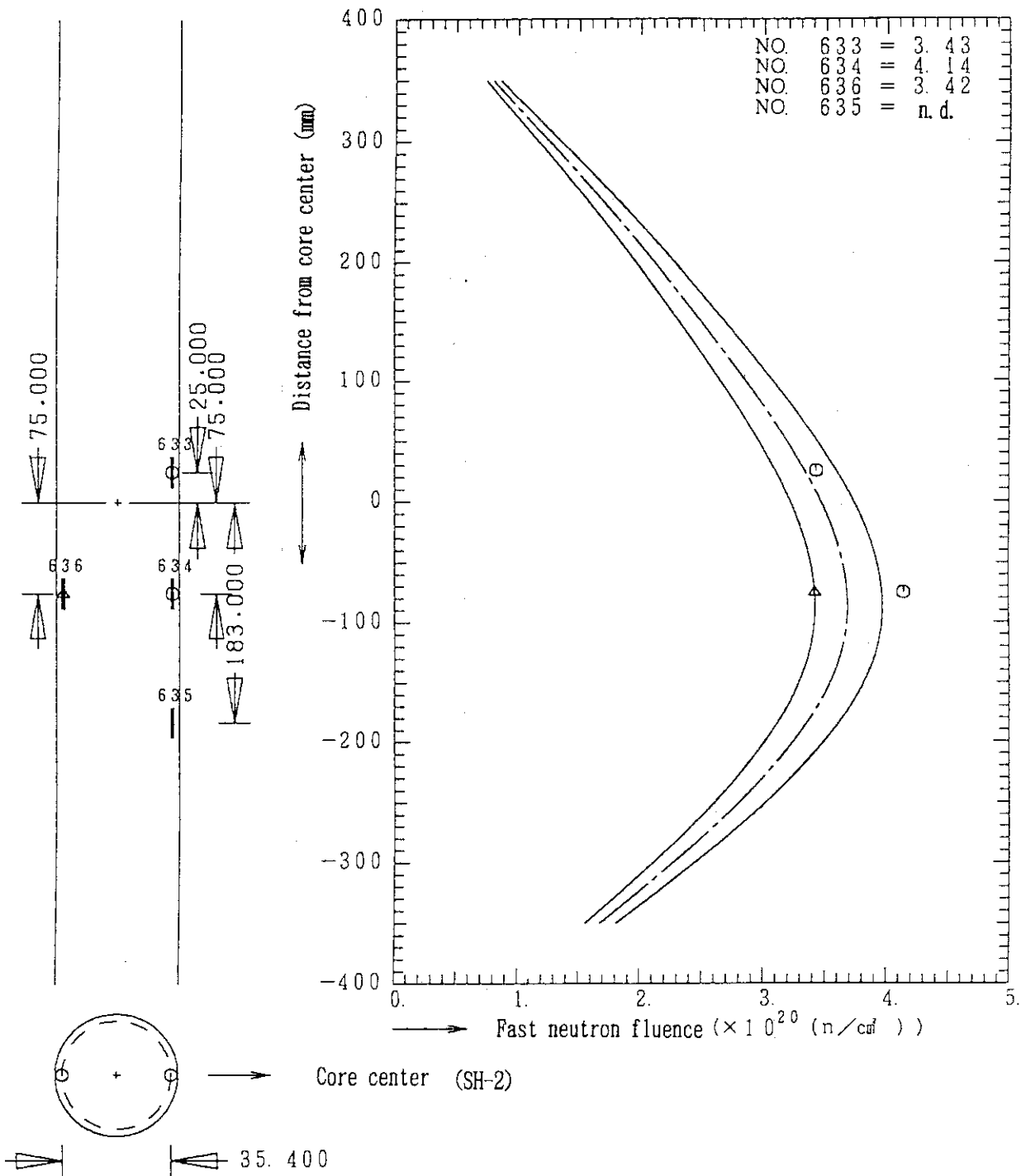


Fig.4.3 Fast neutron fluence on 87F-2A capsule

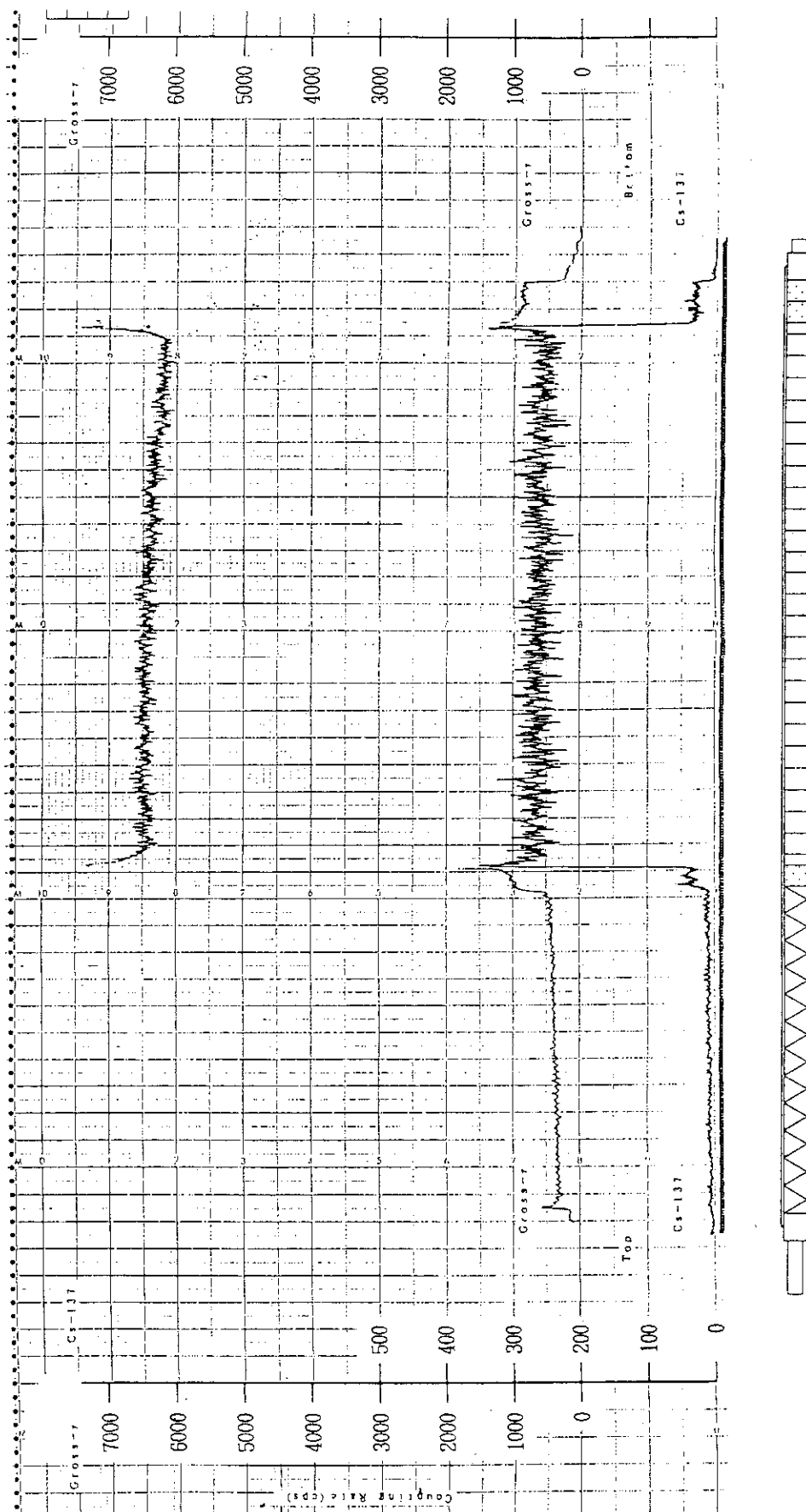


Fig. 4.4 Axial distribution of gross gamma ray on fuel pin

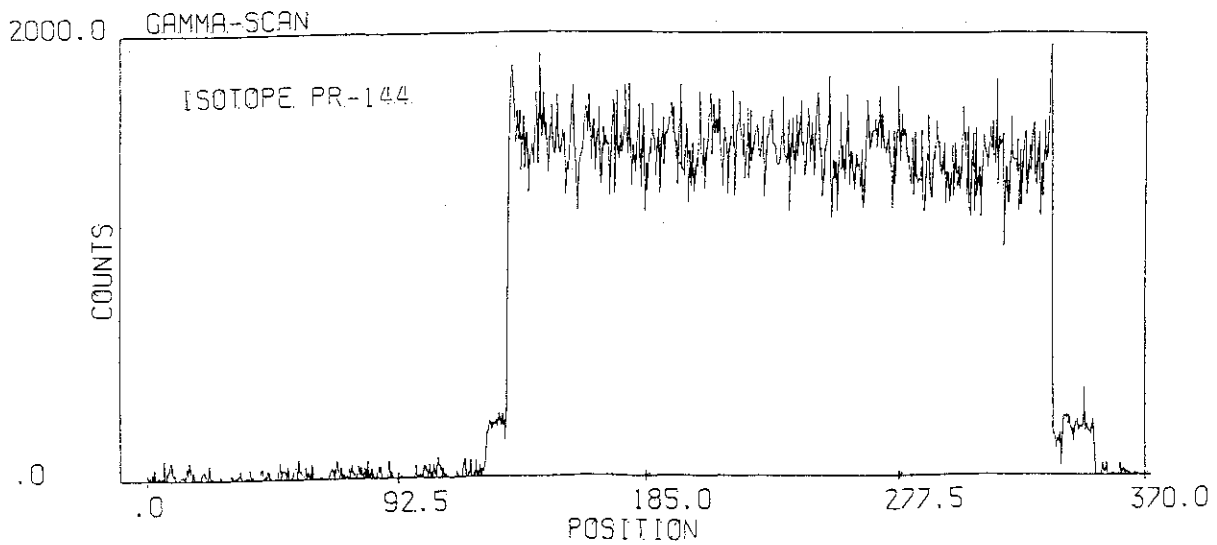
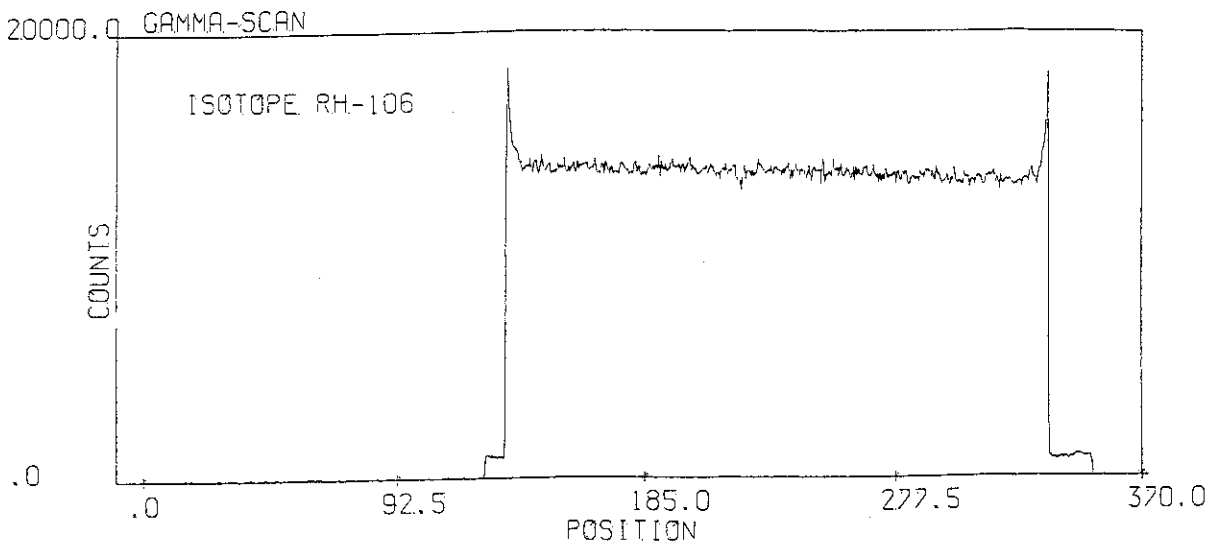
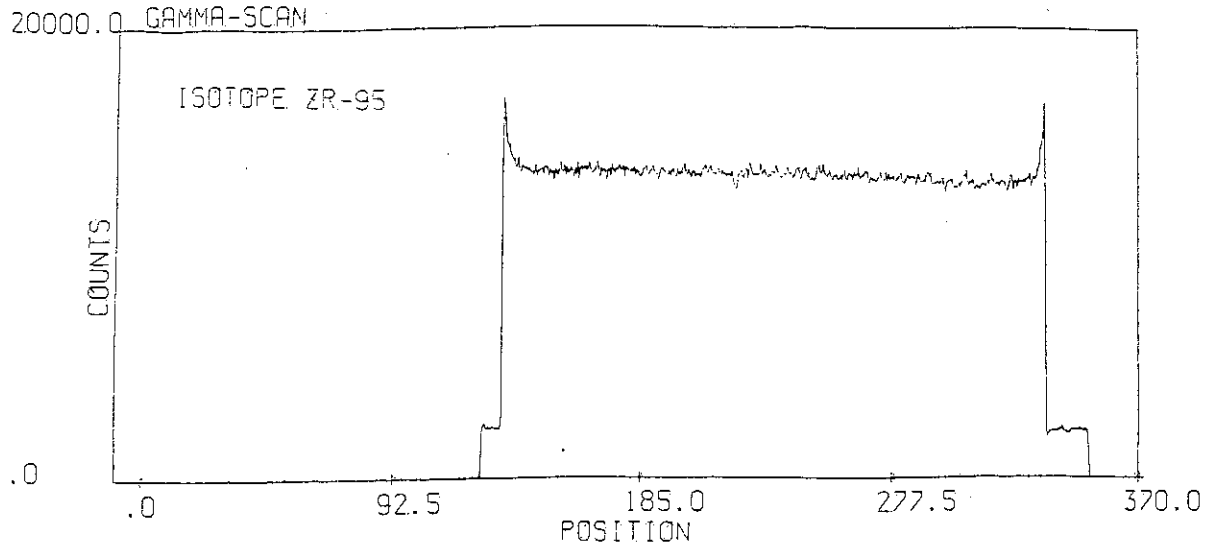


Fig.4.5 Axial distribution of ^{95}Zr , ^{106}Rh , ^{144}Pr , ^{137}Cs and ^{134}Cs on fuel pin

