

JN 241. 70-43

開示制限

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 01.11.30 [技術情報室]

海外出張報告書

(ヨーロッパの部)

昭和45年10月

動力炉・核燃料開発事業団

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大字村松4番地49
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)

海外出張報告

概要

昭和45年5月下旬に英国DFR, フランス キヤダラッシュェ,
ベルギー Bolgonucleaire, ドイツの Jiilich, Karlsruhe,
マックスプランクを訪問し, 照射, 燃料材料開発を主として討議
してきたのでその内容について報告する

報告者 植松邦彦
久保田 正

(高速増殖炉開発本部)

目 次

A	D. F. R (英 国)	1
	3 3 2 / 2 照射後試験結果についての討議	1
B	キヤダラッシュェ (フランス)	6
	a) ラブソデイ照射情報に関する討論	6
	b) ラブソデイにおける P N C 集合体照射の照射後試験に関する打合せ	17
	附 属 文 書	
	(1) ミクロ機械加工による試料の調査	23
	(2) P N C 被覆管検査の結果 (最終報告)	47
C	Belgo-Nucleaire (ベルギー)	72
D	ユーリッヒ原子力研究所 (ドイツ)	81
E	カールスルーエ原子力研究所 (ドイツ)	88
F	マックス・プランク粉体金属研究所 (ドイツ)	92

A DFR (英国)

332/2 照射後試験結果についての討論

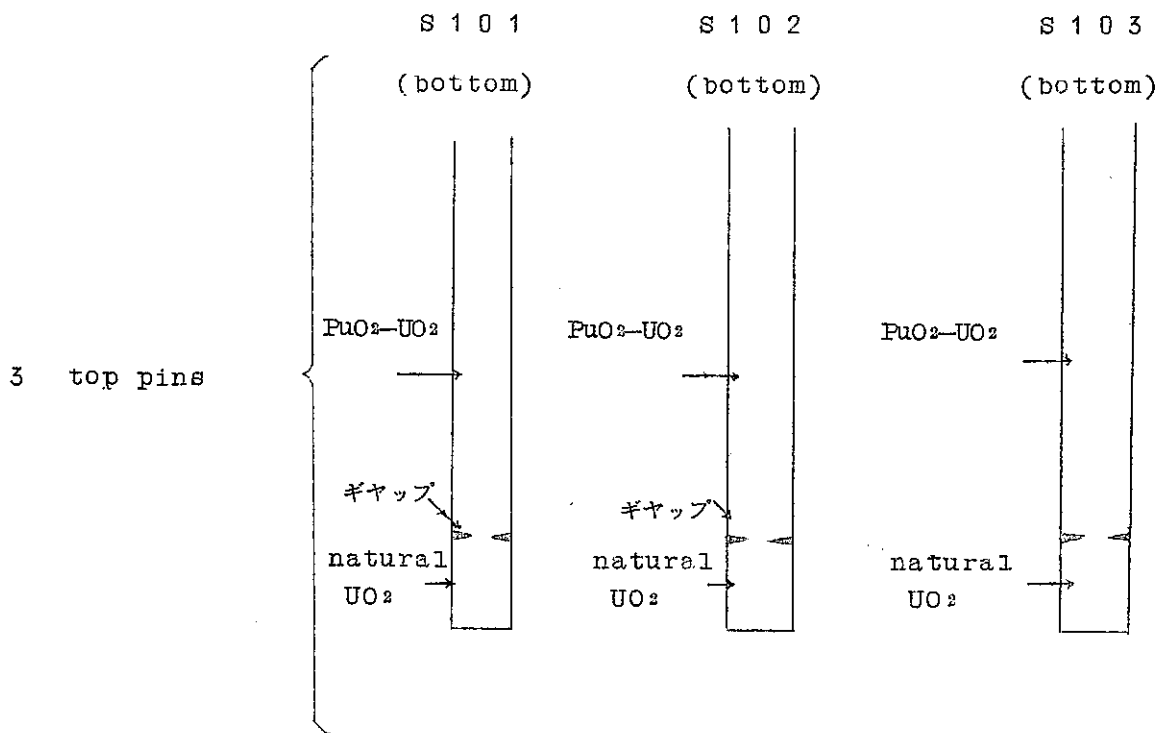
(DFRにおける担当者とのDiscussion)

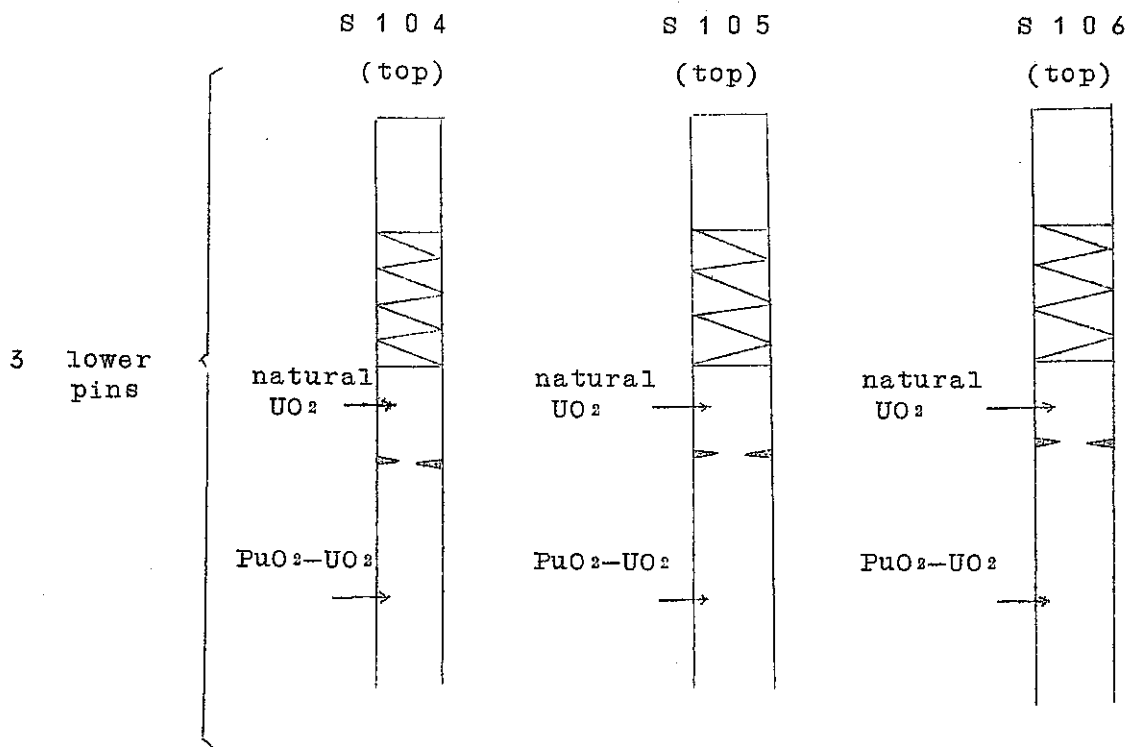
5月19日: Mr. W.M Sloss

1. X線ラジオグラフィー

次の図に示すように照射中性子束の最も大きい箇所における natural UO_2 ペレットと PuO_2 - UO_2 ペレットの境界にギャップの存在するのが認められた。

ギャップの巾は $0.5\text{ mm} \sim 1\text{ mm}$ 程度である。





2. 直 径

直径は全てのピンにおいて増加しているのが認められた。ただし増加量は最高が 0.0003 " で非常に小さいものであつた。

3. 長 さ

最高で + 0.007 in の伸びが認められた。

4. 重 量

ピンによつて相違し

+ 0.10 g ~ -0.009 の範囲にあつた。

5. 燃 焼 度

upper pin 1.20 %

lower pin 1.16 %

6. 分裂生成物ガス放出率

照射後ピンにドリルで穴をあけ、燃料ピンの中にあつたガスを採取し、マススペクトロメーターで分析し、分裂生成物ガス放出率を決定した。

Kr 83, 84, 85, 86 および Xe 131, 132, 134, 136 を測定した。

放出率は upper pin の最高が 23.2%

lower pin の最高が 29.1%

理論生成量は、1g の Oxide が 1% B.U で f-p ガスを、0.213 ml 生成すると仮定して計算した。
(NTP)

upper pin は 0.213×1.20

lower pin は 0.213×1.16

なお、Yield は U^{235} , U^{238} , Pu^{239} について 20% PuO_2 -80% UO_2 は 90% E.U の UO_2 に相当するとして thermal fission yield より計算したこの理論生成量は実際にペレット1ヶをとかして残留ガス量を測定することにより値の正しさを確認したとのことである。

7. r スキャニング

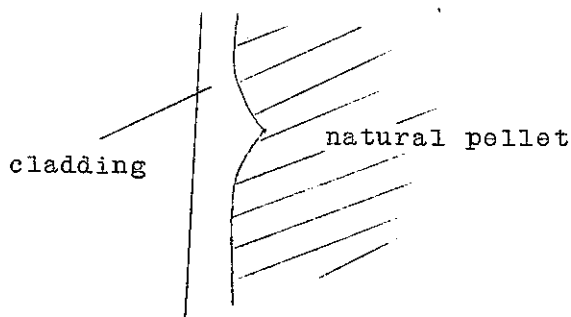
最も異常のみられたのは S106 のピンの top 側である。

Zr-Nb のスキャニングでは neutron flux の分布に応じて、r スキャニングの線は右上りになるはずであつてこのピンでも、その傾向は存在するが top 側の端部が急に高くなつて

いる。
この他、S.101 ピンの bottom にも 106 程ではないが特異なピークが存在した。

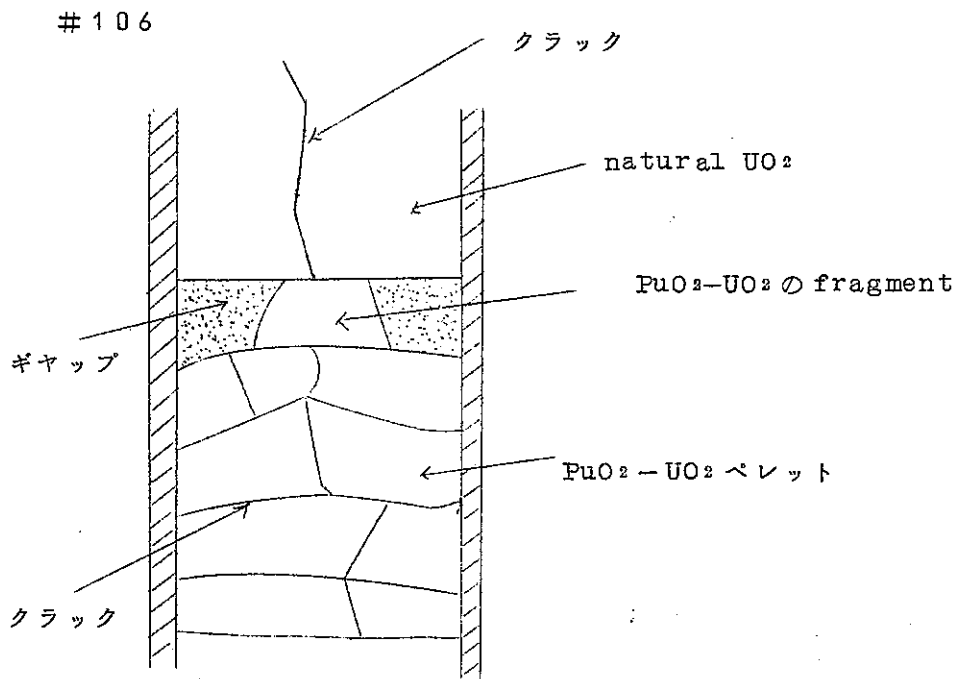
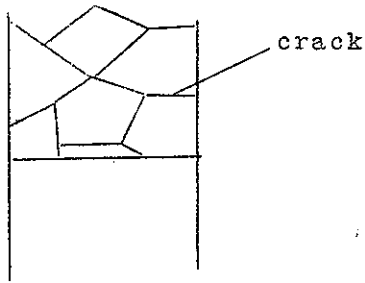
8. 光学顕微鏡

No 101



S/S cladding 内面に異常があり natural pellet の部分では内部に突起を生じていた。

γ スキャニングでみられた bottom 側の異常部の組織は、crack が存在するのみで等軸結晶粒成長あるいは中心空洞の発生は観測されなかつた。



X線ラジオグラフィーでみられたギャップの部分を上を示す。

natural UO₂ ペレットに隣接する PuO₂-UO₂ ペレットはクラックが発生しているが、柱状晶の生成等燃料が高温に達した時の現象はみられない。

中心部分の燃料の plastic flow によつてギャップができるのか、あるいは端部ペレットのクラック碎片がつまつてギャップができるのか、どちらかの理由によるものだろう。

なお、#106 ピンでも中心側ペレットでは中心空洞の発生、柱状晶生長等の高温における組織変化が明瞭に認められた。

なお、時間が十分になかつたため、代表的な結果のみしか見られなかつたが、近く、DFR

側で整理が終り送つてくることになつている。また D F R の照射後試験の技術，特に組織観察は米国なみに優秀であつた。

ラブソデイ照射情報に関する討論結果

問1 (I0)

照射したサブ・アセンブリーにおける茶色領域は照射中にできたのかあるいは、Na 洗滌中にできたのか、同領域に対する解析データはあるのか？
同領域の存在は集合体の挙動に影響するか？

答

洗滌の際の不手際でソーダが残りあるいは Canal に入れた時、水等あるので corrosion 等があつたのだと思う。

Analysis は行つてない。

内面は、きれいであり、問題は全くない。

問2 (I00)

2-1 Table 7 に示されているように pin 1029 内の H_2 , N_2 の量は他のピンのそれと比べてずつと大きい。

原因を説明して下さい。

答 照射後試験を行つている際、リークを生じたのかもしれないが、リークであつたとすると、存在量が air の composition に比例しない。従つて、データ自体に疑念を感じる。
焼結は、 $Ar+H_2$ 中に行つている。溶接は He 中に行つているので、 N_2 が入る可能性はない。

2-2

固溶の完全な試料と不完全な試料間の照射挙動に相違がないようにみられるが高燃焼度では、どうか？

答 二つの Batch について X 線回析をした結果、固溶の点で若干の相異を生じたわけであるが、照射挙動の点では同様であつた。

問3 (I000)

第2図に示されているが三つのクラックの中心に結晶粒成長がみられるが、その原因は何か？

答 grain boundary migration が最も大きな原因であると思う。

問4 (I-1)

ピンの低部にある茶色の deposit は何か？

答

問1と同じく洗滌の段階で生じた。

写真で見ると、きれいな表面である。

問5 (III-5)

5.1 "pre-series"と"series"について説明して下さい。

答

"pre-series"はfirst batch

93% T.D, high density, low gapである。"series"はswellingを考慮して密度を下げたもの89~90% T.D, low density, high gapである。

問5-2

"rectified"とは"center-less ground"のことか?

答 Conicalなものがありcenterless grindしたrectifiedとnon-rectifiedとの間には燃料の照射挙動としては相異がなかった。

問5-3

計算に使用したクリプトンのYieldの数値は?

答

文献をreviewして最もよいものを選んだ冷却期間について補正した結果、数値として0.28を用いた。

問6 (I-3)

6-1 5頁に記載の"pyro contact"について説明求む。

答

製品名である。

6-2

6頁の"l'Appare, la Bulles"について説明求む。

答 leak test Bubble apparatus

6-3 6頁のETALONとは?

答 Standardである。

6-4 6頁のPALPEURとは?

答 Sensorである。

6-5 13頁のFOYER 1.2×1.2とは?

答 Focusのことである。

6-6 F3のピンはcoreの方に曲つてるのか？

答 hot sideの方に曲る。

ただし数値的に問題ない。

問7 (I-4)

F.P 放出の記載事項につき40~50%の値は、計算した放出率の40~50%なのか、あるいは、放出率そのものなのか。

答 0.25 Atoms per fissionとして計算した値の40~50%ということである。

ドーンレーのデータ(6万MWD/T)と比較して30,000 MWD/TまではCEAの方が大となつている。

pre-seriesとseriesの燃料ピンについて放出率は殆んど同じである。

問8 (I-6)

SCHEMA No1の図の説明を求む。

答 ADACの装置を見てほしい。

これはrough machineでありreleaseがあつたかどうかを調べるのにはよい。

問9 (I-7)

F.P放出率の急激な上昇が2700 MWD/Tから10,000 MWD/T認められた。この上昇の主要な理由は、燃料ピン間の燃料温度の差と解釈してよいか？

答 その通りである。

問10 (I-8)

10-1

6頁のθ 23.03, 22.81 について説明して下さい。θの記載がないのですが。

答 Angle

10-2

cross sectionのscanning test, Falling test, neutron radiographyの記載があるが、データが示されていない試験結果をみることができるか？

答 データをみせてもらった。

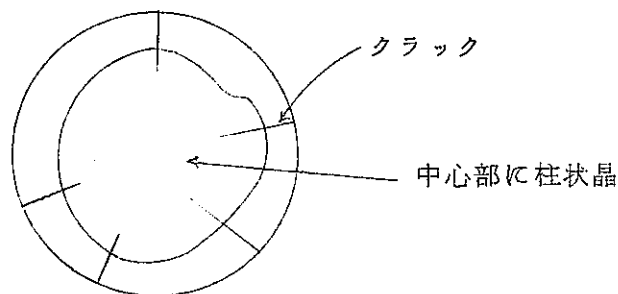
(そして、データをP.NC側にもらうために公式ルートで請求している。)

問11 (I-9)

報告中に顕微鏡写真をとつたと記載されているのみで写真がでていない。見せてもらえるか。

答 写真を示してくれた。sub-assemblyの中の方のピンの中心温度は外側のピンに比べて

若干高くなっている。柱状晶も成長し、クラックも認められる。



クラックは中心領域では heal out されて消失，外縁部のみが存在する

なお，これら写真の入手交渉は official route を通じて行うことになった。

問 12 (II - 1)

12-1

本報告によるとピンのあるものは冷却の不完全さによつて，カプセル中で破損したという。どういふタイプの破損が生じたのか説明してほしい。

答 冷却が不十分のため，被覆管が局所的に溶融した。その際，スウェリングによらず直径増加し，また溶融被覆管の droplet ができた。

12-2

ピン 5 および 7 の場合，モニターワイヤーの殆んどが破損した。

破損の原因及び，どういふ破損なのか説明求む。

答 モニターワイヤーの融点は 650℃ であるため局所的ではあるが，とけてしまった。ナトリウム中で測定された温度は，2 回の実験では 600℃ を越えていた。

12-3

他のピンでは r Activity が軸方向に一様であつたのに，ピン 6 では変化している原因は何か？

答 確実な説明は未だできるよつになつてない。

測定がピンのひずみによつて損なわれたということがありうると考えられる（測定的に r スペクトロの台のダイアフラムの前で，きちんとおかれていなかったかもしれない）

問 13

燃料コラムの長さは 2300MWD/T の照射では減少し，30000MWD/T では増加した。上記の挙動の原因を説明して下さい。

答 2300MWD/T のは pin の heat rating が低く annealing 効果がみられた。

問 14

F の意味は

答 flux depression である。

問 15

" Danieal " Capsule とは

答 1 Cycle irradiation 用の簡単なカプセルで, Daniel はコード name である。

問 16 (III - 2)

D 試料では pore の閉鎖によつて高温で微細構造変化を生じたのに対し A 試料では pore の移動で再結晶したという。D 試料では pore サイズが小さいため pore の migration が早く, その為緻密化が非常に早く進んだと解釈するのが適当ではないか。

" Chevron " 型の気孔の存在が, pore migration による柱状晶のあることを示している。

答 我々は, A タイプ, D タイプの試料の高温領域における構造の違いは, pore の移動プロセスの相異と十分関係あると考えている。

タイプ D → 表面の拡散

A → 昇華

よく知られているように現象の動特性には相異がありうる。特に微細な pore の存在する場合は densification は早い, しかし, このことは与えられた構造に何ら変化を加えない, 即ち柱状結晶粒の形状を変えないし, また等軸晶とならない。

問 17 (III - 9)

Tc < 2300 ~ 2400 °C の永久状態モデルに関して, 高速炉の場合には燃料中心に塊状結晶粒領域のあるというモデルには問題があるのではないか。

熱中性子炉であれば, 燃料中心では flux depression があるため, 高温の均一温度領域を生じ, 塊状結晶粒成長を生ずることはありうる。

しかし, 高速炉では, flux depression はなく燃料中の温度勾配は非常に急激であり, 柱状結晶粒領域が中心空洞につづくものと考えた方がよいのではないか。

答 このモデルについて述べた種々の形状は常に観察されたのではなかつた。それらの形状のうちあるものは運転の特殊条件に関係している。温度勾配による影響については次の点が注目される。

(a) 添付のグラフの示す通り熱中性子照射では殆んど等温な中央ゾーンが実際にあつた。し

かし、その大きさは小さいので、高速炉照射と熱中性子炉照射間に組織上大きい相異は現われなかつた。

- (b) 観察された構造上の比較では、使用された中性子の影響ははつきり現れていない。従つて得られた勾配の影響もはつきりしない。

問18 (V-1)

共存性実験は pot 中で行われた。

Na flow 中の挙動と差があるのではないか。

答 あると思うが、現在は pot の結果しかない。

問19 (V-4)

needle-like precipitate の分析データはあるか。

答 やつていない。

Questionnaire on Rapsodic Irradiation Reports

1. (I₀)

Whether the brown colored zone in the irradiated sub-assembly was produced during irradiation or during the cleaning of Na ?

