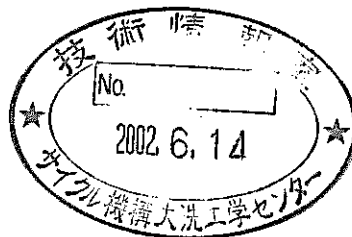


高速炉用ウラン・プルトニウム混合 窒化物燃料の照射後試験

—窒化物燃料の破壊試験結果—

(研 究 報 告)



2002年1月

核燃料サイクル開発機構

大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ
ください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 4 9
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2002

高速炉用ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料の照射後試験

—窒化物燃料の破壊試験結果—

(研究報告)

田中康介* 前田宏治*

小山真一**

要 旨

窒化物燃料は高い重金属密度および優れた熱伝導度に代表される特性を有していることから、高速炉燃料候補として注目されている。この窒化物燃料の照射特性を把握するため、原研とサイクル機構では共同研究として「高速炉用炭・窒化物燃料の基礎照射試験」を進めている。この共同研究の一環として、高速実験炉「常陽」において最大線出力約 76kW/m、最高燃焼度約 40Gwd/t を達成した窒化物燃料ピンの破壊試験を実施した。

組織観察の結果、燃料中心部では外周部に比べて気孔面積率が上昇し、大きなサイズの気孔の占める割合が高くなる傾向を示した。しかし、中心空孔や柱状晶の形成などの顕著な組織変化は観察されなかった。また、Xe 分布測定結果から、ペレット内での FP ガス保持率は高い状態にあることがわかった。これらの結果は、窒化物燃料の良好な熱伝導特性により、照射中の燃料温度レベルが低かったことに起因するものと考えられる。

※ 大洗工学センター 照射施設運転管理センター 燃料材料試験部 照射燃料集合体試験室

※※ 大洗工学センター 照射施設運転管理センター 燃料材料試験部 照射燃料試験室

Post Irradiation Examination of Uranium-Plutonium Mixed Nitride Fuels for Fast Reactor

-Destructive Examinations of Nitride Fuel -

(Research Document)

Kosuke Tanaka* Koji Maeda*

Shinich Koyama**

Abstract

Uranium-plutonium mixed nitride, (U,Pu) N, has been developed as advanced fuels for fast reactors. Compare with MOX fuel, it has an advantage of larger fissile density and higher thermal conductivity. In order to investigate the irradiation behavior under a fast reactor condition, post irradiation examinations were conducted for (U,Pu) N fuels as a part of the JAERI-JNC joint research program entitled "Basic Irradiation Test of Carbide and Nitride Fuels for Fast Reactors". The (U,Pu) N fuels were irradiated up to 40GWd/t at maximum linear power of 76kW/m in the fast test reactor JOYO.

In the center part of fuels, the porosity and the pore size were increased compared with the peripheral region. But there were not observed the drastic structure change such as the formation of central hole and columnar grains. It was shown that the concentration of retained FP gas in any region was extremely high by the measurements of Xe radial distribution in the fuels. These results mentioned above indicated that the fuel temperature was low because of high thermal conductivity of (U,Pu) N.

※ Fuels Monitoring Section, Fuels and Material Division, Irradiation Center, OEC

※※ Alpha Gamma Section, Fuels and Material Division, Irradiation Center, OEC

目次

1	緒言	1
2	試験内容	3
2.1	燃料仕様	3
2.2	照射条件	3
2.3	照射後試験方法	4
2.3.1	照射後試験項目および試験対象軸位置	4
2.3.2	MN 燃料の取扱および試料調整方法	4
2.3.3	観察および分析条件	4
3	照射後試験結果	6
3.1	光学顕微鏡による燃料横断面組織	6
3.2	気孔分布	7
3.2.1	気孔サイズ分布	7
3.2.2	気孔面積率分布	9
3.2.3	燃料中心部における気孔形態	10
3.3	X線微小元素分析	11
3.3.1	燃料マトリックスおよびクラック開口部の定性分析および面分析	11
3.3.2	燃料-被覆管ギャップ部の定性分析および面分析	11
3.3.3	燃料内析出物の定性分析および面分析	12
3.3.4	FP の径方向線分析	13
3.3.5	U および Pu の径方向線分析	13
3.3.6	貫通クラック部における Pu 面分析	14
3.3.7	無気孔組織周辺の U および Pu 分析	14
3.3.8	径方向の Xe 定量分析	14
3.3.9	被覆管の窒化	15
3.4	結晶粒径測定	15
3.5	燃焼率測定	15
4	考察	16
4.1	燃料組織変化挙動	16
4.1.1	マクロ組織変化	16
4.1.2	ミクロ組織変化	16

4. 2	金属FPの析出挙動	18
4. 3	燃料ペレットと被覆管の相互作用	19
4. 3. 1	機械的相互作用	19
4. 3. 2	化学的相互作用	21
4. 4	FPガス保持量評価およびFPガス放出挙動	22
4. 5	ギャップ部における高Pu層の析出挙動	24
4. 6	「常陽」照射窒化物燃料における燃料仕様と照射挙動の関係	25
5	結言	28
6	謝辞	29
7	参考文献	30

表リスト

表 2.1	「常陽」照射窒化物燃料ピンの基本仕様	33
表 2.2	窒化物燃料ピンの照射履歴 (L413)	34
表 2.3	窒化物燃料ピンの照射履歴 (L414)	35
表 2.4	PFB090 窒化物燃料試料採取位置及び照射条件	36
表 3.1	気孔分布に関する各種計算結果	37
表 3.2	Xe 生成量の計算結果	38
表 3.3	結晶粒径およびフェレ径比測定結果	39
表 3.4	燃焼率測定結果	40

図リスト

図 2.1	集合体, コンパートメントおよび燃料ピンの模式図	41
図 2.2	窒化物燃料ピン構造図	42
図 2.3	最大線出力および被覆管肉厚中心最高温度の変化	43
図 2.4	試料採取位置および試験対象横断面	44
図 3.1	ピン寸法測定結果と金相横断面におけるデジタルスケラー測定結果の比較	45
図 3.2	気孔の度数分布および相対度数分布 (L41332)	46
図 3.3	気孔の度数分布および相対度数分布 (L41423)	47
図 3.4	気孔の度数分布および相対度数分布 (L41441)	48
図 3.5	気孔の度数分布および相対度数分布 (L41452)	49
図 3.6	気孔の相対累積度数分布	50
図 3.7	ペレット径方向の気孔面積率 (L41332)	51
図 3.8	ペレット径方向の気孔面積率 (L41423)	52
図 3.9	ペレット径方向の気孔面積率 (L41441)	53
図 3.10	ペレット径方向の気孔面積率 (L41452)	54
図 3.11	燃料マトリックスの定性分析結果 (L41332)	55
図 3.12	燃料マトリックスの定性分析結果 (L41423)	56
図 3.13	燃料マトリックスの定性分析結果 (L41441)	57
図 3.14	燃料マトリックスの定性分析結果 (L41452)	58
図 3.15	クラック開口部の定性分析結果 (L41332)	59
図 3.16	クラック開口部の定性分析結果 (L41423)	61
図 3.17	クラック開口部の定性分析結果 (L41441)	62
図 3.18	クラック開口部の定性分析結果 (L41452)	63
図 3.19	燃料-被覆管ギャップ部の定性分析結果 (L41332: ギャップ部 F)	64
図 3.20	燃料-被覆管ギャップ部の定性分析結果 (L41332: ギャップ部 D)	65
図 3.21	析出物の定性分析結果 (L41332)	66
図 3.22	析出物の定性分析結果 (L41332: 高 Pd 強度相)	67
図 3.23	析出物の定性分析結果 (L41332: 高 Mo 強度相)	68
図 3.24	析出物の定性分析結果 (L41423)	69
図 3.25	析出物の定性分析結果 (L41441)	70
図 3.26	析出物の定性分析結果 (L41452)	71
図 3.27	Xe, Cs の径方向分布 (L41332)	72
図 3.28	Xe, Cs の径方向分布 (L41423)	73
図 3.29	Xe, Cs の径方向分布 (L41441)	74

図 3.30	Xe, Cs の径方向分布 (L41452)	75
図 3.31	Zr, Nd, Sr, Ba の径方向分布 (L41332)	76
図 3.32	Zr, Nd, Sr, Ba の径方向分布 (L41423)	77
図 3.33	Zr, Nd, Sr, Ba の径方向分布 (L41441)	78
図 3.34	Zr, Nd, Sr, Ba の径方向分布 (L41452)	79
図 3.35	正味の特性 X 線強度の求め方	80
図 3.36	Xe, Cs の径方向強度分布 (L41332)	81
図 3.37	Xe, Cs の径方向強度分布 (L41423)	81
図 3.38	Xe, Cs の径方向強度分布 (L41441)	82
図 3.39	Xe, Cs の径方向強度分布 (L41452)	82
図 3.40	Nd, Ba, Zr, Sr の特性 X 線測定結果	83
図 3.41	U, Pu の径方向分布 (L41332)	84
図 3.42	U, Pu の径方向分布 (L41423)	85
図 3.43	U, Pu の径方向分布 (L41441)	86
図 3.44	U, Pu の径方向分布 (L41452)	87
図 3.45	ギャップ部の線分析結果 (L41332)	88
図 3.46	ギャップ部の線分析結果 (L41441)	89
図 3.47	径方向 Xe 濃度分布 (L41332)	90
図 3.48	径方向 Xe 濃度分布 (L41423)	90
図 3.49	径方向 Xe 濃度分布 (L41441)	91
図 3.50	径方向 Xe 濃度分布 (L41452)	91
図 3.51	燃料外周および被覆管内面近傍における窒素の定性分析結果 (L41441)	92
図 3.52	燃料外周および被覆管内面近傍における窒素の線分析結果 (L41441)	93
図 3.53	フェレ径比説明図	94
図 3.54	径方向の結晶粒径分布 (L41332)	95
図 3.55	径方向の結晶粒径分布 (L41423)	95
図 3.56	径方向の結晶粒径分布 (L41441)	96
図 3.57	径方向の結晶粒径分布 (L41452)	96
図 3.58	フェレ径比の相対度数分布 (L41332)	97
図 3.59	フェレ径比の相対度数分布 (L41423)	99
図 3.60	フェレ径比の相対度数分布 (L41441)	100
図 3.61	フェレ径比の相対度数分布 (L41452)	101
図 4.1	外径軸方向プロファイルと金相観察面およびペレットの位置関係 (L413 ピン)	102
図 4.2	外径軸方向プロファイルと金相観察面およびペレットの位置関係 (L414 ピン)	103
図 4.3	Xe 保持量の計算手法説明図	104

図 4.4	燃料気孔率と FP ガス放出率との関係	105
図 4.5	ギャップ部における高 Pu 層析出挙動	106
図 4.6	MN 燃料における Pu 蒸発挙動	107
図 4.7	L41332 における照射後試験結果の特徴	108

写真リスト

写真 3.1	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41332 [As-polished])	109
写真 3.2	光学顕微鏡写真 (L41332 : I 部拡大)	110
写真 3.3	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41332 [As-polished])	111
写真 3.4	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41423 [As-polished])	112
写真 3.5	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41441 [As-polished])	113
写真 3.6	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41452 [As-polished])	114
写真 3.7	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41423 [As-polished])	115
写真 3.8	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41441 [As-polished])	116
写真 3.9	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41452 [As-polished])	117
写真 3.10	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41332 [Etched])	118
写真 3.11	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41332 [Etched])	119
写真 3.12	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41423 [Etched])	120
写真 3.13	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41423 [Etched])	121
写真 3.14	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41441 [Etched])	122
写真 3.15	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41441 [Etched])	123
写真 3.16	光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管 : L41452 [Etched])	124
写真 3.17	光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット : L41452 [Etched])	125
写真 3.18	燃料中心部の二次電子像観察結果の一例 (L41423)	126
写真 3.19	二次電子および特性 X 線像 (L41332 : クラック開口部)	127
写真 3.20	二次電子および特性 X 線像 (L41423 : クラック開口部)	129
写真 3.21	二次電子および特性 X 線像 (L41441 : クラック開口部)	131
写真 3.22	二次電子および特性 X 線像 (L41452 : クラック開口部)	133
写真 3.23	二次電子および特性 X 線像 (L41332 : ギャップ部 F)	135
写真 3.24	二次電子および特性 X 線像 (L41332 : ギャップ部 D)	137
写真 3.25	二次電子および特性 X 線像 (L41332 : 析出物)	139
写真 3.26	二次電子および特性 X 線像 (L41423 : 析出物)	141
写真 3.27	二次電子および特性 X 線像 (L41441 : 析出物)	142
写真 3.28	二次電子および特性 X 線像 (L41452 : 析出物)	143
写真 3.29	二次電子および特性 X 線像 (L41332 : 貫通クラック外周部)	144
写真 3.30	二次電子および特性 X 線像 (L41332 : 貫通クラック中心部)	145

1 緒言

窒化物燃料は、炭化物燃料とともに NaCl 型面心立方構造をもつセラミックスである [1]。これらの燃料は、核分裂性物質密度が高いため良好な核特性を示し、さらに酸化燃料に匹敵する高い融点および金属燃料並の優れた熱伝導度をあわせ持つことが知られている [1-3]。

良好な核特性は、安全裕度の高い炉心設計を可能にする [4] とともに、燃料の長寿命化が期待できる。また、優れた熱的特性を有すると、太径燃料ピンを用いた高線出力運転が可能である。一方、細径燃料ピン仕様では、FP ガスの放出、各種 FP の燃料内での移動および組織再編が抑制されるため、Blank が提唱した Cold Fuel Concept [5-6] が適用できると考えられている。

窒化物燃料および炭化物燃料の研究開発は 1960 年代から米国、欧州、ロシア等で行われてきており、特に炭化物燃料については、照射試験が多数実施され、照射後試験データの蓄積も豊富である [1-3]。しかしながら、これらの燃料は、上記のような優れた性能を有する一方で、工業的規模の燃料製造技術や長半減期核種 (^{14}C) の生成問題等の課題も残されている [1]。

ウラン・プルトニウム混合窒化物 (Mixed Nitride : MN) 燃料は、実用化戦略調査研究においても、新型燃料候補の一つと位置付けられており、特に重金属炉や小型炉においての適用性が評価されている。また、MN 燃料は、ウラン・プルトニウム混合酸化物 (Mixed Oxide : MOX) 燃料、同混合炭化物 (Mixed Carbide : MC) 燃料および金属燃料と比べて、被覆管またはナトリウムとの反応性が低いことが特徴である。さらに、Np, Am, Cm 等との固溶性が高く、安定な相状態が得られるため、高速炉用燃料としてばかりでなく、MA 消滅用燃料としても有望視されている [7]。PUREX 法に基づく湿式再処理および熔融塩電解を利用した乾式再処理が可能 [8] であることと、MOX 燃料の製造工程が部分的に利用可能であることも、MN 燃料の利点である。

日本国内においても、MN および MC 燃料の研究開発が進められている。これまでの照射実績は JMTR 等において MC 燃料ピンが 9 本、MN 燃料ピンが 4 本である。これらの燃料ピンの照射後試験により、基礎的な燃料挙動に関するデータが取得されつつある [9]。しかし、国内での MN および MC 燃料の照射実績は熱中性子炉のみであり、本来の候補対象である高速炉での照射はなされていなかった。熱中性子炉と高速炉では、フラックス、温度等の照射条件が異なることから、最終的には高速中性子照射による燃料の健全性確認と照射挙動の把握が必要不可欠である。

そこで、核燃料サイクル開発機構 (サイクル機構) と日本原子力研究所 (原研) 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、燃料挙動および燃料の健全性を確認し、新型燃料の評価に資することを目的とした共同研究「高速炉用炭・窒化物燃料の基礎照射試験」を実施している [10]。この共同研究の枠組みの概略は、燃料ペレットの製造および短尺燃料ピンの製作を原研が担当し、

燃料ピンの長尺化，集合体組立および照射をサイクル機構で実施し，燃料ピンの設計および照射後試験を共同で行うものである。

「常陽」において照射した燃料ピンの数は，MN 燃料が 2 本，MC 燃料が 1 本であり，最高燃焼度は約 40GWd/t，最大線出力は約 76kW/m を達成している。これらの MN 燃料および MC 燃料ピンにおける非破壊試験結果は既に報告されており[11]，燃料破損は見られなかったことが確認されている。この非破壊試験に引き続き，サイクル機構では MN 燃料について，一部の破壊試験を分担実施した。

本報告書は，サイクル機構が実施した照射後破壊試験結果を整理し，「常陽」照射 MN 燃料の照射挙動をまとめたものである。その際，公開されている JMTR および海外炉において照射された MN 燃料の照射後破壊試験データと比較検討した。

なお，非破壊試験結果[11]の報告後にサイクル機構で実施した MC 燃料ピンのパンクチャー試験結果を MN 燃料ピンのデータとともに本報告書の巻末に付録として掲載した。

2 試験内容

2.1 燃料仕様

MN 燃料ペレットから短尺燃料ピンまでの製造は原研において実施されており、詳細については製造報告書[12]がまとめられている。表 2.1 に燃料ピンの基本仕様を示す。

MN 燃料は酸化プルトニウム (PuO_2) 粉末と濃縮酸化ウラン (UO_2) 粉末を黒鉛粉末とともに円盤状の圧分体としたのちに、炭素熱還元法により合成された。この MN 燃料は、乳鉢およびタングステンカーバイド製のボールミルで微粉末まで粉碎され、ワックス系のポアフォーマーを加えてグリーンペレットに加圧成型されたのちに焼結された。燃料ペレットは外径が 7.28mm と 7.43mm の 2 種類である。外径が 7.43mm である MN 燃料は上記の手順ののち、円周切削、洗浄、乾燥工程を経て製造されたが、外径が 7.28mm である MN 燃料は一度ペレット状まで焼結されたのちに、再度粉碎し、ポアフォーマーを添加して再び成型・焼結された。このため、不純物の混入量が多く、ボールミルの主成分であるタングステン (W) の含有量が高くなっている。

MN 燃料ペレットは、活性な上記の燃料粉末とポアフォーマーを用いて製造され、高密度の燃料マトリックスに比較的大きな気孔を分散させた熱安定型ペレット[1]と呼ばれるものである。燃料ペレットと被覆管との機械的相互作用 (FCMI) の発生を緩和するため、燃料密度を 85%TD (TD:理論密度) 前後に調整している。

このような燃料ペレット 27 個を、外径 8.5mm、内径 7.6mm、肉厚 0.45mm のオーステナイト系ステンレス鋼の被覆管に装荷することで、スタック長が約 200mm である 2 つの短尺 MN 燃料ピンが作製された。

原研で製造された短尺燃料ピンはサイクル機構に搬入されたのち、ダミーの上下端栓を溶接して延長され、照射燃料集合体試験施設 (FMF) において継続照射用「常陽」B 型特殊燃料集合体 (PFB090:B9) に装荷された。この燃料ピン番号は L413 ピンおよび L414 ピンであり、後述の試料番号とともに照射後試験上の管理番号であるが、対象燃料ピンおよび試料を明確にするため、本報告書中でも当該番号を使用することとする。

図 2.1 に燃料ピン、コンパートメント、集合体の模式図を示す。また、図 2.2 に燃料ピンの構造図を示す。

2.2 照射条件

MN 燃料ピンが装荷された B9 は、「常陽」MK-II 炉心の 3B2 (第 3 列制御棒隣接) 位置において第 29 サイクル (平成 6 年 8 月 23 日起動) ~ 33 サイクル (平成 11 年 9 月 1 日停止) の期間照射された。表 2.2~2.3 は、2 本の窒化物燃料ピンにおける最大線出力、最高燃焼度、最大高速中性子照射量および被覆管肉厚中心最高温度の履歴を示したものである。また、最大線出力および被覆管肉厚中心最高温度の変化を図 2.3 に示す。照射日数は約 276E.F.P.D. (Effective Full Power Days) であり、最高燃焼度は約 40Gwd/t、最大線出力は約 76kW/m を達成している。

2. 3 照射後試験方法

2. 3. 1 照射後試験項目および試験対象軸位置

サイクル機構で担当する破壊照射後試験項目は、以下の通りである。

- ①光学顕微鏡観察 (As-Polished)
- ②気孔分布測定
- ③X線微小元素分析
- ④光学顕微鏡観察 (Etched)
- ⑤結晶粒径測定
- ⑥燃焼率測定

これらの試験のうち、①～⑤の試験は、L413ピンの燃料カラム中心部 ($X/L=0.49$)、L414の燃料カラムの上端部 ($X/L=0.95$)、中心部 ($X/L=0.50$) および下端部 ($X/L=0.06$) でそれぞれ実施した。また、⑥の燃焼率測定については、各燃料ピンの約 119～約 122mmD. F. C. B. (Distance From Core Bottom; $X/L=0.6$ 近傍) 位置を試料とした。図 2.4 に試料採取位置および試験対象横断面を示す。また、表 2.4 に同軸位置における照射条件を示す。

2. 3. 2 MN 燃料の取扱および試料調整方法

MN 燃料の金相試験および燃焼率測定試料の採取は、サイクル機構大洗工学センター照射燃料集合体試験施設 (FMF) において実施した。また、燃焼率の測定は、照射燃料試験施設 (AGF) で行った。

FMF での試料調製および試験は、不活性な乾燥窒素雰囲気 (酸素濃度 1000ppm 以下) の金相セルにおいて実施した。切断時の潤滑剤にはエシロンオイルを、研磨時の潤滑剤にはラッピングオイルを、洗浄剤には無水エタノールをそれぞれ使用し、試料調整作業時における燃料と水分との反応を防止した。また、金相試料面のエッチングには、イオン腐食装置を用いた。

燃焼率を測定した AGF は空気雰囲気であるため、切断、研磨等発火の原因となる作業は行わず、被覆管付きの状態での燃料の溶解を実施した。しかし、ペレットの欠け、割れ等で微小片の存在する可能性があることも考慮し、直接扱う場合には着火源を排除する目的でテフロン皿を用いた。

2. 3. 3 観察および分析条件

(1) 光学顕微鏡観察

倒立型光学顕微鏡を用いて、研磨後および腐食後における横断面金相試料の写真撮影を実施した。撮影項目および撮影倍率は以下の通り。

- ①燃料全体写真 (50 倍)
- ②燃料周方向 8 箇所 (被覆管肉厚 : 100 倍, 燃料ペレット-被覆管ギャップ : 200 倍)

③燃料径方向スリット 2 ライン (200 倍)

④径方向スリット内および特徴部スポット (400 倍)

さらに、非破壊試験として実施した被覆管外径寸法測定結果と燃料組織との対応関係を調べるため、2本の燃料カラムの軸方向中心部から採取した L41332 および L41441 試料において、被覆管の外径を測定した。測定には、光学顕微鏡に付属するデジタルスケール (標準スケール測定時の精度は $20\mu\text{m}$ 以内) を用いた。

(2) 気孔分布測定

燃料中の気孔分布は、光学顕微鏡に高解像度デジタルカメラ (Nikon D-1) を設置し、デジタルデータとして燃料組織の撮影を実施した。画像データのファイル保存形式は JPEG (Joint Photographic Experts Group) を使用し、後述の画像処理ソフトウェアにより気孔分布データを解析した。測定は、光学顕微鏡観察径方向スリット上の中心部、中間部、外周部について実施した。

(3) X線微小元素分析

研磨後状態の燃料について、波長分散タイプの遮蔽型 X線マイクロアナライザー (Shielded X-ray Microprobe Analyzer : SXMA, CAMECA 社 ; CAMEBAX-R) により表面状態を二次電子像で観察するとともに、ウラン (U) , プルトニウム (Pu) , 核分裂生成物 (FP) 等の元素分布を分析した。分析項目は、定性分析, 線分析, 面分析であり、一部の元素では定量分析も実施した。試料表面には導電処理としてカーボン蒸着した。

(4) 結晶粒径測定

結晶粒径測定は、気孔分布測定の手法と同様にデジタルカメラを用いることで、結晶粒の状態をデジタルデータとして記録した。これを CRT 上に拡大表示し、アプリケーション上で粒界のトレース作業を実施した。

トレース後の線画に対し後述の画像解析ソフトウェアを用いることで、観察位置ごとに結晶粒の円相当径平均値を測定した。測定は、光学顕微鏡観察で撮影した径方向スリット写真上の中心部、中間部、外周部について実施した。また、トレース作業が困難な微小結晶粒や結晶粒界が不明瞭であり、幾何学的に明らかに1つの結晶粒ではないと判断できる粗大な結晶粒は測定対象外としている。さらに、同一結晶粒に対し画像解析ソフトウェア上でフェレ径比を求め、結晶粒の形状もあわせて検討した。

(5) 画像解析ツール

デジタルカメラにより撮影した気孔分布測定用および粒径測定用写真データは、パソコン用ソフトウェアである Adobe 「Photoshop」 ver. 5.0 および汎用画像処理パッケージ 「Win ROOF」 ver. 3.5 を用いて画像解析を実施した。

(6) 燃焼率測定

燃焼率の測定は、基本的に ASTM 法に準じて実施した。硝酸による試料溶解後、イオン交換によりウラン (U) , プルトニウム (Pu) , ネオジウム (Nd) に元素分離し、質量分析データをもとに、同位体希釈法によって算出した原子数から燃焼率を求めた。

3 照射後試験結果

3.1 光学顕微鏡による燃料横断面組織

写真 3.1 に、研磨後の L41332 (L413 ピン: $X/L=0.49$) における横断面全体組織と周方向 8 箇所のギャップ部および被覆管の観察結果を示す。この写真では、燃料ペレットを横断する貫通クラックが認められるとともに、燃料外周部と中心部を結ぶ数本の径方向クラックが観察される。また、燃料外周部では比較的多くの短い径方向クラックが認められる。さらに、写真 3.1 の G 付近から H を経由して A 付近に至るまでの燃料外周部には周方向クラックの発生が見られる。また、大きく開いたクラック内には複数の小さなペレット片が観察される。

燃料製造時の気孔が、横断面全域にわたり分布している。燃料外周部では、気孔が高密度部を取り囲むような形態（後述の島状組織）を示している。燃料中心部においてはポーラスな組織が観察され、それは燃料外周部から中心部に向かうにつれて顕著となっている。

写真 3.2 は、写真 3.1 の I 付近を拡大したものである。この I 部分の相対半径 (r/R) ≈ 0.8 において金属析出物と思われる白色部が認められる。なお、このような析出は写真 3.2 に示す範囲に特に集中しており、他の領域では観察されなかった。

写真 3.3 は、L41332 の径方向スリット (L-1 および L-2) における半径方向全域の 200 倍観察結果とそのスリット内の 400 倍によるスポット観察結果を示したものである。気孔の占める割合が燃料外周から中心に向かって増加している。また、小さな板状または矩形で内部に気孔のない組織（以下、無気孔組織とする）が点在している様子が観察される（例えば写真 3.3-a の下部）。このような無気孔組織は、スリットの範囲内だけでなく燃料全域において分布している。さらに、析出している白色部は、写真 3.3-f のように気孔を埋めるような形態で存在している。

写真 3.4~3.6 に L41423, L41441 および L41452 (L414 ピン: $X/L=0.06, 0.50$ および 0.95) における横断面全体、8 方向のギャップ部および被覆管における腐食前の組織を示す。3 試料とも燃料外周部から中心部を結ぶ径方向クラックが数本観察され、大きな開口部も認められる。微小な周方向クラックはいくつか見られるが、L41332 とは異なり顕著な周方向クラックは観察されない。横断面全域にわたり、燃料の高密度部を気孔が「島状」に取り囲むように分布している（以下、島状組織とする）。それぞれの島状組織は面積が大きいものと小さいものに分けられ、横断面中に大きさの分布に偏りが見られる。この島状組織の大きさの分布に見られる偏りは、試料ごとに方向がわずかに異なるが、基本的な性状は同じである。また、燃料中心部がポーラスな組織を示しているのは L41332 と類似している。さらに、燃料組織の定性的な観察結果から、この燃料中心部でのポーラスな組織の範囲は燃料ピンの下部から上部に向かうにつれて広くなる傾向を示す。

写真 3.7~3.9 は、L41423, L41441 および L41452 の径方向スリット (L-1 および L-2) における半径方向全域の 200 倍観察結果と、そのスリット内の 400 倍によるスポット観

察結果を示したものである。L41332 と同様に小さな板状または矩形の無気孔組織が観察される（例えば写真 3.7 の L-2 や写真 3.9 の L-1）。これは L41332 において認められたものと類似しており、燃料全体にわたり点在している。さらに、島状組織の大きさが小さい領域のペレット外周部では、その周囲の気孔を連結するようなクラックが認められる。

写真 3.10～3.17 は、各試料における腐食後の組織である。どの試料も、結晶粒径はきわめて小さいことがわかる（結晶粒径測定結果は 3.4 で記述）。光学顕微鏡で観察する限り、被覆管には亀裂や著しい腐食は観察されない。

全試料とも、一般的な MOX 燃料と比較して高い線出力（70kW/m 以上）を経験しているが、燃料ペレットに溶融の痕跡や中心空孔の形成などは観察されない。

図 3.1 は、デジタルスケラーによる被覆管外径測定結果を同軸位置の非破壊試験による被覆管外径寸法測定結果とともに示したものである。いずれのデータも、外径の値はほぼ類似している。しかし、特に L41332 では破壊試験と非破壊試験で角度がずれている。これは、燃料ピン粗切断時に施した周方向のマジックマーキング位置の誤差とガイド管や試料フォルダへの樹脂固定などの金相試料作製時における回転等の誤差が重なったことに起因すると思われる。L41332 試料におけるオーバリティ長径方向は、図 3.1 のように A-E 方位であり、短径方向は C-G 方向であることがわかる。

3. 2 気孔分布

3. 2. 1 気孔サイズ分布

気孔サイズの測定は、燃料直径に相当する径方向の 5 箇所（燃料外周部、中間部、中心部、中間部、外周部）の領域において実施した。図 3.2～3.5 に気孔の度数、相対度数および相対累積度数測定結果を示す。また、気孔分布を評価するために必要な統計処理結果を表 3.1 に示す。各測定結果の階級には、微小な気孔の分布が明確に表現できるように面積（ μm^2 ）を単位に用いた。階級の上限は $50\mu\text{m}^2$ とし、これを越える粗大な気孔については同一階級として示した。また、各測定領域で気孔の総度数に 2 倍以上のばらつきが見られたことから、絶対度数に加え相対度数も算出した。さらに、相対累積度数についても算出し、気孔分布を詳細に検討した。以下、燃料ピンごとにその分布状況を述べる。

①L413 ピン：L41332

L41332 では測定領域の違いにより総度数にばらつきが見られる。写真 3.1 からは、組織的な違いが明確でないペレット外周部の領域 A と E において、総度数に大きな差が認められる。すなわち、6088 個の領域 A に対し、領域 E では 3036 個とほぼ半分の数である（表 3.1 参照）。相対度数分布の比較では、各測定領域とも類似する気孔分布を示した。総度数で差が見られた領域 A と E を比較しても、大きな違いはない。ペレット中心部の領域 C では他の測定領域に比べ、最小階級付近である $0\sim 3\mu\text{m}^2$ の区間でわずかに

低い相対度数を示している。また領域 C と D の $50\mu\text{m}^2$ を越える階級では、それ以外の測定領域より高い値を示している (図 3.2 参照)。相対累積度数分布では、測定領域ごとの違いが明瞭である。

ペレット外周部の領域 A は、階級の小さい領域で急激に相対累積度数が上昇しており、微小な気孔の割合が最も高い。同じペレット外周部でも、領域 E では領域 A ほど急激な立ち上りはなく、ペレット中間部の領域 B とほぼ同じ分布を示す。領域 B と同じペレット中間部である領域 D の分布は、 $0\sim 5\mu\text{m}^2$ の階級まで領域 B と重なっているが、それ以上の階級では領域 B より緩やかな上昇となっている。ペレット中心部の領域 C は、小さい階級での相対累積度数の上昇が最も緩やかで、ペレット外周部の領域 A と比較すると上昇率の差は大きい。これは領域 C が領域 A に比べ、大きい気孔の割合が増えていることを意味する (図 3.6 参照)。

相対累積度数分布を数値的に見ると、第 1 四分位点 (相対累積度数が 25% となる点: 以下 Q_1 点) では、各測定領域とも $1\mu\text{m}^2$ 前後でほとんど差が見られない。第 2 四分位点 (相対累積度数が 50% となる点: 以下 Q_2 点) では、領域 C のみ $3.5\mu\text{m}^2$ で、他の領域は $2\mu\text{m}^2$ 前後とペレット中心部で気孔サイズのわずかな増加が見られる。第 3 四分位点 (相対累積度数が 75% となる点: 以下 Q_3 点) では、領域 A が $4.0\mu\text{m}^2$ 、領域 B と E がほぼ同じで $6.1\sim 6.8\mu\text{m}^2$ 、領域 D が $8.4\mu\text{m}^2$ 、領域 C が $14.5\mu\text{m}^2$ と、ペレット中心付近にかけてサイズの大きい気孔の割合が増加している (表 3.1 参照)。相対累積度数分布においても見られたように、 Q_3 点の比較により L41332 の気孔分布が L-1 と L-2 で対称ではなく、L-2 側にサイズの大きな気孔が偏って分布していることが明らかとなった。

②L414 ピン: L41432, L41441, L41452

L414 ピンから採取した 3 試料においても、総度数にばらつきが見られる。しかし、測定領域 A, E と B, D のように、ペレット同心円上の測定領域でのばらつきは比較的小さい (表 3.1 参照)。相対度数分布について比較すると、3 試料のどの測定領域についても明確な分布の差は見られない。しかし、3 試料ともペレット中心部の領域 C で $50\mu\text{m}^2$ を越える階級の相対度数が他の測定領域に比べて高い値を示す (図 3.3~3.5 参照)。

相対累積度数分布ではペレット外周部から中心部にかけて分布の違いが見られる。3 試料ともペレット外周部の領域 A と E の分布はほぼ一致しており、小さい階級で相対累積度数の上昇が見られる。また燃料スタック下部試料の L41423 では、ペレット中間部の領域 B と D も領域 A, E とほぼ同じ分布を示している。燃料スタック中心部試料の L41441 および上部試料の L41452 の領域 B, D においては、下部試料と異なり、小さい階級での立ち上がりが緩やかである。3 試料とも、ペレット中心部の領域 C では小さい階級での相対累積度数の上昇が最も緩やかで、外周部に比べ大きい気孔の割合が増えている (図 3.6 参照)。

Q_1 点では、3 試料の全ての測定領域が $0.8\sim 0.9\mu\text{m}^2$ 程度で、試料および測定領域の違いによる差は見られない。さらに Q_2 点でも、3 試料の全ての測定領域が $2\mu\text{m}^2$ 前後で明

確な差は認められない。Q₃点で初めて各試料の測定領域ごとに差が現れている。燃料スタック下部試料のL41423では、ペレット外周部および中間部の領域A, B, D, Eとも3~4 μm^2 でほぼ同じ気孔サイズであるが、ペレット中心部の領域Cでは5.4 μm^2 と気孔サイズが大きい。

L41441では領域A, Eが3.0~3.4 μm^2 , 領域B, Dが4.3~5.3 μm^2 , 領域Cが7.5 μm^2 と、ペレット中心部に向かうにつれて除々に気孔サイズが大きい値を示す。L41452では、領域A, Eが3.3~3.8 μm^2 , 領域B, Dが4.6~6.1 μm^2 , 領域Cが8.8 μm^2 でL41441と同様な傾向が見られる。しかし、領域B, DおよびCの気孔サイズはともにL41441よりわずかに上回っている(表3.1参照)。以上のようにL414ピンでは、3試料ともL-1とL-2でほぼ対称な気孔分布を示し、ペレット中心部で大きな気孔の割合が増加している。また燃料スタック上部の試料ほど、ペレット中心部およびその周辺部で大きな気孔の割合が増加する傾向が見られる。

3. 2. 2 気孔面積率分布

図3.7~3.10にペレット径方向の気孔面積率分布状況を示す。気孔面積率の測定は、燃料直径に相当する径方向の5箇所(外周部, 中間部, 中心部, 中間部, 外周部)の領域において実施した。各領域では、それぞれ3箇所の視野で燃料組織を観察し、測定した3つの領域(例:A1, A2, A3)のデータを1つの測定領域(例:領域A)の平均値として整理した。図表中の『全気孔測定』とは領域内の全ての気孔を測定対象としたものであり、一部でクラックを含む場合がある。また、『10 μm 以上削除』とは円相当径が10 μm 以上の製造時気孔と見られるものと、クラックを領域から意図的に削除し、照射時に生成されたと考えられる気孔の分布を把握するものである。

削除する気孔のしきい値である10 μm は、製造時に導入された比較的大きな気孔の下限値(最小面積が約78 μm^2 であり、これを円相当径に換算した場合約10 μm)を経験的評価により採用している。なお、10 μm 以上削除の抽出領域であってもペレット中心部(領域C)のように、気孔同士の連結により10 μm 以上になったと観察される気孔については削除対象としていない。以下、燃料ピンごとにその分布状況を述べる。

①L413ピン:L41332

L41332の全気孔測定データ(領域平均)の気孔面積率は、外周部である領域Aが22.5%, 領域Eが17.6%, 中間部である領域Bが27.1%, 領域Dが29.1%でほぼ同じ、中心部の領域Cは45.0%まで気孔率が上昇しており、ペレット外周部から中心部に向かうにつれて気孔面積率の増加がみられる。10 μm 以上削除のデータ(領域平均)は、ペレット外周部の領域Aが12.6%, 領域Eが8.8%, 中間部の領域Bが18.1%, 領域Dが23.8%, 中心部の領域Cは35.2%である(図3.7参照)。全気孔測定データと10 μm 以上削除データのグラフを比較すると、ペレット径に対する気孔率の変化量がほぼ一致しており、全気孔測定データの気孔率から10 μm 以上削除データを差し引くと、どの測定領域も

10%程度となる。全気孔測定データと10 μm 以上削除データの差は、10 μm 以上の気孔が占めるものである。その差が全測定領域でほぼ一様であり、10 μm 以上の気孔の分布はペレット全域での偏りが少ないことを意味する。これは写真3.1による燃料組織の定性的観察結果と一致する。つまり、L41332でペレットの気孔率変化に寄与しているのは、円相当径が10 μm 未満の気孔であると言える。

②L414ピン：L41423, L41441, L41452

L414ピンの3試料についても、ペレット中心に向かうにつれて気孔面積率が上昇する傾向を示すのは全気孔測定データ、10 μm 以上削除データともL41332と同様である。代表的な気孔面積率測定結果をあげると、全気孔測定データ（領域平均）の場合、ペレット外周部領域Aは、L41423が15.9%、L41441が10.0%、L41452が17.1%と低い。ペレット中心部の領域Cは、それぞれ37.9%、37.1%、43.3%と各試料内で最も気孔面積率が上昇している。10 μm 以上削除データ（領域平均）の場合、領域Aは、L41423が10.1%、L41441が7.8%、L41452が10.0%である。ペレット中心部の領域Cは、それぞれ25.1%、30.7%、33.3%である（図3.8～3.10参照）。

全気孔測定データと10 μm 以上削除データの気孔率の差は3試料とも一定でなく、10 μm 以上の気孔分布に偏りがあることを示している。特にL41441のペレット外周部の領域AとEの気孔面積率は差が大きい。すなわち、領域Aの全気孔測定データが10.0%で、10 μm 以上削除データは7.8%とその差は約2%であるのに対し、領域Eの全気孔測定データは20.0%で、10 μm 以上削除データは7.4%と約13%もの差がある。

10 μm 以上削除データについてL-1方向とL-2方向を比較すると、3試料ともほぼ対称な気孔面積率である。試料ごとの測定領域A、EとB、Dの気孔面積率の差は、2%程度である。それに対し全気孔データについて同様に比較すると、3試料とも非対称で、L-2方向（L41452ではL-1方向）の気孔面積率が高い。つまり、L414ピンでは10 μm 未満の気孔分布に関してペレットの同心円上でほぼ同率に分布しているが、10 μm 以上の気孔には偏りがあることを示している。これは写真3.4～3.6で観察した定性的な観察結果と一致しており、島状組織の分布の偏りが存在することを定量的に表すものである。10 μm 以上削除データでの気孔面積率は3試料ともペレット外周で7～10%程度とほぼ同率である。しかし、ペレット中心では、燃料スタックの上部になるほどそれぞれ25.1%、30.7%、33.3%と気孔面積率の上昇が見られる。

3. 2. 3 燃料中心部における気孔形態

写真3.18は、気孔のサイズと面積率が大きい燃料中心部での気孔の形態を把握するために、観察した二次電子像の一例を示したものである。製造時に導入した比較的大きな気孔とともに、結晶粒の形状を認識できるほど多くの微小気孔が粒界において観察される。また、粒界三重点で観察される気孔は、粒界稜上の気孔よりも相対的に大きい。気孔面積率の定量データからわかるように、燃料中心部の気孔は非常に多いが、写真

3.18に示すように、複数個が連結して伸長した気孔は少ない。

3.3 X線微小元素分析

3.3.1 燃料マトリックスおよびクラック開口部の定性分析および面分析

図3.11～3.14は、各試料の燃料外周部マトリックスにおける定性分析結果を示したものである。検出される元素は、核燃料物質であるUおよびPuであり、FP元素のピークも認められる。

図3.15は、L41332のクラック開口部における定性分析結果を示したものである。検出された元素はバリウム(Ba)、テルル(Te)、イットリウム(Y)、ストロンチウム(Sr)、パラジウム(Pd)である。写真3.19には、この部分における面分析結果を示す。クラック開口部にFP元素が不均一に分布している様子を観察できる。また、Puの被覆管内側における分布が特徴的である。さらに、被覆管構成元素である鉄(Fe)、クロム(Cr)、ニッケル(Ni)の分布も観察されるが、被覆管内面に腐食発生の兆候は認められない。

図3.16は、L41423のクラック開口部における定性分析結果を示したものである。検出された元素は、U, Pu, Ba, Te, Sr, Ni, Fe, Cr, セシウム(Cs)、銀(Ag)、ケイ素(Si)である。写真3.20には、この部分における面分析結果を示す。Ba, Sr, Csは、燃料のクラック内側および被覆管内面で不均一な分布が認められる。また、被覆管構成元素であるFe, Cr, Niの分布も見られるが、これらの元素の被覆管内面での特性X線像は直線的であり、明確な腐食の発生は観察されない。

図3.17は、L41441のクラック開口部における定性分析結果を示したものである。検出された元素はU, Pu, Cs, Ba, Srである。写真3.21には、この部分における面分析結果を示す。Ba, Sr, Csは、L41423と同様に燃料のクラック内側および被覆管内面での分布が見られる。上記2試料と同様に、被覆管構成元素の分布が認められるが、被覆管内面に腐食は観察されない。

図3.18は、L41452のクラック開口部における定性分析結果を示したものである。検出された元素はU, Pu, Cs, Baである。写真3.22には、この部分における面分析結果を示す。Ba, Csは、クラック開口部の被覆管内面で分布が見られる。また、被覆管構成元素の分布も認められるが、被覆管内面に明確な腐食の発生は観察されない。

3.3.2 燃料-被覆管ギャップ部の定性分析および面分析

図3.19は、L41332における燃料-被覆管ギャップ部Fの定性分析結果を示したものである。ここではPuとともに、Te, O, Nが検出される。写真3.23には、この位置における二次電子像および面分析結果を示す。そのギャップ部には析出物が観察される。この析出物は均一でなく、小さな粒子の堆積により形成された様子を示している。Puの面分析結果を見ると、燃料マトリックスに比べてきわめて高い強度を示している。また、Te, O, Nもギャップ内に分布している様子がわかる。

一方、被覆管構成元素である Fe, Cr, Ni についての特性 X 線像は直線的であり、被覆管内面に反応層の存在は認められない。

図 3.20 は、同一試料のギャップ部 D の被覆管内面における定性分析結果を示したものである。この位置では、被覆管構成元素とともに図 3.19 で示したギャップ部 F と同種の元素が検出される。写真 3.24 に示すように二次電子像から被覆管内面に Pu 強度の高い層が付着するように析出している様子を観察できる。この析出は、ギャップ部 F で見られたものと比べて、被覆管の内面のみであるという析出形態以外、構成元素等は同じであると判断できる。写真 3.24 はギャップ部 D についての面分析結果である。この位置でもギャップ部 F と同様に、被覆管内面に Pu 強度の高い層（以下、高 Pu 層）の析出が認められる。U と Pu の面分析結果を詳細に観察すると、U はマトリックスでほぼ均一に分布している様子が観察されるが、Pu はまだらに不均一な分布が見られる（ギャップ部 F）。また、特にギャップ部 D では、後述の結晶粒界に相当する位置において Pu 強度の低下が観察される。

L414 ピンから採取した 3 試料では、燃料-被覆管ギャップ部のほとんどが閉塞しており、二次電子像からもギャップ部への元素の析出は観察されない。このギャップ部の定性分析の結果、U, Pu と微量の Cs および被覆管構成元素が検出された。これはプローブが燃料最外周部と被覆管内面に同時に照射され、燃料と被覆管の両方の情報が一度に得られたものと考えられる。つまり、L414 ピンから採取した 3 試料のギャップ部には、有意な析出が見られないと解釈できる。

3. 3. 3 燃料内析出物の定性分析および面分析

図 3.21 は、写真 3.2 で示した L41332 における広い範囲に析出している白色部の定性分析結果を示したものである。検出された元素は、U, Pd, ルテニウム (Ru), ロジウム (Rh), テクネシウム (Tc) である。写真 3.25 には、この部分の面分析結果を示す。大部分の析出部では、Ru, Rh, Pd, Tc がほぼ均一に分布しているが、一部に Pd 強度の高い領域も認められる。また、Mo も点状に分布している。この Pd 強度の高い部分の定性分析を実施した結果が図 3.22 である。この位置では、Pd とともに Ru, Rh, U, Pu が検出される。一方、Mo 強度が高い位置では、図 3.23 のように Mo とともに Tc, Ru, U, Pu が認められる。

図 3.24 は、L41423 において観察された析出物の定性分析結果を示したものである。検出された元素は、U, Pu とともに Mo, Tc, Ru, W である。写真 3.26 には、この位置における面分析結果を示す。Mo, Tc, W は、ほぼ均一に分布しているが、Ru の強度が弱く、明確な分布状態は確認できない。

図 3.25 は、L41441 において観察された析出物の定性分析結果を示したものである。L41423 と同様に、U, Pu, Mo, Tc, Ru, W が検出される。写真 3.27 に、この位置における面分析結果を示す。

図 3.26 は、L41452 において観察された析出物の定性分析結果を示したものである。

検出された元素は、Mo, Tc, Rh, Ru, Pd, U, Pu である。写真 3.28 には、この部分における面分析結果を示す。Ru, Rh, Tc はほぼ均一に分布しているが、Mo と Pd は偏析していることが明らかである。

3. 3. 4 FP の径方向線分析

図 3.27～3.34 は、各 FP (Cs, Xe, Ba, Sr, Nd, Zr) の特性 X 線に波長を固定して燃料ペレットの径方向スリット上 (L-1 および L-2) でスキャンした結果を示したものである。つまり、これらの X 線強度には各測定位置におけるバックグラウンドによる計数値も含まれている。存在量の少ない元素については、X 線強度に対するバックグラウンドの計数値の占める割合が高くなる。したがって、これらの元素における線分析測定結果を正確に解釈するためには、バックグラウンドの分布もあわせて把握する必要がある。

図 3.27～3.30 を見ると、Cs, Xe は燃料中心部において明確な X 線強度の低下が認められる。これら Cs と Xe については、径方向の約 10 箇所について特性 X 線波長ピーク値とその位置におけるバックグラウンドを差し引いて、正味の特性 X 線強度を求めた。図 3.35 に正味の X 線強度の求め方を模式的に示す。

図 3.36～3.39 に、Cs および Xe の正味の X 線強度径方向分布を示す。これを見ると、明らかに燃料中心部において X 線強度の低下が認められる。Ba, Sr, Nd, Zr の各元素については、図 3.31～3.34 から外周部で強度が高いように見える。この分布が有意であるかを確認するため、径方向の 4 ヶ所について、それぞれの元素における特性 X 線の波長周辺に注目して、X 線強度を測定した。図 3.40 は、その一例として L41423 における結果を示したものである。これを見ると、径方向分布における外周部への強度増加傾向と対応して、各元素におけるバックグラウンドが外周部ほど高くなっているとわかる。つまり、測定位置間のピーク値の差は、当該位置におけるバックグラウンドの差となっている。これにより、図 3.31～3.34 で示した径方向分布は、ほぼ平坦であり、Ba, Sr, Nd, Zr の各元素について有意な径方向分布は認められないと解釈できる。

3. 3. 5 U および Pu の径方向線分析

図 3.41～3.44 は、各試料における U および Pu の特性 X 線に波長を合わせ径方向スリット上 (L-1 および L-2) でスキャンした結果を示したものである。ギャップ部に高 Pu 層が認められた L41332 試料については、ほぼ同じラインを繰り返し分析した結果もあわせて図示している。これを見ると、L414 ピンから採取した 3 試料 (図 3.42～3.44 参照) において、多少のフラクチュエーションが見られるものの、明確な径方向分布は認められない。

一方、L41332 では、ギャップに高 Pu 層の析出が見られる方向の L-2 スリットにおいて、燃料外周部近傍でわずかに Pu 強度が低下する分布を示す。このような燃料外周部の Pu の変化に着目して、2 本の燃料ピンの軸方向中心位置から採取した L41332 と

L41441 の周方向 8 箇所において線分析を実施した。分析は、被覆管との位置関係が明確となるように、Fe についてもあわせて実施した。その結果を図 3.45～3.46 にそれぞれ示す。ギャップ部に明確な高 Pu 層の析出が見られない L41441 においては、燃料最外周部に至るまでほぼ平坦な分布を示している。L41332 についても、ギャップに高 Pu 層が観察されない部分では平坦な分布である。しかし、ギャップ部または被覆管内面に高 Pu 層が認められる部分のうち、D, E, F 部では、燃料最外周部において被覆管方向に向かうにつれて緩やかに Pu 強度の低下が観察される。

3. 3. 6 貫通クラック部における Pu 面分析

L41332 の燃料-被覆管ギャップ部に Pu 強度の高い層が認められた現象に関連する情報を入手するため、L41332 における径方向に貫通したクラックの燃料外周部と燃料中心部において Pu の面分析を実施した。写真 3.29 は、ギャップ部 F と G の中間に位置するクラック開口部付近における二次電子像および Pu の面分析結果を示したものである。貫通クラック開口部に高 Pu 層の析出が認められる。この位置の定性分析結果は、ギャップ部で認められたものとほぼ一致している。燃料中心部では、写真 3.30 のように U の分布はほぼ均一であるが、Pu については結晶粒界に沿って強度の低下が観察される。

3. 3. 7 無気孔組織周辺の U および Pu 分析

写真 3.3 などにおいて認められた無気孔組織とマトリックスとの違いについて検討するため、この位置周辺の線分析および面分析を実施した。その結果、無気孔組織とその周辺の燃料マトリックスとの間で U および Pu の明確な分布の差は認められず、濃度的には大きな差はないことが確認された。

3. 3. 8 径方向の Xe 定量分析

図 3.36～3.39 で示した正味の Xe 強度径方向分布をもとに、定量分析を実施した。定量値は、Xe 保持量が既知と判断できる標準試料の Xe 濃度と X 線強度との関係から検量線を作成し、本測定により得られた Xe の強度を濃度に変換することで求めた。標準試料としては、照射条件が低温 (900℃以下)・低燃焼度 (2at.%以下) である MOX 燃料 (「常陽」MK-II 炉心燃料である PFD010 および PFD003) におけるペレット最外周部の組織不変領域を採用した [13]。

図 3.47～3.50 は Xe の定量分析結果を ORIGEN2 により計算した理論生成濃度とともに示したものである。この理論生成濃度は、表 3.2 に示す各サイクルの最大フラックスを用いた ORIGEN2 による Xe 生成量の計算結果をもとに計算した。まず、燃料ピン当たりの Xe 生成量 (mol/pin) を燃料スタック体積あたりの Xe 生成濃度 (mol/cm³) に変換した。次に、この Xe 生成濃度をピン最高燃焼度と分析断面位置における局所燃焼度との比率で補正した。このような手法を用いて、各試料における Xe 生成濃度を求めた。

図 3.47～3.50 を見ると、どの軸位置においても燃料外周部では理論生成濃度に近い濃度の Xe が検出されたのに対し、燃料中心部に向かうにつれて濃度の低下が認められる。同一軸位置で比較すると、L41441 の方が L41332 に比べて燃料中心部での Xe 濃度の低下が著しい。

3. 3. 9 被覆管の窒化

図 3.51 に、被覆管内面の定性分析結果の一例を示す。被覆管内面には窒素元素は検出されない。図 3.52 に被覆管内面周辺における窒素の線分析結果の一例を示す。被覆管の径方向において、分布に特徴はなく、バックグラウンドレベルで推移していることが分かった。

3. 4 結晶粒径測定

表 3.3 に平均結晶粒径およびフェレ径比の測定結果を示す。ここでの平均結晶粒径は、各結晶粒の面積から円相当径に変換した数値の平均である。一方、フェレ径比とは図 3.53 に示すように、図形の x 方向の正射影長さ（水平方向フェレ径）と y 方向の正射影長さ（垂直方向フェレ径）の比を x 軸との角度で表現したものである。 $\theta = 45^\circ$ に近い値ほど等軸晶的形狀が強い結晶粒であり、 $\theta = 0^\circ$ または 90° に近いほど柱状晶的形狀を示している。垂直フェレ径方向を温度勾配に対応する燃料径方向にあわせて写真撮影していることから、 $\theta = 90^\circ$ に近いほど柱状晶的形狀を示すこととなる。

平均結晶粒径は、どの測定位置においても約 $3\sim 4\mu\text{m}$ ときわめて小さい値を示している。図 3.54～3.57 に示すように、ペレットの径方向および軸方向における結晶粒径の分布は平坦であり、温度レベルの違いによる明瞭な結晶粒成長は観察されない。フェレ径比については、すべての測定位置において θ が 45° 程度である。図 3.58～3.61 のようなフェレ径比の分布を見ても、ほとんどの結晶粒が等軸晶であることが分かった。

3. 5 燃焼率測定

燃焼率測定結果を表 3.4 に示す。表には、求めた燃焼率から燃焼度への換算値および燃焼度計算値もあわせて示している。燃焼度に関する C/E 値は両試料で 0.995 および 0.985 と良好な一致を示し、照射挙動評価に用いる計算予測精度が満足できることを確認した。

なお、空気雰囲気下で行った燃料溶解および測定作業は、MOX 燃料と同等の試験条件を適用できることが分かった。

4 考察

4.1 燃料組織変化挙動

4.1.1 マクロ組織変化

「常陽」照射 MN 燃料では、MOX 燃料で観察されるような柱状晶や中心空孔の形成などの顕著な組織変化は認められない。これは、製造時気孔が温度勾配に対応する径方向へ移動していないことを意味するものである。しかし、特に L414 ピンから採取した各試料の全域において観察される島状組織の発現は、一般的な照射済みペレット燃料の組織観察結果と比べると、きわめて特異な事象であるといえる。

この島状組織の形成は JMTR で照射された MN 燃料 [14-16] および欧州における結果 [17] においても認められている。これは、ペレット成型時における燃料粉末およびポアフォーマーが不均一であったことと照射中の焼きしまりに起因している、との考察がなされている [14-16]。L414 ピンで照射された燃料も、過去に JMTR で照射された燃料と同様の製造方法を採用しており、製造時における燃料の状態も、JMTR 照射燃料とほぼ同じであったことが報告されている [12]。したがって、L414 ピンの各試料において見られた島状組織の生成も、成形時におけるポアフォーマーの不均一性と照射中の焼きしまりに起因していると考えられる。この島状組織の内部ではクラックが貫通していることから、クラック発生より前となるが、照射開始後比較的早い時期にこのような島状組織が形成されたと推測できる。

一方、L413 ピンから採取した L41332 では、島状組織が燃料外周部の一部に認められるものの、ほぼ均一に気孔が分布している。

この差異は、2本の燃料ピンで照射された MN 燃料の製造履歴が異なっているためと考えられる。L413 ピンの燃料ペレットは、L414 ピンのものと同じ状態まで一旦焼結した後、ペレットをボールミルで粉碎し、ポアフォーマーを添加して、再焼結している [12]。本試験結果からは結論できないが、L413 ピンの燃料では、一度目の焼結時に生じていた粉末およびポアフォーマーの不均一性が粉碎時に解消され、再焼結時の均一性が向上した可能性が考えられる。

4.1.2 ミクロ組織変化

高線出力下で照射された窒化物燃料および炭化物燃料の組織は、燃料外周部から、製造時組織 (Zone IV)、粒成長・粒界バブル組織 (Zone III)、擬柱状晶・伸長粒および気孔領域 (Zone II)、燃料中心ポーラス領域 (Zone I) の4つの領域に分かれると考えられており、それぞれの領域で特徴的な挙動を示すことが提言されている [18]。

燃料温度が低い外周部の Zone IV では、わずかな焼きしまりが生じるが、照射を経験しても製造時の初期組織が維持されている。Zone III では、等軸粒の粒成長が認められ、粒界に FP ガスバブルの析出が観察される。この析出の様子は、Zone IV 近くの小さく独立したガスバブルから、燃料中心方向の高温域での相互に連結したバブルに変化する。

Zone IIでは気孔が少なく、高密度の領域であり、結晶粒と気孔が温度勾配に沿って大きく伸長している。気孔の移動にはある温度および温度勾配が必要となるため、この領域の形成にはしきい温度および温度勾配が存在する。さらに、燃料の組成や燃焼度にも依存する。燃料中心であるZone Iについては、温度は高いが、温度勾配は小さい領域である。そのため、存在する気孔は不規則な形状を示し、その大きさは結晶粒の大きさとほぼ等しい。

これら異なる4つの構造領域の形成範囲は、燃料組成、燃焼度、温度と温度勾配に依存することが知られている。そのなかで、燃焼度依存性を例にとると、Zone IからZone IIIは燃焼度の増加とともに被覆管方向へ広がり、その結果としてZone IVの範囲の減少することが報告されている[2]。

MN燃料では、元素や気孔の移動速度が小さいためZone IIは認められず、残りの3つの領域に分かれると考えられている[2]。DNI試験(Dounreay Nitride and Carbonitride Irradiation No.1)としてDFR(Dounreay Fast Reactor)において最大線出力が約120kW/mで局所燃焼度が約5.0%FIMA(Fraction of Initial Metal Atom)まで照射したMN燃料ピンでは上記のような3つの領域の組織変化が観察されている[18]。

組織観察結果および結晶粒のフェレ径比測定結果を見ると、Zone IIに相当する伸長組織は認められず、これまでに報告されているMN燃料の組織と類似傾向を示した。しかし、結晶粒径の測定結果では明確な結晶粒成長は認められなかったことから、Zone I、IIIおよびIVの境界が明確ではない。粒界に析出している気孔の面積率からZone IVとIIIは判別できるが、Zone IIIとIの境界は連続的に変化しており、明確な分離は困難であった。燃料中心部では、Zone Iに相当する非常にポーラスな組織が観察された。

Ronchiら[19]は、DNI試験としてDFRで最大130kW/m、1.3%FIMAまで照射したMN燃料の横断面について気孔分布と結晶粒径の関係を報告している。それによると、照射温度が低い領域における結晶粒径は初期結晶粒径と同じ6 μ mであったが、温度の高い領域では約15 μ mまでの粒成長が認められている。また、この粒成長とともに、気孔濃度(数)の減少と気孔サイズの増加が対応している。

未照射燃料の加熱保持試験によると、MN燃料の粒成長速度はMC燃料よりも遅いが、初期粒径 d_0 と加熱後粒径 d の三乗差の対数 $\log(d^3-d_0^3)$ は1100~1700 $^{\circ}$ Cの温度範囲で絶対温度の逆数に比例することが報告されている[19]。

MN燃料の組織変化では、低温部である燃料外周部から燃料中心部に向かって、大きい気孔の占める割合が高くなる傾向を示している。しかし、気孔数の変化は少ない。また、結晶粒径については、どの測定位置においても約3~4 μ mの値を示し、明確な粒成長は観察されない。

以上のような組織観察結果から、本照射条件下では、MN燃料の組織安定性がきわめて高いと解釈できる。表2.4に示したように、燃料のノミナル仕様寸法を用いた照射初期における燃料中心温度の計算結果によると、L41332では約1790 $^{\circ}$ C、L414ピンから採取

した 3 試料では、約 1420~1550℃と見積もられている。これは、未照射燃料の加熱保持試験[19]で粒成長が認められる温度領域である。

粒成長挙動は、初期結晶粒径、組成、保持時間等に強く依存するため、本試験結果だけでは結論できないが、この組織安定性は後述のクラック・リロケーションの発生により、MN 燃料が長期間にわたり低い温度で照射されていた可能性を示唆するものである。

4. 2 金属 FP の析出挙動

MN 燃料に関する照射後試験の実績は前述の通り MOX 燃料に比べて非常に少なく、特に FP の析出挙動についての報告例は限られている。

Giacchetti ら [20] は DFR で照射した MN 燃料 (最大燃焼度: 約 1.3%FIMA, 最大線出力: 約 130kW/m) について、横断面の EPMA 分析結果を報告している。それによると $r/R \approx 0.7 \sim 0.8$ 付近において UMe_3 (Me= Ru, Rh, Pd) 系の金属間化合物と Mo-Tc 系合金の析出が認められている。

UMe_3 系の析出は、 $\beta - \gamma$ オートラジオグラフィーで強度の高い領域において認められる。Mo-Tc 系合金については、上記 $\beta - \gamma$ 強度分布に依存せず、不純物元素である W や Ti とともに析出している。 UMe_3 系析出物中には Pu は認められないが、この析出物の周辺でわずかに Pu 濃度が高くなっているという結果が得られている。また、 $r/R \approx 0.7$ 付近で金属 FP が析出したのは、燃料中心部で蒸発した FP 元素がこの位置において凝縮した結果であると報告されている。

UMe_3 系の析出物については、荒井ら [21] が報告している照射模擬 MN 燃料中においても観察されている。一方、Pu については UMe_3 と同様な化合物である $PuRh_3$ と $PuPd_3$ が存在し、かつ Ru と $PuRu_2$ を作る事が知られている。したがって、照射された MN 燃料中の Ru, Rh, Pd は (U, Pu) (Pd, Ru, Rh)₃ の状態で存在し、Mo と Tc は金属析出物として存在すると考えられている [22-23]。

L414 ピンから採取した 3 試料で観察された析出物は、光学顕微鏡による 400 倍の観察では困難なほど小さく、かつ少ない数であったのが特徴的である。したがって、SXMA による析出物の元素分析結果は、周辺の燃料マトリックスの情報も含んでいる可能性がある。また、L414 ピンの各試料で観察された析出物のほとんどが不純物の W とともに確認されている。このことは、Giacchetti ら [20] の結果と類似している。これは、結晶構造が BCC である不純物 W と NaCl 型 FCC 結晶構造の燃料マトリックスとの境界が、優先的に析出の起こる不整合界面となっている可能性を示唆するものである。

一方、L413 ピンから採取した L41332 で観察された析出物は、不純物として混入した W に付随するものと、(U, Pu) (Pd, Ru, Rh)₃ 系のものである。その組成に関しては、従来から照射後の MN 燃料で析出が予想されているものと類似している。しかし、同じ (U, Pu) (Pd, Ru, Rh)₃ 系の析出物でも、図 3.22 のように Pd 強度の高い領域も観察された

ことから、析出物は単一組成ではなく、数種類の化学形からなることが予想される。

写真 3.2 で示したように、(U, Pu) (Pd, Ru, Rh)₃系の析出が一部の範囲で、しかも一つ一つがきわめて大きい状態で観察されたのは特徴的な結果である。析出場所も、マトリックス中ではなく気孔を埋めるような形態である。このような形態の析出は、Giacchetti ら [20] や荒井ら [21] の報告には認められないが、欧州では類似の析出が観察されている [17]。

4. 3 燃料ペレットと被覆管の相互作用

4. 3. 1 機械的相互作用

本 MN 燃料における FP ガス放出率は 3.3% と 5.2% であり [11]、きわめて低い値が得られている。FP ガス放出率が小さいと、ガスプレナム長を抑制でき、燃料のコンパクト化につながることから、MN 燃料はこの点において有利である。しかし、FP ガスの放出が少ないことは、燃料ペレット内に保持している量が多いことを意味し、燃料スエリングを大きくする恐れがある。

燃料と被覆管との機械的な相互作用 (Fuel-Cladding-Mechanical-Interaction: FCMI) は、燃料の健全性を評価するうえで、きわめて重要な挙動である。非破壊試験の結果 [11] から、2 本の MN 燃料ピンの被覆管には明確な外径変化が認められている。図 4.1~4.2 に被覆管外径寸法測定結果、ペレット-ペレット境界および横断面組織観察位置の関係を示す。図中の縦罫線がペレット-ペレット境界を示したものであり、ペレット高さの製造時検査データを X 線ラジオグラフィ撮影結果で補正したものである。

L414 ピンではノミナル値に対して明らかな外径増加が認められる。「3. 1」で示したように、L414 ピンから採取した試料の横断面観察結果ではギャップの残存は認められなかったことから、この外径増加は FCMI に起因するものであると考えられる。被覆管にはクラックの発生は観察されず、本照射条件下での燃料は健全であったと言える。

本燃料は原研で製作した熱安定型ペレット [1] であり、燃料密度を 85%TD に下げた仕様である。これは低密度にすることで、FCMI の発生を緩和することを目的としたものである。L414 ピンにおける被覆管外径寸法測定結果は、周方向平均値の軸方向最大外径増加率で約 0.51%、最大外径増加率で約 0.66% である [11]。この値は、JMTR で照射した MN 燃料の測定結果である 0.3~0.45% 程度 [9] と比べてわずかに高い値を示しているが、Bauer らの報告結果 [24] と近い値を示しており、これまでに報告されている MN 燃料ピンの外径増加率と燃焼度の関係と類似傾向を示している。

Bauer ら [24] は単位燃焼度当たりの燃料ペレットの外径増加率 ($\Delta D/D\%/at.\%$) について、ギャップ閉塞までの自由スエリング速度は 0.61%、ギャップ閉塞後の拘束状態では 0.48% であると報告している。この関係をもとに、被覆管のスエリングおよび被覆管と燃料ペレットの熱膨張を無視して、L414 ピンのノミナル寸法仕様から被覆管の外径増加率について見積もる。燃料の自由スエリング速度を 0.61%/at.% と仮定し

たときのギャップ閉塞までの所要燃焼度は約 3.75 at. % である。その後、0.48% / at. % で燃料とともに被覆管が増加したとすると、最高燃焼度約 4.3 at. % まで照射した場合の被覆管に生じる外径増加率は約 0.26% である。

この計算結果はペレットがノミナル形状を維持したまま変形すると仮定した場合の外径増加率である。しかし、写真 3.4~3.6 から燃料ペレットのクラック開口部が維持されていることから、熱応力によりクラックが発生し、そのペレット片がリロケーションすることにより、3.75 at. % よりも早期に FCMI が発生したものと考えられる。Bauer が提唱しているようにギャップの消失燃焼度が 3 at. % である [24] と仮定して、上記と同様の計算をすると被覆管の外径増加率は約 0.62% となり、測定結果とほぼ一致する。熱安定型ペレット [1] の採用は FCMI の緩和を目的としているが、試験結果から判断すると、FCMI 挙動は海外炉で照射された MN 燃料ピンにおける挙動とほぼ類似していると考えられる。

「常陽」照射 MN 燃料ピンと、JMTR および海外炉において照射実績のある MN 燃料ピンとでは被覆管の仕様が異なるため、FCMI 挙動におよぼす被覆管の変形抵抗は同一ではない。このため、単純な比較はできないものの、本試験で得られた結果からは、熱安定型ペレットが FCMI の発生を緩和した明確な効果は現れていない。

MN 燃料ピンの設計段階では FCMI の発生をさらに緩和するため、燃料ペレットの外径を小さくすることで、初期ギャップ幅を確保し、FCMI の発生時期を遅延させることとしていた。L413 ピンがこれに相当する燃料ピンである。しかし、L413 ピンの燃料被覆管の外径には図 4.1 に示すような明確かつ顕著なオーバリティの発生が認められており、予想に反する結果となった。

これは、「常陽」制御棒吸収ピンにおいて経験した B_4C ペレットのクラック・リロケーションの発生ときわめて類似する挙動である。「常陽」制御棒吸収ピンでは、0.3mm を超える初期ギャップ幅にとると、照射中の熱応力等により割れた B_4C ペレット片が移動・再配列してギャップを閉塞し、その状態でスエリングすることにより、結果的に被覆管のオーバリティの認められることが経験的に知られている。このオーバリティの発現により被覆管の健全性を損なう恐れがあると報告されている [25]。

MN 燃料ピン被覆管におけるオーバリティの発現状況は、「常陽」制御棒吸収ピンで生じたものと類似している。MN 燃料は B_4C と同様に照射下のクリープ変形速度の小さいことが知られている [2]。MN 燃料ピンにおいても、FCMI の発生時期を遅らせる狙いで初期ギャップ幅を確保することは、逆に不規則なクラック・リロケーションの発生を助長することとなる。

制御棒吸収ピンの場合、クラック・リロケーションの発生を低減する方策として、ペレットと被覆管の間にシュラウドと呼ばれる薄管を装填することが検討されている。He 封入型 (He ボンド) 仕様の場合、シュラウド管がきわめて高い温度となるため、シュラウド管にとって厳しい使用環境となる。低燃焼度での He ボンド仕様における、シュ

ラウド管の性能確認の報告はなされている[26]が、長期間照射されたものの性能確認の報告はない。このような厳しい温度条件を改善するため、Na 封入型 (Na ボンド) にしたタイプのシュラウド付き制御棒吸収ピンの採用が期待されている[27]。MN 燃料についても Na との共存性が高いことから、Na ボンドーシュラウドタイプの燃料ピンが照射されており、EBR-II において 9.6at.% まで照射した燃料ピンに破損は認められていない[28]。

4. 3. 2 化学的相互作用

一般に、燃料と被覆管には上記の機械的相互作用とともに、化学的な相互作用 (Fuel-Cladding-Chemical-Interaction: FCCI) の発生が考えられる。本試験結果では、被覆管内面における顕著な腐食は認められなかった。また、SXMA で分析可能な範囲内における被覆管への窒化は観察されていない。これまでの報告例においても、変色層 (Fission-Recoil-Zone) の認められている例があるが、被覆管の強度特性に影響をおよぼす有意な腐食や窒化は認められていない[29]。観察結果では、被覆管内面に明確な腐食は見られないが、「3. 3. 1」で示したように、被覆管内面から離れた位置に被覆管構成元素が検出されている。