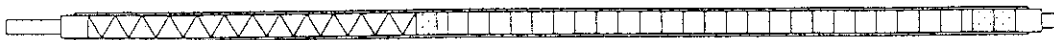
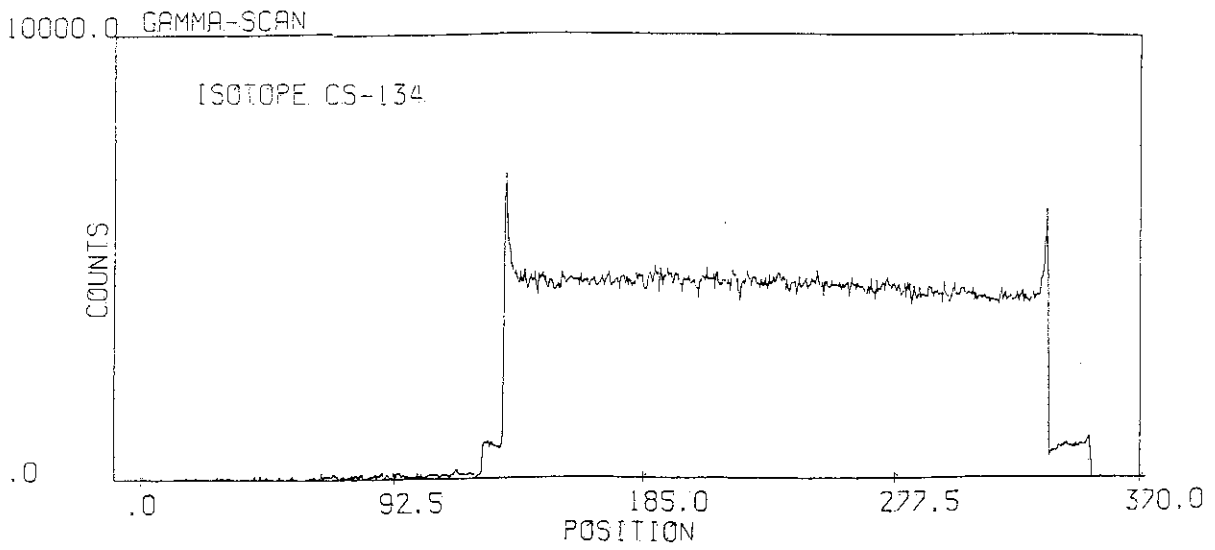
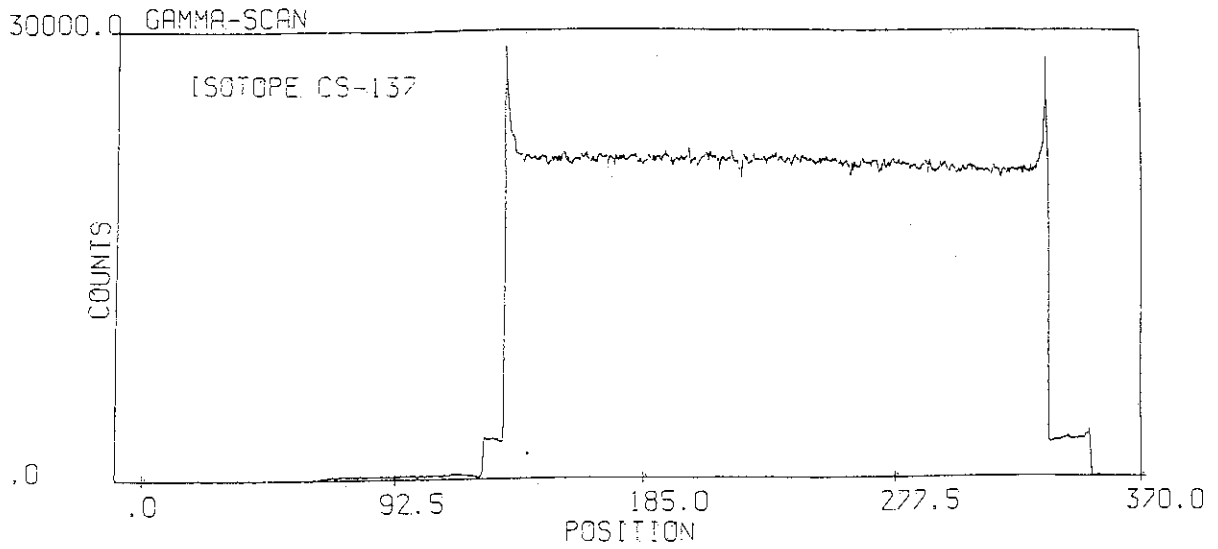


Fig. 4.5 (Continued)