Is there any analysis data on the zone ?

Does the existance of the zone affect the behavior of assembly ?

2. (I₀₀)

2.1 As shown in Table 7, the amount of H₂ and N₂ in pin 1029 is considerably larger than those of other pins.

Please explain its cause.

2.2 There appears no difference in the irradiation behavior between those specimens, which is composed of uniform solid solution, and the specimen, which is composed of incomplete solid solution.

How about the difference at high burn-up ?

3. (I₀₀₀)

In Fig. 2, what is the cause of grain growth in the center of three cracks ?

4. (I-1)

Why was the brown colored deposit formed in the bottom of pins ?
What is it ?

5. (III-5)

5.1 Please explain on "pre-series" and "series".

5.2 Can we understand the meaning of "rectified" as "center-less ground" ?

5.3 Please inform the numerical value of yield of krypton used in the calculation.

6. (I-3)

- 6.1 Please explain on "pyro contact" in page 5
- 6.2 Please explain on the apparatus " / 'Appare, 1 à Bulles" in page 6
- 6.3 Please explain on ETALONS in page 6
- 6.4 Please explain on PALPEUR in page 6
- 6.5 Please explain on FOYER 1.2 x 1.2 in page 13
- 6.6 Did the pin of F3 bent toward core side ?

7. (I-4)

Concerning F.P release description

Whether is 40 - 50%

the release reate itself or 40% - 50% of calculated release rate ?

8. (I-6)

Please explain on the figure of SCHEMA No.1

9. (I-7)

It is described that rapid increase of F.P release rate was observed from 2700 MWD/T to 10,000 MWD/T.

Can we understand that the main reason of the increase is in the difference of fuel temperature between the fuel pins.

10. (I-8)

10.1 Please explain on "Ø 23.03, 22.81" in page 6.
There is no explanation on 6 .

10.2 There are description of scanning test on cross section, Falling test, Neutron radiography, in the report.
While, no data is shown.

Can we see the result of testing ?

11. (I-9)

There are no micrographs in the report, whereas it is described that metallography was done.

Can we see the micrographs ?

12. (II-1)

12.1 It is described in this report that some pins have failed in capsule by the incompleteness of cooling.

Please explain what type of failure did occur in these pins.

12.2 It is described that in case of pins 5 and 7, the most part of monitor wire had failed.

How about the cause of failure and what type of failure did occur ?

12.3 In case if pin 6, γ activity varies in axial direction, while other pins have shown uniform activities.

Is there any clear cause for the behavior of pin 6 ?

13. (I-2)

The length of fuel column decreased in case of irradiation at 2300 MWD/T, while the length increased in case of irradiation at 30,000 MWD/T.

Please explain the cause of above described behavior.

14. (II-3)

Please explain the meaning of " F ".

15. (II-4)

How about "Daniel capsule"?

16. (III-2)

It is described that in D specimen microstructure change did occur at high temperature by closing of pores, while A specimen recrystallized by pore migration.

Is not it adequate to interpret the micrograph of D in such a way that the migration of pore is very fast, because of small pore size in this type of pellet, and the densification finishes very fast.

The presence of "Chevron" type pores shows the presence of columnar grain growth by the pore migration.

17. (III-9)

Concerning the model of permanent state of $T_c < 2300 - 2400^\circ\text{C}$, there may be problem to have massive grain region in the center of fuel in case of fast flux reactor.

In case of thermal reactor, flux depression in central part of fuel may produce high temperature uniform temperature range, which may cause massive grain growth.

But in fast reactor, where flux depression does not exist and temperature gradient in fuel is very sharp, columnar grain region looks to contact with central void.

18. (IV-1)

The compatibility experiment was done in pot.

Is there any difference in compatibility behavior in flowing Na.

19. (IV-4)

Is there any analysis data on needle-like precipitate ?

b) ラブソデイにおけるPNC集合体照射の照射後
試験に関する打合せ

5月22日

フランス側

Lucien HAYET 他 1名

ラブソデイにおけるPNC集合体照射の照射
後試験に関する打合せ

訪問前に次のような計画をCEA側に伝えてあつた。

Post irradiation program at ADAC and RM2

1) In ADAC (Cadarache)

1. Cleaning of assembly
2. Visual examination of assembly including photos
3. Metrology of assembly
4. Dismantling
6. Visual examination of all pins
7. Phofography of all pins
8. Metrology of all pins
9. r scanning of all pins
10. Cladding leak testing of all pins
11. X ray radiography of all pins (or neutron)
12. Temperature measurement of pins during Metrology
13. F.P pressure measurement of 29 pins
14. Packing and transportation of 5 pins , which F.P pressure measurements were not made at ADAC
15. Packing of the other pins
16. Packing of assembly pieces for return to Japan
17. Office space and telephone for 2 PNC engineers during examination period

2) In RM2

1. Boring into 5 pins for fission products
(measurement of total Volume)
2. Analysis of Kr and Xe isotopes on 5 samples
3. Cutting of 5 pins to 6 pieces respectively for each pin

4. Macrographies on 3 sections of each 5 pins
5. Micrographies (X 100) from the center to the periphery on one section of each 5 pins including Micrographies on cladding
6. 3 uranium and plutonium analysis (Nd)
7. Elimination of fuel pellets from 1 pieces of 4 fuel pins
8. Tensile testing of cladding of 4 fuel pins
9. Microhardness measurement of 4 fuel pins
10. Evacuation of residues
11. Packing of 5 pins and of the pieces coming from 5 pins for return to JAPAN or for reprocessing plant
12. Office space and telephone for 2 PNC engineers during examination period .

上記 PNC 側の提案に基づいて質疑応答が行われた。

(1) RM2の照射後試験

1. f-p 採取のためのボーリングは2400F/one sample である。
2. Kr および Xe 同位元素分析は500F/one sample である。
3. pin の cutting は PNC側で位置決定する。

11 日本への送り帰しの件はフランス側では問題ない。

その他 Optionalな項目としてRM2では次の項目を実行しうる。

① neutron radiography

6 days/ 4pins 2000FF

Triton 原子炉を使うので、ラヂオグラフィーの結果は鮮明である。

② Microsonde

ピン断面をカバーして、Pu, f.p のマイクロ損傷を行なう。

3 days/3 sample

6000FF/one sample

③ Microdrilling tor Spectrography

これは燃料の中に enclose された f.p ガスを調べるものである。

preparation 1600F

r scan 400F

isotopic analysis 2600F

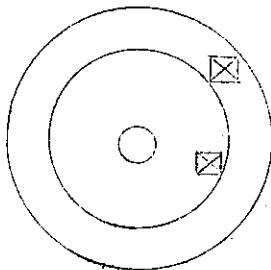
Diffnaction 750F

④ Xray diffraction on microsamps totrl cross sectionについて行い。

⑤ autroradio graphyは α および $\beta-r$ 共に可能である。

⑥ electron microscope

1500倍



⑦ Tensile testing 試料 120mm 長さ必要

⑧ 試験に必要な試料の長さは次の通り

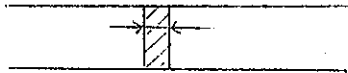
Pu, U, Nd の Anelgais には 5 mm 長の試料必要

micrography 5 mm " "

脱ミート

ultrasonic machine を使うので B4C (加工に使用) が入るので脱ミートした燃料の再処理は障害となるだろう。

⑨ sectioning の chip は 0.6mm 巾



⑩ density measurement

Liquid immersion で O.K 4500FF/fcr 1 sample

⑪ fission gases included volume 3200FF/one sample

⑫ PNC が、提案した照射後試験のうち RM2 の分は 1ヶ月あればよい。

(2) A D A C の照射後試験

1. (8) の metrology of all pins は profilometry

で 3 μ の精度で測定しうる

2. pin の r スキャニングは

longitudinal scanning

transverse scanning

different energy

3. Assembly の metrology は micrometer で測定する。

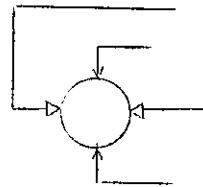
4. X ray radio graphy は

300KV.

燃料ピンの central void は見ることはできない。

5. Neutron radio graphy

central hole を detect し得るが、ただし、Ho + cell で行う方式なので余り



きれいな結果は得られない。

6. bubble test



cladding leak tentiny として安価で且つ早い

7. ADACのFP圧測定

pressureのみをはかる sampling も可能である。ただし、時々は失敗する。

laak は余りないだろう。

minimun reading は0.15 Kg

来年は、tube のつつこみでかく drilling 方式をとりいれようと計画を進めている。

附 属 文 書

マイクロ・機械加工 (micro uginage) による試料の調製

L. H A Y E T

CEA-Spu (プルトニウム製造部)

1970年5月25-26日 Cadarache における

ユーラトリウムホットラボ委員会に提出された報告文書

- 1970年5月 -

I 緒 言

照射したプルトニウム燃料要素の工学的、冶金学的試験をフオントネーオー・ローズの放射能冶金学実験所で行った。"RM2"で検査する燃料要素は次の3グループに分けられる。

- 照射実験試料(熱中性子照射)
- Rupsodie, Fortissimo (燃料ピン)
- 高速中性子による照射実験試料

1965年以来、照射後試験のオリエンテーションは燃料、被覆管、照射カプセルについての微細分析に向けられている。

特に、分裂生成物、Stoichiometry、燃料と被覆管間の反応、その他の研究には微量試料の採取を必要とする。

主要な試験と試料採取の基準は次の通りである。

1.1 - 試 験

1.1.1 - 照射カプセル

実験用照射カプセルは $(U, Pu)O_2$ 、 $(U, Pu)C$ 、 $(U, Pu)CN$ 等の燃料、熱媒体用のナトリウム(又はNaK)で構成されている。

1.1.2 - 燃料と被覆管

高速中性子炉の燃料要素 $(U, Pu)O_2$ 、 $(U, Pu)C$ の幾何学的形状は、燃料ピンの直径が10mm以下であることが一般的である。100,000MWD/tまで燃焼するピンの直径は4~5mmであり、非常に小さな体積中に α 、 β 、 γ 放射能のPu、 U^{235} および分裂生成物を大量に有している(例えば、数 mm^3 の試料側面で 10^8 R/h)。

下記の研究を目的として微量を採取するため絶えず努力を行つている。

- プルトニウム移動(径方向の分布)
- 燃料-被覆管間の反応
- 燃料中の分裂生成物の分布
- 被覆管への分裂生成物の拡散、および被覆管の組成の改良
- ナトリウムの存在によるパーターベーション

これらの研究は第1表に掲げた試験項目に従つて行われる。

1. - 2 試料採取

試料採取に必要とすることは、正確な位置決定、極わめて高い精度、迅速な調製である。

1. 2. 1 位置決定

マイクログラフィー、オートラジオグラフィー、アイソトープ分析径方向分光分析等の試験は nvt と関係がある。したがって、試料の位置は mm 以下の精度を以て確定されなければならない。実験に用いるカプセルの構成要素に対しても同様である。

1. 2. 2 精 度

精度は非常に高いことが必要である。すなわち、径方向断面につき、以下に掲げるさまざまな領域での微細試料、採取に対して $1/10 \sim 1/100 \text{ mm}$ まで必要である。

- 被覆管
- 燃料-被覆管の反応領域
- 等軸結晶粒
- 柱状結晶粒
- 中心の非常に高密度の領域
- 溶融領域
- Inclusion, 分裂生成物

1. 2. 3 工程管理

ミクロ試料に対して、有効な測定を行うため代表的採取を行うことが必要である、すなわち、一部はセルで各種の操作をなすときの汚染検査用、また他の一部は操作できる放射能の検定用である。

1. 2. 4 時 間

粉末 (O/M) を採取して、結晶パラメーターを測定する際、酸化による問題を考慮せざるを得ない。われわれの場合、試料・調整の始めと測定 of 終りの間に経過する時間として約5時間を必要とした。これらの条件では結晶パラメーターの変化はなかつた。なお、われわれは、短時間 (10時間) 内の空気中の酸化または機械加工のとき生ずる温度については、何ら困難な問題に直面しなかつた。

II 装 置

2.1 旋 盤

各種試料の調整のため旋盤がセル No 2 にとり付けられている。この装置には沢山の付属装置、ダイヤモンド砥石、切取り装置、ドリル、ダイス (lunette) 試料・ホルダー、特殊工具、等がついている。

(figure 2 参照)。

この旋盤の作業面は $1.2\text{ m} \times 0.6\text{ m}$ で、高さは 0.25 m 、重量は 200 Kg である。1つのダイスを用いて長さ $1 \sim 2\text{ m}$ の燃料要素 (またはカプセル) に対する作業が可能である。

旋盤で行われる主な作業は次の通りである。：

- 環状 (または径方向) 切削 (ダイヤモンド砥石)
- 縦方向切削 (ダイヤモンド砥石による)
- チップの採取 (在来型工具)
- 燃料の穴あけ
- Na の回収のため、カプセルの穴あけ

2.1.1 環状切削 (径方向) (figure 3 c, d)

環状・切削は、厚さ 0.6 mm 、直径 70 mm のダイヤモンド・焼結・砥石 (平均粒度 85μ) を使つて、行われる。

砥石は回転速度が 9000 r.p.m. (電力 $60 \sim 80\text{ ワット}$) の小型電動機によつて駆動される。

砥石・モーターの集合装置はバイト・ホルダ・タレット上に固定されたマイクロメーター・テーブルへ据えられる。

この装置全体の主要特性は次の通りである。：

- 直径 (マンドレルについて) : 長さ 600 mm に対して 120 mm
長さ 600 mm 以上に対して 60 mm
- マンドレルの回転速度 : $125, 250, 500\text{ tr/min}$
- チップの吸引 : ボックス, フィルターおよびアスピレーター
- 機械加工 : 専ら, 乾式
- マイクロメーター・テーブル : 行程 20 mm
深度 10 mm

- タレット : 軸に平行移動 : 600 mm
- 移動テーブル X : 100 mm
- 移動テーブル Y : 75 mm

2.1.2 縦方向切削 (figure 3e)

“ 砥石 + モーター + マイクロメーター・テーブル ” の装置全体は (2.1.1) の装置と同一特性であるが、取付けだけ 90° 異なる。

燃料・ホルダー・装置によつて、試料の全長と反対側の両面の機械加工ができる (figure 3f)

2.1.3 チップの採取

チップの採取は、外部表面仕上げ、内部表面仕上げ、切取り式の在来型施盤工具を使つて行われる。チップは小さなバックを使つて回収する各点での穴あけによつて、チップを採取することが考えられるが、まだ開発されていない。

2.2 急速切断装置

プルトニウム燃料の直径は小であり、長さが大であるため、われわれの、No 2 セルで用いる切断工具は通常 (径方向) の切削と縦方向一切削の可能な小型機械である。

2.2.1 a) “ 径方向 ” の通常切削 (figure 4 a)

われわれの使用する機械は小型の簡単なもので、モーター、砥石、万力の全体含めて $2 \sim 3 \text{ dm}^3$ 以内であつて標準型で、価格も極わめて低れんである。切削・位置定め寸法は $\frac{1}{10} \text{ mm}$ 程度の精度をもつて得られる。

切断装置附属品は以下の通り

- ダイヤモンド砥石 - 直径 : 90 mm
 - 厚さ : 6/10 mm
 - 回転速度 : 6500 tr / mn. (r.p.m.)
 - 滑車とベルトによる伝動付き電動機
 - 試料の固定 : 急速シャッターによつて閉じられる種々の直径用つかみ調整されるスリット (7/10 mm) によつて砥石を通過させることができる。
 - 位置定め (positionnement) : $1/10 \text{ mm}$ を示す回転速度計・読取り装置をもつ電動機によつて行われる。
 - 潤滑 : 水 + アルコール噴霧 (500 gr のコンプレッサー)
- 砥石とモーターは、全体装置の重心に位置する軸に取付けられ、マニピレーターによつて軽くおさえて、切断する。

砥石は casing box と、潤滑剤を集める回収バッグによりフードされる。

切断容量は次の通りである。：

- 直径： 10 mm まで
- 長さ： 位置きめ 300 mm
位置きめなし 約 2 m
- 切削速度： 0.5 ~ 1 mm/sec

全体装置が切屑をとるため分解できること、また、砥石の分解と再組立にはむずかしい問題がないことも注目すべきである。

b) 箔 (figure 4 a)

箔は同じ切断工具でつくられる。

「研削」と呼ばれる最初の切削を行うため、含浸試料をクランプする。次に、万力をゆるめてから、位置定めモーターを用いて試料を進ませた後、万力を再び締めて、切取りを行う。

2.2.2 縦方向切削，斜め切削 (figure 4 b)

使用される切取り工具は普通の切削用に使われるものと同型であるが、試料の位置定め装置だけが相違している。中性子ラジオグラフィーによつてわれわれは正確な切削位置を予め確定する。

- 性能 : 長さ : 30 mm
- 幅 : 10 mm
- 砥石 : 直径 90 mm, 厚さ 0.6 mm

2.3 超音波による加工機械

用いられる装置は標準型である。

試料の位置設定装置，工具の形状，フードのみが特殊なものとなっている。

2.3.1 被覆管の回収 (fig 5)

燃料要素の被覆管は 4 mm ~ 8 mm 間のさまざまな内径のものである。被覆管の回収は超硬工具を用いて燃料 (U, Pu) O₂, (U, Pu) C を破碎して行われる。

この装置を構成するものは、：

- 振動を工具に伝える超音波発生器； 振動数は 20,000 c/s。
- 蹄鉄型フレームでできている機械加工ヘッド，そのベースに，加工ブロックと磁歪要素，支持用の磁気テーブルがある。60 mm の長さを加工できる。
- 機械加工ブロックの構成部分は，一方では，長さ 120 mm の試料（被覆と燃料）

の制御及び保持用マンドレル，他の一方では工具と試料間で炭化硼素を含有する液体（水，アルコール，ケロシン……）を噴射するポンプである。

液体＋研磨材（炭化硼素）の混合物は加工ブロック内に設けられた回路をリサイクルし，攪拌される。

フィルターをもつ吸入回路がフードの上に分岐されていて，燃料に含まれたF.P.ガスを回収することができる。

冷却度の少ない燃料に対しては沃素-131がフードの出口でガス・マスクカートリッジによつてトラップされる。

炉過カートリッジと研磨剤の取替えは，機械加工・ブロック内に入っているフィルターと分裂性物質の量との飽和度を考慮しながら行われる。

燃料を取り去つて空になつた被覆管試料は120 mmの長さである。工具の工程は60 mmにすぎないので，この長さを得るためには試料をひっくり返しにして燃料を取り除く。

