

JAERI-Research

96-009



「常陽」照射試験用ウラン・プルトニウム  
混合炭化物及び窒化物燃料ピンの製作  
(共同研究)

1996年2月

荒井康夫・岩井 孝・笹山龍雄  
岡本芳浩・塩沢憲一・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。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費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, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 いばらき印刷(株)

「常陽」照射試験用ウラン・プルトニウム混合炭化物及び窒化物燃料ピンの製作

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・岡本 芳浩

塩沢 憲一・鈴木 康文

(1996年1月30日受理)

原研-動燃共同研究「高速炉用炭・窒化物燃料の基礎照射試験」に基づき、高速実験炉「常陽」で照射試験を行うためのウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピン1本および混合窒化物燃料ピン2本を製作した。本報告書は、共同研究の中で、燃料ピンの設計、燃料ペレットの製造、燃料ピンの製作等において、原研が主に担当してきた項目について結果を整理したものである。

Fabrication of Uranium-Plutonium Mixed Carbide and  
Nitride Fuel Pins for the Irradiation Test in JOYO

Yasuo ARAI, Takashi IWAI, Tatsuo SASAYAMA, Yoshihiro OKAMOTO  
Ken-ichi SHIOZAWA and Yasufumi SUZUKI

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

(Received January 30, 1996)

One uranium-plutonium mixed carbide fuel pin and two nitride fuel pins were fabricated for the irradiation test in fast test reactor JOYO based on the JAERI-PNC joint research program entitled "Basic Irradiation Test of Carbide and Nitride Fuels for Fast Reactors". This paper summarizes the results of the study JAERI mainly has been in charge of so far in the program, including the design of fuel pins, preparation of fuel pellets, fabrication of fuel pins and so on.

Keywords: Uranium, Plutonium, Mixed Carbide, Mixed Nitride, Irradiation Test, Fuel Pellet, Fuel Pin, Fast Test Reactor JOYO, Advanced Fuel, Irradiation Performance

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. 燃料ピンの設計 .....	2
2.1 基本設計 .....	2
2.2 詳細設計 .....	2
3. 燃料ペレットの製造 .....	3
3.1 原料物質 .....	3
3.2 炭化物ペレットの製造 .....	3
3.3 窒化物ペレットの製造 .....	4
3.4 円周研削 .....	4
3.5 確性試験 .....	4
4. 燃料ピンの製作 .....	7
4.1 燃料ピンの構成部材 .....	7
4.2 燃料ピンの製作 .....	7
4.3 溶接施行試験 .....	7
4.4 燃料ピンの検査 .....	8
5. あとがき .....	9
謝 辞 .....	9
参考文献 .....	9

Contents

1. Introduction .....	1
2. Design of Fuel Pins .....	2
2.1 Basic Design .....	2
2.2 Detailed Design .....	2
3. Preparation of Fuel Pellets .....	3
3.1 Raw Materials .....	3
3.2 Preparation of Carbide Pellets .....	3
3.3 Preparation of Nitride Pellets .....	4
3.4 Centerless Grinding .....	4
3.5 Characterization .....	4
4. Fabrication of Fuel Pins .....	7
4.1 Constituent Parts of Fuel Pins .....	7
4.2 Fabrication of Fuel Pins .....	7
4.3 Execution Tests of Welding .....	7
4.4 Inspection of Fuel Pins .....	8
5. Postscript .....	9
Acknowledgement .....	9
References .....	9

## 1. まえがき

高熱伝導度、高融点、高重金属密度等の特性から高速炉用新型燃料として期待されるウラン・プルトニウム混合炭化物（以下、混合炭化物と略す）及びウラン・プルトニウム混合窒化物（以下、混合窒化物と略す）燃料の照射試験は、国内では昭和58年以降、JMTR等の原研所内炉を用いて行われてきた<sup>1, 2)</sup>。これまでに、混合炭化物燃料ピン9本、混合窒化物燃料ピン4本の照射が完了し、組織再編、FPガス放出等の基礎的な燃料挙動について知見が得られつつある<sup>3, 4)</sup>。しかしながら、熱中性子炉と高速中性子炉とでは、中性子条件、温度条件等が大きく異なっているため、燃料の健全性を最終的に評価するためには高速炉環境下での照射試験の遂行が必須であることは言うまでもない。

そこで原研及び動力炉・核燃料開発事業団（以下、動燃と略す）は、平成元年度より「高速実験炉常陽を用いて高速炉用炭・窒化物燃料の基礎照射試験を行い、燃料挙動及び燃料要素の健全性を確認し、新型燃料の評価に資する」ことを研究目的とした、原研－動燃共同研究「高速炉用炭・窒化物燃料の基礎照射試験」を開始した<sup>5)</sup>。この共同研究の枠組みの概略は、燃料ペレット製造、燃料ピン製作を原研で、集合体組立てと照射関係を動燃で主に分担し、燃料ピンの設計並びに照射後試験を共同で行うというものである。

この間、平成元年度には、燃料仕様の検討、燃料ピンの基本設計、照射条件の検討、設計・評価用物性値の整備、照射リグの選定を行った。平成2年度及び3年度からは、燃料ピンの詳細設計並びに製作設計、照射リグの設計及び「常陽」の設置許可変更申請に関する準備等を開始した。平成4年度及び5年度には、燃料ピンの詳細設計並びに製作設計を引き続き進めると共に、「常陽」設置変更許可申請及び許可取得、設工認申請及び認可取得に引き続き、燃料ペレットの製造、燃料ピンの製作、照射リグの設計、製作等を行った。そして平成6年度には、照射リグの組立ての終了の後に、8月より「常陽」での照射が開始された。本報告書は、共同研究の中で、原研が主に担当してきた項目の結果を整理したものである。

## 2. 燃料ピンの設計

### 2.1 基本設計

燃料ピンの基本設計に当たっては、まず原研が希望照射条件を提示し、これに基づき動燃が核熱計算等を実施して検討するという形態をとった。原研からは、本照射試験が高速炉用新型燃料の健全性評価のための今後の参照となるよう、炭・窒化物燃料の良好な熱伝導度特性を活かし、線出力800W/cmを確保すると共に太径燃料ピンの採用を提案した。また、混合炭化物、混合窒化物燃料とも、プルトニウム富化度は約20at. %、ペレット密度は約85%T.D. (T.D.: 理論密度)、スミア密度は約80%T.D. のヘリウムボンド型燃料ピンを提示した。さらに、被覆管の材質はオーステナイト系またはフェライト系ステンレス鋼、被覆管肉厚中心の最高温度は600~650℃、到達燃焼度は燃料と被覆管の機械的相互作用発生直後の挙動に着目することを考え、4.5%FIMA程度の照射条件を申し入れた。