試験名	燃料要素マスキュレーション
測定法	定点点スベクトル測定
チャプセル番号	87F-2A
燃料ビン番号	87F-02
試験期間	1992-10-3

X = 232.03
 Y = .00
 R = .00

PHA-SPECTROL

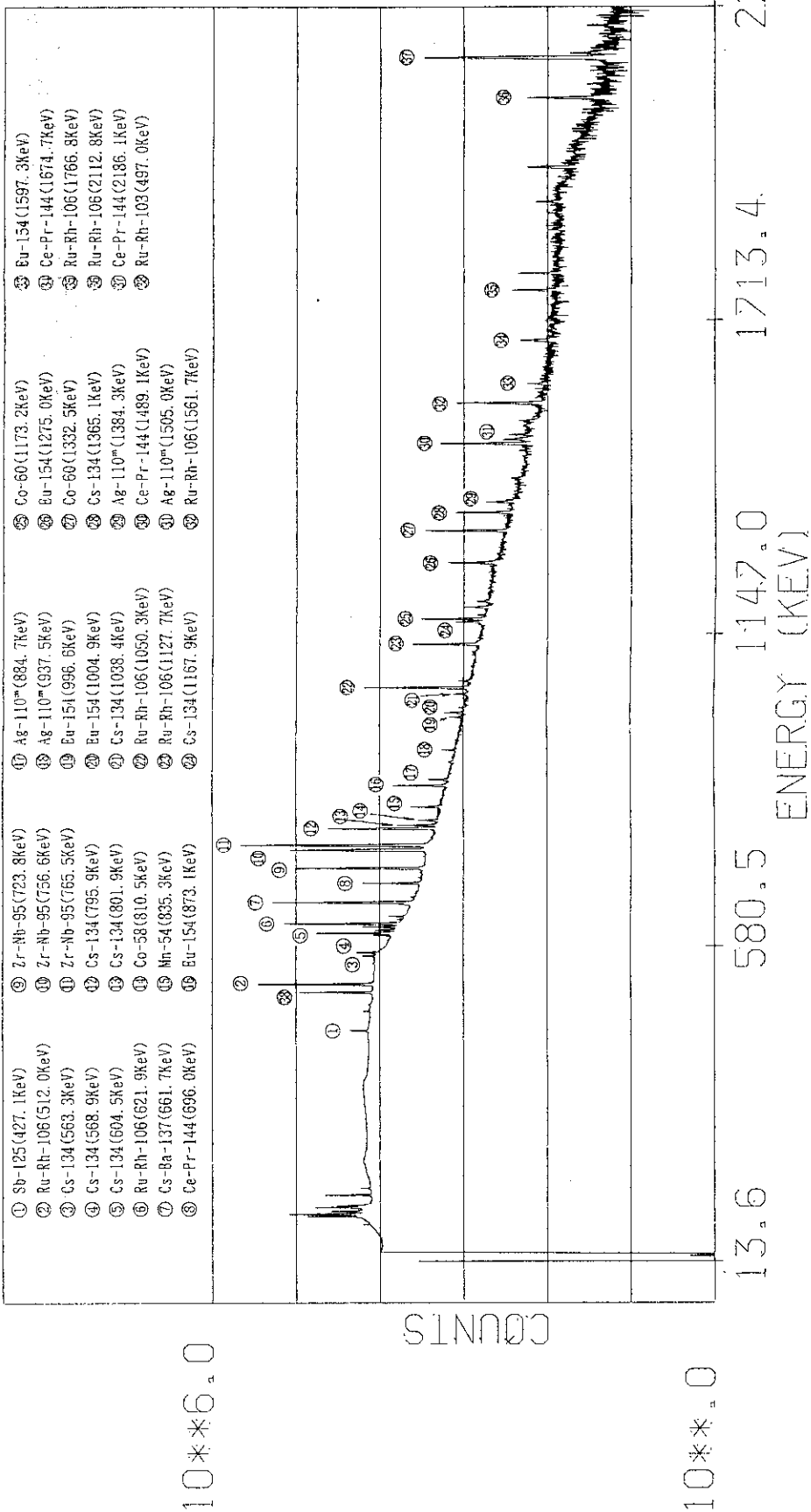


Fig. 4.6 Gamma ray spectrum on the center of (U,Pu)C fuel stack

試験名	燃料要素アスキャンニング
測定法	定時点スペクトル測定
キャセル番号	87F-2A
燃料ピン番号	87F-02
試験期間	1992-10-3

X = 6.04
 Y = .00
 R = .00

PHA-SPECTOL

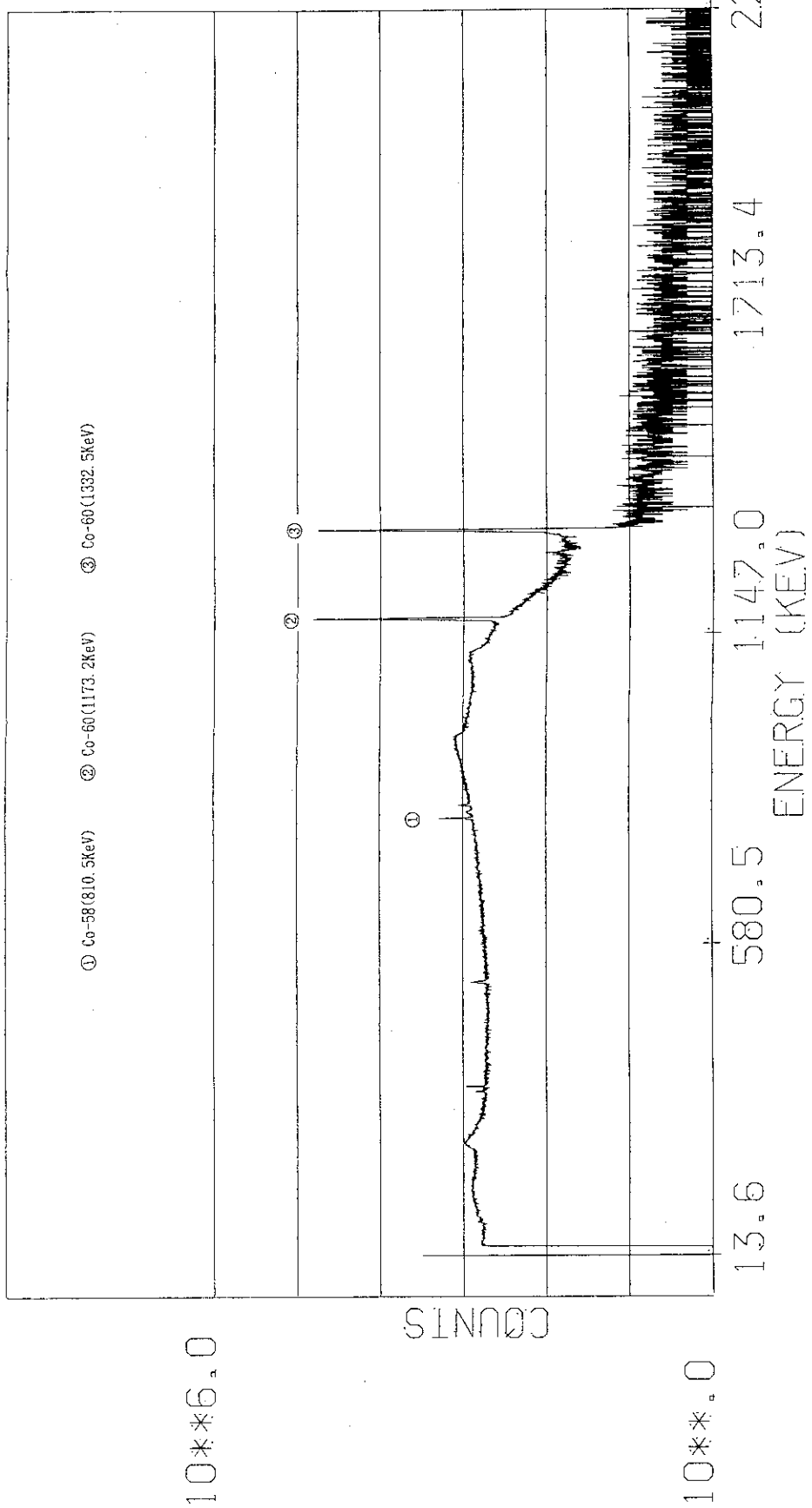


Fig.4.7 Gamma ray spectrum on the upper endplug of fuel pin

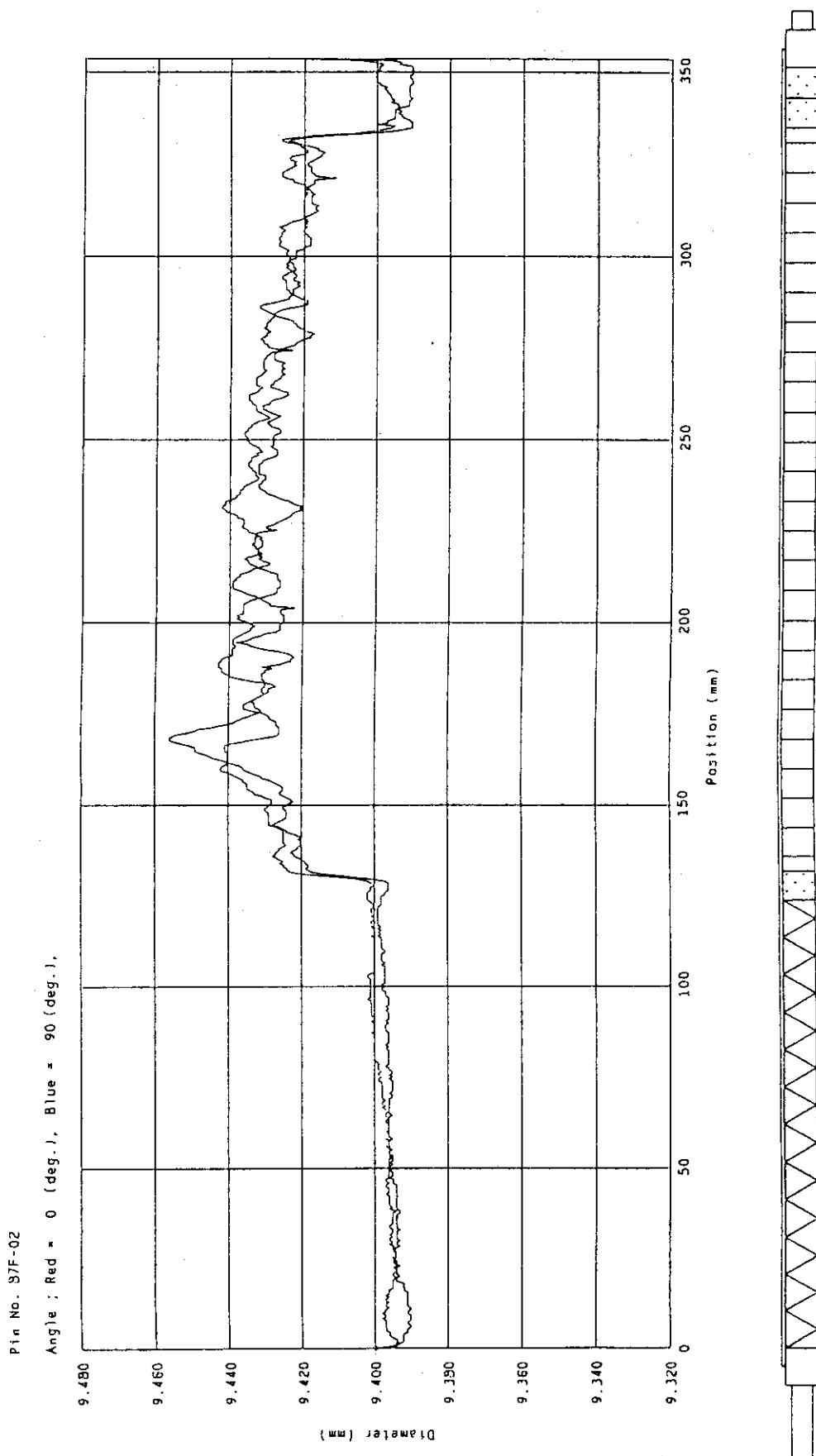


Fig. 4.8 Results of diameter measurements for fuel pin at 0° and 90°

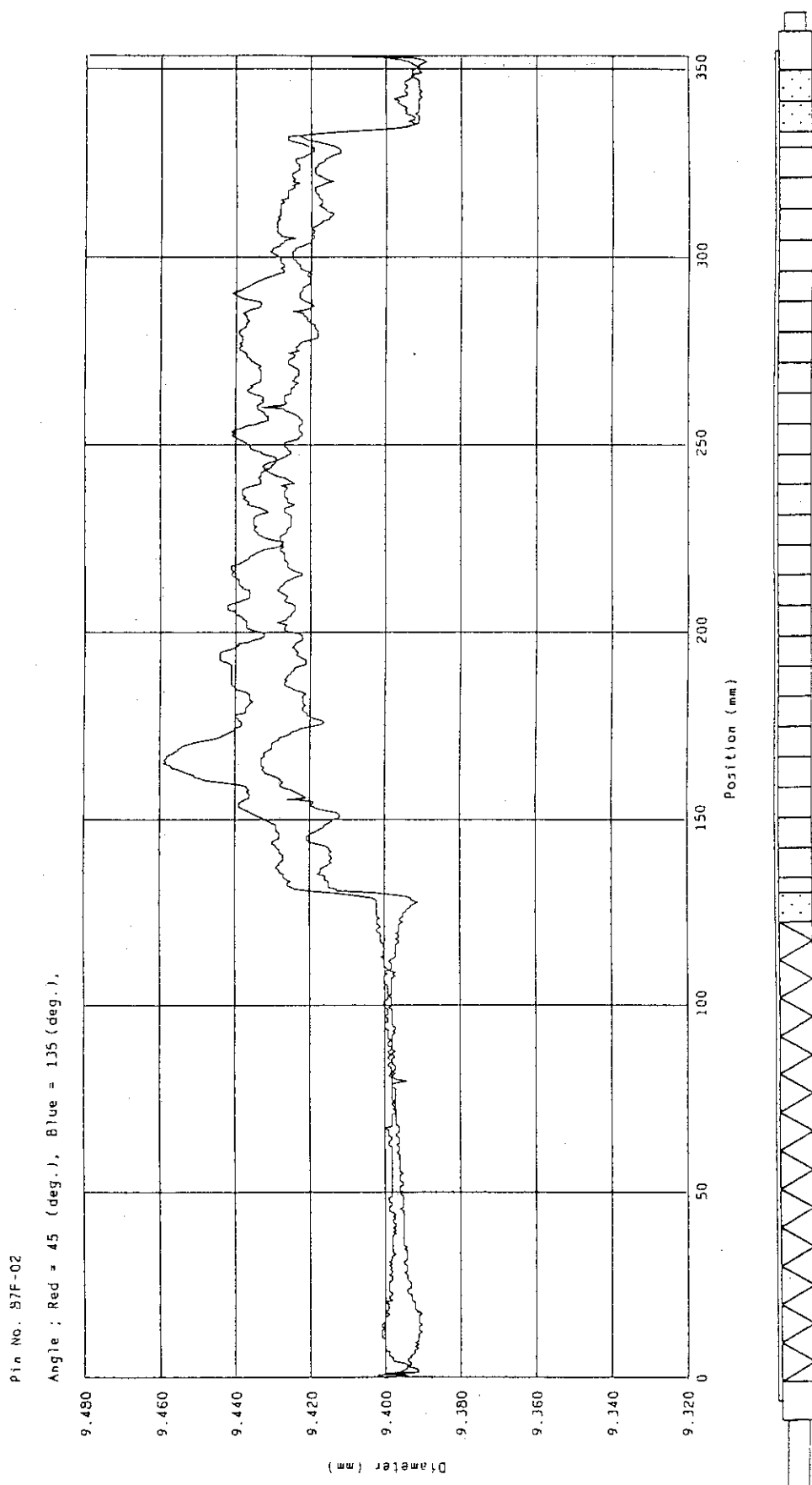


Fig. 4.9 Results of diameter measurements for fuel pin at 45° and 135°

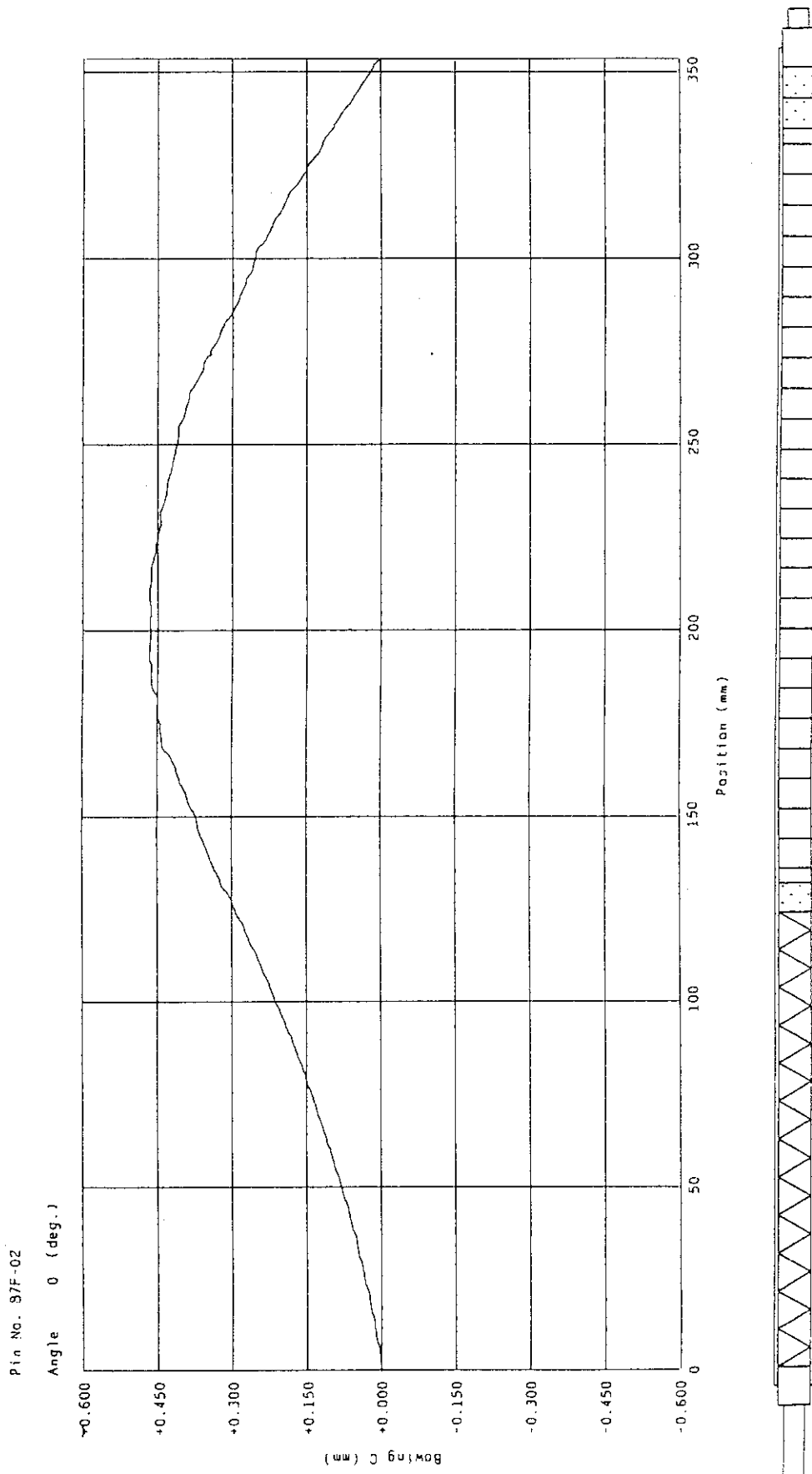


Fig. 4.10 Results of bowing measurements for fuel pin at 0°

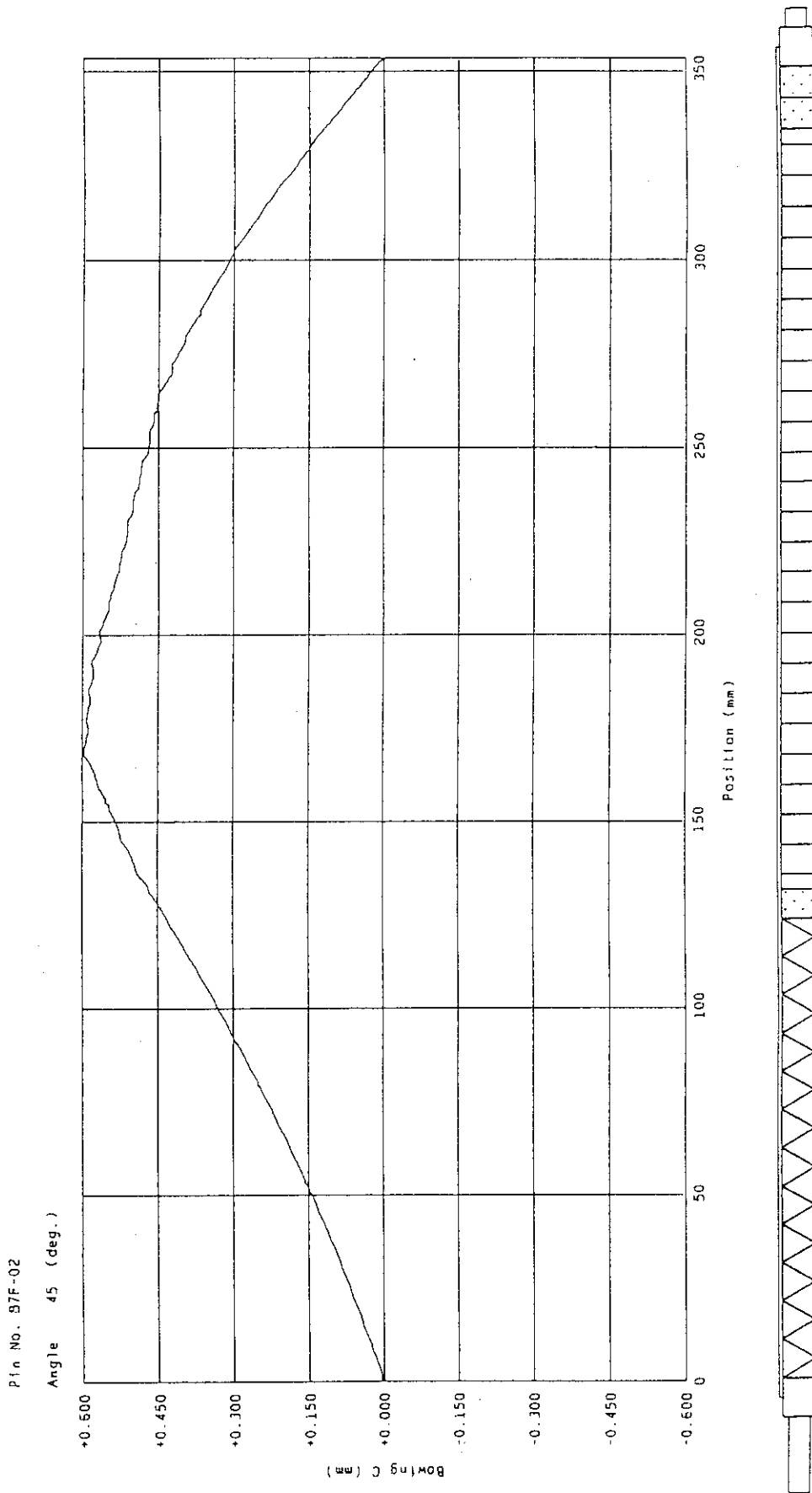