このような結果は A. A. Bauer ら[29]によっても報告されており、燃料表面と燃料ペレットクラック内面に被覆管構成元素との反応生成物が観察されている。MN 燃料ピンの被覆管内面ではわずかな反応が存在していたが、被覆管を減肉させるような顕著な腐食の発生はなかったと判断できる。

「3. 3. 2」で示したように、L41332 においてギャップ部への高 Pu 強度層の析出が確認された。このような燃料外周部における高 Pu 層の存在は、HFR (High Flux Reactor) において照射された NILOC 1 および NILOC 2 の照射後試験においても確認されている[30]。しかし、一般的に観察される現象ではない。JMTR で照射した MN 燃料においては、ギャップ部に Pu-Ni-N 系の反応層が認められている[15]。しかし、報告されているライン分析結果から判断すると、ギャップ部の Pu 濃度は燃料マトリックスよりも低い値である。

写真 3. 23~3. 24 の面分析結果および図 3. 45 の線分析結果で示したように、ギャップ部に析出した層の Pu は燃料マトリックスに比べてきわめて高い濃度を示していると予想される。しかし、被覆管内面に共晶反応の兆候を示す著しい反応層は認められない。

定性分析の結果から、この高 Pu 層では Te, O, N の存在も確認されている。Pu-Te 系の化合物として PuTe [1, 31-32], PuTe_2 , Pu_2Te_3 [32], Pu-Te-O 系の化合物として $\text{Pu}_2\text{O}_7\text{Te}$ [32-34] は定義されているが、これらの化合物に関する熱力学データ等の詳細情報は見られない。

4. 4 FP ガス保持量評価およびFP ガス放出挙動

SXMA による元素分析および光学顕微鏡による気孔面積率の測定結果から、Xe 濃度が低下している燃料中心近傍ではポーラスな組織を示している。このなかで、照射中に生成したと思われる円相当径 $10\mu\text{m}$ 未満の気孔の占める割合は、25~35%に達していることがわかった。また、燃料中心部では外周部に比べて小さい気孔の割合が低下し、大きな気孔の割合が増加する傾向にある。さらに、燃料中心部の二次電子像観察結果から、これらの気孔は主に結晶粒界や粒界三重点において観察される。

このような組織観察および測定結果から、燃料中心部では生成した FP ガスの一部がバブルとして粒界に析出し、粗大化している。しかし、複数個の連結によりペレット外へつながるような気孔は認められず、閉気孔率が高い組織であると観察されることから、粒界に析出した FP ガスはそのままだ粒界に保持されていると考えられる。

SXMA により燃料内に保持されている Xe 濃度を測定するとき、Xe の保持状態によって特性 X 線の強度が変化することが知られている。入射電子線との相互作用による Xe における特性 X 線の放出特性は理論的に解析されており、Xe 原子がガス気泡状に析出している場合には気泡径が増大するにつれて特性 X 線の強度が低下する。特にガス気泡径が $0.05\mu\text{m}$ を越えると、強度は燃料マトリックス中に原子状で均一に固溶している場合に対して約 70%にまで低下する [13]。

燃料の結晶粒内に析出しているガス気泡は、主として $0.01\sim 0.04\mu\text{m}$ 以下の微細なものである。そのため、SXMA で測定できる Xe 原子は粒内に原子状で固溶しているか、または微細に気泡状に析出しているものである。つまり、粒界上に析出している $0.1\mu\text{m}$ 以上の大きなガス気泡内の Xe はほとんど検出できない [13]。

図 3.47~50 で示した Xe 濃度の径方向分布から、燃料ペレット内の FP ガスの保持量を評価する。計算には、これまでに報告されている MOX 燃料における評価手法 [13] を用いた。これは、軸方向数カ所から採取した横断面試料において、SXMA で測定した燃料径方向の Xe 濃度分布から、以下の式により燃料ピンあたりの Xe 保持量を計算するものである。図 4.3 に Xe 保持量の計算手法の説明図を示す。

$$A_i = \sum_r \frac{\pi}{2} (r_{i+1}^2 - r_i^2) (M_{i+1} + M_i) \quad (4.1)$$

$$W = \sum_{i=1}^{i_{in}} \frac{1}{2} (l_{i+1} - l_{i-1}) \cdot A_i + \frac{1}{2} (l_2 + l_1) \cdot A_1 + \left\{ l - \frac{1}{2} (l_n + l_{n-1}) \right\} \cdot A_n \quad (4.2)$$

ここで、

A_i : ペレット断面積あたりの保持量

r_i : i 番目のペレット径方向位置の中心からの距離 (cm)

M_i : i 番目のペレット径方向位置での Xe 濃度 (mol/cm^3)

W : 燃料ピンあたりの保持量 (mol/pin)

l_j : 金相断面位置 j の燃料部下端からの距離 (cm)

l : 燃料部軸方向長さ (cm)

このようにして SXMA 測定値から求めた燃料ピンあたりの Xe 保持量は、上記のように粒内に保持されている Xe 量に相当するものである。パンクチャー試験結果により得られた総 Xe 保持量と比較することにより、粒内保持量と粒界保持量を分離して評価することが可能である。

L414 ピンからは燃料スタック上端、中心および下端の軸方向 3 箇所の横断面試料を採取し、SXMA による Xe 濃度分布を測定している。その測定データを用いて、上記計算式により燃料ピン内の粒内保持量が評価できる。この L414 ピンについて、燃料ピンあたりの Xe 生成量に対する Xe 粒内保持率を評価すると、約 80% であると計算される。パンクチャー試験結果から得られる FP ガスの燃料内保持率は、約 95% である。このことから、燃料内粒界保持率は 15% 程度であると見積もられる。これらの粒内および粒界保持率は、同程度の燃焼度まで照射した MOX 燃料に比べてきわめて高い。以上のようなペレット内における FP ガスの保持状態からも、MN 燃料の照射温度が低い値に抑えられていたことがわかる。

DN1 試験の一環で DFR において最大線出力が 115kW/m、燃焼度が 1.1at. % まで照射された MN 燃料の結晶粒内からの Xe 放出率は、生成量に対して、燃料中心から $r/R \approx 0.85$ までの領域で約 50%、外周部の未変化領域では 15% 以下を示し、燃料横断面としては 30~35% 程度であるとの報告がある [18]。MN 燃料の最大線出力は約 76kW/m であるため上記のような高い FP ガス保持性を示したと考えられる。

L413 ピンについての Xe 濃度分布の測定は軸方向中心位置の L41332 についてのみの実施であったことから、燃料ピン全体としての FP ガス保持量の計算はできない。しかし、径方向のプロファイルは L414 ピンの各試料と類似しているため、ほぼ同じような保持状態を示しているものと推察される。

図 4.4 は、A. A. Bauer ら [29] により報告されている MN 燃料における気孔率と単位燃焼度当たりの FP ガス放出率の関係を示したものである。これによると、気孔率が低い燃料、つまり密度の高い燃料における FP ガスの放出は燃料ペレットの幾何学的な外表面からのリコイルによるものが支配的であるのに対して、気孔率が 15% を越えると燃料表面と連結する気孔から FP ガスが放出されると整理されている。

パンクチャー試験の結果と燃料製造時における燃料密度の標準スペックから求めた気孔率の関係を整理すると図 4.4 のように A. A. Bauer ら [29] の報告結果と類似する傾向が得られた。これより、「常陽」照射 MN 燃料における FP ガスの放出は、リコイルによるものと、ペレット外表面および貫通クラック内面に隣接する気孔を経由して発生したものの総和であると解釈できる。このことは、燃料組織が閉気孔であり、粒界に析出し

た FP ガスがそのまま保持されていると観察された結果と整合するものである。L414 ピンが L413 ピンよりも FP ガス放出率が高いのは、写真 3.7~3.9 に示すように燃料外周部の気孔が連結しており、燃料外表面まで貫通するクラックが多く存在していることに起因していると考えられる。

4. 5 ギャップ部における高 Pu 層の析出挙動

MN 燃料における Pu は、U に比べて蒸気圧の高いことが知られている [1-3, 35-36]。また、MC 燃料ほど顕著ではないものの、照射中に様々な元素移動現象の生じることが報告されている。この Pu の移動現象はクラックヒーリング部での濃度の上昇や、燃料ペレット外周部への再分布などがその典型的な例である。

本試験結果からは明確なクラックヒーリング部は認められず、Pu の集積も見られていない。また、外周部で Pu 強度が高くなるような径方向分布も得られていない。しかし、L41332 において、ギャップ部に高 Pu 層が見られる方向である L-2 ラインにはわずかな変化が認められる。その変化の特徴は燃料中心から外周部へ向かい、相対半径 r/R が 0.5 までは平坦であるが、その後わずかに増加し、燃料外周部で強度の低下が認められるものである (図 3.41 参照)。

この L41332 のギャップ部における析出状況を燃料横断面組織とともに整理したものを図 4.5 に示す。周方向 8 箇所のうち、ギャップが閉塞している A および H では高 Pu 層は認められない。B, C, D, E, F および G 位置でこの高 Pu 層が認められ、特に E および F ではこの層がギャップに充満している。特徴的なのは燃料中心部まで達している径方向クラックが観察される周方向位置のギャップ部および被覆管内面に高 Pu 層が観察されることである。

SXMA による線分析の結果をもとに判断すると、燃料外周部から Pu が蒸発し、被覆管内面に凝縮することで高 Pu 層が析出した可能性が高い。MN 燃料中における Pu の蒸発特性については、図 4.6 (a) に示すような未照射燃料での実験結果が報告されている [2]。これによると、1630℃で約 2 時間過熱した MN 燃料では、Pu の蒸発により表面から 5 μ m 以上の深さに至るまで濃度低下が認められる。これは燃料表面近傍における Pu の拡散だけでは説明できず、図 4.6 (b) に示すような試料表面に存在する気孔およびそれと連結した結晶粒界からの優先的な Pu の移動によるものと考察されている [2]。また、約 1400℃において Pu の蒸発が確認されている報告例 [36] もある。

これらの報告例から判断すると、図 4.6 (a) では、1630℃以上の温度における結果のみ報告されているが、これより低い温度でも、長時間過熱により徐々に Pu の蒸発が発生すると予想される。

ギャップ部で高 Pu 層の析出が見られる位置周辺の線分析結果から、燃料最外周部における Pu 強度の低下が観察された。また、燃料中心部および燃料外周部の面分析結果から、結晶粒界に相当する位置で Pu 強度の低下が認められた。これらの結果から判断

すると、この高 Pu 層の析出は、高温部（照射初期温度：約 1790℃）の燃料中心で蒸発した Pu が貫通クラックを經由して低温部まで移動・凝縮したものと、燃料外表面（照射初期温度：約 1470℃）から蒸発した Pu が低温部である被覆管内面に凝縮したものが、徐々に被覆管内面から燃料に向かって堆積したものであると考えられる。

しかし、この Pu の蒸発が金属 Pu として生じたものか、ギャップ部の定性分析で検出された Te 等の FP 元素との化合物として蒸発したものかについては、現在のところ不明である。今後、原研で取得予定の L413 ピンの上部および下部から採取された試料の EPMA による元素分析データを含めて詳細な検討が必要である。

4. 6 「常陽」照射窒化物燃料における燃料仕様と照射挙動の関係

2 本の「常陽」照射 MN 燃料ピンの照射後試験結果を比較すると、組織安定性と FP ガス保持性では類似の挙動を示したが、外径変化挙動と FP 等の析出挙動に明確な差異が認められた。特に L413 ピンで認められた被覆管におけるオーバリティの発現、特定の範囲に集中して観察された燃料中の金属 FP の析出、さらにギャップ部の高 Pu 層の析出は特徴的な挙動である。

表 2.2 および 2.3 に示す通り、2 本の MN 燃料ピンの照射条件はほぼ同等であり、挙動が異なる結果の原因は製造時の燃料仕様の差にあると考えられる。これらの燃料ピンにおける燃料製造時寸法仕様で最も明確な差異としては、燃料-被覆管ギャップ幅の違いがあげられる。燃料ペレットの外径を変えることで、それぞれの燃料ピンの直径初期ギャップ幅を L413 ピンが 0.32mm、L414 ピンが 0.17mm（いずれもノミナル値）としている。「4. 3. 1」で述べたように、ギャップ幅の拡大は不規則なクラック・リロケーションの発生を助長する恐れがあり、このことが燃料ピンの照射挙動に影響をおよぼしている可能性が考えられる。

写真 3.1 および 3.5 を比較すると L41441 と L41332 で観察される貫通クラックの発生状況の差異は少なく、見かけ上、リロケーションの発生状況に明確な差は認められない。そこで、非破壊試験結果[11]によって得られた被覆管外径寸法測定結果および X 線ラジオグラフィ結果により、L41332 試料付近の軸位置におけるリロケーション発生状況を検討する。

図 4.1 から被覆管におけるオーバリティはペレット-ペレット境界での発生が多いことがわかる。このことは、クラック・リロケーションの発生がペレット-ペレット境界で顕著に発生したことを示唆している。

ペレットのリロケーション挙動については MOX 燃料の照射初期のデータをもとに評価した結果が井上ら [37] により報告されており、リロケーション量がギャップ空間の大きさに比例するとした 2 次元モデルによる相関式が提案されている。しかし、この相関式の立式過程で利用したデータは 0.2mm 未満の燃料ピンであり、L413 ピンのような 0.3mm を超えるギャップ幅の燃料ピンにおけるデータは含まれていない。ギャップ幅が大きい

場合、被覆管内の自由空間が大きく、ペレット片が周方向、径方向のみならず軸方向にもリロケーションしやすくなると推測される。

図 4.7 に L41332 における照射後試験結果の特徴を示す。横断面上では①から④までのペレット片に分割できる。外径寸法測定結果から判断すると、ペレット片③または④にリロケーションが発生し、ペレット片①とともに FCMI が発生したことで被覆管にオーバーリティが生じたものと考えられる。

一般的な MN 燃料の温度履歴評価では、燃料がスエリングすることで被覆管とのギャップ幅が減少し、ギャップコンダクタンスが改善されることから、照射とともに燃料温度が低下し、ギャップ閉塞以降ほぼ一定温度に推移するとされている [1]。リロケーションの発生は、ギャップ幅の減少によるギャップコンダクタンスの改善と扱われ、燃料温度を低下する要因とされている。しかし、リロケーションの発生が顕著であり、3 次元的にペレット片が移動する場合、周方向および軸方向のスミア密度が変化し、場所により実効熱伝導度も異なることが考えられる。燃料温度は径方向に単調な分布を示すとは限らず、局部的に高い温度レベルや急峻な温度勾配をもつことで燃料内の温度分布がきわめて複雑となることが予想される。

リロケーションが生じたと思われるペレット片③または④では一部に集中した顕著な FP の析出や燃料外周部 Pu 濃度低下が認められている。このことから、FP の析出やギャップ部における高 Pu 層の析出の発生はリロケーションの発生と関連があると推測される。3 次元的なリロケーションの発生による複雑な温度分布となったペレット片内で、FP の析出や Pu の蒸発が優先的に発生する温度および温度勾配条件を満たした位置において、これらの現象が発生したものと考えられる。つまり、金属 FP やギャップ部の Pu の顕著な析出がリロケーションの発生、つまりギャップ幅が大きかったことに起因している可能性が考えられる。なお、ペレット片①内の L-1 とリロケーションが生じたと思われるペレット片③内の L-2 での Xe 保持量分布、気孔面積率および結晶粒径を比較すると、L-1 に比べ L-2 の方が Xe の保持量が低く (図 3.47 参照)、気孔面積率が高い (図 3.7 参照) ことが分かる。また、有意な差ではないが、L-2 方向のスポット e 部では平均結晶粒径がわずかに高い値を示している (図 3.54 参照)。このように L-1 と L-2 で挙動の異なる結果が得られたことも、リロケーションによる温度分布が径方向で不均一である可能性を示唆するデータであると考えられる。

以上、ギャップ幅の違いで MN 燃料の照射挙動が異なる可能性を示したが、これら 2 本の燃料ピンに装荷された燃料ペレットは、「2. 1」で述べたように燃料ピンごとに製造方法が異なっている。そのため、照射後試験結果を単純に燃料寸法仕様の違いで説明できない可能性がある。

得られたデータは限られていることから、原研で取得予定の試験データを含め、2 本の MN 燃料ピンでの照射挙動の違いを詳細に検討する必要がある。また、0.3mm を超えるギャップ幅をもった燃料ピンは一般的でなく、照射実績はきわめて少ないことから、

ギャップ幅の違いによる照射挙動の影響に関するモデル化が重要である。さらに、熱力学的アプローチによりマトリックス内のFPの析出やギャップ部のPuの析出を検討することで、定量的にこれらの現象を評価する必要があると考えられる。

5 結言

「常陽」において最大線出力約 76kW/m, 最高燃焼度約 40GWd/t を達成した窒化物燃料ピンの組織観察および元素分析を実施した。得られた主な結果は以下の通り。

- (1) 照射により生成した微小な気孔の面積率は、燃料外周部から中心部へ向かうにつれて増加しており、大きな気孔の占める割合も高くなる傾向を示したが、MOX 燃料で見られるような中心空孔や柱状晶の形成は認められなかった。また、径方向位置による結晶粒径の差は見られず、明確な粒成長は観察されなかった。このことは、本照射条件における窒化物燃料の組織安定性が高いことを示唆するものである。
- (2) 被覆管に発生した外径増加は燃料ペレットのスエリングに起因した FCMI によるものであることがわかった。しかし、被覆管にクラックの発生等は認められなかった。また、被覆管内面には明確な腐食や窒化は認められず、被覆管の強度特性に影響をおよぼす顕著な肉厚変化は観察されなかった。
- (3) 燃料外周部において検出された Xe 濃度は ORIGEN2 による理論生成濃度計算値に近い値を示したが、燃料中心部に向かうにつれて濃度低下が認められた。この粒内保持濃度と ORIGEN2 による理論生成濃度から燃料部における理論生成量に対する Xe 粒内保持率を計算すると約 80% となり、同程度まで燃焼した MOX 燃料と比べて高い値を示した。
- (4) 燃料中心部では生成した FP ガスの一部がバブルとして粒界に析出している様子が観察され、この析出した FP ガスはそのまま粒界に保持されている可能性が示唆された。このような結果は、生成した FP ガスの大部分がペレット内に保持されていることを意味するものであり、低い FP ガス放出率を示したパンクチャー試験の結果と整合した。
- (5) 燃料マトリックス中の析出物の組成は従来報告されている (U, Pu) (Pd, Ru, Rh)₃ 系または Mo-Tc 系析出物の構成元素と類似していた。
- (6) 一部の燃料-被覆管ギャップに、燃料マトリックスよりも Pu 強度の高い相の存在が確認されたが、被覆管との明確な反応層は観察されなかった。
- (7) 燃焼度の測定値と計算値は良好な一致を示し、照射挙動評価に用いる計算予測精度が満足できることを確認した。

6 謝辞

本試験を遂行するにあたり、システム部の浅賀健男研究主席、核燃料工学グループの井上賢紀副主任研究員、日本原子力研究所の荒井康夫氏、岩井孝氏、長島久雄氏、木村康彦氏、鴨志田邦明氏には適切なお助言をいただきました。また、原子力技術(株)の大里行弘氏、小沼康博氏、額賀貞芳氏には試験の実施、データ処理に関して多大なお協力をいただきました。さらに、照射燃料集合体試験室の勝山幸三副主任技術員には非破壊試験データの活用の際にご協力いただきました。ここに感謝の意を表します。

7 参考文献

- [1] 鈴木康文, 荒井康夫: プルトニウム燃料工学, 4.4 炭化物および窒化物燃料, 日本原子力学会, (1998) p.260
- [2] H.J. Matzke, " Science of Advanced LMFBR Fuels" , North-Holland, Amsterdam(1986)
- [3] H. Blank, "Materials Science and Technology, Vol.10A, Nuclear Materials" , Vol. Edited by B.R.T. Frost, VCH, Weinheim (1994) p.191
- [4] W. F. Lyon et al., " Advanced Liquid Metal Reactor Technology with Nitride Fuels" , Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR' 91), Kyoto, Oct.28-Nov.1, 1991, p14.8-1
- [5] H. Blank, " Basic Aspects of Swelling in Dense Liquid Metal Fast Breeder Reactor Fuels" , J. Less-Comm. Met. 121(1985)583
- [6] H. Blank et al., " Mechanisms Determining the Performance of He-Bonded Carbide Fuels" , Proc. on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson, Sep.7-11, 1986, p7-15
- [7] T. Mukaiyama et al., " Partitioning and Transmutation Program "OMEGA" at JAERI, Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems (GLOBAL' 95), Versailles, France, 1995, p.110
- [8] Y. Arai et al., " Recent Progress of Nitride Fuel Development in JAERI Fuel Property, Irradiation Behavior and Application to Dry Reprocessing- ", Proc. Int. Conf. on Future Nuclear Systems, GLOBAL' 97, Yokohama, Japan, Oct.5-10, 1997, (1997) 664
- [9] T. Iwai et al., " Fission Gas Release of Uranium-Plutonium Mixed Nitride and Carbide Fuels" , IAEA Tech. Committee Mtg. on Research of Fuel Aimed at Low Fission Gas Release, Moscow, 1-4,1996, p137
- [10] Y. Arai et al., " Development of Carbide and Nitride Fuels in JAPAN" , Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR' 91), Kyoto, Oct.28-Nov.1, 1991, pl.22-1
- [11] 勝山幸三 他, "高速炉用炭・窒化物燃料の照射後試験-燃料ピンの非破壊試験結果-", JNC TN9410 2000-009, (2000)
- [12] 荒井康夫 他, "「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", JAERI-Research 96-009, (1996)
- [13] 鶴飼重治 他, "高速炉燃料における核分裂生成ガスの放出機構の評価", PNC ZN9410 88-166, (1988)
- [14] 荒井康夫 他, "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) ”, JAERI-Research 95-008, (1995)
- [15] 岩井 孝 他, “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) ”, JAERI-Research 2000-009, (2000)
- [16] 岩井 孝 他, “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 (89F-3A キャプセル) ”, JAERI-Research 2000-010, (2000)
- [17] C. Prunier et al., “European Collaboration on Mixed Nitride Fuel”, Conf. on Fast Reactors and Related Fuel Cycles (FR' 91), Kyoto, Oct. 28-Nov. 1, 1991, p14.9-1
- [18] M. Coquerelle and C.T.Walker, “Fission Gas Release and Microscopic Swelling in Highly Rated Advanced Fuels”, Nuclear Technology, 48 (1980) 43
- [19] C. Ronchi and C. Sari, “Swelling Analysis of Highly Rated MX-Type LMFBR Fuels. I .Restructuring and Porosity Behaviour”, Journal of Nuclear Materials 58 (1975) 140
- [20] G. Giacchetti et al., “Actinides and Fission Products Distribution in Fast Breeder Nitride Fuel”, Nuclear Technology 28 (1976) 216
- [21] Y. Arai et al., “Chemical Forms of Solid Fission Products in the Irradiated Uranium-Plutonium Mixed Nitride Fuel”, Journal of Nuclear Materials 210 (1994) 161
- [22] D. C. Fee and C. E. Johnson et al. , “Phase Equilibria and Melting Point Data for Advanced Fuel Systems”, US Report ANL-AFP-10 (1975)
- [23] M.H.Bradbury and Hj. Matzke, “Self-Diffusion of Plutonium in High Burn-up Simulated (U,Pu) (C,N) and (U,Pu)N”, Journal of Nuclear Materials 91 (1980) 13
- [24] A.A.Bauer et al., “Helium-and Sodium-Bonded Mixed Nitride Fuel Performance”, Proc. of Int. Conf. on FBR Fuel Performance, Monterey, California, March. 3-5, 1979, p. 827-841
- [25] 丸山忠司 他, “「常陽」MK-II 制御棒の照射後試験ー吸収ピンの照射挙動評価ー”, PNC TN9410 97-077, (1997)
- [26] 田中康介 他, “「常陽」MK-II 制御棒(CRM601)の照射後試験ーシュラウド型制御棒吸収ピンの照射挙動評価ー”, JNC TN9430 99-001, (1998)
- [27] 曾我知則 他, “「常陽」制御棒の高度化-ナトリウムボンド型制御棒の設計-”, JNC TN9400 99-052, (1999)
- [28] 荒井康夫, “最新核燃料工学ー高度化の現状と展望ー, 8.6.3 窒化物燃料の照射挙動”, (2001) p.453
- [29] A. A. Bauer et al., “Mixed-Nitride Fuel Irradiation Performance”, Proceedings on Fast Reactor Fuel Element Technology, (1971), p785

- [30] H. Blank, "Fabrication of Carbide and Nitride Pellets and the Nitride Irradiation Niloc 1 and Niloc 2", Report EUR 13220 EN, (1991)
- [31] O. J. Wick, "Plutonium Handbook A Guide to the Technology Vol.1", (1967)
- [32] M. Allbutt and A. R. Junkison, "Plutonium Chalcogenides", Report AERE-R-5541, (1967)
- [33] H. Kleykamp, "The Chemical State of Irradiated Uranium-Plutonium Oxide Fuel Pins", Proc. Symp. Int. Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, (1979), p393
- [34] H. Kleykamp, "The Chemical State of the Fission Products in Oxide Fuels", Journal of Nuclear Materials 131 (1985) 221
- [35] Y. Suzuki et al., "Vaporization behavior of uranium-plutonium mixed nitride", Journal of Nuclear Materials 188 (1992) 239
- [36] C.A. Alexander et al., "Thermophysical Properties of (Upu)N" Plutonium 1970 and other Actinides, Nucl. Metall. 17(1970) p95
- [37] 井上賢紀 他 "高速炉ウラン-プルトニウム混合酸化物燃料ピンにおける照射初期燃料ペレットリロケーション挙動の評価", JNC TN9400 99-070, (1999)

表2.1 「常陽」照射窒化物燃料ピンの基本仕様

燃料ピン番号		L413	L414	
燃料ピン長さ	原研製作時 (mm)	799.4	799.5	
	照射時 (mm)	1533	1533	
被覆管	材質	PNC1520	PNC1520	
	外径 (mm)	8.50	8.50	
	内径 (mm)	7.60	7.60	
	肉厚 (mm)	0.45	0.45	
直径ギャップ幅 (mm)		0.32	0.17	
スミヤ密度 (%TD)		77.8	82.2	
燃料ペレット	N/M	1.001	1.013	
	外径 (mm)	7.28	7.43	
	高さ (mm)	8	8	
	Pu富化度 (wt%)	18.62	18.62	
	U235濃縮度 (wt%)	19.39	19.39	
	理論密度比 (%TD)	84.8	86.0	
	N (wt%)	5.56	5.62	
	C (wt%)	0.11	0.16	
	O (wt%)	0.02	0.02	
	不純物金属元素 (ppm)			
		Al	70	30
		B	<10	<10
		Ca	40	40
		Cd	<10	<10
	Co	170	90	
	Cr	60	30	
	Fe	50	30	
	Mg	30	20	
	Ni	30	30	
	V	230	50	
	W	1280	530	
	Cu+Si+Zn	200	140	
	Ag+Mn+Mo+Pb+Sn	80	90	
	スタック長 (mm)	200.1	198.8	
熱遮蔽ペレット	種類	UN	UN	
	N/M	0.983	0.983	
	外径 (mm)	7.28	7.43	
	高さ (mm)	8	8	
	U235濃縮度 (wt%)	0.71	0.71	
	理論密度比 (%TD)	85.9	86.0	
	C (wt%)	0.22	0.22	
	O (wt%)	0.02	0.02	
	スタック長 (mm)	104.2	104.4	

表2.2 窒化物燃料ピンの照射履歴 (L413)

サイクル		29	30	31	32	33
照射日数 (BFPD)		24	60	55	69	68
最大線出力 (kW/m)	BOC	72	70	67	67	66
	EOC	71	68	66	65	65
最高燃焼度 (Gwd/t)		4	12	20	30	40
最大中性子照射量 ($\times 10^{26}$ n/m ²)	total	0.7	2.3	3.9	5.8	7.7
	fast	0.5	1.6	2.6	4.0	5.3
被覆管肉厚中心最高温度 (°C)	BOC	631	619	618	626	640
	EOC	629	615	614	622	635

(暫定計算結果)

表2.3 窒化物燃料ピンの照射履歴 (L414)

サイクル		29	30	31	32	33
照射日数 (EFPD)		24	60	55	69	68
最大線出力 (kW/m)	BOC	76	73	71	70	70
	EOC	75	72	69	69	68
最高燃焼度 (MWd/t)		4	12	20	30	39
最大中性子照射量 ($\times 10^{26}$ n/m ²)	total	0.7	2.3	3.8	5.7	7.7
	fast	0.5	1.6	2.6	4.0	5.3
被覆管肉厚中心最高温度 (°C)	BOC	632	619	619	626	640
	EOC	630	615	615	621	634

(暫定計算結果)

表2.4 PFB090窒化物燃料試料採取位置及び照射条件

(照射条件は暫定値)

燃料要素No. PIEピン番号	試料No.	試料採取位置 D.F.C.B (mm) (X/L)	燃焼度 (GWd/t)	線出力 (ピーク) (kW/m)	中性子照射量 (トータル) ($\times 10^{26}$ n/m ²)	被覆管肉厚中心温度 (°C)	燃料表面温度 (°C)	燃料中心温度 (°C)
<u>B9N01</u> L413	L41332	98.0 (0.49)	40	72	7.7	540	1470	1790
<u>B9N02</u> L414	L41423	11.7 (0.06)	38	73	7.4	430	1060	1420
	L41441	100.5 (0.50)	39	76	7.6	540	1180	1530
	L41452	190.6 (0.95)	36	70	7.0	620	1230	1550

*1 : 燃焼度, 線出力, 中性子照射量, 被覆管外内面温度データは, 「ESPRIT-V3」コードの暫定計算結果である。

*2 : 燃料表面・中心温度は, BOLの暫定照射条件と燃料ピンの製造時ノミナル仕様データを用いた「FUTUER」コードによる簡易計算結果である。

*3 : 本窒化物燃料ピンの燃料スタック長は約200mmである。

表3.1 気孔分布に関する各種計算結果

試料番号	算出項目	測定領域A	測定領域B	測定領域C	測定領域D	測定領域E
L41332	標本数(総度数:個)	6088	5044	3241	4310	3036
	積算値(合計: μm^2)	45010.31	54364.35	90203.32	58219.73	35196.64
	平均値(μm^2)	7.393	10.778	27.832	13.508	11.593
	中央値(μm^2)	1.944	2.282	3.465	2.028	2.366
	最頻値(μm^2)	1.183	0.761	0.676	0.338	0.169
	標準偏差	45.899	54.087	184.252	41.583	64.924
	四分位数(Q_1) ¹⁾ (μm^2)	1.014	0.930	1.183	0.845	1.014
	四分位数(Q_2) ¹⁾ (μm^2)	1.944	2.282	3.465	2.028	2.366
	四分位数(Q_3) ¹⁾ (μm^2)	3.972	6.845	14.450	8.366	6.084
L41423	標本数(総度数:個)	6061	7017	6627	5397	5367
	積算値(合計: μm^2)	31877.20	33246.77	75837.70	39372.13	31602.89
	平均値(μm^2)	5.259	4.738	11.444	7.295	5.888
	中央値(μm^2)	1.690	1.944	1.775	1.775	1.606
	最頻値(μm^2)	0.845	0.338	0.338	0.761	0.845
	標準偏差	35.049	31.098	117.775	91.232	62.704
	四分位数(Q_1) ¹⁾ (μm^2)	0.845	0.930	0.761	0.845	0.845
	四分位数(Q_2) ¹⁾ (μm^2)	1.690	1.944	1.775	1.775	1.606
	四分位数(Q_3) ¹⁾ (μm^2)	3.380	3.972	5.408	3.549	3.042
L41441	標本数(総度数:個)	5363	6177	5584	5981	4639
	積算値(合計: μm^2)	20095.66	38190.15	74366.30	54186.05	40013.94
	平均値(μm^2)	3.747	6.183	13.318	9.060	8.626
	中央値(μm^2)	1.859	2.113	2.113	1.775	1.521
	最頻値(μm^2)	0.761	0.676	0.507	0.676	0.676
	標準偏差	17.718	28.668	64.988	95.387	111.874
	四分位数(Q_1) ¹⁾ (μm^2)	0.930	0.845	0.845	0.761	0.761
	四分位数(Q_2) ¹⁾ (μm^2)	1.859	2.113	2.113	1.775	1.521
	四分位数(Q_3) ¹⁾ (μm^2)	3.380	5.324	7.521	4.310	2.958
L41452	標本数(総度数:個)	5195	4723	3997	5946	4249
	積算値(合計: μm^2)	34243.17	49057.09	86694.50	52546.48	52396.73
	平均値(μm^2)	6.592	10.387	21.690	8.837	12.332
	中央値(μm^2)	1.859	2.282	1.944	1.859	1.606
	最頻値(μm^2)	0.761	0.254	0.676	0.169	0.338
	標準偏差	37.112	70.224	173.422	68.041	131.730
	四分位数(Q_1) ¹⁾ (μm^2)	0.930	0.930	0.761	0.761	0.845
	四分位数(Q_2) ¹⁾ (μm^2)	1.859	2.282	1.944	1.859	1.606
	四分位数(Q_3) ¹⁾ (μm^2)	3.803	6.084	8.789	4.648	3.296

1): 相対累積度数がP/100であるような標本値をPパーセント点と言い、25%点を第1四分位数(Q_1)、50%点を第2四分位数(Q_2)、P=75%点を第3四分位数(Q_3)と言う。

表3.2 Xe生成量の計算結果

ピンNo.	スタック長さ (cm)	スタック体積 (cm ³)	ORIGEN2計算結果		試料No.	軸位置 (DFCB : cm)	燃焼度 (MWd/t)	燃焼度/最大燃焼度 (-)	各試料での 理論生成濃度 (mol/cm ³)
			理論生成量 (mol/pin)	理論生成濃度 (mol/cm ³)					
L413	20.01	7.063	3.772E-03	5.340E-04	L 41332	9.8	39460	0.99999	5.340E-04
					L41452	19.06	35983	0.91374	4.867E-04
L414	19.88	7.413	3.948E-03	5.326E-04	L41441	10.05	39367	0.99967	5.324E-04
					L41423	1.17	38420	0.97563	5.196E-04

表3.3 結晶粒径およびフェレ径比測定結果

No. L41332	a	b	c	d	e	f
平均結晶粒径 (円相当径; μm)	3.08	3.42	3.80	3.57	3.88	3.57
フェレ径比 ($^{\circ}$)	45.42	45.11	44.30	44.87	46.97	45.36

No. L41423	a	b	c
平均結晶粒径 (円相当径; μm)	3.76	3.66	3.41
フェレ径比 ($^{\circ}$)	45.79	49.57	49.81

No. L41441	a	b	c
平均結晶粒径 (円相当径; μm)	3.86	4.06	4.06
フェレ径比 ($^{\circ}$)	45.23	44.87	43.77

No. L41452	a	b	c
平均結晶粒径 (円相当径; μm)	3.62	3.34	3.51
フェレ径比 ($^{\circ}$)	45.06	45.19	45.75

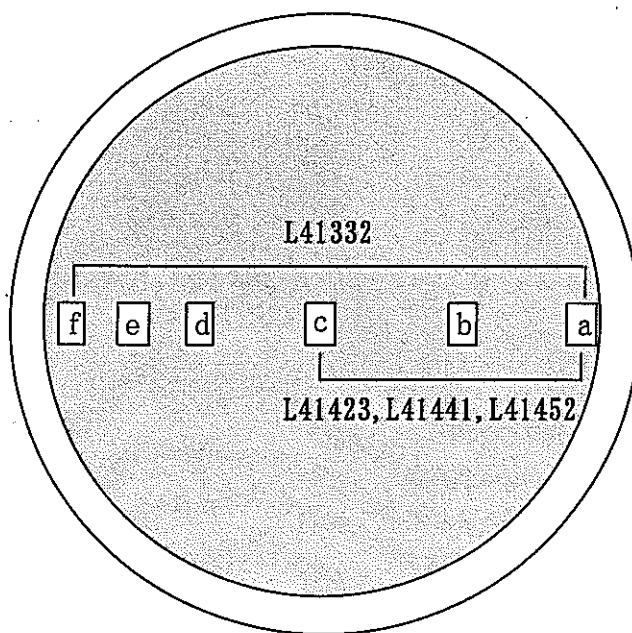


表3.4 燃烧率測定結果

試料No.	試料採取位置 (D.F.C.B. mm)	Pu含有率 (atom%)	燃烧率 (atom%)	燃烧度 (Gwd/t)	燃烧度 (計算値) (Gwd/t)
L41334	118.9~122.2	18.79 ±0.24	4.33 ±0.09	39.0 ±0.8	38.8
L41443	118.6~121.9	18.75 ±0.23	4.39 ±0.10	39.5 ±0.9	38.9

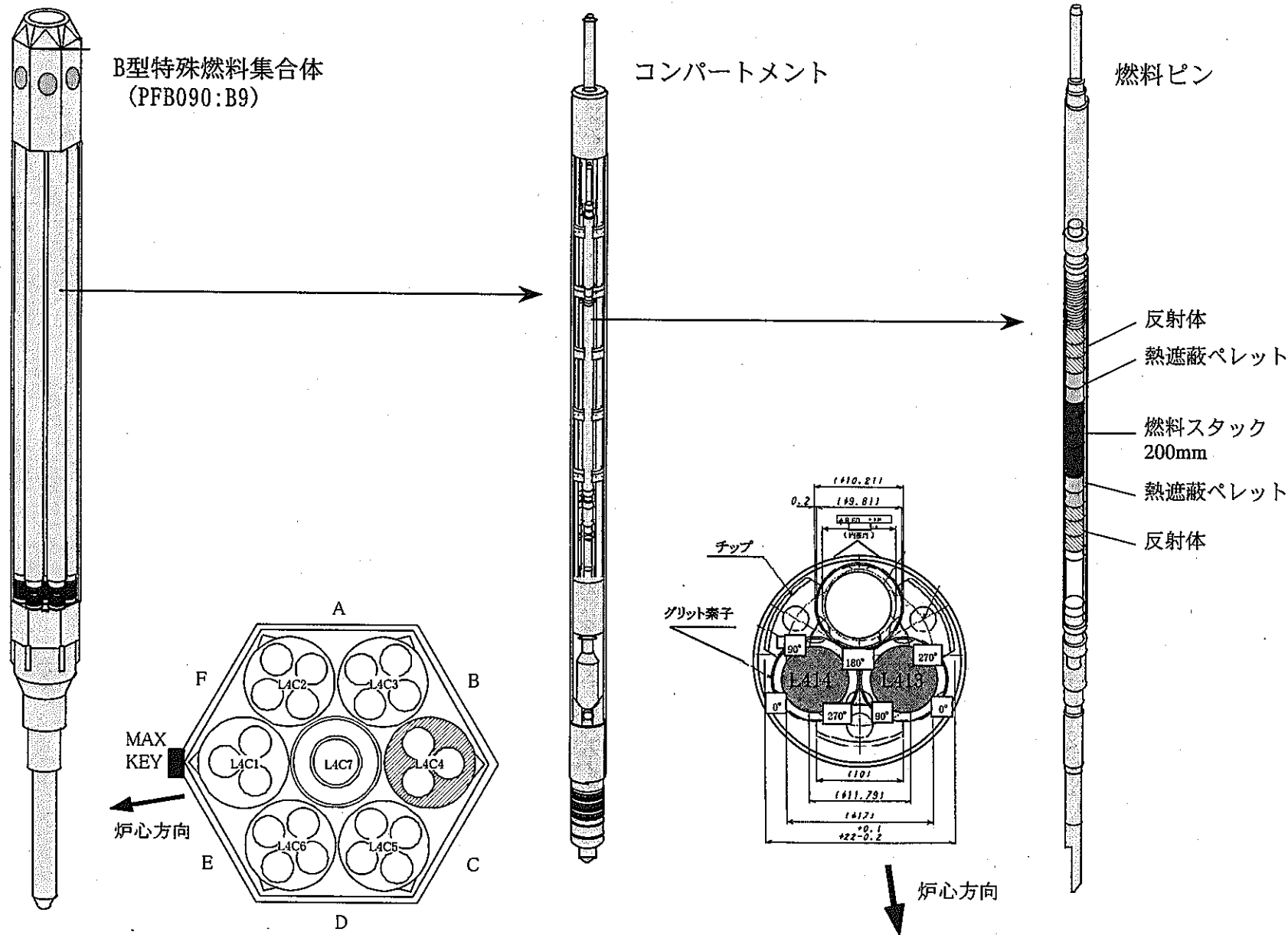
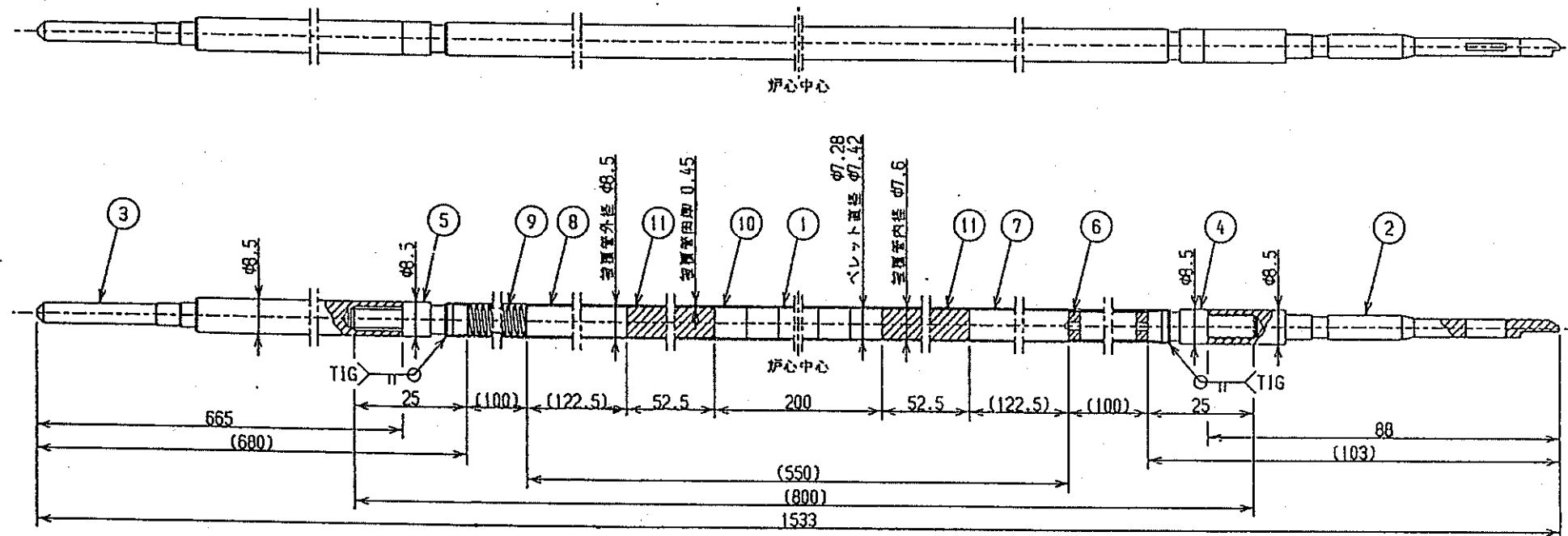
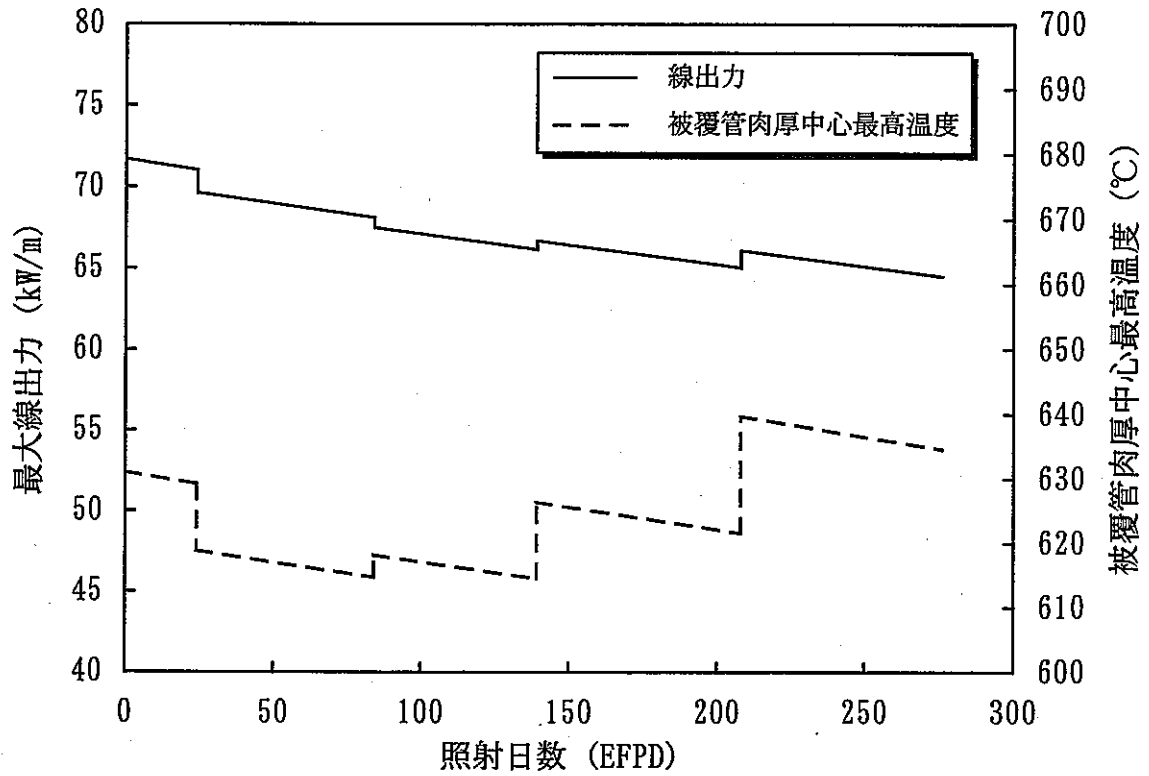


図2.1 集合体、コンパートメントおよび燃料ピンの模式図

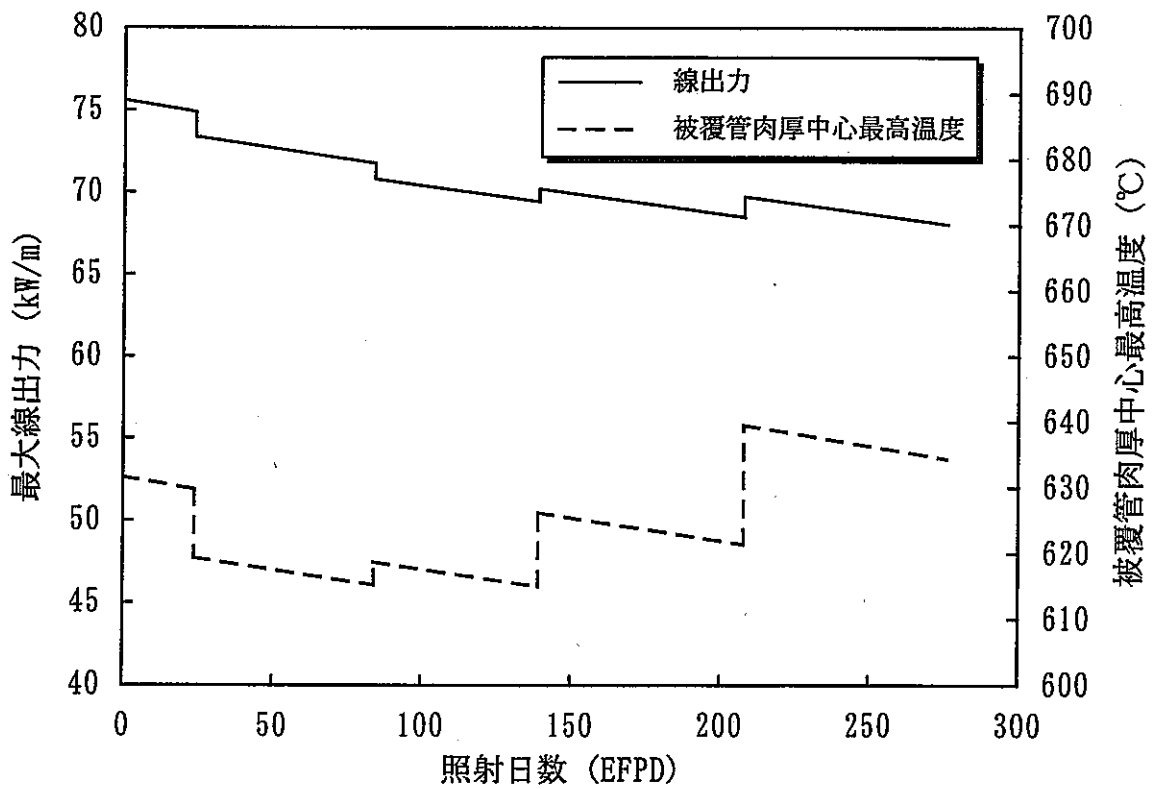


11	熱遮蔽ペレット(8)、(9)	UN			
10	燃料ペレット(2)、(3)	PuN-UN			
9	プラチナムスプリング(7)	SUS304WPB		1	
8	上部反射体ペレット(7)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼(A)		1	
7	下部反射体ペレット(7)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼(A)		1	
6	挿え板付プラチナムスリーブ(8)	SUS316		1	
5	上部中間端柱(1)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼(A)		1	
4	下部中間端柱(1)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼(A)		1	
3	上部端柱(9)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼(A)		1	
2	下部端柱(9)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼(A)		1	
1	被覆管(9)	チタニウムステナイト系 ステンレス鋼		1	
品番	品名	材質	個数	備考	
図名	B型試験用集合体 試験用要素(2)-①、-② 構造図				

図 2.2 窒化物燃料ピン構造図



(a)L413



(b)L414

図2.3 最大線出力および被覆管肉厚中心最高温度の変化

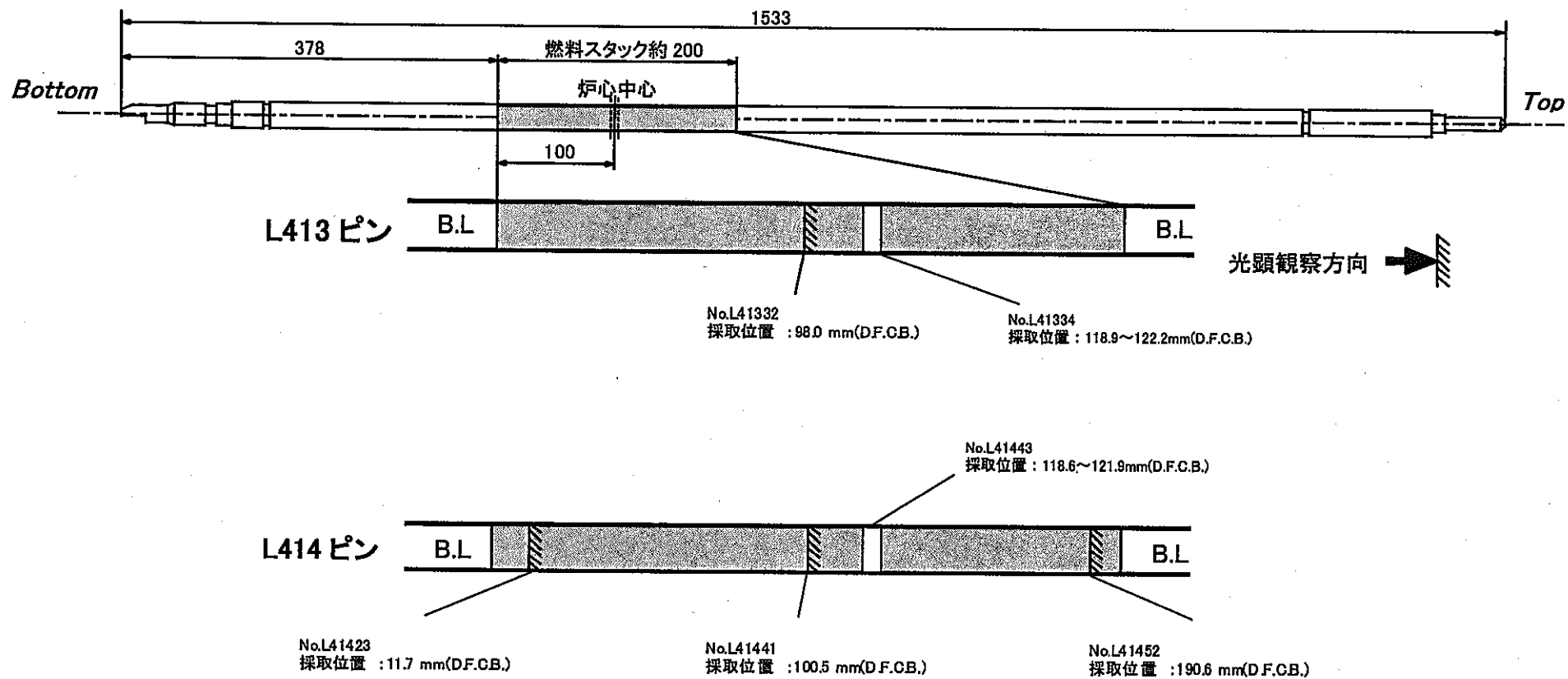


図 2.4 試料採取位置および試験対象横断面

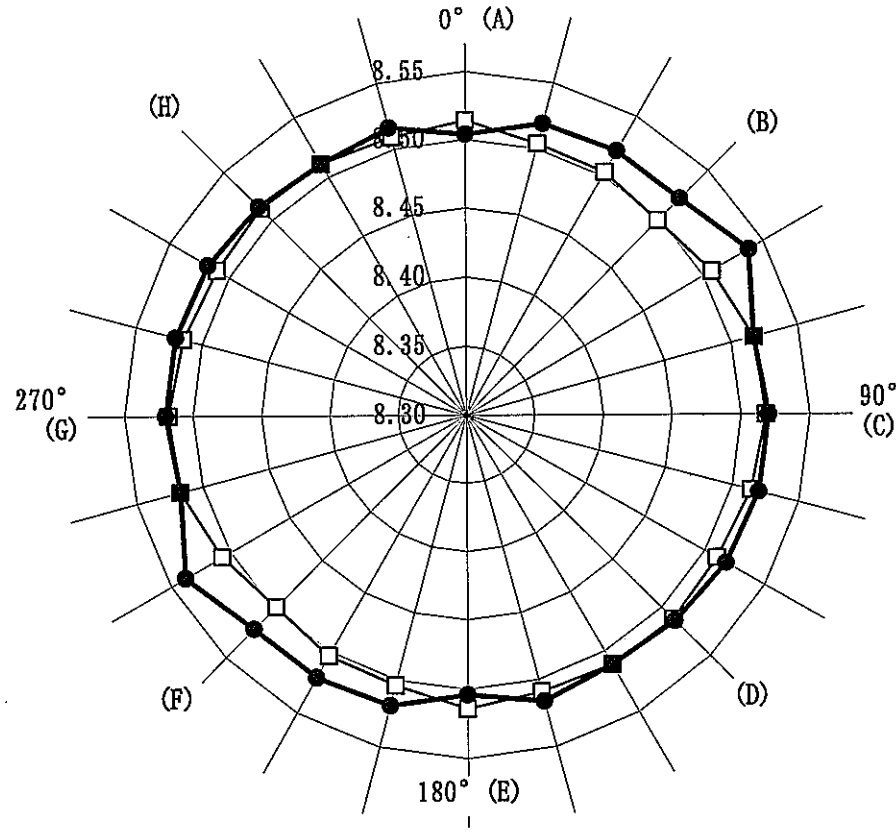
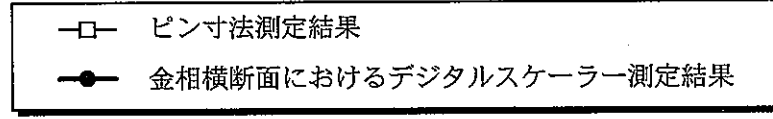
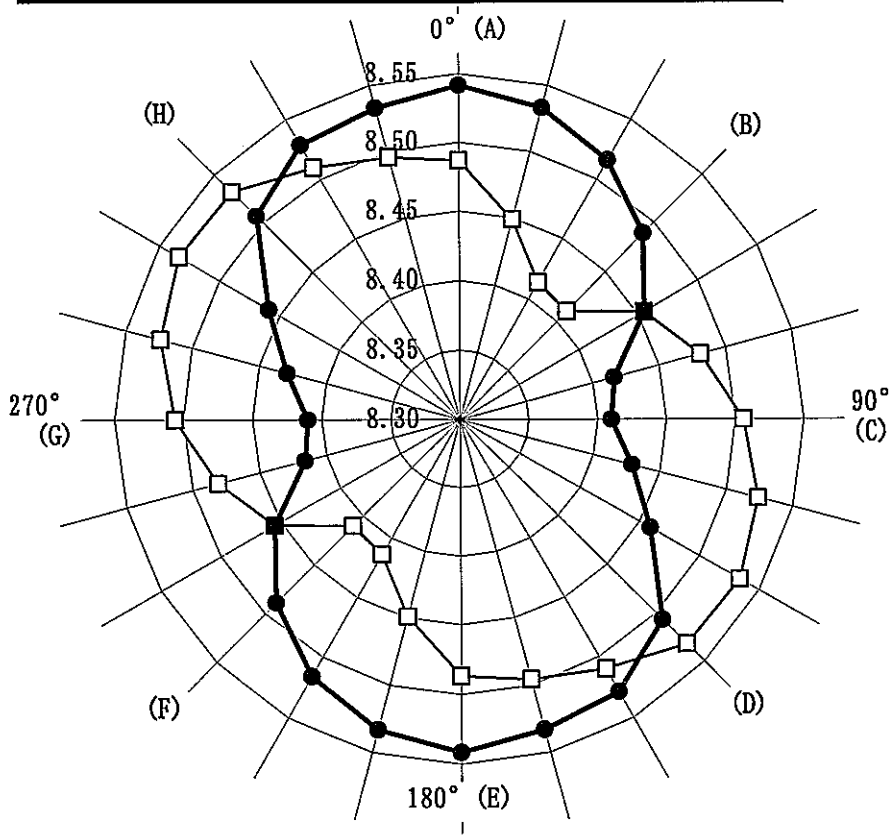
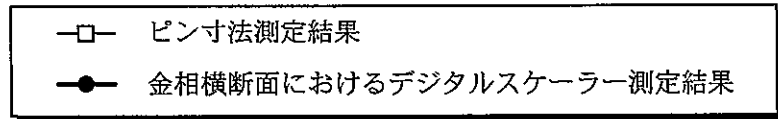


図3.1 ピン寸法測定結果と金相横断面におけるデジタルスケーラー測定結果の比較

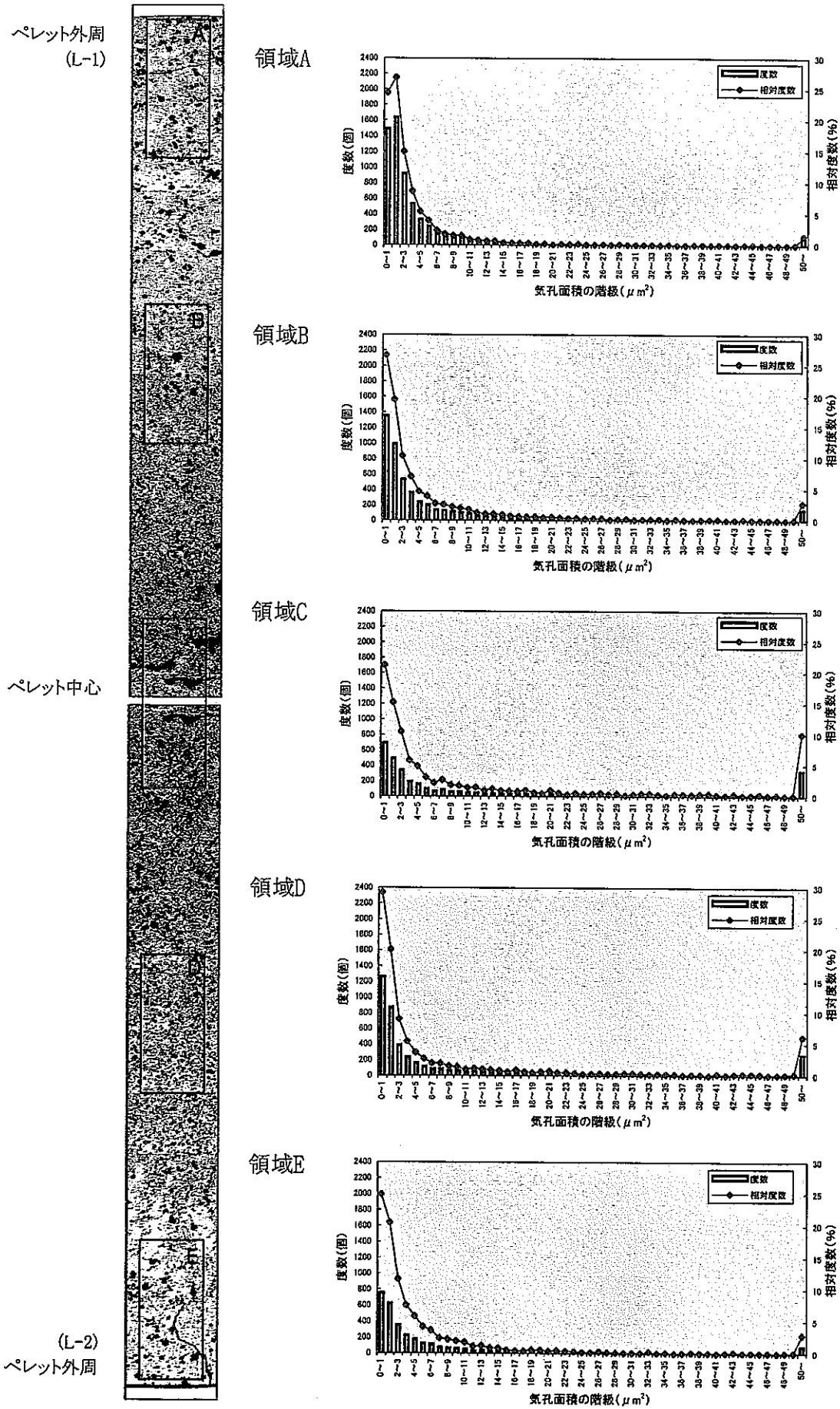


図3.2 気孔の度数分布および相対度数分布 (L1332)

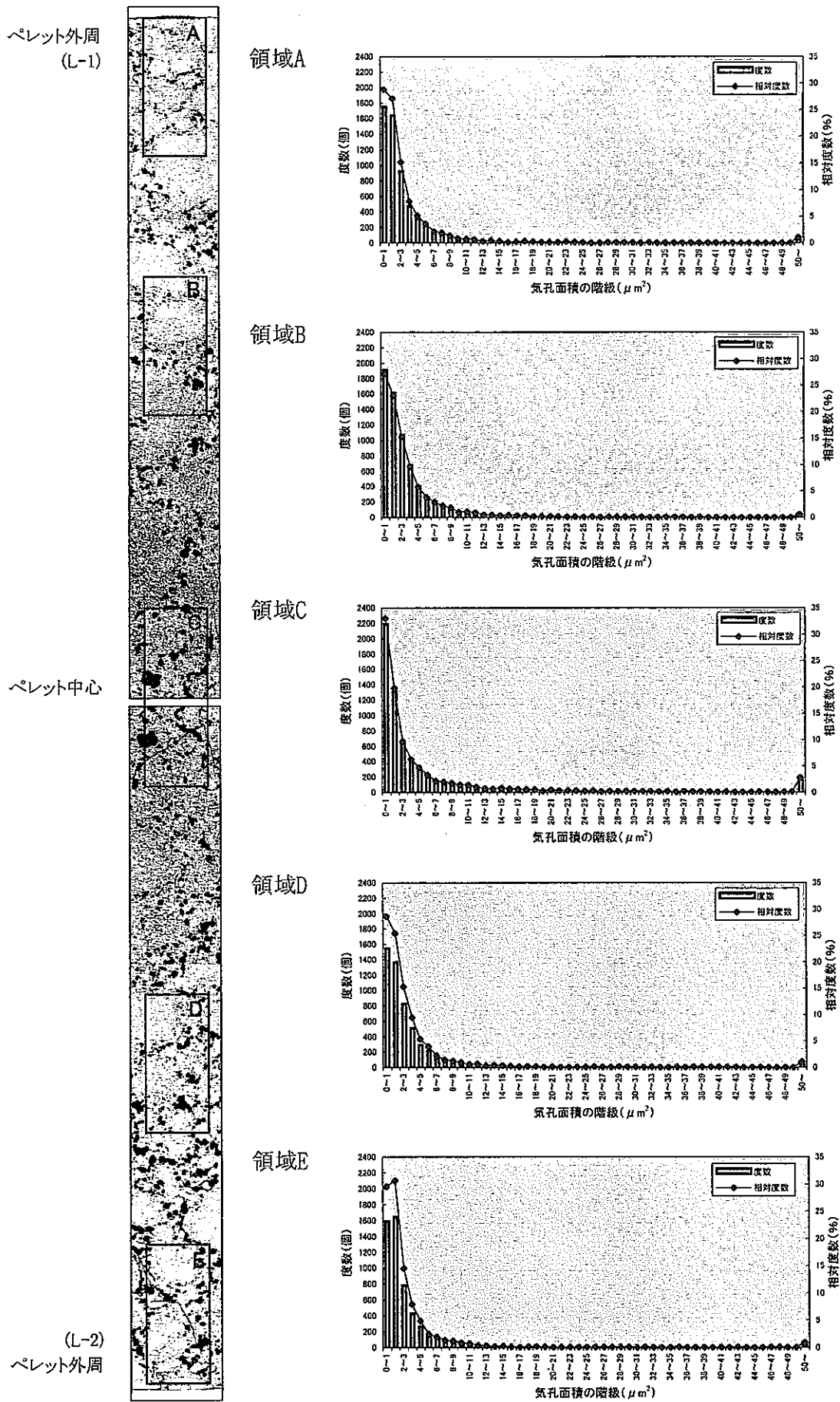
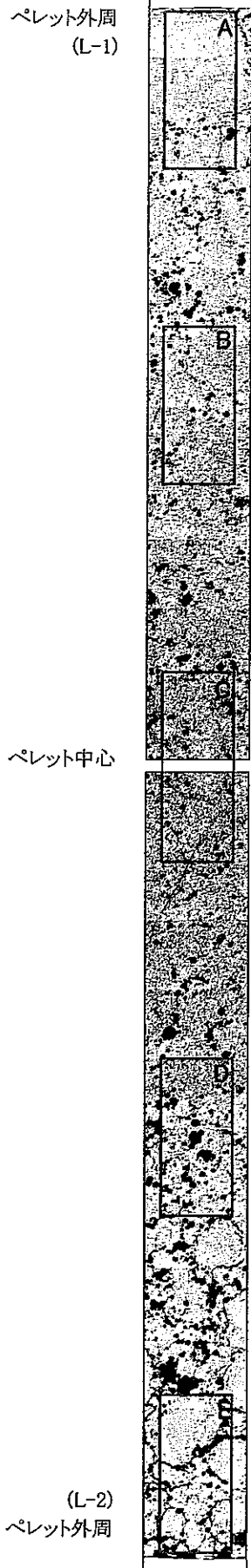
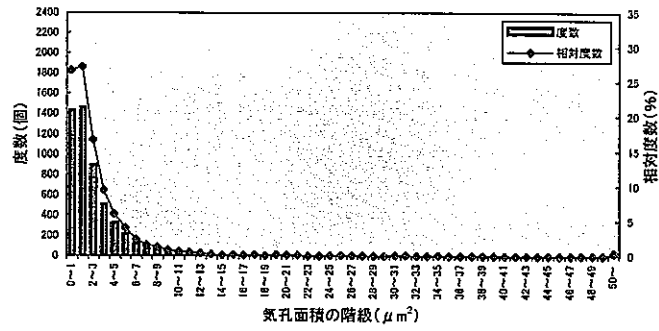


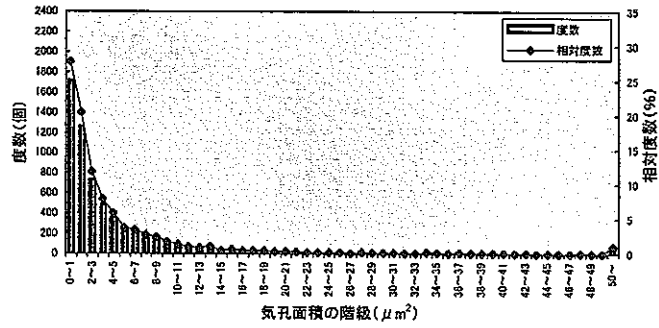
図3.3 気孔の度数分布および相対度数分布 (L1423)



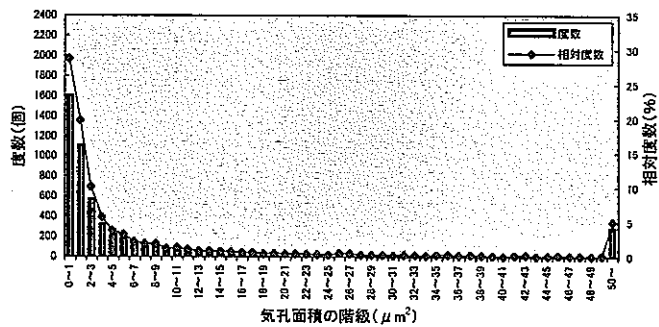
領域A



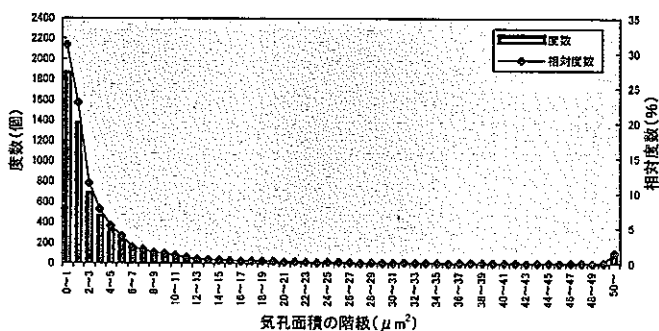
領域B



領域C



領域D



領域E

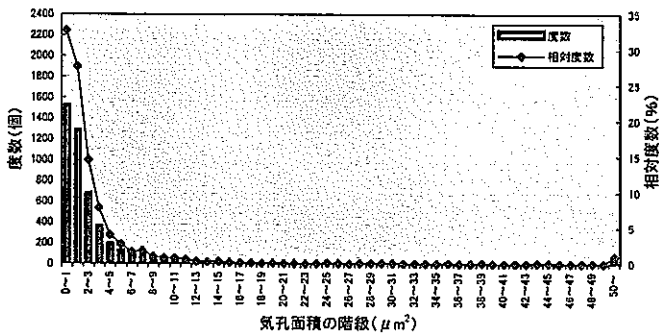


図3.4 気孔の度数分布および相対度数分布 (L41441)