これを受けて動燃が「常陽」照射場においての核熱計算を行い、安全性に問題がないことを確認した上でプルトニウム富化度等の具体的な仕様を決定した。照射の形態としては、許認可上の設備対応のとれた照射リグを用いることを前提に検討した結果、「常陽」において試験燃料の継続照射実験に使用され、試験途中での中間検査、再装荷が容易なB型試験用集合体中のコンパートメントに3本の燃料要素を装荷することに決定した。燃料要素3本の内訳は、混合炭化物燃料1本、混合窒化物燃料2本とした。被覆管には、これまでのMOX燃料照射の実績を考慮してオーステナイト系ステンレス鋼を採用することとした。

### 2.2 詳細設計

B型特殊燃料集合体へ装荷する燃料要素の全長は1533mmと長尺となるため、原研では約半分の全長800mmの短尺燃料ピンを製作し、動燃においてその上下にダミーの端栓を接続することとした。原研で製作した短尺燃料ピンの構成図をFig. 1に示す。「常陽」の炉心長は550mmであるので、短尺燃料ピンの溶接箇所はいずれも炉心外の位置となる。

燃料ペレットのスタック長は、本照射目的を満足することを前提にした上で、照射後試験での必要量及び原研における製造バッチを考慮した上で各燃料ピンとも200mmとした。燃料ペレットの両端にウラン炭化物あるいはウラン窒化物の熱しゃへいペレット、ステンレス鋼の要素反射体ペレット、プレナムスプリング、抑え板付きプレナムスリーブ等を配置し、上下中間端栓を溶接する構造となっている。この条件下で、核熱計算を再度実施して基本設計どおりの照射条件が得られることを確認するとともに、燃料挙動解析コードにより照射中の健全性の確認を行った。

原研で製作した短尺燃料ピンの主な設計仕様をTable 1に示す。



### 3. 燃料ペレットの製造

#### 3.1 原料物質

混合炭化物及び混合窒化物の合成には、酸化物の炭素熱還元法を用いた。使用した原料は、二酸化プルトニウム ( $\text{PuO}_2$ )、濃縮二酸化ウラン ( $\text{UO}_2$ ) 及び黒鉛粉末である。このうち、 $\text{PuO}_2$  粉末は英国 BNFL (国籍、UK) より購入し、濃縮  $\text{UO}_2$  粉末はフランス CEA (国籍、USA) より原料を購入して日本核燃料コンバージョン(株)において転換した。また、黒鉛粉末にはドイツ Graphitwerk Kropfmuhl 社製の原子炉級天然黒鉛を用いた。Table 2 には、それぞれの原料粉末の特性を示した。

使用に先立ち、 $\text{PuO}_2$  粉末中に含まれる  $^{241}\text{Am}$  の除去を主目的としたプルトニウムの精製を行った。始めに  $\text{PuO}_2$  粉末を 2 価の銀イオンの存在下で硝酸中に溶解し、プルトニウムを 6 価から 4 価に還元して、TBP 抽出法によりアメリシウムや他の金属不純物と分離した<sup>6)</sup>。続いてプルトニウムを 3 価に還元した上で TBP から逆抽出して、シュウ酸塩の沈澱を生成した。 $\text{PuO}_2$  粉末への転換は、シュウ酸塩を乾燥後、乾燥空気気流中、約  $700^\circ\text{C}$  に加熱することにより行った。

一方、濃縮  $\text{UO}_2$  粉末については、O/U 比を 2.00 に調整する目的で、92%Ar-8%H<sub>2</sub> 混合気流中、約  $800^\circ\text{C}$  で加熱したものを使用した。また、黒鉛粉末についても、使用前に真空中、約  $500^\circ\text{C}$  に加熱して脱気した。

#### 3.2 炭化物ペレットの製造

混合炭化物ペレットの製造は、高純度アルゴンガス雰囲気グローブボックス (GB) 内に格納されている各種機器を利用して行った。同燃料の製造については、著者らがこれまで得た知見をもとに工程を進めた<sup>7)</sup>。始めに上記の原料粉末を直示天秤で秤量した後、硬質ガラス製の V 型ブレンダ及びアルミナ製のボールミルを用いて混合した。燃料ペレットの製造仕様から、濃縮  $\text{UO}_2$  と  $\text{PuO}_2$  の混合比は、 $\text{Pu}/(\text{U}+\text{Pu})=0.2135$  (重量比) とし、一方、酸化物に対する黒鉛の添加量は、 $\text{C}/(\text{UO}_2+\text{PuO}_2)=3.075$  (モル比) とした。この条件は、(U, Pu)C 相に加えて、15% の (U, Pu)<sub>2</sub>C<sub>3</sub> 相を含む超化学量論的組成の混合炭化物を調製するためのものである。

酸化物と黒鉛の混合後、炭素熱還元時に試料が飛散するのを防止し、かつ粉末相互の接触を強めることを目的として、厚み 2~3mm の円盤状の圧粉体とした。炭素熱還元は、圧粉体をタングステン製の試料皿の上に並べて、真空中、 $1500^\circ\text{C}$  に加熱して行った。真空排気には、還元過程でのプルトニウムの損失を抑えるために、始め油回転ポンプのみを用い、真空度が約  $10^{-3}$  Torr に到達して CO ガスの放出がほぼ完了したと見なせるまで加熱保持を続けた後、最終段階で油拡散ポンプに切り換えて約  $10^{-5}$  Torr まで排気した。加熱保持時間は計 5 時間とした。反応終了後、反応前後での試料重量変化が計算値と合致すること及び生成物の X 線回折による同定相の確認を行った後、粉碎工程に移った。

炭素熱還元で得られた混合炭化物を、あらかじめ乳鉢で粗砕した後、タングステンカーバイド製のボールミルを用いて粉碎した。燃料ペレットの密度調整は、粉碎後の微粉末にワックス系の気孔形成剤 (ポアフォーマ) を加えることにより行った。平均粒径 20~30  $\mu\text{m}$  の所定量のポアフォーマと混合炭化物粉末を混合した後、 $2.5\text{ton}/\text{cm}^2$  の成型圧でグリーンペレットに成型し、焼結

を行った。焼結条件は、純アルゴンガス気流中、1730℃で5時間の加熱保持とした。なお、仕様を満足した燃料ペレットが得られることを確認する目的で、本焼結に先立ち、グリーンペレット3個を用いた試験焼結を行い、焼結条件を確定した。

### 3.3 窒化物ペレットの製造

混合窒化物燃料ペレット製造にあたっては、高純度アルゴンガス雰囲気GB内に格納されている機器を利用して、これまでに得た知見をもとに工程を進めた<sup>8)</sup>。酸化物粉末と黒鉛粉末の混合方法等については、炭化物ペレット製造の手法と同様である。但し、燃料ペレットの製造仕様から、濃縮UO<sub>2</sub>とPuO<sub>2</sub>の混合比は、Pu/(U+Pu)=0.1926(重量比)とし、酸化物に対する黒鉛の添加量については、C/(UO<sub>2</sub>+PuO<sub>2</sub>)=2.50とした。この条件は、反応雰囲気を変える必要のない一段階反応を用いた場合に、できるだけ効率的に純度の高い単相の一窒化物を調製するためのものである。