試料のすえ付け，および液体＋研磨剤の混合物の排液，充填作業はmagnetic tableのクランプを取外した後，機械加工ブロックを取出して行われる。

工具への試料の正確な位置設定は，ブロックを受けるフレームとmagnetic tableの堅ろうなcenteringによつて行われる。

燃料の性質（組成，バーナツプ，密度，central hole…）によつて，工具の送り速度は極わめて異つている。一般に，120 mmの試料の機械加工は1時間から6時間を要する。

マンドレルは加工ブロックでadjustされているため，燃料の直径が異つても，工具のcenteringに対して問題を生じない。反対に，被覆の機械特性を損じないように，試料を加工ブロックの台（fond）にのせること，溝切り・スリーブを使つてこれを保持することが絶対必要である。

2.3.2 ミクロ試料採取

在来の検査方法（micrographie，autoradiographie，radial spectrometer…）にしたがつて，微小な円筒形のミクロ試料を採取するのであるが，その直径は0.3 mm（浸透・資料）または1 mm（浸透されない試料）から2.3 mmまでまたはその長さは1 mmから4，5 mmまで段階を付されている。装置はわれわれが先に指摘したものと全く同じで，ただ試料の位置定め装置が異なる。それは交叉運動（X），（Y）と回転運動（P）をもつテーブルであつてその上に試料ホルダーが取り付けられている。

X, Y, Z運動の操作はマニピレーターで行なう

一定範囲の試料を採取するための照準または位置定めは次の方法で行われる。:

位置定め装置は観察用ペリスコープの範囲内に取付ける。X, Y運動は試料ホルダーの中心の照準に対応する位置0に置くが、試料そのものの中心の照準には必ずしも対応するものではない。光学顕微鏡によつて、採取を行うX₁, Y₁座標を決める。これらの座標はXとYの運動を移動させながらきめる。次に、位置設定装置をロックしたmagnetic tableに据える。

試料採取のX, Y座標の精度は約2/10 ~ 3/10 mmである。

機械加工の後、正確な試料採取位置はペリスコープで調整される。

2.4 「粉末」マイクロ試料採取装置

2.4.1 ミクロ試料採取 n° 1

1967年から1970年の冬までわれわれがセル4で開発した最初の装置では1/100mmの精度で重量1~20mgの試料を得ることができた。

(figure 5)

マイクロ試料採取で成功するには次の操作が必要であつた。:

a) 照準位置 (figure 6.1)

試料(燃料+被覆)は金属ホルダーに保持されており、これはすでに在来の金属組織学的検査済みのものである。それぞれにcentrationの溝がつけられ、孔をあけるべき面を下に向けて置き、白金台の上に固定される。白金台を座標X, Y, Zにより位置定めできる移動テーブルに乗せる。X, Y, Zの運動はstep by stepにモーターで制御する。モーターの出口アーバーの15°の回転に対応して2/100mmづつ移動する可変・減速型モーターは実際には慣性がなく、1秒間に600ステップ以上まで出すことができる。; これらのモーターは、1~999間にその数をselectするインパルス発生器によつて制御しうる。Zの運動は2方向回転の減速モーターによつて制御されるが、その速度は1~10tr/mmの電子回路可変器で調節される。

テーブルの座標は感度の高い検流計付き電位差計によつて1/100mmまで調整されるが、その最大行程はそれぞれの運動に対して±10mmである。

照準に関しては、rotor supportに何らの工具も取付けられない。7~14倍率のペリスコープを使つて、行動範囲から試料採取を行うべき点を標準する。

試料の照明は光道の到達距離におかれる。鏡の反射によつて得られる。

b) 試料採取 (figure 6.2)

照準合わせの後、位置定め X, Y 座標には触れないうで、Z 運動を利用して、試料を上方部へ引き出す。

クリップに取付けたドリルは centeration ローターに据えられる。；試料とドリルの間に1枚のペーパーが差しこまれる。きりもみ作業のときつくられる粉末はペーパーの上に集められる。Z 運動を下方へ移動させながら得られる貫入の深度は電位差計を使つて測定する。これらの作業のため、コバルト含有の高速鋼ドリルが用いられるが、その有効直径は $17/100 \text{ mm}$ から $1,2 \text{ mm}$ までさまざまである。名目速度 7500 tr/mm のもとで 520 mg のトルクを与えるモーターによつて、それを駆動する。

c) 試料採取の調整

試料をのせたペーパーは、

- プレキシガラスのボックスに封入し、蓋をプレスによつてはめ込む。
(figure 6.3)
- あるいは、ステンレス鋼のボックスに封入する。
- あるいは、support の上に展げ、コロジオンによつて固着する。

2.4.2 ミクロ試料採取 n° 2

以上と同一原理に基いた "プロトタイプ 2" と呼ぶ第 2 番目の装置は、特により高い行動のリズムが得られるように改良されている。

この改良は、照準作業ときりもみ作業を 2 つの明確に区別された作業に分離することにある。

すなわち、ローターにドリルを導入できるようにするため行われる Z の移動が "照準" 作業ケ所またはきりもみ作業ケ所の試料の並進運動 (translation) X によつて全く簡単に取換えられることにある。

精度に関する特性は変つていない。：

- X, Y の精度, $1/100 \text{ mm}$ (座標) まで,
- Z の精度, $1/100 \text{ mm}$ (きりもみの深度) まで

容量は増大することができ、重量 $1 \sim 40 \text{ mg}$ のミクロ試料採取を行うことが可能である。

2.5 歯科用フライス

微細加工作業を行うため、" 歯科用モーター + フレキシブルパイプ + フライス " の標準装置が利用される。

モーターは20000 tr/mm で回転させ、ダイヤモンド工具に間接的に種々の運動を伝える。

2.5.1 半・固定集合装置 (figure 7)

半 固定集合装置を構成するものは、

- 80ワットのモーター (速度 20,000 tr/mm)
- フレキシブル伝達装置
- 機械加工ヘッドを支持するフレーム

機械加工の容量は次の通りである。:

- 粉末 (U, Pu) O₂ ……) の量 : 5 ~ 50 mg
- 精度 : 5 / 10 ~ 1 mm

この半・固定アンサブル (集合装置) により、特殊な範囲内にある燃料または被覆について微小・粉末試料を採取することができる。この種の装置で与えられる利点は特に、試料採取を検査セル内で直接行うことができ、これによつて機械加工、セルと検査セル間の移送時間を節約することができる。

2.5.2 可動集合装置

可動集合装置は、マニピレーター加工ヘッドが取つけられている全くの在来型・装置を利用するものである。

最もひんばんに行われる2つの使用法がある。:

- その1つは、半径についての最大限までの情報を保持しながら、箔のβ_r放射能を減少させる目的で行われる箔加工補完。

殆んどの場合、これは、3角形の切削を行うもので、その微小側面が被覆を表示する。

- あるいは、金属の分裂生成物を取除くか、または燃料、被覆もしくは照射カプセル・要素の試料を採取するための特殊な機械加工。

2.5.3 特殊な工具

この装置以外にわれわれはつかみ金物、scapel, その他でできた歯科機械の特殊工具類を使用している。

この工具類はもとより、試料、箔、電子顕微鏡用のレプリカ、その他の製造の微細作業に十分適合したものである。

III 実 験

3.1 旋 盤

ダイヤモンド砥粒・砥石の利用により燃料ピンの被覆管の目盛検定・窓の加工ができる。この操作により冷却回路内の分裂生成物および汚染の伝播の調査が可能となる。さらに、環状切削と縦方向切削によりピンを縦に二等分したものを作つて被覆内部、ペレットの外側、表面状態などの検査、同位元素の分析、ガンマ・スペクトロメーターによる分析、密度検査、その他を行う。

チップ・試料の採取はステンレス鋼内への分裂、生成物の分布状態の研究およびステンレス鋼組成の改良研究のため必要である。

3.2 管の急速切削とフライス

径方向切削と縦方向切削を行う場合特殊な問題は存在しないが、ただ箔を得るための径方向切削には若干の注意を要する。箔の厚さを制限するパラメータは次の通りである。：

— 燃料の挙動 : 浸蝕または浸蝕なし

UO₂ PuO₂ — (U, Pu) O の性質

バーンナップ

密 度

— われわれのとり方力と砥石間の行程 : $< 1/10 \text{ mm}$

(管)切削による箔の平均厚さは $3/10 \text{ mm}$ である。厚さ $2/10 \text{ mm} \sim \frac{1}{10} \text{ mm}$ の箔を得るためには特殊操作を行う。

figure 8はわれわれに厚さ 1.4 mm の箔によつて得られた結果を示している。これは、 $38,200 \text{ MWd/T}$ のバーンナップで照射された "Aurore" (U, Pu) O₂ 実験ピン燃料の試料に関するもので、これに対して、われわれは r -spectrometer (Ge Li) による分裂生成物の径方向分布を研究した。

この場合、箔の厚さには、検出器の特性と計数時間を両立させるため、分裂生成物の r , β 放射能を特に考慮に入れる必要がある。161

マイクロ探傷(マイクロソフデ)の検査に用いられる箔については特殊な調製が必要である。 $2/10 \text{ mm}$ の箔を切削した後、研磨によつて可能限度まで薄くするため試料片ホルダーでこれを包む必要がある。

これらの作業にも拘わらず、試料の β , r 放射能はやはり非常に強いので、歯科機械型・フライスを用いて表面の大部分を剥ぎ去るようにする。この作業は、試料がまだ十分薄

くない場合、研磨 180 の段階で行われる (figure 10)。研磨は酸化クロームによつて 600 まで、 0.5μ 程度まで続けられる。

箔の quartier (区画部分) だけ保守するため、試料表面に機械加工した後、アラルダイトでこの表面を肉盛りすることを怠つてはならない。

検査される燃料要素のバーンナップはさまざまで $30000\sim 100000$ MWD/t である。

$\beta\gamma$ 放射能は、われわれのマイクロ・ゾンデが遮蔽なしで行われるため、この型の試料・試験では 30cm で 200mR/h にするように、制限を与える。

調製後の試料のもつ放射能は表面で $2\sim 10\text{R/h}$ である。種々の連続研磨の制御は、試料の $\beta\gamma$ 放射能にしたがつて、適切に行われる。

マイクロ・ゾンデへ試料を移す前に、その α 線・除染が行われるが、その回収には FORMVAR が用いられる。

しかし、この方法はわれわれを十分満足させるものではない、一方では, araldite と FORMVAR間に両立性がなく、他方, araldite には 30KV の電子ビームのもとで粘着性となる傾向があり、その結果、試料内へただちに含有 α 汚染を放出させるからである。

それゆゑ、試料表面をメツキする試験がなされたが、試験は非常にすぐれた成果をあげて、特殊な問題は見られなかつた。

O/M 比の確定に用いる結晶の格子定数測定のため、われわれは歯科機械型・フライスの半固定・集合装置をひんばんに使用している (figure 7)。したがつて、この作業は、試料の調製のはじめと計数の終りの間の移送時間に対して、可能限度まで保証を与えながら、検査・セルで直接行うものである。

一般に、全作業時間は $3\sim 4$ 時間に限定されるため、粉末試料の酸化による難問題を回避することができる。

3.3.1 被覆管

照射済み燃料要素からその被覆管を回収することは、次のような機械性を調査するため極わめて有益である。： クリープ、応力、圧縮、密度、電子顕微鏡、破裂、その他。

燃料を破壊するとき、被覆の機械特性を変化させないように、燃料の取出しの前後、うず電流による制御・検査が行われる。

燃料の破壊は、全体として、被覆管に損傷を与えないよう考慮してなされるが、さらに α 放射能を少なくすることもでき、したがつて非常に大きな割合でPu・汚染も少く

できる。大抵の場合、この α 放射能が小さいため、これらの機械特性試験は β セルで行われる。

3.3.2 マイクロ試料採取（炉心燃料試料）

炉心燃料試料から得られるマイクロ試料採取は下記の検査を行うためのものである。：

- アイソトープ分析 : U, Pu, Nd¹⁴⁸ の径方向分布
- γ 線分光分析, われわれはこの方法を定性分析のたぐ保持するばかりでなく, 分裂性生成物の径方向分布の研究のため, 箔による方法も利用する。
- ミクロ密度 : 径方向分布
- 含有される分裂生成物ガスの回収 : 径方向分布
- 分裂生成物の蒸気圧。

試料の調製そのものには何ら困難な問題を生じないが、マイクロ試料のマニピュレーター作業に関していくつかの小さい問題点がある。

試料は、重量5～50 mgである。

3.4. マイクロ試料採取（粉末）

ドリルを使用して得られる機械的・マイクロ試料の採取は、その非常に大きな精度（1/100 mm の照準）と極わめて小さなディメンション、したがって微小な重量が得られるという特徴がある。

一方では、試料採取部分周辺区域を破壊することがないので、各試料採取点をより近接させることができる。

これらの試料採取の後行われる主要な検査は次の通りである。（figure 9）：

- γ 線分光分析 : 分裂生成物の識別
分裂生成物の径方向分布,
- stoichiometry : O/M 比の径方向変化
- アイソトープ分析。

試料は重量1～10 mgと20 mgである。

われわれの実験によつて、マイクロ・採取試料は研磨・不銹鋼ボックスにおさめておくことが慎重なやり方であることを知つた、これは試料の観察ぬきで、溶液による回収を可能にするからである。

IV 結 論

装置に関して、われわれが使用する機械の大部分は「標準」型であることに変わりない。しかし、機械的・マイクロ試料採取だけは特殊な装置となつている。

装置開発の主眼点は次の通りである。

- 装置のコストを軽減させるようにする。
- 体積の小さい機械にする。これによつてそれほど困難がなく出し入が可能となる。
- 特別な有資格要員によつて運転される必要のない簡単な機械にすること。
- 作業の速度を高める。

マイクロ・試料の採取と箔の入手にはいくつかの制限が課される。特に下記のことを行う必要がある。 :

- 種々の操作について極わめて良好な同期化をもつたプログラムに従つて作業すること。
- 試料の代表性を保たせるよう、試料、工具、セルの清浄について厳密に警戒すること。
- 試料採取を系統的に重ねること。
- 試料の β γ 放射能と α 汚染を精密測定すること。
- 次のことをさけるため迅速に作業すること

以 上

Etude de	N°	EXAMENS		PREPARATION	REMARQUES	APPAREILLAGE	ECHANTILLON	
Combustible + Gaine Combustible Gaine	1	Macrographie	Coupe radiale Coupe longitudinale	Echantillon	Imprégnation Enrobage	Tronçonnage Polissage	∅ 4 à 12mm L 5 à 15mm	
	2	Micrographie	Idem 1	Idem 1 Echantillon	Idem 1	Idem 1 + attaque ionique	Idem 1	
	3	Microscopie Electronique	Idem 1	Idem 1	Réplique carbone 5 μ	Idem 1 + évaporateur	Idem 1	
	4	Microsonde	Idem 1	Lame mince et secteur	Activité $\beta\gamma, \alpha$ Métallisation	Idem 1 + fraise dentiste + décontamination	Surface maxi pour activité $\beta\gamma$ mini.	
	5	Autoradiographie 1) α , 2) $\beta\gamma$	Idem 1	Idem 1 Echantillon	1) Nitrate de cellulose 2) Film	Idem 1	Idem 1	
	6	Densité	a) -	Oxyde + Gaine	Echantillon	Dégazage	Tronçonnage Balance	L ~ 40mm
			b) -	Oxyde	Pastilles ou fragments ou carotte	Dégazage	Tronçonnage, Tour, Machine à usiner U.S.	Poids 50mg. à 20g.
			c) -	Gaine	" Coquille "	Nettoyage	Tronçonnage Tour	Poids 10g. à 100g.
	7	Spectrométrie γ	Section	Lame mince	Imprégnation	Tronçonnage	e mini : 0,4mm ϕ : 20mm	
	8	Analyse isotopique	U, Pu, Nd ¹⁴⁸	Echantillon ou Microprélèvement	Araldite ou non étui acier inox	Tronçonnage Dissolution	L : 5mm Poids : 5mg.	
	9	Analyse radiochimique	Constituants	Microprélèvement	Après 2 étui acier inox	Microprélèvement précision 1/100	Poids : 1mg. à 20mg.	
	10	Stoechiométrie Diffraction X	O/M	Idem 8	Après 1 Temps: < 4heures	Idem 1 Fraise dentiste.	Idem 1 Idem 9	
	11	Gaz de fission inclus	Idem 1	Carotte ϕ 0,8 à 2mm	Pas d'araldite	Machine à usiner U.S.	Poids : 10mg. à 50mg.	
	12	Tension de vapeur des P. F.		Poudre ou Fragments		Microprélèvement Machine à usiner U.S.	Poids : 5mg. à 50mg.	
13	Essais mécaniques	Fluage	Gaine vidée	Contrôle par courant de Foucault	Tronçonnage Machine à usiner U.S.	L : 120mm		
14	Microscopie élec- tronique	Gaine	Gaine vidée		Tronçonnage Machine à usiner U.S.	L : 20mm		

Tableau 1 : TYPES D'EXAMENS

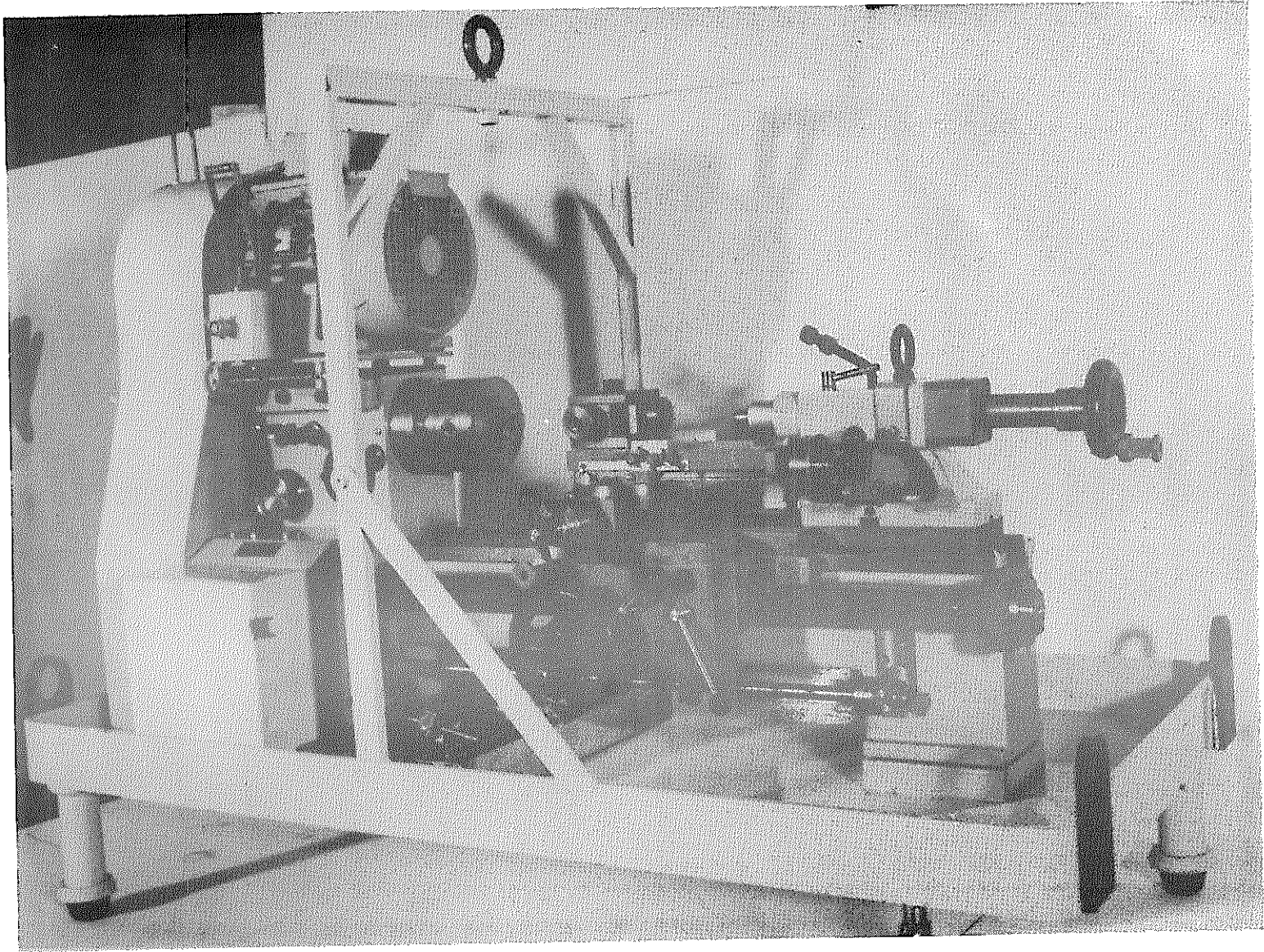
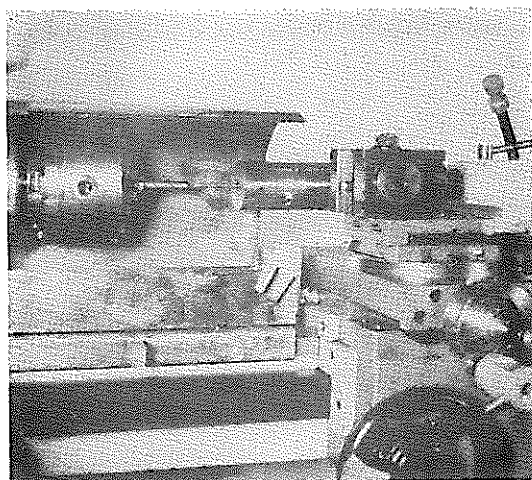
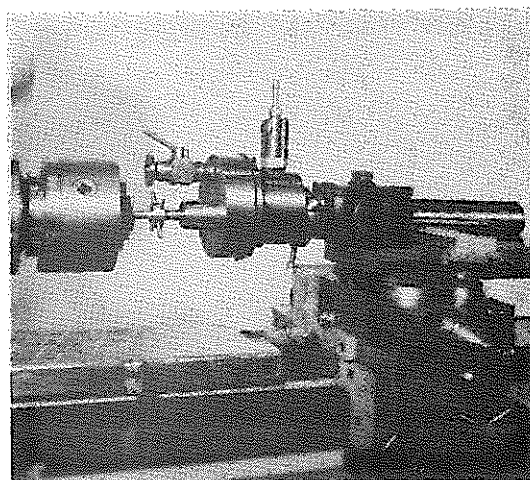