Fig. 4.11 Results of bowing measurements for fuel pin at 45°

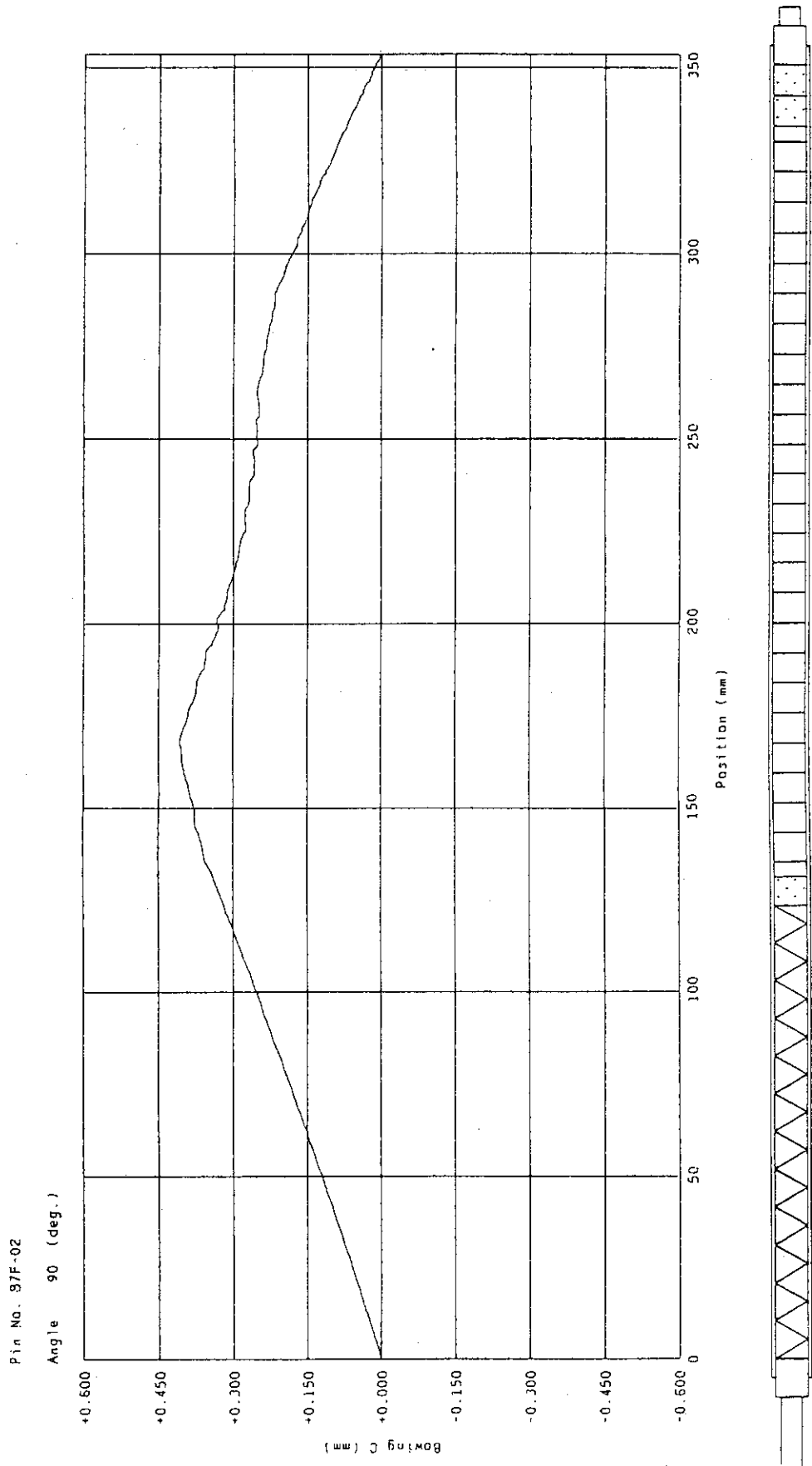


Fig. 4.12 Results of bowing measurements for fuel pin at 90°

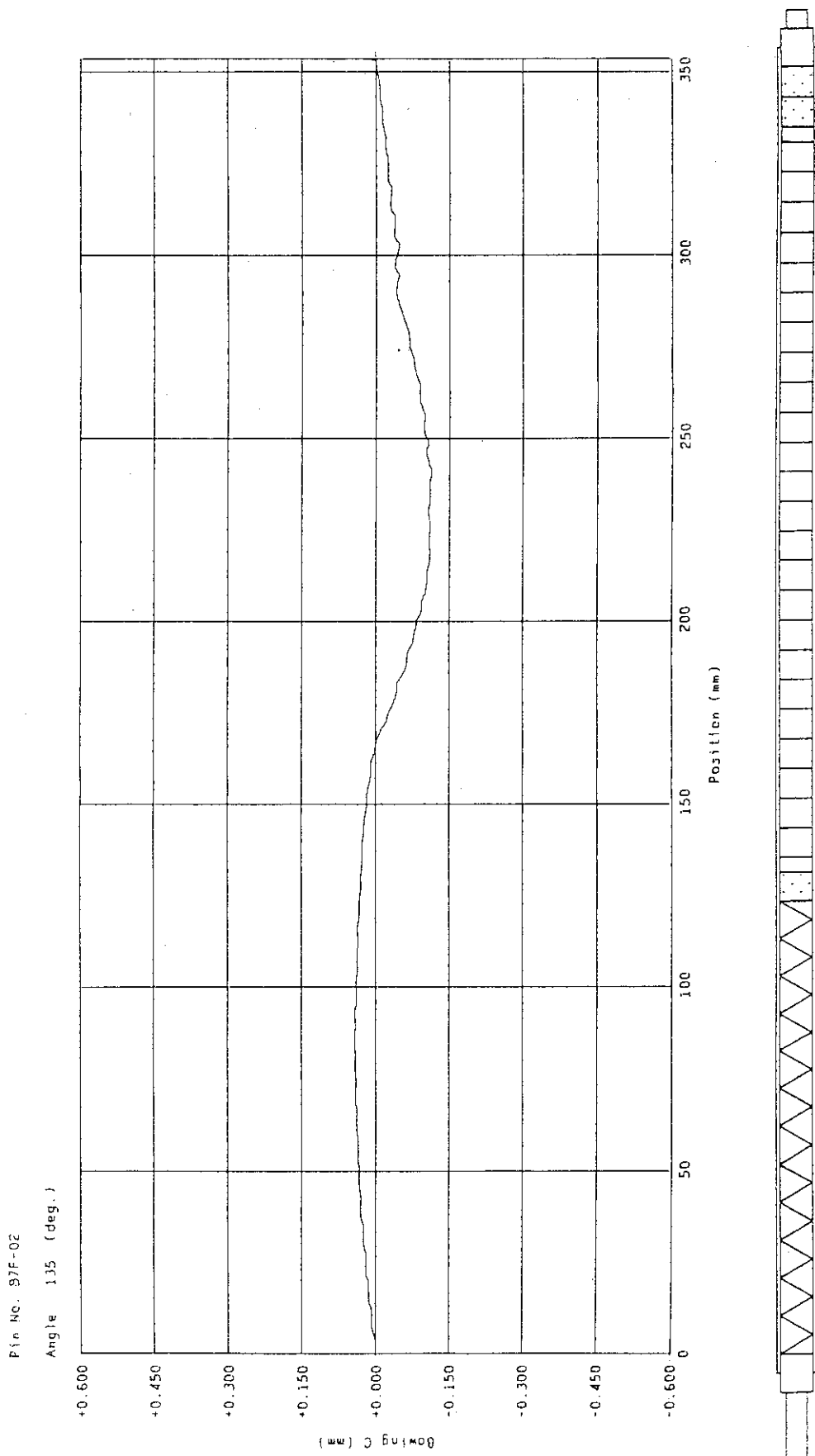
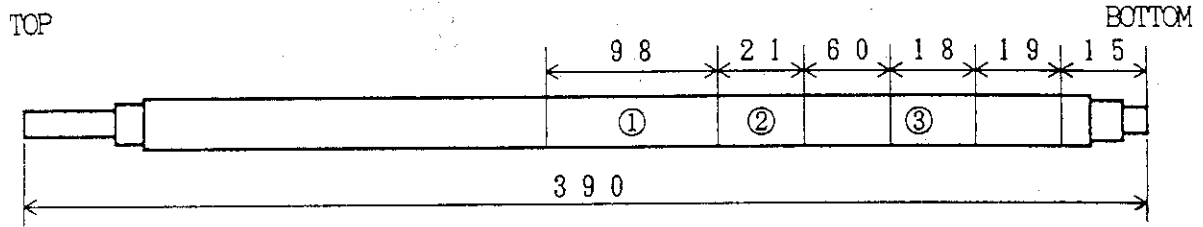
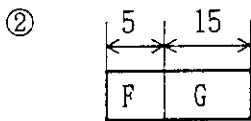
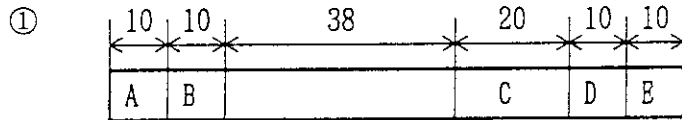


Fig. 4.13 Results of bowing measurements for fuel pin at 135°



Sample name : ① 02A
 ② 02B
 ③ 02C



Sample name : A 02A1
 B 02A2
 C 02A3
 D 02A4
 E 02A5
 F 02BC
 G 02BP
 H 02CP

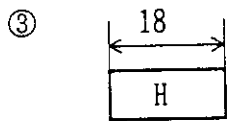


Fig. 4.14 Cutting and sectioning position of fuel pin

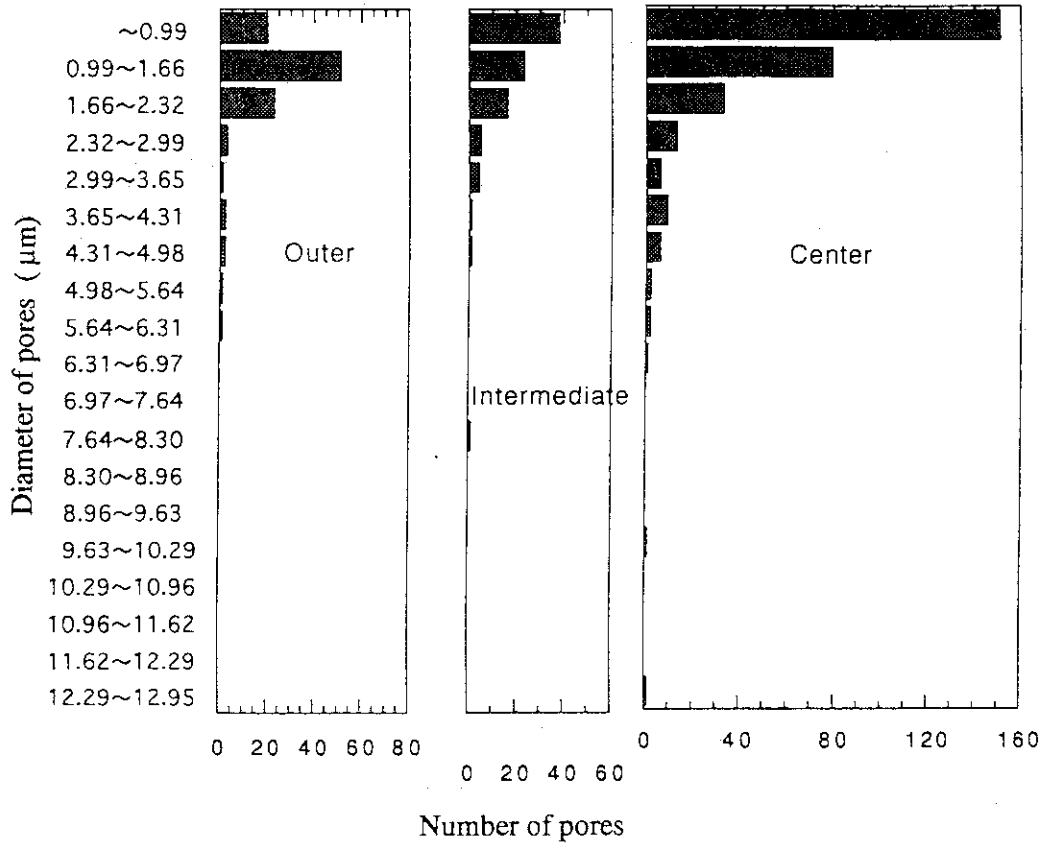


Fig. 4.15 Pore distribution of fuel pellet (02A1)

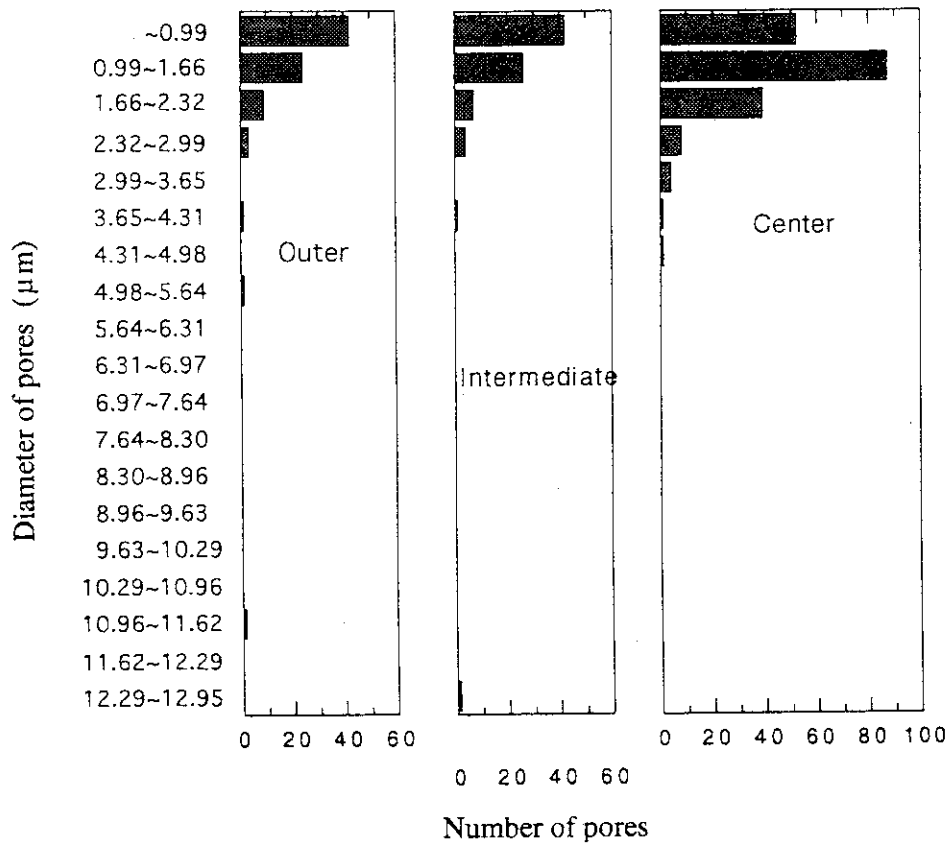


Fig. 4.16 Pore distribution of fuel pellet (02A5)