炭化物の場合と同様に、酸化物と黒鉛の混合粉末を円盤状の圧粉体として炭素熱還元用の試料とした。炭素熱還元は、92%N<sub>2</sub>-8%H<sub>2</sub>混合気流中、1550℃において12時間加熱保持することにより行った。なお、昇降温時の1400℃以下の温度においては、高次の窒化物の生成を防ぐ目的で、加熱炉内の雰囲気を純アルゴンに置換した。この場合も、反応終了後、反応前後での試料重量変化が計算値と合致すること及び生成物のX線回折による同定相の確認を行ってから粉碎工程に移った。

得られた窒化物の粉碎、ポアフォームの混合、グリーンペレットの成型は、炭化物の場合と同等の手段を用いた。焼結条件は、92%Ar-8%H<sub>2</sub>混合気流中、1730℃において5時間の加熱保持とした。なお、窒化物の場合も炭化物の場合と同様の目的で、試験焼結を行っている。さらに、焼結後、燃料ペレットの均質化及びN/(U+Pu)比調整の目的で、92%N<sub>2</sub>-8%H<sub>2</sub>混合気流中で1500℃、20時間の熱処理を行った。

### 3.4 円周研削

焼結後の燃料ペレットについては、空気雰囲気GB内に格納されたセントレスグラインダを用いて湿式法による円周研削を施した。燃料ペレットの外周を段階的に研削して、最終的には仕様に定められている、炭化物の場合には7.42mm、窒化物の場合には7.28mmあるいは7.42mmの直径に仕上げた。なお、一部のペレットについてはスタック長を調整するために円周研削の工程時に、マイクロソーを用いて径方向に切断した。これらの作業後には、アセトンを溶媒に用いた超音波洗浄により研削油等の有機物を除去し、さらに高真空条件下で1200℃に加熱することにより脱脂、乾燥を行った。

### 3.5 確性試験

製造した混合炭化物、混合窒化物燃料ペレットについて、Pu/(U+Pu)比測定、炭素、窒素及び酸素定量、金属不純物分析、高温放出ガスの分析、X線回折による相同定並びに格子定数測定、 $\alpha$ オートラジオグラフィ、顕微鏡組織観察、寸法測定、重量測定等を実施した。これらの主な結果については、Table 3 にまとめて示した。

燃料ペレットの密度については、寸法測定から得られる容積と重量測定の結果から求めた。その結果、炭化物ペレットが平均で85.0%T.D.、7.28mmφの窒化物ペレットが平均で84.8%T.D.、7.42mmφの窒化物ペレットは平均で86.0%T.D.であった。これらの値は、設計中央値(85%T.D.)に対して若干の変動はあるものの、全数が設計仕様範囲(85±2%T.D.)内のものである。この結果、スミア密度は混合炭化物燃料ピンでは81.0%T.D.、混合窒化物燃料ピンでは77.8%T.D.及び82.2%T.D.となった。

燃料ペレットの組織観察では、ベークライト製樹脂に埋め込んだ上で粗研磨及び精研磨を行い、化学エッチングを施した後に光学顕微鏡観察を行った。エッチング液には、混合炭化物の場合には硝酸、酢酸及び水の混合溶液(混合比 2:1:1)を、混合窒化物の場合には乳酸、硝酸の混合溶液(混合比 2:1)にフッ酸を1滴加えたものを用いた。Fig. 2には製造した3種類の燃料ペレットの顕微鏡組織を示す。高密度の燃料マトリクスとポアフォーム添加によって形成されたと思われる比較的大きな球状の気孔の形成がみとめられる。炭化物の場合には(U, Pu)C 相に加えて写真上では白く見える第2相の(U, Pu)<sub>2</sub>C<sub>3</sub>相の析出が観察されているのに対して、窒化物の場合には(U, Pu)Nの単相であることが確認された。また、ポアフォームの添加によって形成された気孔の一部に軽微な偏在がみとめられたが、これが燃料ピンの健全性を損なうものではないと判断された。

化学分析で求めたPu/(U+Pu)比、炭素、窒素及び酸素の含有量は、いずれも燃料ペレットの仕様を満足する範囲にあった。ペレットを酸化物に転換した後に硝酸中に溶解して、電位差滴定を用いて求めたPu/(U+Pu)比は、炭化物ペレットについては0.209(原子比)、窒化物ペレットについては両者とも0.185(原子比)であり、これらの結果から原料粉末の混合割合は適切であり、ペレット製造工程中での蒸発等によるプルトニウムの損失は無視できることが確認された。炭素、窒素及び酸素の分析は、それぞれ、高周波加熱電量法、改良デューマ法及び不活性ガス溶融電量法を用いた。炭化物中の炭素含有量は5.15wt.%であり、これより計算されるC/(U+Pu)比は1.078に相当した。一方、窒化物中の窒素含有量は5.56wt.%及び5.62wt.%であり、N/(U+Pu)比に換算すると1.001及び1.013となった。これらの値から、燃料ペレット中の主要構成元素はほぼ定められた燃料仕様どおりに含まれていることが確認された。また、炭化物中に含まれる窒素及び酸素、窒化物中に含まれる炭素及び酸素の量はTable 3からわかるようにほぼ1000~2000ppmの範囲にあり、これらは炭素熱還元で製造した燃料としては高純度の部類に属するものである。

金属不純物分析には、直流アーク(DCA)及び高周波誘導結合プラズマ(ICP)発光分光分析法を用いた。全金属不純物量は炭化物燃料中では2140ppm、窒化物燃料中では2300及び1140ppm以下であり、いずれも燃料仕様を満足する範囲にあった。これらのほとんどは原料粉末中に始めから含まれていた量と同等であるが、ペレット製造工程中に混入したものとしては、粉碎に用いたボールミルに含まれているタングステンとその粘結剤に含まれているコバルトが考えられる。しかし、その量は最高でもタングステン1280ppm、コバルト170ppmであり、燃料特性あるいは照射挙動に影響を及ぼすものではないと考えられる。

X線回折のパターンは、Fig. 3に示すように混合炭化物の場合には面心立方の(U, Pu)C相と体心立方の(U, Pu)<sub>2</sub>C<sub>3</sub>の2相、混合窒化物の場合には面心立方の(U, Pu)Nの単相であり、金相試験の結果と合致した。混合炭化物中の(U, Pu)C相の格子定数は0.49654nm、一方、混合窒化物中の

(U, Pu)N 相の格子定数は0.48910nm 及び0.48927nm であり、これらの値はプルトニウムを約20% 含む(U, Pu)C あるいは(U, Pu)N の格子定数の文献値にほぼ等しい。