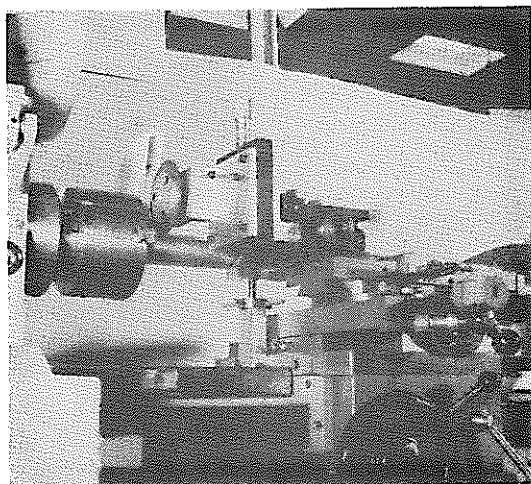
Fig. 2 . Tour



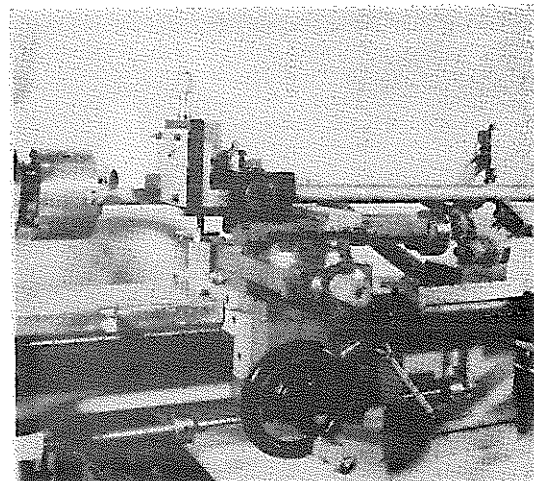
a : Forage



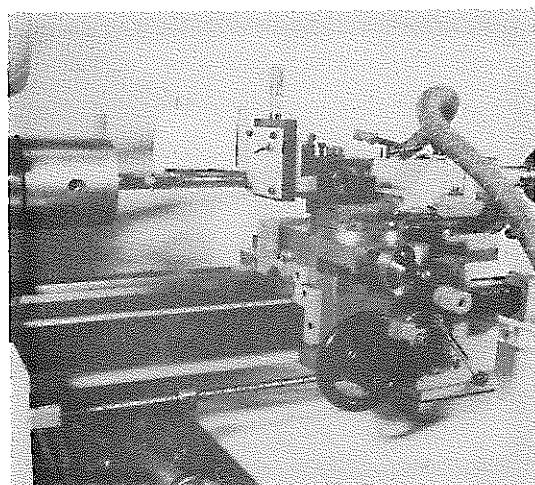
b : Capsule No Nak



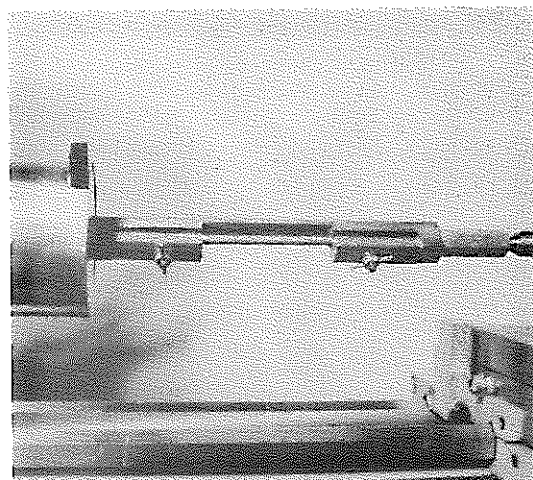
c : Coupe annulaire
Coupe radiale



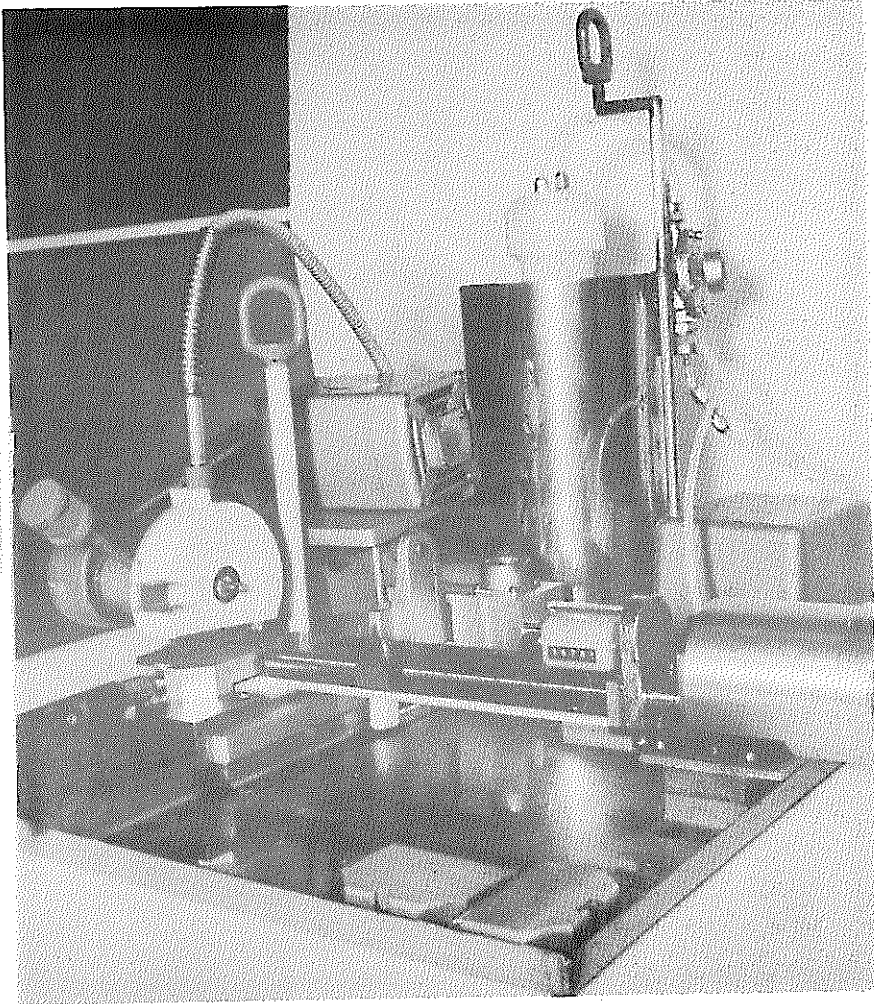
d : Coupe annulaire
avec lunette



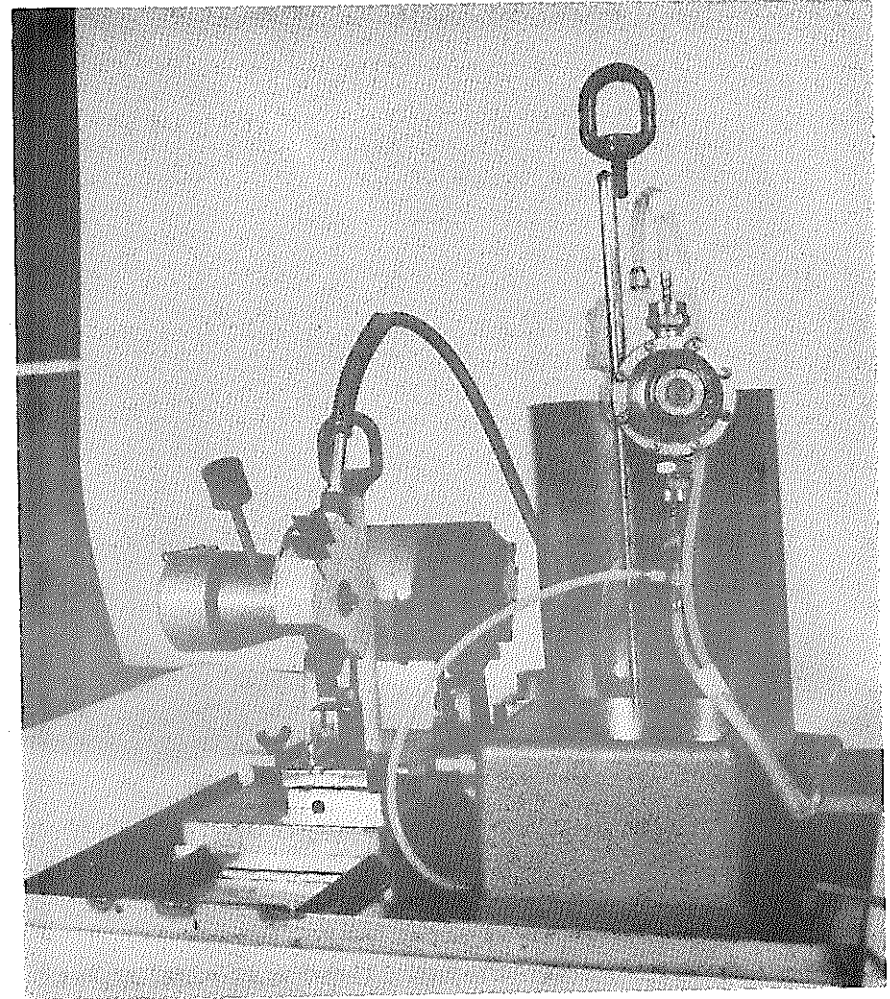
e : Coupe longitudinale



f : Porte échantillon



a : Coupe normale "radiale" - Lame mince .



b : Coupe longitudinale - Coupe biaise .

Fig 4 : Tronconneuse rapide .

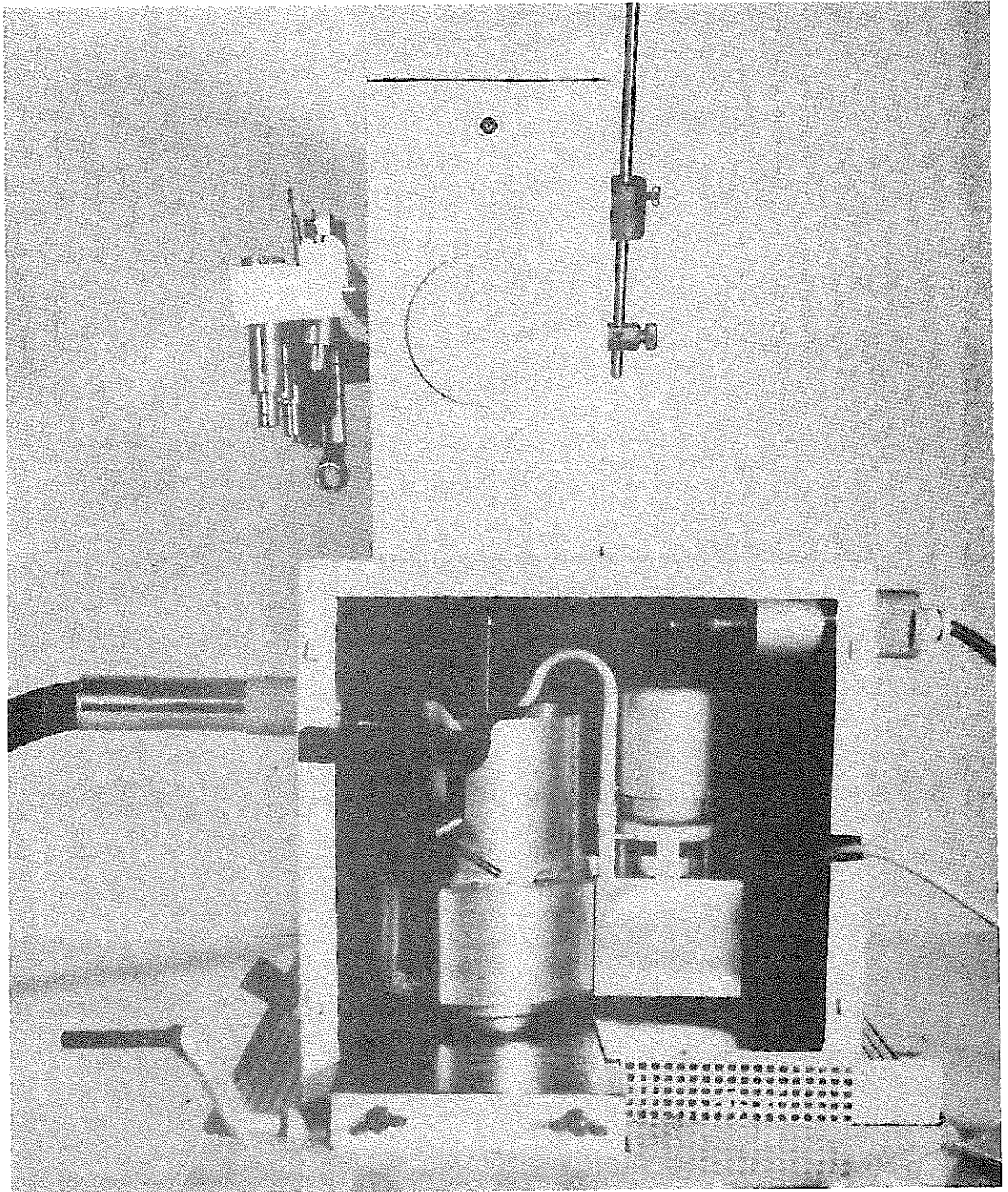
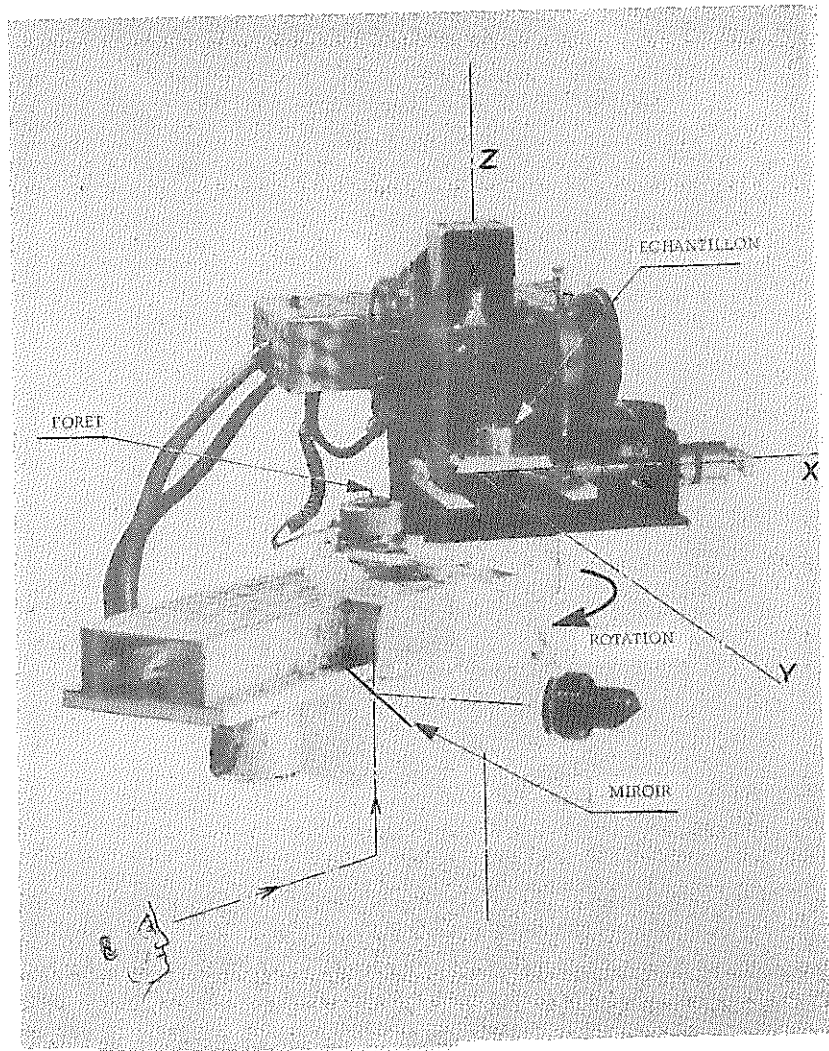
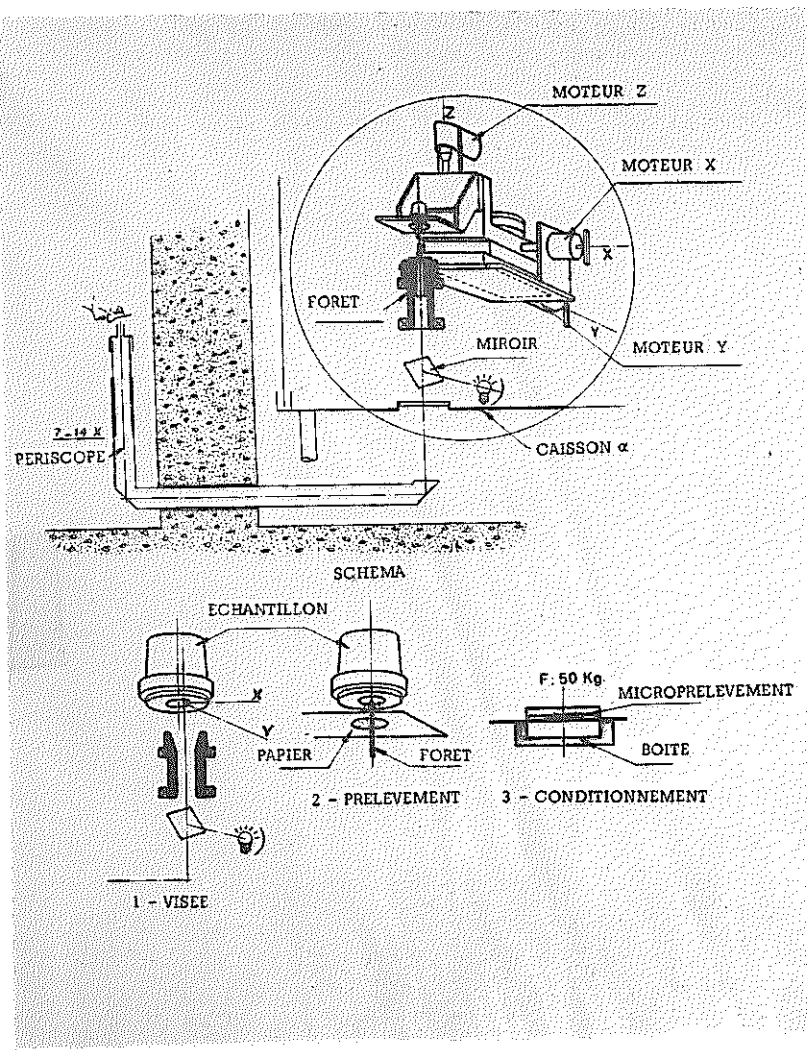