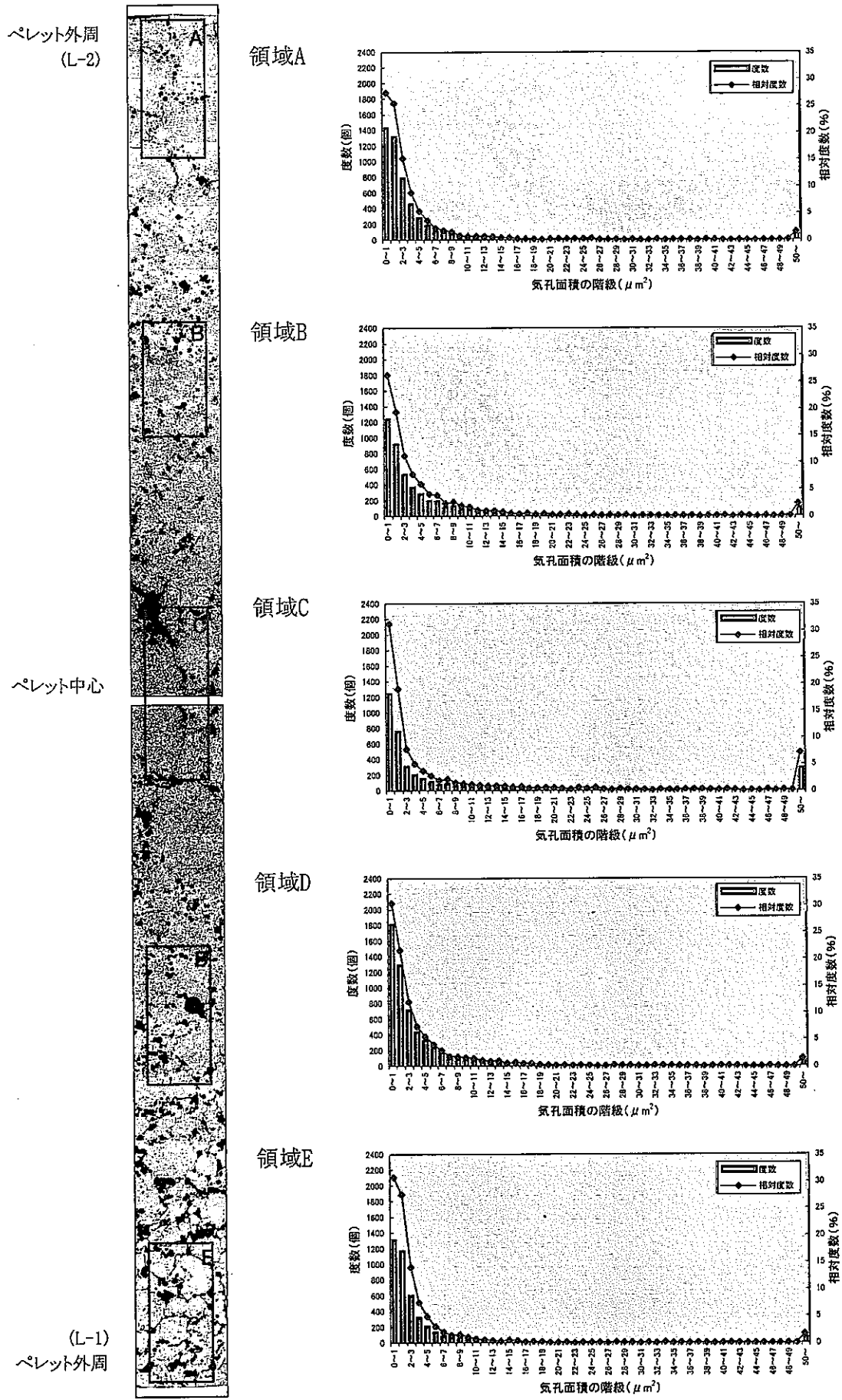
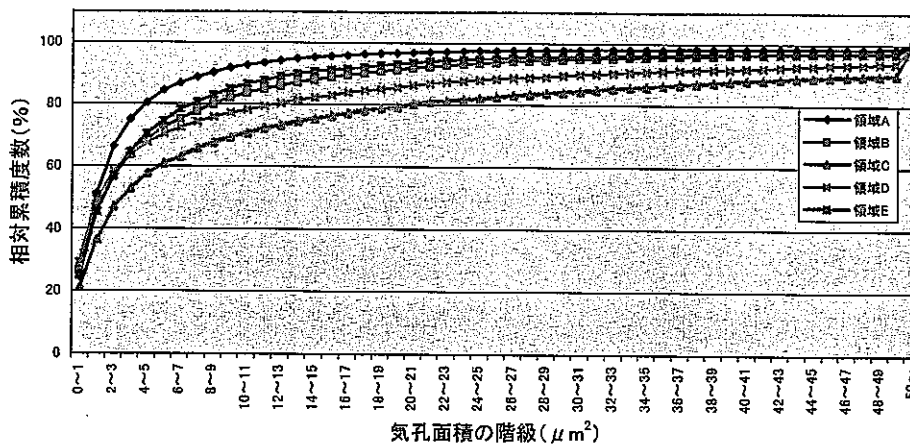
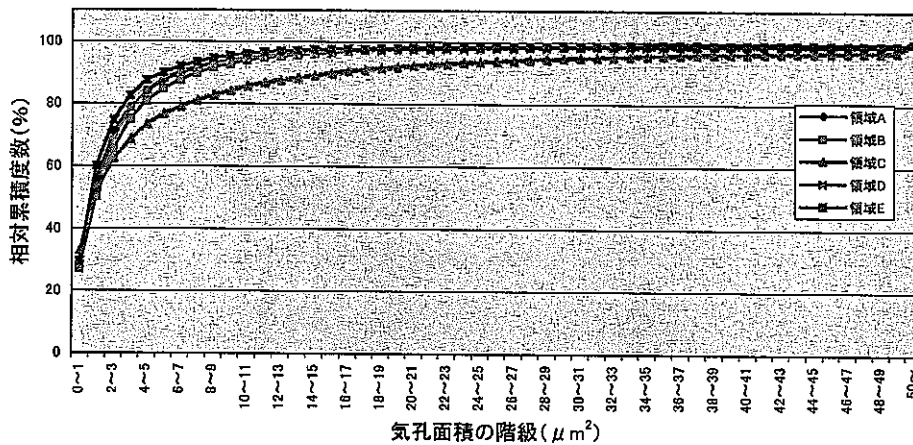


図3.5 気孔の度敷分布および相対度敷分布 (L41452)

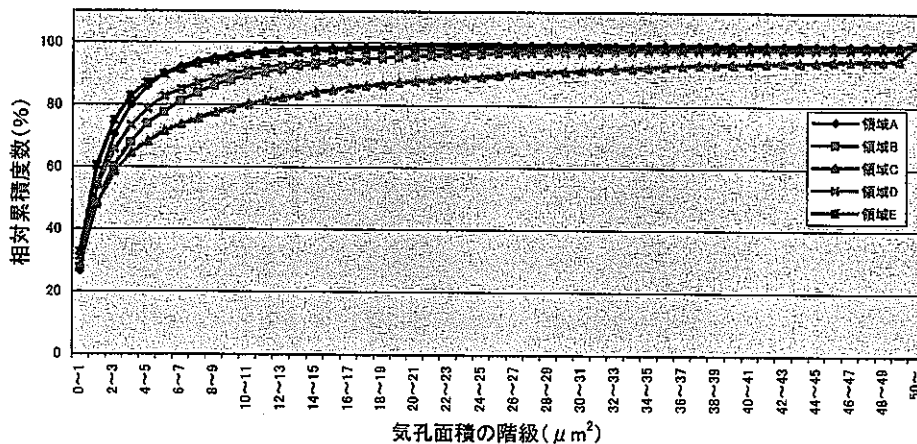
L41332



L41423



L41441



L41452

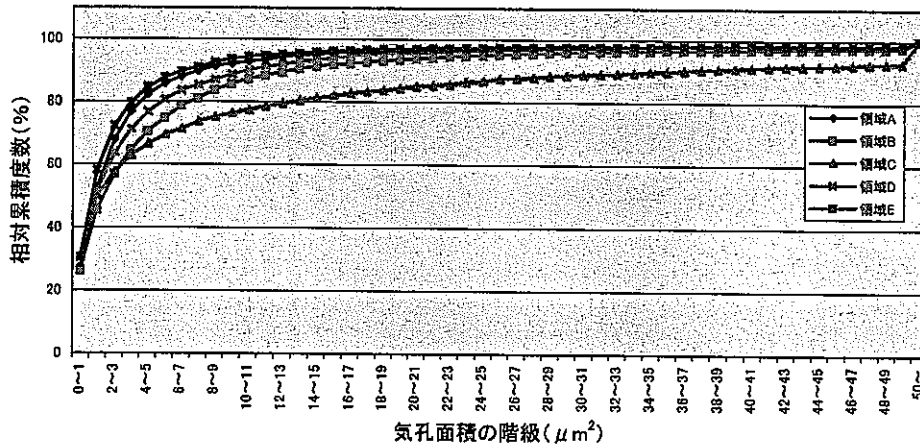


図3.6 気孔の相対累積度数分布

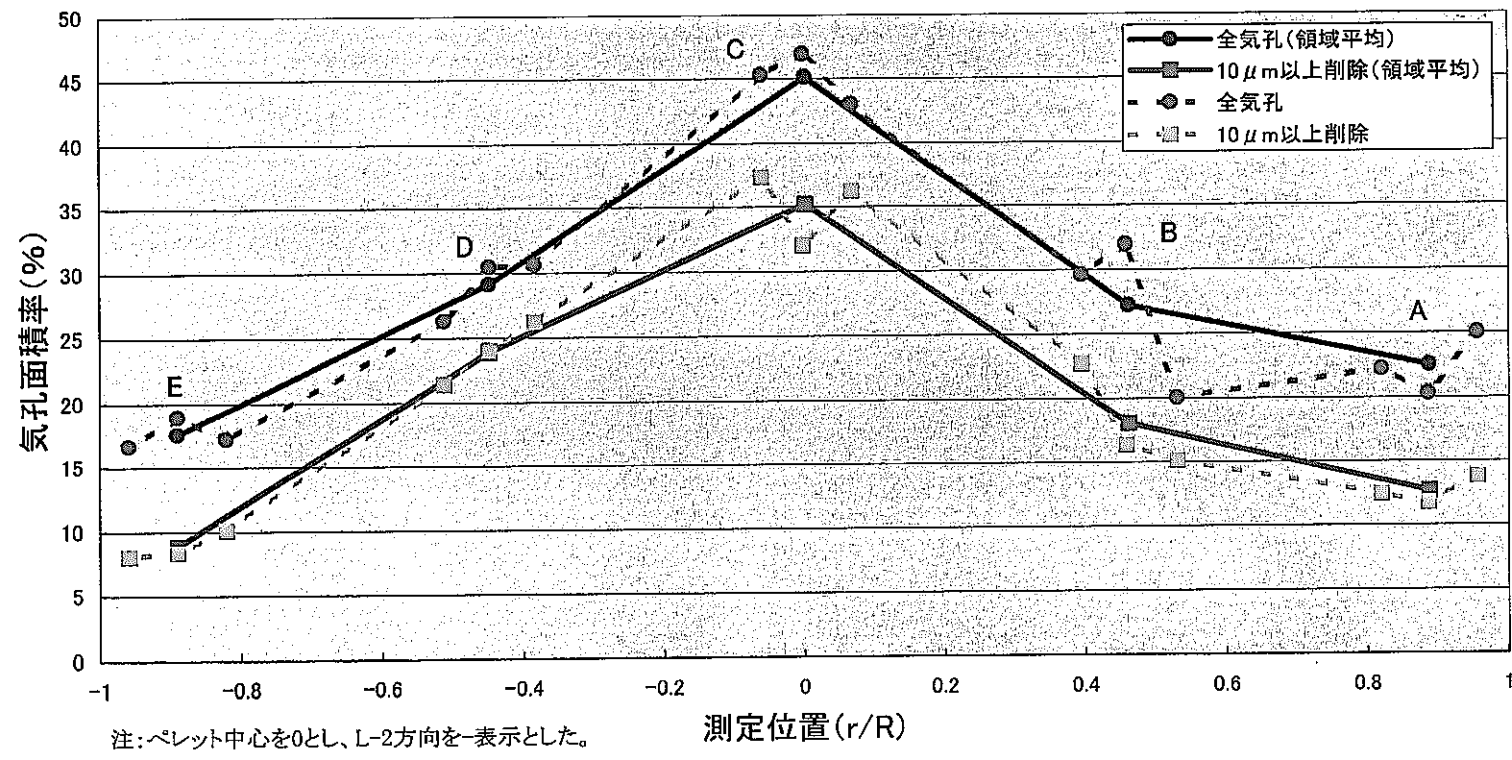
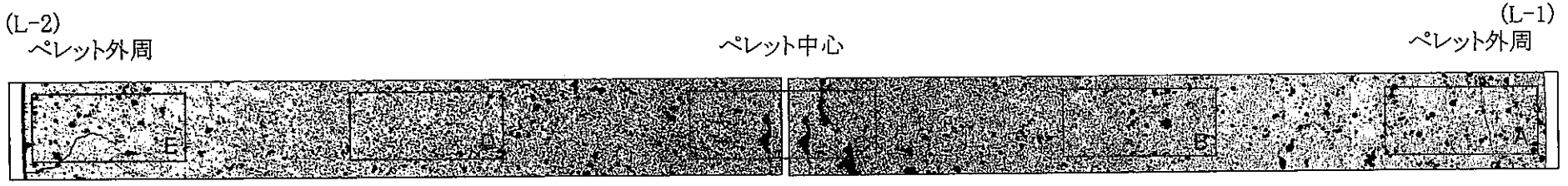


図3.7 ペレット径方向の気孔面積率 (L41332)

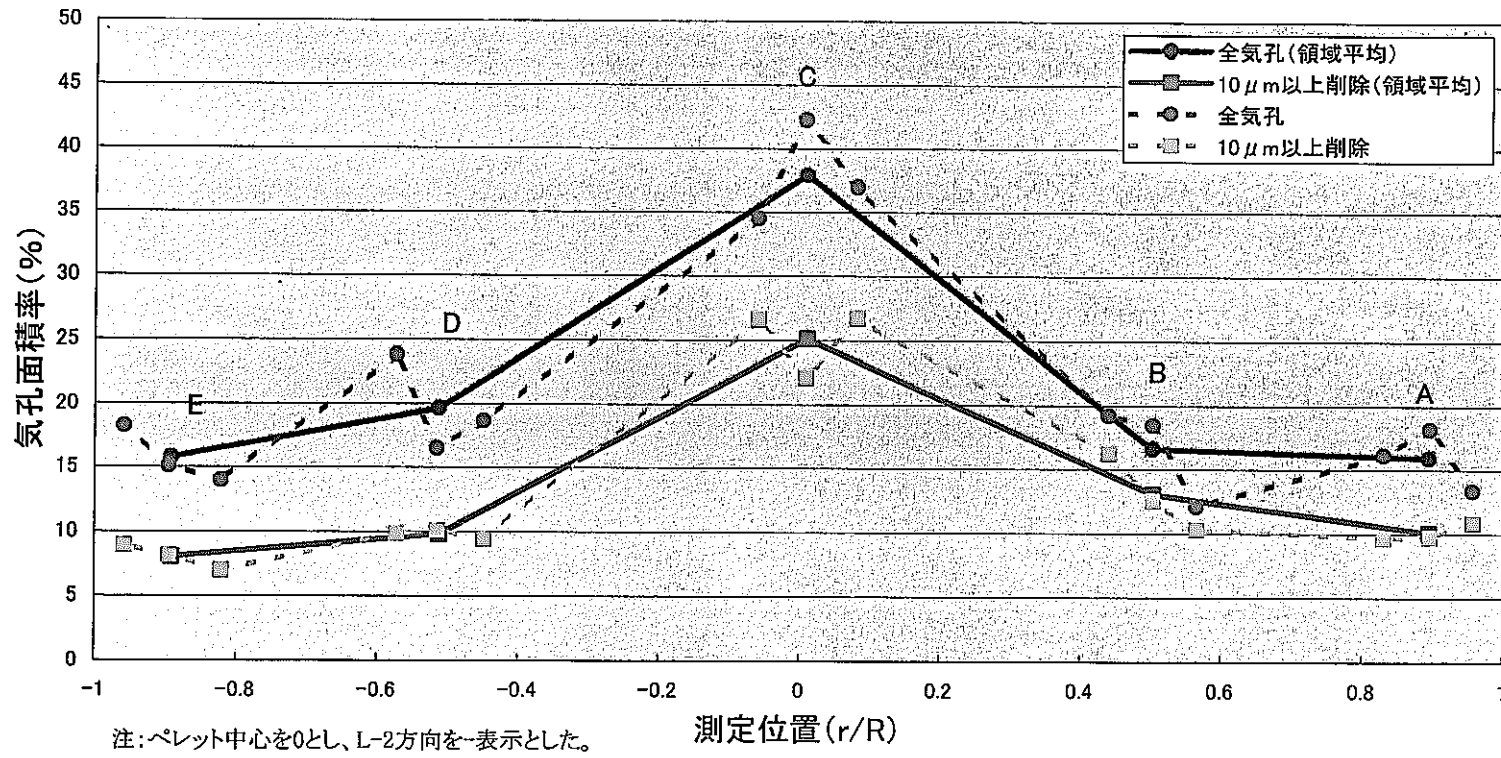
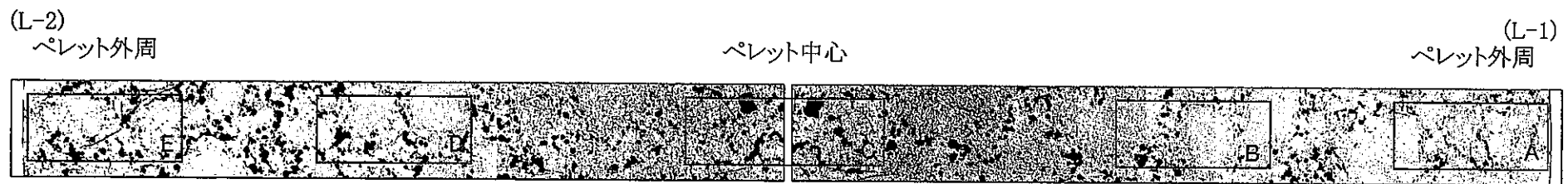


図3.8 ペレット径方向の気孔面積率 (L41423)

(L-2)
ペレット外周

ペレット中心

(L-1)
ペレット外周

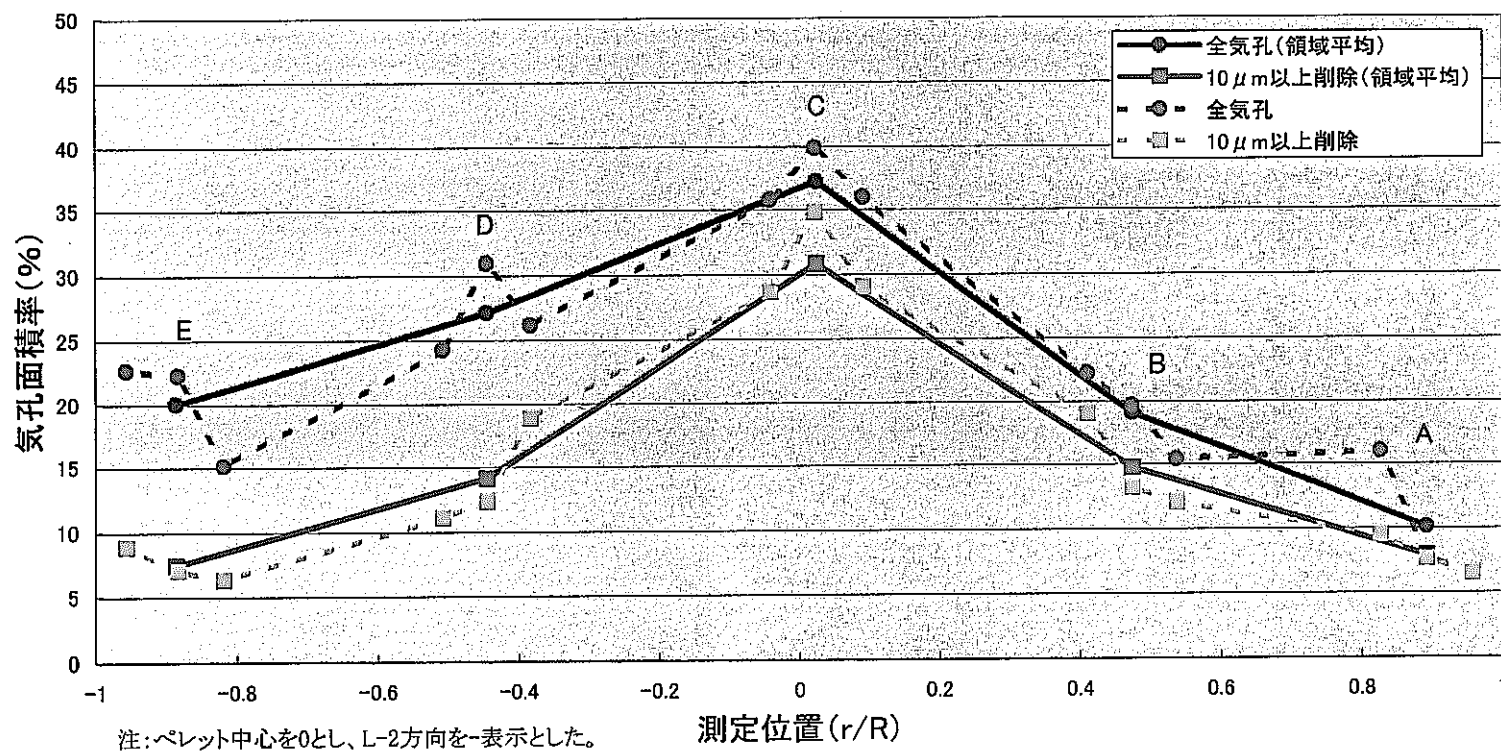
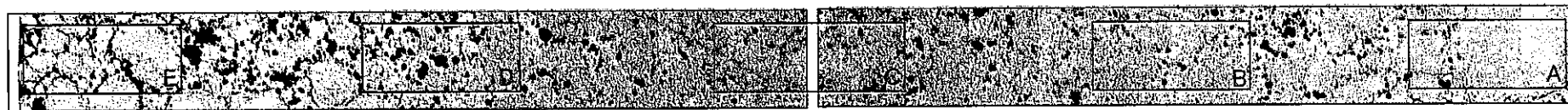


図3.9 ペレット径方向の気孔面積率(L41441)

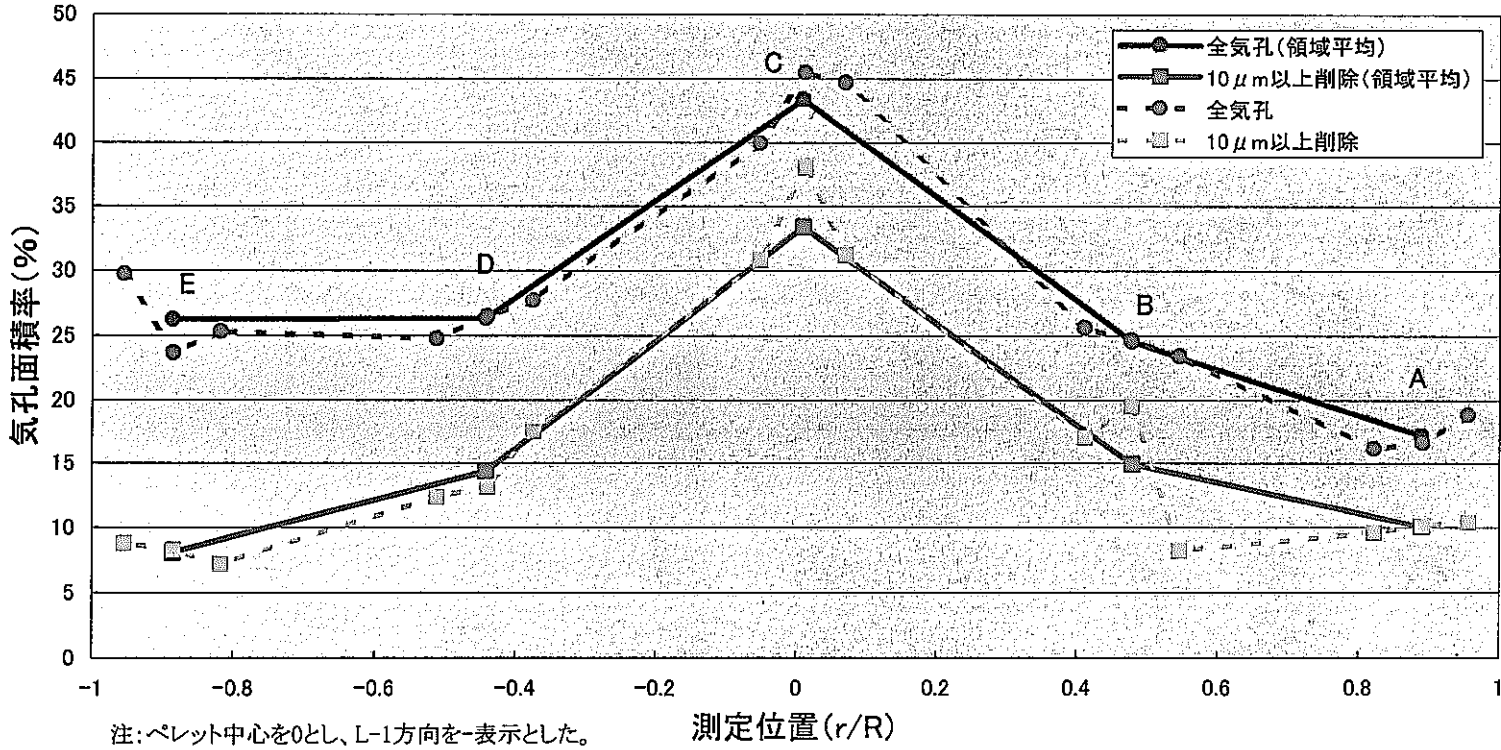
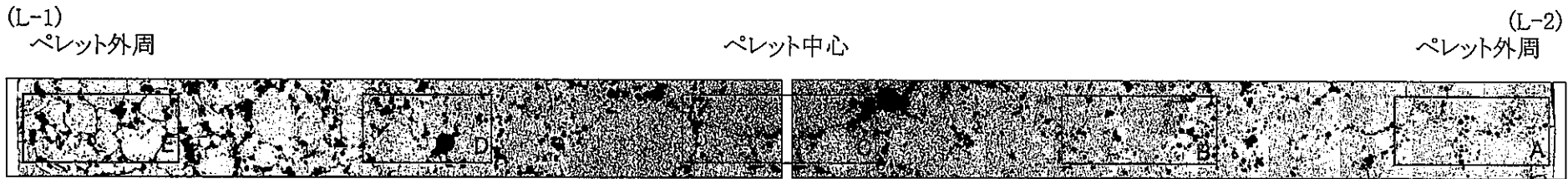


図3.10 ペレット径方向の気孔面積率 (L41452)

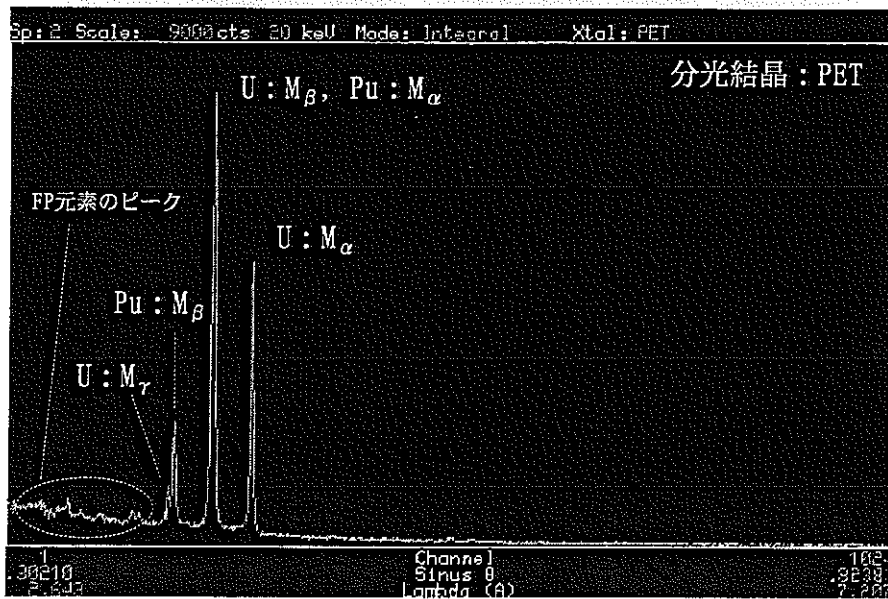
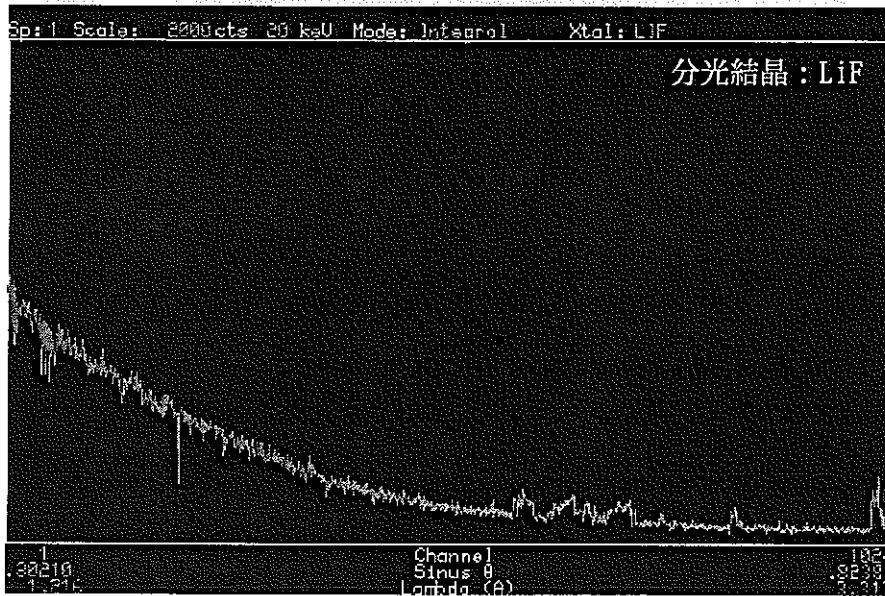
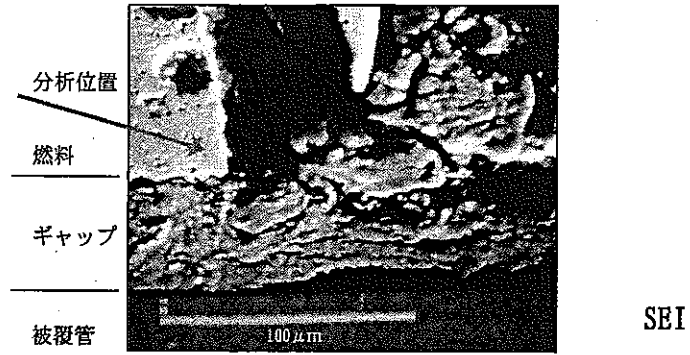


図3.11 燃料マトリックスの定性分析結果 (L41332)

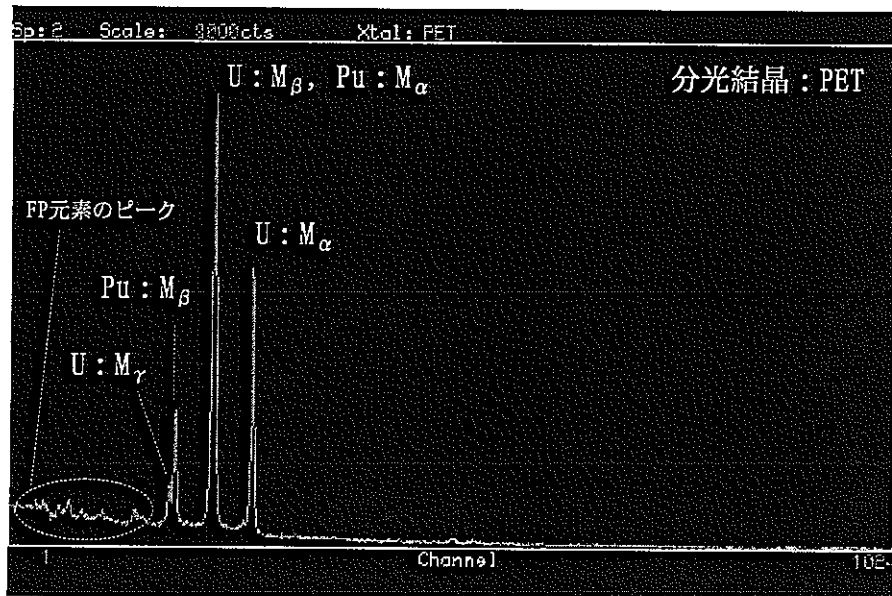
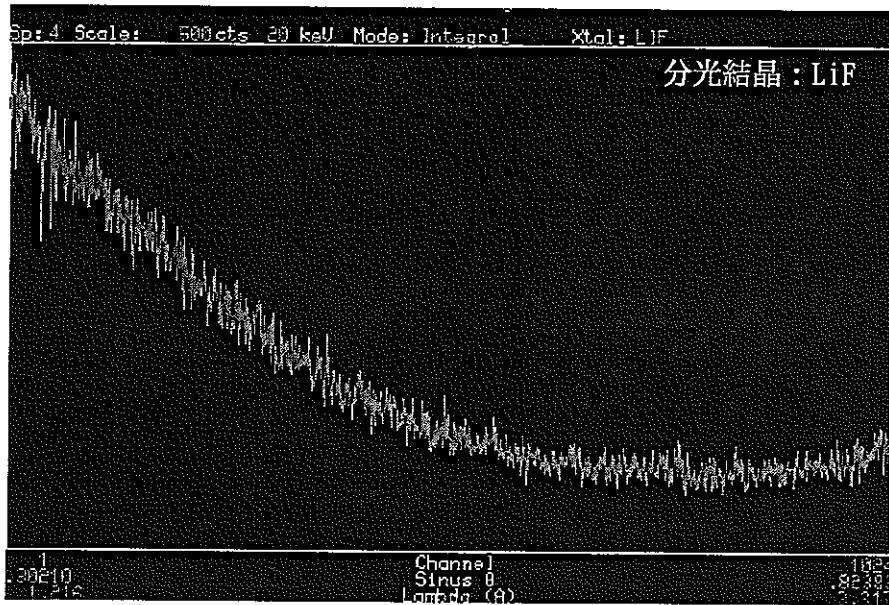
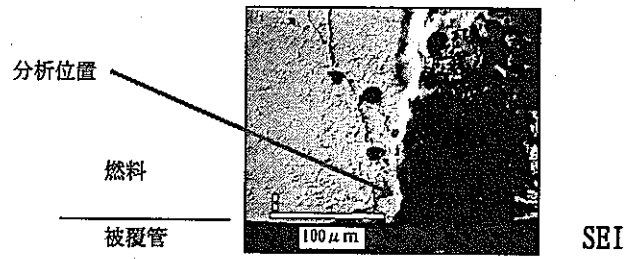


図3.12 燃料マトリックスの定性分析結果 (L41423)

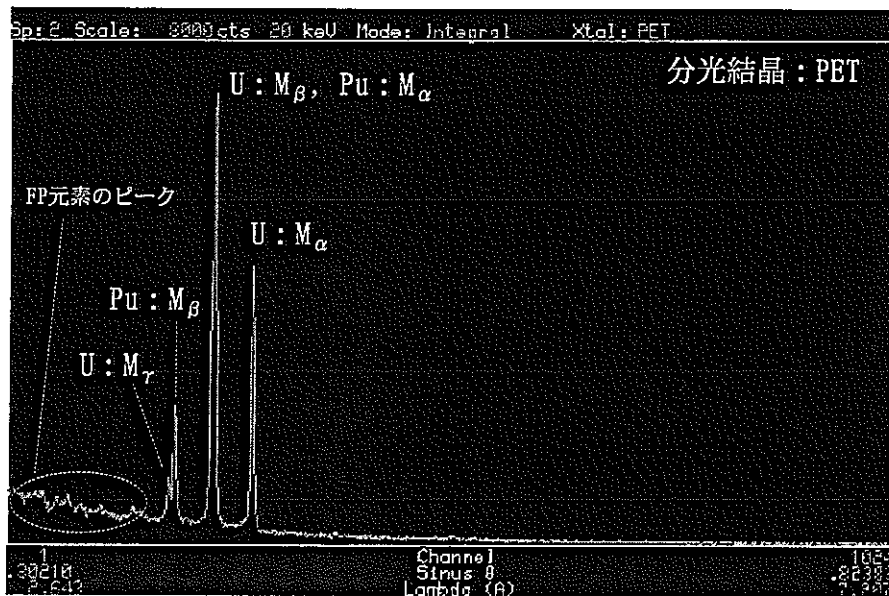
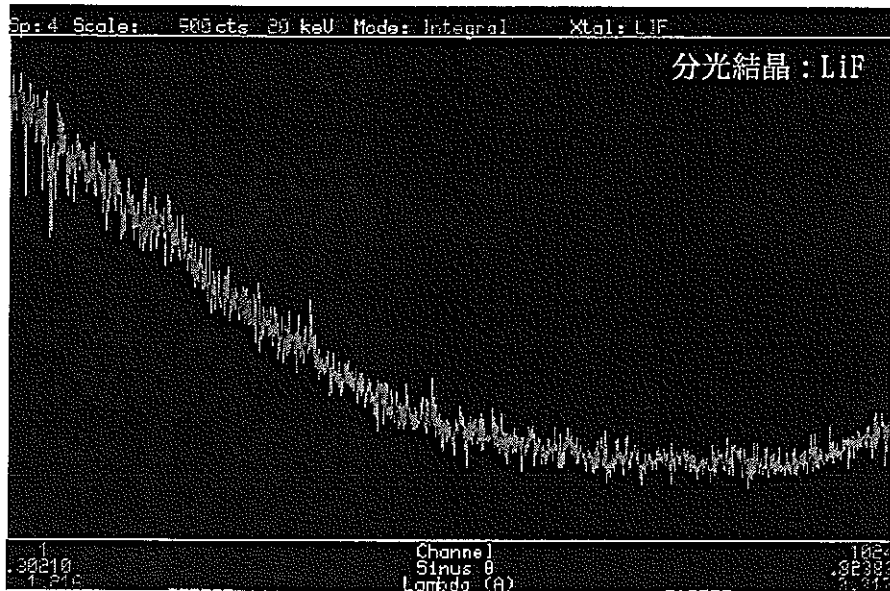
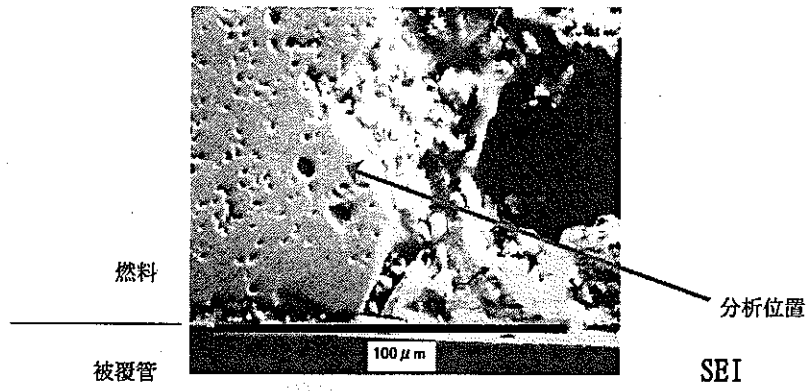


図3.13 燃料マトリックスの定性分析結果 (L41441)

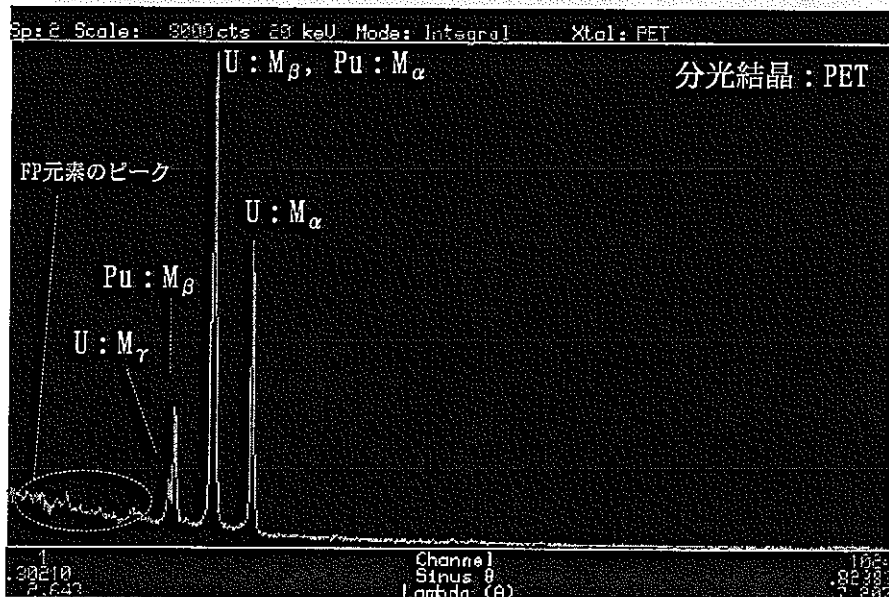
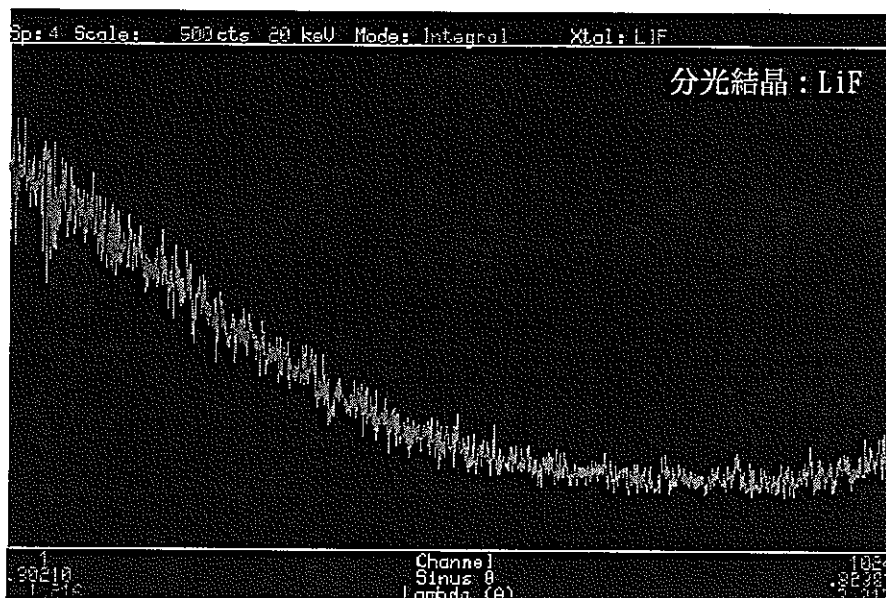
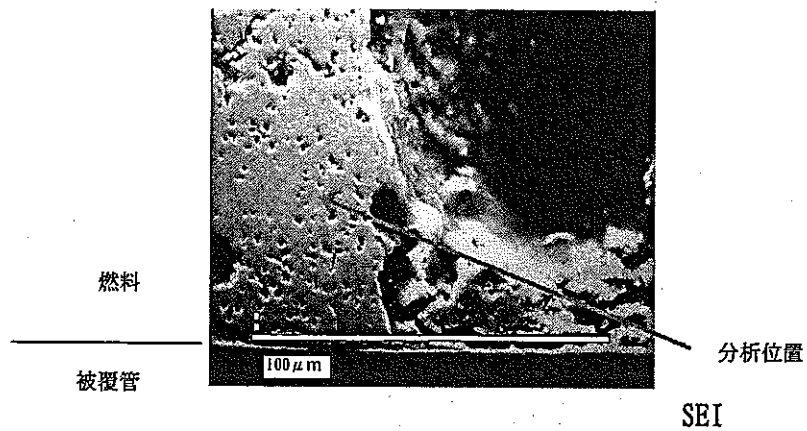


図3.14 燃料マトリックスの定性分析結果 (L41452)

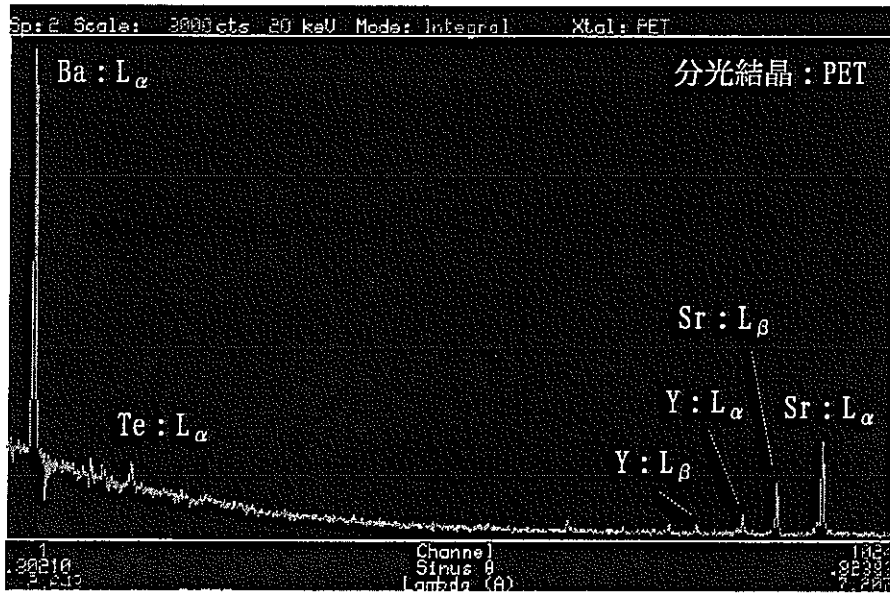
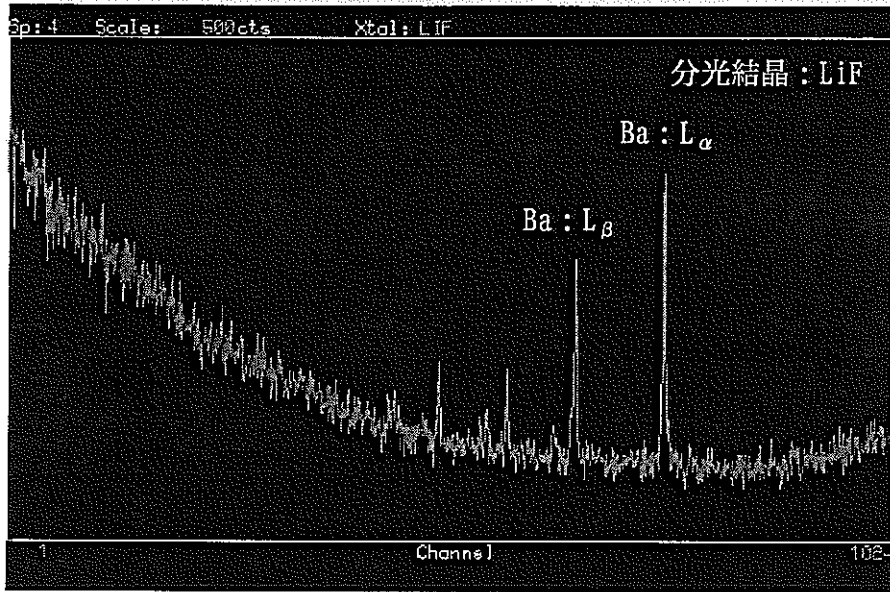
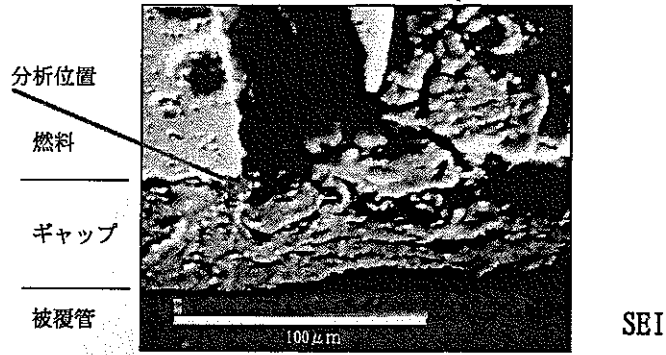


図3.15 クラック開口部の定性分析結果 (L41332 : 1/2)

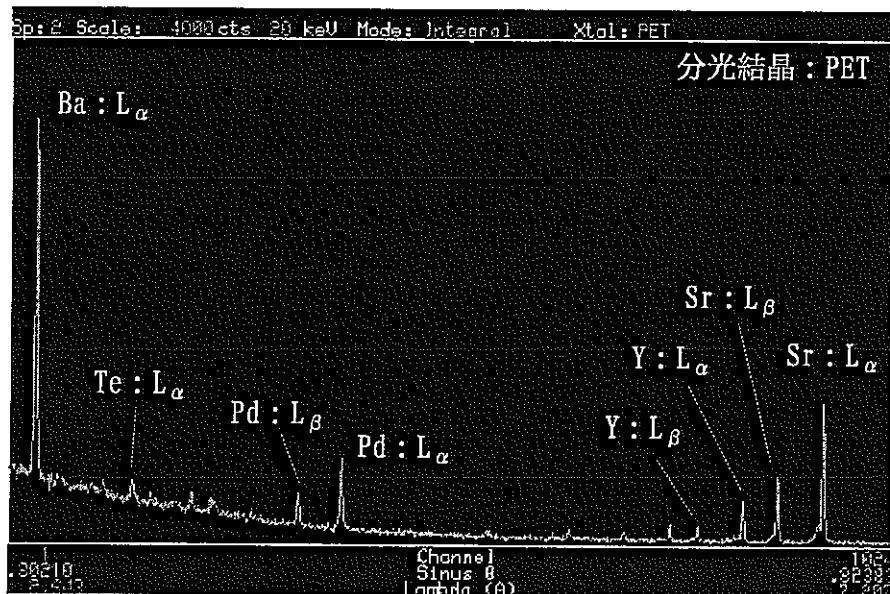
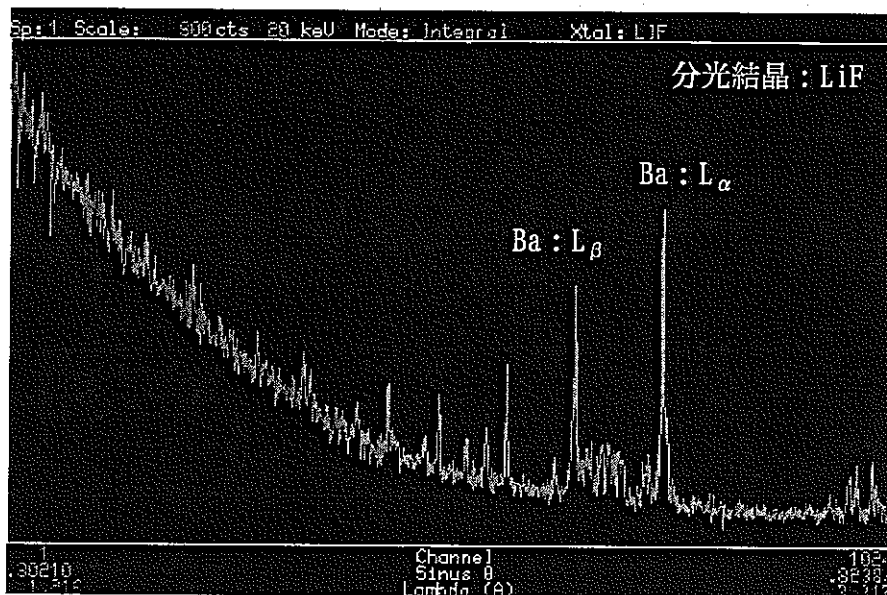
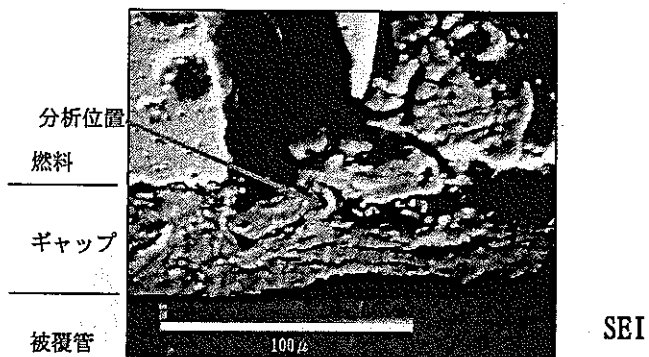


図3.15 クラック開口部の定性分析結果 (L41332 : 2/2)

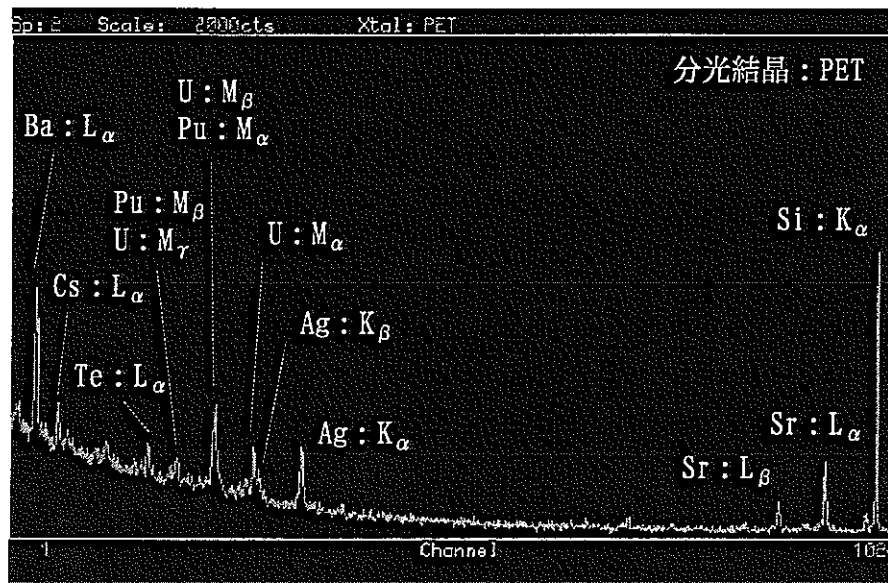
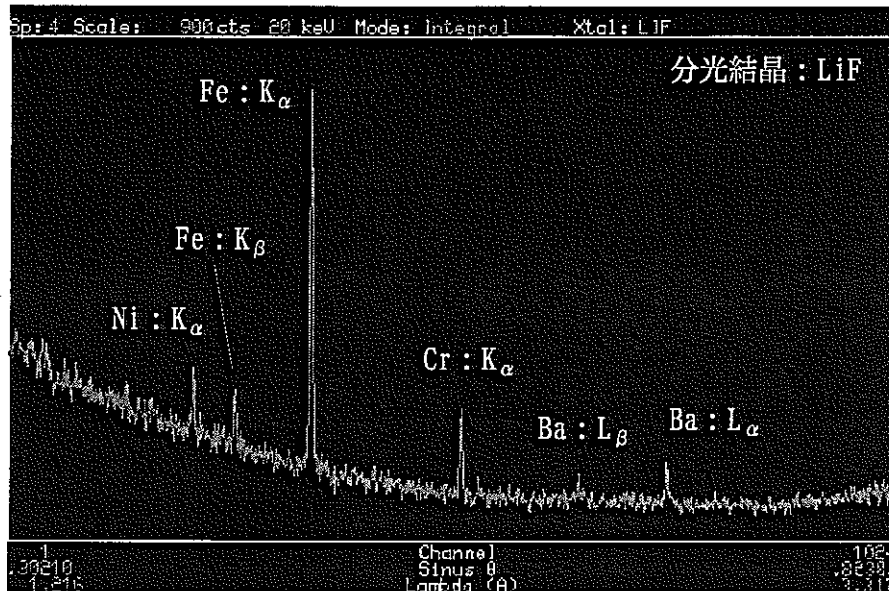
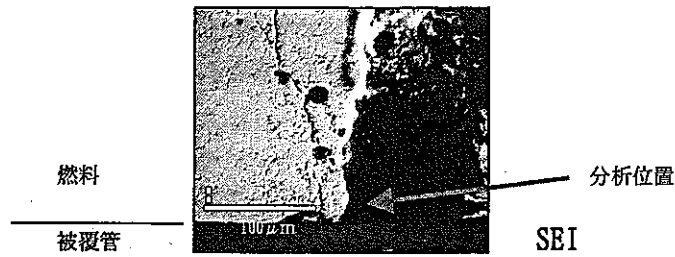


図3.16 クラック開口部の定性分析結果(L41423)

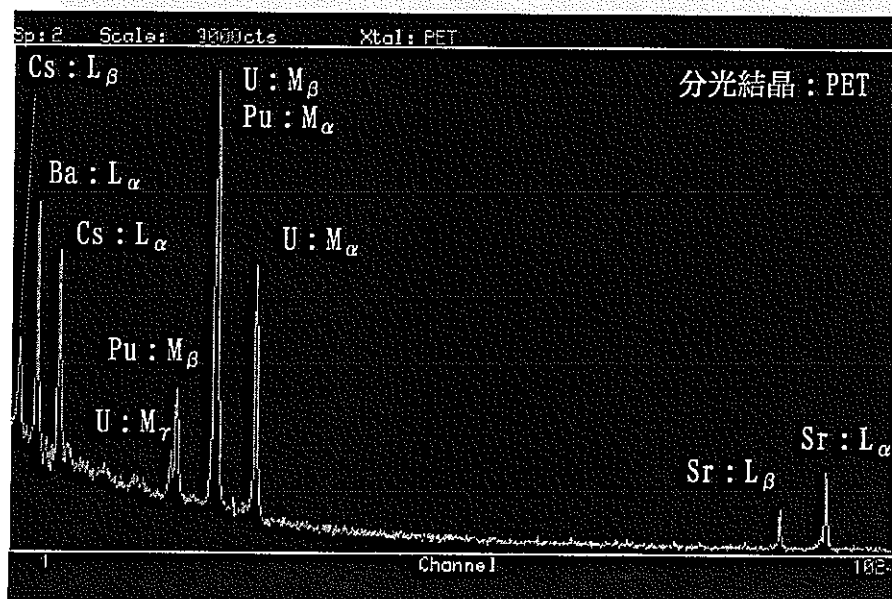
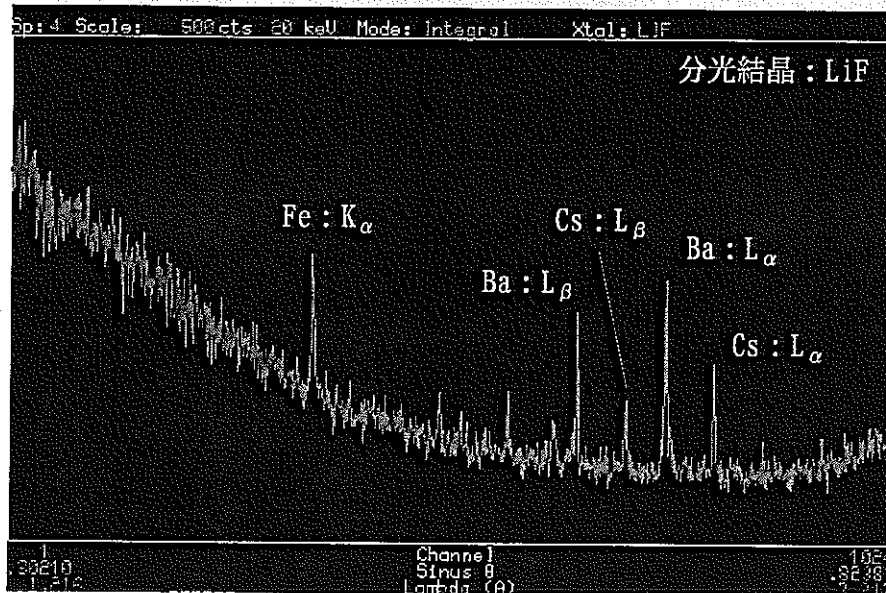
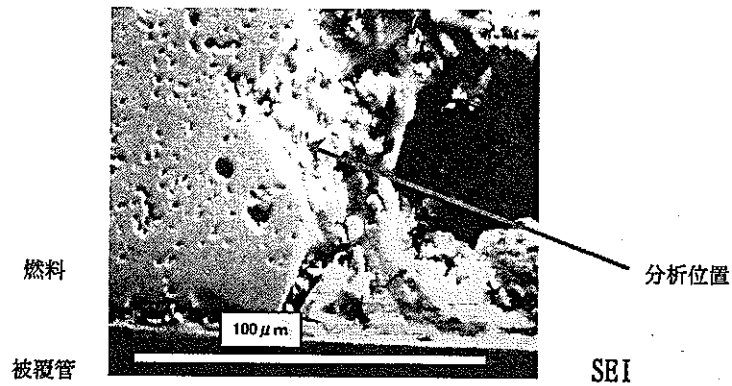


図3.17 クラック開口部の定性分析結果 (L41441)

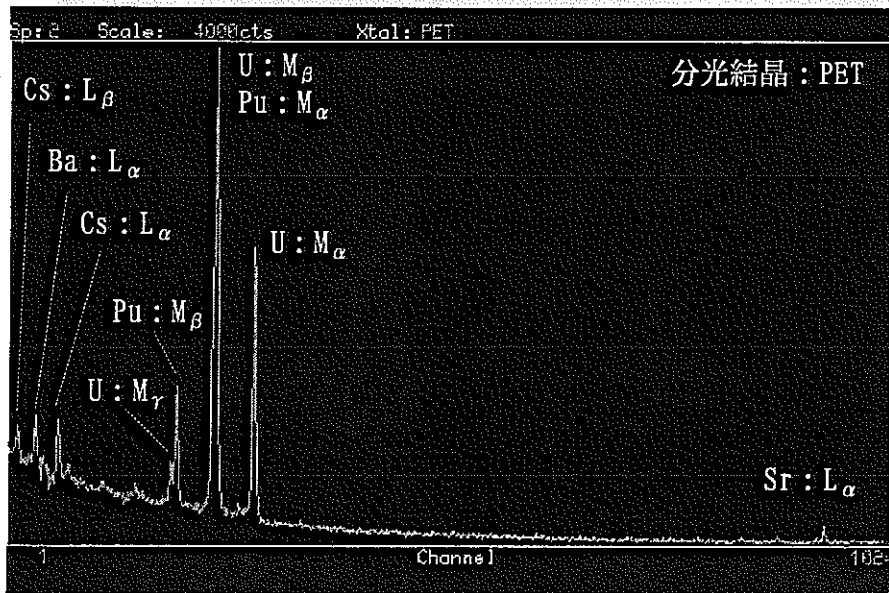
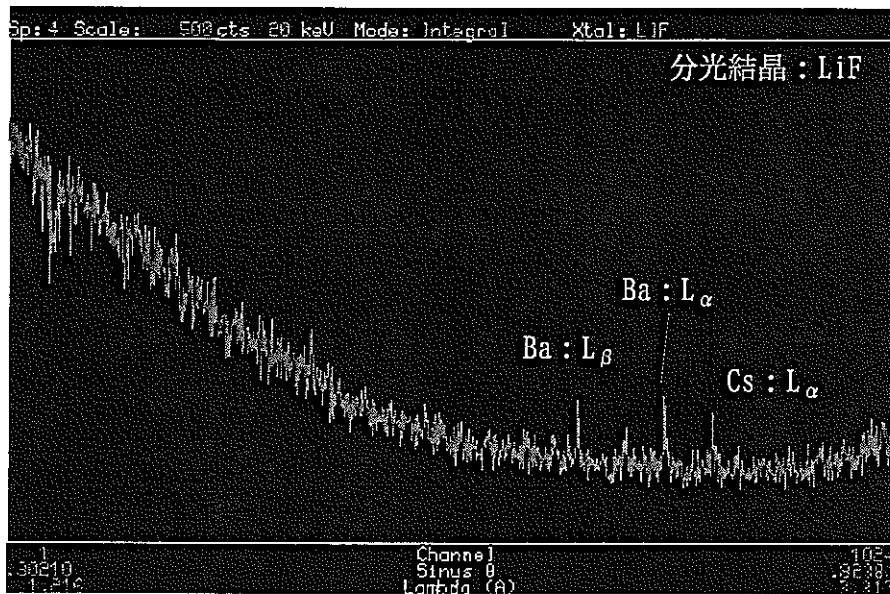
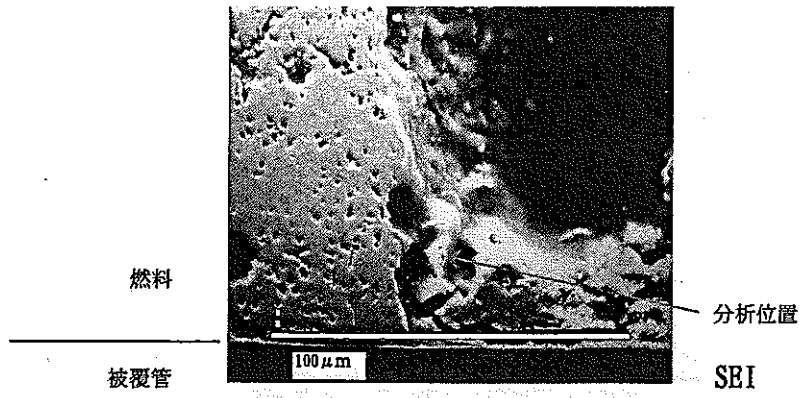


図3.18 クラック開口部の定性分析結果 (L41452)

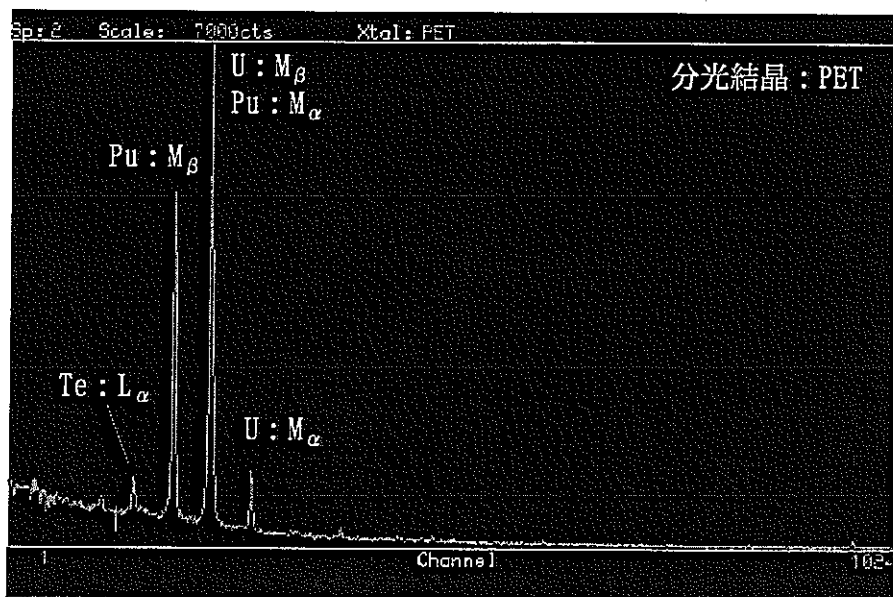
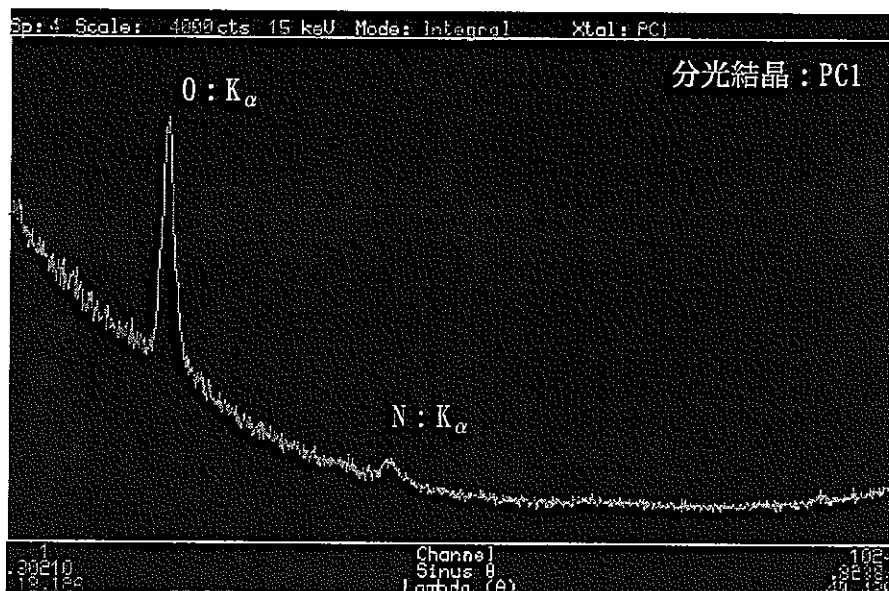
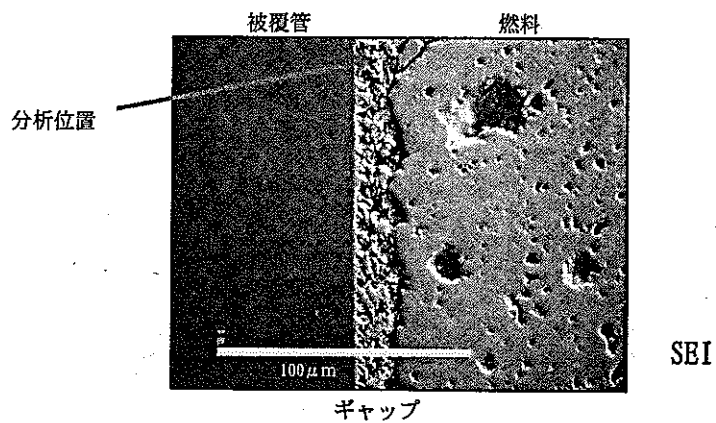


図3.19 燃料-被覆管ギャップ部の定性分析結果 (L41332: ギャップ部F)