燃料ペレット中に含まれる高温放出ガス(蒸発性不純物ガス)の定量は、高温真空抽出法を用いた。その結果、混合炭化物の場合1g当たり $30\mu\ell$ 、混合窒化物の場合は2種類の燃料とも1g当たり $20\mu\ell$ であり十分に低い値であった。なお、観測された放出ガスの主成分は炭化物の場合にはCO、窒化物の場合には $N_2$ であることが成分分析の結果から確かめられた。

さらに、燃料ペレット中に有意なプルトニウムスポットが無いことを確認するために、 $\alpha$ オートラジオグラフィ試験を行った。ニトロセルローズフィルム(KODAK 社製CN-85 Type B型)を厚み $7.5\mu\text{m}$ のニッケル箔及び厚み $4\mu\text{m}$ のマイラー膜に包み、燃料ペレットの研磨面に荷重を加えて押しつけ、10分間露出させた。フィルムのエッチングは $60^\circ\text{C}$ に保った6Nの苛性ソーダで10分間行った。水洗したフィルムを写真撮影したものをFig. 4に示す。いずれの燃料ペレットにおいても有意なプルトニウムスポットはみとめられていない。

## 4. 燃料ピンの製作

### 4.1 燃料ピン構成部材

原研で製作した短尺燃料ピンは、燃料ペレットのほか、熱しゃへいペレット、反射体ペレット、プレナムスプリング、抑え板付プレナムスリーブ、上下の中間端栓及び被覆管等の部材から構成される。それらの配置等については、既にFig. 1に示した。

熱しゃへいペレットには、炭化物燃料ピンにはウラン炭化物、窒化物燃料ピンにはウラン窒化物を用いた。それらの製造方法については、原料に濃縮ウランに代わり天然ウラン $UO_2$ を用いた点を除いて、燃料ペレット製造に倣った。天然ウラン $UO_2$ 粉末は、日本核燃料コンバージョン(株)より購入したものを使用したが、その特性については既に文献中で述べられている<sup>7)</sup>。熱しゃへいペレットについても、炭素、窒素及び酸素定量、金属不純物分析、X線回折による相同定並びに格子定数測定、寸法測定、重量測定等の確性試験を実施した。

被覆管用の管材（オーステナイト系ステンレス鋼）、端栓用の棒材（高Niオーステナイト系ステンレス鋼）については動燃より提供を受け、原研で加工して燃料ピン用の被覆管、上下中間端栓を製作した。また、反射体ペレット、抑え板についても端栓用の棒材から加工した。プレナムスプリング、プレナムスリーブの素材は、それぞれJIS G4314 SUS304WPB、JIS G3459 SUS316TPのステンレス鋼を電気アーク溶解して製作した。抑え板とプレナムスリーブを点溶接して、抑え板付プレナムスリーブとした。

Fig. 5には、燃料ピン構成部材の外観写真を示す。

### 4.2 燃料ピンの製作

燃料ピンの製作方法としては、まず被覆管の一端に下部中間端栓をTIG溶接した後、抑え板付プレナムスリーブ、反射体ペレット（下）、熱しゃへいペレット（下）、燃料ペレット、熱しゃへいペレット（上）、反射体ペレット（上）、プレナムスプリングの順序で被覆管に挿入し、最後に、上部中間端栓をTIG溶接した。

燃料ピンの内部空間には1気圧のヘリウムガスを封入するため、上記の作業はワンスルー方式によりヘリウムに置換したGB内で行った。GB雰囲気置換は、始めアルゴンガスを流して酸素及び水分濃度を十分に落とした後に、ガスをヘリウムに置換して高純度のヘリウム雰囲気を作った。溶接を行った時点でのGB内の酸素及び水分濃度は10ppm未満であると推定される。また、燃料ペレット挿入時には、被覆管に管口マスクを装着して、被覆管がプルトニウムによって汚染されるのを抑制した。使用した溶接関連装置及び燃料ピンの製作手順の詳細については既に報告されている<sup>9)</sup>。

燃料ピンの下部中間端栓には、識別のための番号と位置を示す刻印（炭化物燃料ピン「1」、7.28mmφ窒化物燃料ピン「2」、7.42mmφ窒化物燃料ピン「3」）を施した。

### 4.3 溶接施行試験

燃料ピンの溶接に先立ち、溶接条件を確認するための溶接施行試験を実施した。溶接施行試験に当たっては、実際に使用する装置を用いるとともに、被覆管及び端栓は照射用燃料ピンの被覆

管、端栓と同一の材質、溶接部形状及び寸法のものとし、さらにプレナム容積を模擬した短尺の試験片を用いた。溶接施行試験において実施した項目は、非破壊試験では溶接部外観とX線透過試験、破壊試験では内圧破裂、引張及び断面金相試験である。溶接部外観試験では、あらかじめ定められた限界見本と比較して、溶接部が清浄であること、アンダーカットのないこと、クラック、ピンホール等の有害な欠陥のないこと、有害な着色のないこと、肩だれのないこと、ビード幅が均一であること等を確認した。X線透過試験では0.2mmφを超えるブローホール、析出物のないこと及び検出されるクラック及び有害な空洞のないことを確認した。また、内圧破裂試験では破壊圧力が常温で580kg/cm<sup>2</sup>以上であること、溶接部の引張試験ではその引張強度が常温で600kg以上であることを確認した。さらに断面金相写真では、溶け込みが被覆管の肉厚以上であること等について確認した。

#### 4.4 燃料ピンの検査

上部中間端栓の溶接後、製作した3本の燃料ピンの健全性を確認するための外観、寸法、重量、溶接部、表面密度、漏洩及び構成確認検査を行った。外観検査では、目視により表面に割れ、傷等で有害なものがないこと、油脂、酸化物等の有害な付着物がないことを確認した。寸法及び重量検査の結果についてはTable 4に示すが、燃料ピンの設計仕様どおりに製作することができた。溶接部検査では、目視により端栓溶接部にアンダーカット等で有害なものがないこと、X線透過写真によりブローホール等で有害なものがないこと、ビード外径が8.7mm以下であることを確認した。表面密度検査ではビード当たりルーズ汚染が0.04Bq/cm<sup>2</sup>以下であること及び固定汚染が10Bq/cm<sup>2</sup>以下であることを、漏洩検査はヘリウムリーク試験により漏洩率が $3 \times 10^{-3}$ Pa・cm<sup>3</sup>/sec以下であることを、さらに構成確認検査ではX線透過写真撮影により、部品の配列に欠如がないことの確認を行った。

## 5. あとがき

原研で製作した燃料ピンは動燃に持ち込まれた後、動燃においてダミーの上部及び下部端栓を接合して長尺の燃料要素としての組立てを終了した。引き続きB型試験用集合体のコンパートメントへの装荷を行い、平成6年8月「常陽」の第29サイクルから計5サイクル、燃焼度4.5%FIMAを目標に照射が開始された。

今後は照射の継続に並行して、原研、動燃両者の間で照射後試験計画の具体化のための協議を進めていく方針である。本燃料ピンの照射が無事終了し、来たるべき照射後試験結果を通じて、炭・窒化物燃料の高速炉条件下での燃料挙動の把握と、照射健全性の実証のための有用なデータが得られることを期待したい。