Fig.5 : Machine à usiner par ultra son

-42-



4 - APPAREIL DE MICROPRELEVEMENT

Fig. 6 : Microprélèvement n° 1

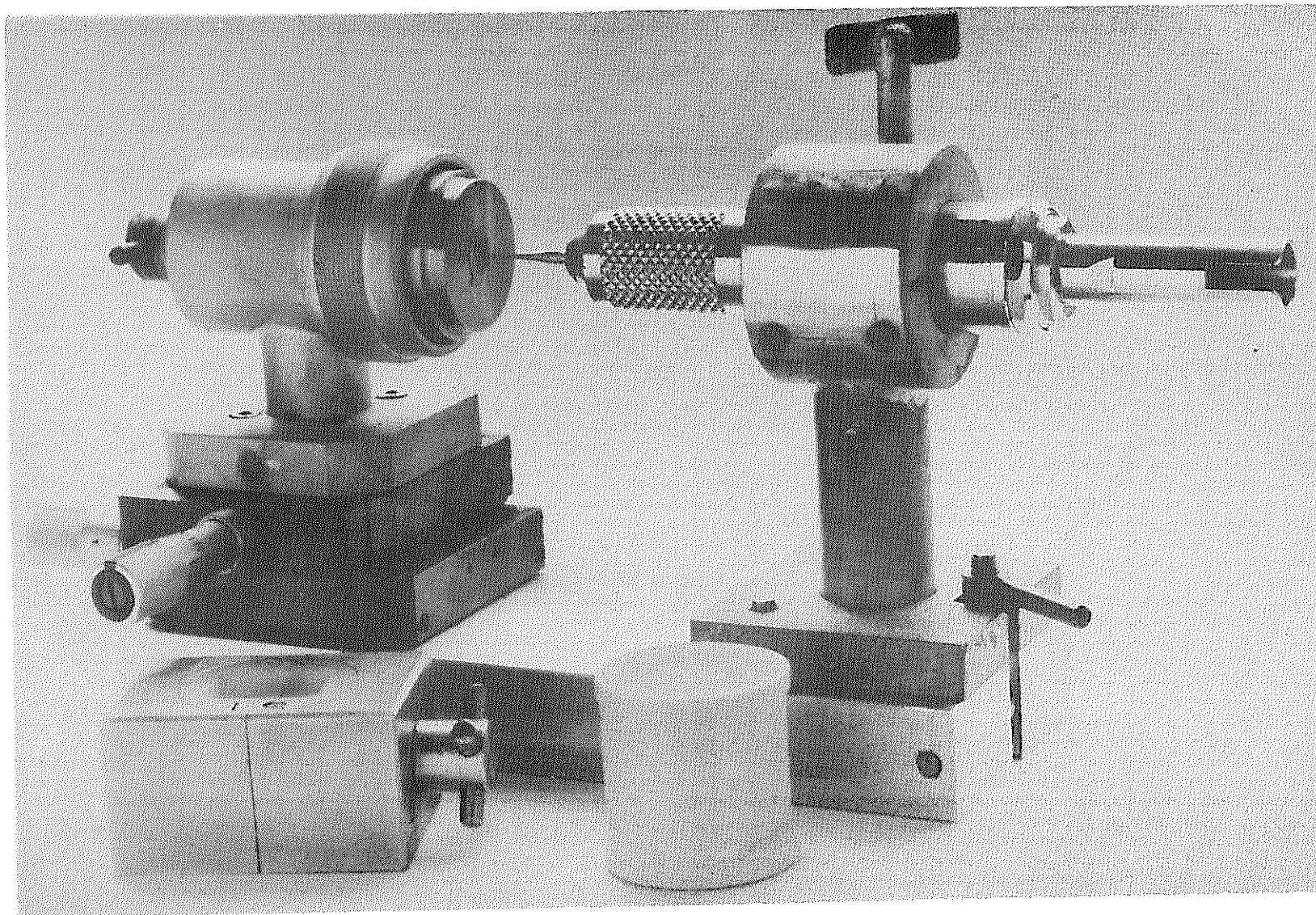


Fig.7 : Ensemble de mécanicien dentiste (semi fixe.)

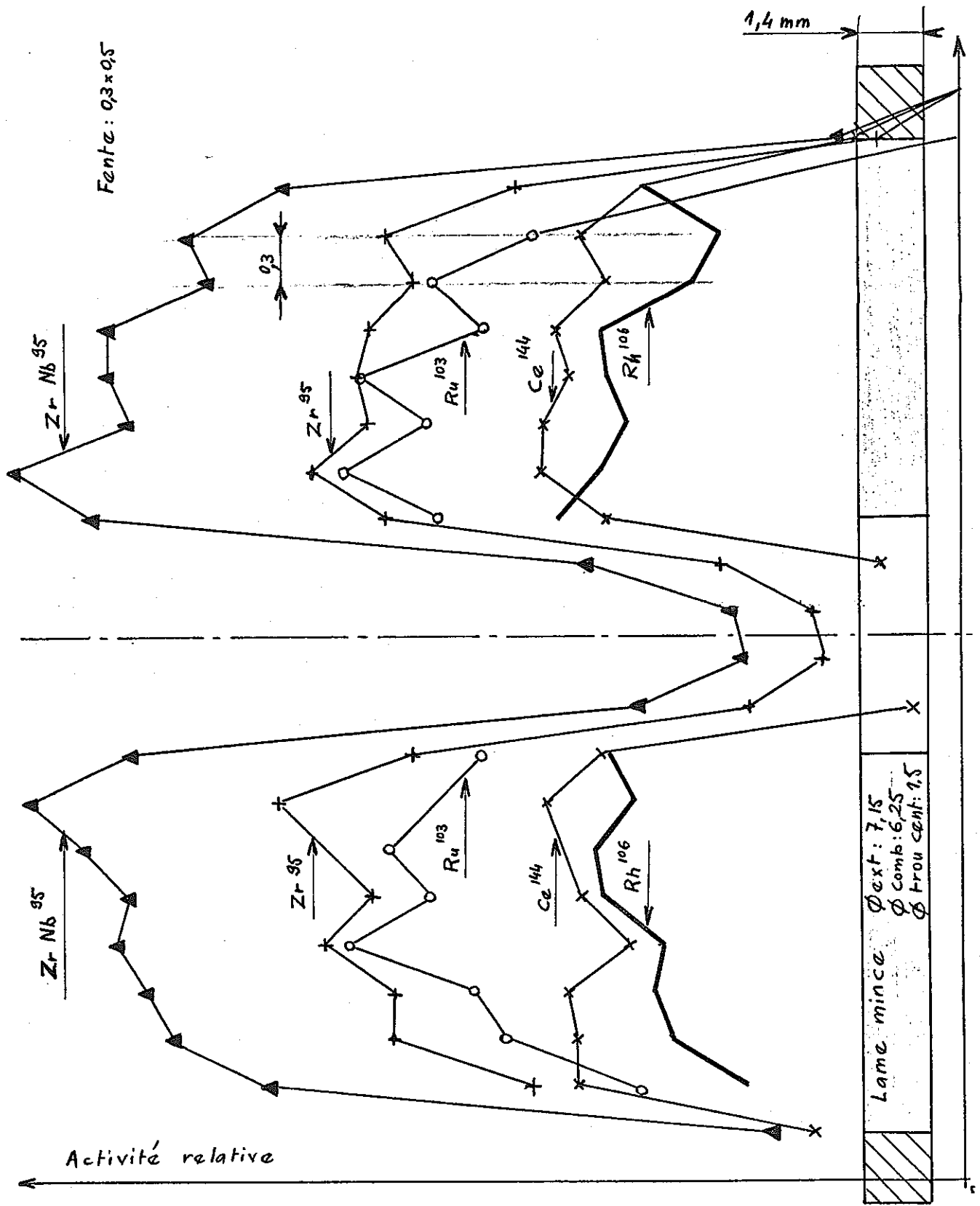
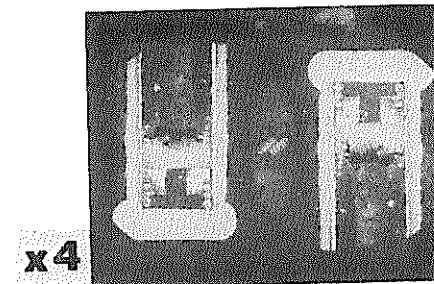
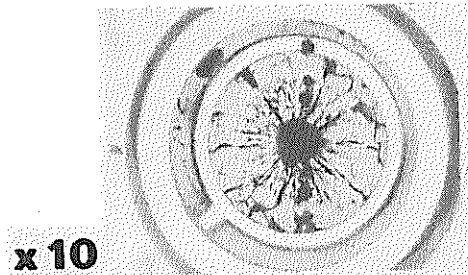
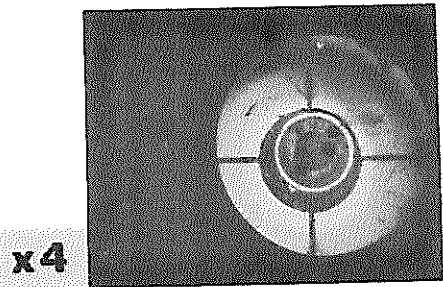


Figure 8 : Répartition radiale des produits de fission de AC 11 F



Echantillons d'oxyde mixte irradiés en neutrons thermiques

**Taux de combustion
30 MWj/t**

Microprélèvements

P: 17mg

Ø: 1 mm

h: 2,2mm

**Taux de combustion
14 000 MWj/t**

Microprélèvements

P: 1 mg

Ø: 0,25mm

h: 0,2 mm

**Taux de combustion
20 000 MWj/t**

Microprélèvements

P: 10mg

Ø: 1 mm

h: 1,2mm

Fig. 9 : Microprélèvements



x 10



x 10

Fig. 10 : Lames minces pour microsonde

PNC 被覆管検査の結果 (最終報告)

1970年3月16日

G. DURET

G. POULLOT

A. SAMOEL

B. SPRIET

われわれは Rapsodie における PNC 照射用に用いる日本製被覆管 (2つのロット) を検査した。
: ロット K - 神戸製鋼の製造による管, ロット S - 住友金属工業の製造による管。検査は破壊試験, ならびに非破壊検査の双方について行なった。

2つのロットの性質は優秀であることを示している。ただ1本の管だけは (全部で約100本の管のうち) 大きな欠陥 (厚さの減少による突出) を呈している。検出された他の欠陥はこれと同じタイプであるが, その大きさはより小さなものである。

ロット K はロット S より劣る形晶粒形 (6-7 ASTM でなく 7-8 ASTM) を持っている。: 2つのロットの冷間加工率は実際上は全く同一 (13%) である。

機械的特性 (応力, 内圧もとのクリープ) は最終の冶金学的状態の達しうる機械的特性に合致している。

..

緒 言

Rapsodie 照射のため, PNC は燃料ピンの製造に用いる異なるメーカーで製造した被覆管 (2つのロット) を検査のためわれわれのもとへ送ってきた。: ロット K (神戸製鋼の管) ロット S (住友金属工業の管)。

これら2つのロットの加工法はハイパー焼入れ処理を除いては原理上同一であつた (圧延40%, 引抜20%)。ハイパー焼入れの場合, ロット K は高温で短時間の焼鈍を行なったものであるが, 他方, ロット S のハイパー焼入れは全く在来の方法 (1040°C) である。: 管は冷間圧延された状態で引渡された。

鋼の組成はやはりロットによつて相異があり, ロット S はカーボン含有度が多い (K が 0.047% S は 0.07%, 表1参照)。

第1章 : 非破壊検査

検査は2つのロットを含めた100本の被覆管に対して行われた。

—ロットK 54本の管

—ロットS 46本の管

被覆管のディメンションは次の通りである。：

— ϕ_g : 6,30 mm

— ϕ_i : 5,60 mm

—厚さ : 0,35 mm

長さ : 1 m

検査のサイクルは次のようになされた。

—厚さの同時測定がなされる超音波検査

—平均・外径の同時測定がなされるうず電流による検査

—最終選択

A 一寸法検査

1) 厚さ：

測定は Branson の厚さ測定器（ガイデージェ）を使って、超音波により連続的に行われる。

figure (1)は2つのロットについて、平均厚さの分布・組織図を示すものである。

a ーロットS

この系列の管はすべて、公称寸法となつている0,345 mm～0,350 mm間の平均厚さに入っている。すなわち、これらの被覆管の厚さ特性は、18 μ の最大偏心率に対して、平均偏心率は10 μ にすぎないのですぐれたものである。

b ーロットK

平均厚さは、ここではすべての管が0,350 mm～0,355 mmの間にあるから、やはりすぐれている。

平均偏心率はやはり10 μ であるが、最大偏心率が14 μ にすぎないため、偏心率は殆んど全くないことに注目すべきである。

2) 外径：

9⁰で4つの計器を使って管の平均直径が連続的に測定された。検定は6,27 mm～6,33 mmの許容範囲の直径をもつ標準測定棒でなされる。

a-ロットK

外径には少しも偏差がない。

管はすべて 6.30 ± 0.01 である。

b-ロットS

この系列に対しても同様である。平均直径はここではやはりすべての管に対して 6.30 ± 0.01 である。

これらの寸法検査から、これらの管は格別に良好であると云える。しかしながら、K系列については、過度の研磨のためにⅢ・1で見られるとおりの超音波検査の感度にかかなりな影響を与えることに注目すべきである。

B-健全性の検査

1) 超音波による検査

これは次の条件のもとに行われた。：

- 回転速度 : 1200 t/mm
- ピッチ (pas) : 0.7 mm
- 周波数 : 4 MHz
- 感度 : 60 dB

以下の表はその結果を集めたものである。：

ロットK：

	良	疑わしい	不良
数	24	21	7
%	47	40	13

ロットS：

	良	疑わしい	不良
数	39	6	1
%	85	13	2

K系列で疑わしい管の割合は大きく、S系列にも若干それが現われていることがわかる。

figure (2)はこれら2つのロット間の相異を双眼顕微鏡で拡大したものを示す。

われわれは下記の欠点を示すものを“疑わしい”として分類した。：

- 縦方向の条痕 (S系列とK系列)，
- 過度な研磨による横断線方向の条痕 (K系列)，

— 振幅の小さい局所的な信号。

これらの条痕はいわゆる欠陥ではないが、しかし超音波ビームの直接反射をひき起す。それらはこうして大きな欠陥を遮へいしうる永久的なバックグラウンド・ノイズをつくる。そのための超音波による検査が不可能となり、条痕をもつ管が疑わしい種類の中に入れられたのであつた。

疑わしい種類別に入る管は局所的な信号を出す。

2) うず電流による検査：

検査は banc Fordume に対して実施される。

banc Fordume は 10 ~ 100 KHZ の defectograph と 700 KHZ の Dudu をもつて作動される。

実験条件：

管はそれぞれ、17cm/S の速度の control head を横断する 2 つの回路で行われる。

調節は次の通りである。

— Defectograph*

	周波数	位相	微分*	感度	炉波
1 次回路	100KHZ	90°	8	S. 5, 6	3Hz-40Hz
2 次回路	10KHZ	90°	8	S. 5, 10	3Hz-40Hz

*
{ 探傷器 }
の一種

— Dudu

調節は 2 つの回路に対して全く同一である。

* コイル JFIS

* 発振器 (Oscillators n° 3)

* 微分 8

* 感度記録記録器 SI

* ろ波 3Hz-40Hz

次の各表は検査の結果を集めたものである。

ロット K : 検査された管の本数 : 50

	良	疑わしい	不良
本数	44	6	0
%	88	12	0

ロットB：検査された管の本数：46

	良	疑わしい	不良
本数	41	1	3
%	91	2	7

注意 上記2種類の製造のうち、疑わしい、不良、と分類された在来の管はすべて、デイモンションの変化において、垂直位相で周波数10KHZ以上の欠陥は呈されていない。

3) 最終選択

K系列

良(22)	疑わしい(23)	不良(7)
29-75-67-56-47	43-85-84-89-46	23-19-30-31-69
50-16-13-14-34	-10-8-7-4-20-	-55-32-(33)
54-44-37-101-	74-70-73-72-65	
77-90-78-80-9-	-63-17-85-2-36	
1-40-41	-18-11-215-	
41%	43%	16%

管N⁰24は検査されなかつた(末端が拡がりすぎていたため)、

管N⁰33は標準管として利用された。

管N⁰36は超音波検査のみうけ、この場合“良”であつた。

一良(Bons)に分類された管は{超音波
うず電流}検査で良である。

一疑わしい(Douteux)に分類された管は{超音波または
うず電流}検査で疑わしいものである。

(管N⁰46だけがうず電流検査で疑わしく、超音波検査で良である。：うず電流検査で疑わしい他のすべての管は超音波検査でも疑わしいか、または不良である。)

一不良に分類された管は{超音波または
うず電流}検査で不良である。

S系列

良(35)	疑わしい(7)	不良(3)
2749-2713-2708-	2794-2748-2774-	2831-2711-2717
2738-2728-2719-	2855-2821-2819-	
2706-2733-2752-	2801	
2784-2778-2790-		
2792-2797-2772-		
2832-2834-2808-		
2754-2769-2810-		
2811-2818-2817-		
2825-2826-2805-		
2799-2800-2802-		
2805-2770		
76%	16%	8%

第II章 : 破壊検査

A - 金属組織

1) 欠陥の探索 (探傷)

figures 3~7は非破壊検査の途中に証明された欠陥の相を示す。最後のもの (figure 7) を除いて、これらの欠陥のすべては極わめて小さい。：それらは、超音波にそれらの特殊な形状のため、その重力と不均衡な応答を与える。あらゆる場合、厚さの減少を伴った多少とも伸びて、多少とも深い表面の突出が認められる。

2) 顕微鏡組織

figures 8.8 (2図) と 9.9 (2図) —— ロットKとロットSに対応するもの —— から次の点が注目される。

— 構造は冷間圧延されてある。：双晶と変形帯状部の存在。

— ロットSでは、炭水化物の比較的大きい排出物があり、並んで存在するところもある。

したがってハイパー焼入 (hypertrempe) は、炭水化物が全体的に溶解しないような温度と時間の条件の下で行われた (同じく炭素含有度の影響も考慮して)。

— 結晶粒の大きさは微細である。

ロットK : Index 7-8 ASTM

ロットS : Index 6-7 ASTM

B—機械的試験

1) 引張試験：室温，550～750℃

試験結果は第11表と figures 10～13 に掲げてある。：比較のため，われわれは同じく，2つのロット（それぞれ試験済み（ロット D，C，Orphee））をもつて対照してみた。弾性限度と伸びは冷間圧延構造に十分対応するものである。；鋼316に対する検定曲線から評価される冷間加工率は2つのロットで實際上全く同一である。

ロット K：冷間加工率 13%

ロット S：冷間加工率 12.5%

2) 内圧試験

われわれは， 16Kg/mm^2 に近い接線応力のもとの650℃でのクリープから約2時間後得られた値を第Ⅲ表にかかげた（同じ試験の時間に関係ある変形と速度）。

結 論

以上2つのロットの各管はすぐれた性質をもっていることを示している。超音波による検査ではロット Kにおいて機械的研磨が悪く検査が若干乱されたが，これは，このロット Kにおける疑わしい管の割合が大きいことを説明するものである。同じタイプの欠陥（厚さの減少を伴った突出）はすべて，重力が小さく，唯一つの管が例外である（ロット Kの管 N°33）。

不良と分類された管の数が比較的多いが，検出されたどんな欠陥によつても，管が取除かれると云う極めて厳密な選択基準によつたことを十分知られたい。

準工業的検査の在来の条件下では，ただ1本の管だけが廃品にされたであろう。

応力の機械的特性からみて，2つのロットの持つ挙動は7～10%（ロット D Orphee）の冷間圧延・鋼の挙動に近いものである。

反対に，クリープの特性はロット C Orphee（20%冷間圧延）にずっと近い。

定数的な冷間加工率では，ロット間で確認された相違は，組成（炭素含有度）と同じく製造段階から多く影響されている。

ロット Kのフラッシュ=焼なましは，結晶粒の微細な断層（および炭化物の完全な溶解）例外的に低いクリープ速度と関連するため特に有効であつた。

以 上

TABLEAU I 第 I 表

	LOT K		Lingot	LOT S	
	Tubes 1ère Analyse	Tubes 2ème Analyse		Tubes 1ère Analyse	Tubes 2ème Analyse
C	0,047	0,047	0,07	0,07	0,07
Si	0,67	0,64	0,58	0,66	0,65
Mn	1,68	1,59	1,49	1,55	1,53
P	0,019	0,019	0,003	0,003	0,003
S	0,013	0,013	0,017	0,006	0,008
Ni	12,57	12,69	13,16	13,20	13,18
Cr	16,73	16,66	16,80	16,60	16,60
Co	0,035	0,035	0,02	0,02	0,02
Mo	2,34	2,29	2,52	2,60	2,57
B	0,0018	0,0017	0,0004	0,0005	0,0004
N	0,027	0,029	0,0268	0,0250	0,0255
Sn	0,065	0,065			
Ti	0,025	0,025			
As	0,009	0,007			
Cu			0,24	0,24	0,24

Analyses.