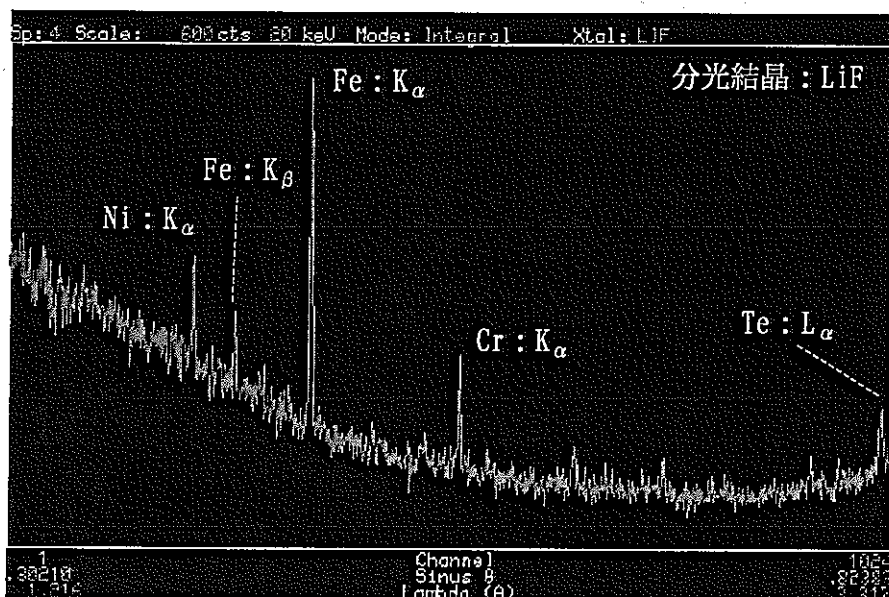
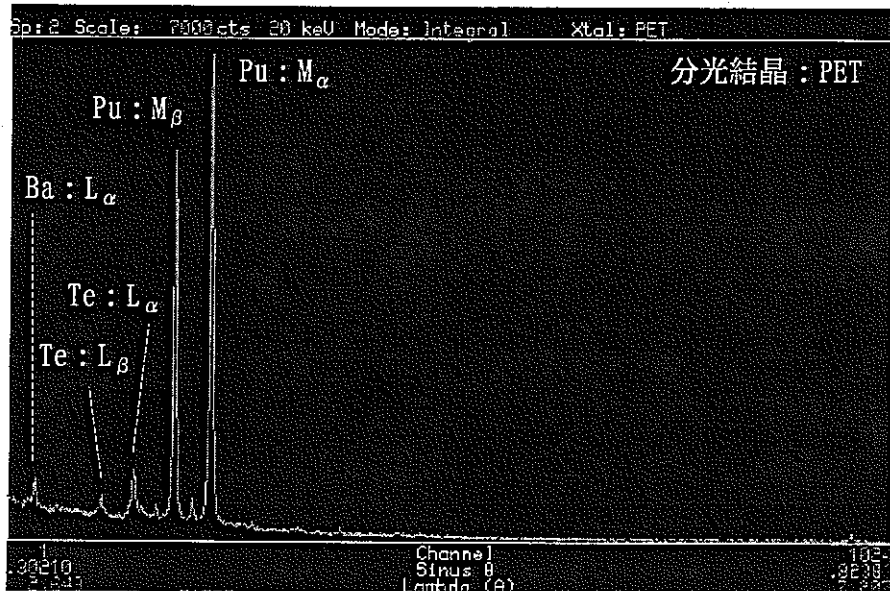
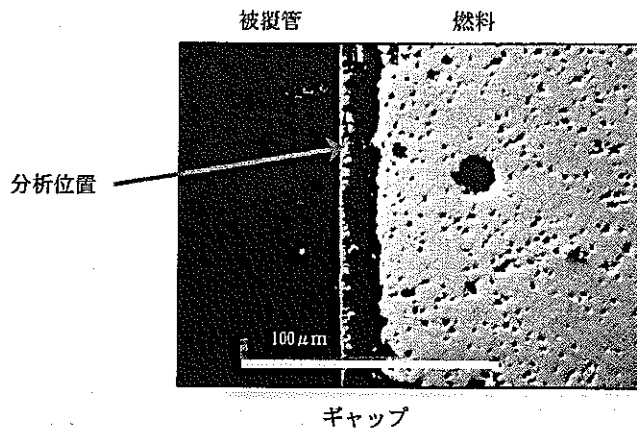
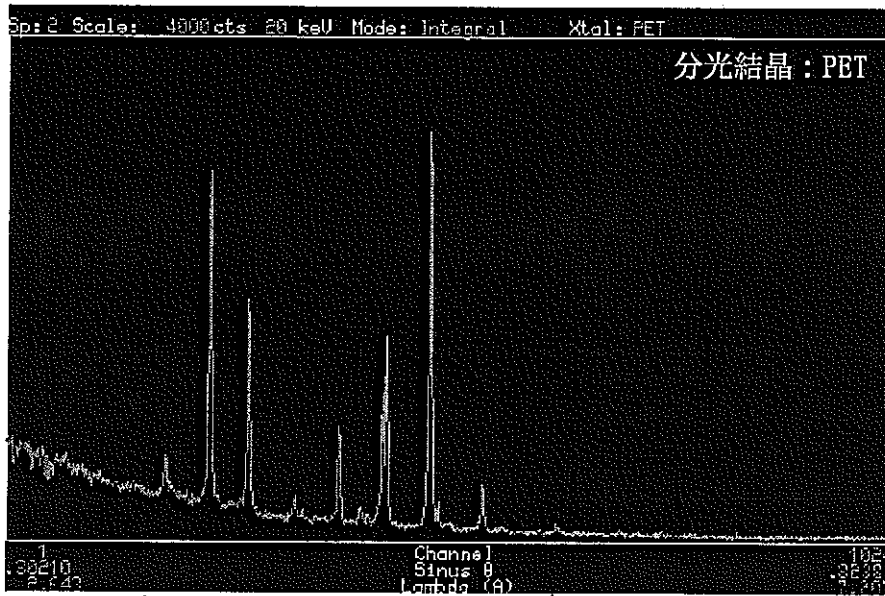
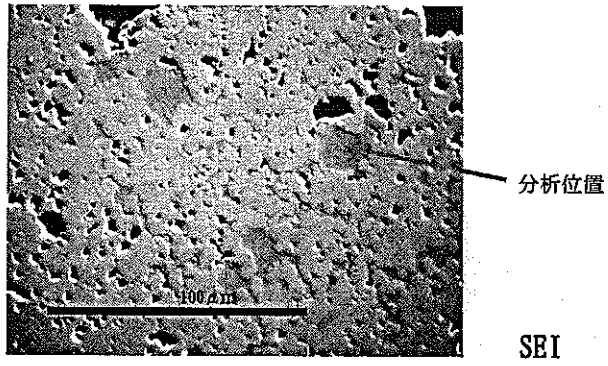


図3.20 燃料-被覆管ギャップ部の定性分析結果
(L41332: ギャップ部)



↓ 拡大

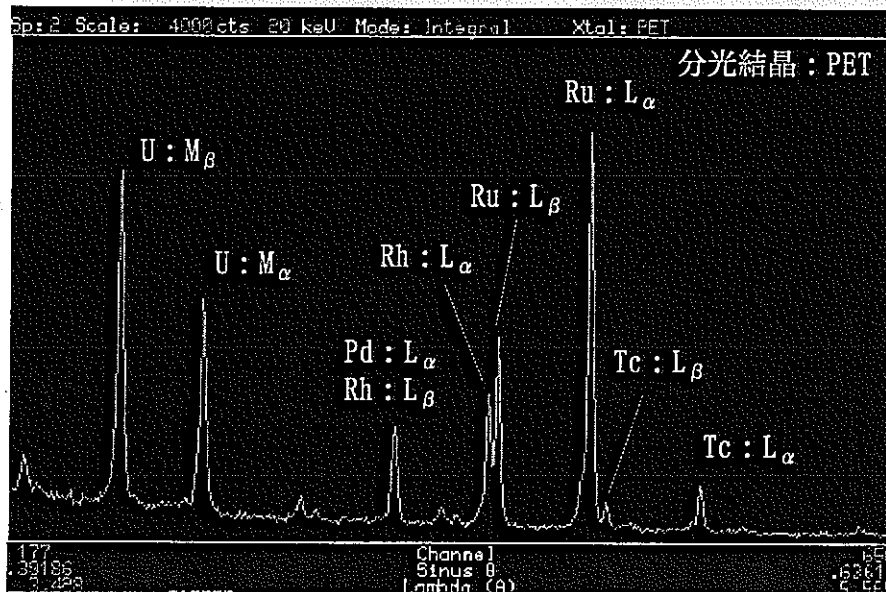


図3.21 析出物の定性分析結果 (L41332)

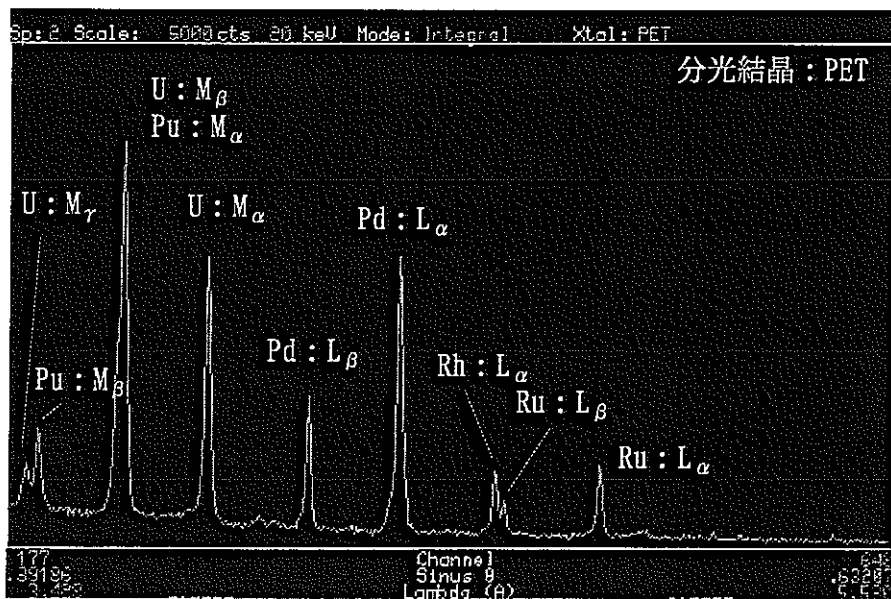
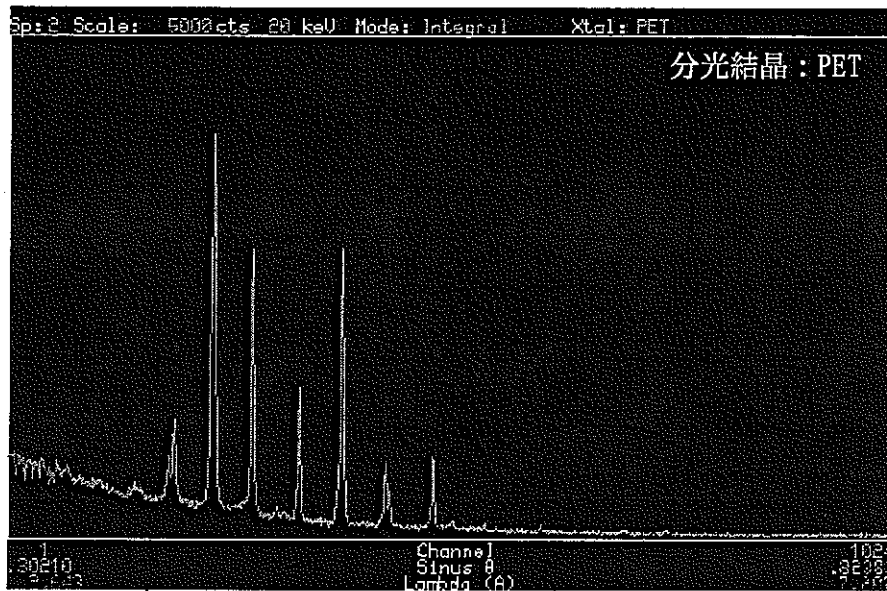
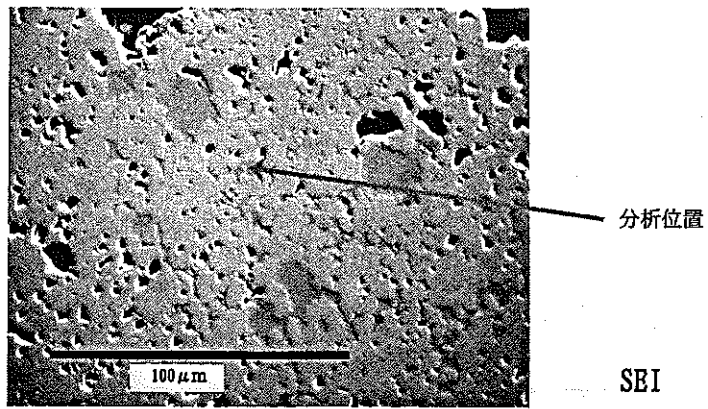


図3.22 析出物の定性分析結果 (L41332: 高Pd強度相)

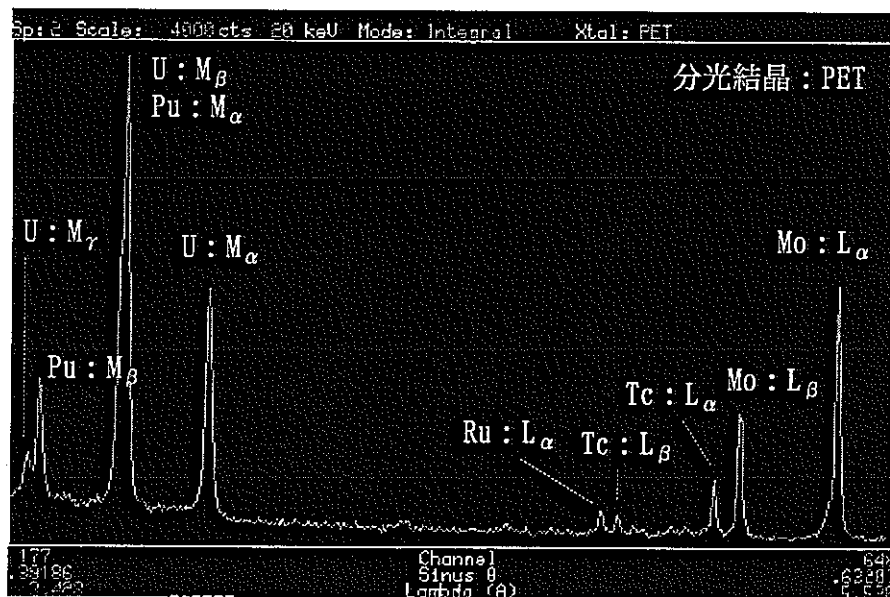
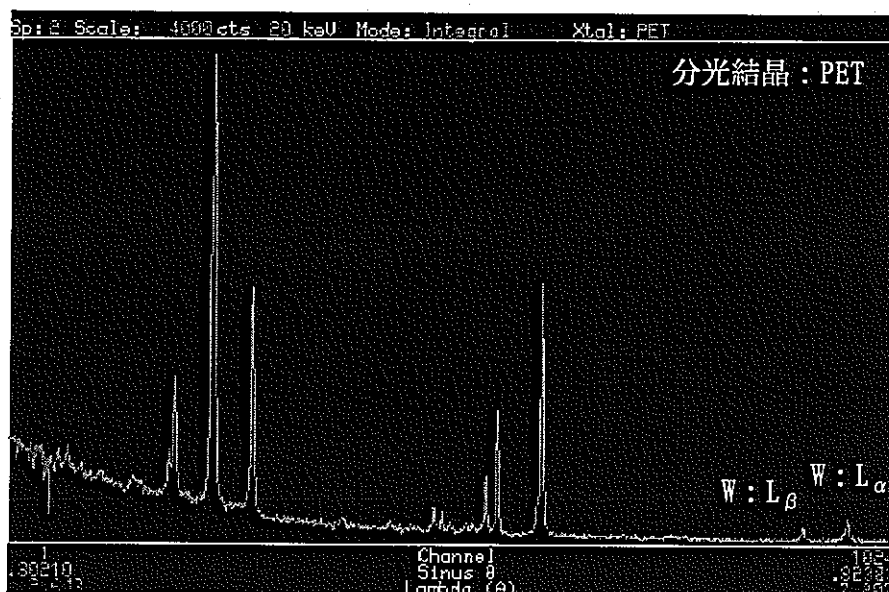
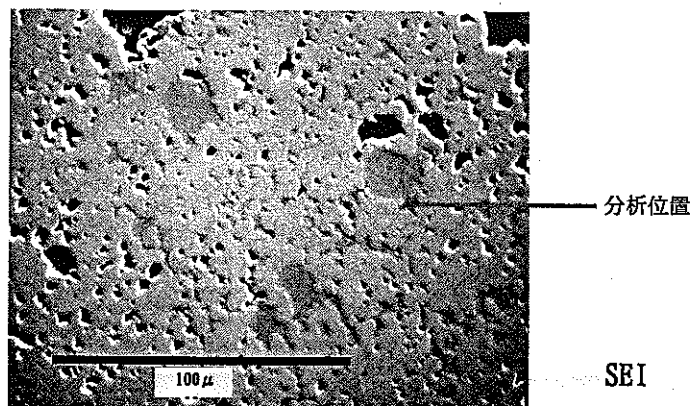


図3.23 析出物の定性分析結果 (L41332: 高Mo強度相)

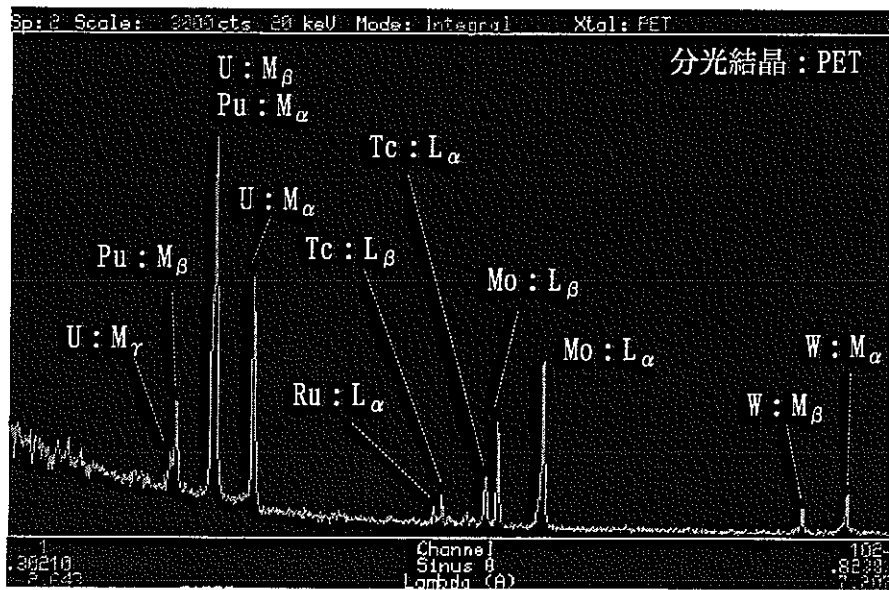
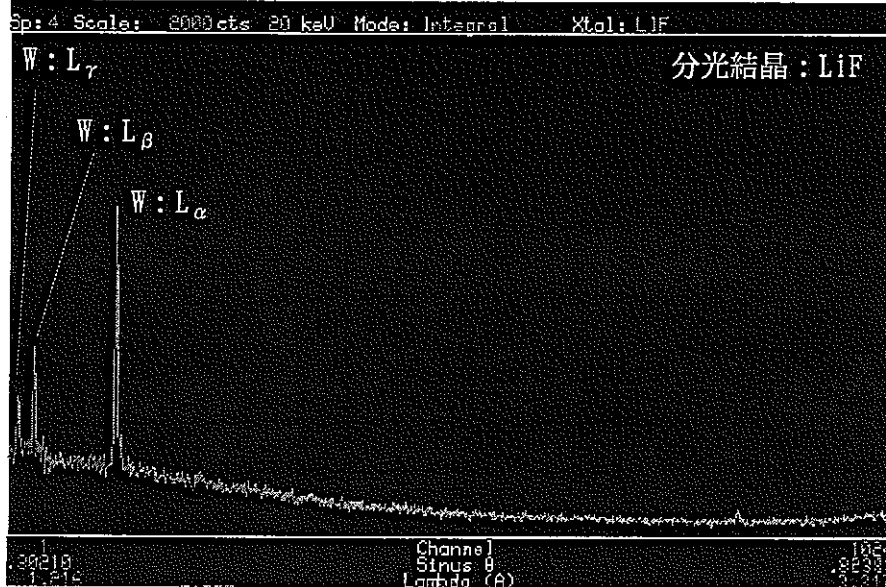
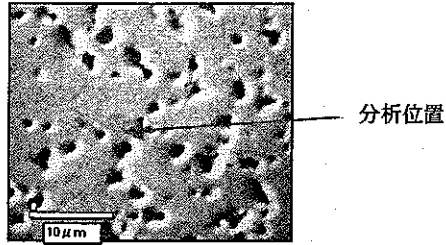


図3.24 析出物の定性分析結果(L41423)

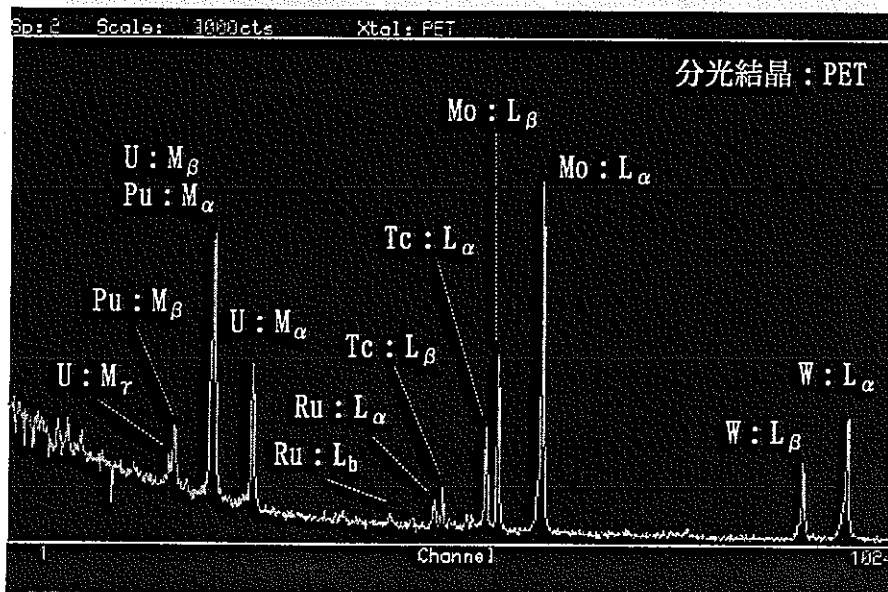
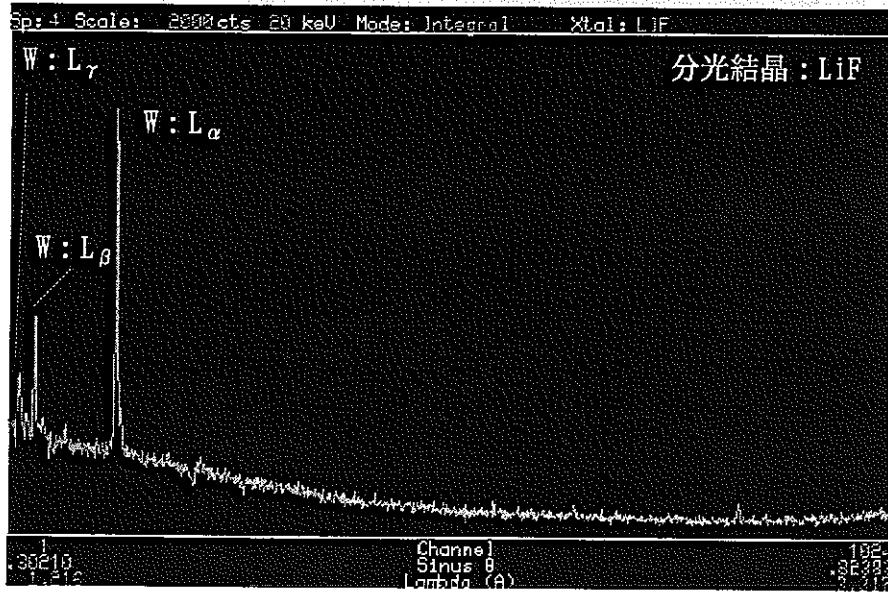
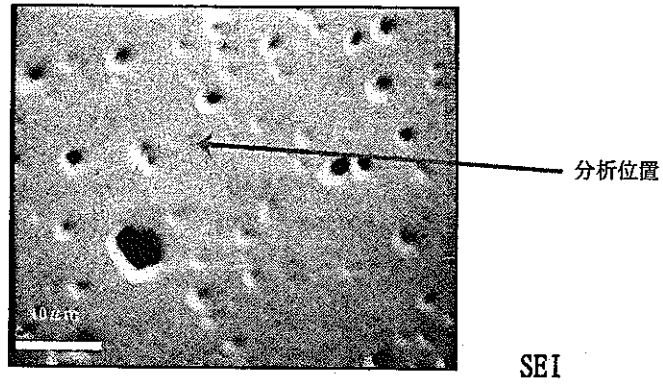


図3.25 析出物の定性分析結果 (L41441)

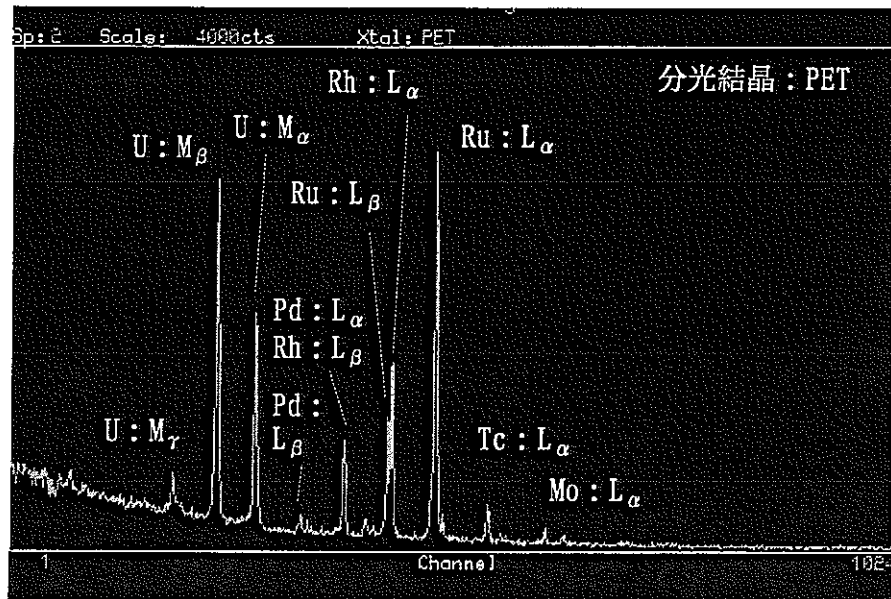
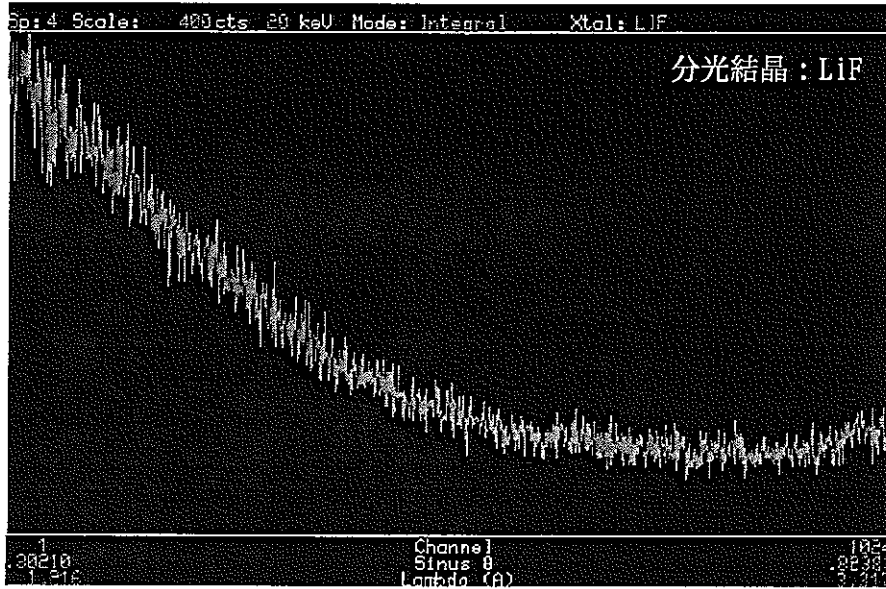
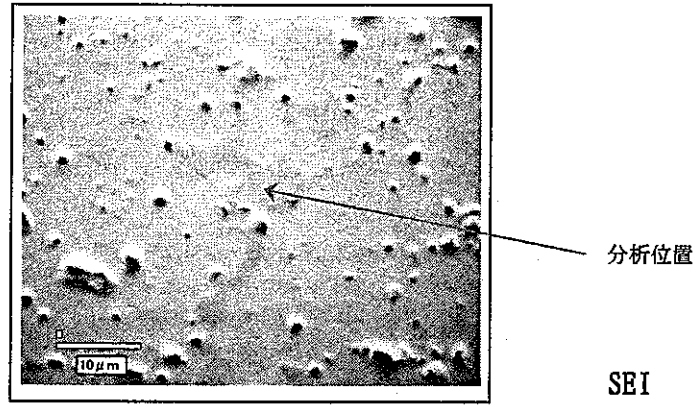
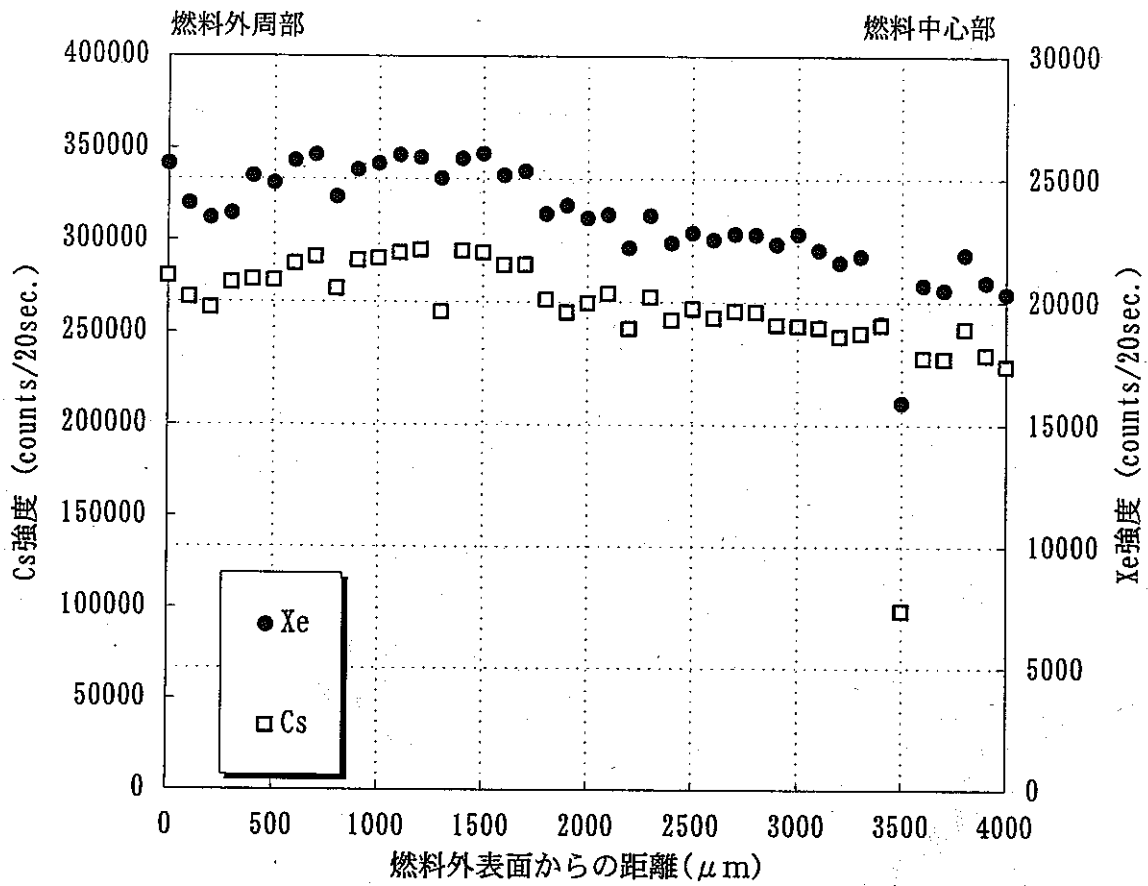
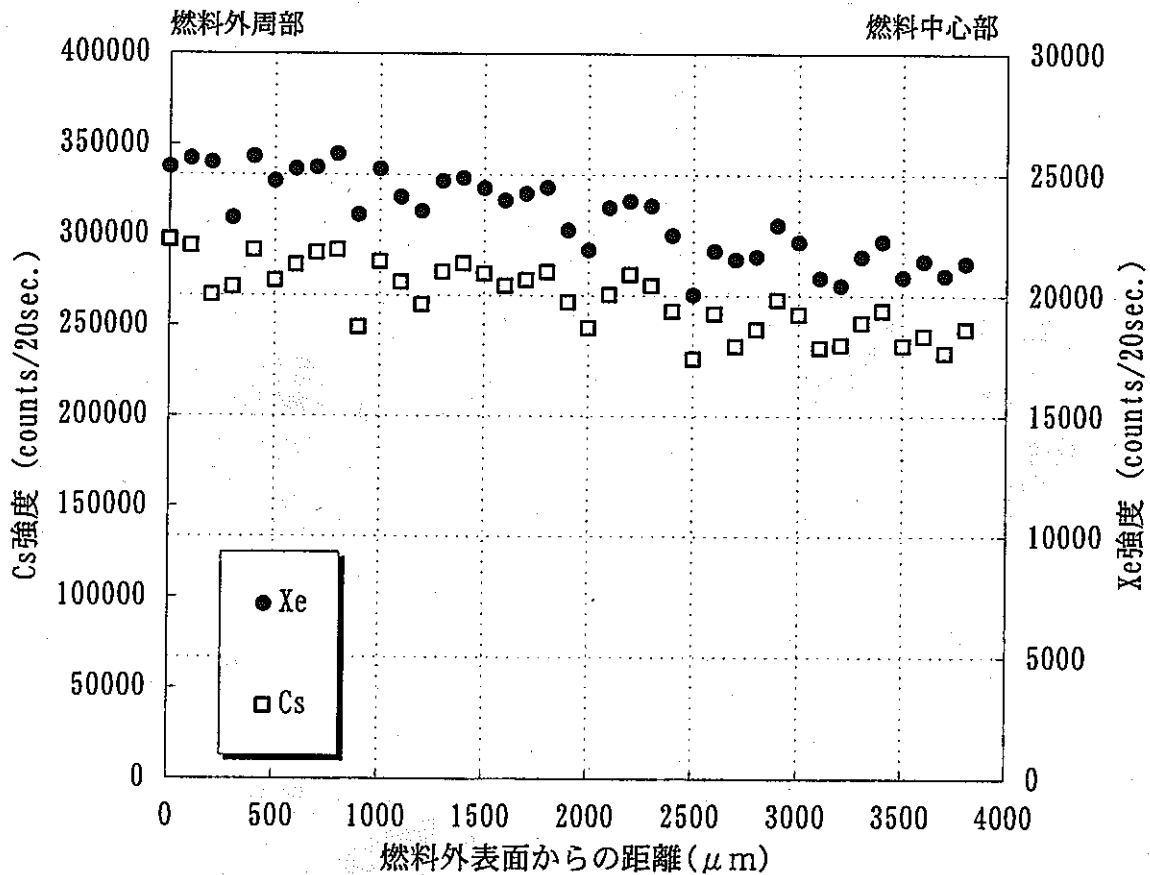


図3.26 析出物の定性分析結果 (L41452)

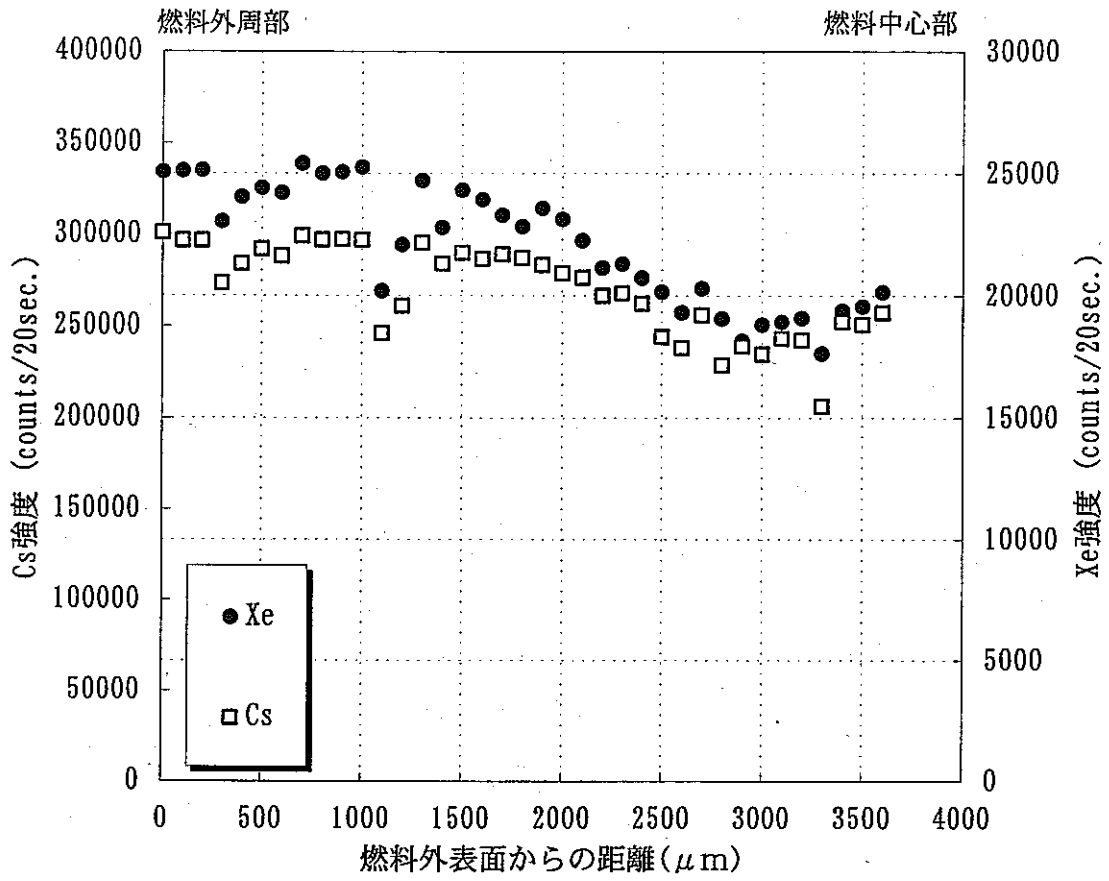


(a) L-1

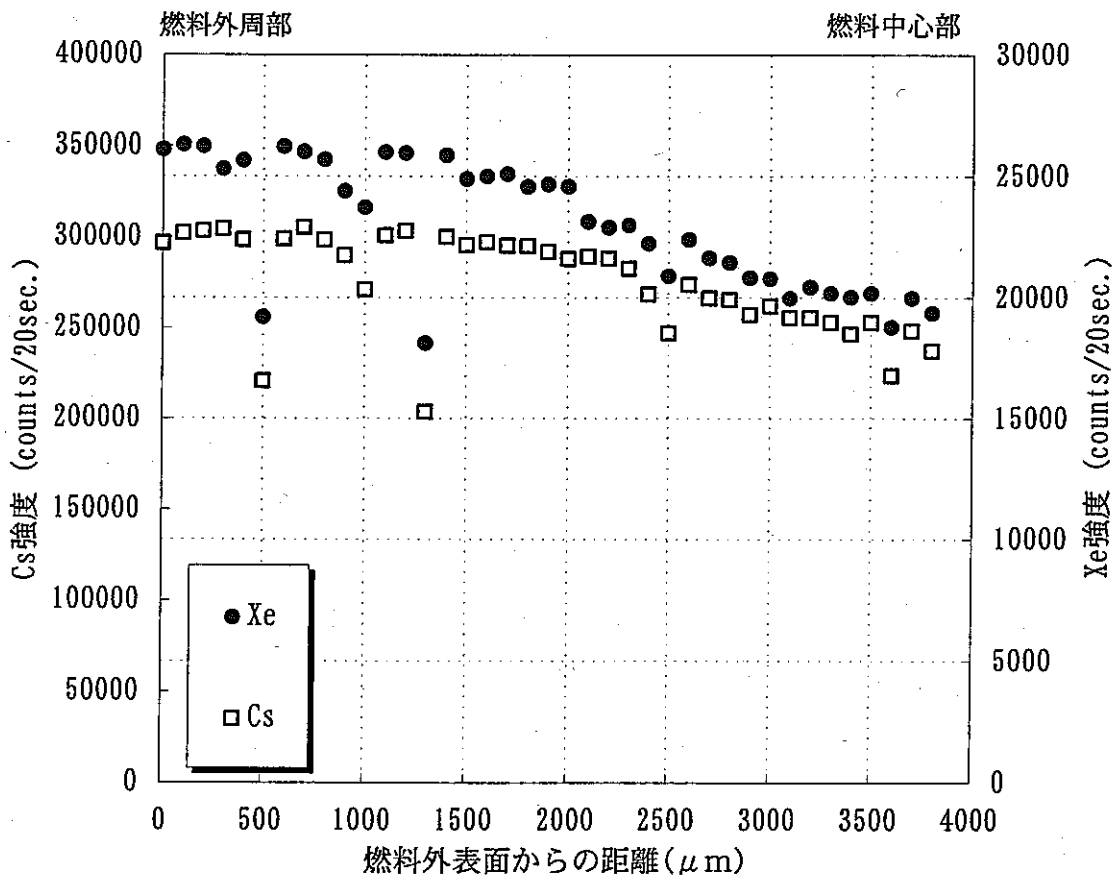


(b) L-2

図3.27 Xe, Csの径方向分布 (L41332)

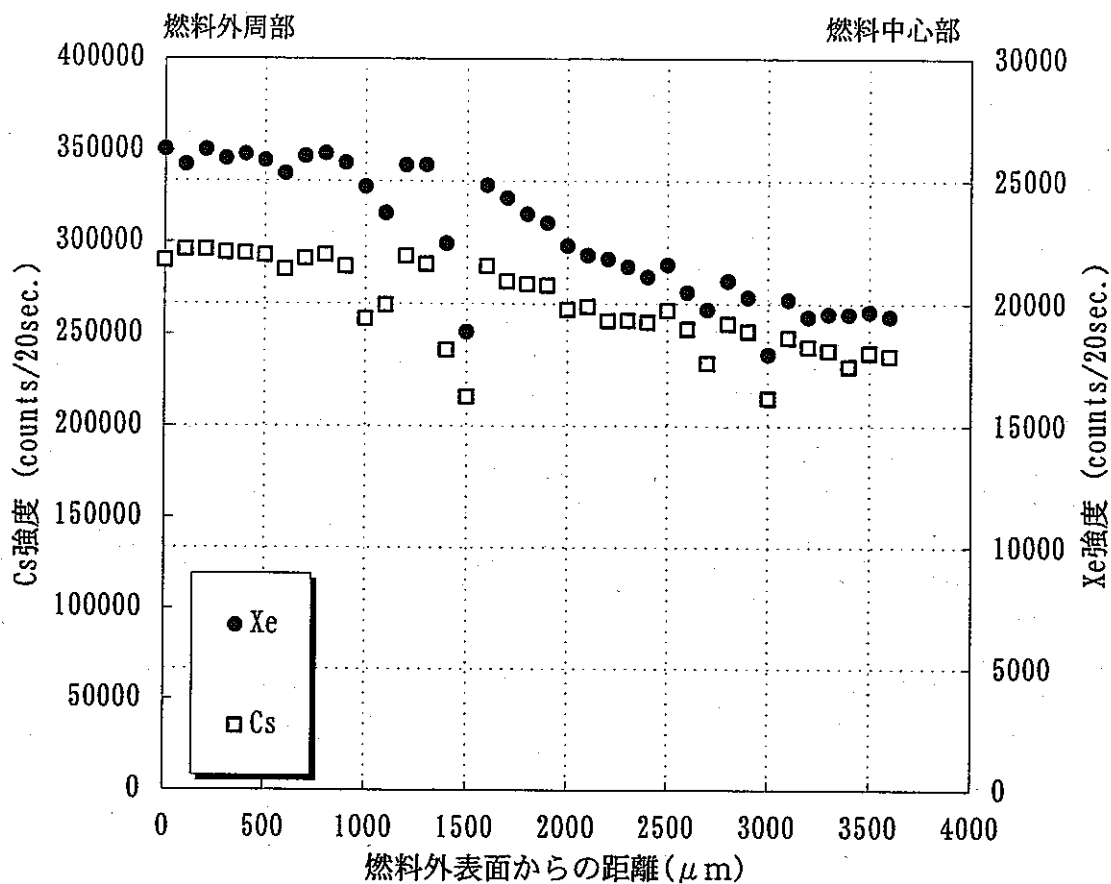


(a) L-1

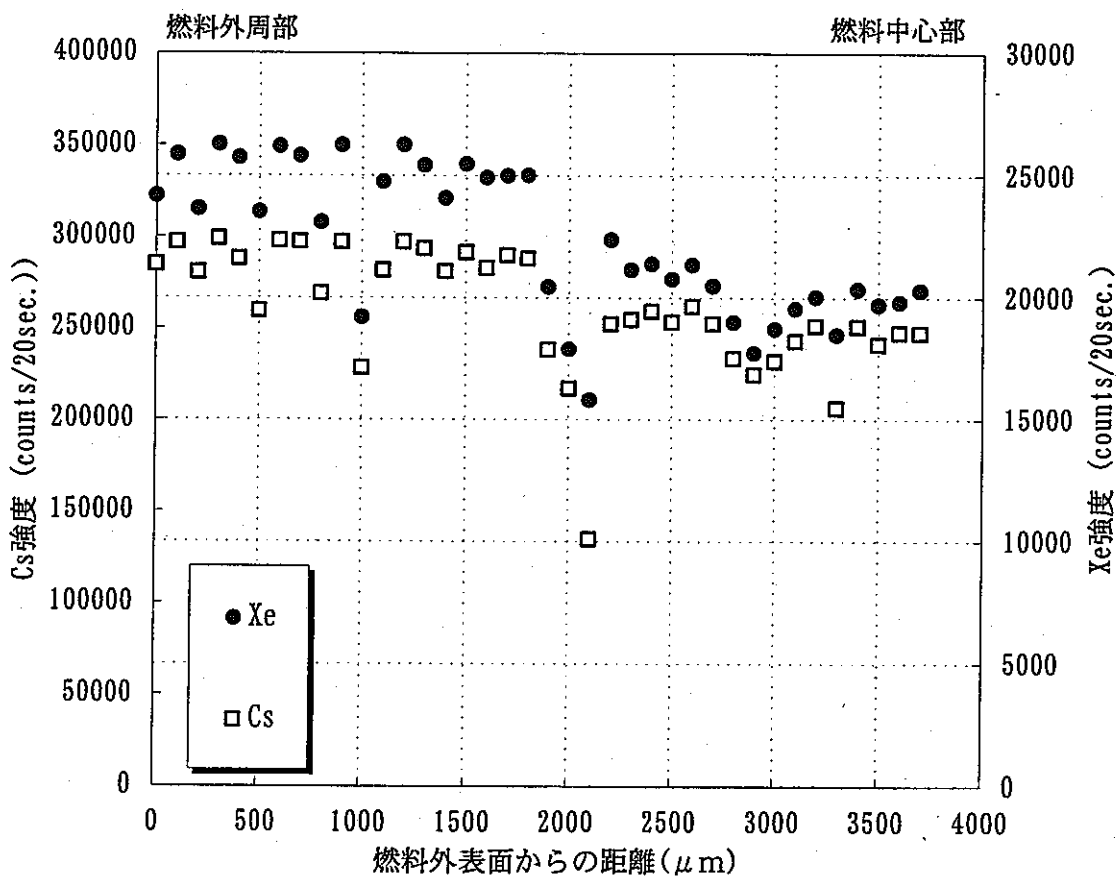


(b) L-2

図3.28 Xe, Csの径方向分布 (L41423)

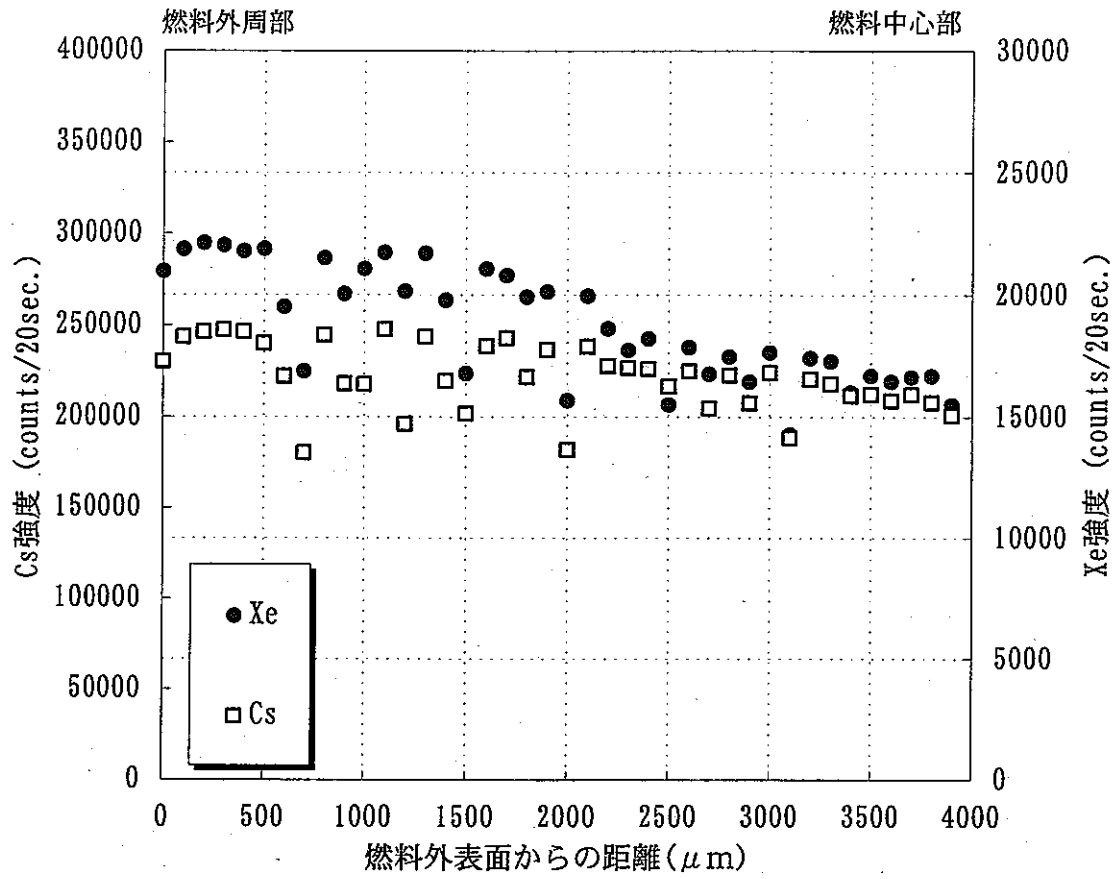


(a) L-1

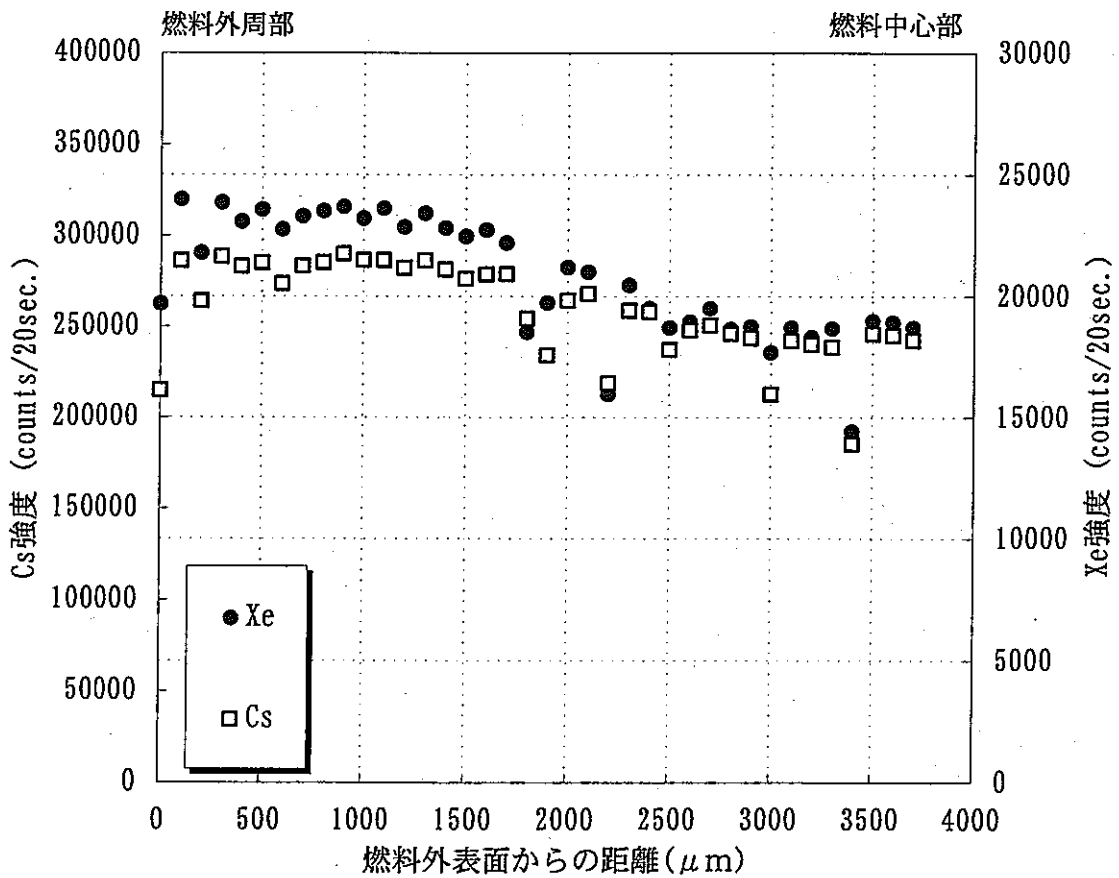


(b) L-2

図3.29 Xe, Csの径方向分布 (L41441)

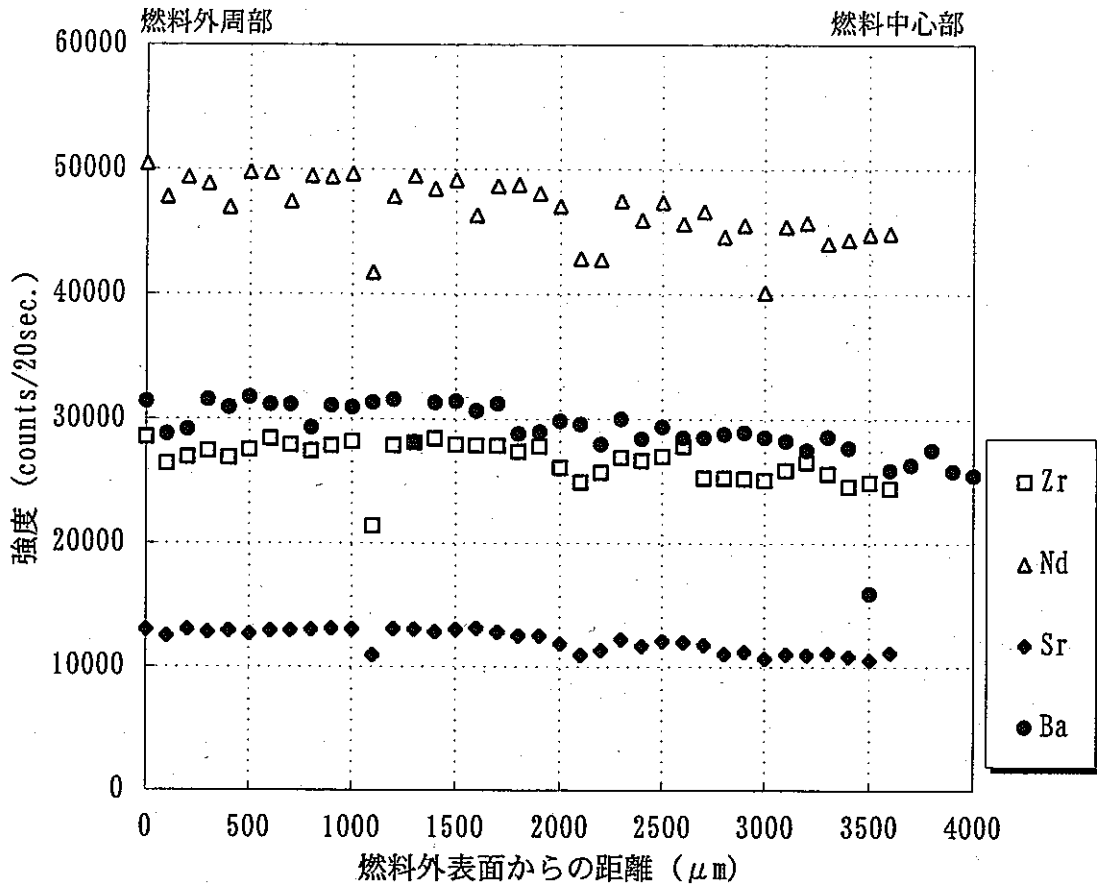


(a) L-1

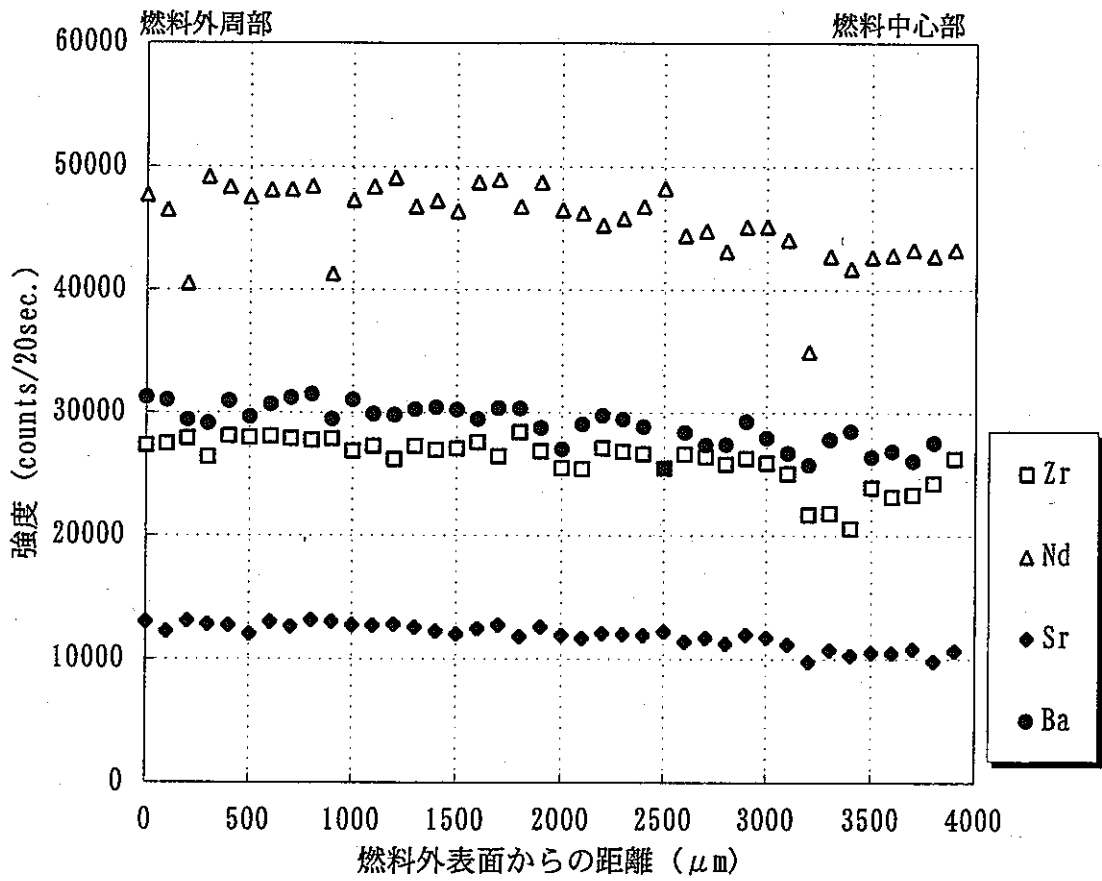


(b) L-2

図3.30 Xe, Csの径方向分布 (L41452)

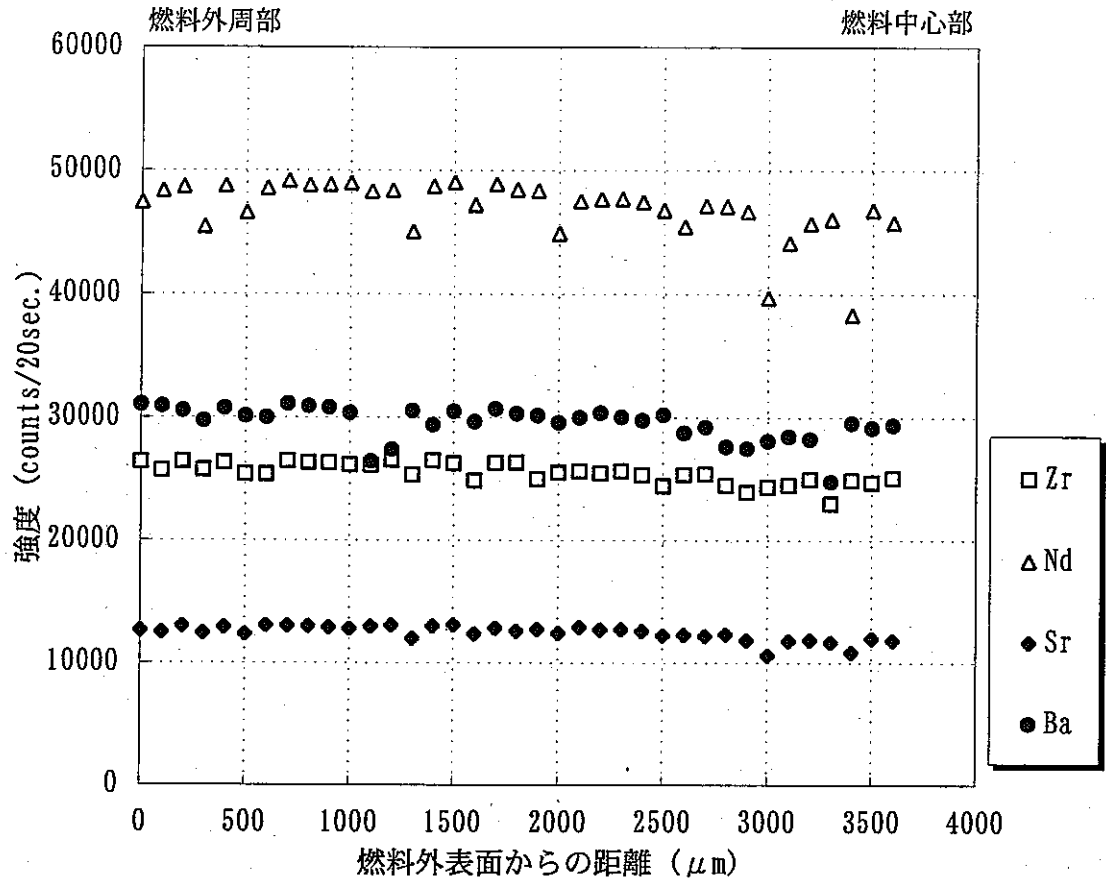


(a) L-1

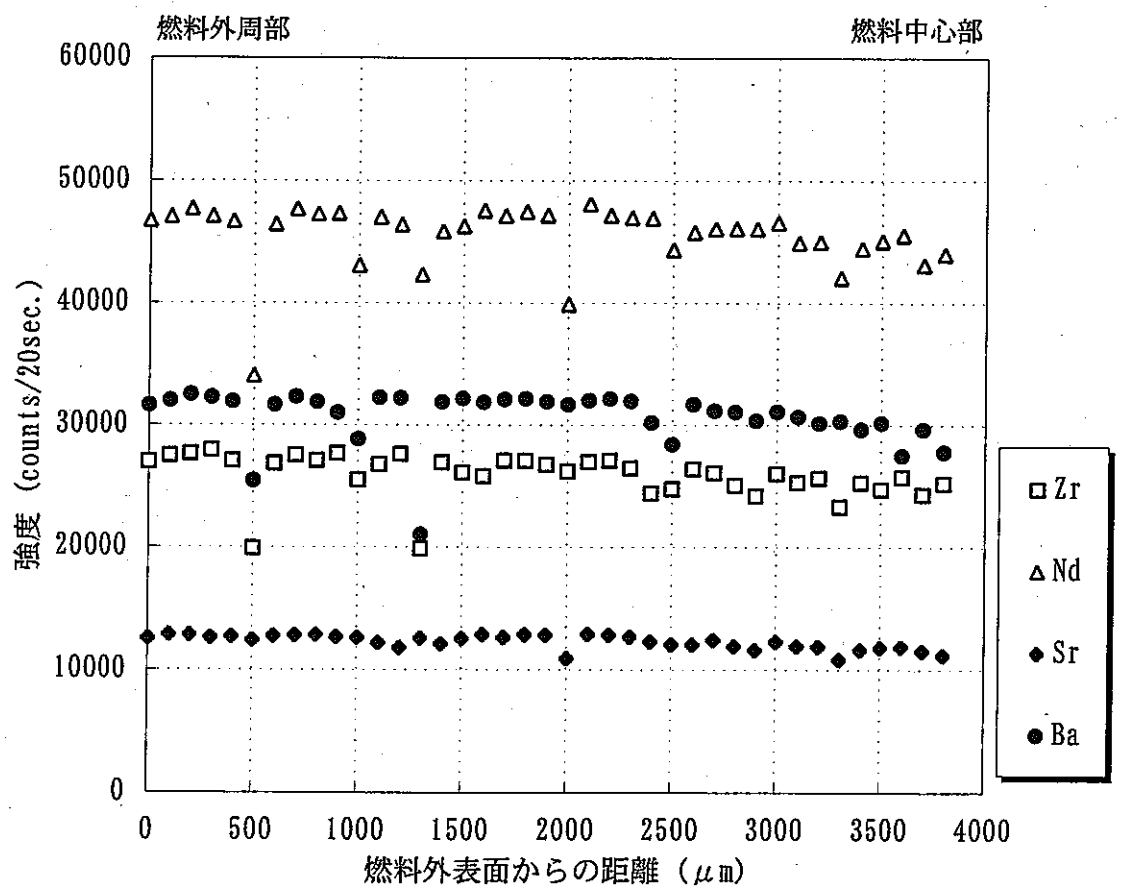


(b) L-2

図3.31 Zr, Nd, Sr, Baの径方向分布 (L41332)

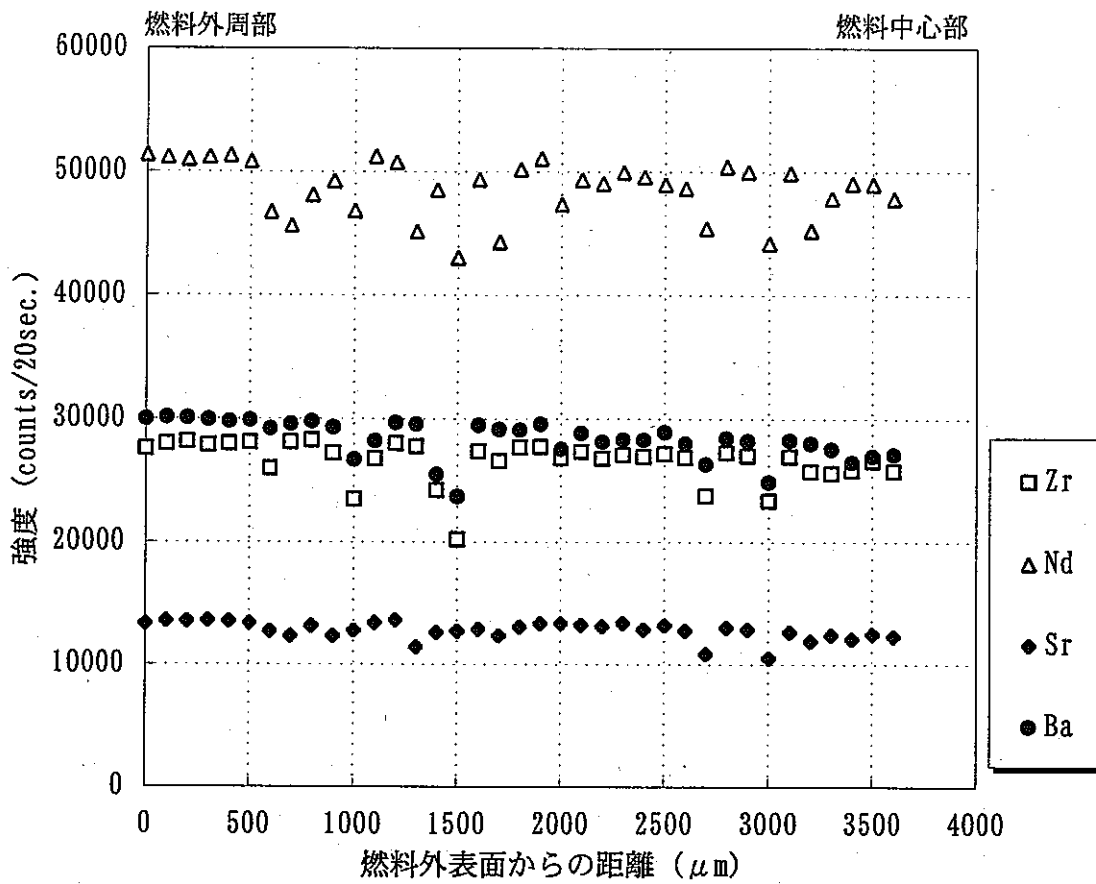


(a) L-1

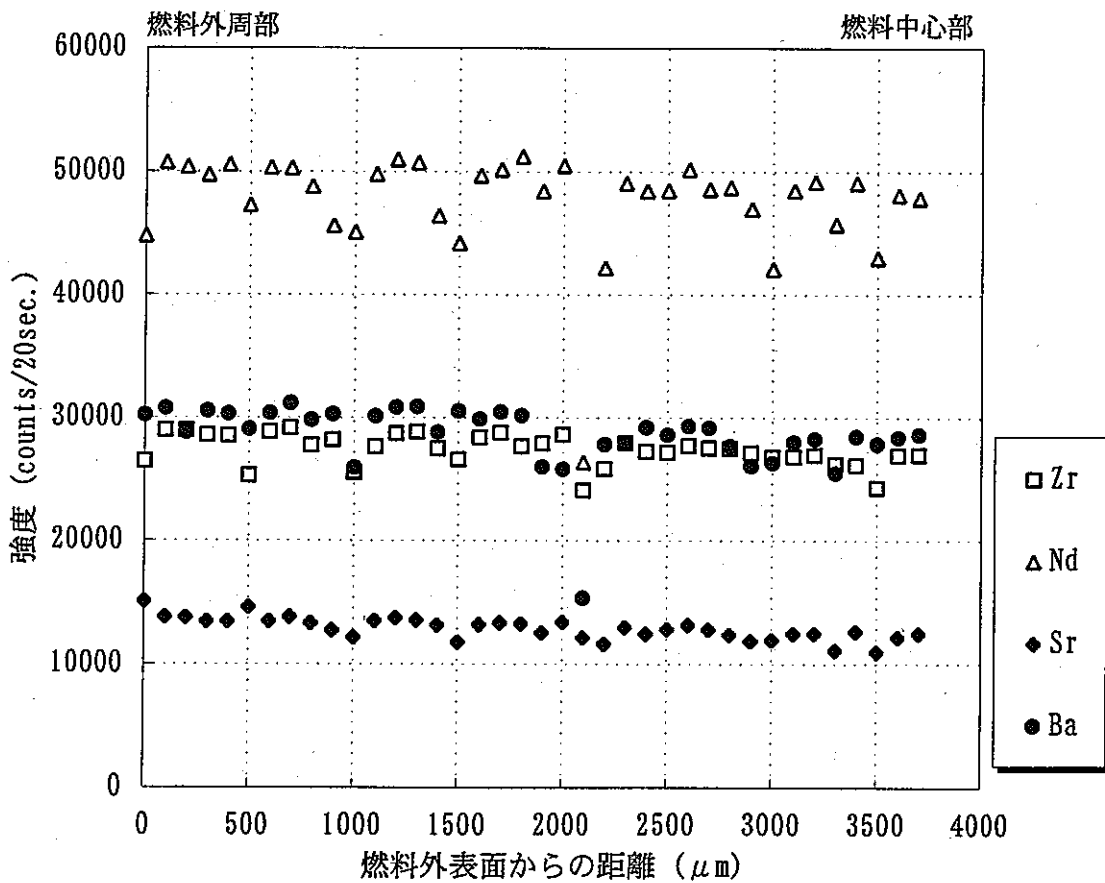


(b) L-2

図3.32 Zr, Nd, Sr, Baの径方向分布 (L41423)