V = 0.00
 H = 0.00
 PHA-SPECTOL
 燃料ピン番号 87F-2
 試料番号 02A2
 試験日 05-07-05

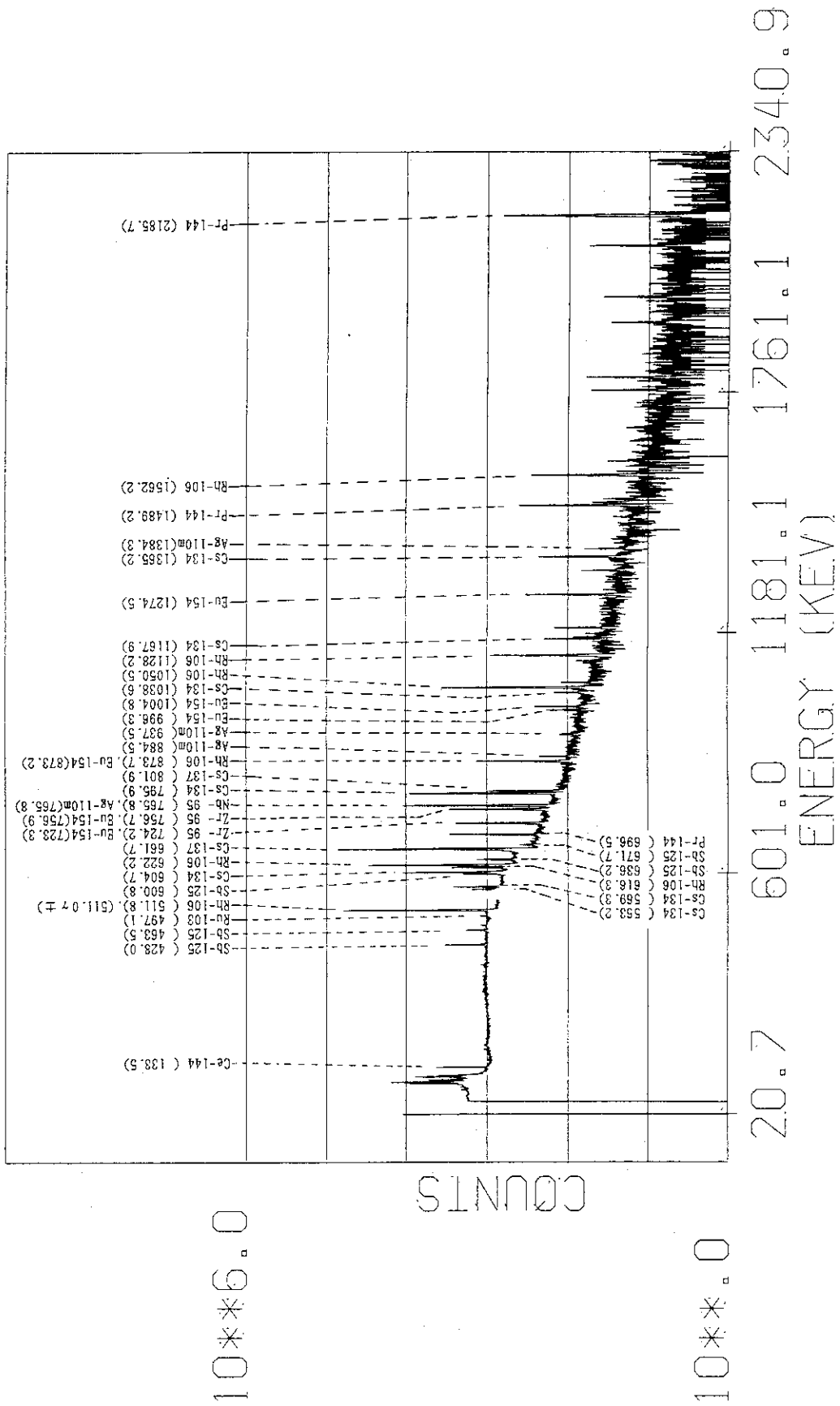


Fig. 4.17 Gamma ray spectrum at the center of fuel pellet

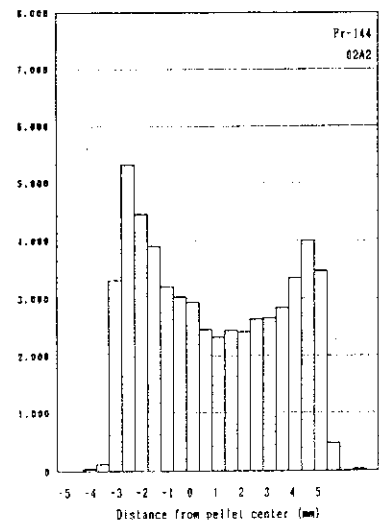
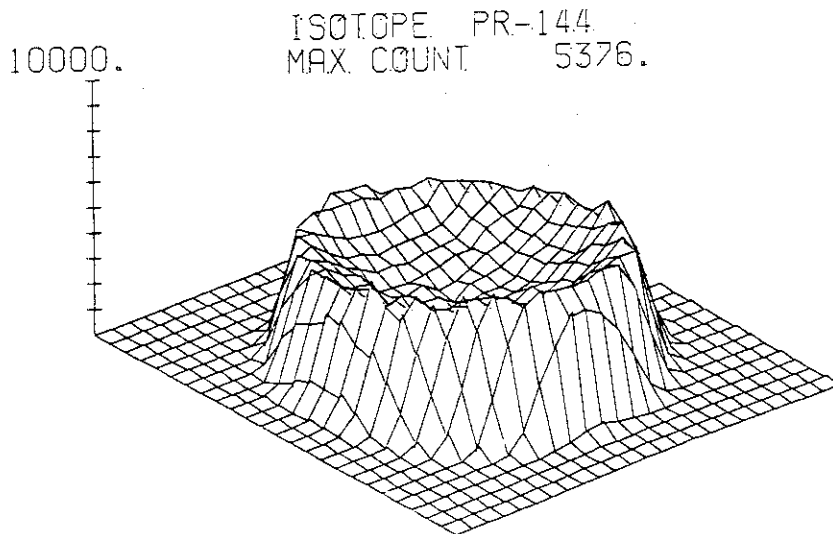
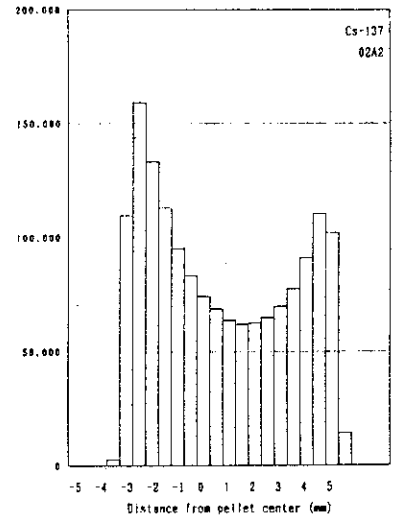
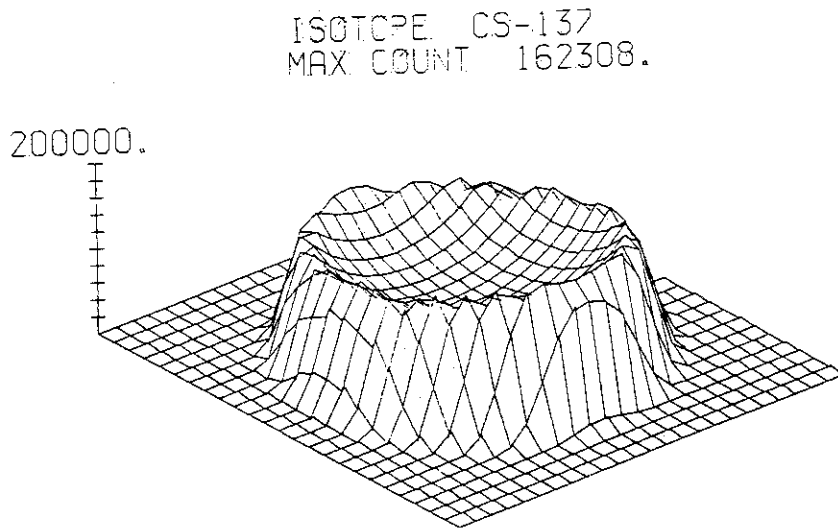
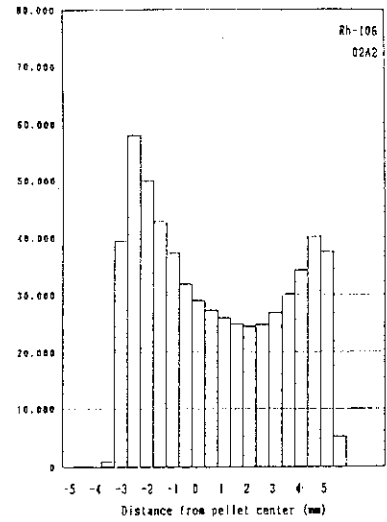
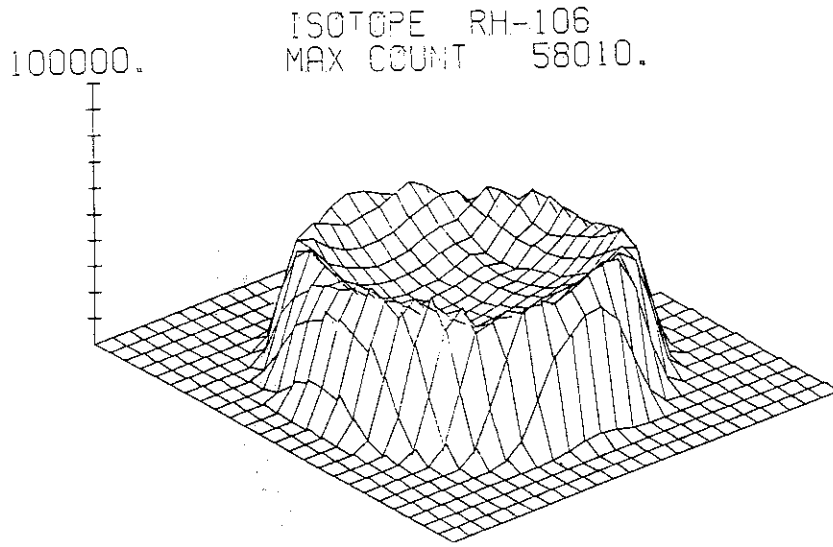
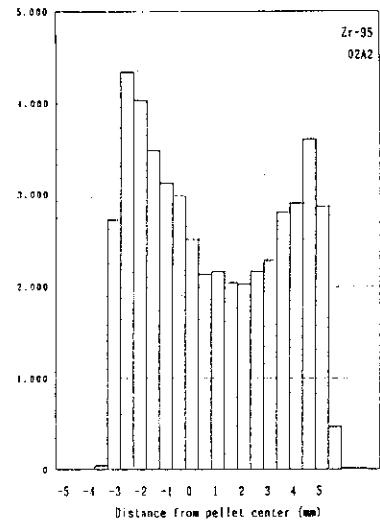
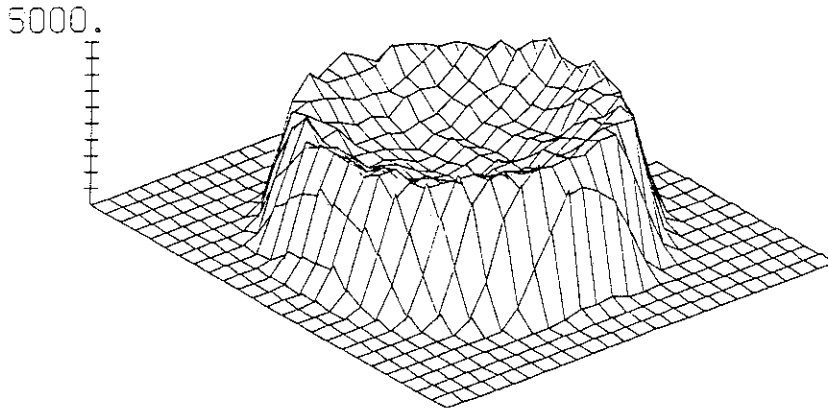


Fig. 4.18 Radial distribution of ^{106}Rh , ^{137}Cs , ^{144}Pr , ^{95}Zr and ^{134}Cs in fuel pellet

ISOTOPE ZR-95
MAX. COUNT 4339.



ISOTOPE CS-134
MAX. COUNT 30053.

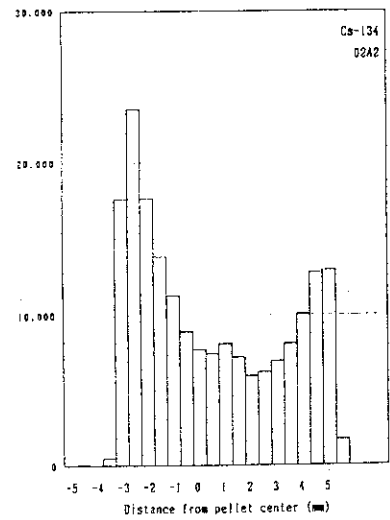
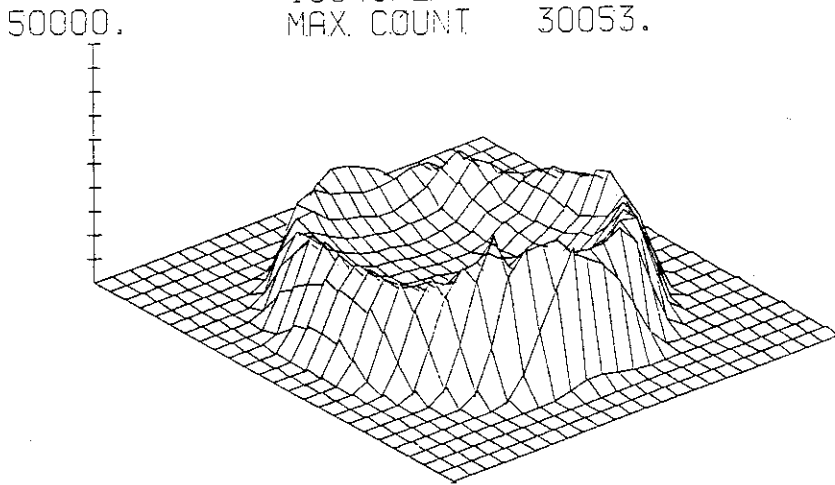


Fig. 4.18 (Continued)