TABLEAU II 第 II 表

tensile test
Essais de Traction

* L 長さ
E 厚さ

Température	Lot	R Kg/mm ²	L _E * 0,2 Kg/mm ²	A _g réparti 分布	A _g Total
20 °	K	75,5	60	20,5	28,3
	S	72,8	58,2	25	31,1
550°	K	50,7	41,1	10,5	12,9
	S	52	40,5	10,65	15,7
650°	K	43,6	33,1	8,4	13,25
	S	46,6	40	7,67	15,7
700°	K	38,1	33,8	5,2	17,4
	S	36,6	33	4,17	19,25
750°	K	31,5	29,1	2,67	23,2
	S	28,5	25,4	3,08	23,2

Longueur des éprouvettes 100 mm 試験片の長さ

Vitesse de traction 5 mm

Traction à chaud sous vide 真空下の tensile test

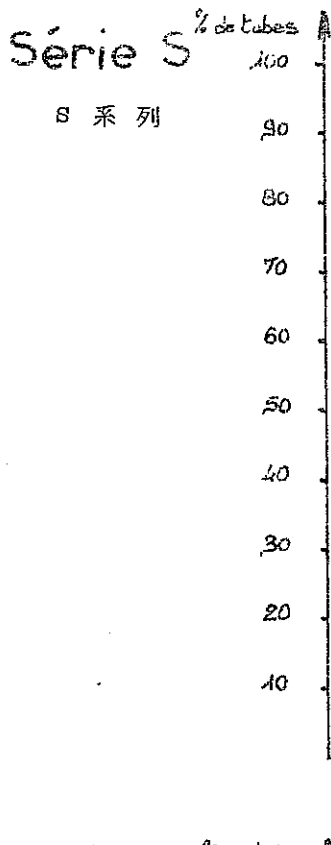
TABLEAU III 第 III 表

Lot	Déformation %	Durée h	平均速度 Vitesse moyenne $10^{-6}/h$
K	0,175	192,6	5,20
S	0,507	192,5	26,31
冷間圧延 écroui 8,	0,704	192,5	36,1
冷間圧延 écroui 20,	0,40	194,5	20,8

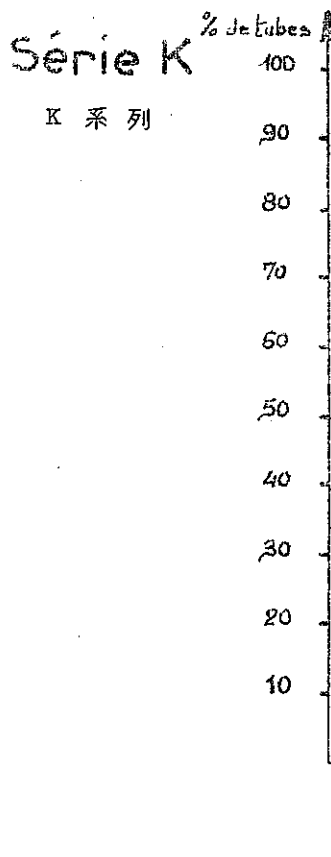
Fluage sous pression interne à 650 °C $\sigma = 16 \text{ Kg/mm}^2$

650%の内部圧のもとでのクリープ

FIGURE N°1



Exentricité mini 6 μ
 最小偏心率
 中位 " moy 10 μ
 最大 " maxi 18 μ

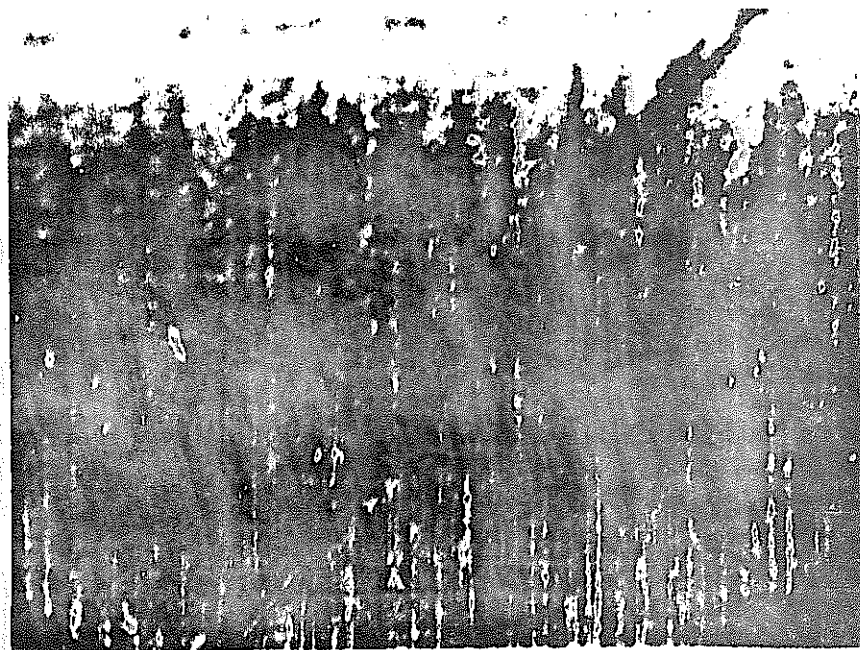


Exentricité mini 8 μ
 moy 10 μ
 maxi 14 μ

FIGURE N°2

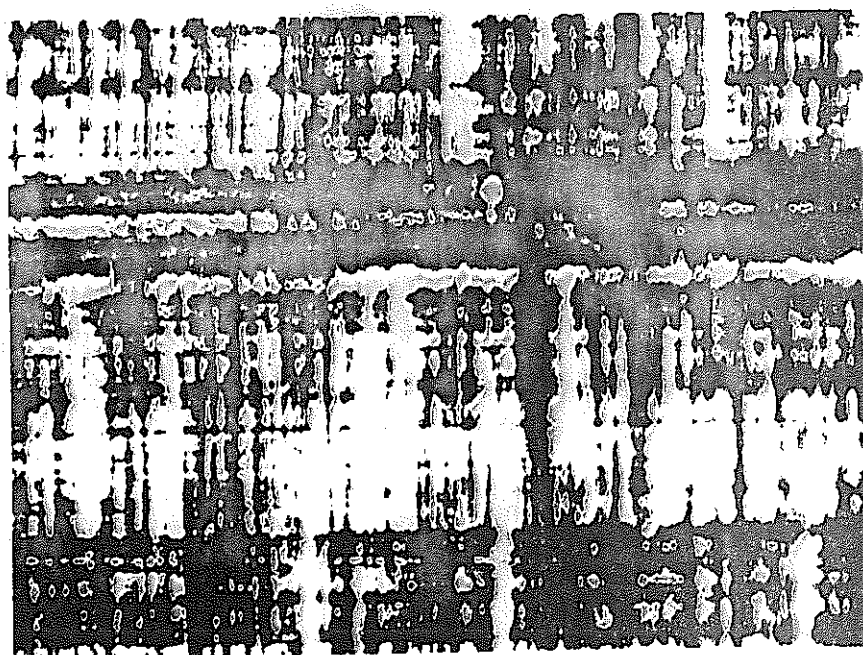
外部表面

SURFACE EXTERIEURE G 200



GAINÉ S

S 被覆管



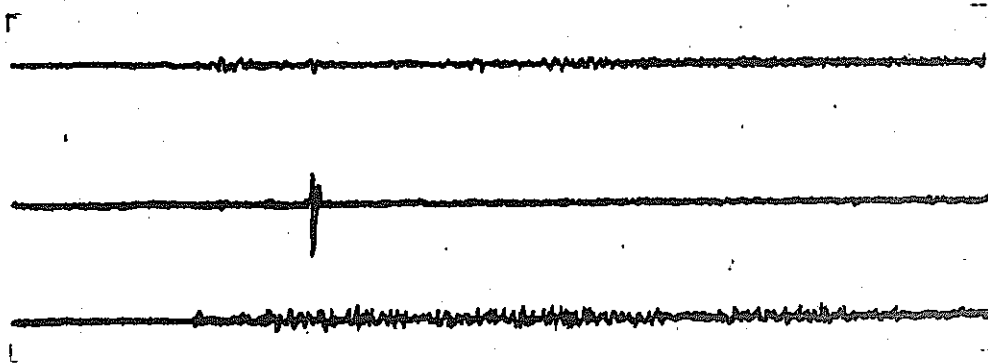
GAINÉ K

K 被覆管

FIGURE N°3

被覆管
GAIN N° 2711 S

ENREGISTREMENT C.D.F.



MICROGRAPHIE G 150

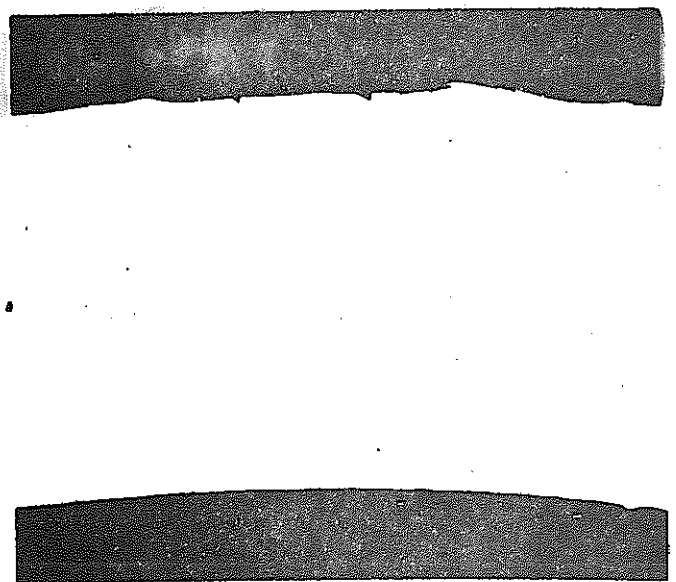
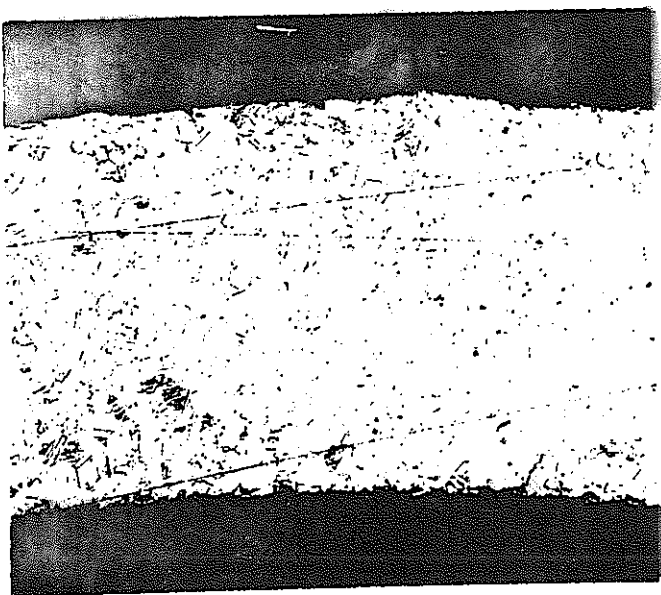
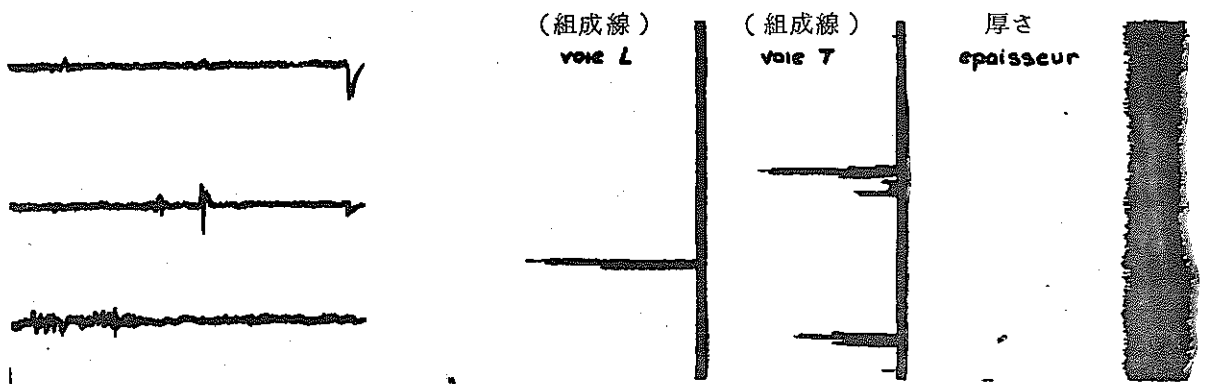


FIGURE N°4

GAINÉ N° 2831 S

ENREGISTREMENT C.D.F.

U.S.



MICROGRAPHIE G 150

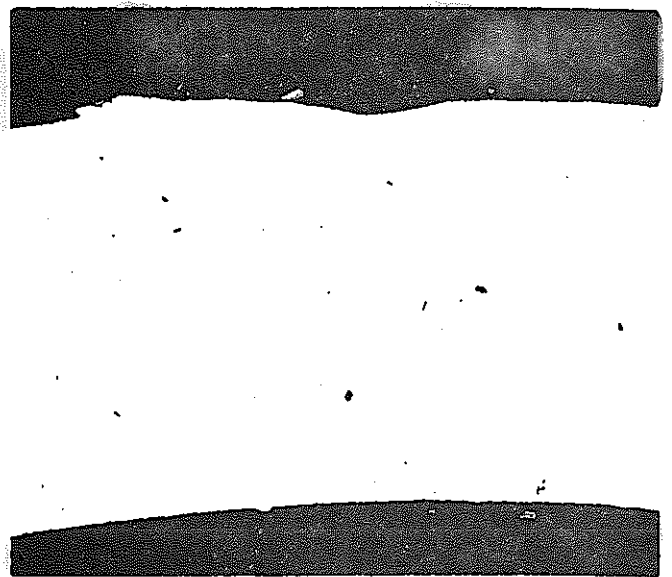
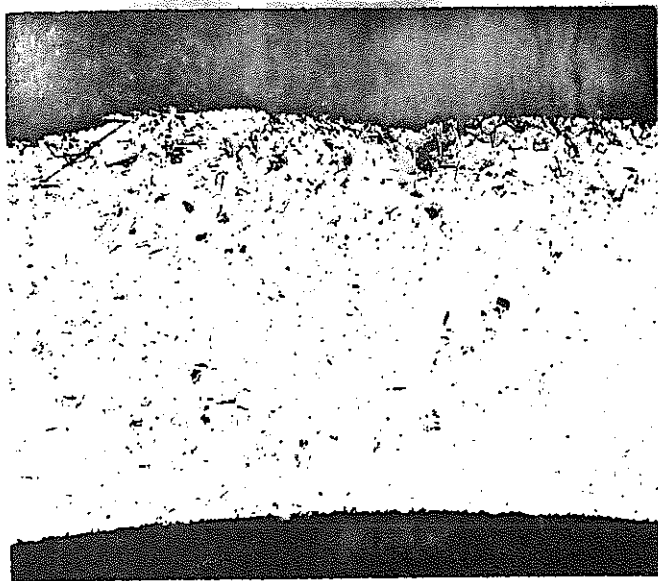
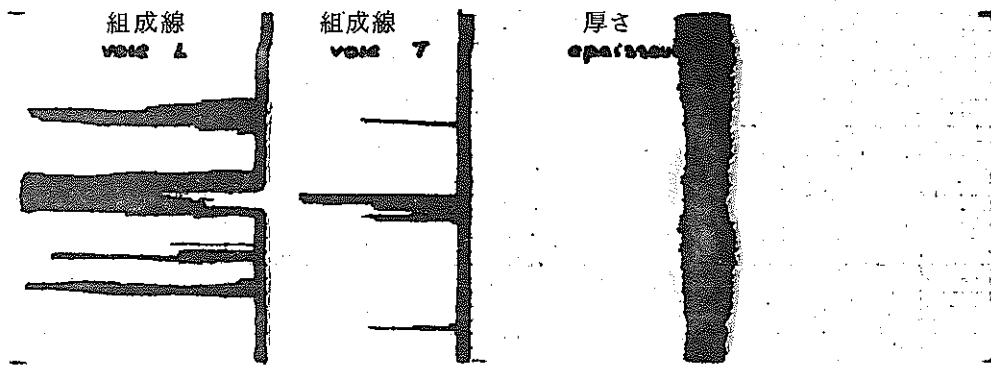


FIGURE N°5

GAINE N°69, K

ENREGISTREMENT U.S.