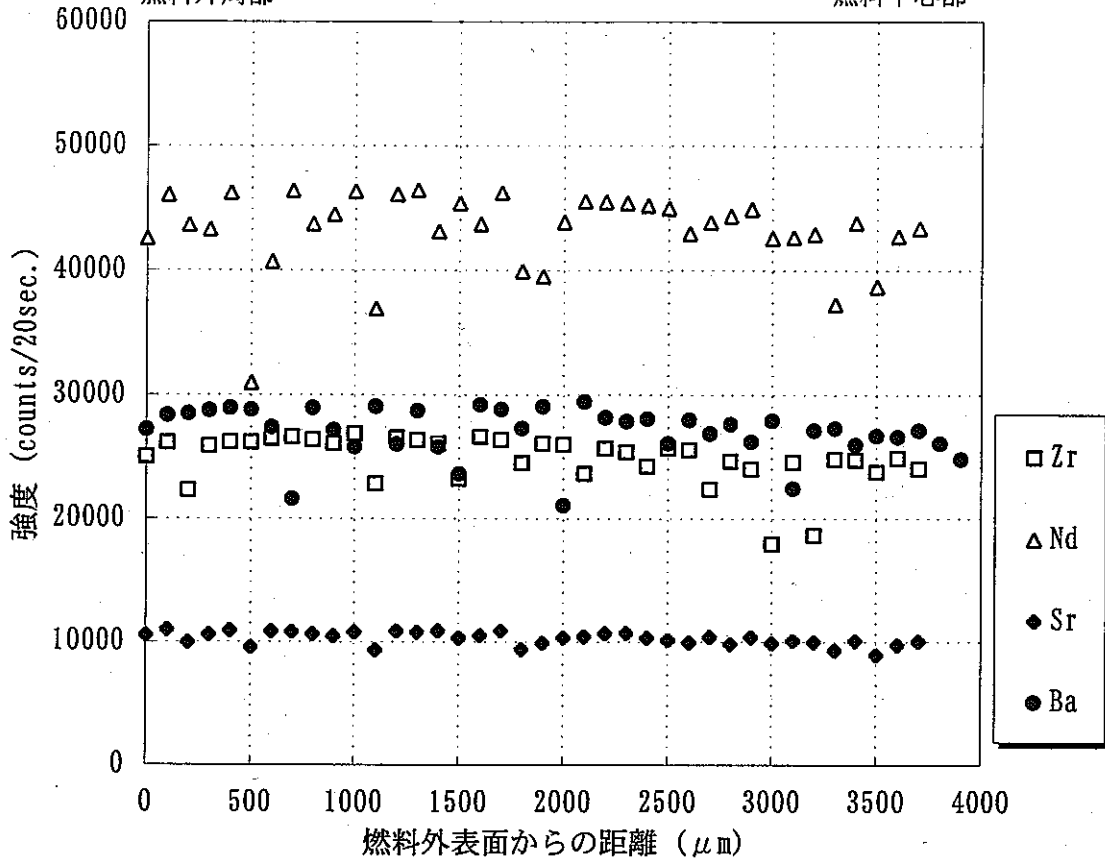


(a) L-1

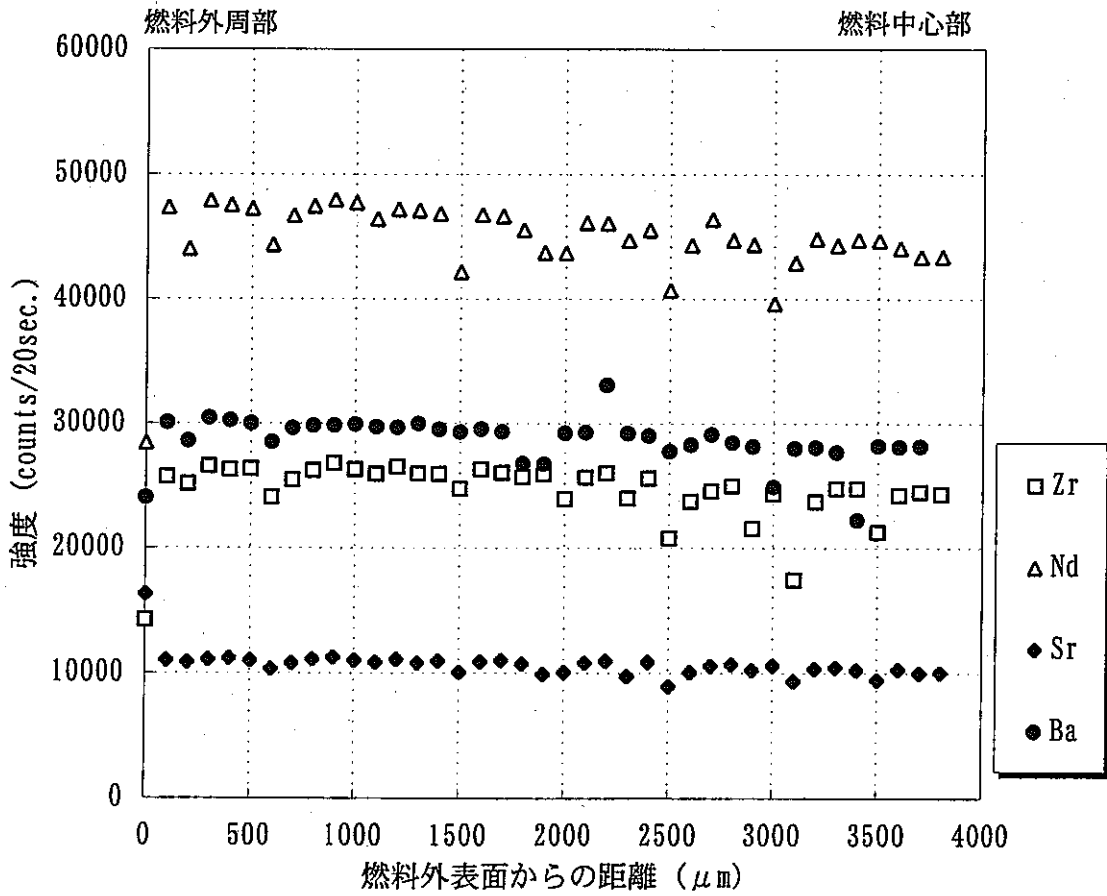


(b) L-2

図3.33 Zr, Nd, Sr, Baの径方向分布 (L41441)



(a) L-1



(b) L-2

図3.34 Zr, Nd, Sr, Baの径方向分布 (L41452)

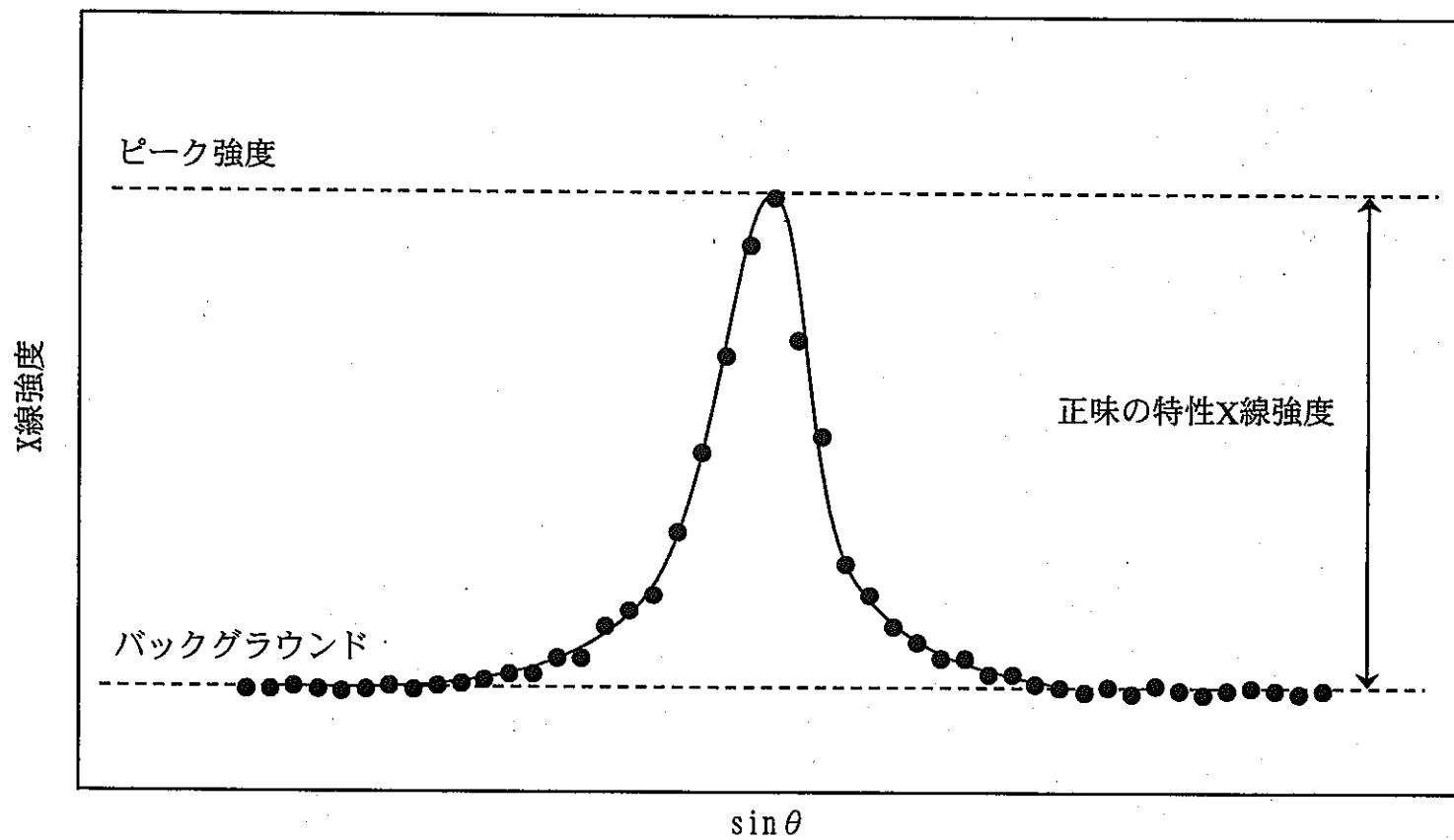


図3.35 正味の特性X線強度の求め方

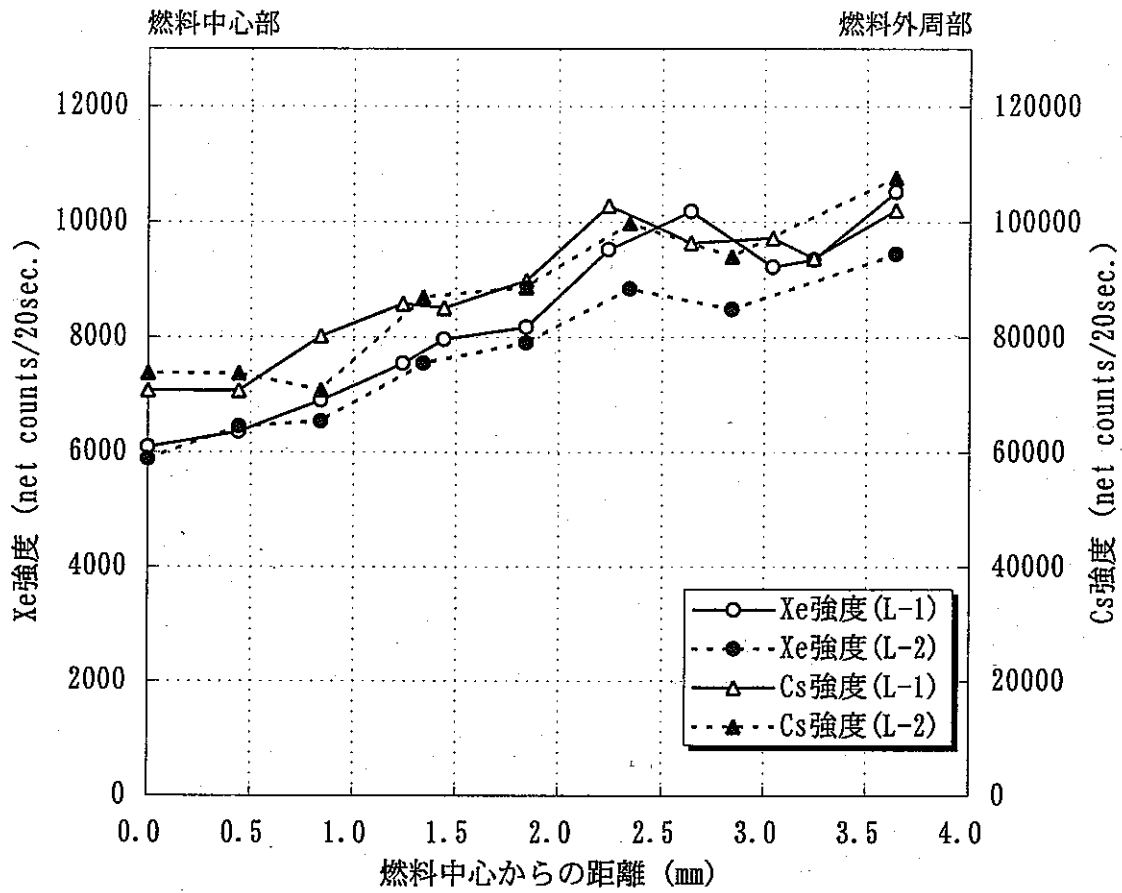


図3.36 Xe, Csの径方向強度分布 (L41332)

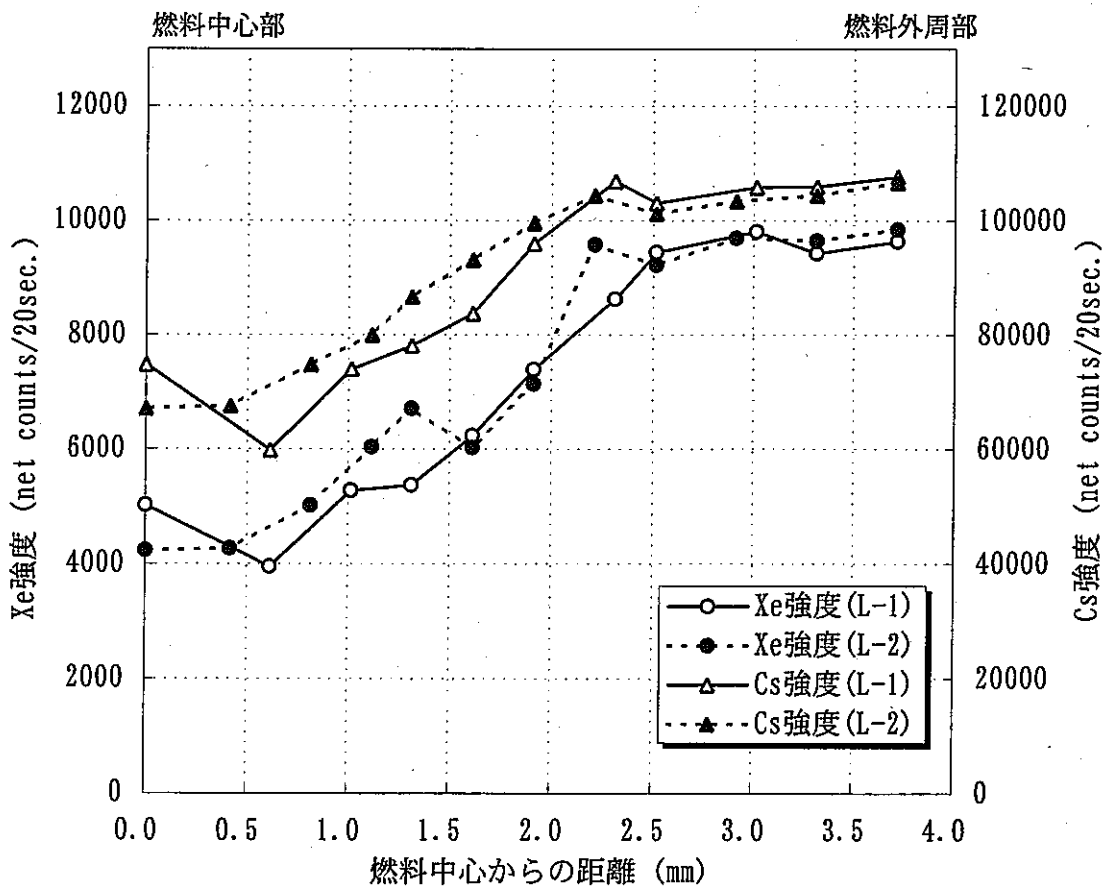


図3.37 Xe, Csの径方向強度分布 (L41423)

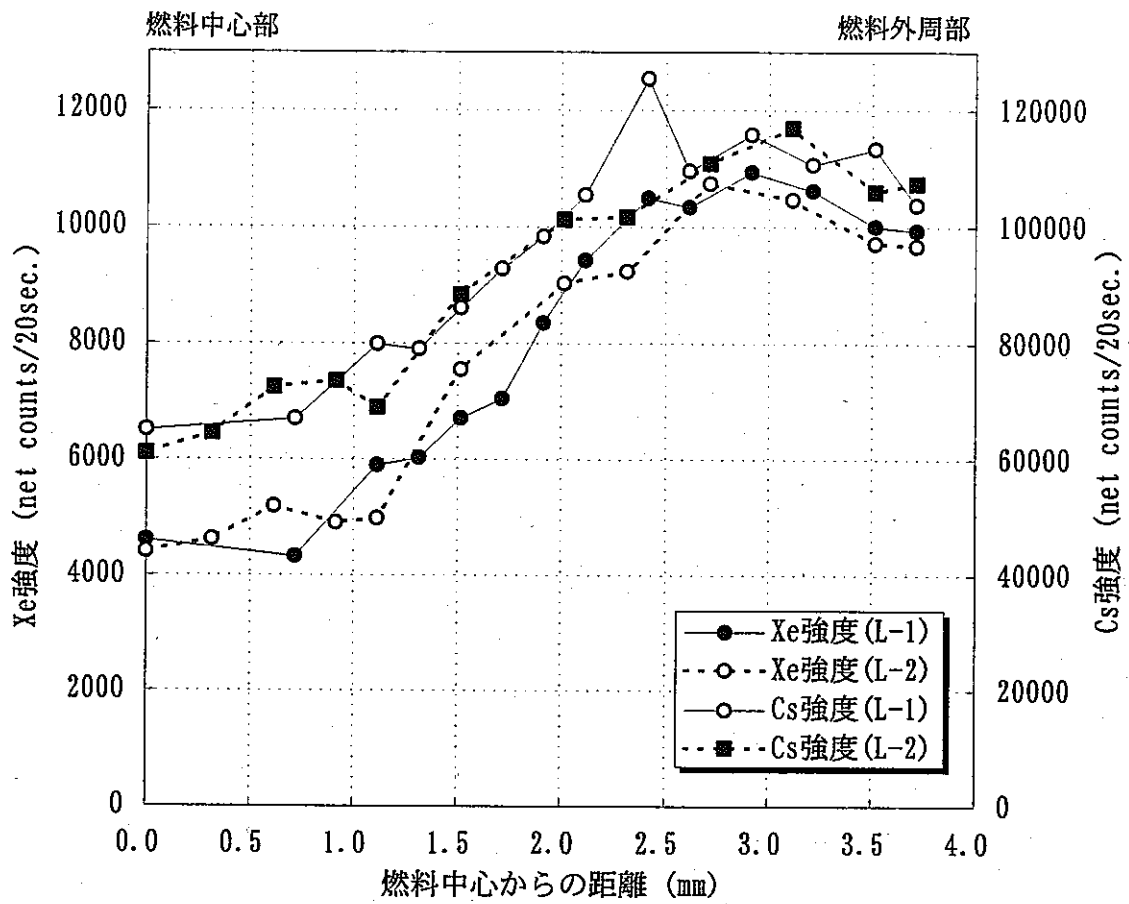


図3.38 Xe, Csの径方向強度分布 (L41441)

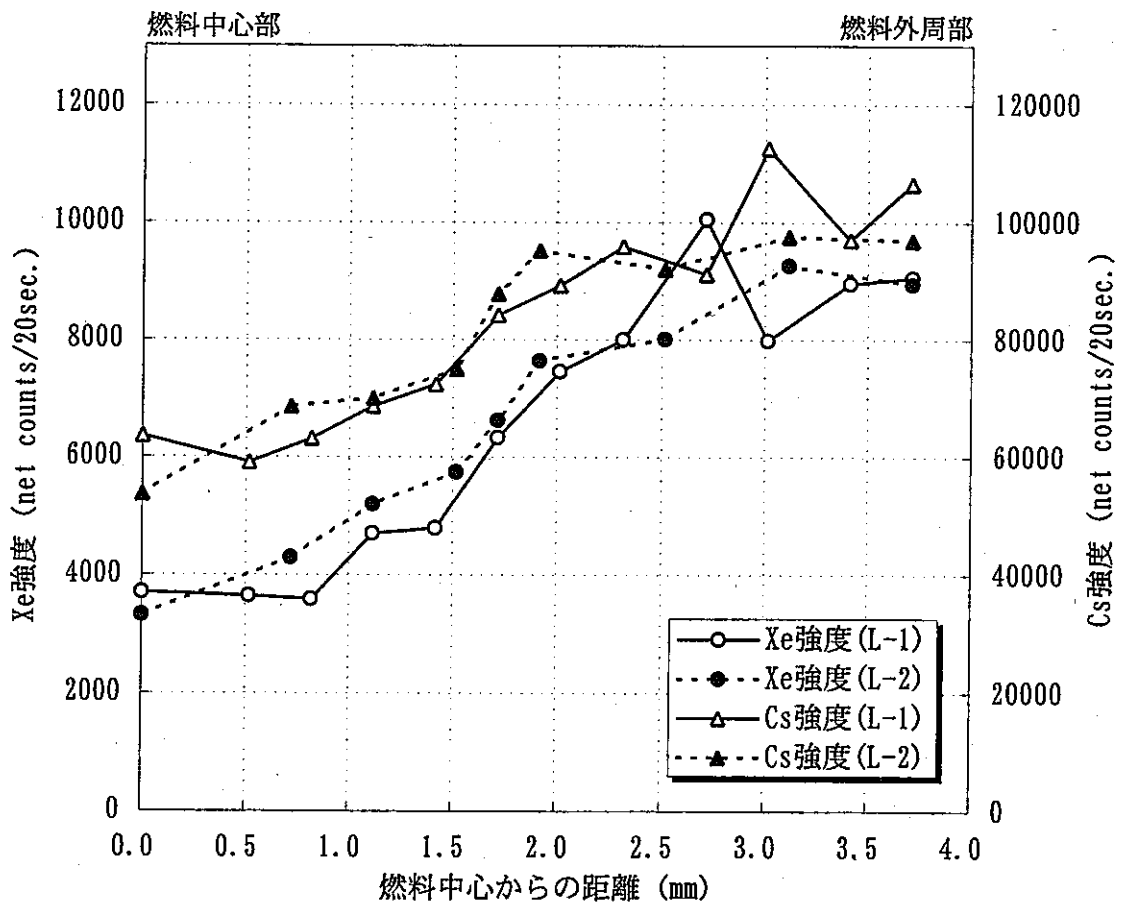


図3.39 Xe, Csの径方向強度分布 (L41452)

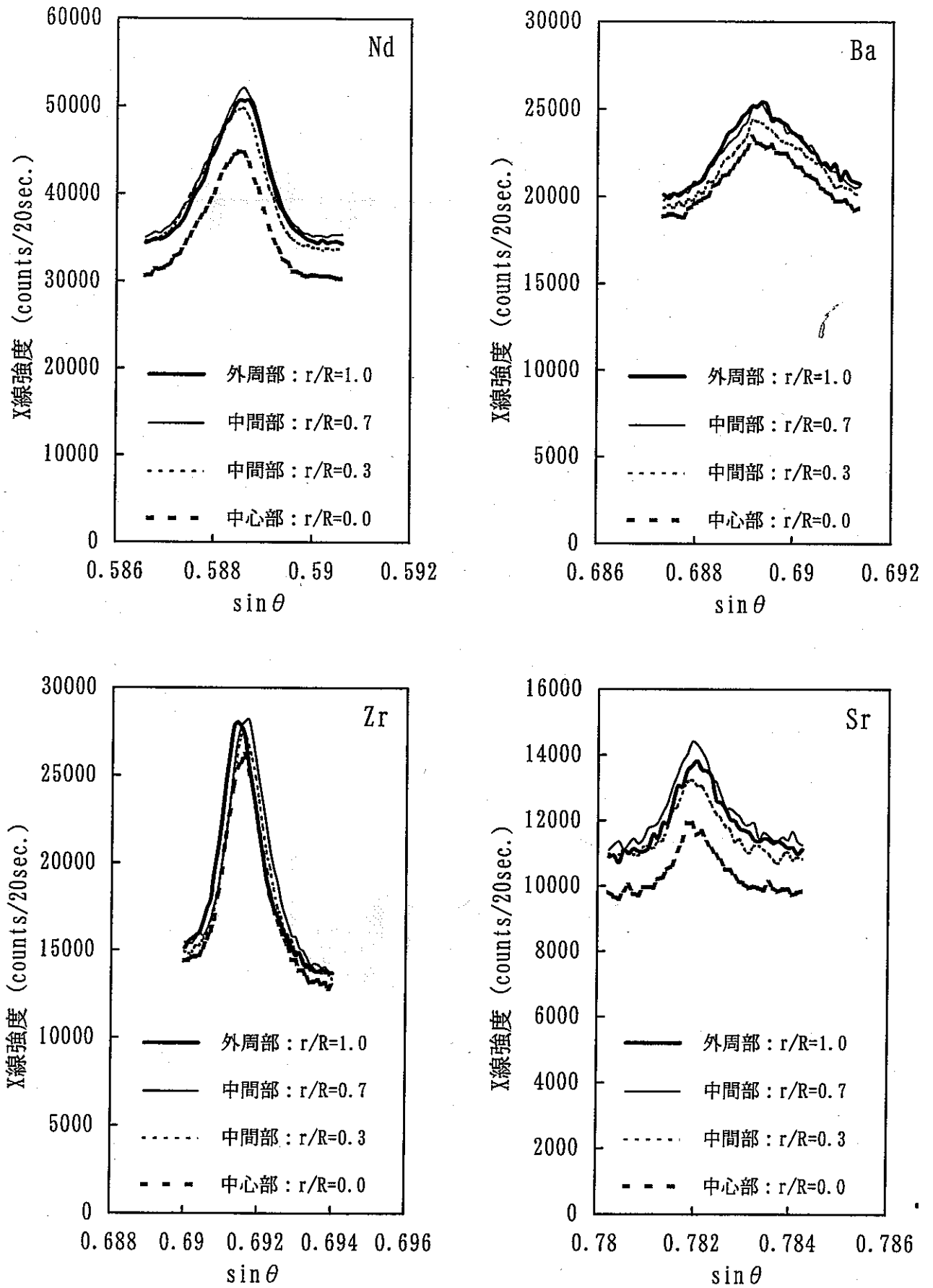
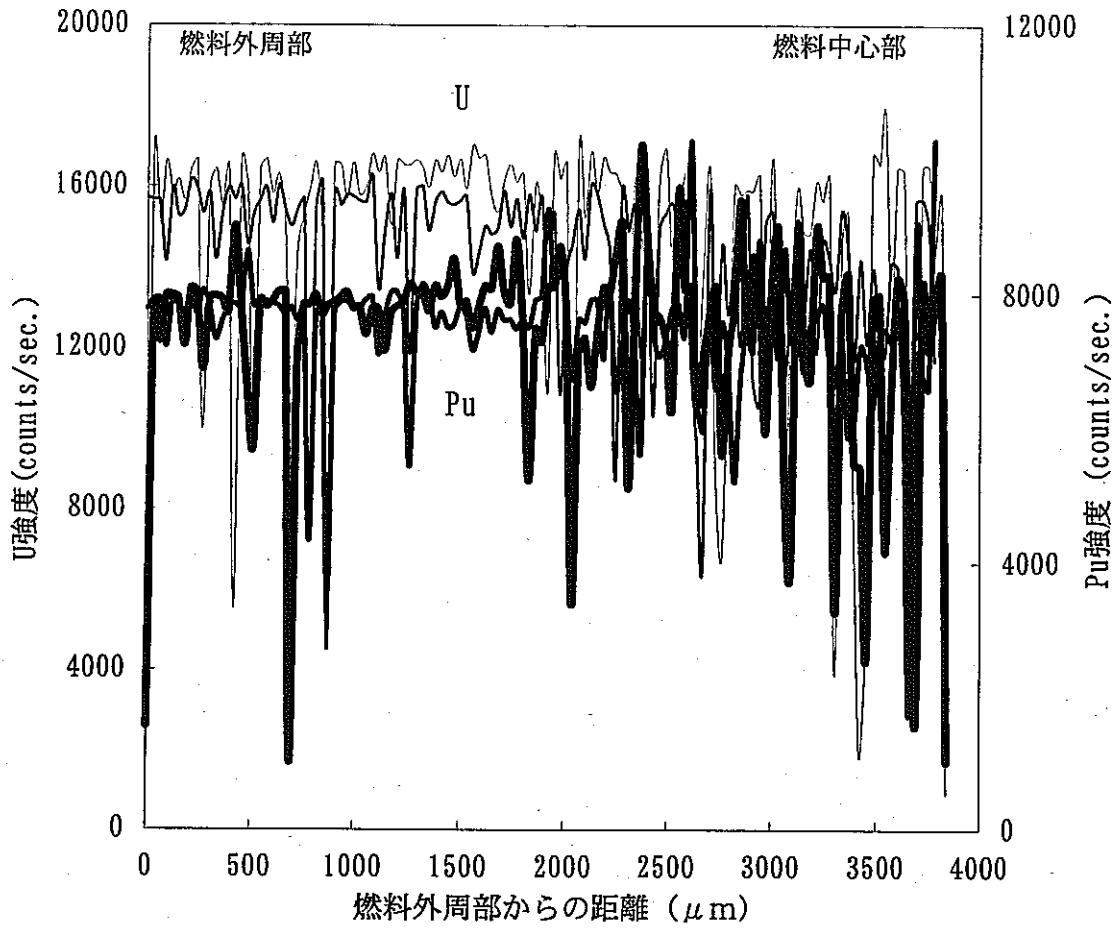
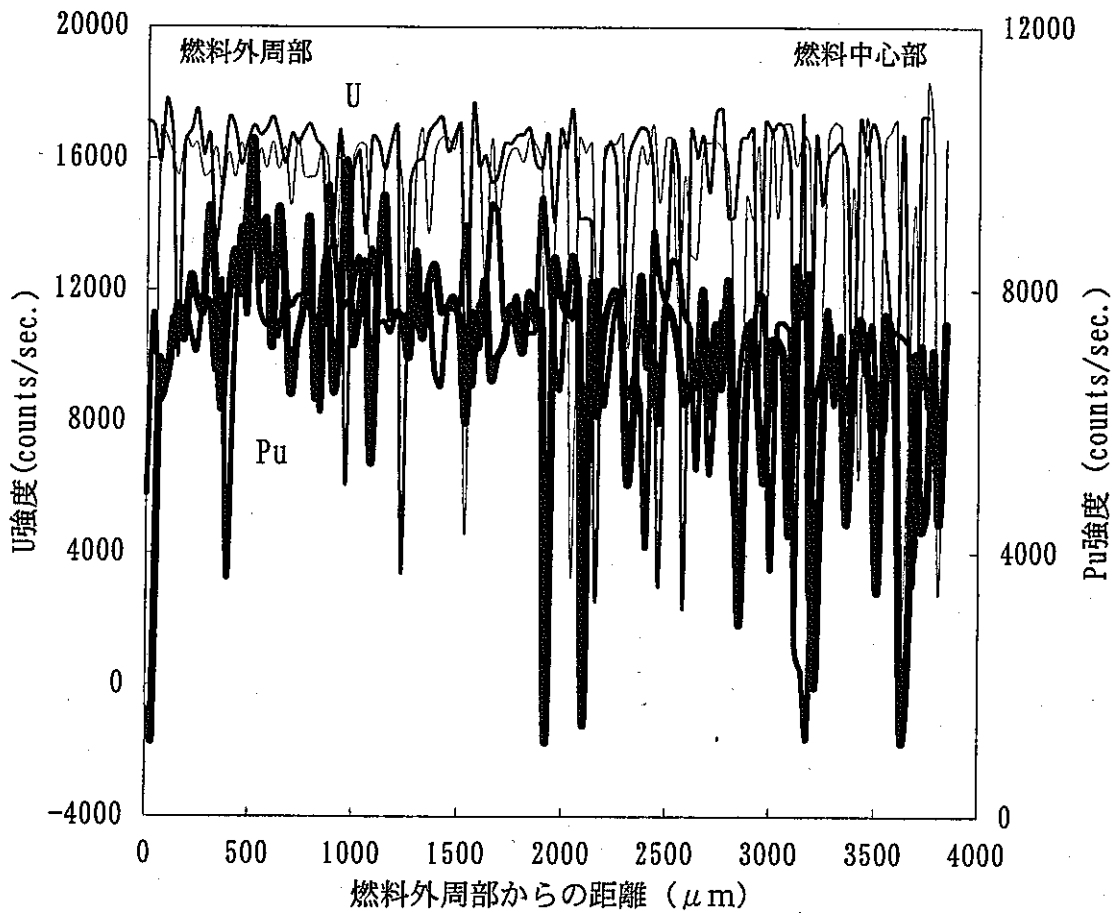


図3.40 Nd, Ba, Zr, Srの特性X線測定結果

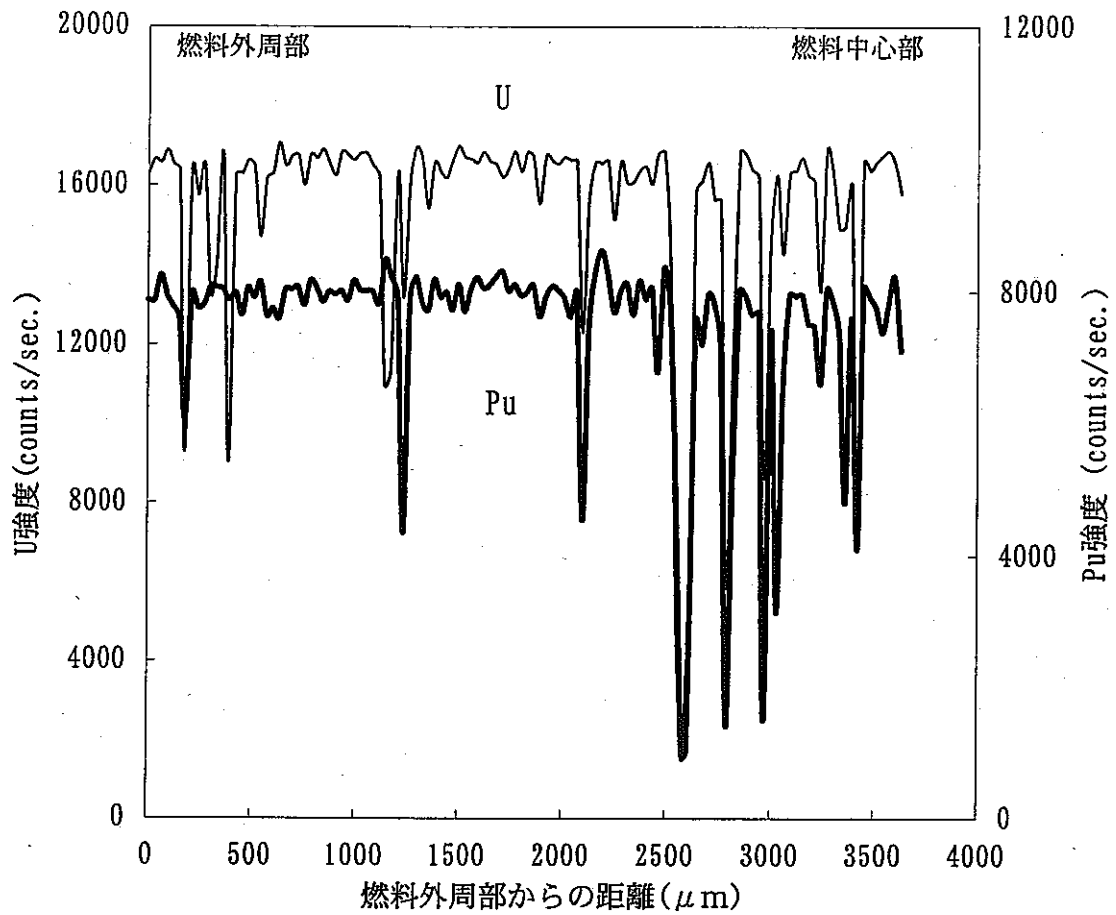


(a) L-1

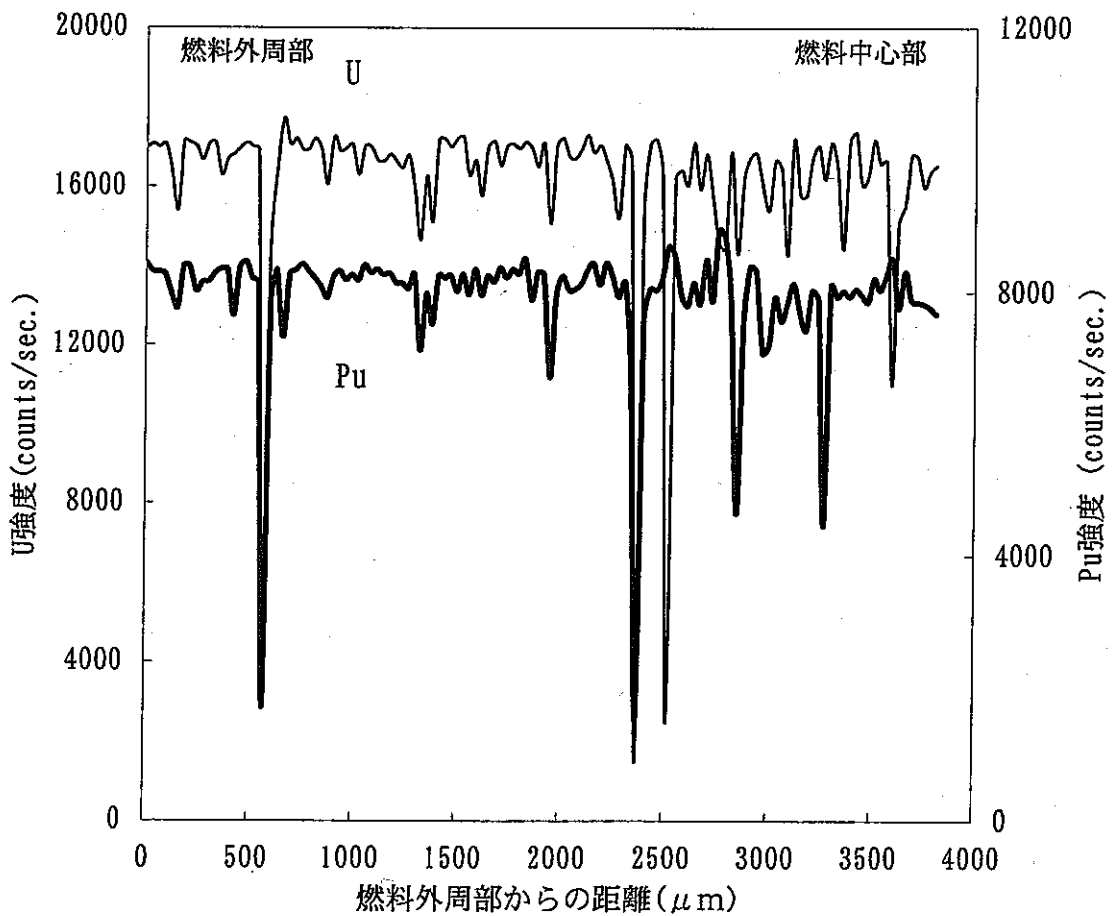


(b) L-2

図3.41 U, Puの径方向分布 (L41332)

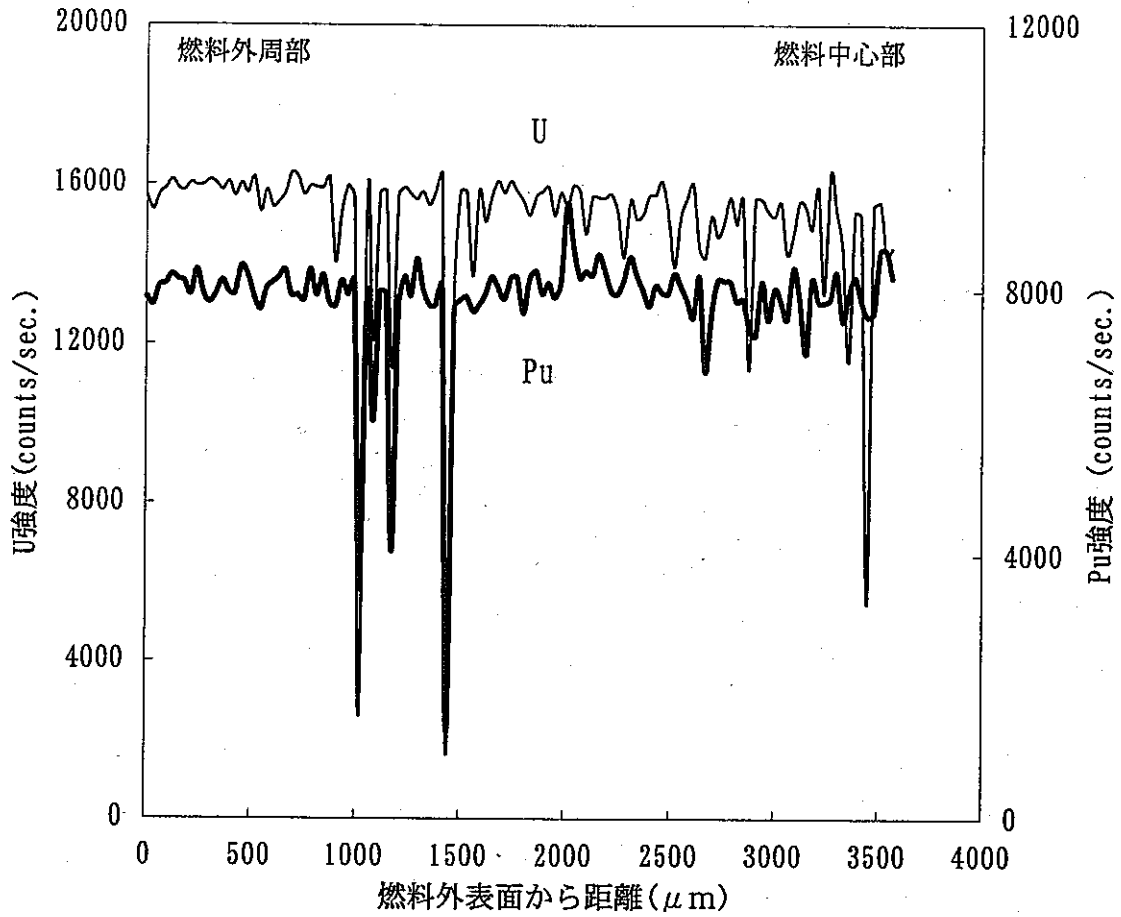


(a) L-1

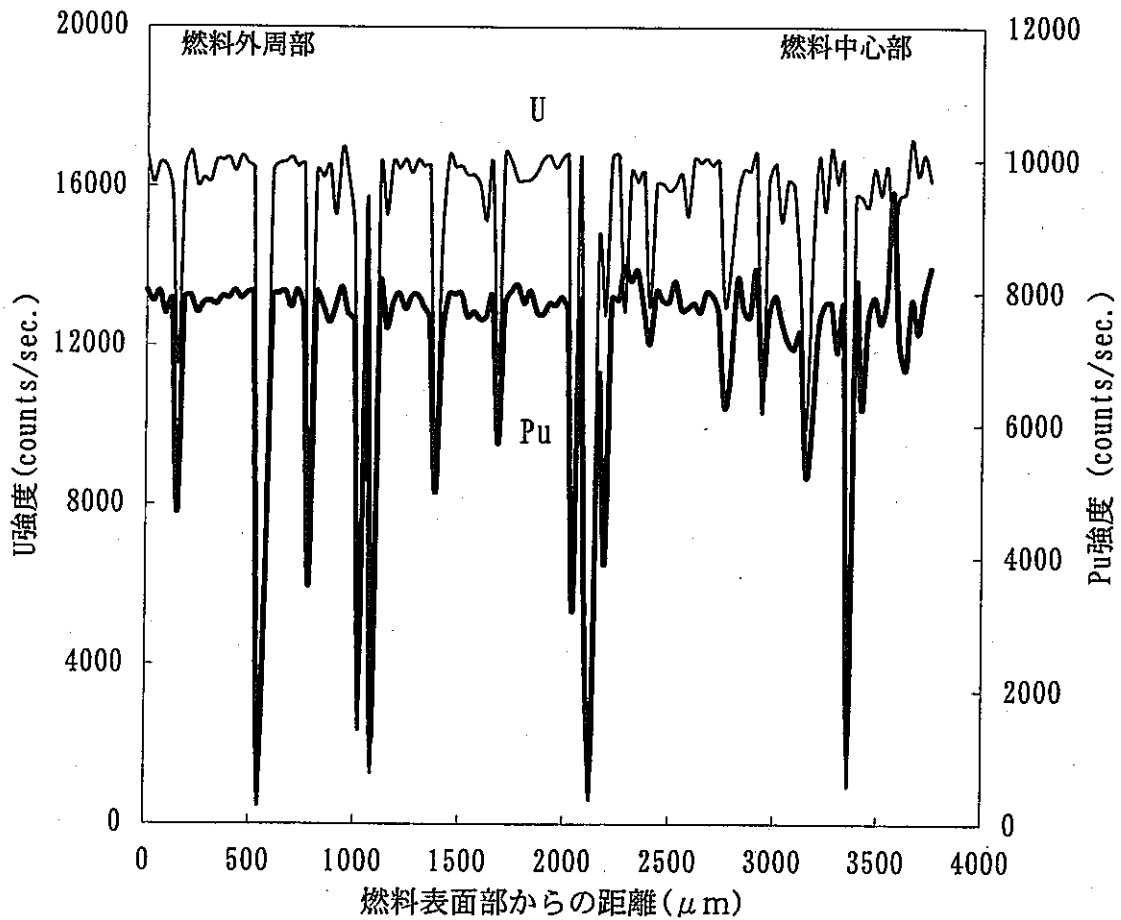


(b) L-2

図3.42 U, Puの径方向分布 (L41423)

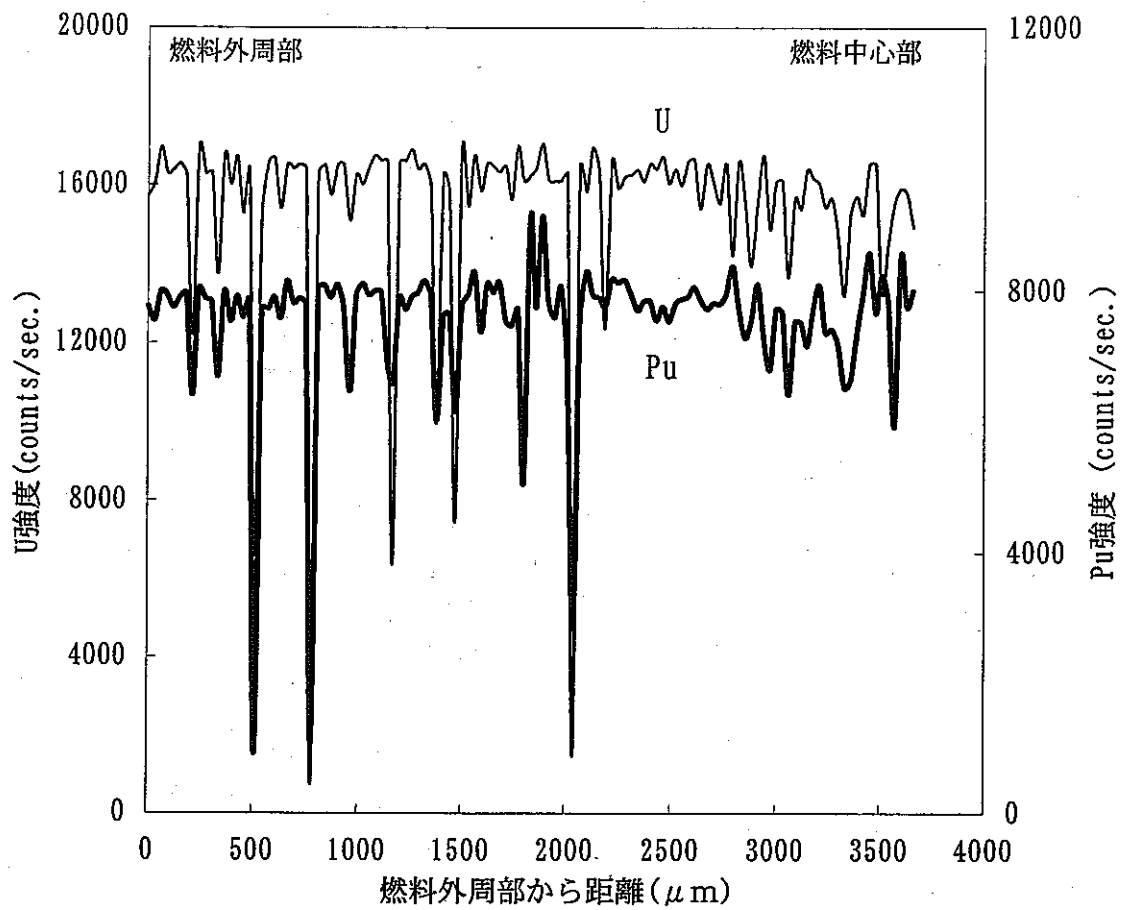


(a) L-1

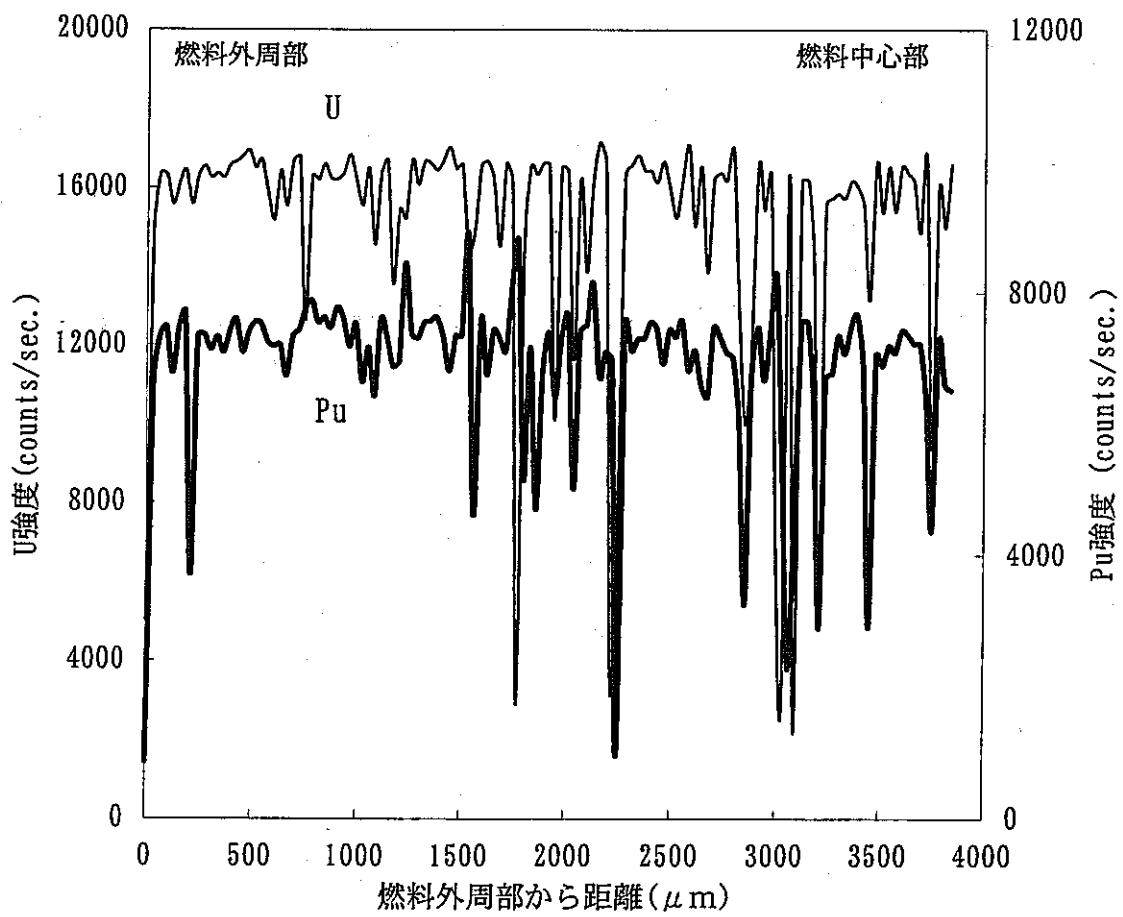


(b) L-2

図3.43 U, Puの径方向分布 (L41441)

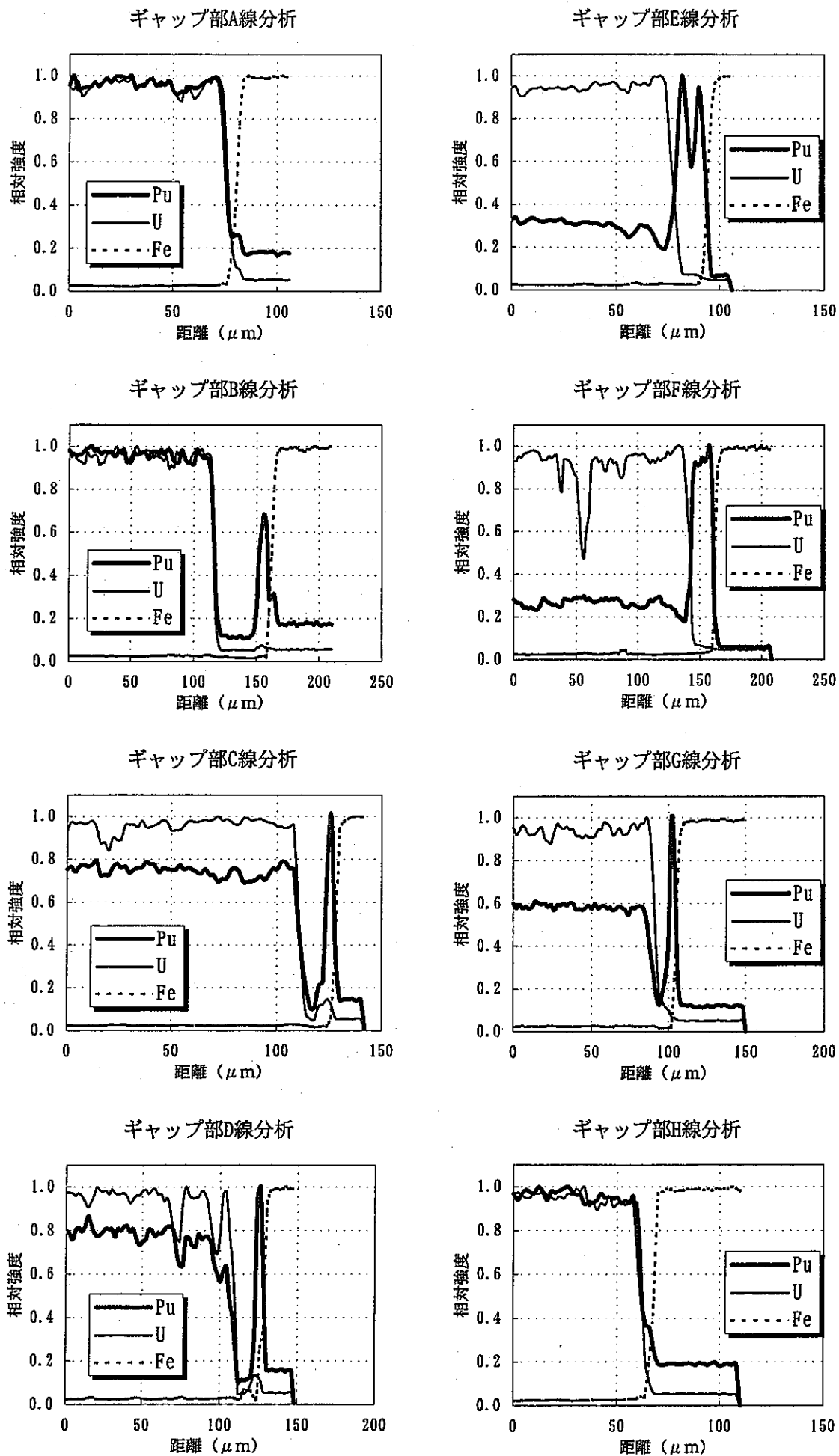


(a) L-1



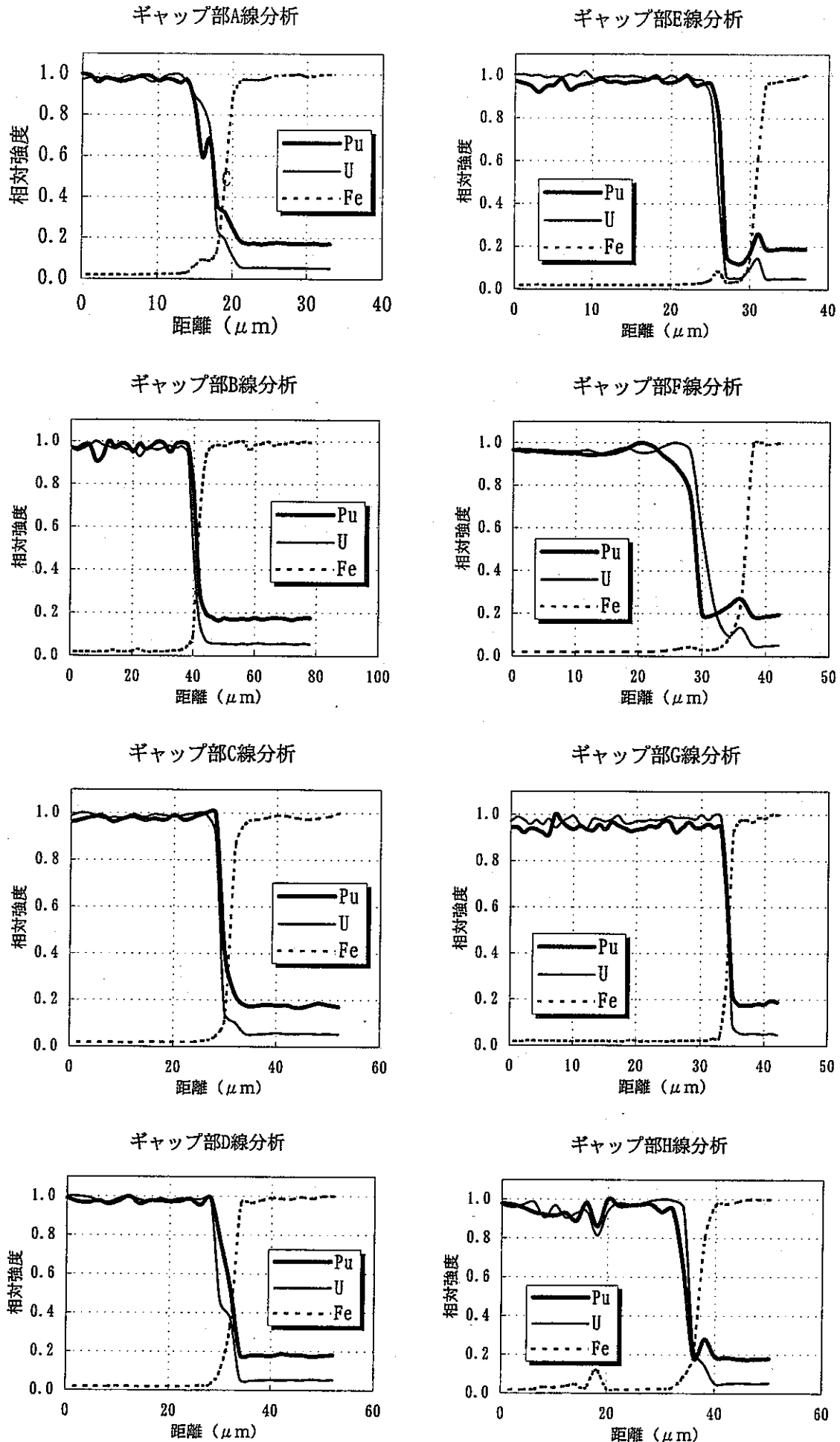
(b) L-2

図3.44 U, Puの径方向分布 (L41452)



※縦軸の「相対強度」はそれぞれの元素についてのピーク強度で規格化した値

図3.45 ギャップ部の線分析結果 (L41332)



※縦軸の「相対強度」はそれぞれの元素についてのピーク強度で規格化した値

図3.46 ギャップ部の線分析結果 (L41441)

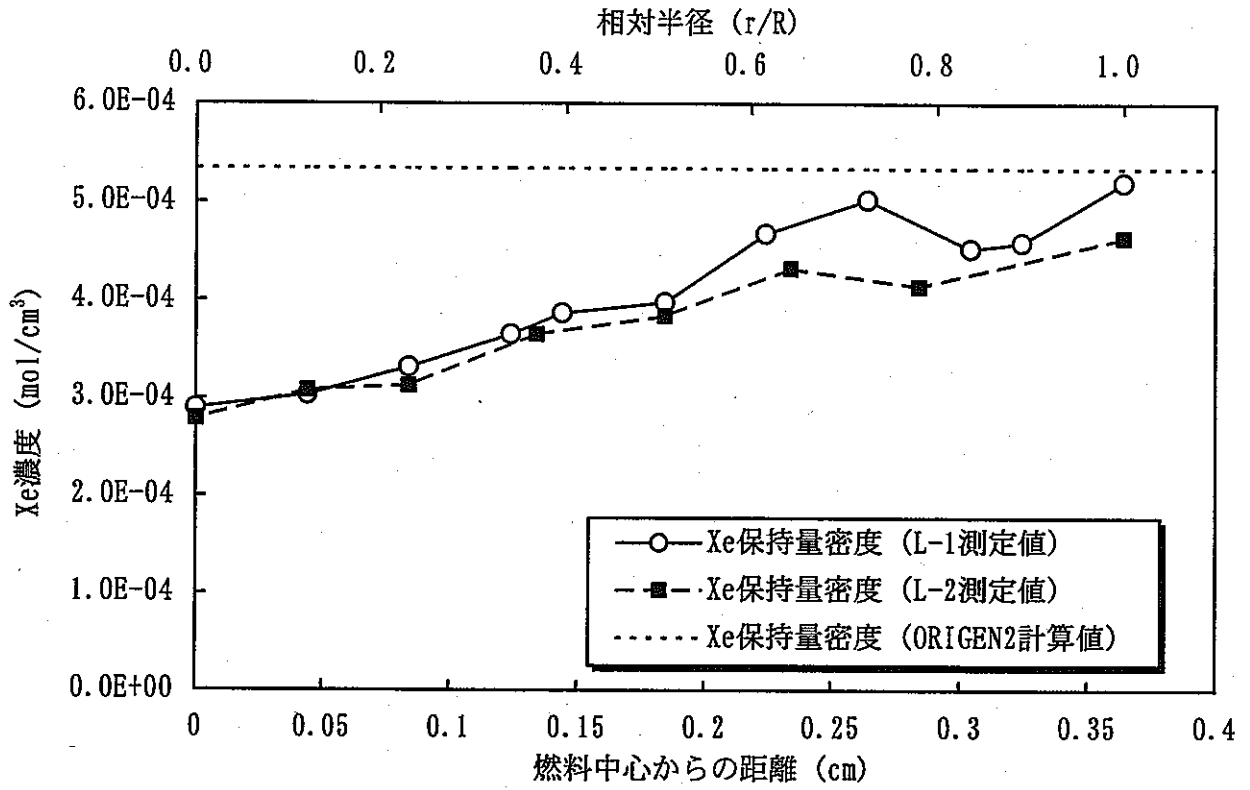


図3.47 径方向Xe濃度分布 (L41332)

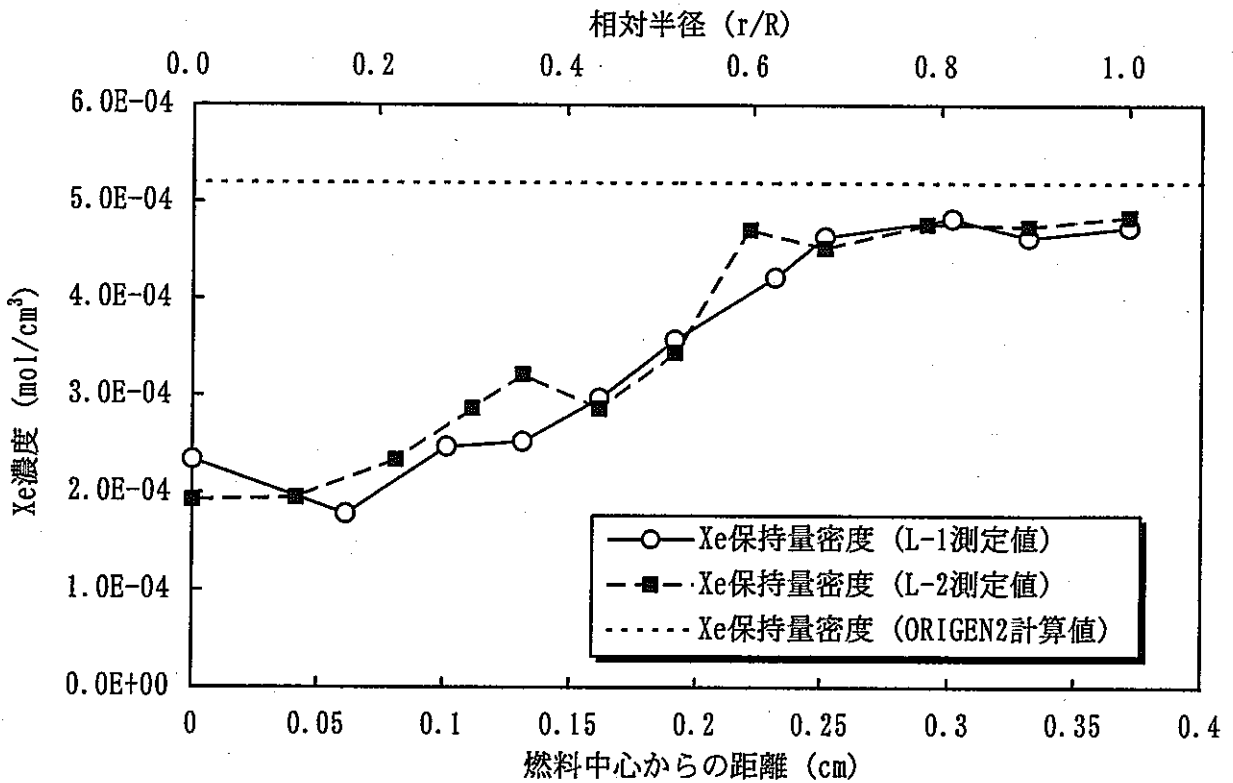


図3.48 径方向Xe濃度分布 (L41423)