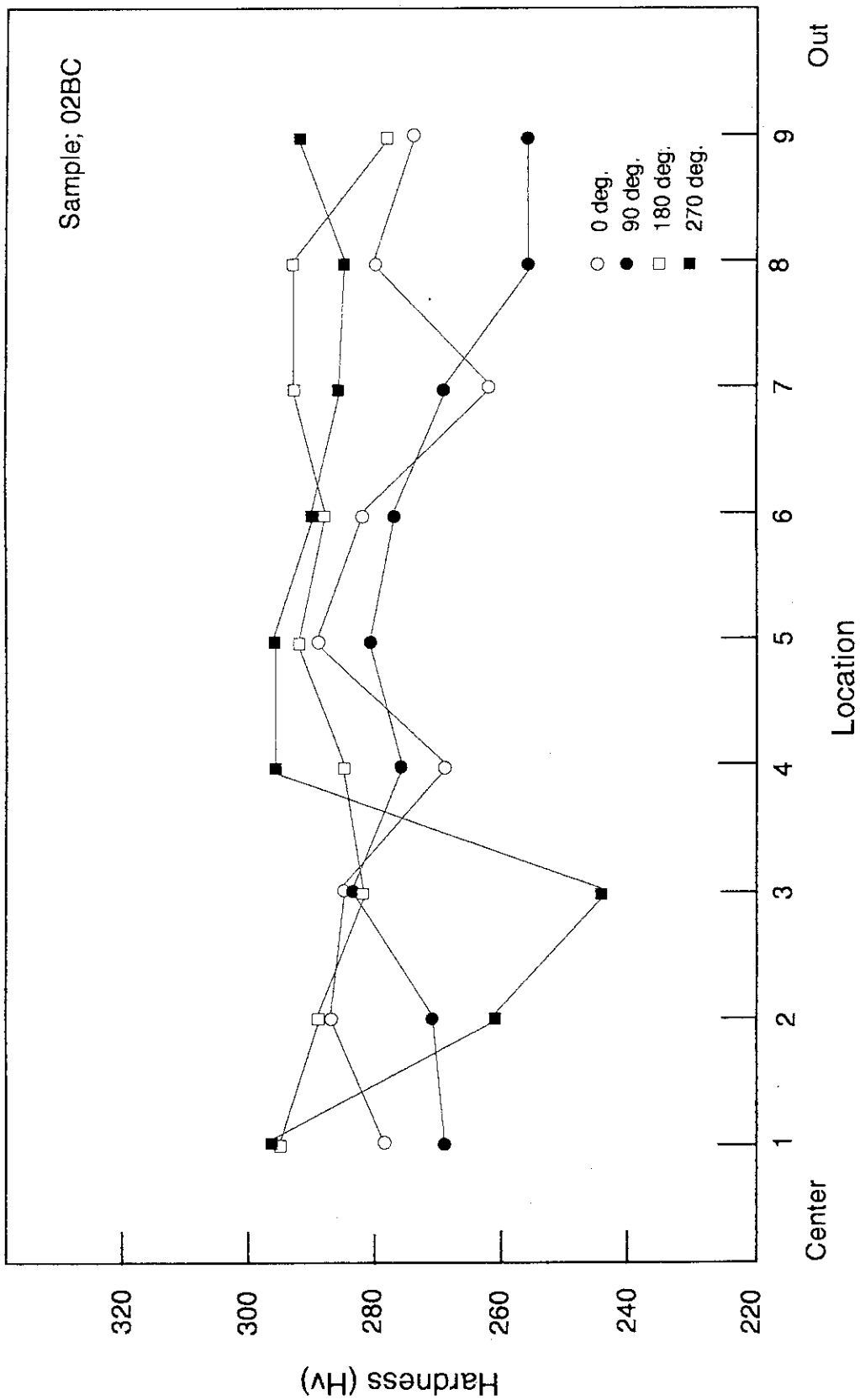


Fig. 4.19 Results of hardness measurements of cladding tube

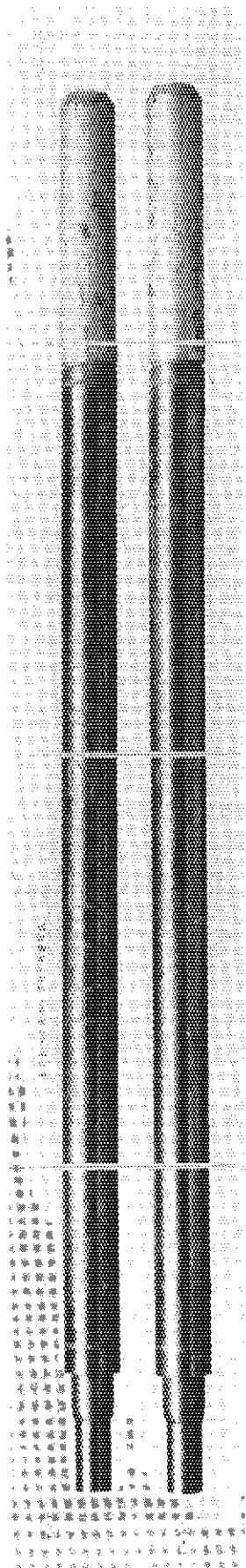


Photo. 4.1 Appearance of 87F-2A capsule after irradiation

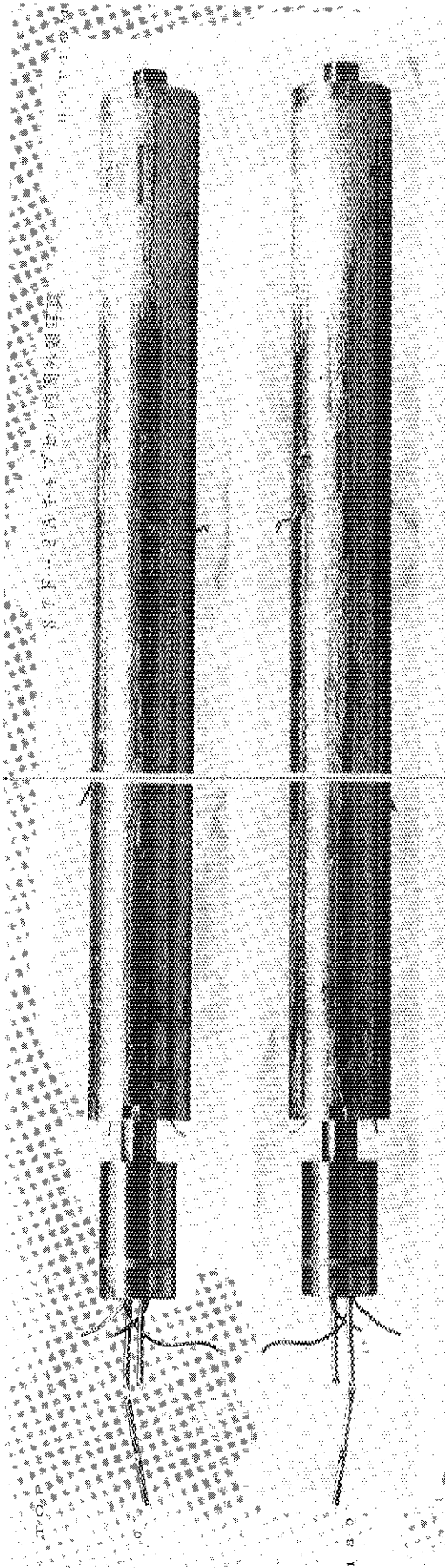


Photo. 4.2 Appearance of inner tube of 87F-2A capsule

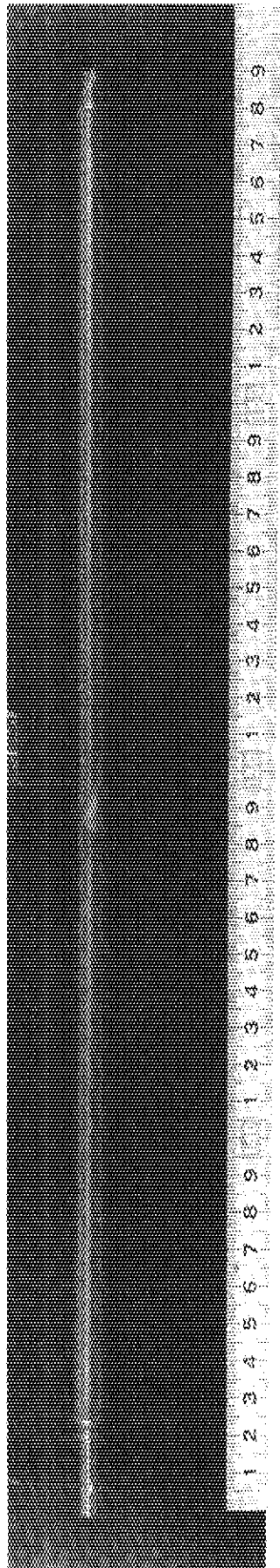


Photo. 4.3 Appearance of 87F-02 fuel pin

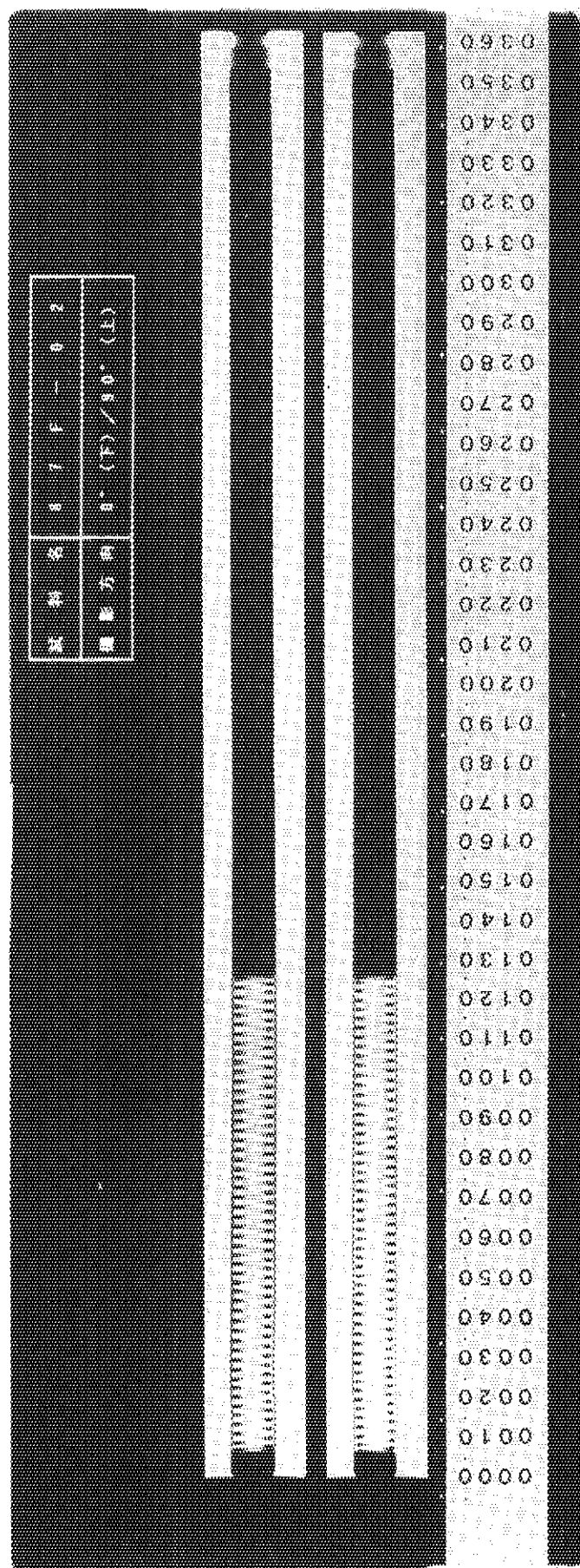
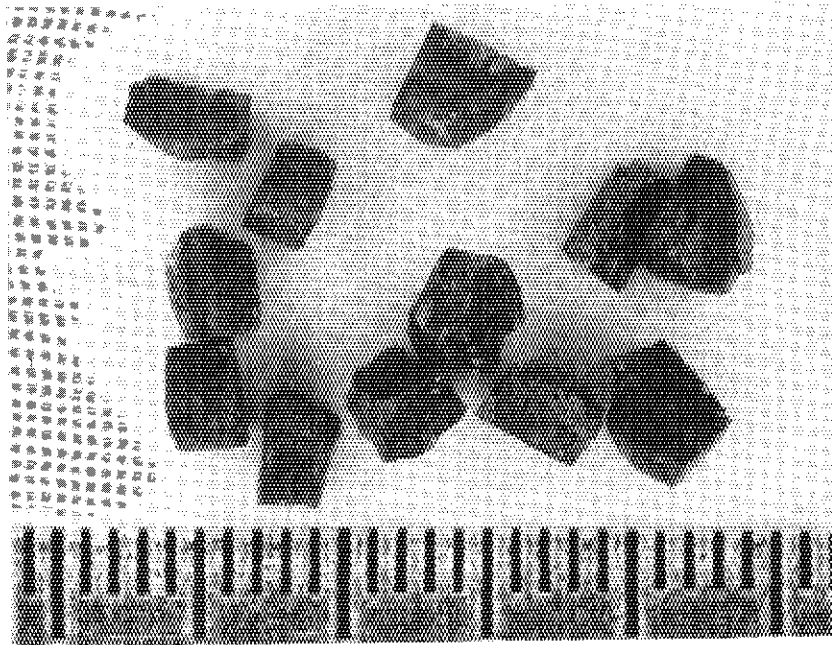


Photo. 4.4 X-ray radiograph of 87F-02 fuel pin

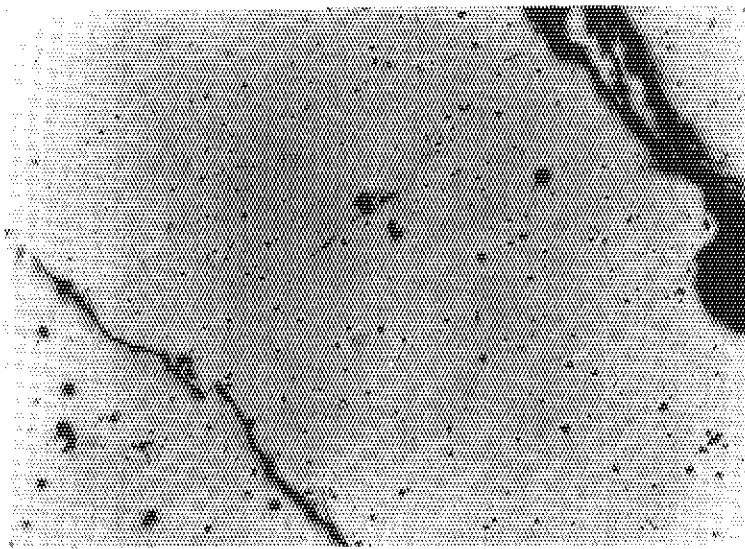


02BP

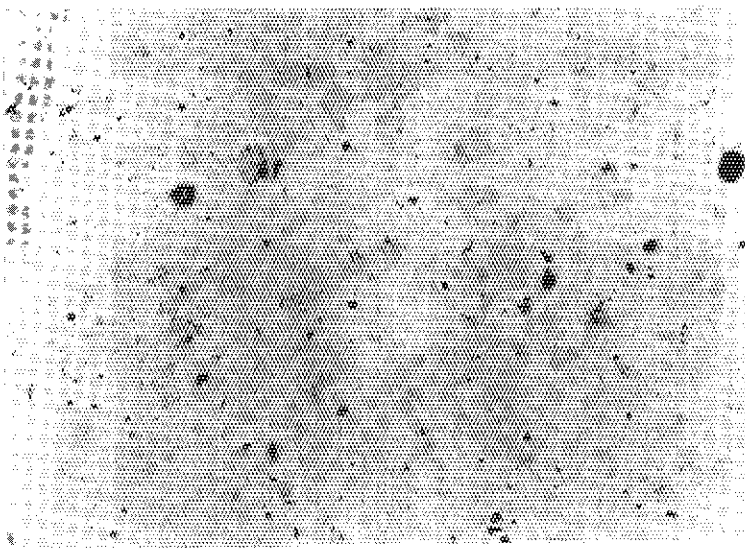


02CP

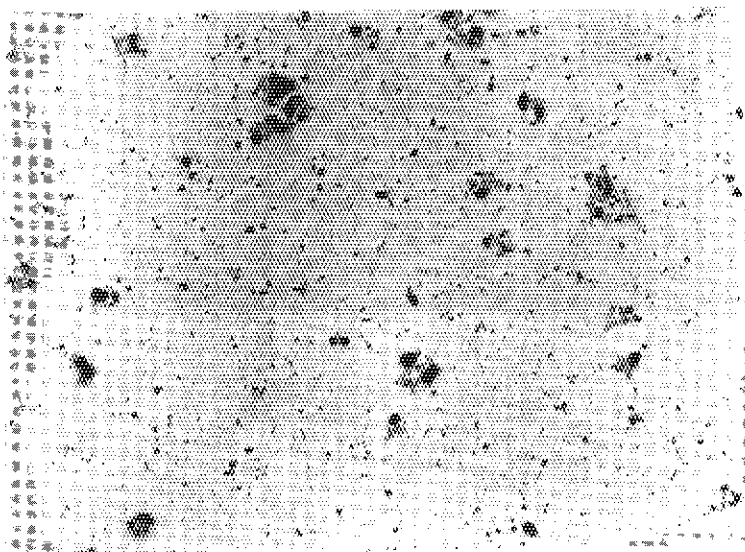
Photo. 4.5 Appearance of fragments of fuel pellets after removal from fuel pin