MICROGRAPHIE G 150

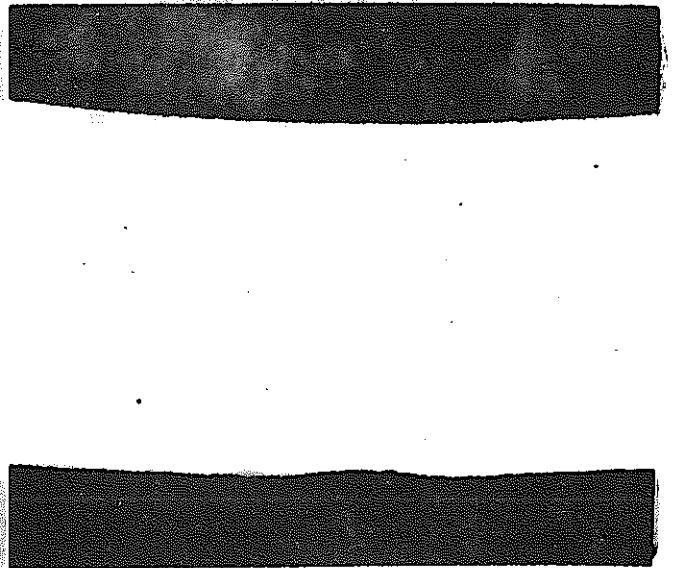
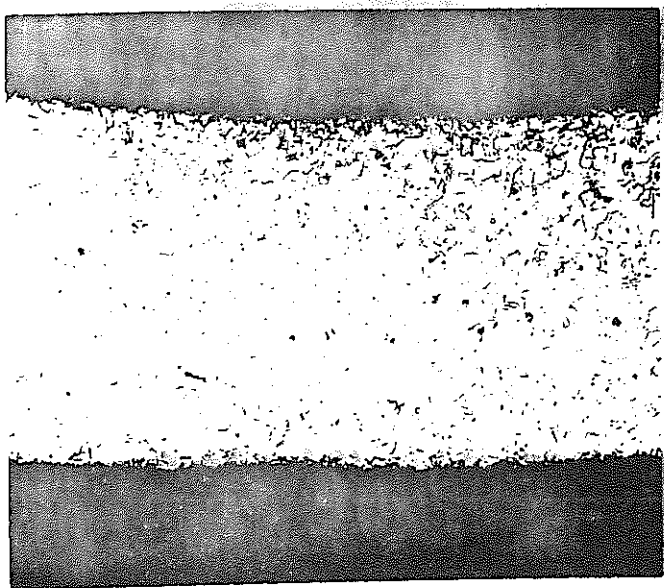
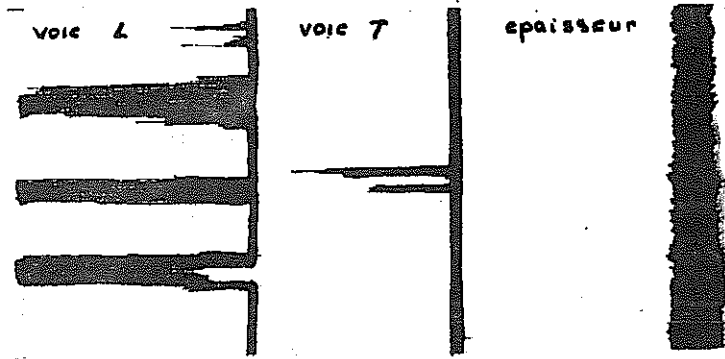


FIGURE N°6

GAINE N° 69₂ K

ENREGISTREMENT U.S.



MICROGRAPHIE G 150

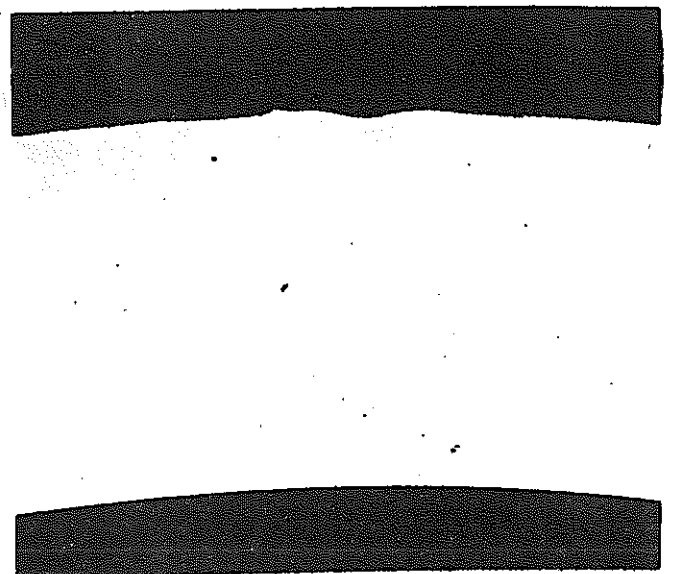
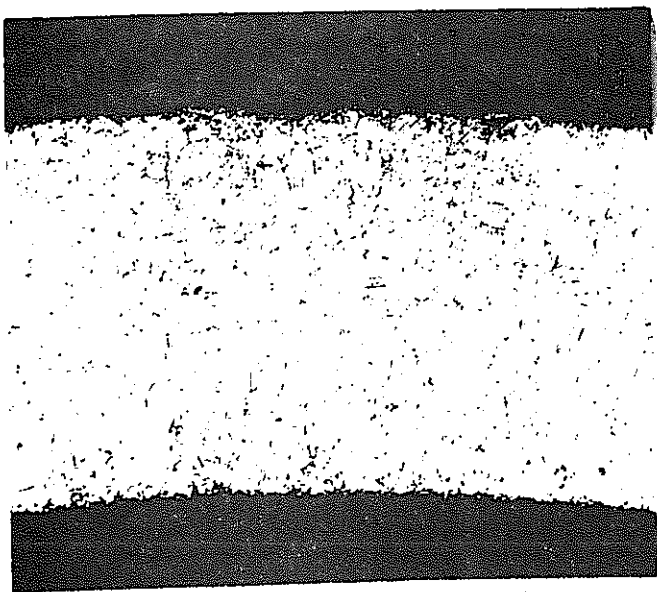
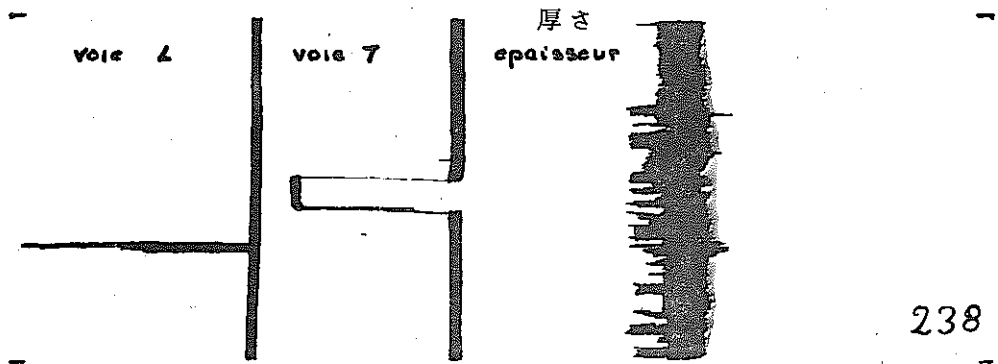


FIGURE N°7

GAINÉ N° 33 K

ENREGISTREMENT U.S.



MICROGRAPHIE G 150

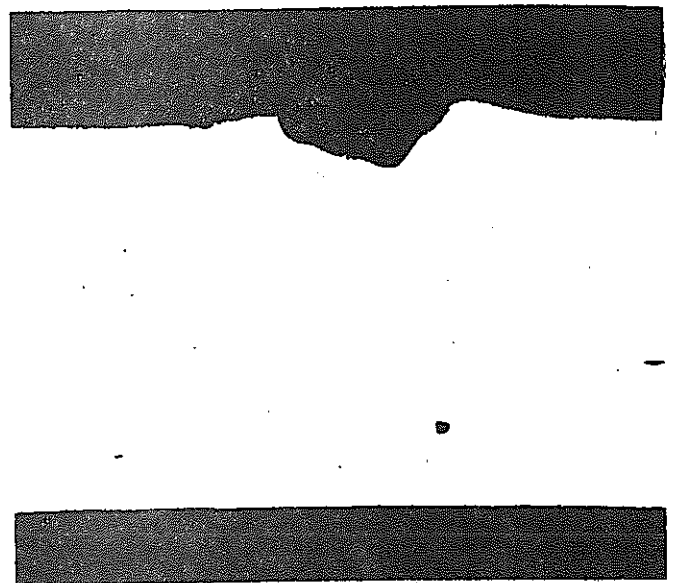
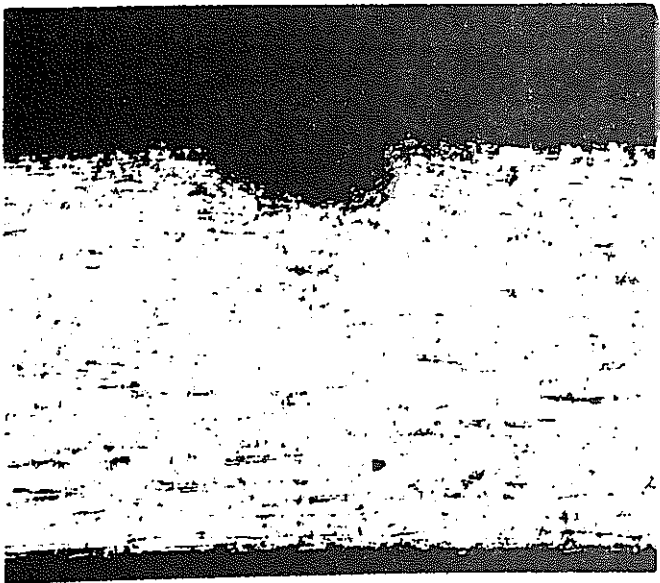
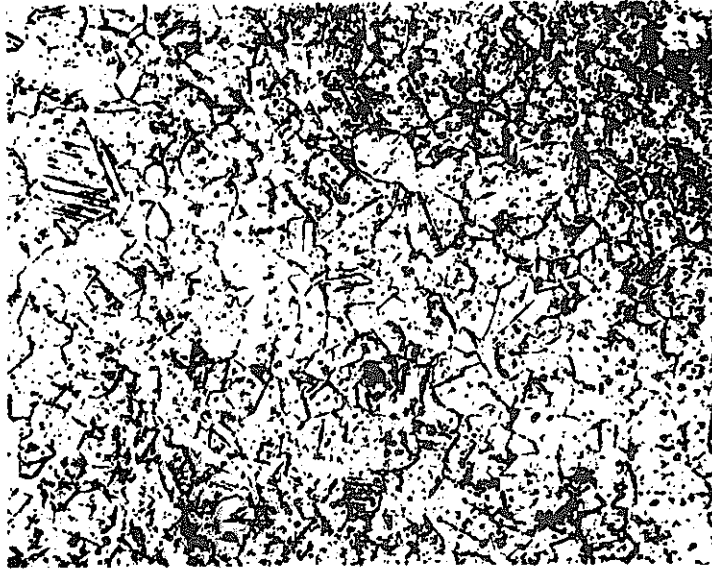


FIGURE N° 8

SUMITOMO

G 150



G 300

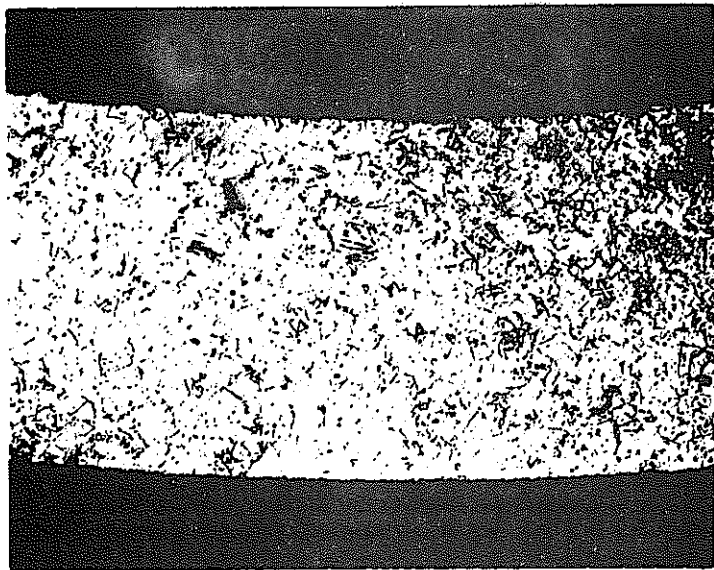
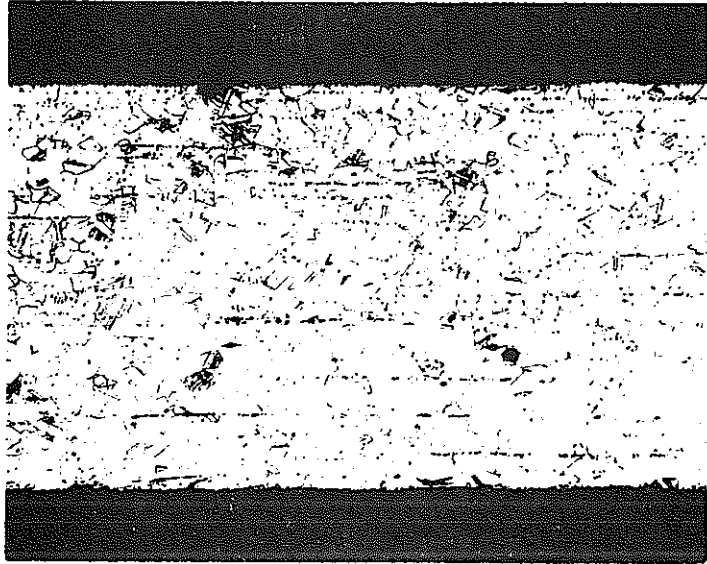


FIGURE N° 8 bis

SUMITOMO

N° 8-1

G 150



N° 8-2

G 300

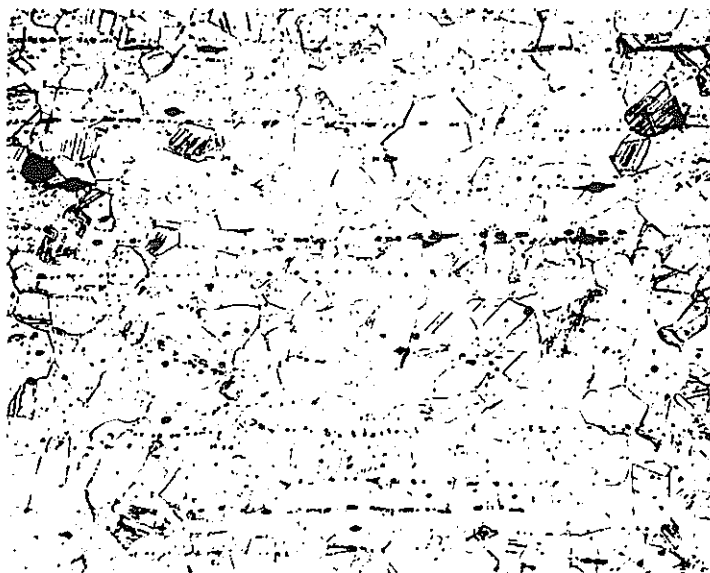
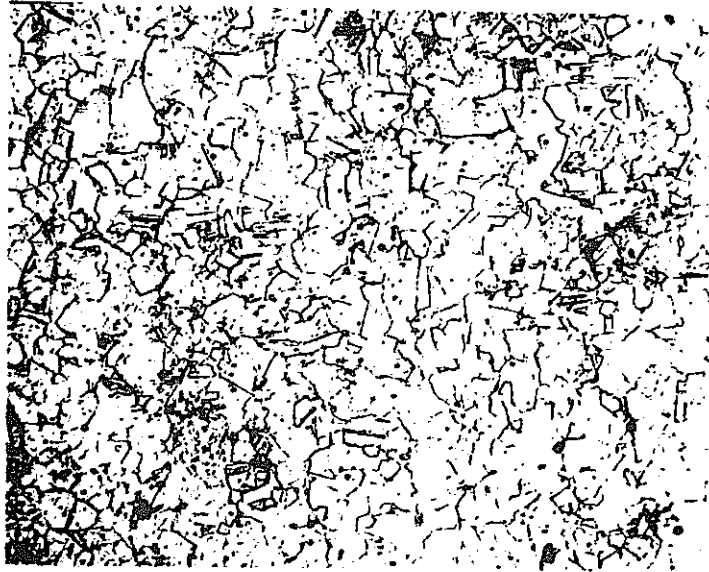


FIGURE N°9

K O B E

G 150



G 300

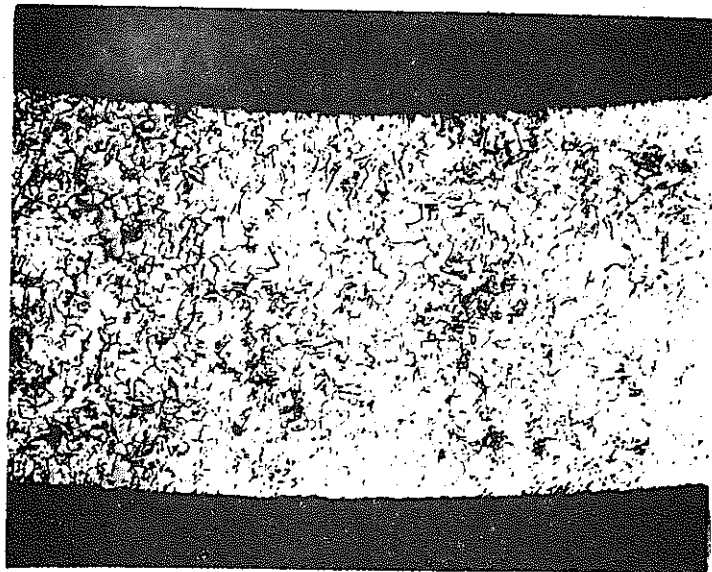
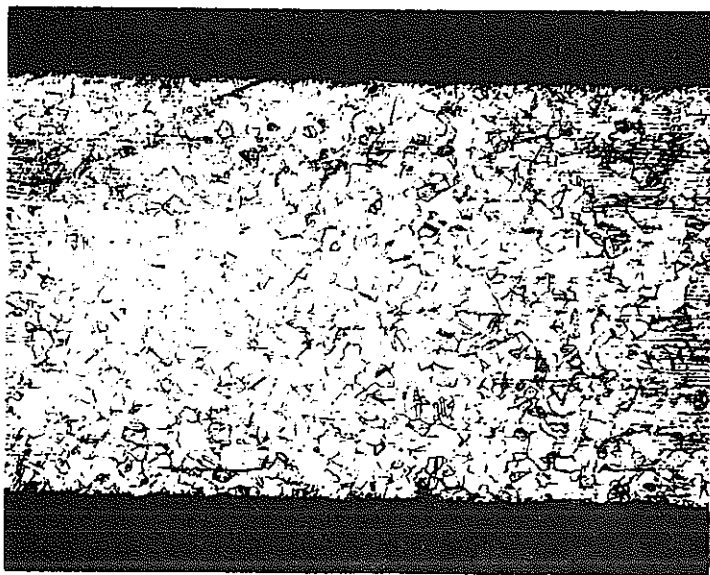