## 謝 辞

本燃料ピンの製作が完了し、無事照射が開始されたことに対して、動燃大洗工学センター燃料材料開発部、基盤技術開発部並びに実験炉部、東海事業所核燃料技術開発部並びに技術開発推進部の皆様に対して心から御礼申し上げます。また、本研究の遂行に際して御指導及び御助言を賜った立川圓造前東海研副所長、半田宗男前燃料研究部長、星三千男燃料研究部長、菊地章ホット試験室長、宮川邦男前大洗研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。最後に、燃料ピンの製作に当たって、ウラン、プルトニウム分析及び金属不純物分析を快く引き受けて下さった平田勝氏を始めとして、並々ならぬ御支援を頂いた福島大洗研管理部次長以下の燃料研究棟の皆様へ心から御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 鈴木 康文, 他 : 原子力誌, 34, 66 (1992).
- 2) Arai Y., et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 30, 824 (1993).
- 3) 岩井 孝, 他 : 原子力誌, 34, 455 (1992).
- 4) 荒井 康夫, 他 : 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).
- 5) Arai Y., et al. : "Proc. on Fast Reactor and Related Fuel Cycles, FR'91", Vol. III, Paper 1-22 (1991).
- 6) 桜井 聡, 他 : 原子力誌, 35, 147 (1993).
- 7) Suzuki Y., et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 18, 61 (1980).
- 8) Arai Y., et al. : J. Nucl. Mater., 168, 280 (1989).
- 9) 笹山 龍雄, 他 : JAERI-M 83-136, "ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作設備" (1983).

## 5. あとがき

原研で製作した燃料ピンは動燃に持ち込まれた後、動燃においてダミーの上部及び下部端栓を接合して長尺の燃料要素としての組立てを終了した。引き続きB型試験用集合体のコンパートメントへの装荷を行い、平成6年8月「常陽」の第29サイクルから計5サイクル、燃焼度4.5%FIMAを目標に照射が開始された。

今後は照射の継続に並行して、原研、動燃両者の間で照射後試験計画の具体化のための協議を進めていく方針である。本燃料ピンの照射が無事終了し、来たるべき照射後試験結果を通じて、炭・窒化物燃料の高速炉条件下での燃料挙動の把握と、照射健全性の実証のための有用なデータが得られることを期待したい。

## 謝 辞

本燃料ピンの製作が完了し、無事照射が開始されたことに対して、動燃大洗工学センター燃料材料開発部、基盤技術開発部並びに実験炉部、東海事業所核燃料技術開発部並びに技術開発推進部の皆様に対して心から御礼申し上げます。また、本研究の遂行に際して御指導及び御助言を賜った立川圓造前東海研副所長、半田宗男前燃料研究部長、星三千男燃料研究部長、菊地章ホット試験室長、宮川邦男前大洗研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。最後に、燃料ピンの製作に当たって、ウラン、プルトニウム分析及び金属不純物分析を快く引き受けて下さった平田勝氏を始めとして、並々ならぬ御支援を頂いた福島大洗研管理部次長以下の燃料研究棟の皆様へ心から御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 鈴木 康文, 他 : 原子力誌, 34, 66 (1992).
- 2) Arai Y., et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 30, 824 (1993).
- 3) 岩井 孝, 他 : 原子力誌, 34, 455 (1992).
- 4) 荒井 康夫, 他 : 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).
- 5) Arai Y., et al. : "Proc. on Fast Reactor and Related Fuel Cycles, FR'91", Vol. III, Paper 1-22 (1991).
- 6) 桜井 聡, 他 : 原子力誌, 35, 147 (1993).
- 7) Suzuki Y., et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 18, 61 (1980).
- 8) Arai Y., et al. : J. Nucl. Mater., 168, 280 (1989).
- 9) 笹山 龍雄, 他 : JAERI-M 83-136, "ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作設備" (1983).



## 5. あとがき

原研で製作した燃料ピンは動燃に持ち込まれた後、動燃においてダミーの上部及び下部端栓を接合して長尺の燃料要素としての組立てを終了した。引き続きB型試験用集合体のコンパートメントへの装荷を行い、平成6年8月「常陽」の第29サイクルから計5サイクル、燃焼度4.5%FIMAを目標に照射が開始された。

今後は照射の継続に並行して、原研、動燃両者の間で照射後試験計画の具体化のための協議を進めていく方針である。本燃料ピンの照射が無事終了し、来たるべき照射後試験結果を通じて、炭・窒化物燃料の高速炉条件下での燃料挙動の把握と、照射健全性の実証のための有用なデータが得られることを期待したい。

## 謝 辞

本燃料ピンの製作が完了し、無事照射が開始されたことに対して、動燃大洗工学センター燃料材料開発部、基盤技術開発部並びに実験炉部、東海事業所核燃料技術開発部並びに技術開発推進部の皆様に対して心から御礼申し上げます。また、本研究の遂行に際して御指導及び御助言を賜った立川圓造前東海研副所長、半田宗男前燃料研究部長、星三千男燃料研究部長、菊地章ホット試験室長、宮川邦男前大洗研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。最後に、燃料ピンの製作に当たって、ウラン、プルトニウム分析及び金属不純物分析を快く引き受けて下さった平田勝氏を始めとして、並々ならぬ御支援を頂いた福島大洗研管理部次長以下の燃料研究棟の皆様心から御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 鈴木 康文, 他 : 原子力誌, 34, 66 (1992).
- 2) Arai Y., et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 30, 824 (1993).
- 3) 岩井 孝, 他 : 原子力誌, 34, 455 (1992).
- 4) 荒井 康夫, 他 : 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).
- 5) Arai Y., et al. : "Proc. on Fast Reactor and Related Fuel Cycles, FR'91", Vol. III, Paper 1-22 (1991).
- 6) 桜井 聡, 他 : 原子力誌, 35, 147 (1993).
- 7) Suzuki Y., et al. : J. Nucl. Sci. Technol., 18, 61 (1980).
- 8) Arai Y., et al. : J. Nucl. Mater., 168, 280 (1989).
- 9) 笹山 龍雄, 他 : JAERI-M 83-136, "ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作設備" (1983).