Outer



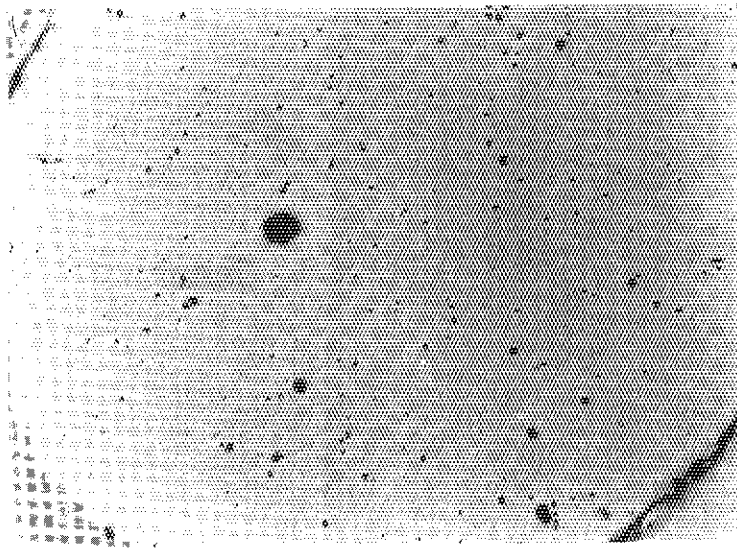
Intermediate



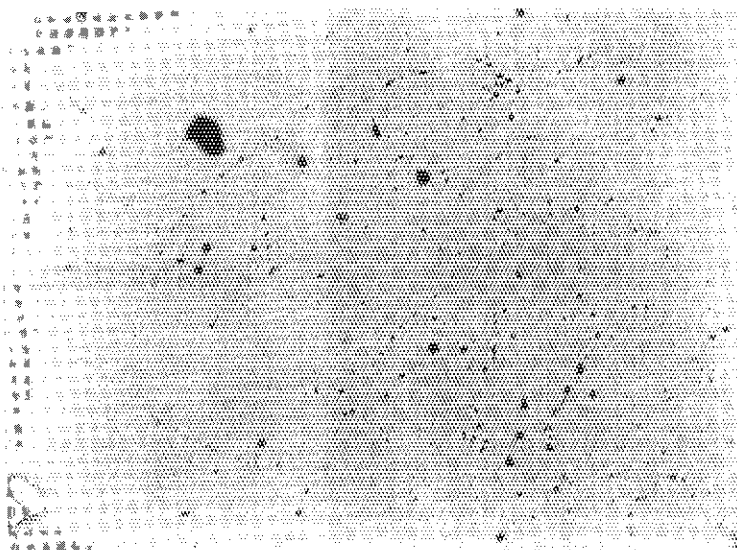
Center

25 μ m

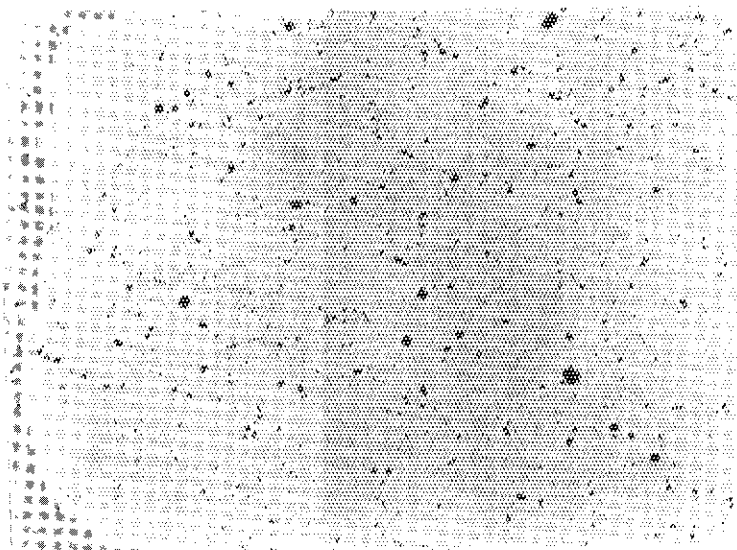
Photo. 4.6 Photograph of fuel pellet for pore distribution analysis (O2A1)



Outer



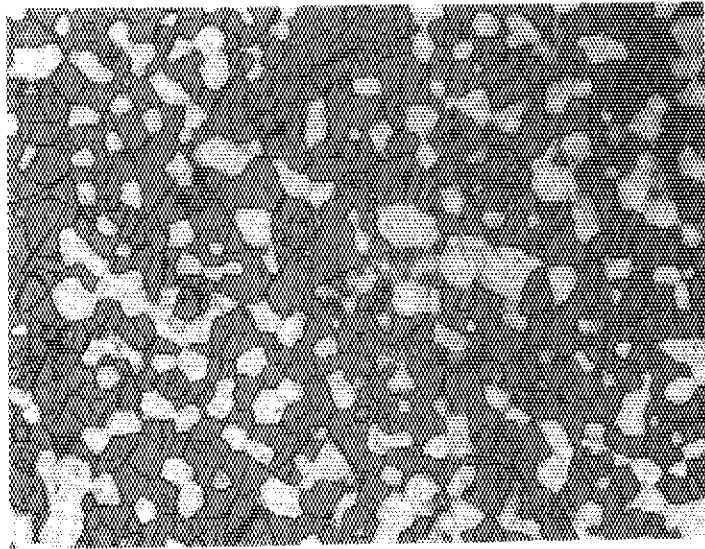
Intermediate



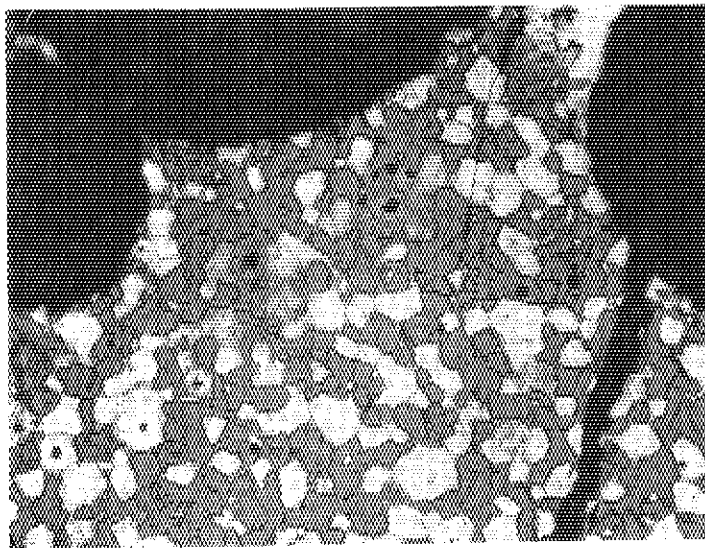
Center

25 μ m

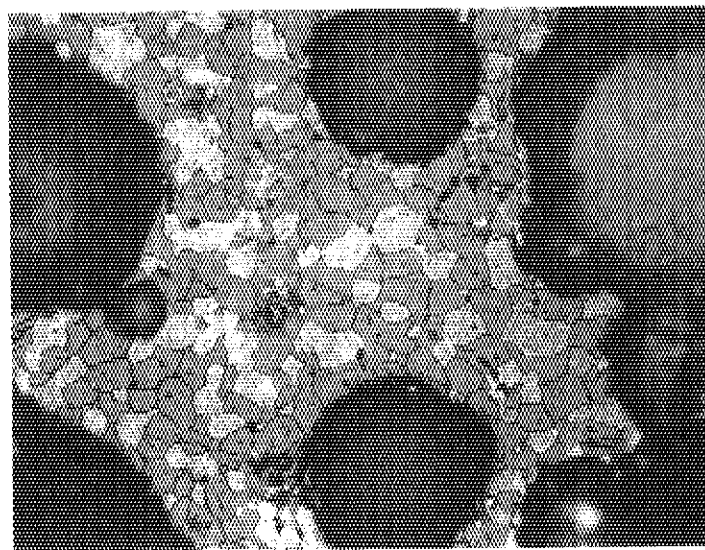
Photo. 4.7 Photograph of fuel pellet for pore distribution analysis (02A5)



Outer



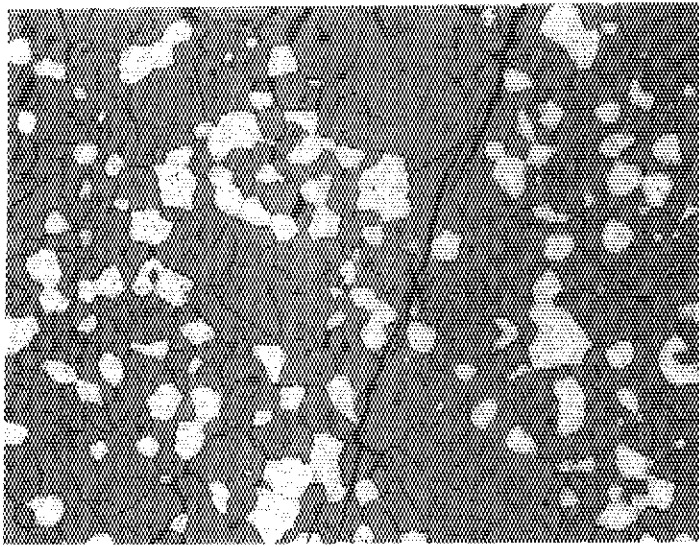
Intermediate



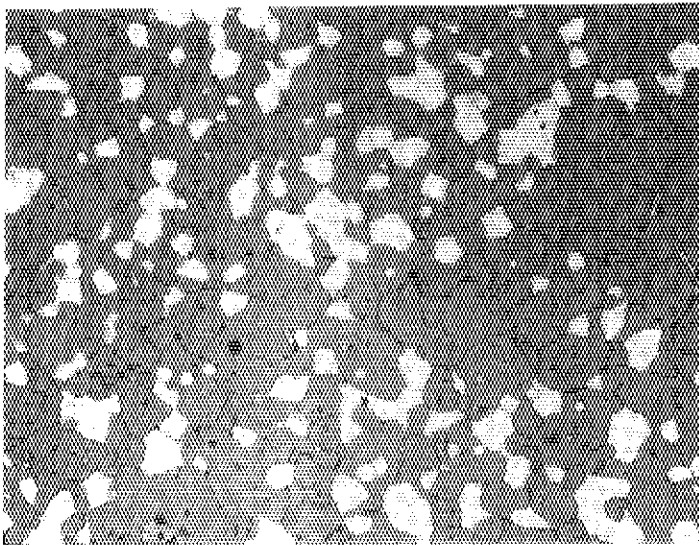
Center

25 μ m

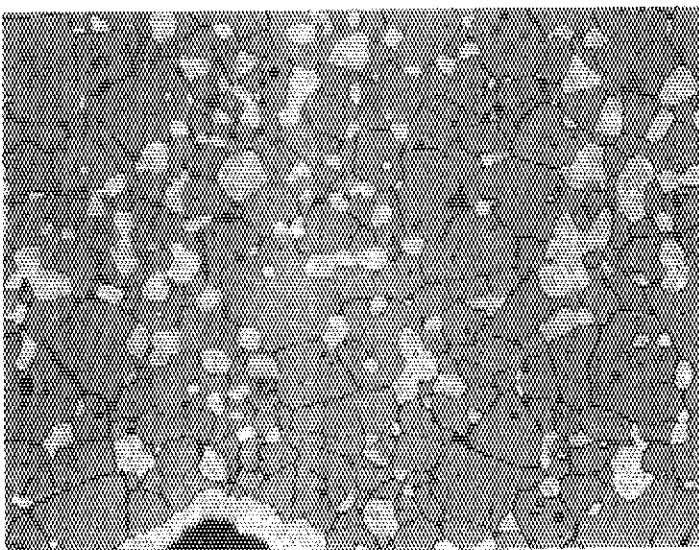
Photo. 4.8 Microstructure of fuel pellet (O2A1)



Outer



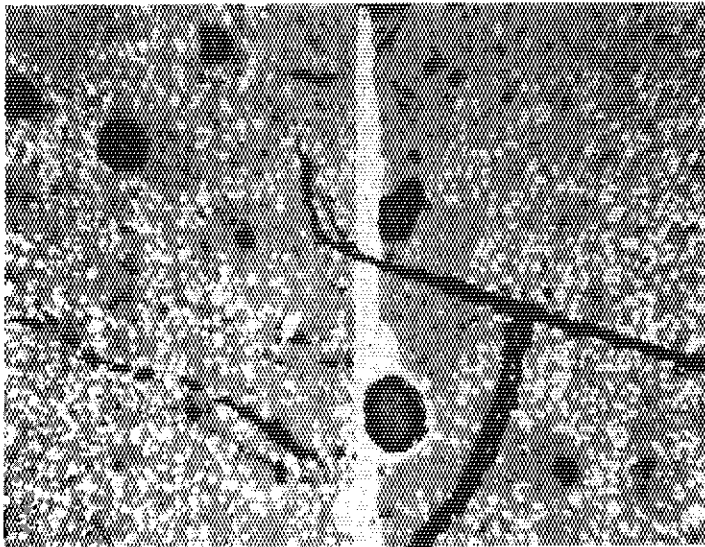
Intermediate



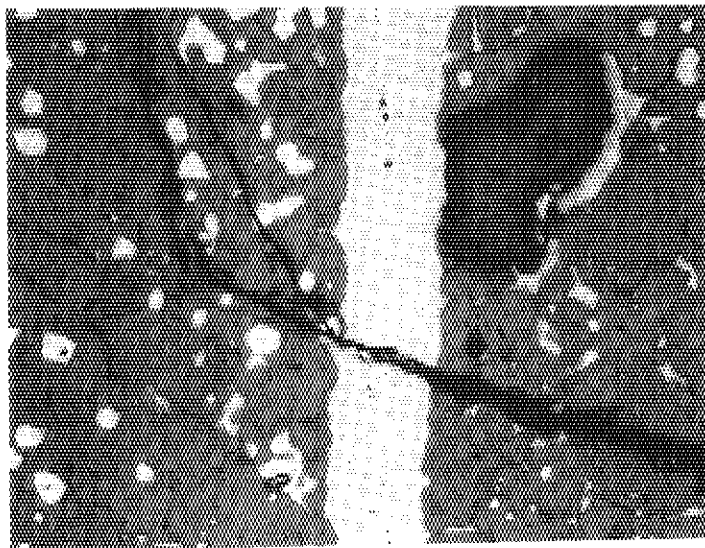
Center



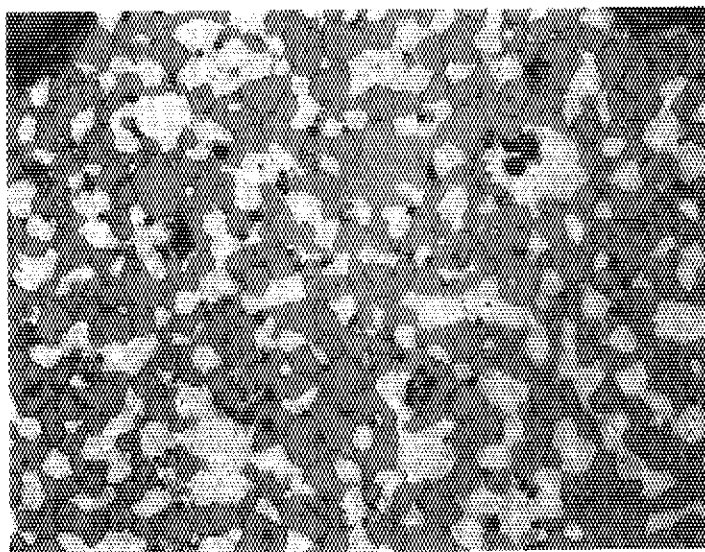
Photo. 4.9 Microstructure of fuel pellet (02A5)



100 μ m



25 μ m



25 μ m

Photo. 4.10 Microstructure of fuel pellet (02A3)