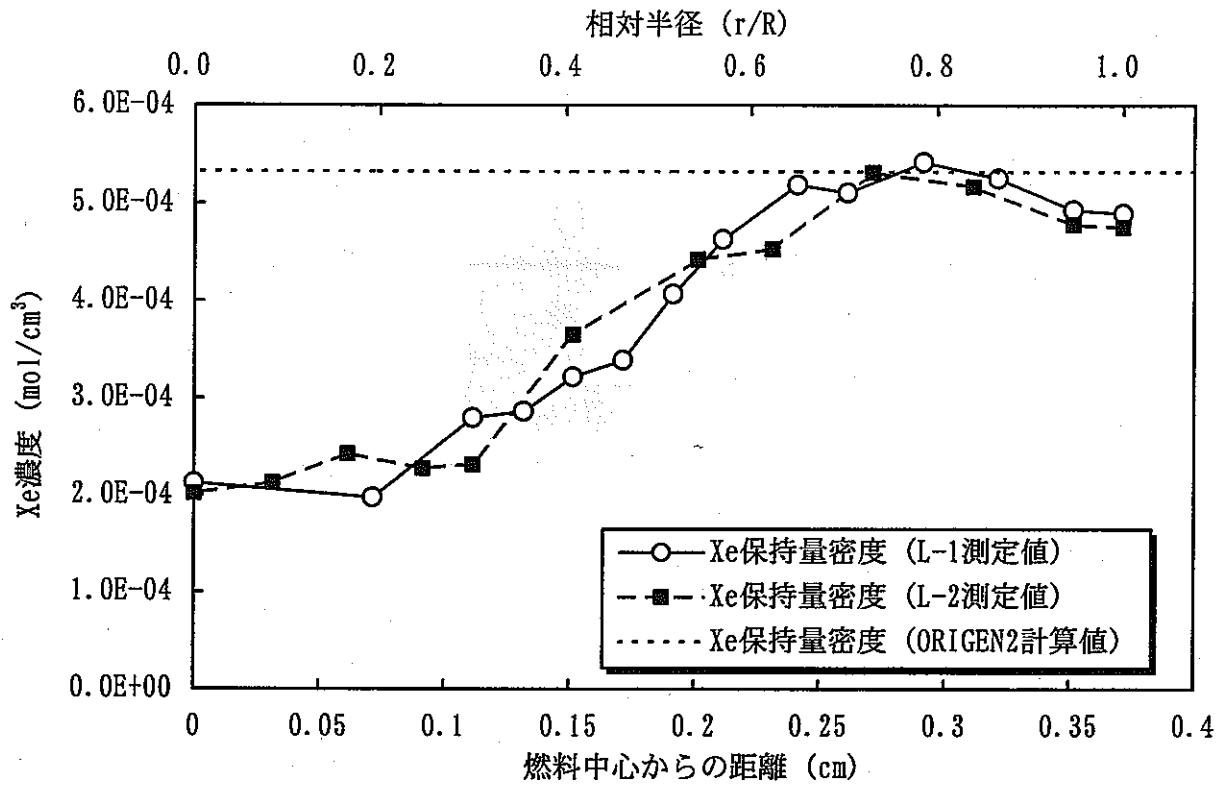


図3.49 径方向Xe濃度分布 (L41441)

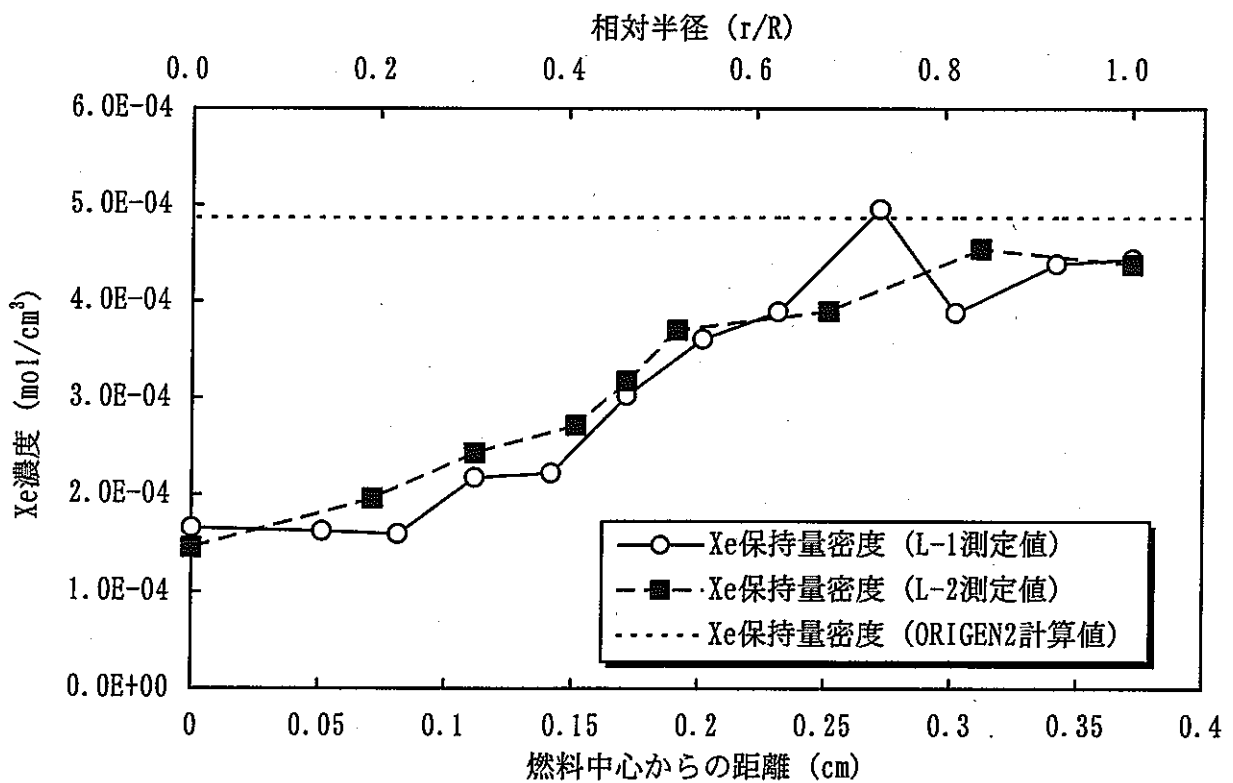


図3.50 径方向Xe濃度分布 (L41452)

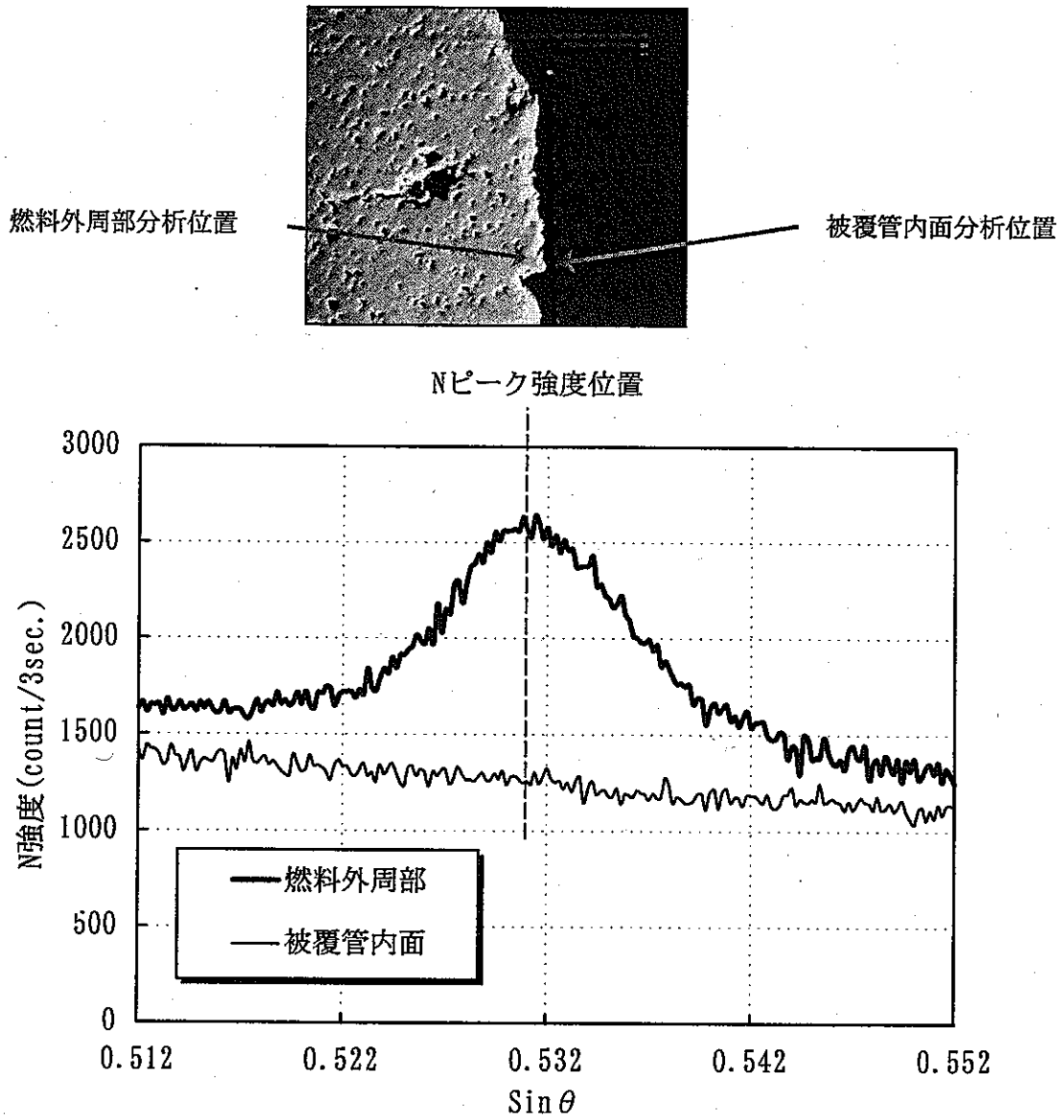


図3.51 燃料外周および被覆管内面近傍における窒素の定性分析結果 (L41441)

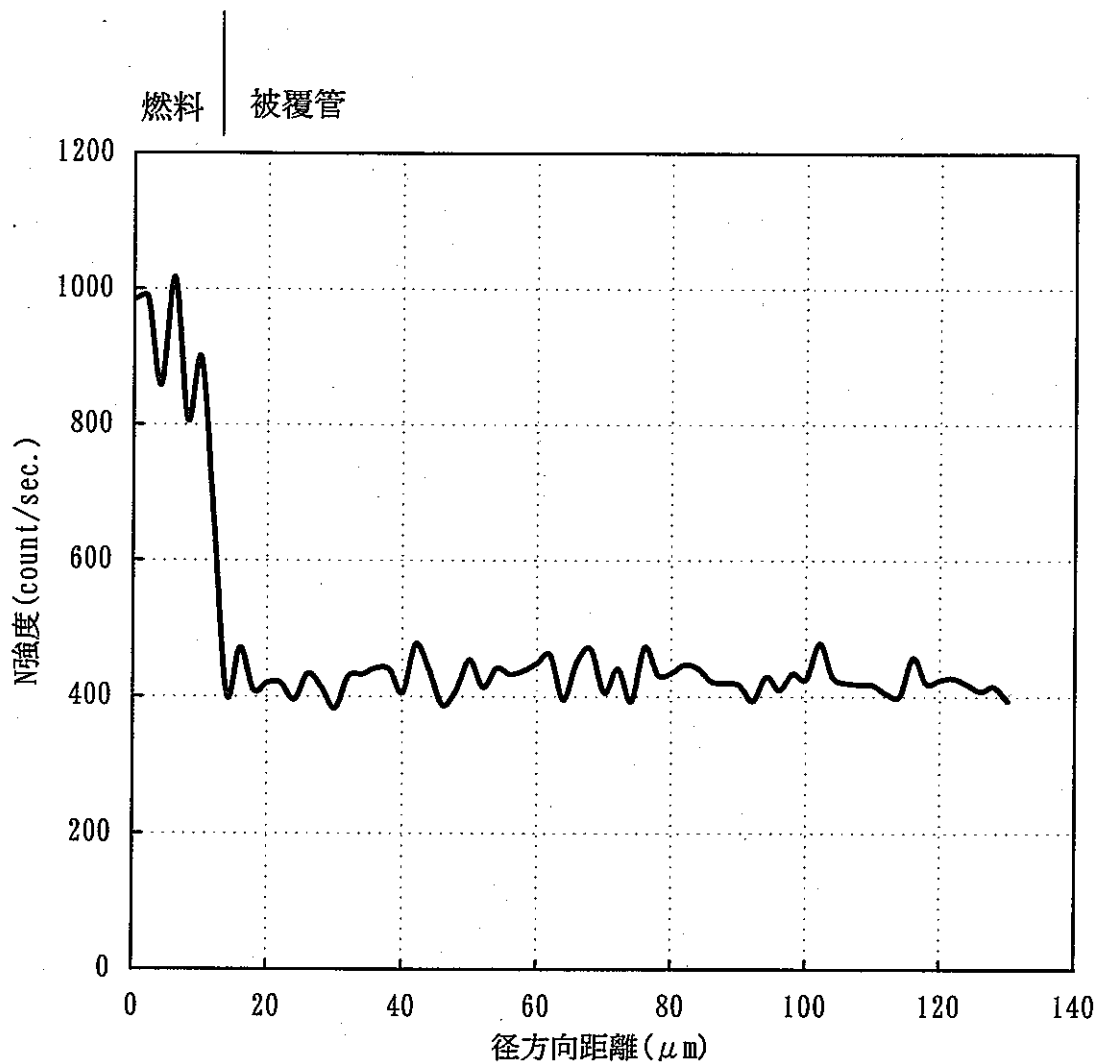
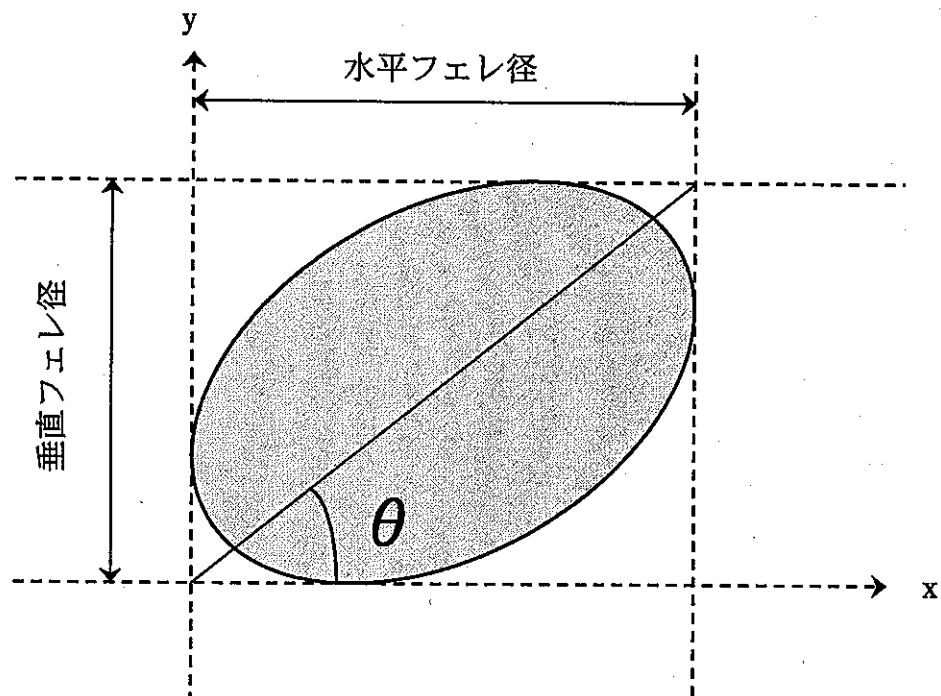


図3.52 燃料外周および被覆管内面近傍における窒素の線分析結果 (L41441)



$$\theta = \tan^{-1} \frac{\text{垂直フェレ径}}{\text{水平フェレ径}} \times \frac{180}{\pi}$$

図3.53 フェレ径比説明図

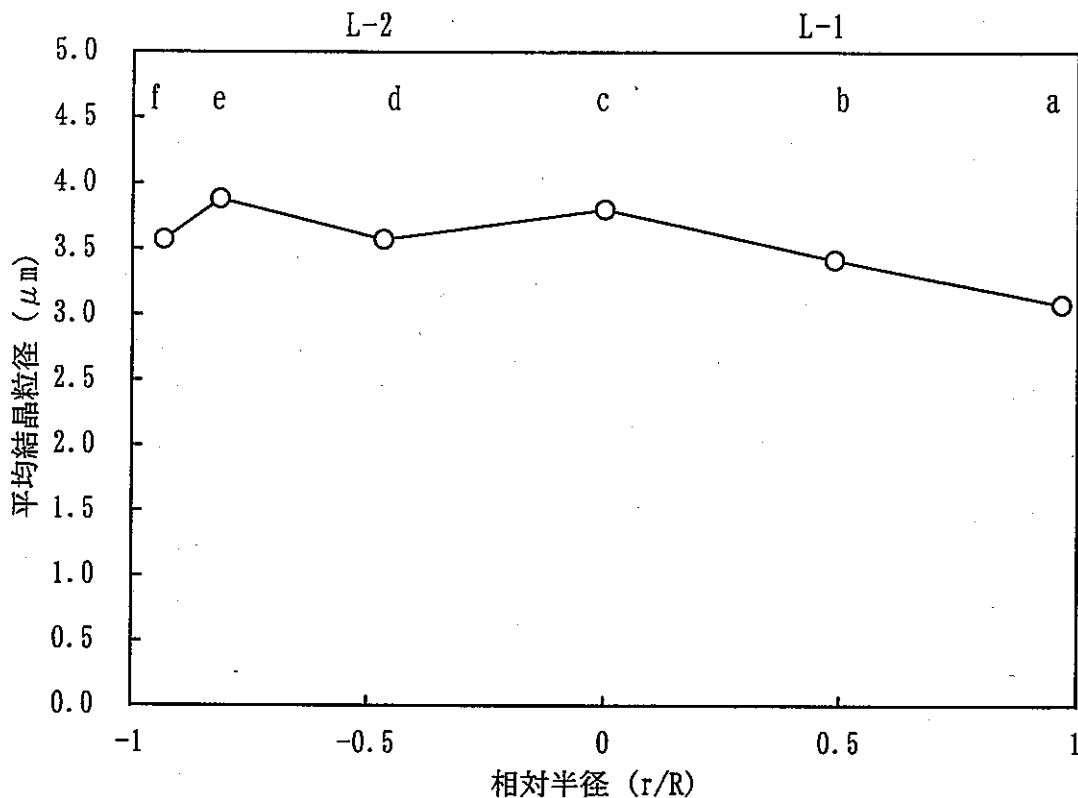


図3.54 径方向の結晶粒径分布 (L41332)

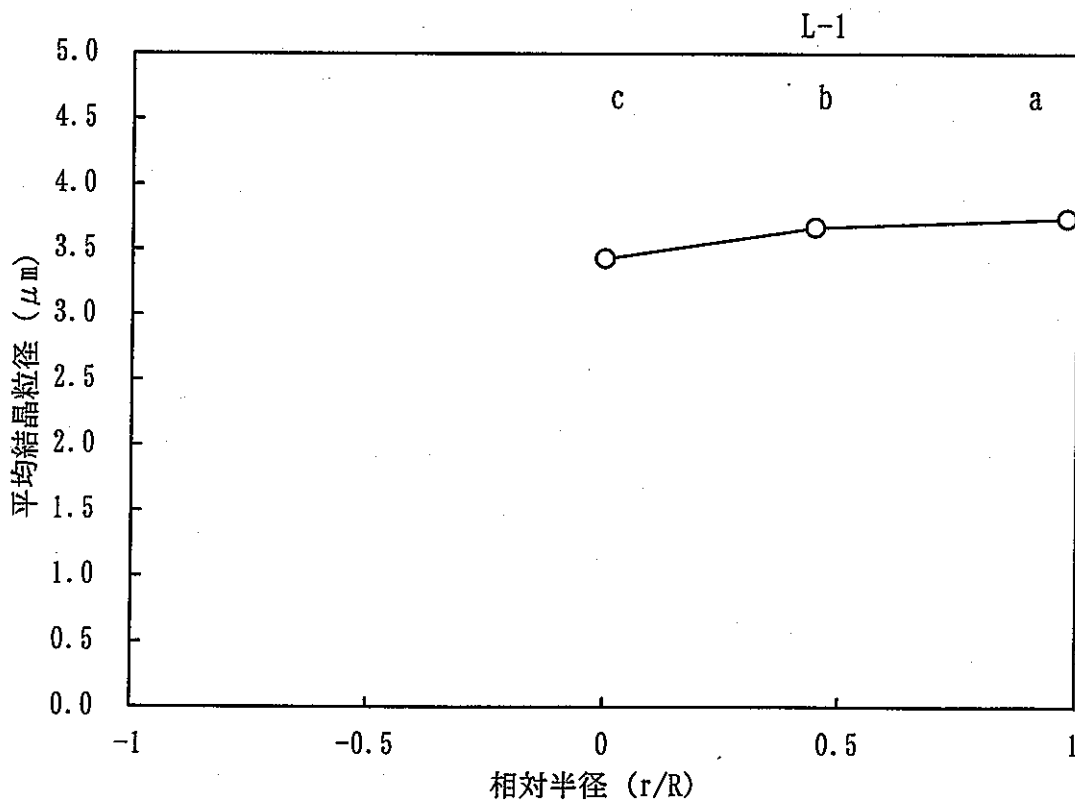


図3.55 径方向の結晶粒径分布 (L41423)

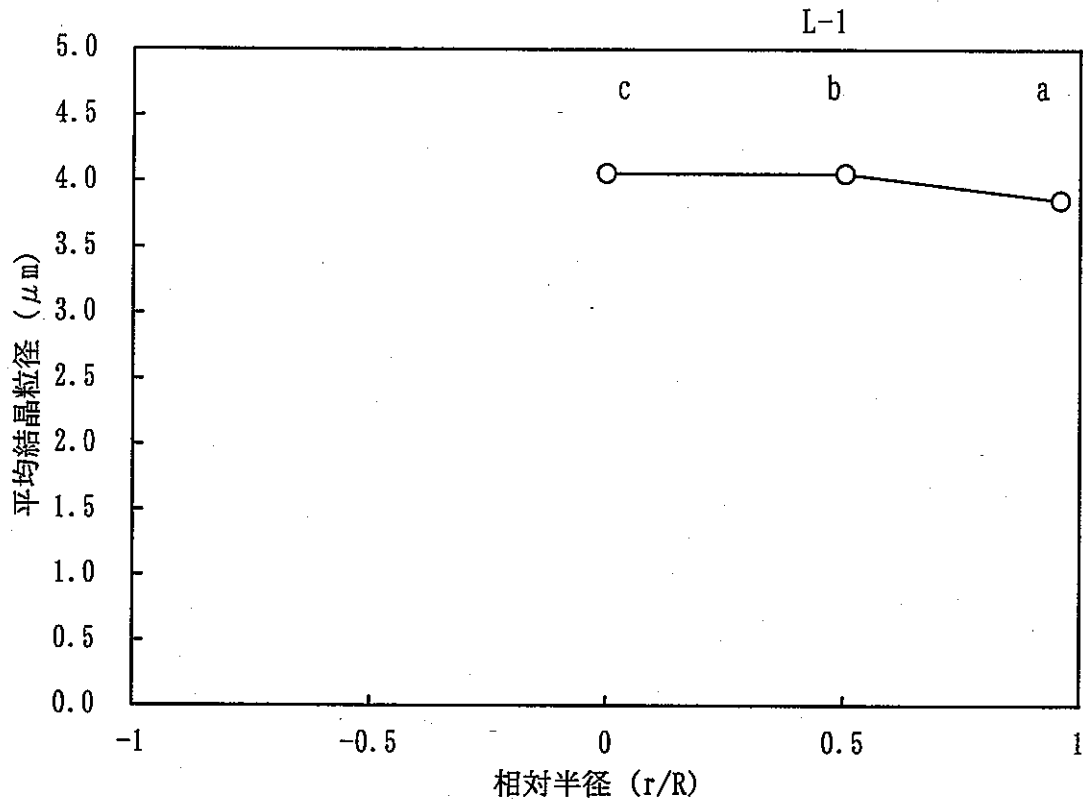


図3.56 径方向の結晶粒径分布 (L41441)

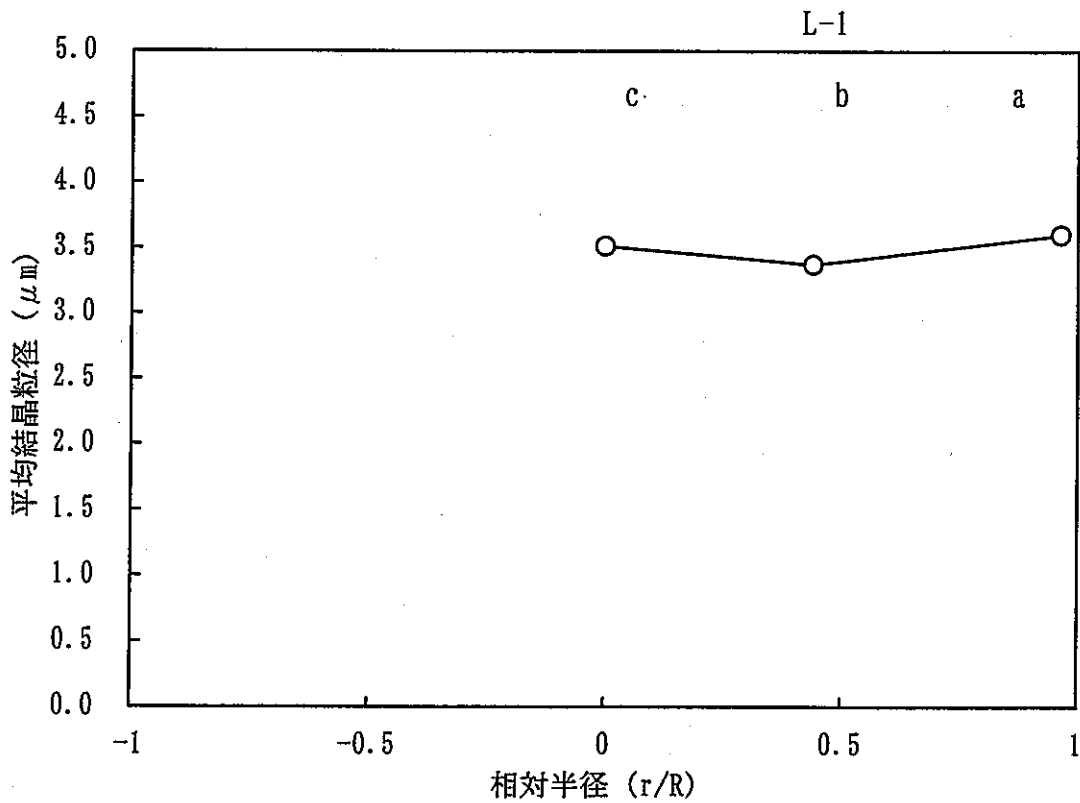


図3.57 径方向の結晶粒径分布 (L41452)

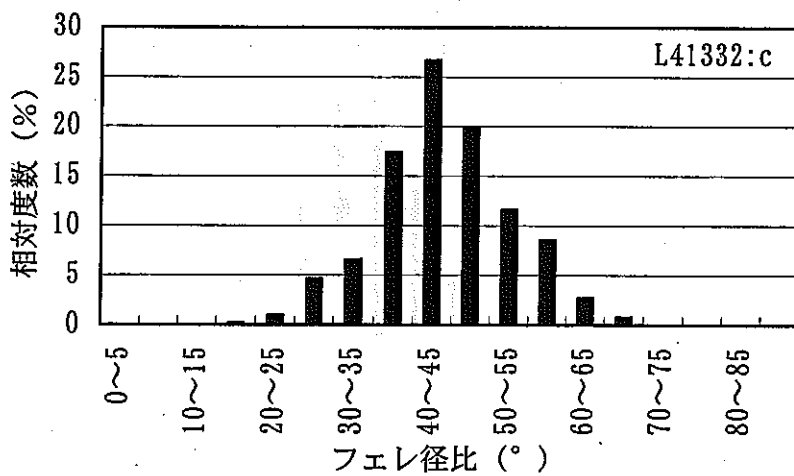
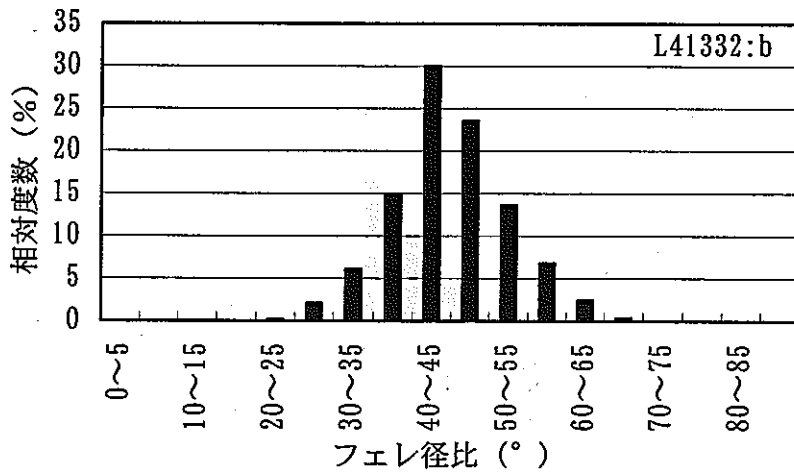
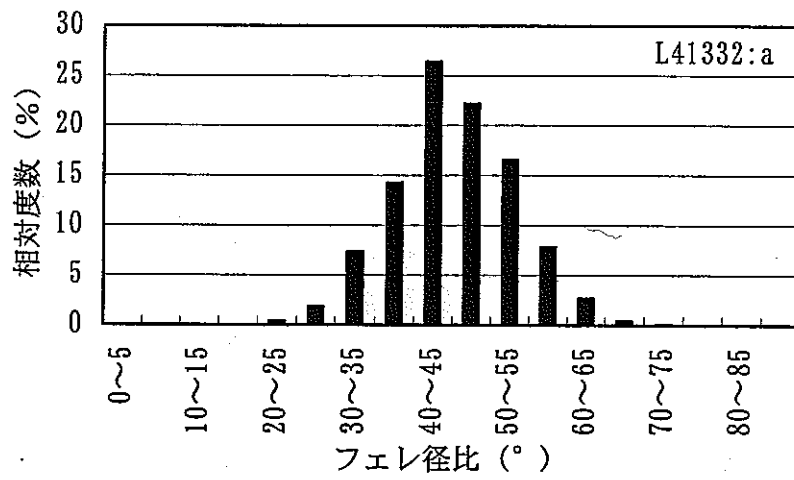


図3.58 フェレ径比の相対度数分布 (L41332[1/2] : a, b, c部)

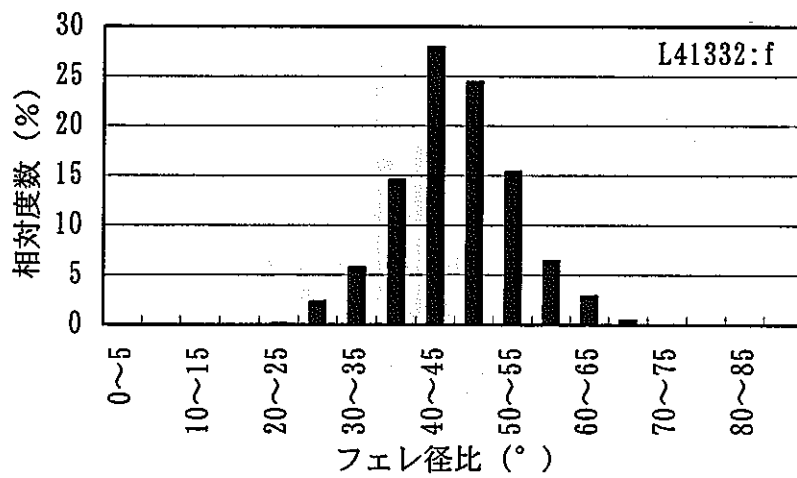
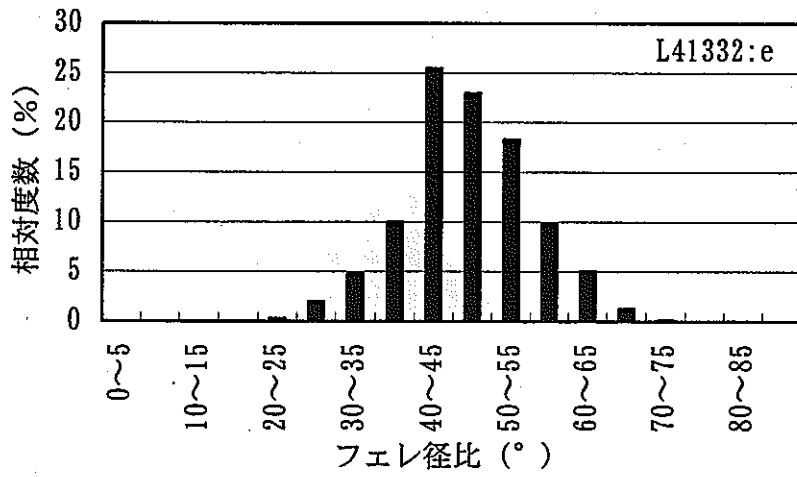
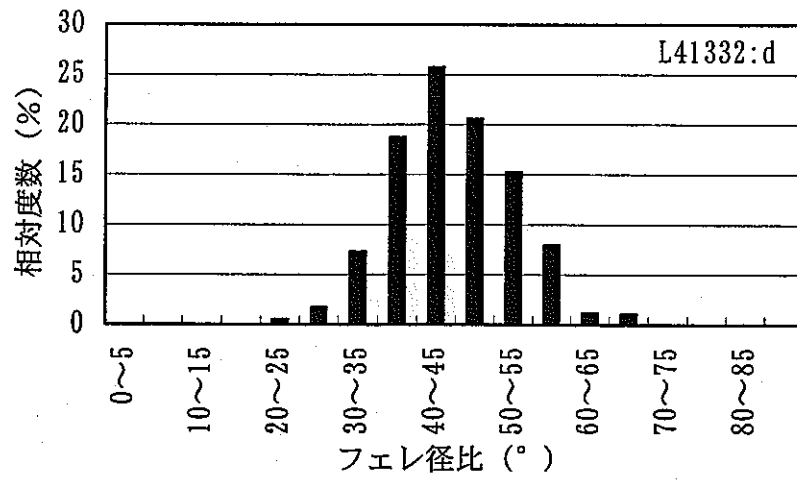


図3.58 フェレ径比の相対度数分布 (L41332[2/2] : d, e, f部)

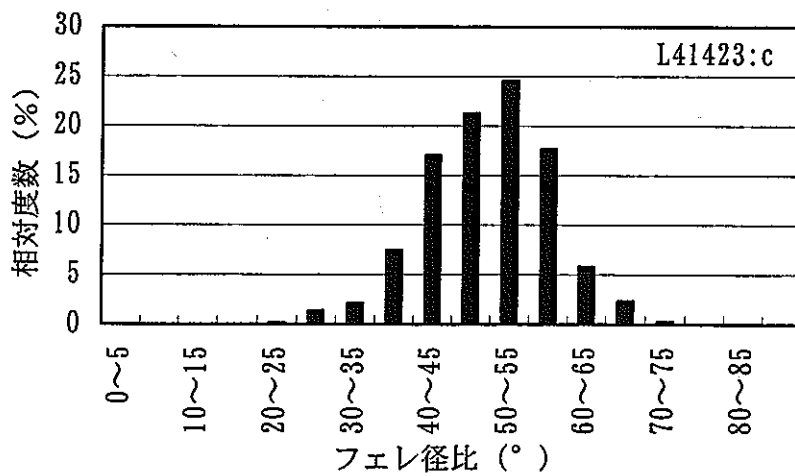
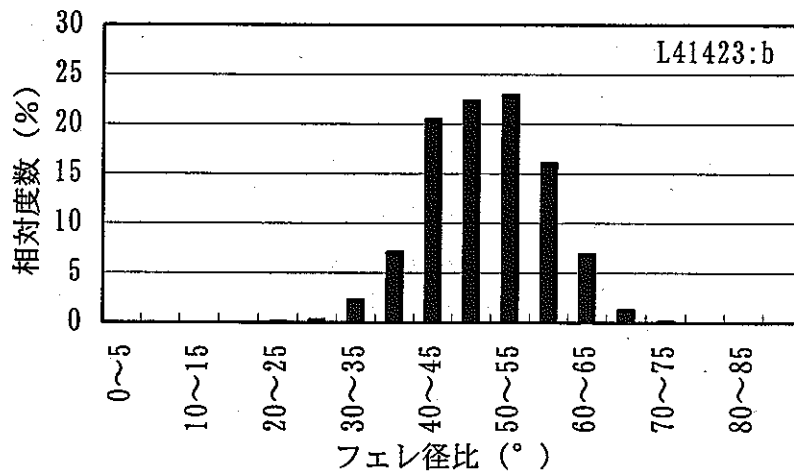
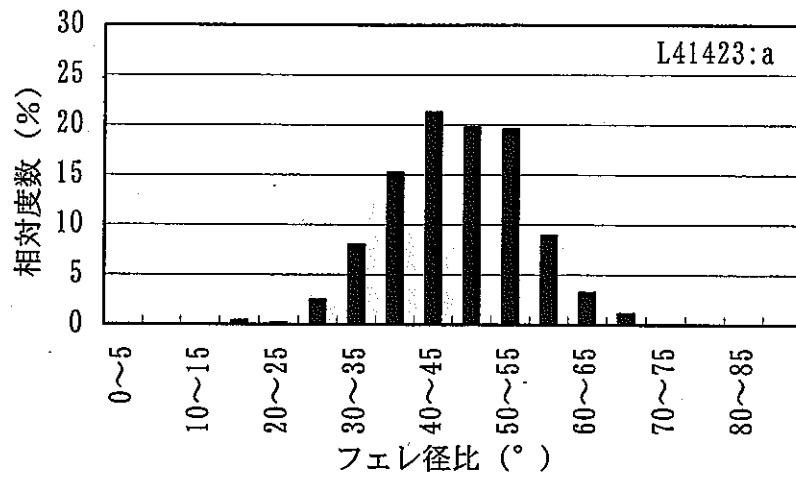


図3.59 フェレ径比の相対度数分布 (L41423 : a, b, c部)

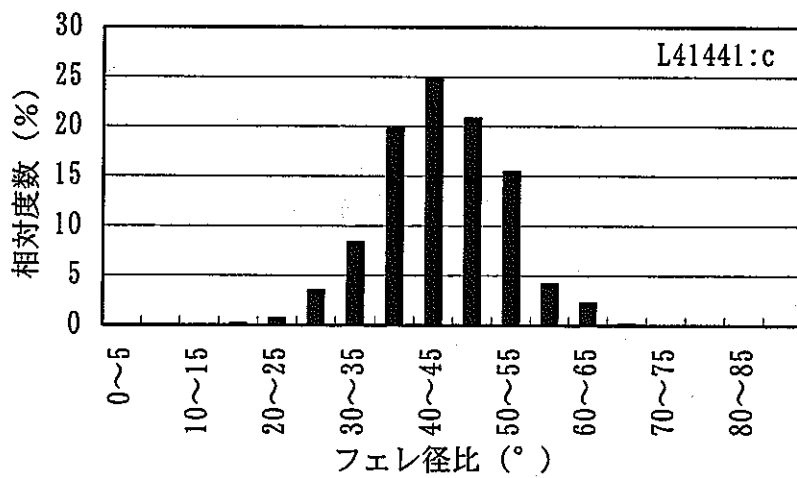
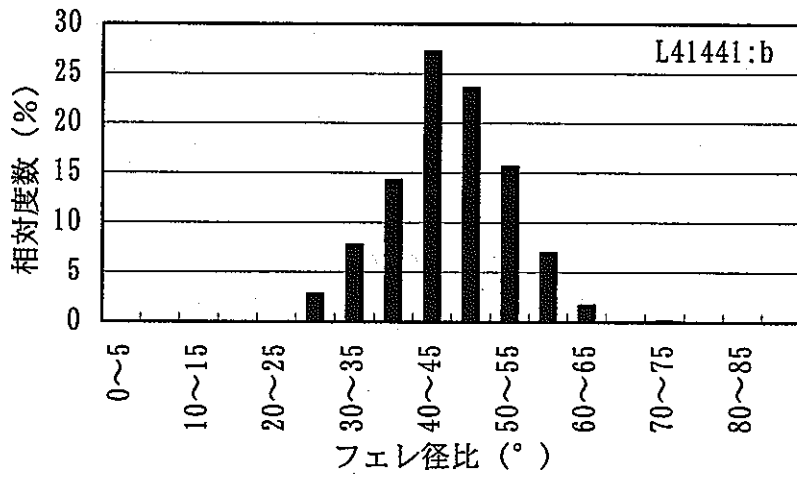
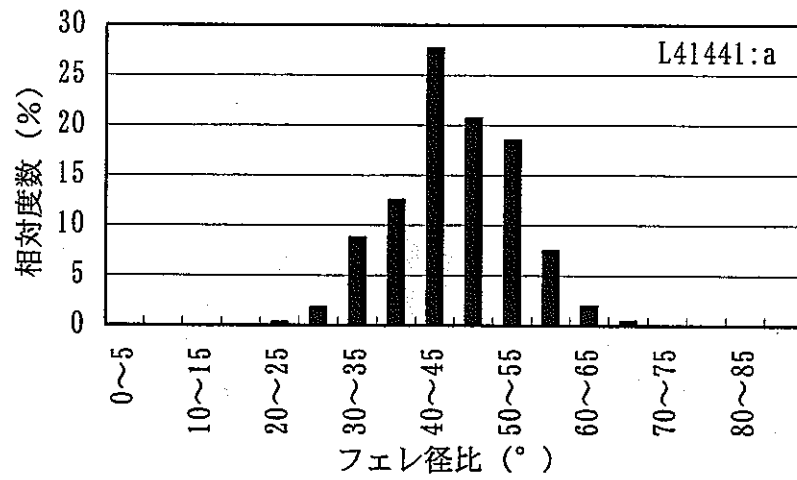


図3.60 フェレ径比の相対度数分布 (L41441 : a, b, c部)

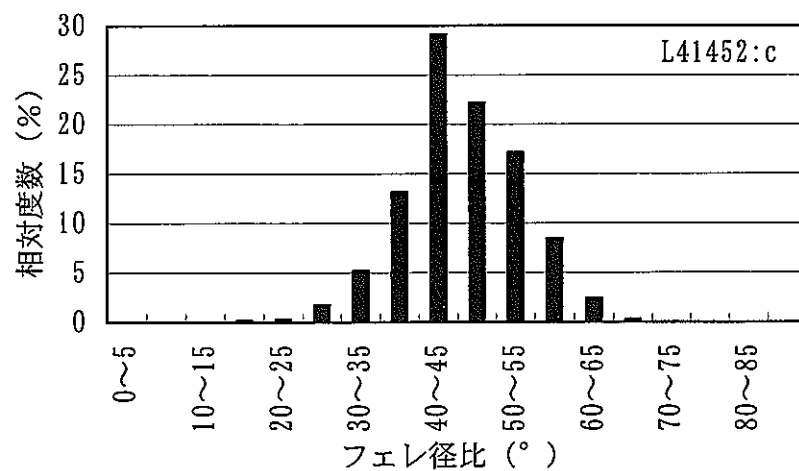
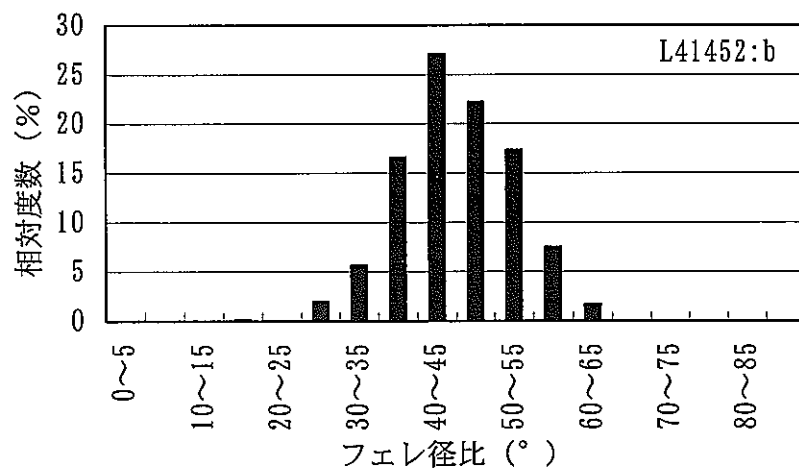
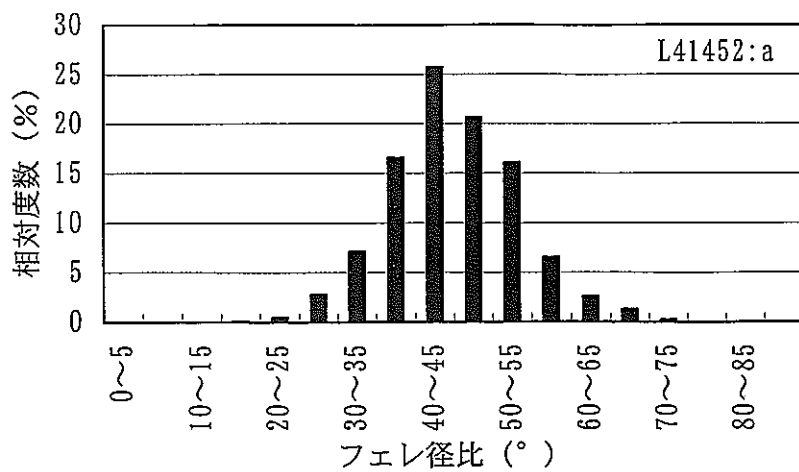


図3.61 フェレ径比の相対度数分布 (L41452 : a, b, c部)

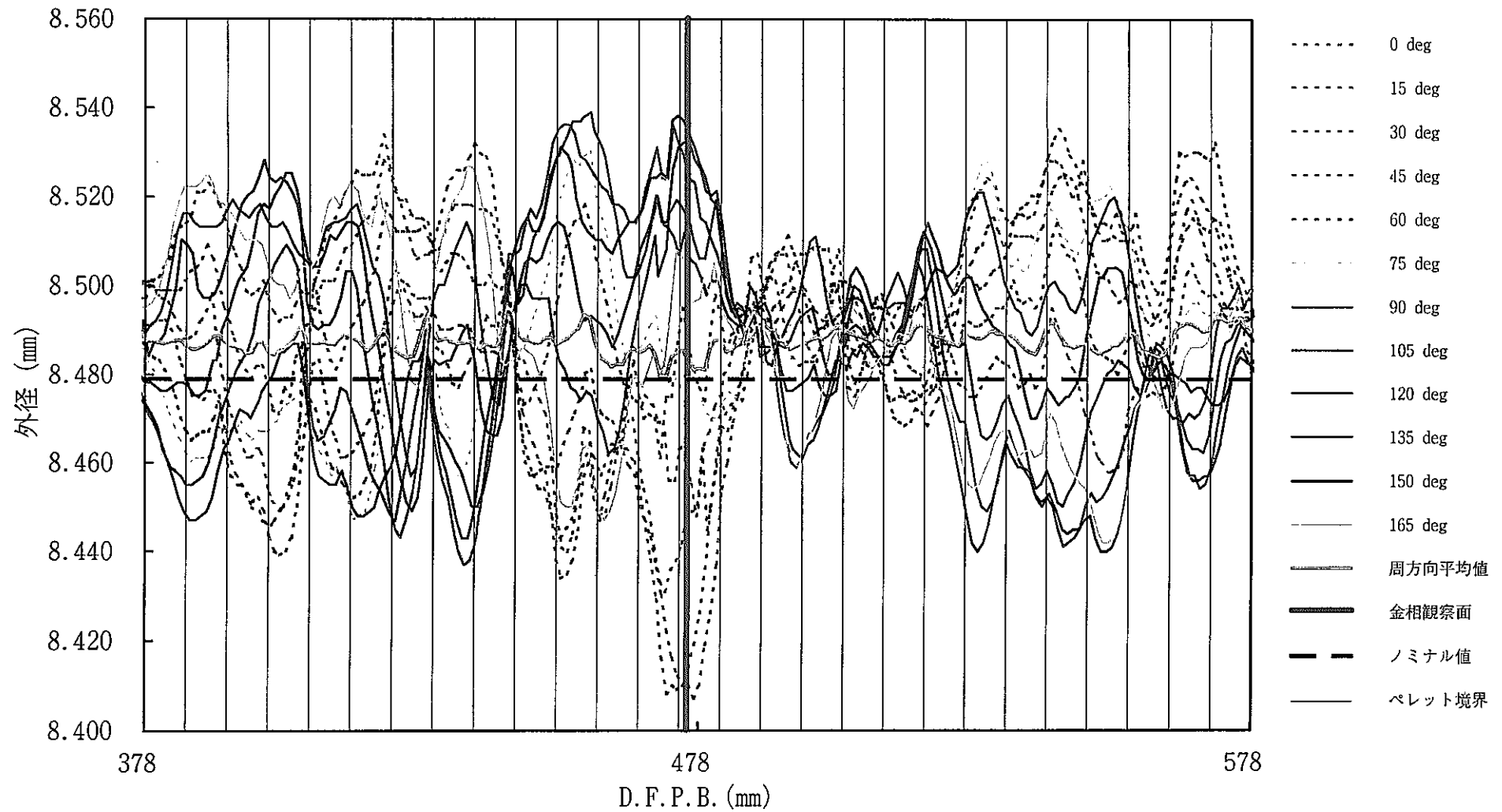


図4.1 外径軸方向プロファイルと金相観察面およびペレットの位置関係 (L413ピン)

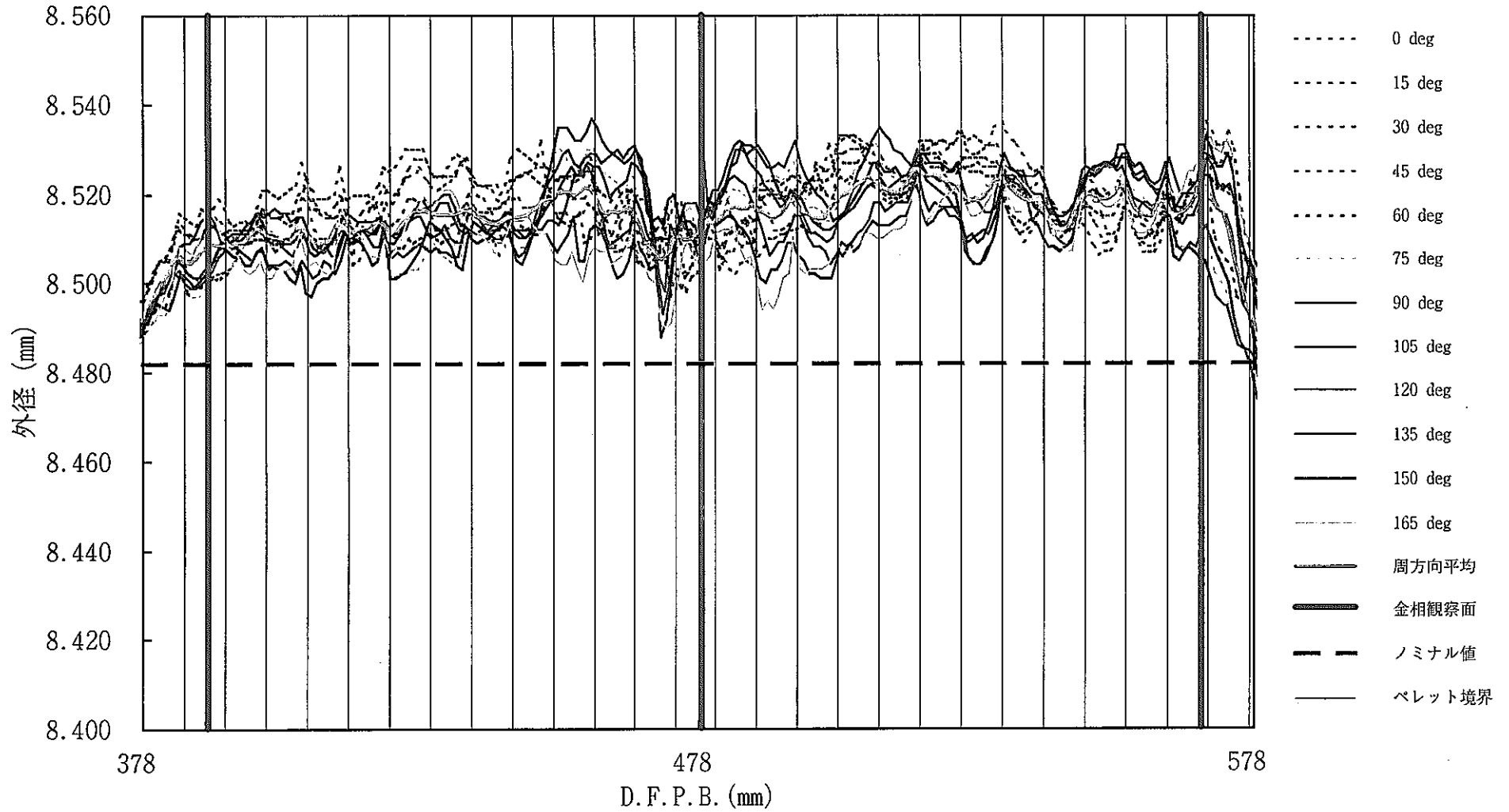
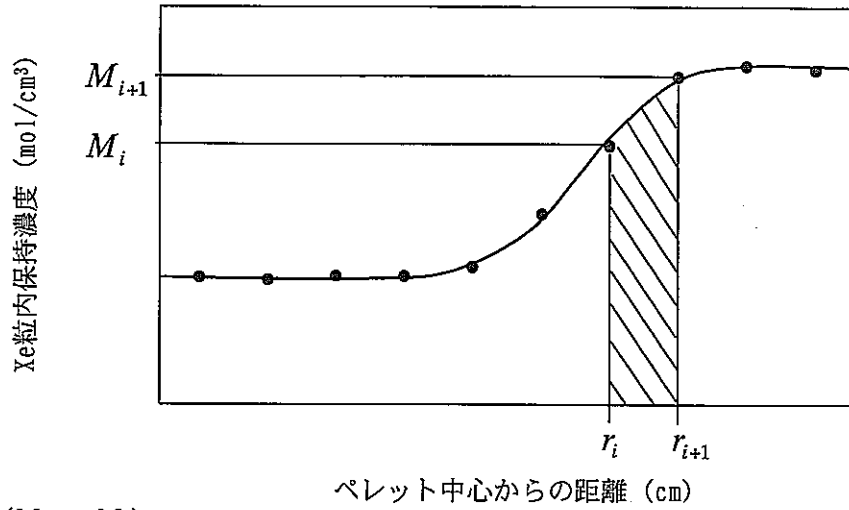


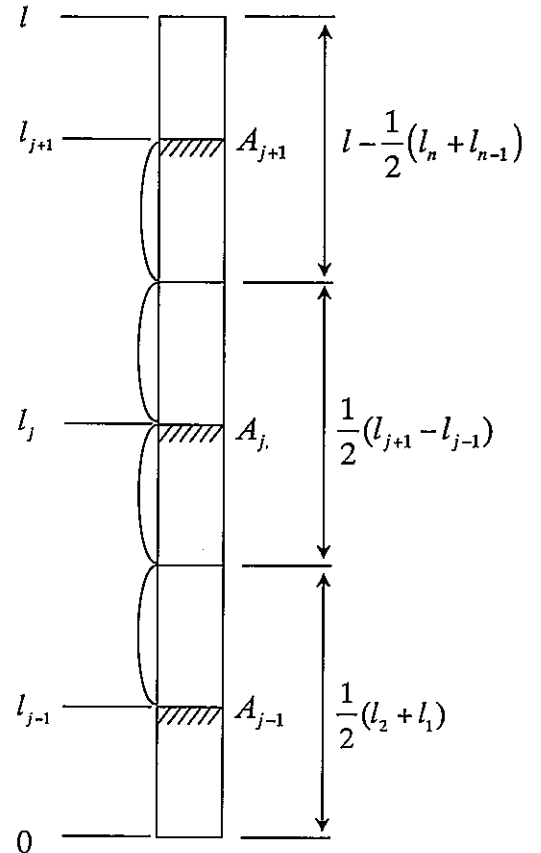
図4.2 外径軸方向プロファイルと金相観察面およびペレットの位置関係 (L414ピン)

○ ペレット断面あたりのXe粒内保持量 A_j (mol/cm)



$$A_j = \sum_i \frac{\pi}{2} (r_{i+1}^2 - r_i^2) (M_{i+1} + M_i)$$

○ 燃料ピンあたりのXe粒内保持量 W (mol/pin)



$$W = \sum_{i=1}^n \frac{1}{2} (l_{i+1} - l_{i-1}) \cdot A_i + \frac{1}{2} (l_2 + l_1) \cdot A_1 + \left\{ l - \frac{1}{2} (l_n + l_{n-1}) \right\} \cdot A_n$$

図4.3 Xe保持量の計算手法説明図

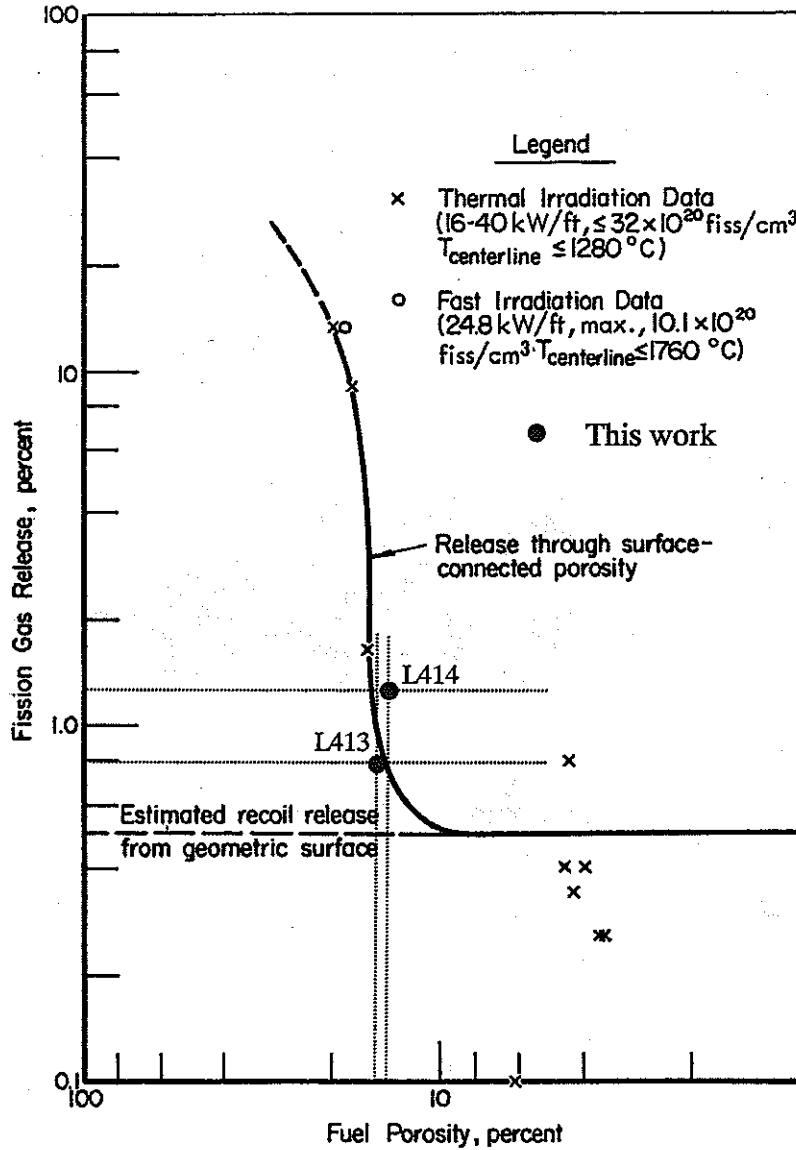


Fig. 8. Fission gas release dependence on (U, Pu)N pellet porosity.

図4.4 燃料気孔率とFPガス放出率との関係 [29]

[A. A. Bauer et al. , "Mixed-Nitride Fuel Irradiation Performance", Proceedings on Fast Reactor Fuel Element Technology, (1971), p785 より引用]

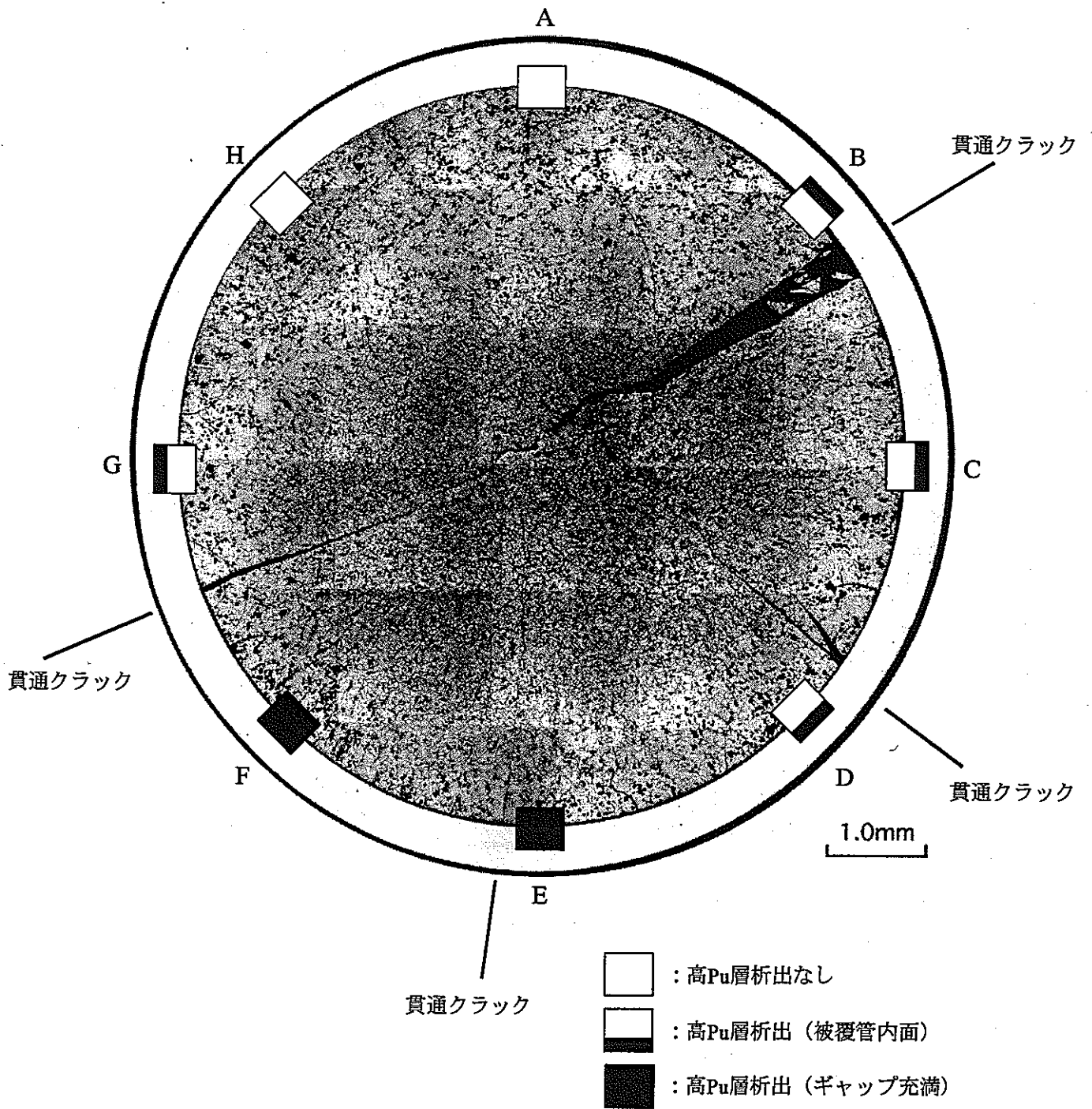


図4.5 ギャップ部における高Pu層析出挙動 (L41332)

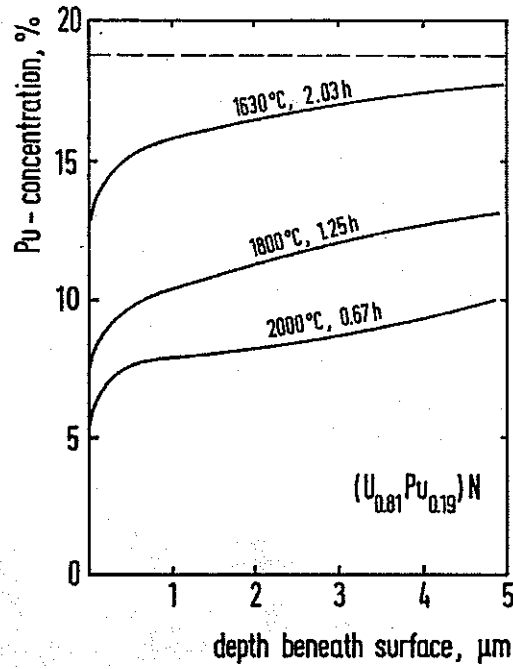


Fig. 2.33. Concentration–depth profiles for Pu in (U,Pu)N annealed sequentially in vacuum at 1630, 1800 and 2000°C [141].

(a)

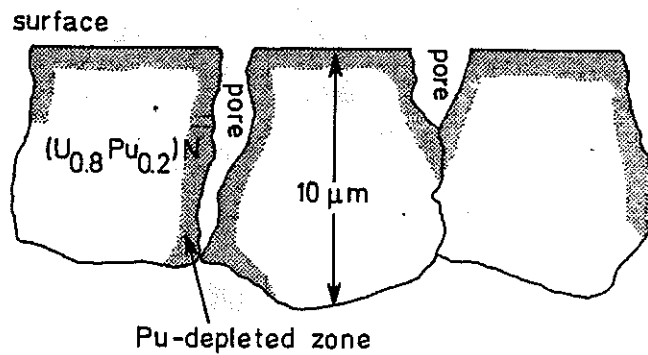


Fig. 2.34. Schematic presentation of suggested Pu depletion of (U,Pu)N during free evaporation [141].