Table 1 Basic design of fuel pins for irradiation tests in JOYO

Fuel	Carbide	Nitride-1	Nitride-2
Fuel pellet			
Composition	(U,Pu)C <sub>1.075</sub>	(U,Pu)N	(U,Pu)N
Pu/(U+Pu) (wt.%)	21.35	19.26	19.26
<sup>235</sup> U enrichment (wt.%)	19.39	19.39	19.39
Density (%T.D.)	85	85	85
Diameter (mm)	7.42	7.28	7.42
Stack length (mm)	200	200	200
Insulator pellet			
Composition	UC <sub>1.075</sub>	UN	UN
Density (%T.D.)	85	85	85
Diameter (mm)	7.42	7.28	7.42
Stack length (mm)	52.5 × 2	52.5 × 2	52.5 × 2
Cladding tube			
Material	Austenitic	Austenitic	Austenitic
Outer diameter (mm)	8.5	8.5	8.5
Thickness (mm)	0.45	0.45	0.45
Fuel pin			
Smear density (%T.D.)	81	78	81
Length (mm)	800	800	800

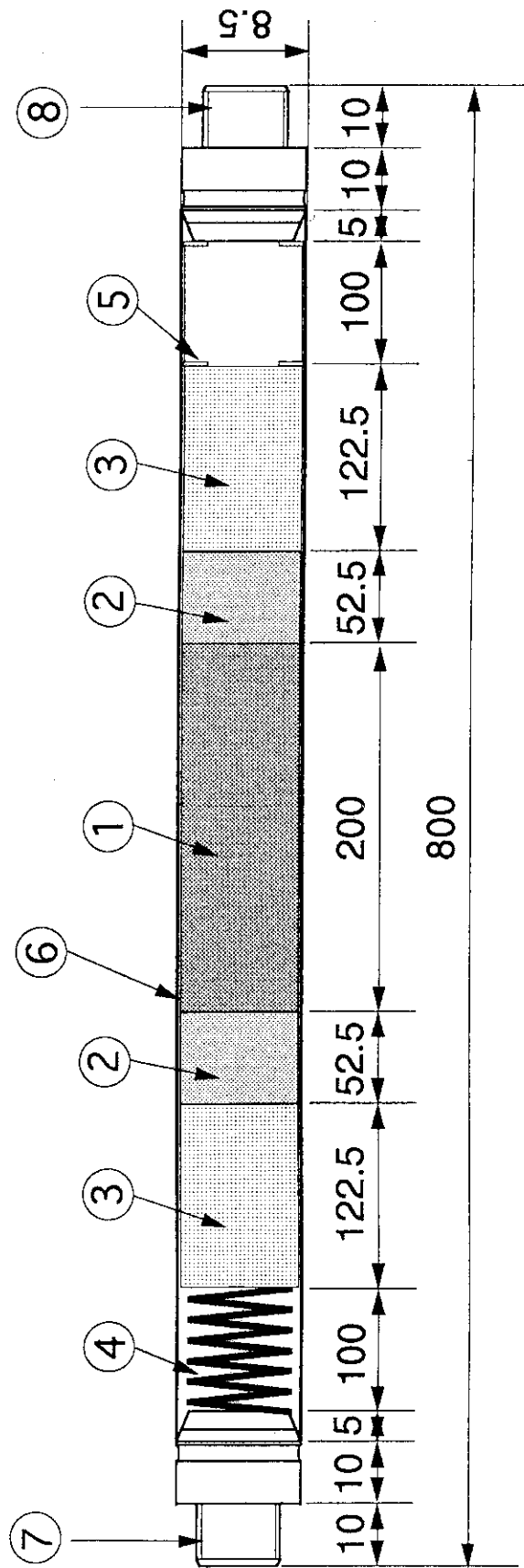


Table 3 Characteristics of carbide and nitride fuel pellets

	Carbide	Nitride-1	Nitride-2
Diameter (mm)	7.42	7.28	7.43
Bulk density (%T.D.)	85.0	84.8	86.0
Chemical analysis			
Pu/(U+Pu) ratio	0.210	0.186	0.186
Carbon content (wt.%)	5.15	0.11	0.16
Nitrogen content (wt.%)	0.12	5.56	5.62
Oxygen content (wt.%)	0.09	0.02	0.02
C/(U+Pu) or N/(U+Pu) ratio	1.078	1.001	1.013
X-ray diffraction analysis			
Phases	(U,Pu)C (U,Pu) <sub>2</sub> C <sub>3</sub>	(U,Pu)N	(U,Pu)N
Lattice parameter of fcc (nm)	0.49654	0.48910	0.48927
Occluded gases ( $\mu$ l/g)	30	20	20
Metallic impurities (ppm)			
Al	140	70	30
B	<10	<10	<10
Ca	60	40	40
Cd	<10	<10	<10
Co	120	170	90
Cr	110	60	30
Fe	180	50	30
Mg	50	30	20
Ni	90	30	30
V	360	230	50
W	480	1280	530
Cu+Si+Zn	390	200	140
Ag+Mn+Mo+Pb+Sn	100	80	90

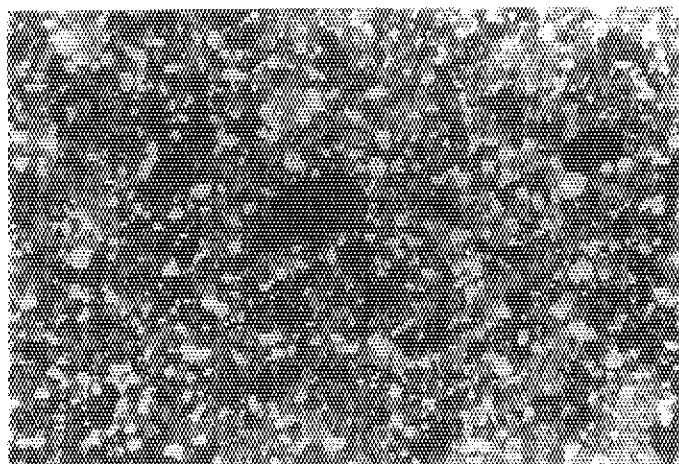
Table 4 Characteristics of carbide and nitride fuel pins

	Carbide	Nitride-1	Nitride-2
Total length (mm)	799.5	799.4	799.5
Fuel stack length (mm)	199.5	200.1	198.8
Plenum length (mm)	201.0	202.0	203.2
Bowing (mm)	< 1	< 1	< 1
Weight (g)	321.0	322.3	335.0



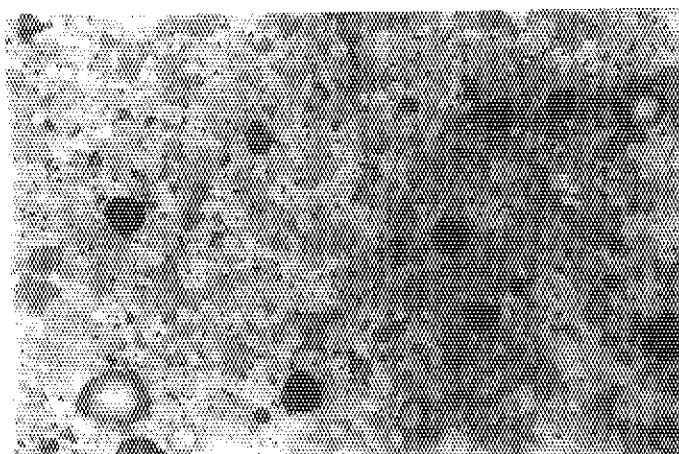
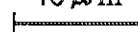
- |                     |                            |                               |
|---------------------|----------------------------|-------------------------------|
| ① Fuel pellets      | (U,Pu)C or (U,Pu)N         | 7.42 or 7.28mm $\phi$ , ~8mmh |
| ② Insulator pellets | UC or UN                   | 7.42 or 7.28mm $\phi$ , ~8mmh |
| ③ Reflector element | Austenitic stainless steel |                               |
| ④ Plenum spring     | Austenitic stainless steel |                               |
| ⑤ Plenum sleeve     | Austenitic stainless steel |                               |
| ⑥ Cladding tube     | Austenitic stainless steel | 8.50mm $\phi$ , 0.45mmt       |
| ⑦ Upper endplug     | Austenitic stainless steel |                               |
| ⑧ Lower endplug     | Austenitic stainless steel |                               |

Fig.1 Structure of fuel pins for irradiation tests in JOYO.