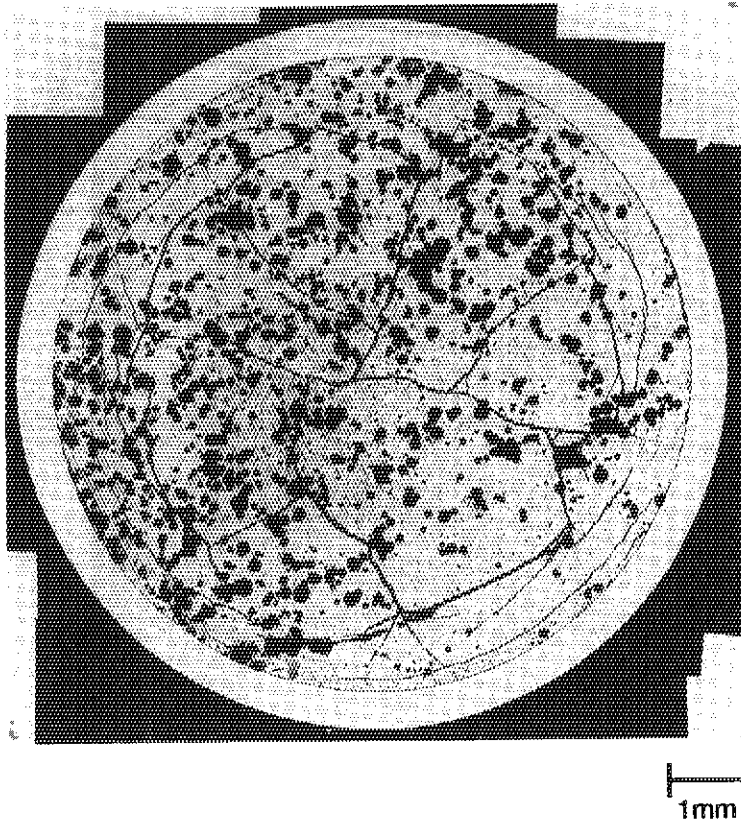
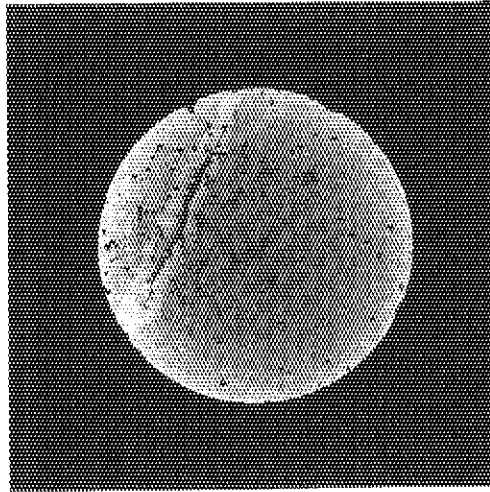


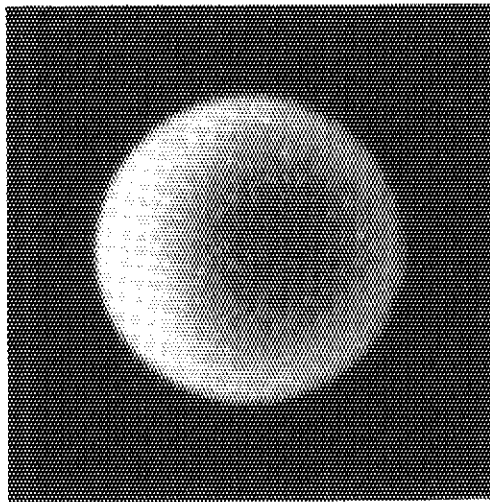
Photo. 4.11 Macroscopic photograph of fuel pellet (02A1)



Photo. 4.12 Macroscopic photograph of fuel pellets (02A3)



α



$\beta \cdot \gamma$

2mm

Photo. 4.13 Alpha and beta-gamma radiograph of fuel pellet

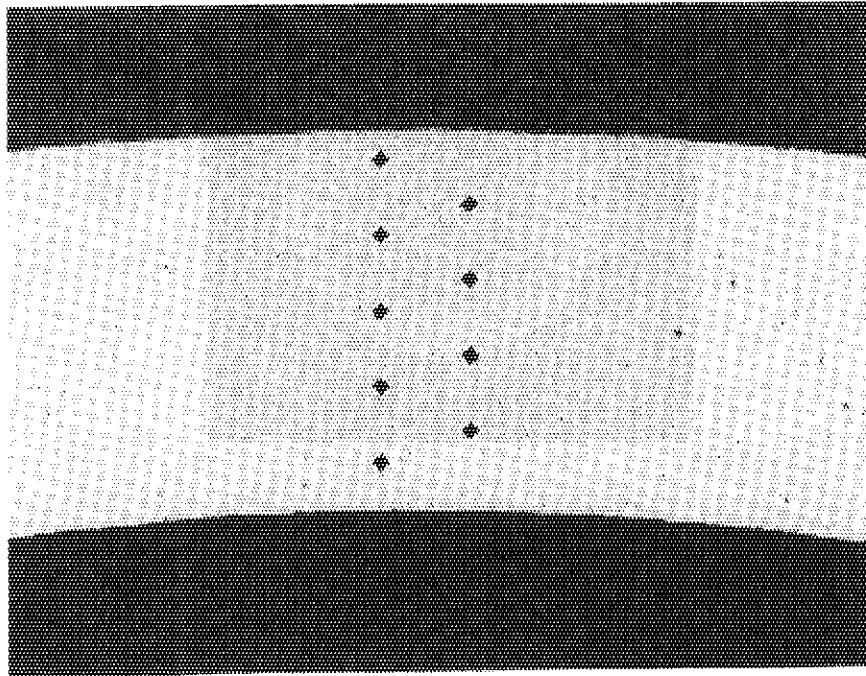
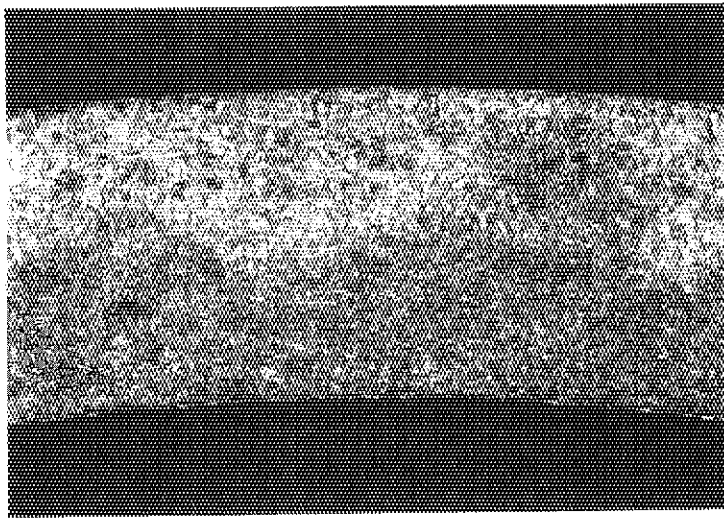
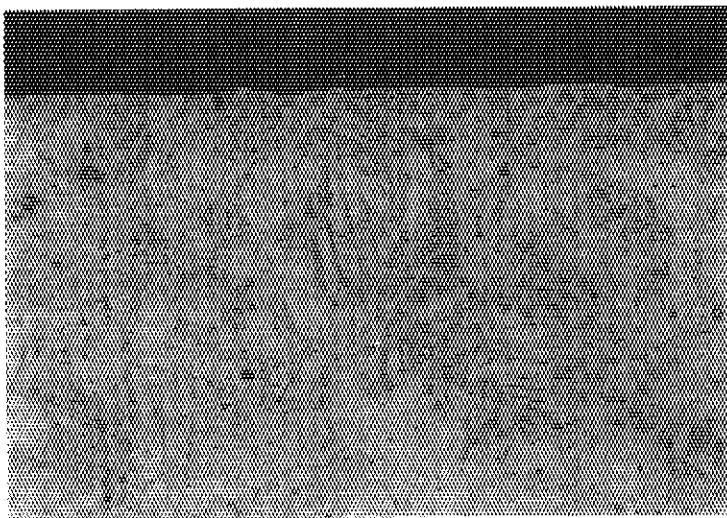


Photo. 4.14 Traces of vickers hardness measurement on cladding tube

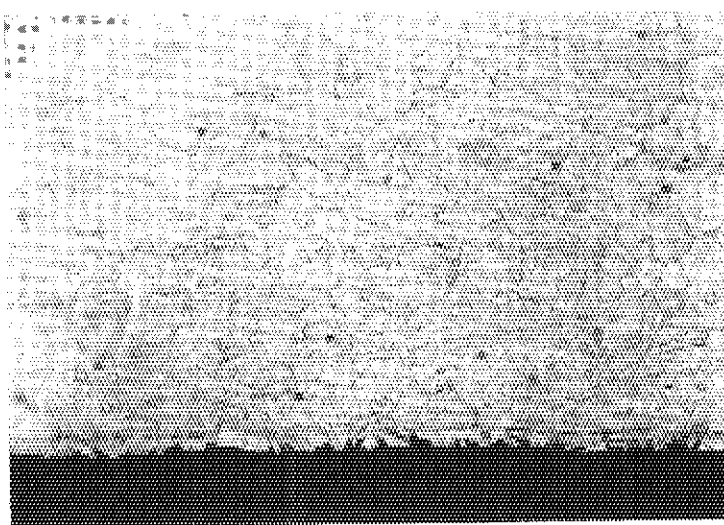


100 μ m



Outer

20 μ m



Inner

20 μ m

Photo. 4.15 Macro- and microstructure of cladding tube

5. ま と め

今回の87F-2A混合炭化物燃料キャプセルの照射及び照射後試験に関して得られた結果について以下に要約する。

(1) 混合炭化物燃料ピン

超化学量論的組成の混合炭化物ペレットを316 ステンレス鋼被覆管（外径9.40mm、肉厚0.51mm）に充填した短尺燃料ピン（燃料スタック長200mm、ピン全長390mm）を大洗研燃料研究棟で製作した。

(2) 照射キャプセル

上記の燃料ピンをJMTRに輸送して、照射キャプセル87F-2Aに組み込んだ。

(3) 照射

87F-2Aキャプセルは、JMTR炉心外照射孔0-9において、昭和63年10月から平成4年2月までの17サイクル（集積照射時間8924時間、熱中性子照射量（フラックスモニタ最大位置で） $1.57 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 、高速中性子照射量（フラックスモニタ最大位置で） $4.14 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ ）、平均線出力60kW/mの条件下で、4.38%FIMA(37,700MWd/t)まで照射された。照射初期の燃料中心温度は約1240℃と推定された。

(4) 照射後試験

照射済燃料を東海研まで輸送して、燃料試験施設で照射後試験を実施した。主に非破壊試験は $\beta \cdot \gamma$ セルで、破壊試験は $\alpha \cdot \gamma$ セルで行った。破壊試験の前半の工程では、アルゴンガス雰囲気を採用した。キャプセルの搬入から被覆管のEPMA観察に至るまで34項目について試験を行った。

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

(a)燃料ピン直径変化

(U, Pu)C 燃料スタック部において、最大 $\sim 0.06 \text{ mm}$ ($\Delta D/D$ では $\sim 0.6\%$)の照射による直径増加が観察された。

(b)FPガス放出率

FPガス放出率は0.6%と、従来の燃料に比べて極端に低い値が得られた。

(c)燃料ペレット密度変化

照射による燃料ペレットの密度変化は約2%T.D.の減少であり、これらを燃焼度(%FIMA)当たりのスエリング率に換算すると0.4% \sim 0.5%T.D.に相当した。この値は、前回あるいは前々回の試験結果よりも若干低いものであった。

(d)燃料ペレット気孔率

照射後の燃料ペレットの閉気孔率は15 \sim 16%であるのに対し、開気孔率は極めて低く機器の変動幅で規程される測定下限以下であった。

(e)燃料ペレット気孔分布

製造時に導入した気孔形成剤による気孔は照射後もほぼそのままの形で残存していた。それ以外の気孔分布についてはペレット外周、中間領域では照射以前に近いものであるのに対し、中心領域では3 μm 未満の気孔数が増加し、それに伴い気孔率の増加も見られた。

(f)燃料ペレット結晶粒径

照射後の燃料ペレットの結晶粒径は、外周、中間、中心領域とも 10~11 μm であり、ほぼ製造時の値が保たれていた。

(g)燃料ペレットマクロ組織

径方向に数本の大きなクラックが見られ、さらにそこから小枝のようなクラックが生じていた。また、外周部では円周方向に沿った細かいクラックの発生も見られた。燃料ペレットと被覆管のギャップは閉塞していた。

(h)燃料ペレットオートラジオグラフ

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

(i)燃料ペレットマイクロ線スキャニング

オートラジオグラフから得られた結果同様に、いずれのFP元素も外周部ほど濃度の高いことが判明した。

(j)被覆管内面の腐食

被覆管内面の腐食はみとめられなかった。

(k)被覆管の硬さ

照射による硬さの変化はみとめられなかった。

以上が主要な結果であるが、今回の照射後試験では数多くの新しい知見が得られた。まず、熱安定型燃料ペレットの採用に起因して、従来の燃料と比較して極めて低い開気孔率とFPガス放出率、緩やかな組織変化等が観測された。また、第1~4回の混合炭化物燃料の照射後試験結果と合わせて、多くの燃焼度に依存した事象についての系統的な理解が得られた。

原研所内炉を利用した混合炭化物燃料の照射は5体のキャプセル、計9本の燃料ピンについて試験を終了して、今後は動燃事業団との共同研究に基づき今年8月より開始された高速実験炉常陽での照射試験に引き継がれる。これまでの成果を踏まえて、高燃焼度、高線出力、高速中性子束条件下での照射挙動について、より多くの知見が得られることが期待される。

おわりに、本試験の遂行に際して御指導及び御助言をいただいた東海研立川圓造副所長、半田宗男燃料研究部長、星三千男同次長、石本清ホット試験室長、大洗研小山田六郎材料試験炉部長、宮川邦男管理部長並びに大道敏彦前TRU燃料研究室長に厚く感謝いたします。また照射用燃料ピンの製作では大洗研燃料研究棟の皆様、キャプセル設計・製作では材料試験炉部照射1課並びに技術部工作課、照射にあたっては材料試験炉部計画課、照射後試験ではホット試験室及び材料試験炉部ホットラボ課、使用済核燃料の保管廃棄では保健物理部放射性汚染処理2課の諸氏に並々ならぬ御支援をいただきました。ここに心からお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 前多 厚、笹山 龍雄、岩井 孝、相沢 作衛、大和田 功他、"ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低出力(第1回)照射及び照射後試験"、JAERI-M 88-219 (1988).
- 2) 岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、相沢 作衛、川崎 公靖他、"ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の中出力(第2回)照射及び照射後試験"、JAERI-M 89-186 (1989).
- 3) 荒井 康夫、鈴木 康文、笹山 龍雄、岩井 孝、関田 憲昭他、"84F-10A ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャプセルの照射及び照射後試験"、JAERI-M 91-191 (1991).
- 4) 岩井 孝、荒井 康夫、前多 厚、笹山 龍雄、関田 憲昭他、"84F-12A ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャプセルの照射及び照射後試験"、JAERI-M 94-036 (1994).
- 5) 荒井 康夫、岩井 孝、笹山 龍雄、前多 厚、塩沢 憲一他、"JMTR照射用キャプセル(84F-10A, 84F-12A, 87F-2A)用混合炭化物燃料ピンの製作"、JAERI-M 89-060 (1989).