(b)

図4.6 MN燃料におけるPu蒸発挙動[2]

[Hj.Matzke, "Science of Advanced LMFBR Fuels", North-Holland, Amsterdam(1986)より引用]

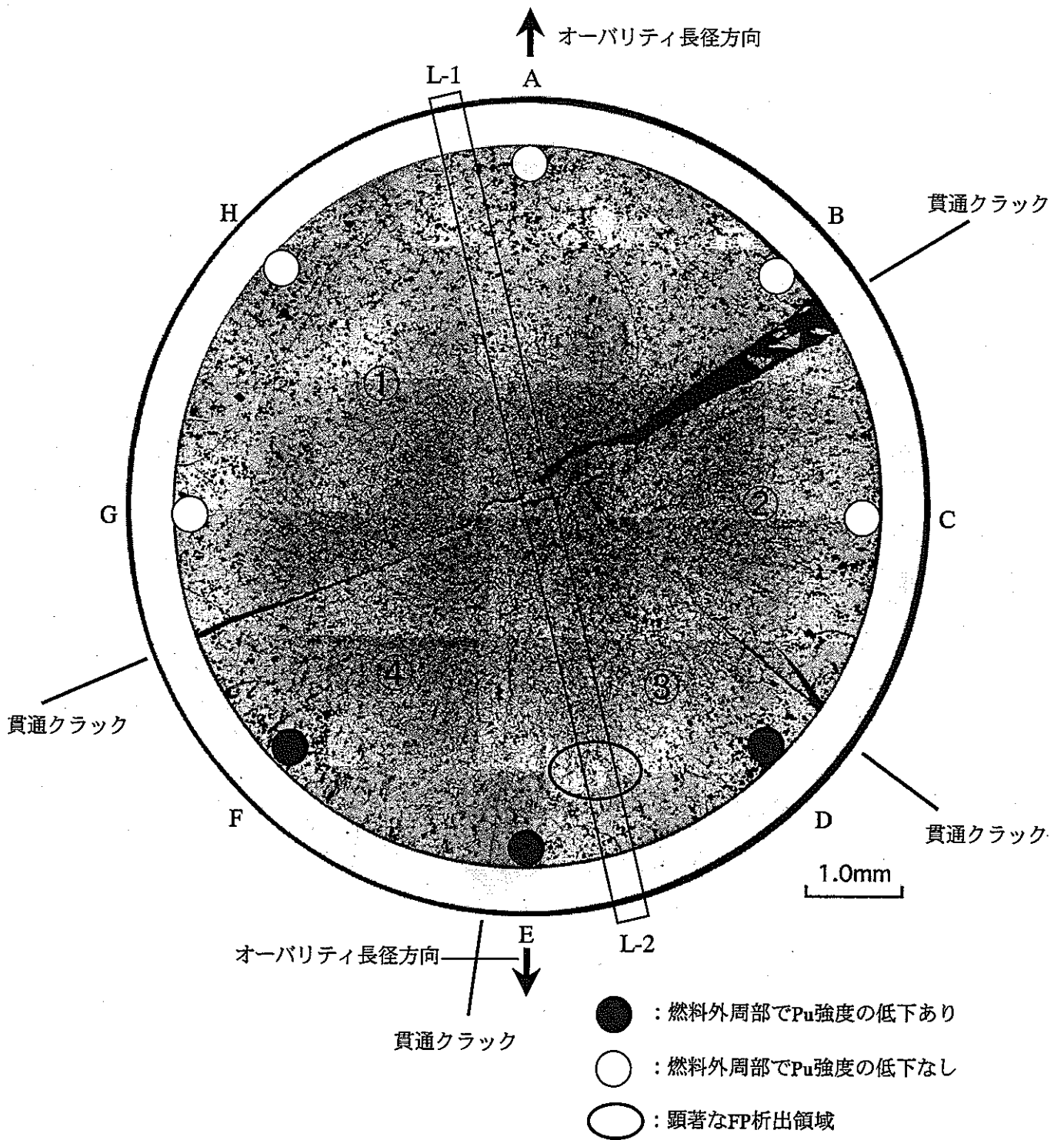


図4.7 L41332における照射後試験結果の特徴

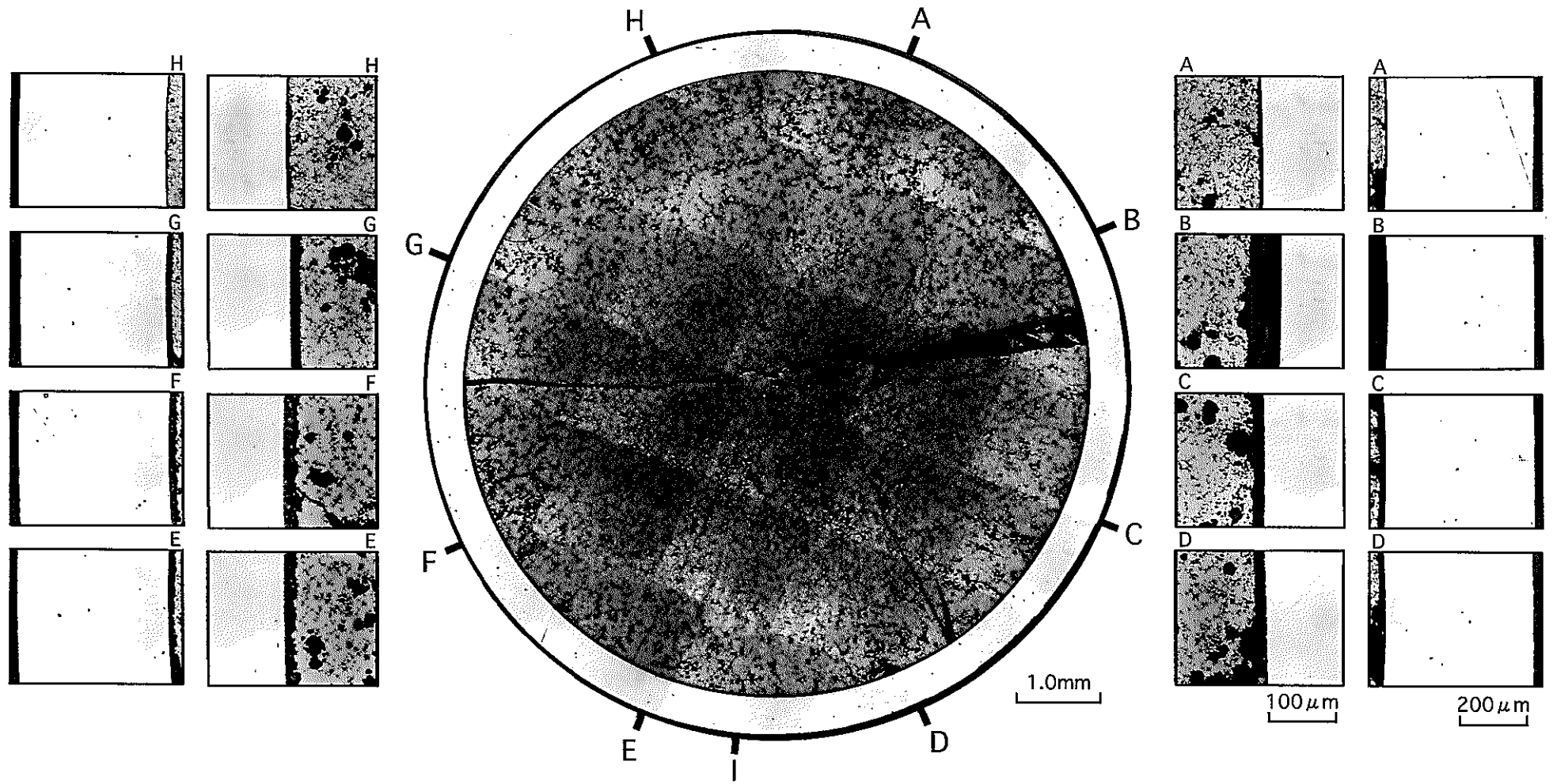


写真 3.1 光学顕微鏡写真（横断面全域，ギャップ，被覆管：L41332 [As-polished]）

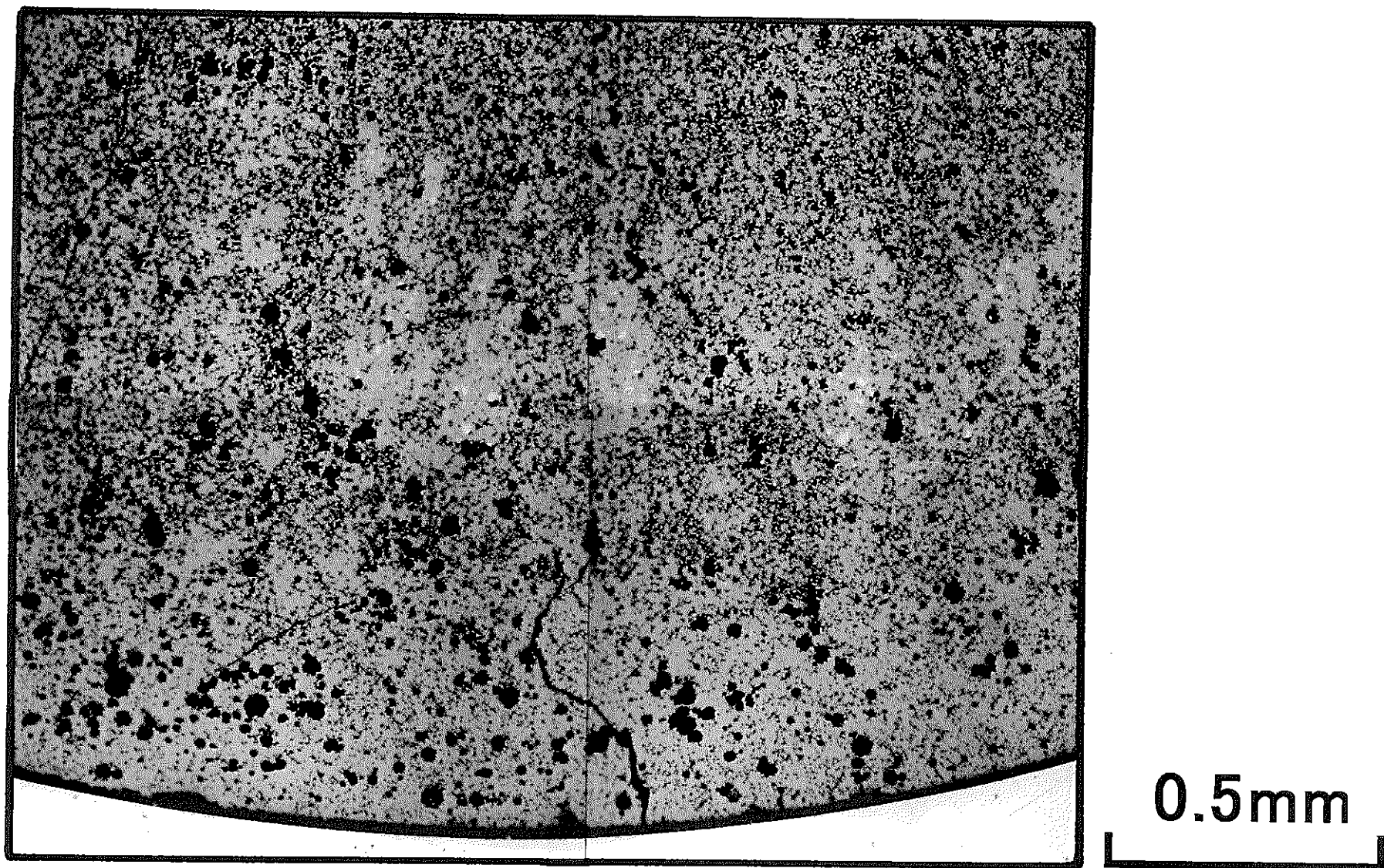


写真 3.2 光学顕微鏡写真 (L41332 : I部拡大)

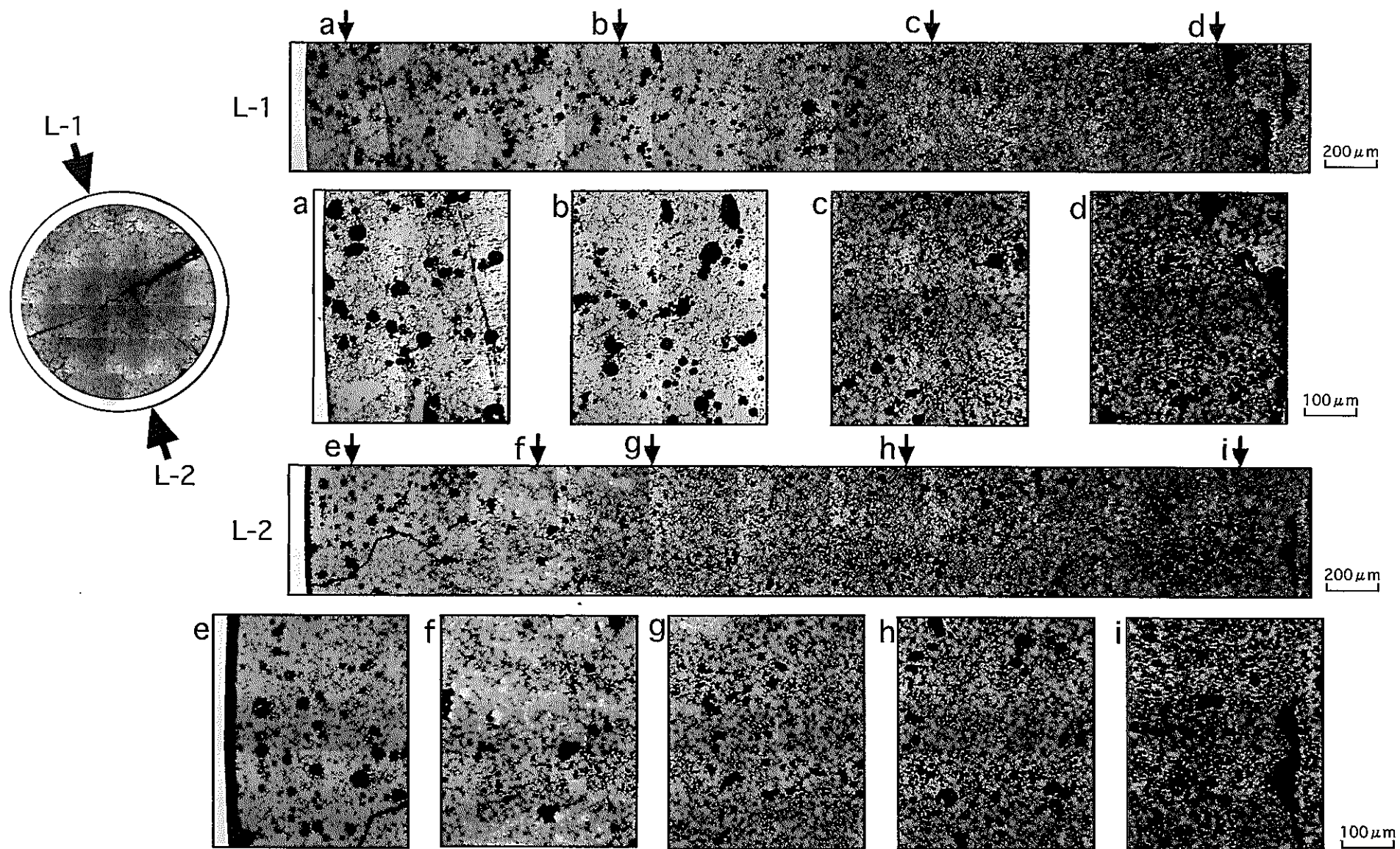


写真 3.3 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41332 [As-polished]）

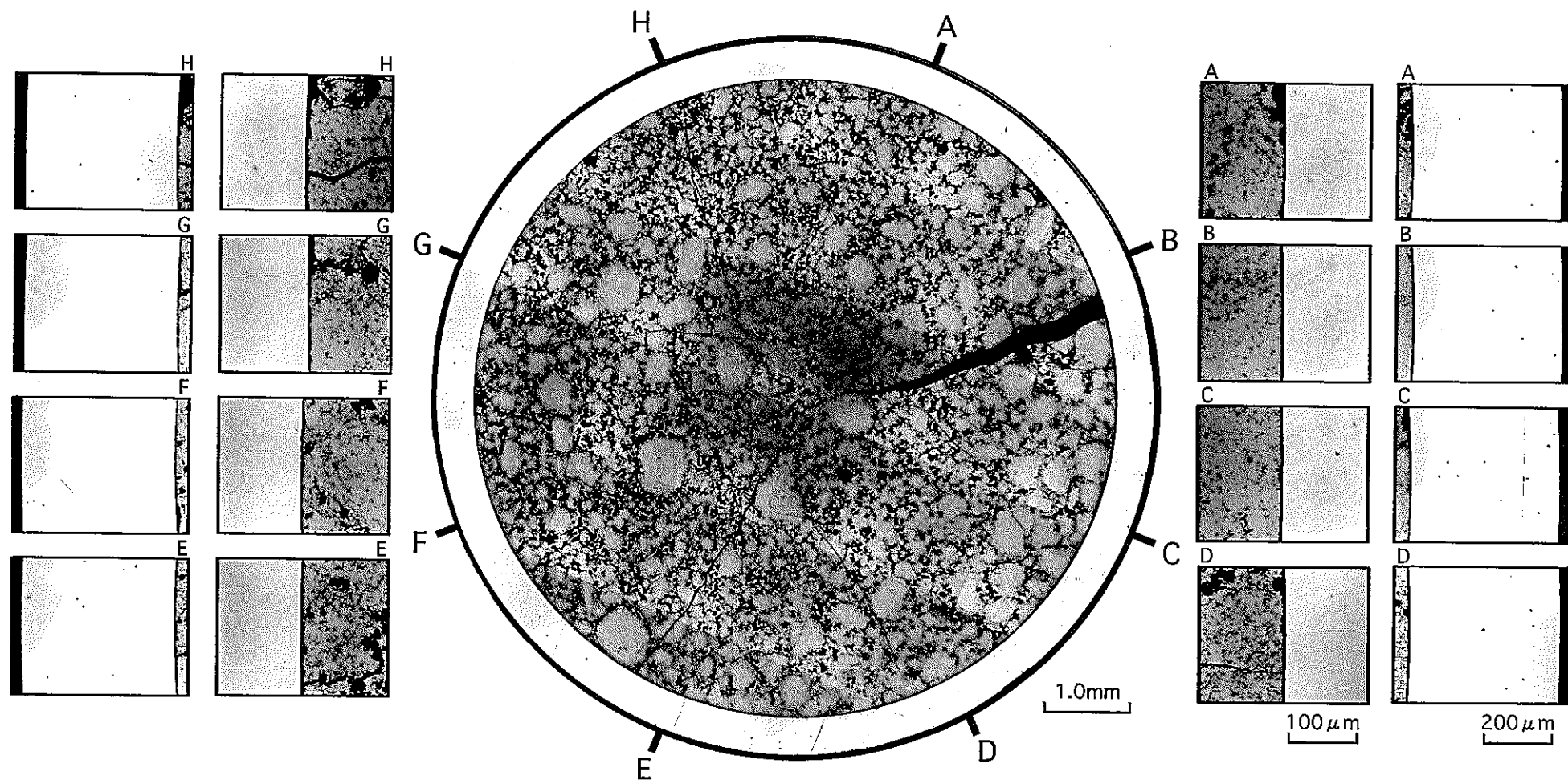


写真 3.4 光学顕微鏡写真（横断面全域，ギャップ，被覆管：L41423 [As-polished]）

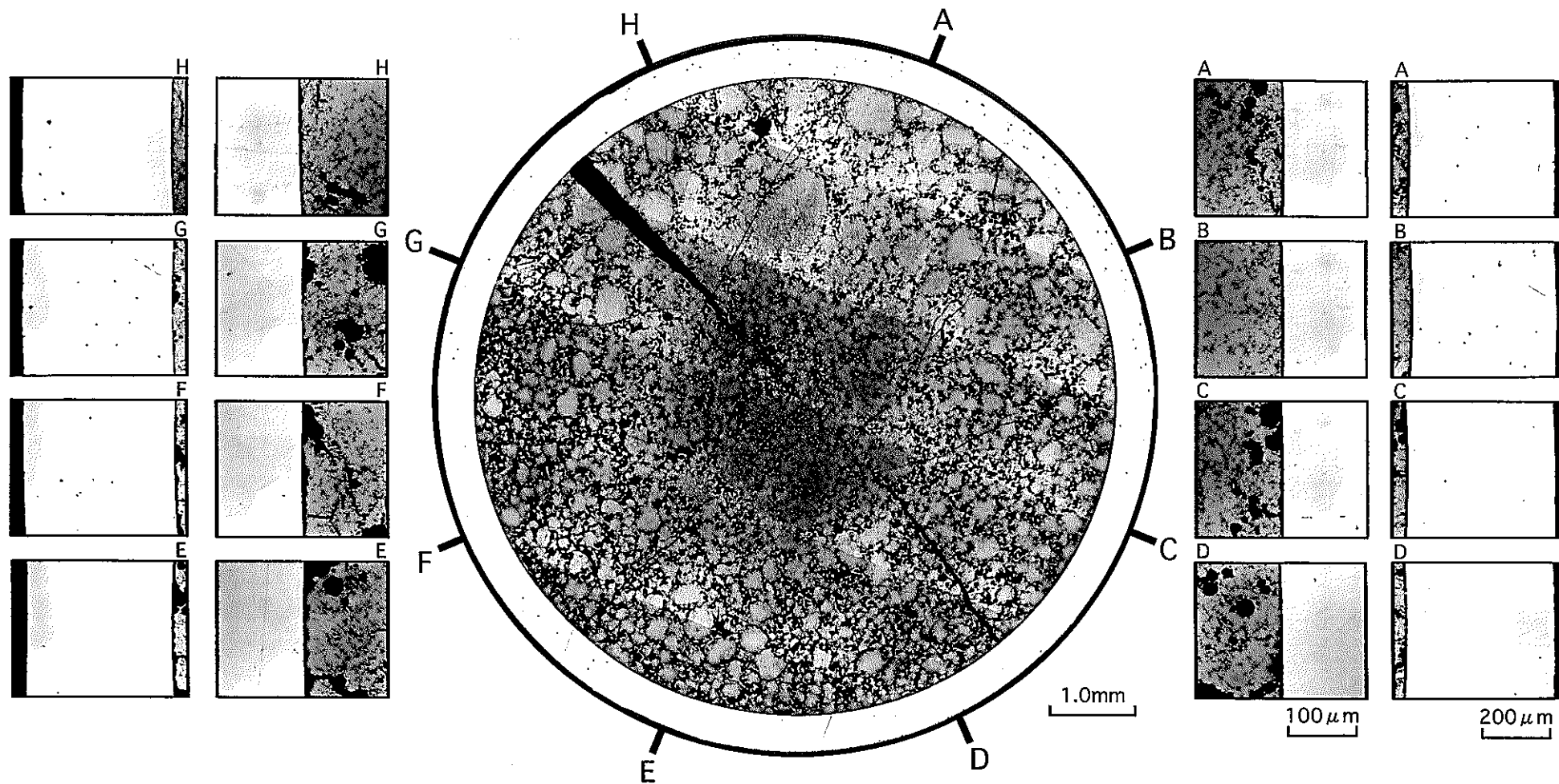


写真 3.5 光学顕微鏡写真 (横断面全域, ギャップ, 被覆管: L41441 [As-polished])

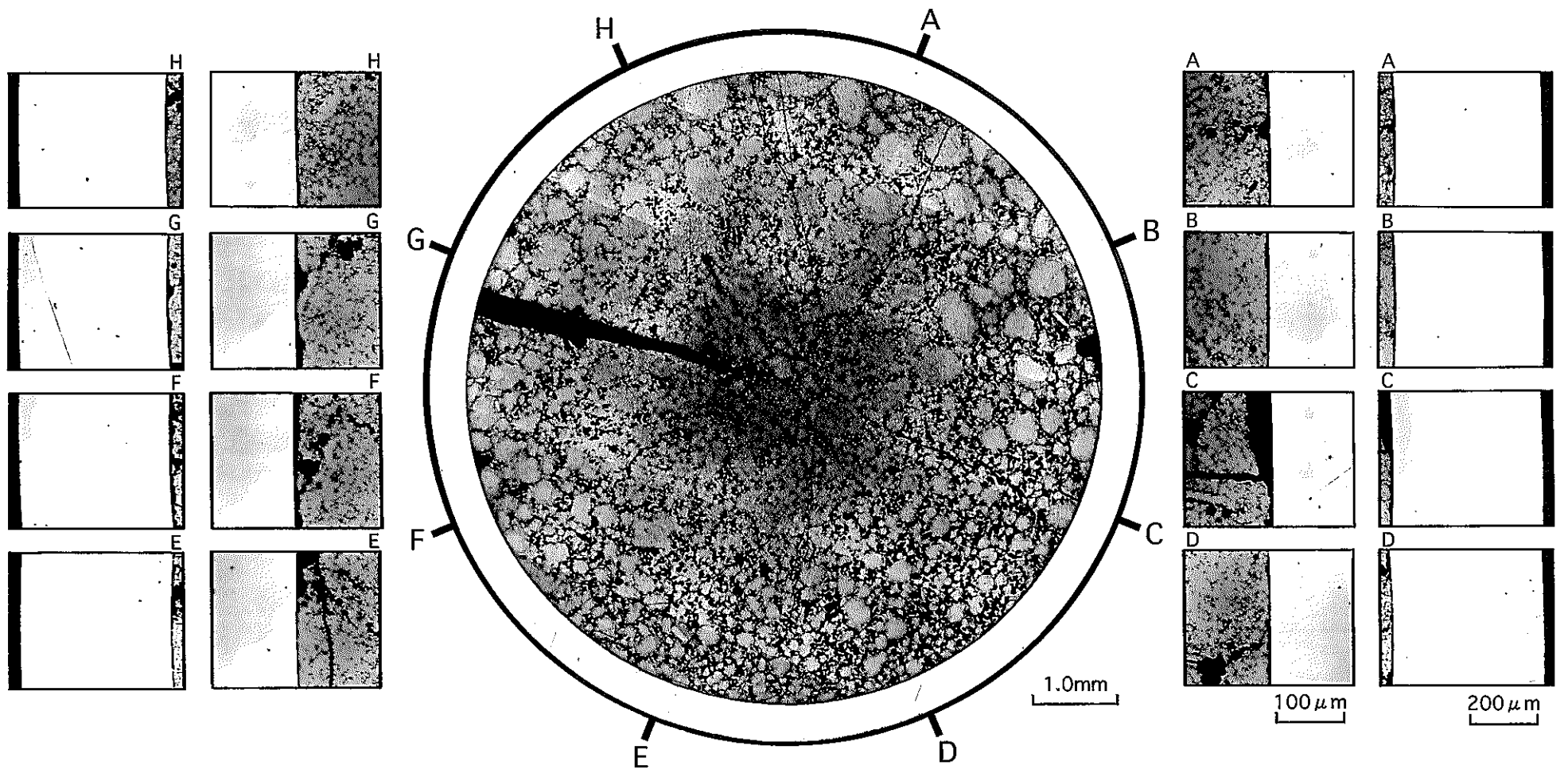


写真 3.6 光学顕微鏡写真（横断面全域，ギャップ，被覆管：L41452 [As-polished]）

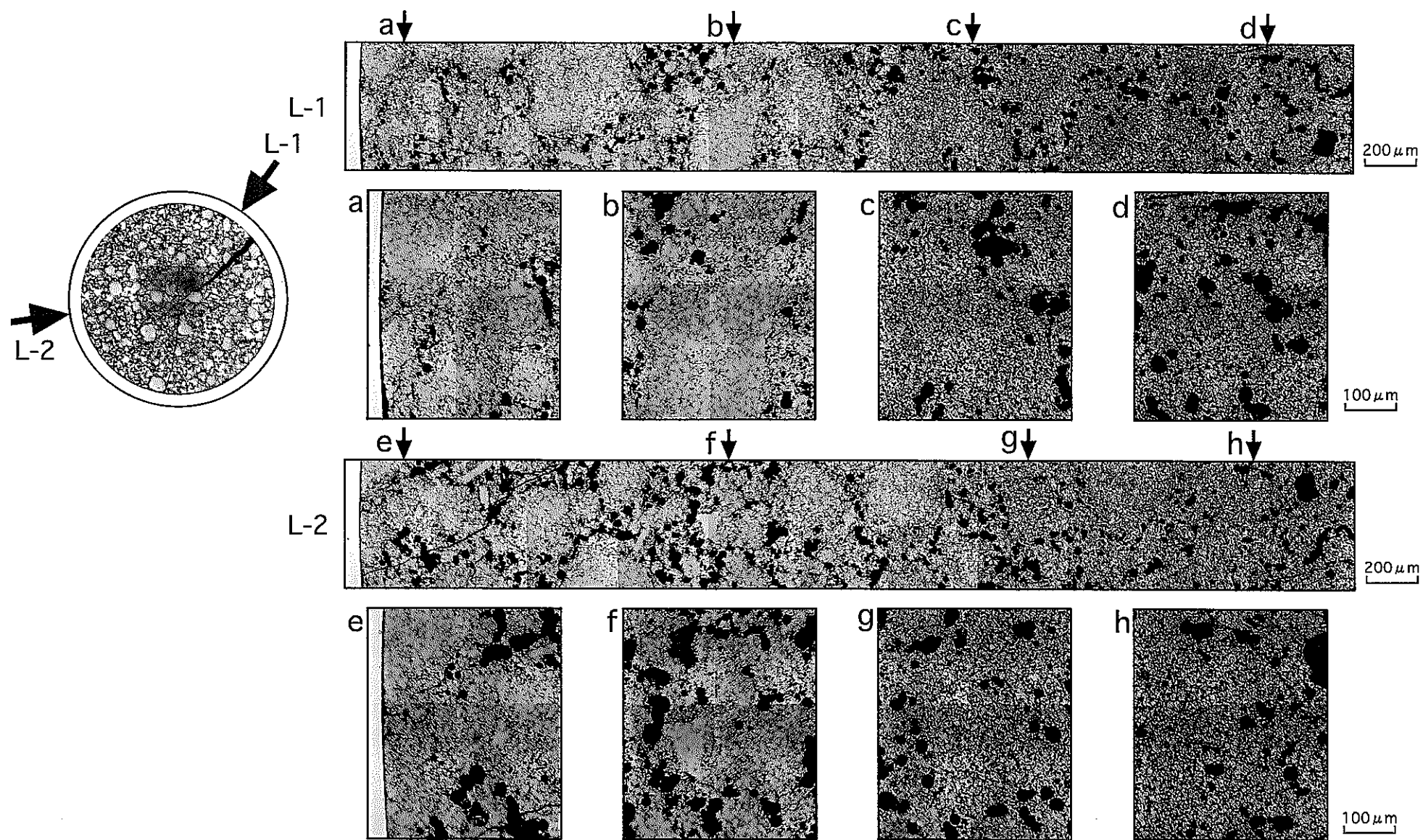


写真 3.7 光学顕微鏡写真 (径方向スリット, スポット: L41423 [As-polished])

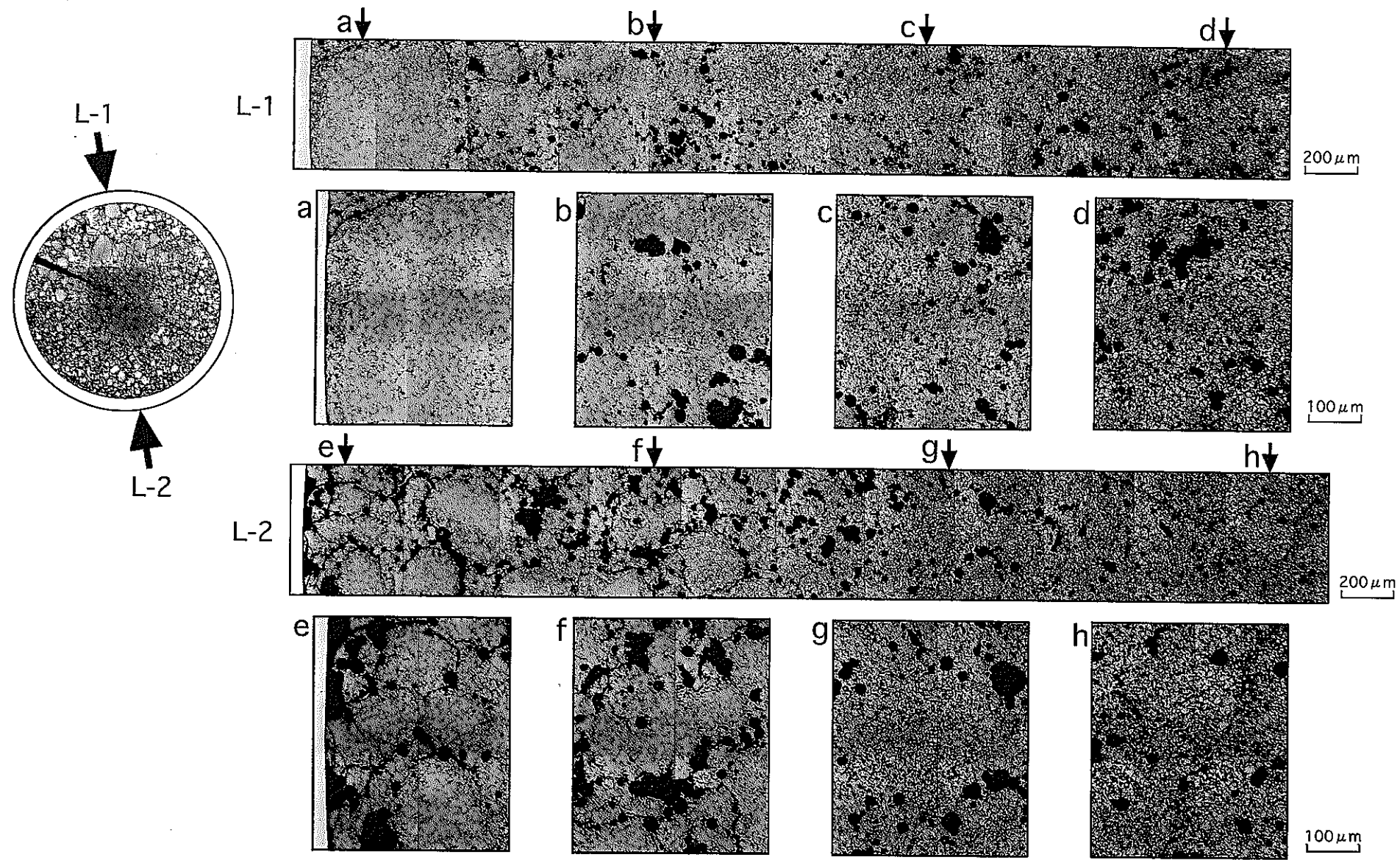


写真 3.8 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41441 [As-polished]）

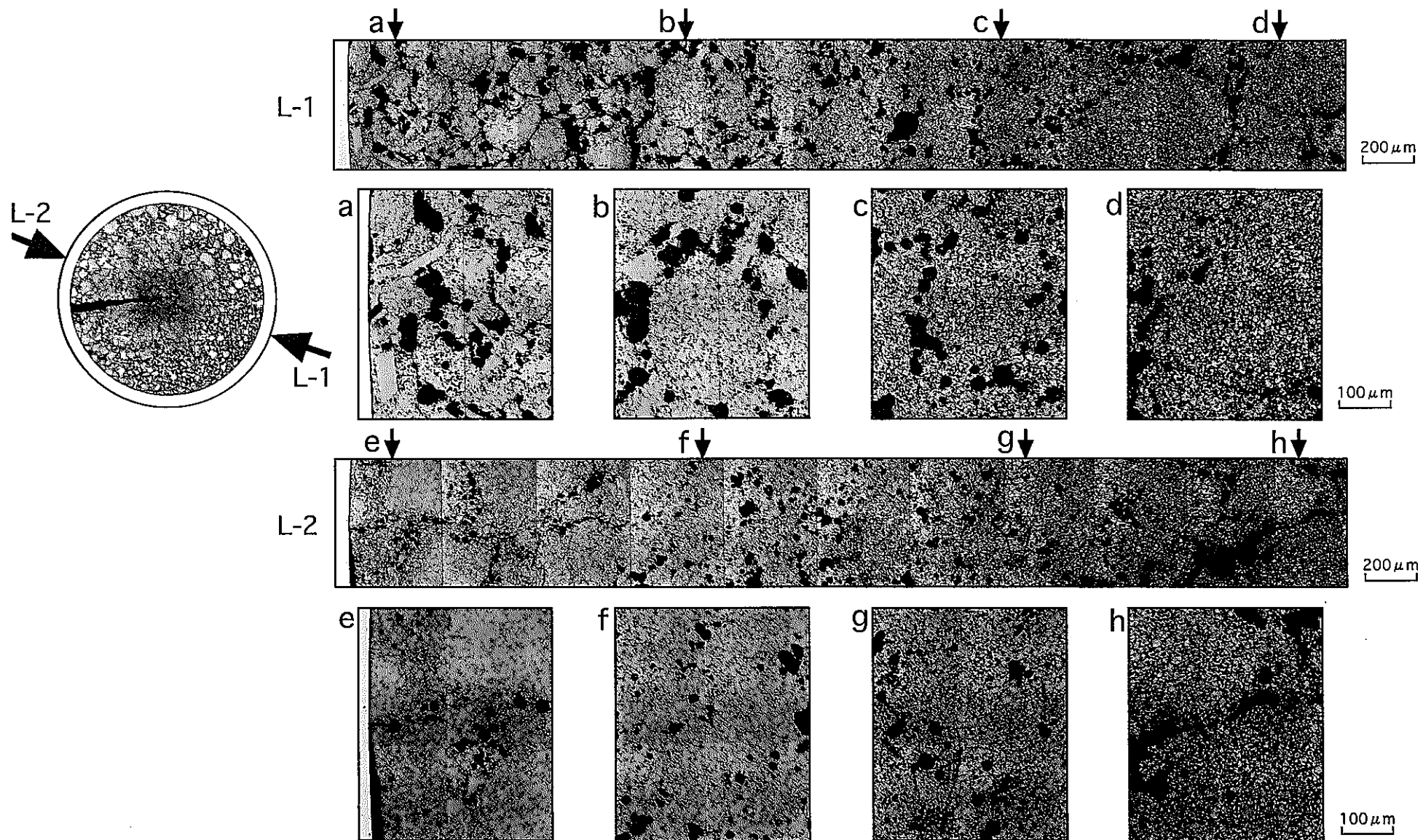


写真 3.9 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41452 [As-polished]）

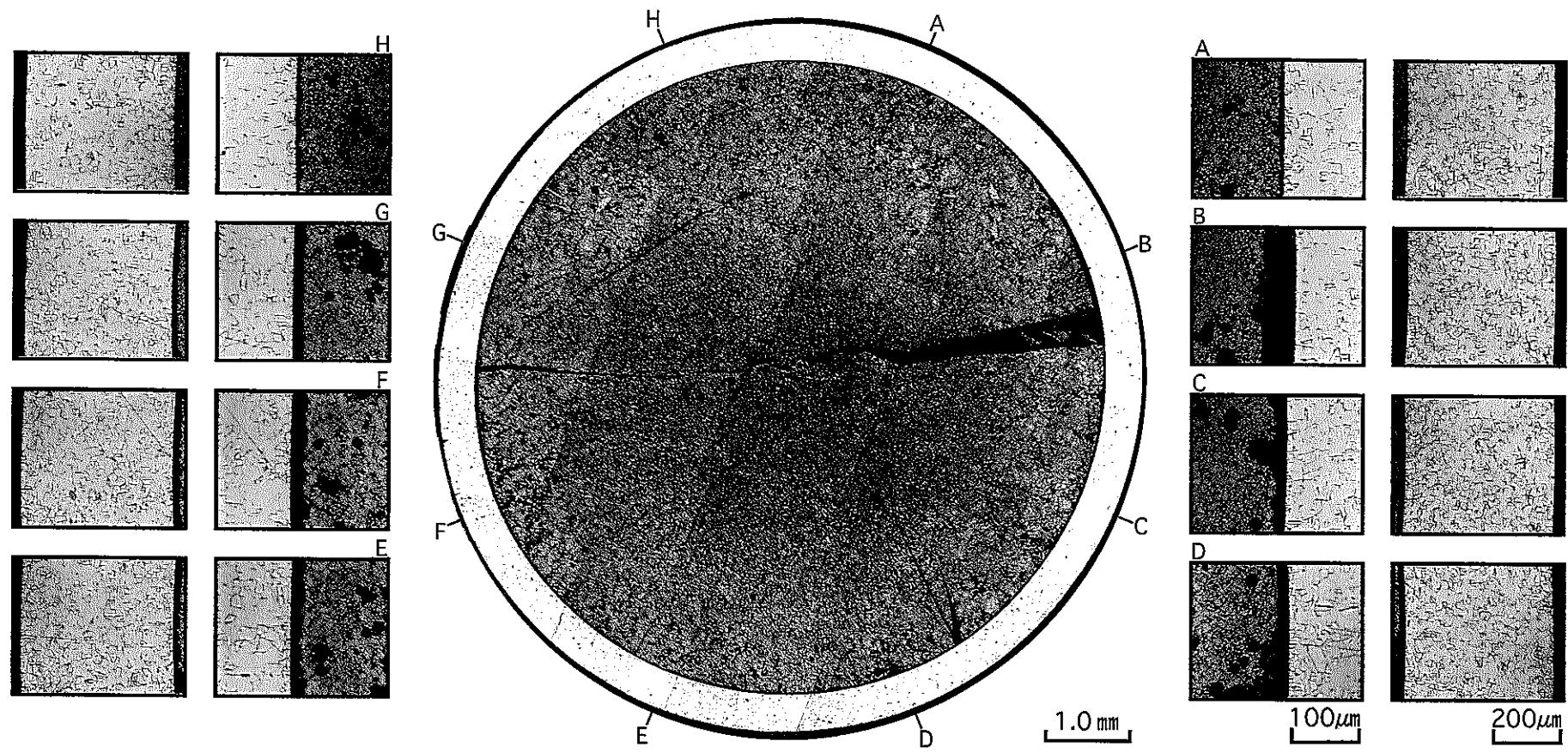


写真 3.10 光学顕微鏡写真（横断面全域，ギャップ，被覆管：L41332 [Etched]）

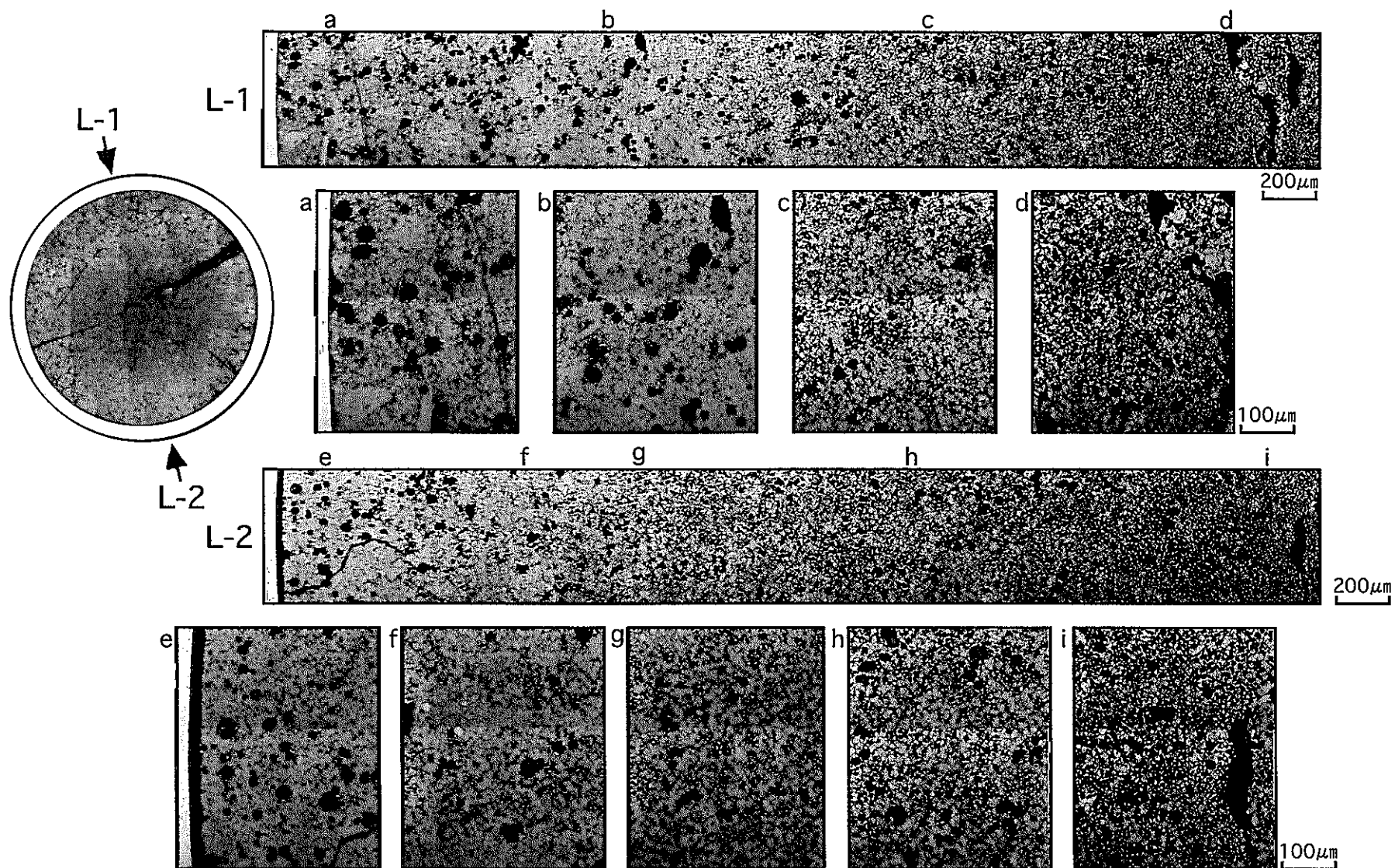


写真 3.11 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41332 [Etched]）

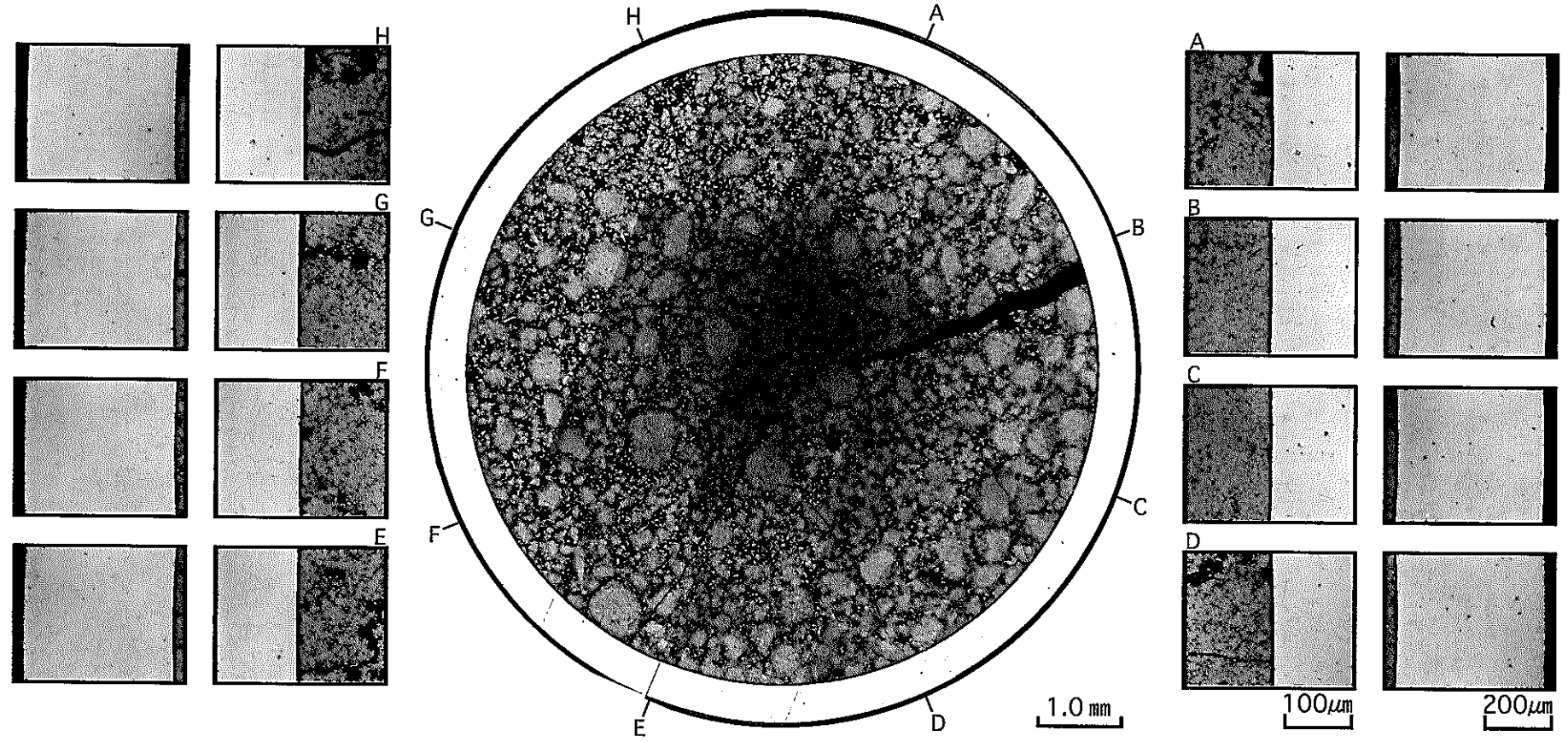


写真 3.12 光学顕微鏡写真（横断面全域，ギャップ，被覆管：L41423 [Etched]）

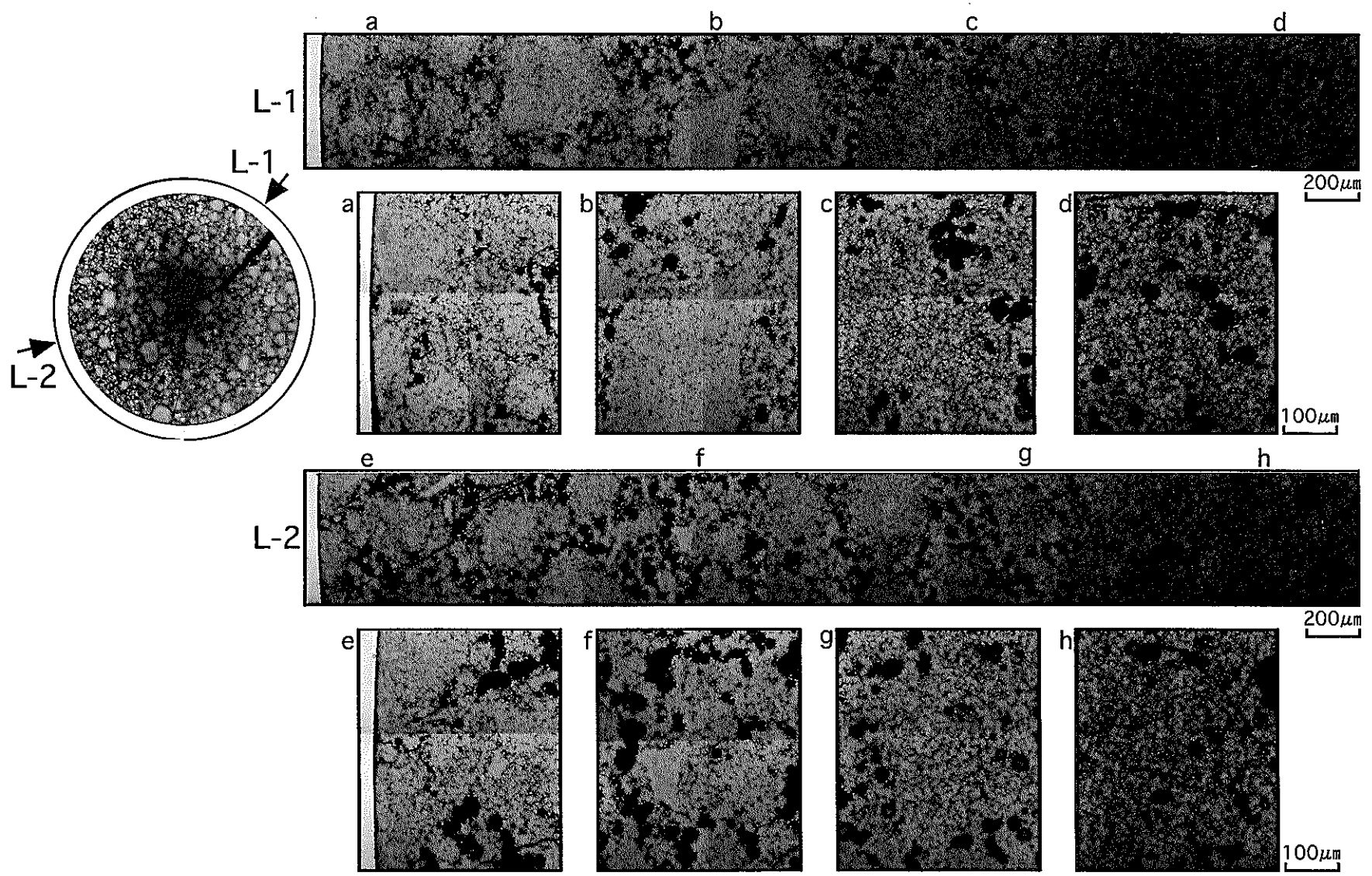


写真 3.13 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41423 [Etched]）

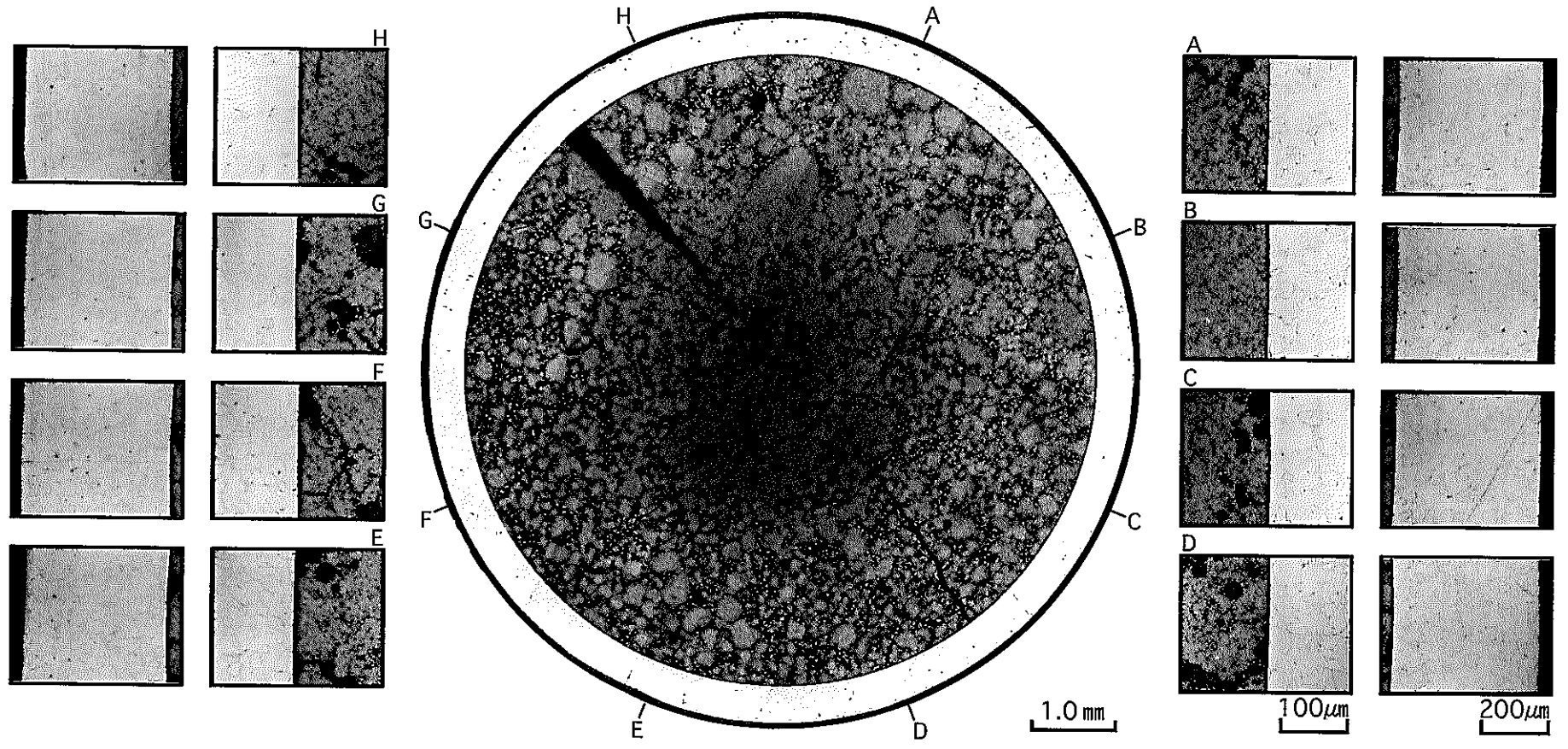


写真 3.14 光学顕微鏡写真（横断面全域，ギャップ，被覆管：L41441 [Etched]）

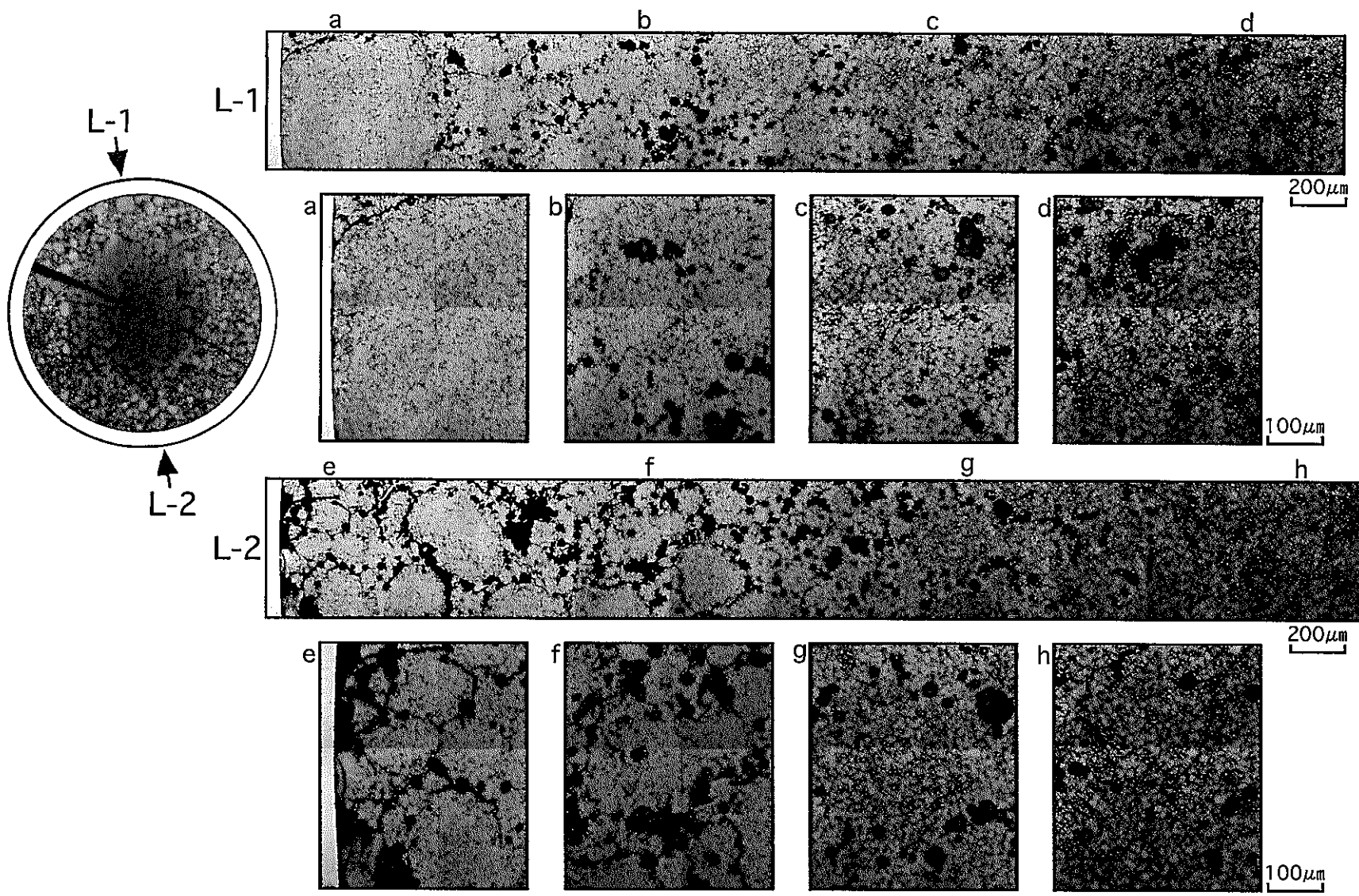


写真 3.15 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41441 [Etched]）

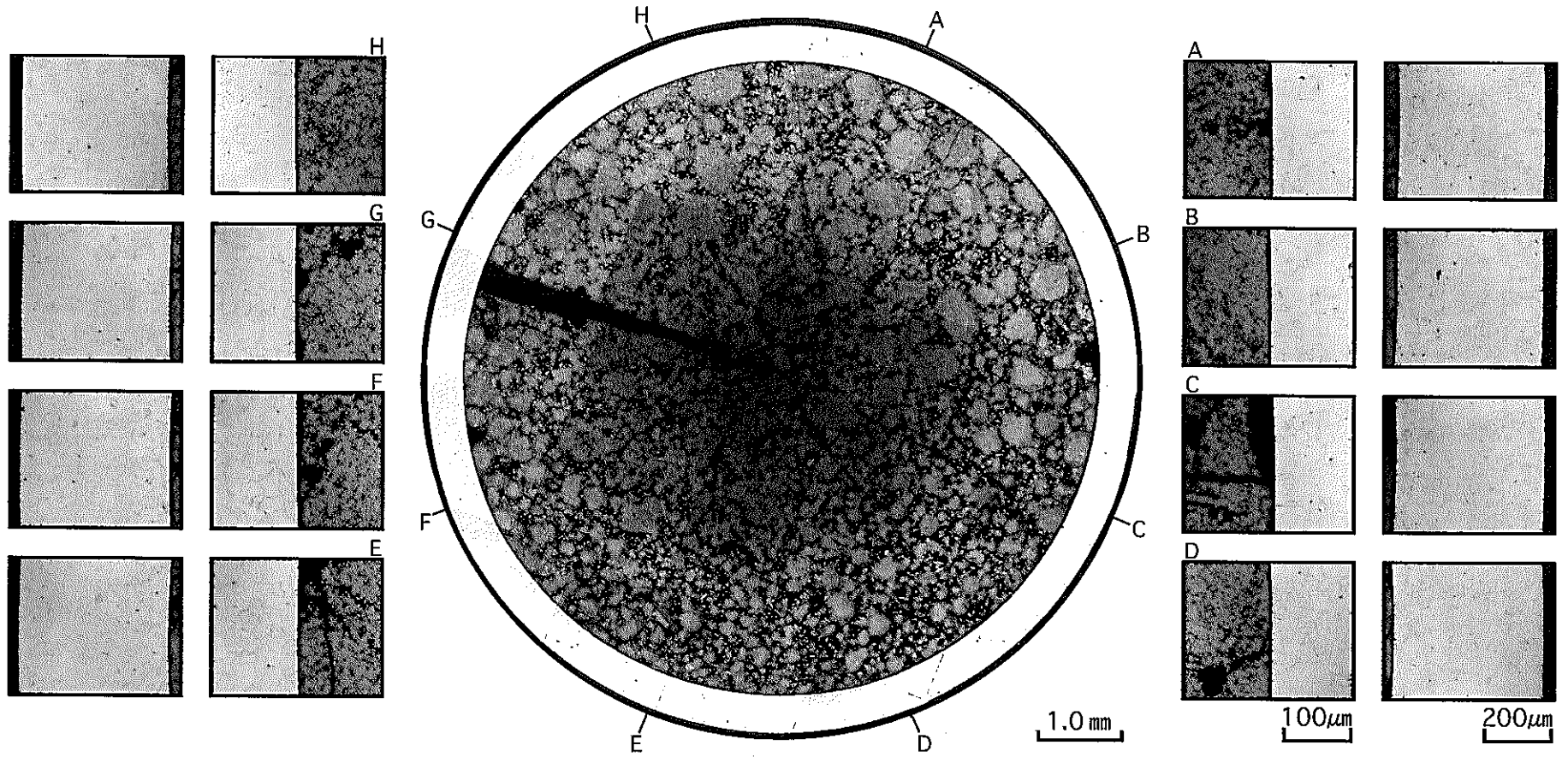


写真 3.16 光学顕微鏡写真（横断面全域、ギャップ，被覆管：L41452 [Etched]）

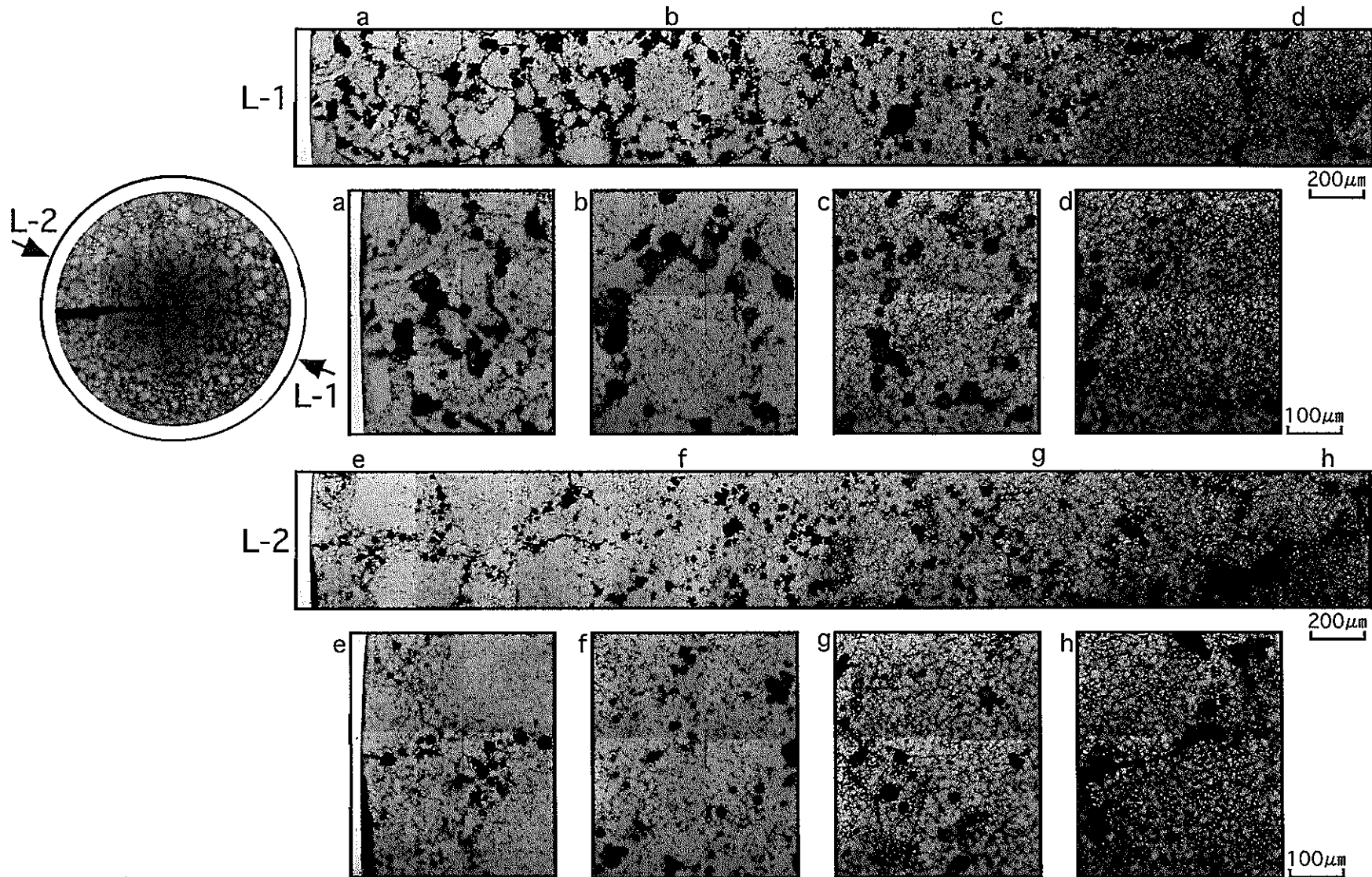


写真 3.17 光学顕微鏡写真（径方向スリット，スポット：L41452 [Etched]）

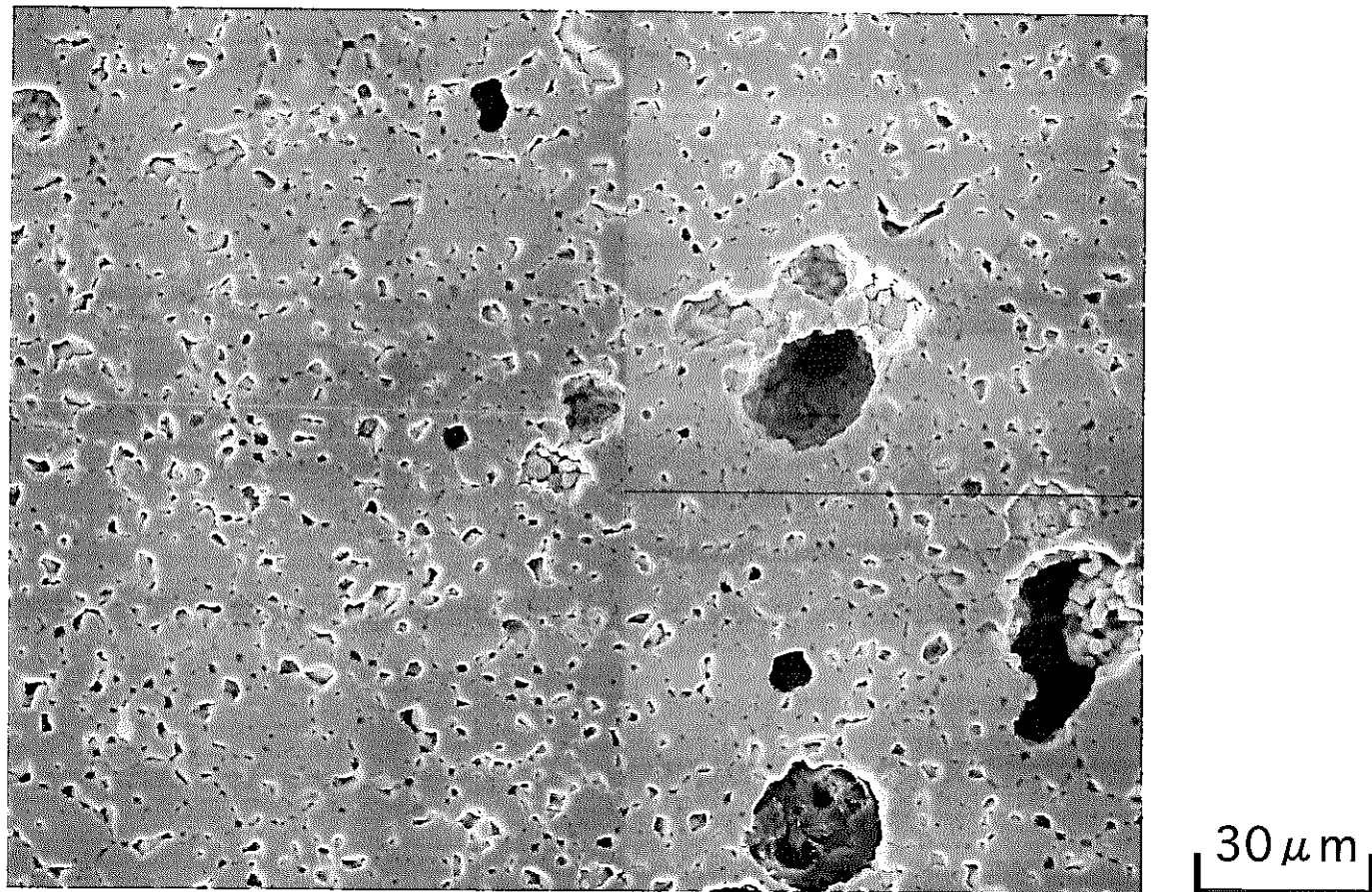


写真 3.18 燃料中心部の二次電子像観察結果の一例 (L41423)

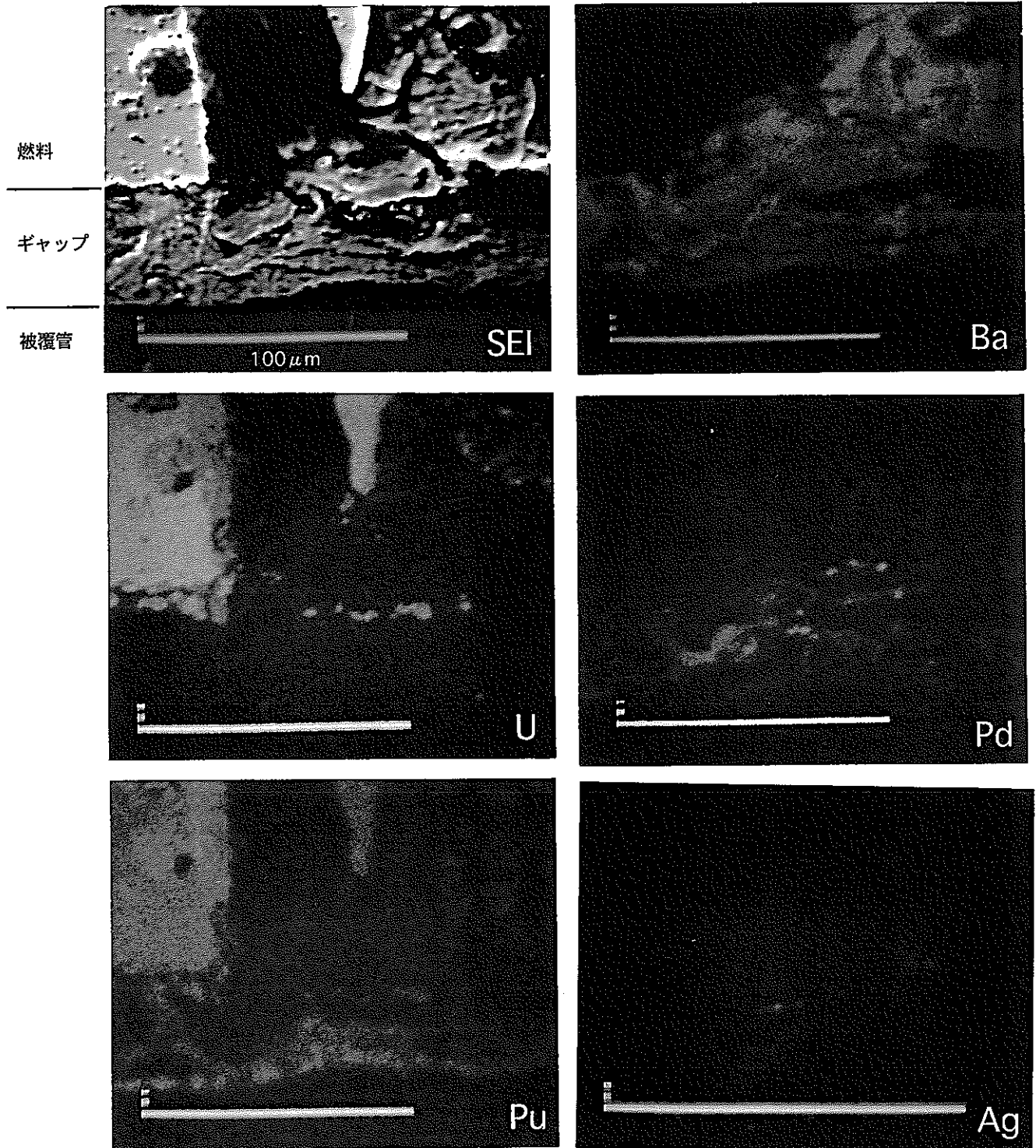


写真 3.19 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : クラック開口部 [1/2])