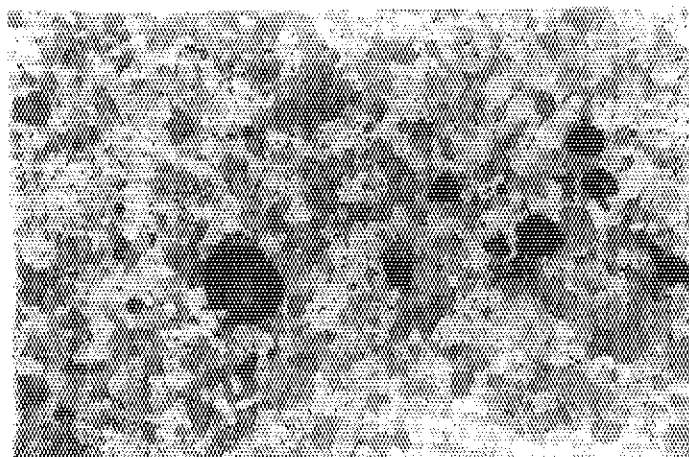
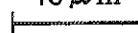
(a) Carbide pellet,

40  $\mu$ m



(b) Nitride pellet of diameter 7.28mm

40  $\mu$ m



(c) Nitride pellet of diameter 7.42mm

40  $\mu$ m

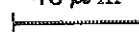
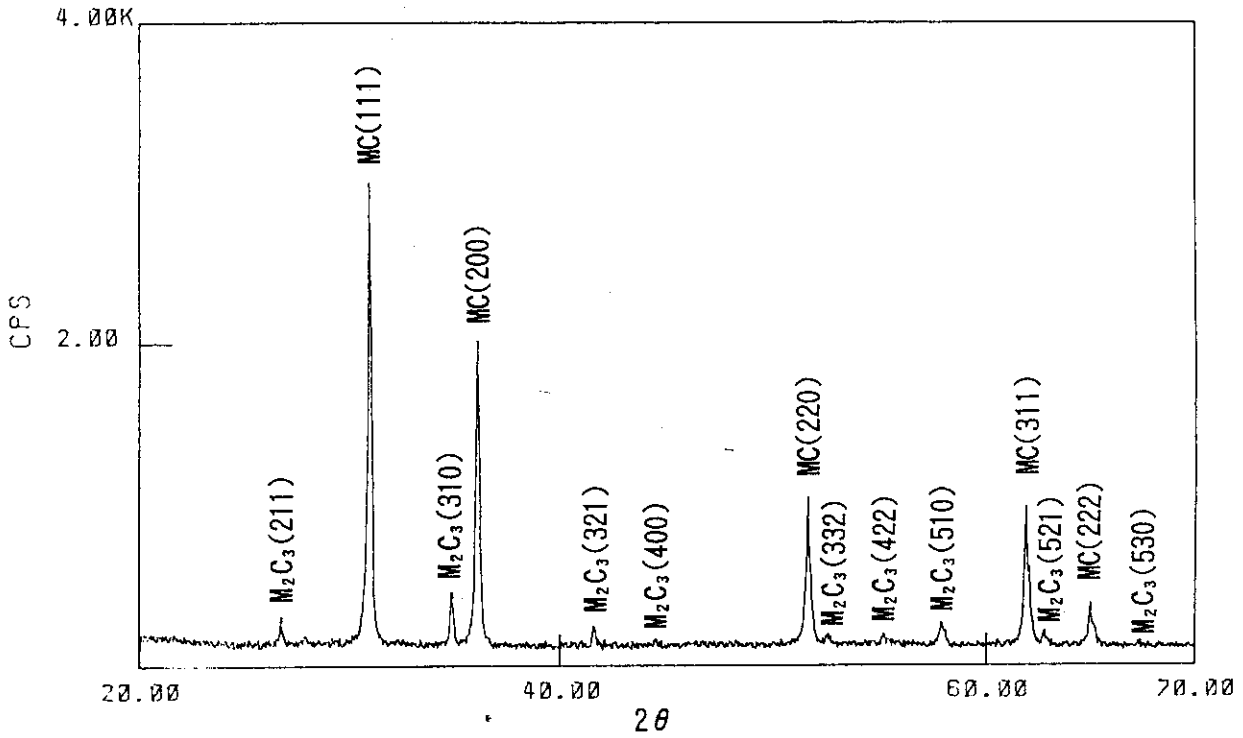


Fig. 2 Microstructure of fuel pellets

Sample Name : MC-JOYO-LA



Sample Name : MN-JOYO-LA

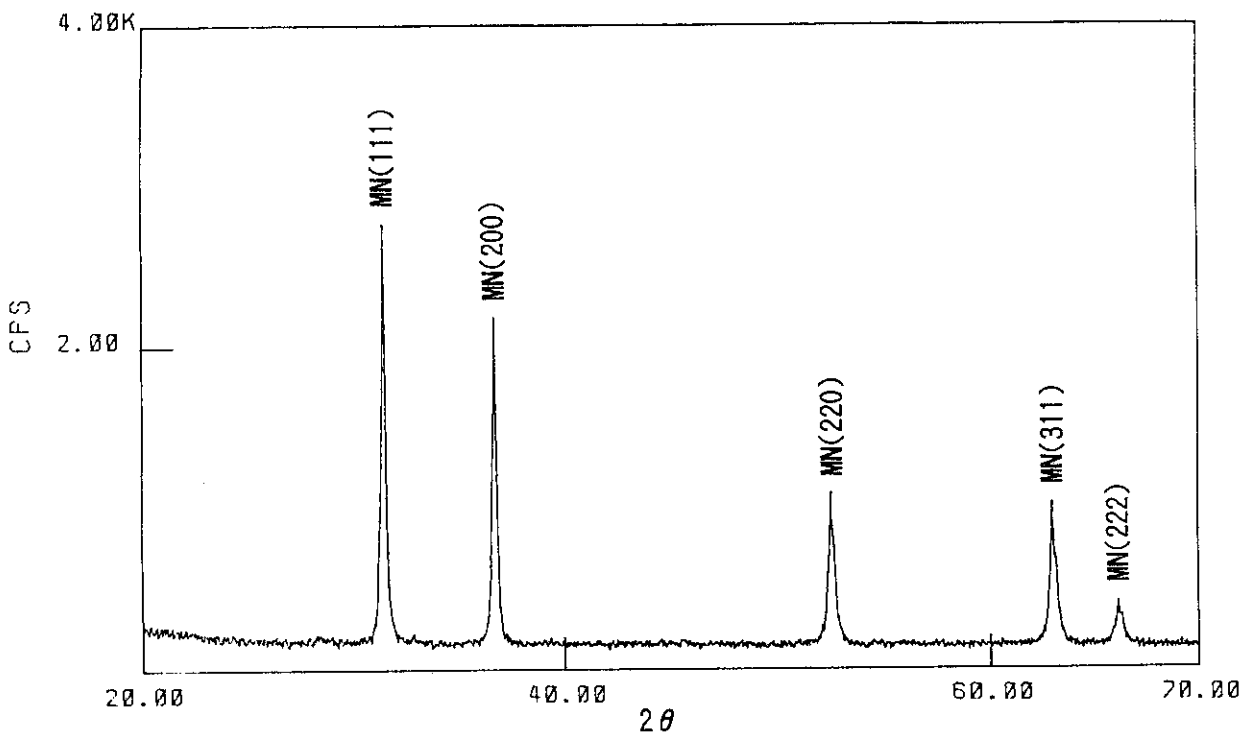
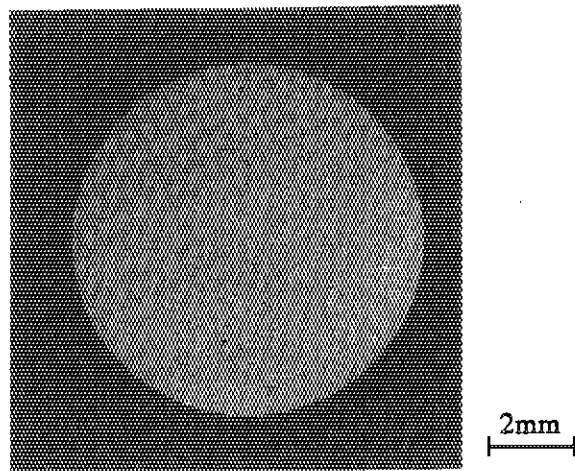
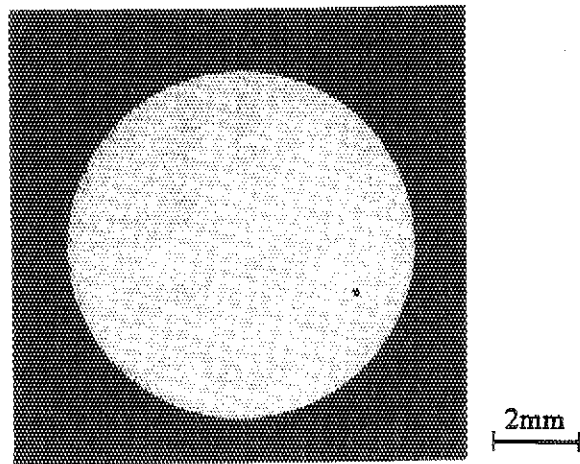


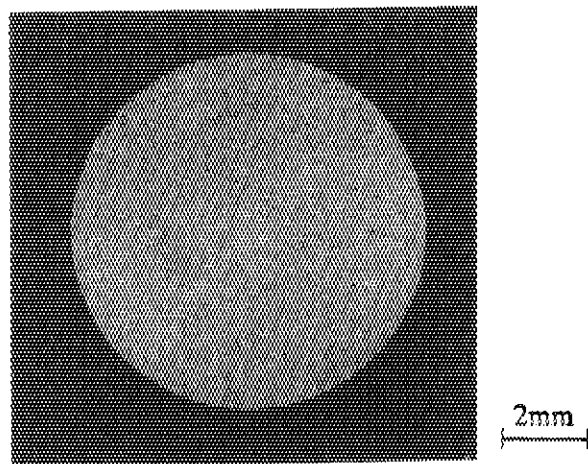
Fig.3 X-ray diffraction patterns of carbide and nitride fuel pellets



(a) Carbide pellet



(b) Nitride pellet of diameter 7.28mm



(c) Nitride pellet of diameter 7.42mm

Fig. 4  $\alpha$ -autoradiography of fuel pellets



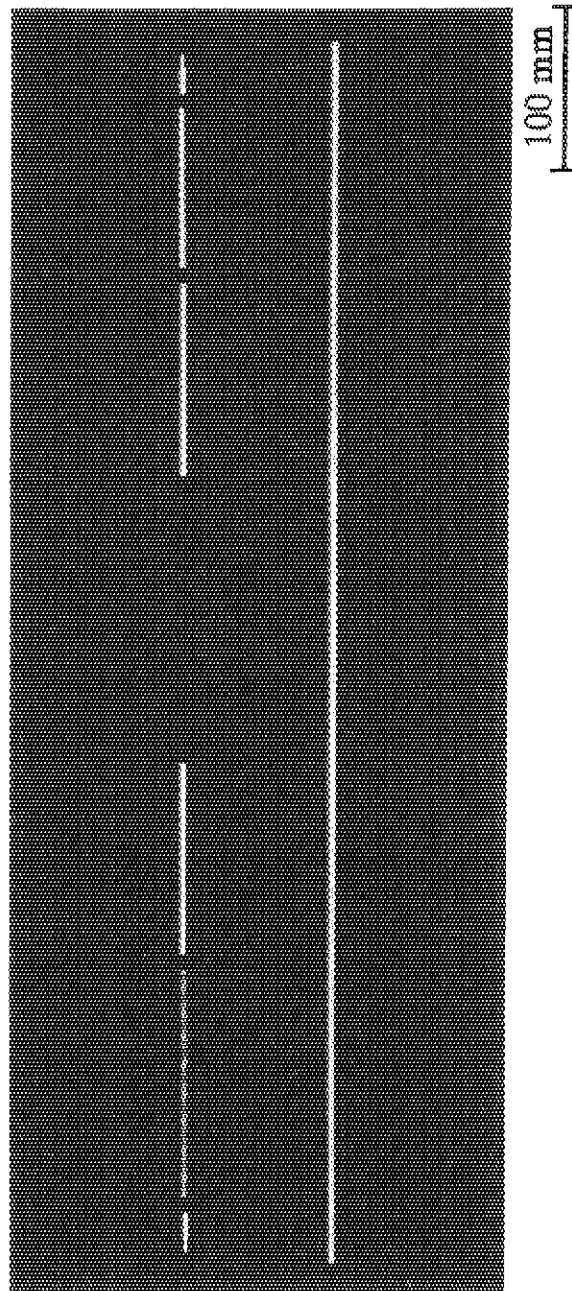


Fig. 5 Appearance of constituent parts of fuel pins