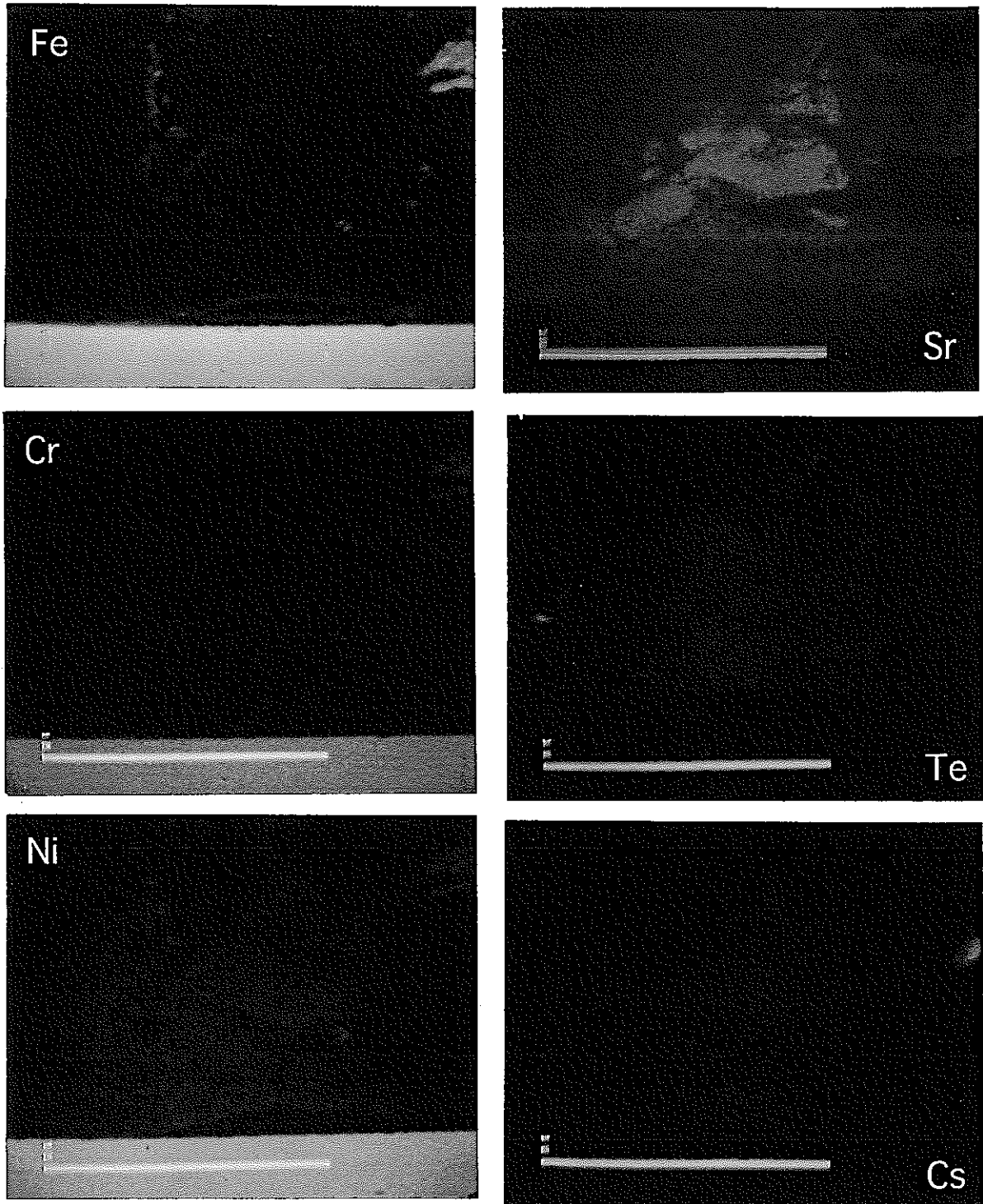


写真 3.19 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : クラック開口部 [2/2])

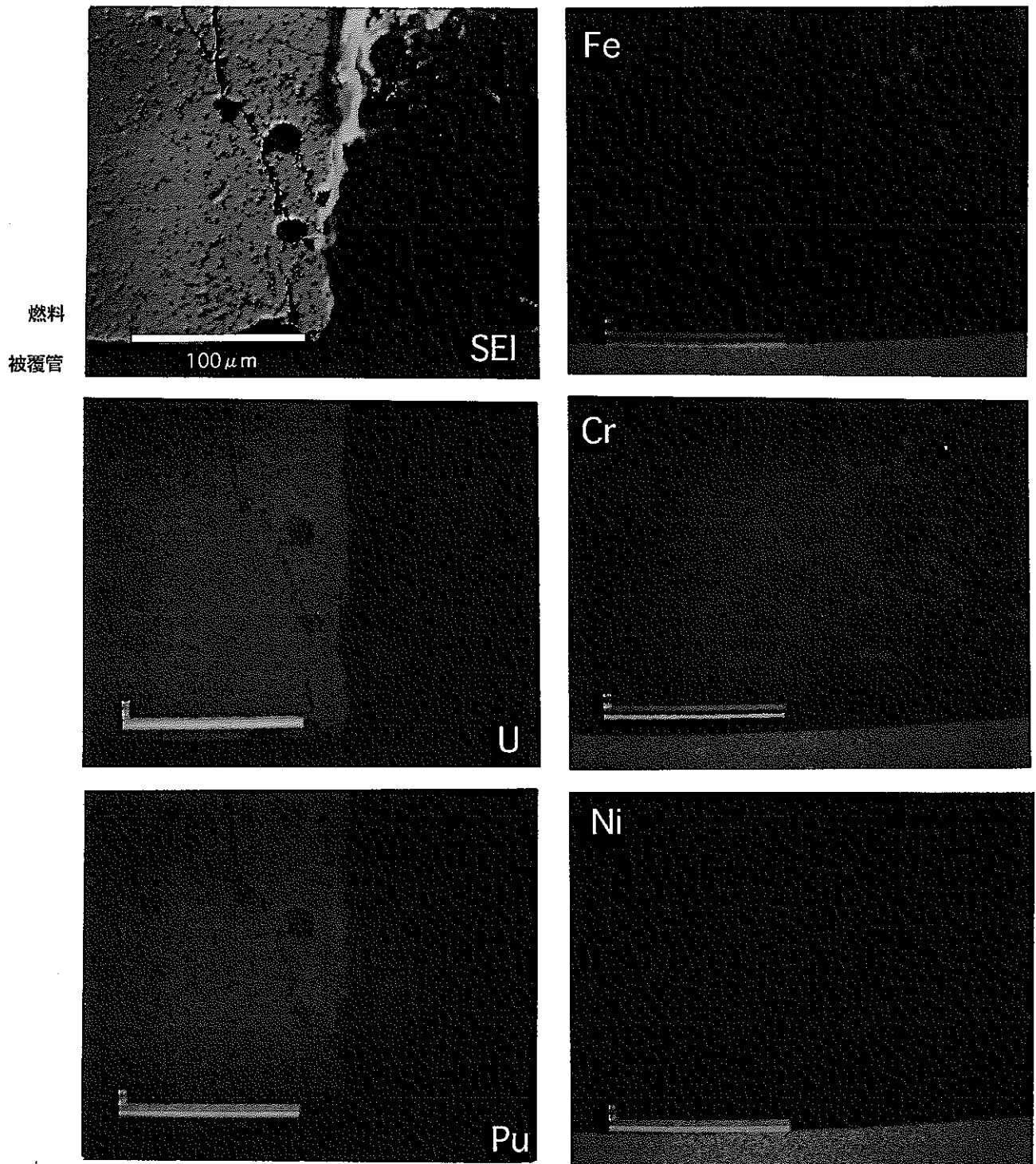


写真 3.20 二次電子および特性 X 線像 (L41423 : クラック開口部 [1/2])

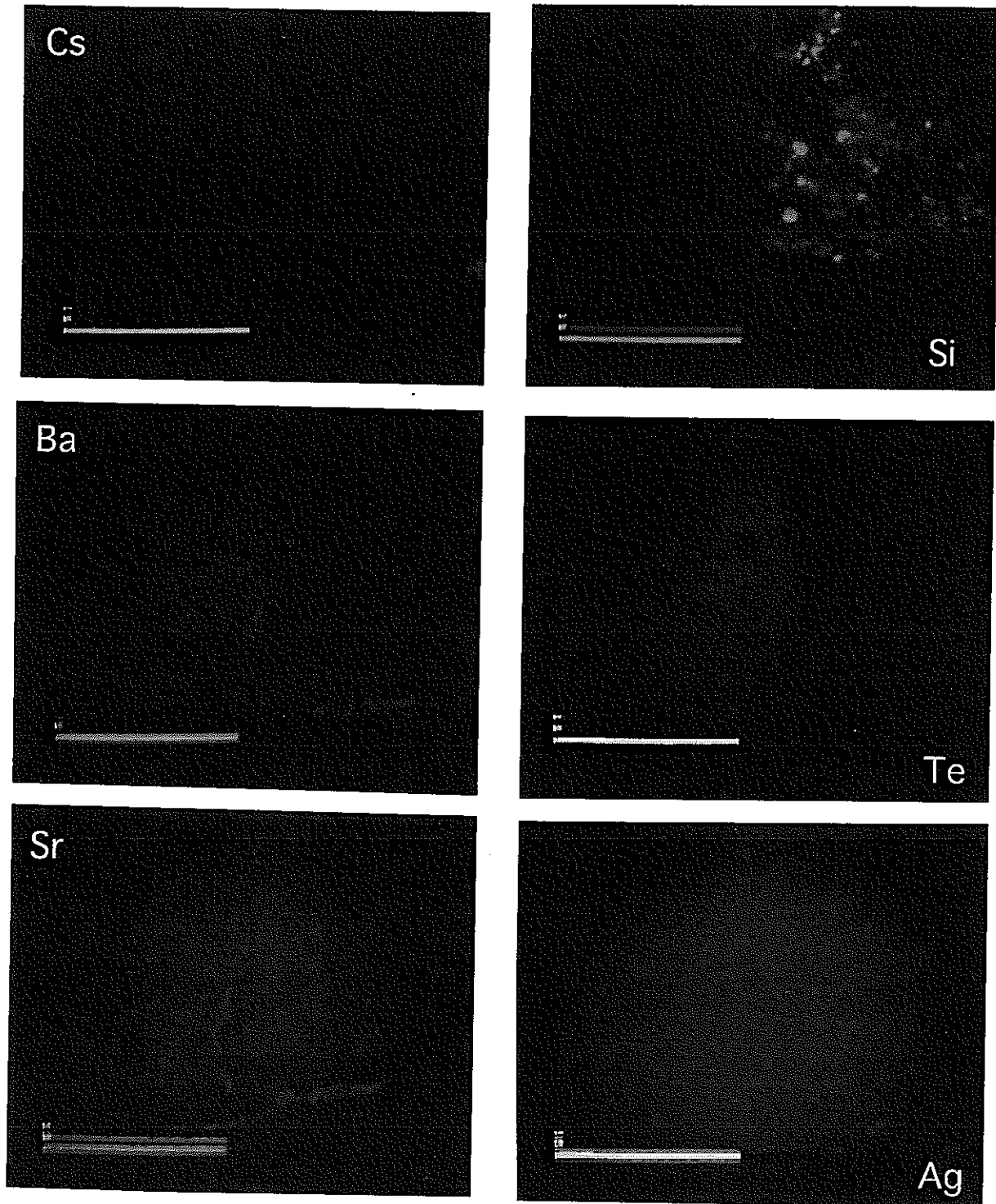


写真 3.20 二次電子および特性 X 線像 (L41423 : クラック開口部 [2/2])

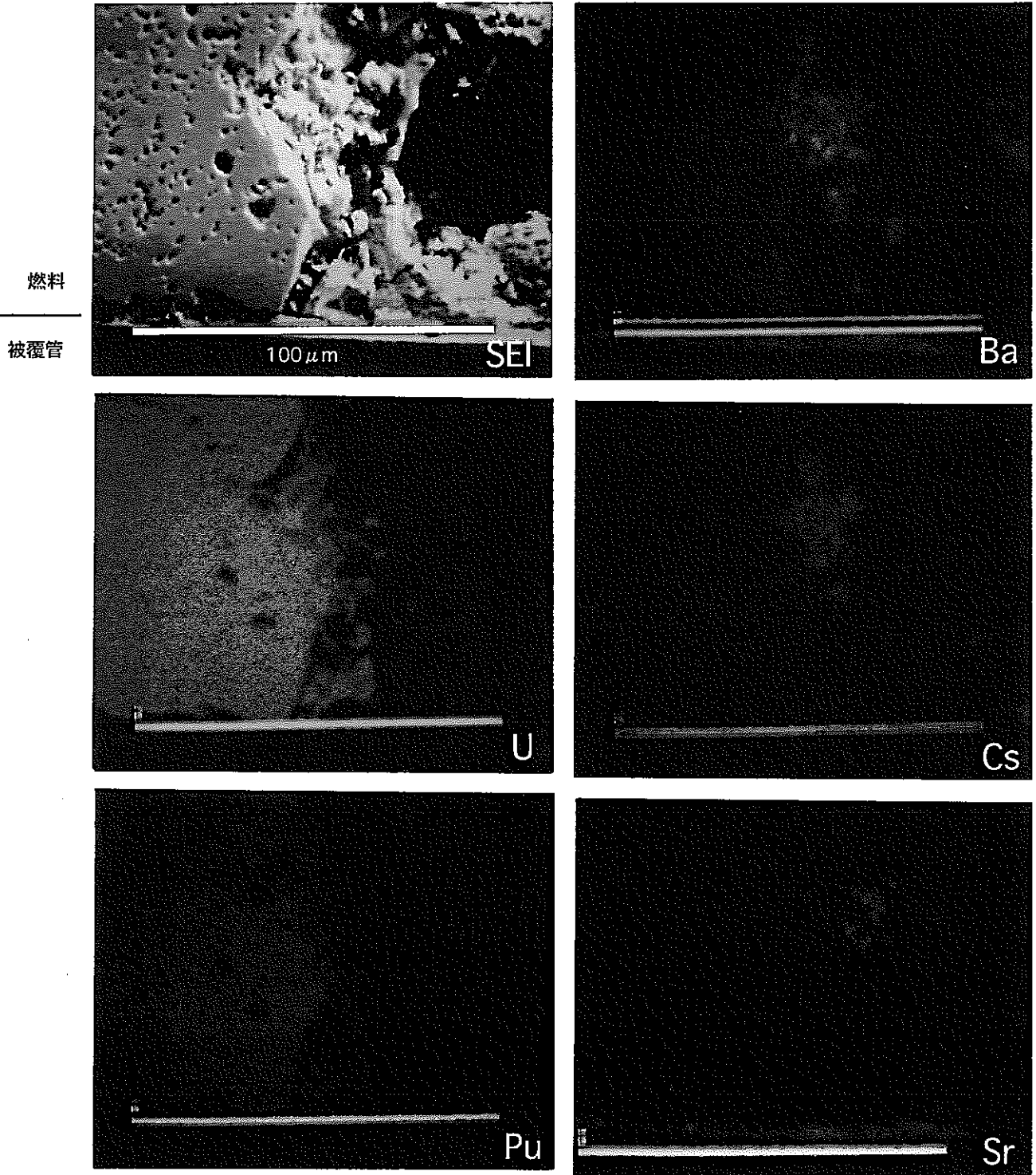


写真 3.21 二次電子および特性 X 線像 (L41441 : クラック開口部 [1/2])

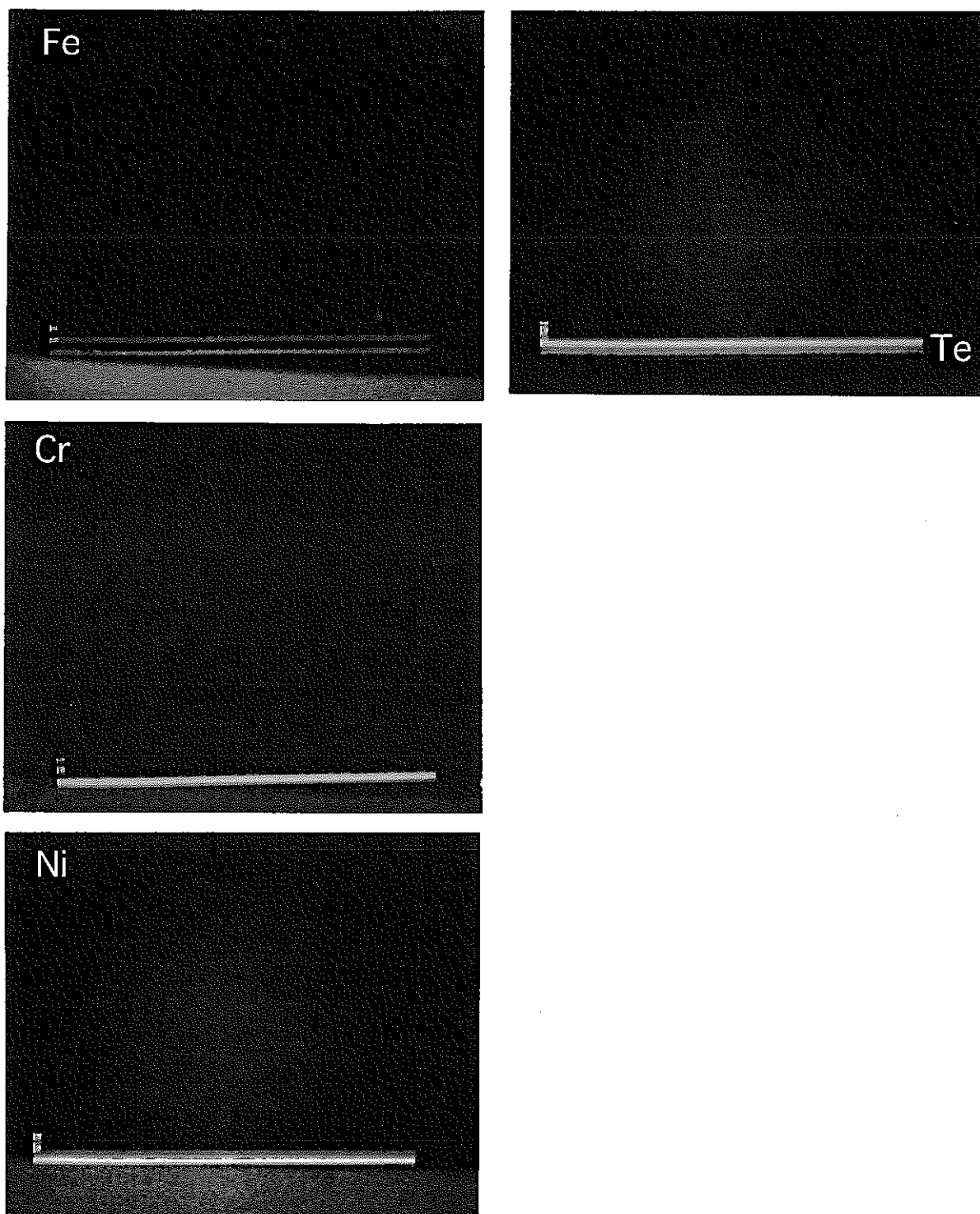


写真 3.21 二次電子および特性 X 線像 (L41441 : クラック開口部 [2/2])

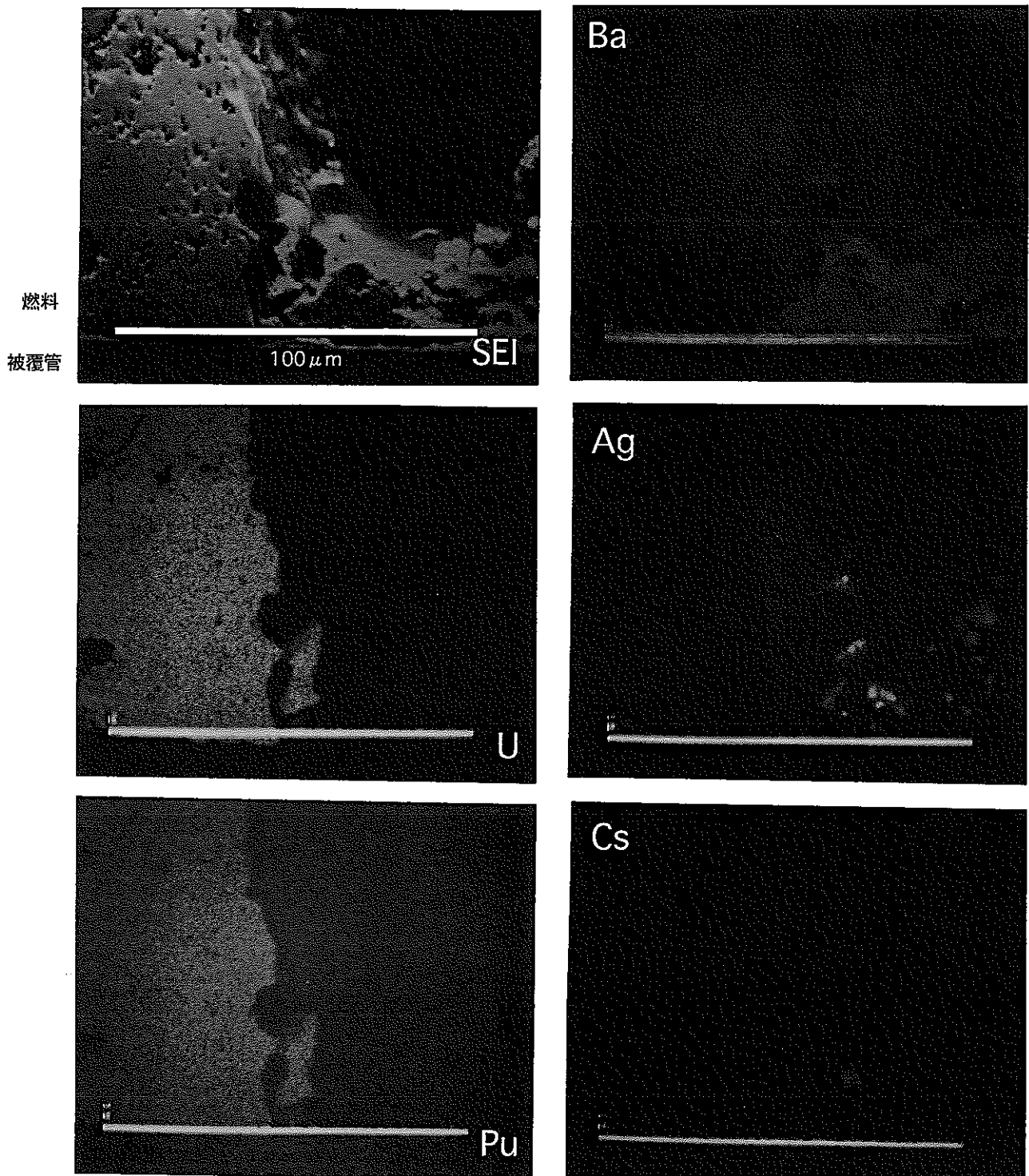


写真 3.22 二次電子および特性 X 線像 (L41452 : クラック開口部 [1/2])

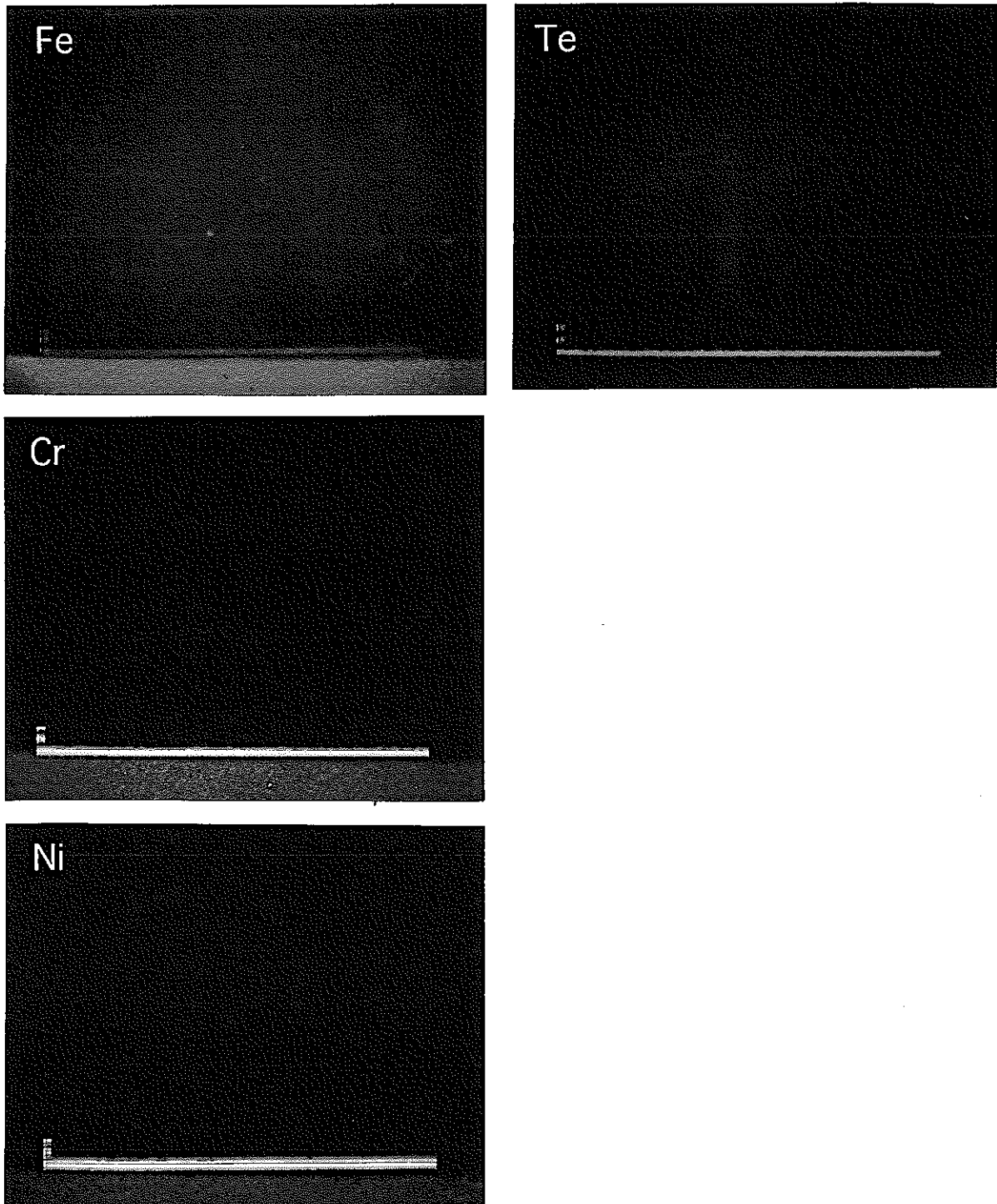


写真 3.22 二次電子および特性 X 線像 (L41452 : クラック開口部 [2/2])

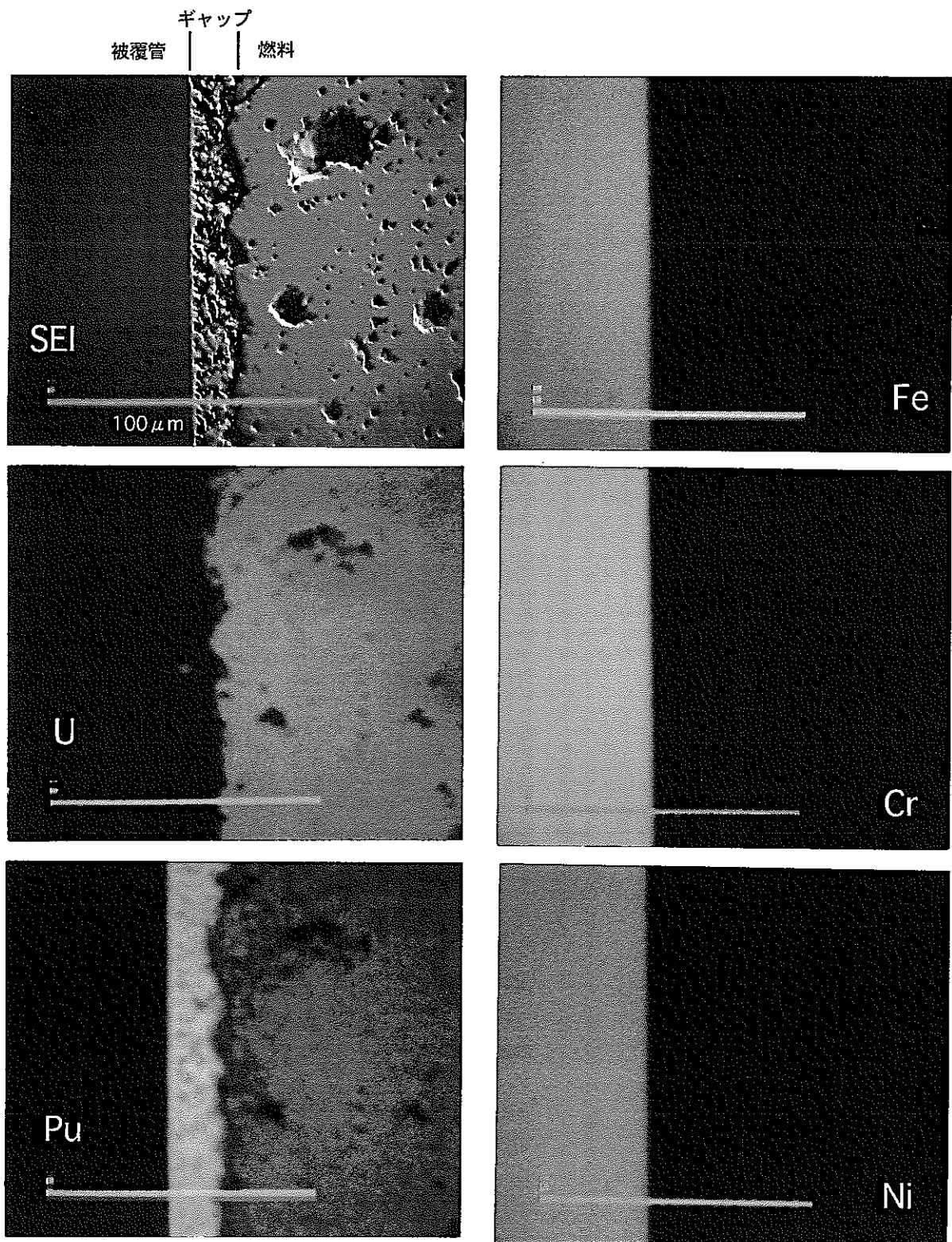


写真 3.23 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : ギャップ部 F[1/2])

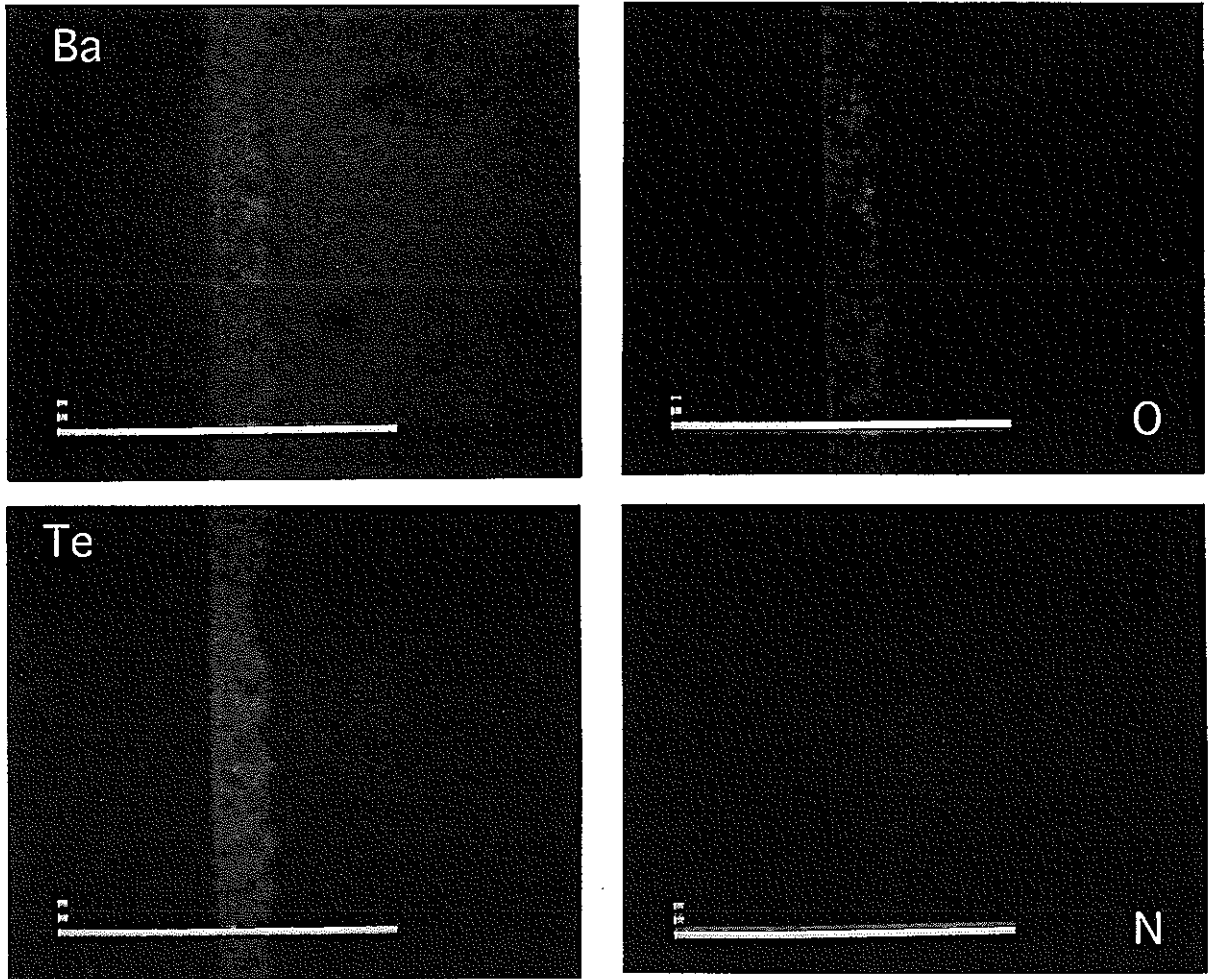


写真 3.23 二次電子および特性 X 線像 (L41332:ギャップ部 F[2/2])

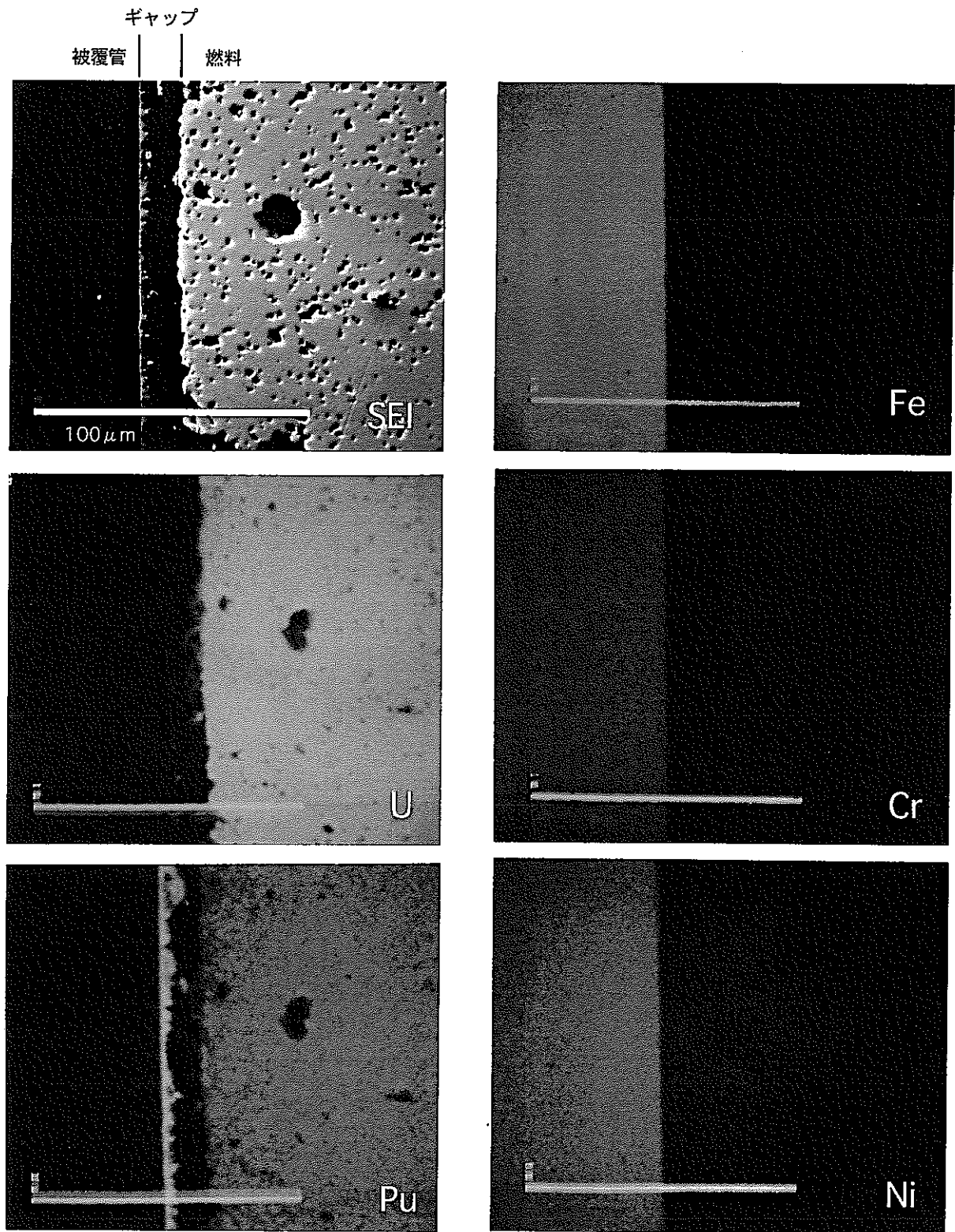


写真 3.24 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : ギャップ部 D[1/2])

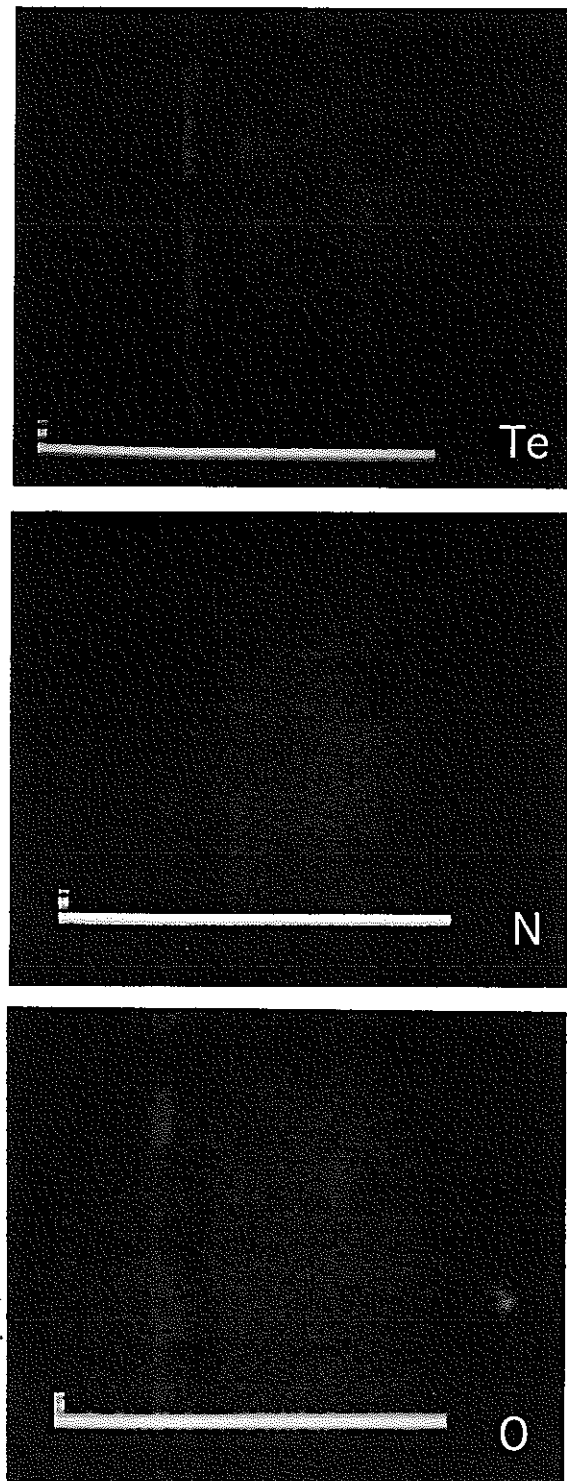


写真 3.24 二次電子および特性 X 線像 (L41332:ギャップ部 D[2/2])

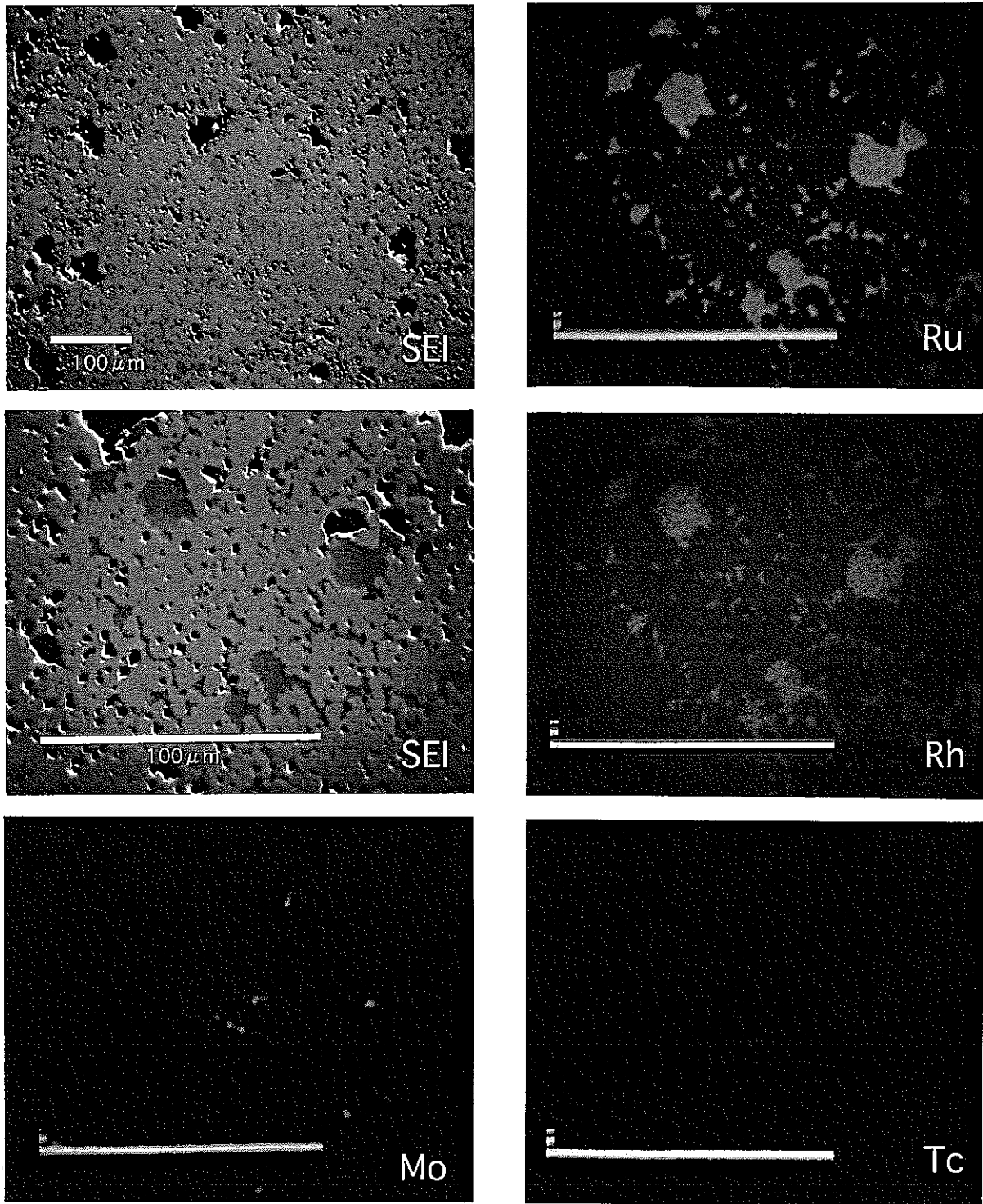


写真 3.25 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : 析出物 [1/2])

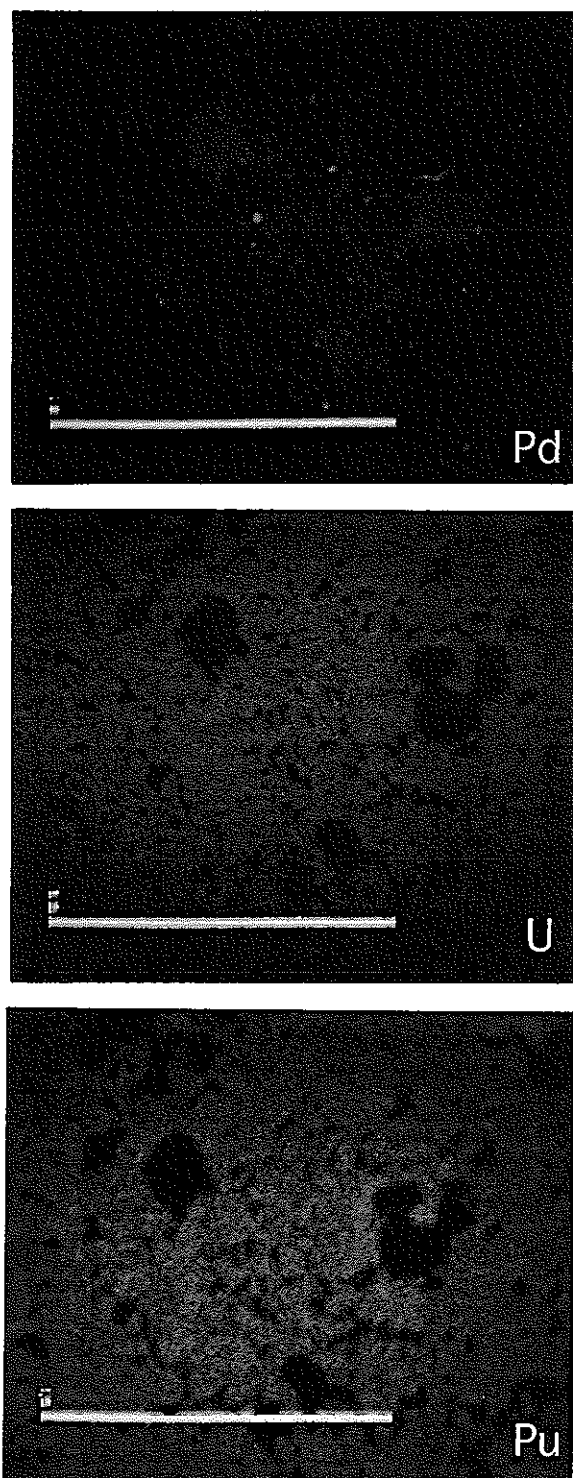


写真 3.25 二次電子および特性 X 線像 (L41332:析出物 [2/2])

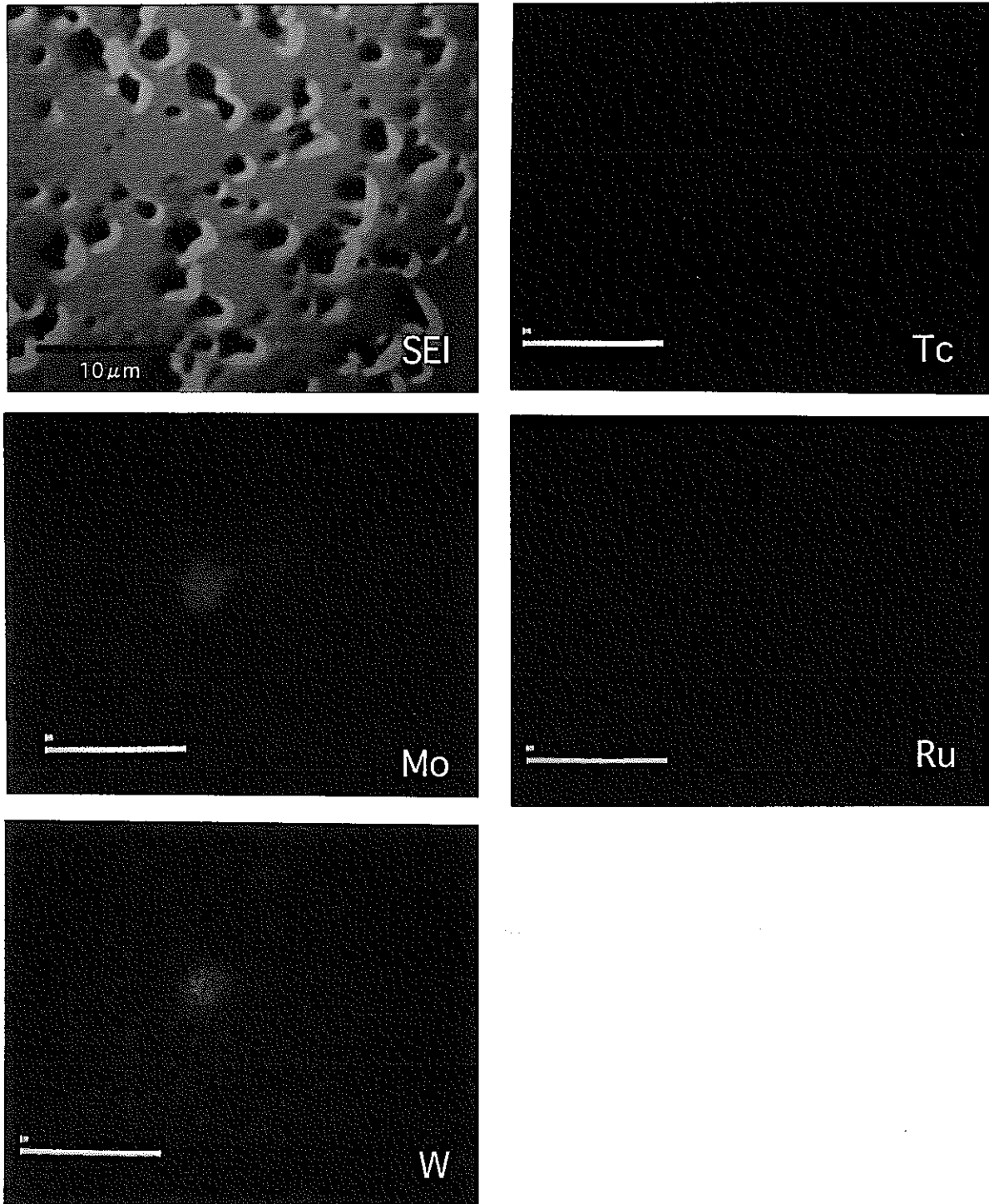


写真 3.26 二次電子および特性 X 線像 (L41423 : 析出物)

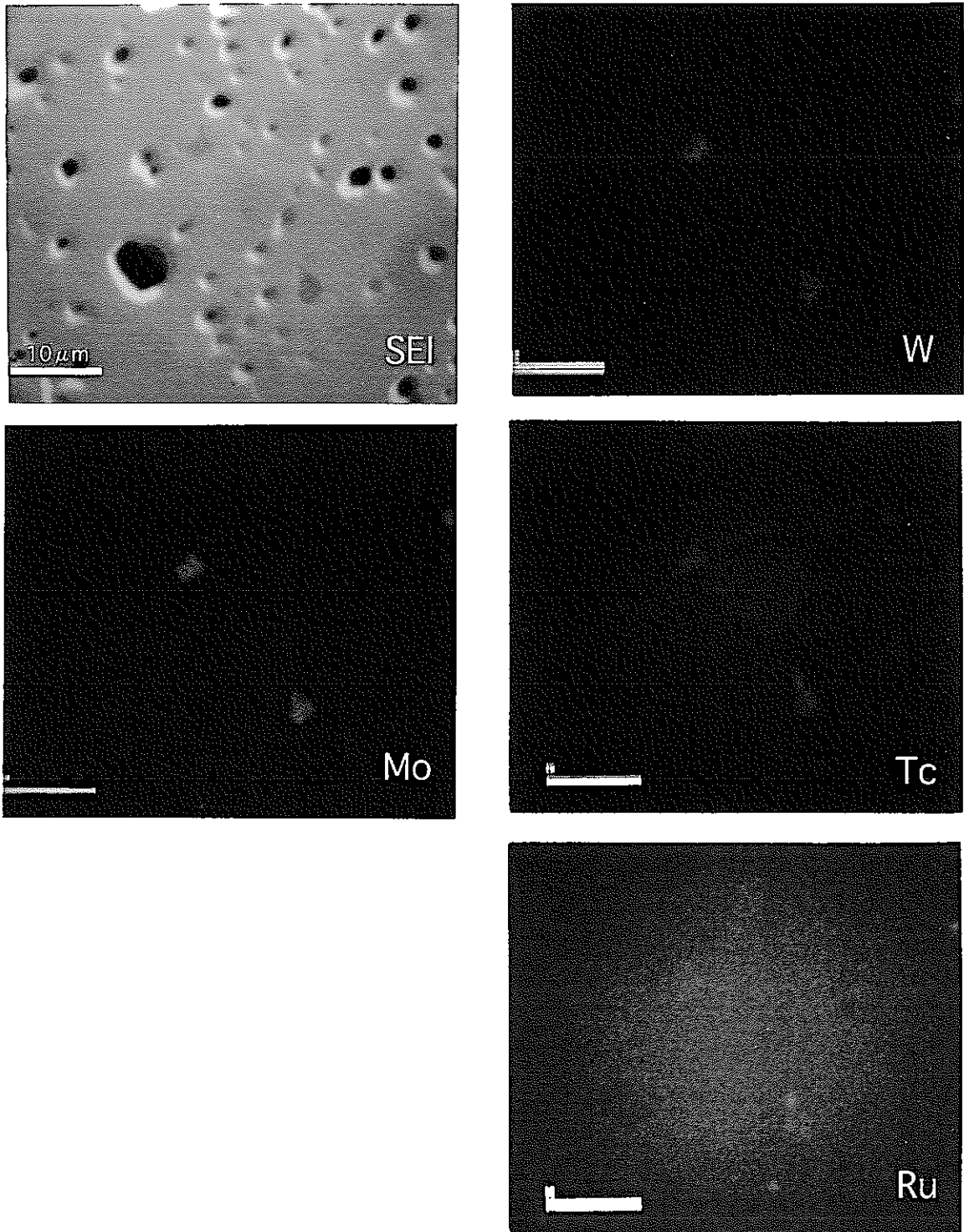


写真 3.27 二次電子および特性 X 線像 (L41441 : 析出物)

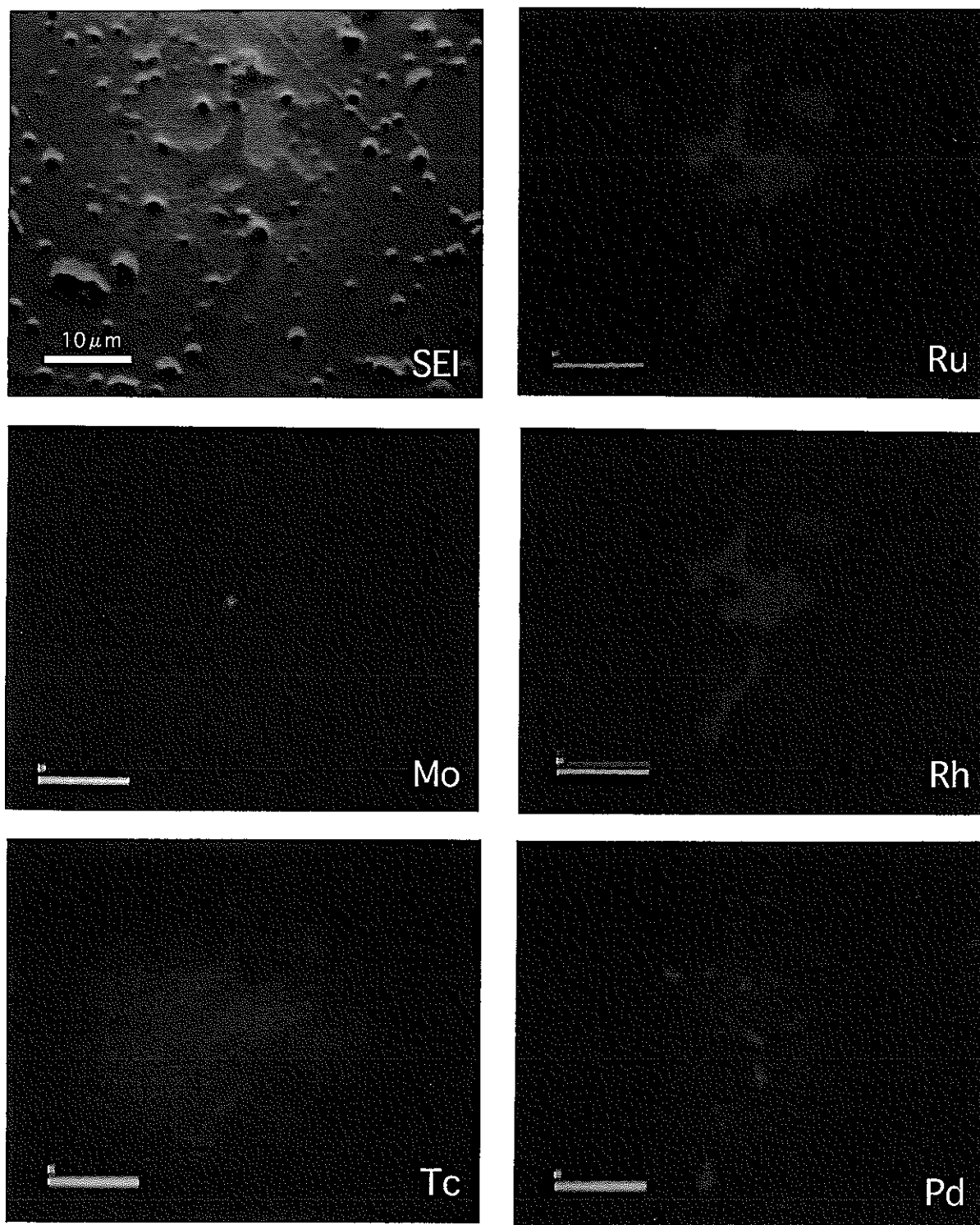


写真 3.28 二次電子および特性 X 線像 (L41452 : 析出物)

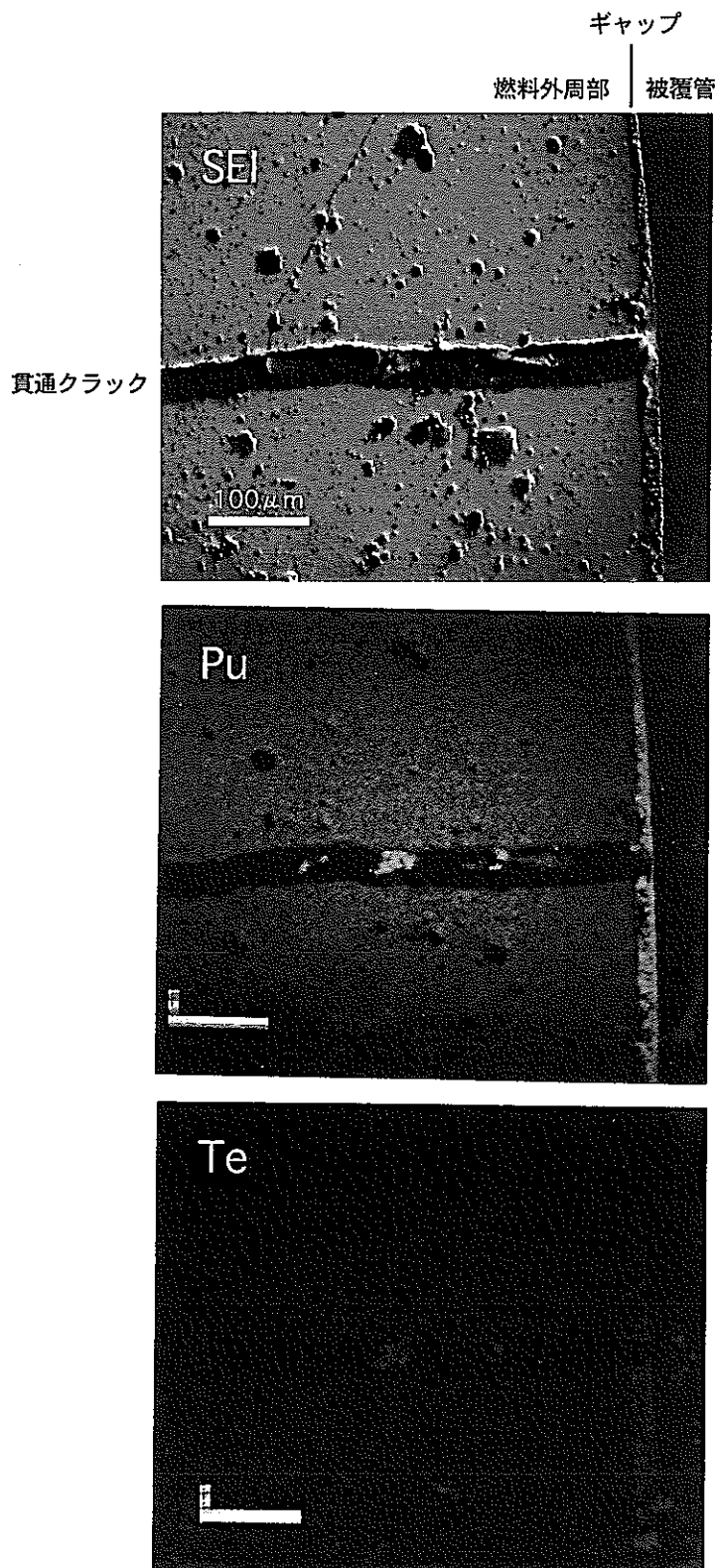


写真 3.29 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : 貫通クラック外周部)

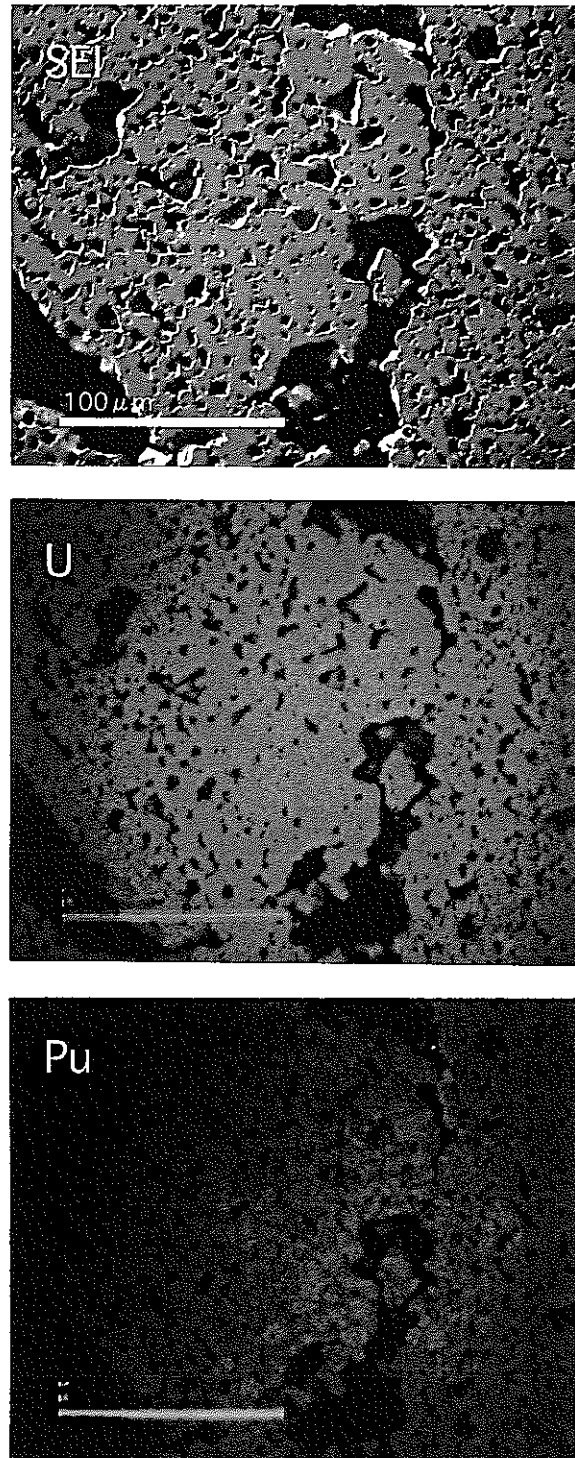


写真 3.30 二次電子および特性 X 線像 (L41332 : 貫通クラック中心部)

(付録)

「常陽」照射炭化物燃料ピンのバンクチャー試験結果

1 概要

サイクル機構—原研共同研究「高速炉用炭・窒化物燃料の基礎照射試験」の一環として、「常陽」照射炭化物燃料ピンのバンクチャー試験を実施した。

2 試験方法

試験対象ピンは、高速実験炉「常陽」において約40GwD/tまで照射された炭化物燃料ピン (L412ピン) である。この燃料ピンのプレナム部をバンクチャー試験装置により穿孔し、穿孔前後の圧力差から燃料ピン内のガス量とピン内容積を測定した。また、捕集したガス中のXeおよびKr量をガスクロマトグラフィーにより、Xe、Krの同位体組成比をガス質量分析装置によりそれぞれ測定した。

3 試験結果

表1に「常陽」照射炭化物燃料ピンのバンクチャー試験結果を、表2にガス質量分析結果をそれぞれ既に報告されている「常陽」照射窒化物燃料ピンのデータ[A-1]とともに示す。炭化物燃料ピンにおけるFPガス放出率は2.3%であり、窒化物燃料ピンにおけるデータ (3.3%および5.2%) と同様に、きわめて低い値を示した。

4 参考文献

[A-1] 勝山幸三 他, “高速炉用炭・窒化物燃料の照射後試験—燃料ピンの非破壊試験結果—”, JNC TN9410 2000-009, (2000)

表1 バンクチャー試験結果

ピンNo	ピンタイプ	最高燃焼度 (GwD/t)	平均燃焼率 (at. %)	ピン内容積 (cc)	ピン内ガス圧 (Torr)	ピン内ガス量 (cc)	ガスクロ分析結果 (%)						FPガス放出率 (%)
							Kr	Xe	Ar	N ₂	He+α	Xe/Kr	
L412	炭化物	40.1	4.27	9.61	881.17	11.14	2.0	17.4	0.0	0.0	80.6	8.63	2.3
L413	窒化物	39.5	4.20	10.79	1165.6	14.66	2.2	19.3	0.0	0.0	78.5	8.77	3.3
L414	窒化物	39.4	4.19	10.35	1311.8	15.58	3.5	29.8	0.0	0.0	66.7	8.51	5.2

*1 ピン内ガス圧およびピン内ガス量は標準状態 (0℃, 1atm) における値である。

*2 FPガス放出率に用いたFPガス生成量は、FPガス生成率と平均燃焼率を用いて算出した。
(FPガス生成量: FPガス生成率22.14cc-STP/at%×燃焼率4.27at%=94.5cc)

表2 ガス質量分析結果

	L412(炭化物)		L413(窒化物)		L414(窒化物)	
	同位体組成比 mol%	標準偏差	同位体組成比 mol%	標準偏差	同位体組成比 mol%	標準偏差
⁷⁸ Kr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
⁷⁹ Kr	0.562	0.125	1.227	0.089	0.709	0.049
⁸⁰ Kr	0.000	0.000	0.251	0.285	0.193	0.163
⁸² Kr	0.730	0.153	1.771	0.134	1.031	0.063
⁸³ Kr	15.598	0.218	15.323	0.243	15.473	0.227
⁸⁴ Kr	27.901	0.323	27.410	0.266	27.508	0.214
⁸⁵ Kr	5.770	0.141	5.854	0.141	6.025	0.090
⁸⁶ Kr	49.438	0.440	48.164	0.450	49.060	0.325
¹²⁴ Xe	0.000	0.000	0.020	0.021	0.025	0.002
¹²⁶ Xe	0.000	0.000	0.012	0.020	0.024	0.006
¹²⁸ Xe	0.000	0.000	0.050	0.004	0.030	0.002
¹²⁹ Xe	0.000	0.000	0.047	0.004	0.028	0.002
¹³⁰ Xe	0.078	0.005	0.082	0.004	0.075	0.003
¹³¹ Xe	14.823	0.154	14.800	0.086	14.870	0.113
¹³² Xe	22.682	0.200	22.882	0.104	22.371	0.063
¹³³ Xe	0.010	0.016	0.065	0.004	0.040	0.002
¹³⁴ Xe	33.314	0.175	33.253	0.214	33.381	0.215
¹³⁶ Xe	29.092	0.204	28.788	0.228	29.156	0.208