FIGURE N° 9 bis

KOBE

G 150



G 300

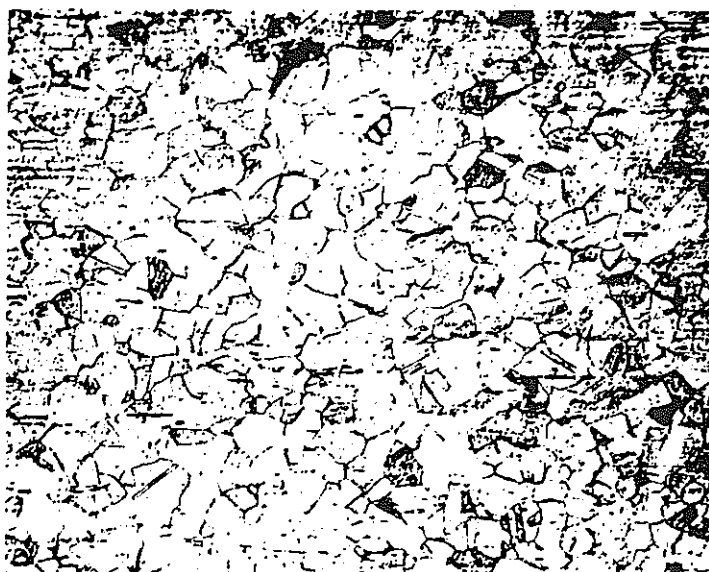
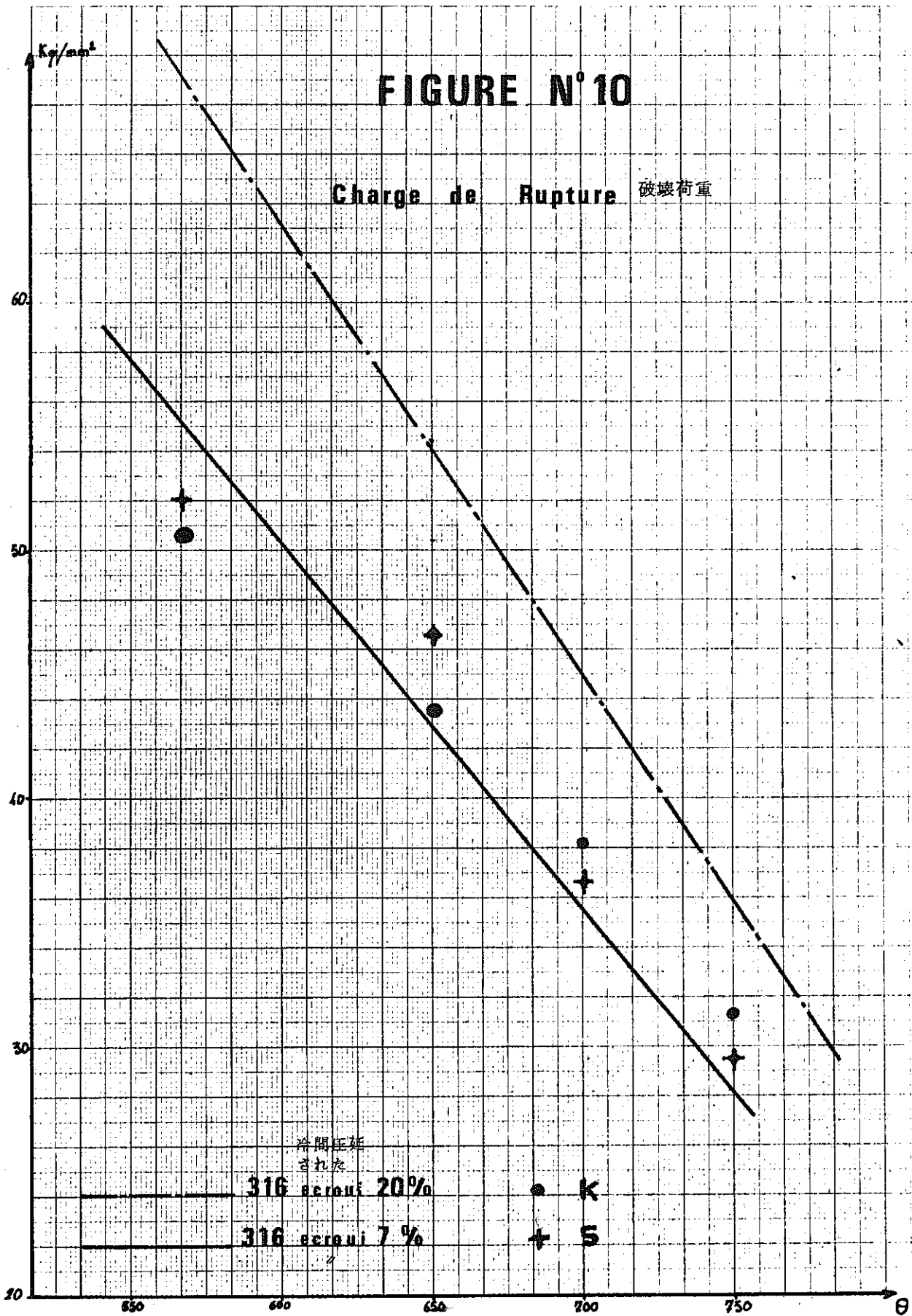


FIGURE N° 10



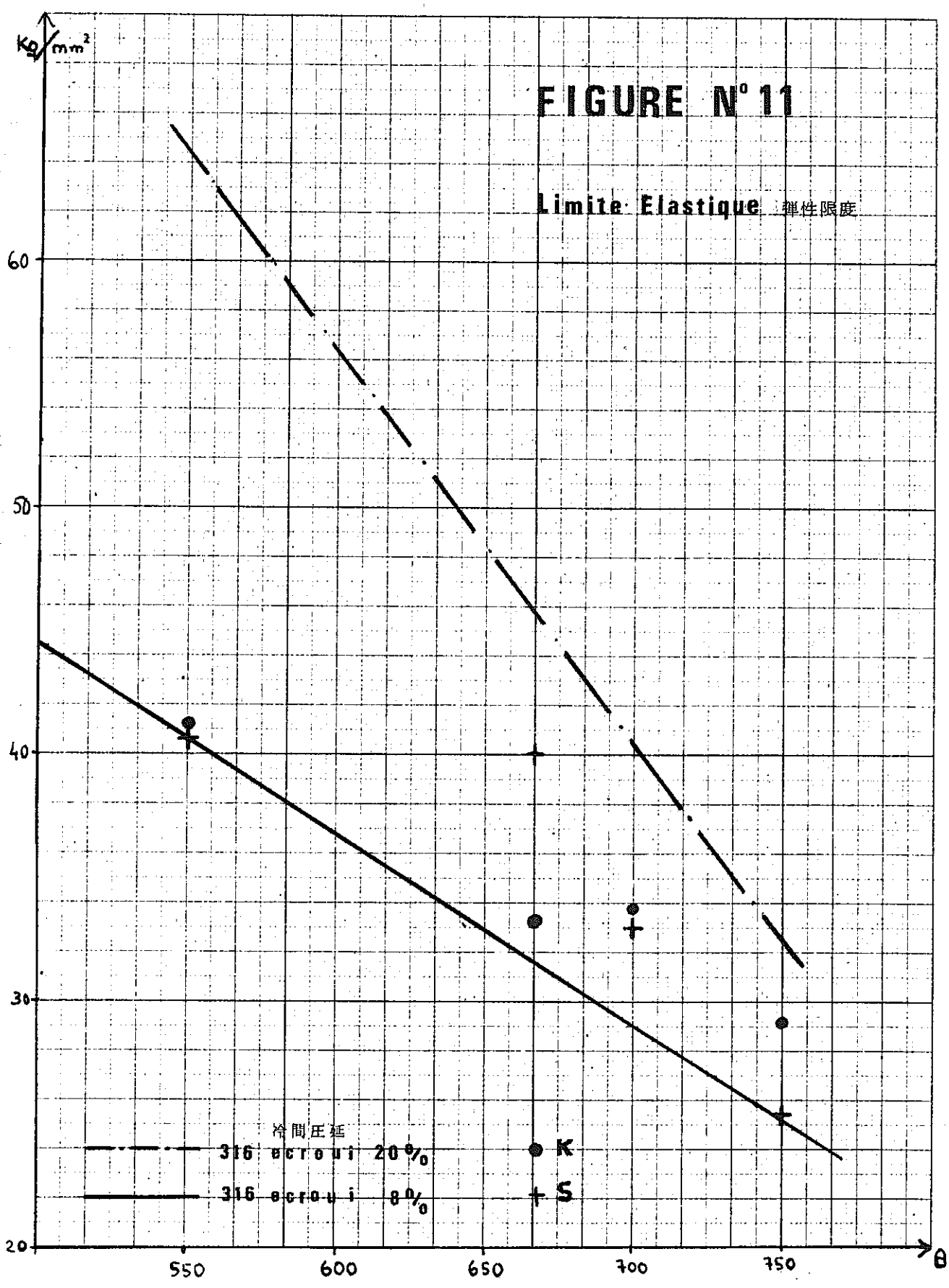


FIGURE N° 12

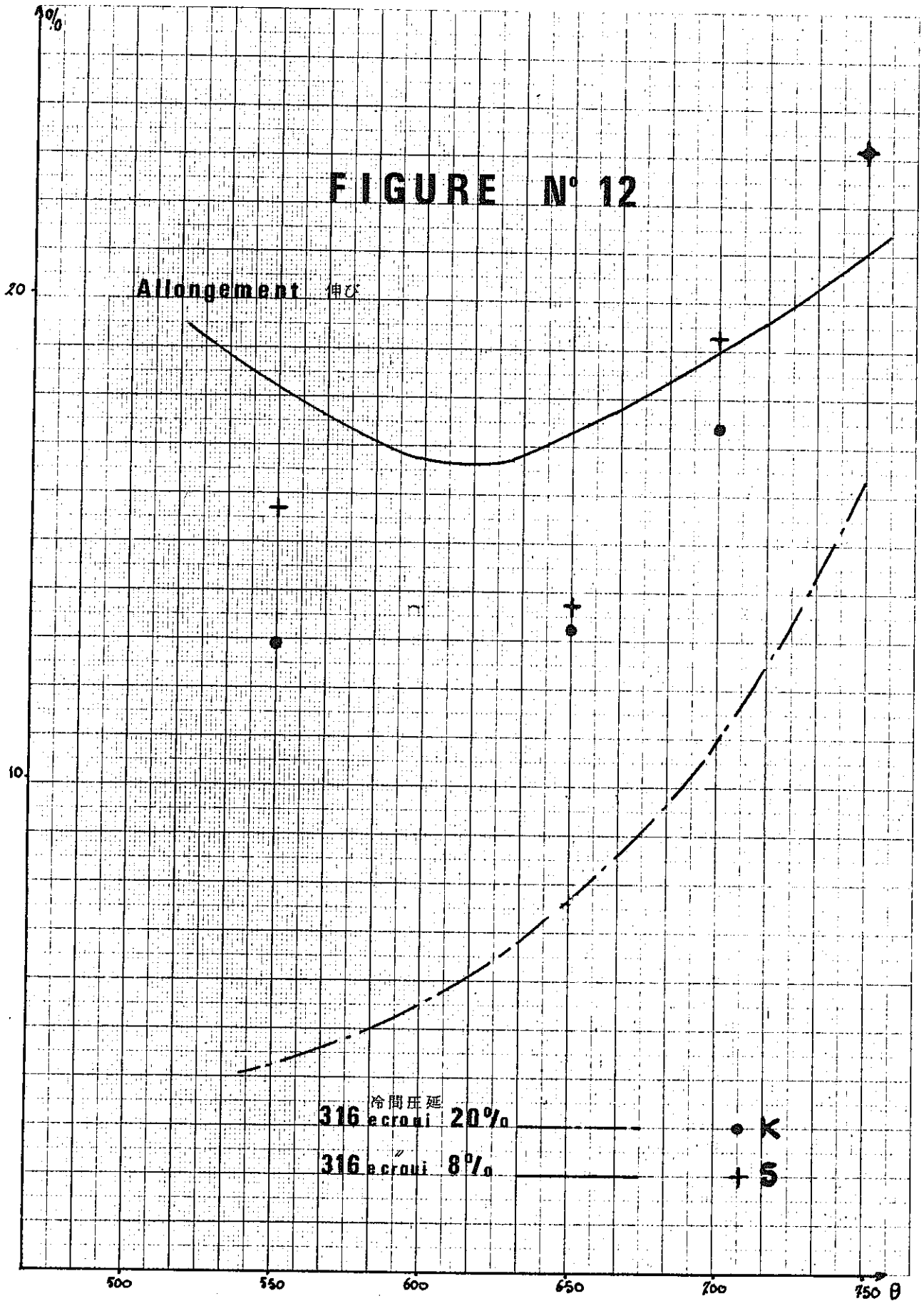
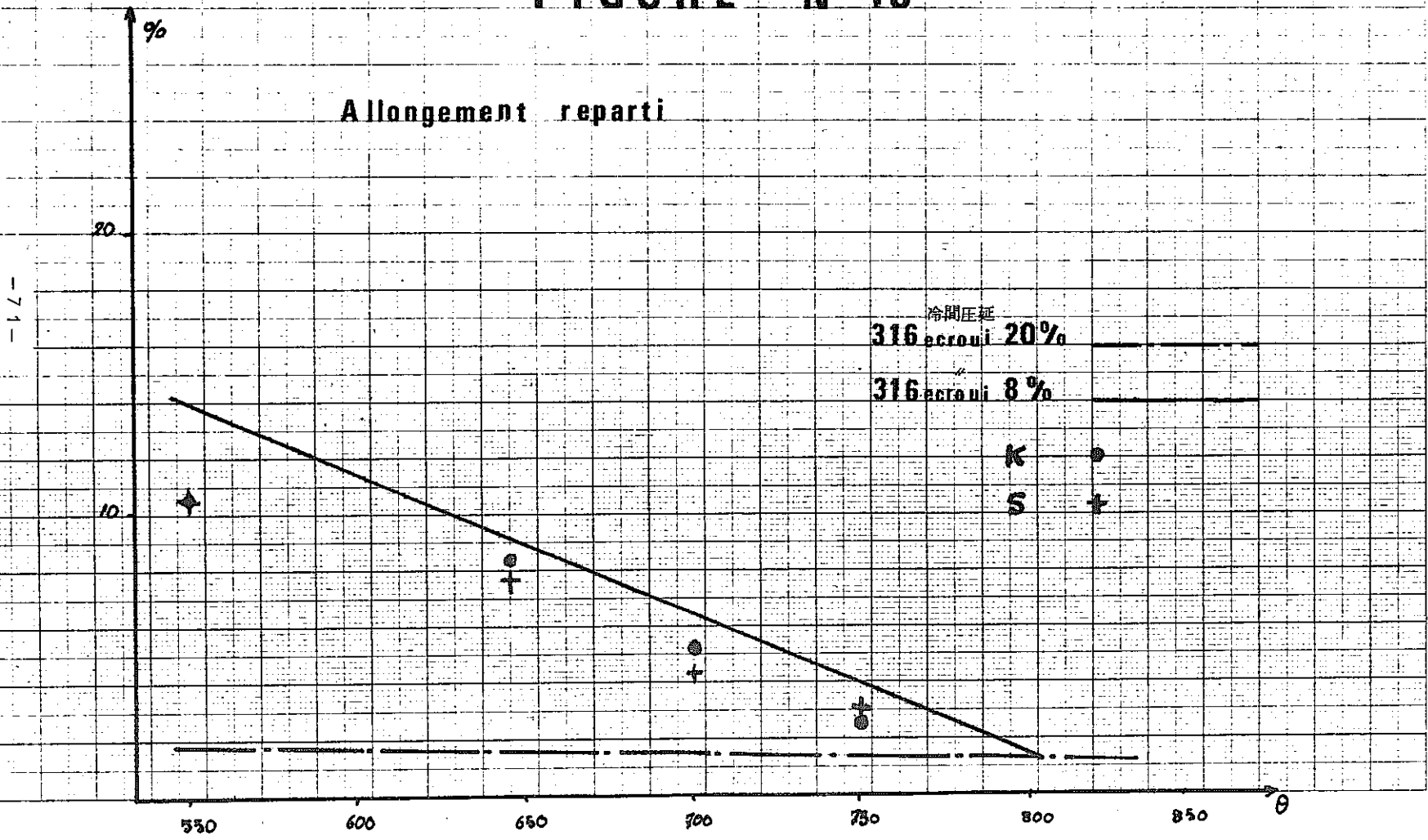


FIGURE N° 13

Allongement reparti



- 71 -

C Belgo-nucleaire (ベルギー, Mol)

5月25日

1) Dr. A. P. Flipot に面会
(CEN)

Flipot 氏より CEN および Belgo-nucleaire におけるプルトニウム燃料の生産および開発状況の概況の説明あり

プルトニウム施設は次の二つに分かれる。

1. 研究および開発

CEN と Belgo-nucleaire 共同で行っている。

2. プルトニウム生産活動

商業活動として

pu recycle と Fast Reactor Fuel の活動を行っている。Fast Reactor Fuel は Oxide Fuel element と Carbide fuel element と共に OK である。

現在: SNR 炉燃料 (300MW, 1975 Operation) で、この炉は German Dutch, Belgium の共同で開発している。

Enrico Fermi の燃料も作ることになっているが、炉がとまっているため一時的に中止している。

① Pu 施設見学

CEN と Belgo nucleaire による開発用施設は Vipac 燃料を主力に開発され Belgo nucleaire 生産設備は sintered pellet の pilot plant であつた。

② Belgo nucleaire のペレット焼結では、

プレスの際の Lubrication に特徴があるので、紹介する。

燃料粉末をペレット化する際、粉末をダイスに入れて成型圧縮するのであるが、粉末とダイス壁の間の潤滑があるため潤滑を十分にする必要がある。潤滑剤として Zinc stearate とか Zinc behenite (CEA もほつている) を 0.3% の割合で原料粉末に混ぜてダイスでプレスすると、壁との潤滑が十分でなくペレットができず 1% に上げるとうまくいった。しかし、潤滑剤をこのように多く混ぜると焼結の際の高度が上らなくなる。

潤滑剤の量を減らすためには粉末を as received のまゝ使わずに granulation する必要があるが、この場合、潤滑剤が granule のまわりに Coat される形となるのでこのままプレスすると壁との間の潤滑はうまくいくわけである。

Belgonucleaire は granulation を省き、

powder を as-received のが使うことにより製造コストを下げる目的で特殊な方法を用いている。それは乾式潤滑方式と呼ばれるもので小さいポリスチレン球（直径 0.2 ~ 1 mm）と Zinc behenite を V 型 mixer でよく混ぜて、ポリスチレン球のまわりに behenate を cote したものをダイスにいれ press する。press してできたポリエステレンペレットをとり出したあとには壁に丁度よい程度の潤滑剤の層ができ上る。とり出したポリスチレンペレットはすぐばらばらになるので、また使うことができる。

潤滑剤のあるダイスに Oxide の粉末をいれてプレスするとよいペレットができる。

ただし、この層は 1 ~ 2 回のプレスでダメになるので、再び Zinc behenate coat したポリスチレンペレットをプレスする必要がある。上記の繰り返し作業を量産で行うためにここでは Retang press を考案し、次々にペレットを押せるようになっていく。

Belgonucleaire の研究では普通の granulation と Lubricant mixing の組み合わせによる焼結ペレットよりもでき上り製品の density variation が非常に小さく、 $\pm 0.75\%$ でブドマリも高いため製品コストも安くなるということである。（普通は、 $\pm 3\%$ 以上にはどうしてもなる）

なお、この方法には Belgonucleaire の patent になつていくとのことである。

③ Belgo nuclear の Vipac 用 nodule について

nodule は $98.5 \pm 0.5\%$ T.D の円柱ペレットで dia は 1.5 ~ 3 mm, mixed oxide powder を carbowax および mowiol を含む溶液に混ぜ agglomerate させる。この混合物を 100 °C で乾燥し、ケーキをつくる。rotor で granulate として 20 ~ 30 mesh のふるいを通す。自動プレスで (Ateliers courttoy) グリーンペレットを作る。ペレットをタングステン炉で焼結する。(semir-sintering は行なわい) 雰囲気は H₂(dry) 温度は 1600 °C, 1br である。Nodule としての円柱ペレットの他にプレスした後のグリーンペレットを planetarily animated jar の中で回転させて球状化した粉末をつくつた。同粉末の性質はペレットの加工条件, jar の回転速度, 時間に依存になる。この Nodule を Vipac 燃料用粉末として用いる。

2) Andraesen 1 irradiation testing

SNR 用照射計画を作つていく。

(第一回ドイツ高速炉)

従来は外国炉 (DFR, ラブソディ炉およびフェルミ炉) を使つて照射している。

Thermal reactor irradiation も行つていく。

原子炉はカールスルーエのKNK-2 (Na冷却材を用いた熱中性子炉) を使用している。

SNR炉が1974年末に完成する予定であり、燃料 spec を決め次第燃料製造に入る。

DFR 照射

DFR 照射は1967年に start した classical design で3本のピンを trefoil に組んで照射した。ペレットの spec は Fermi で照射するものと同じである。Fermi 炉がダメなら Fermi 照射分も DFR にかえたい。

- 2) 1969年から trefoil でなく subassembly の照射も開始した。assembly 中のピン数は77ピンであつた。

ペレット燃料で closed tyre

$\phi = 6.00 \text{ mm OD}$

pellet O.D. 5.1 mm

gap 120 μ

上記資料は照射を終了したばかりで pin に leak はなかつた。

燃焼度は 50,000 MWD/T, 450 W/cm

被覆管表面温度 610 °C である。

- 3) trefoil 照射

1 CEA

3 trefoil 1 German

1 Belgonucleaire

Belgonucleaire の分は2本が、ペレットピンで1本が Vipac ピンである。

60,000 MWD/T

DFR の次の cycle で終る。

50,000 MWD/T (1 cycle 前) の終つた段階で non-destructive test を行い test 後更に 1 cycle の irradiation をする。

現在のところ smelling rate は 0.8 % (ペレット) と 0.5 % (Vipac) であつて Vipac の方が低い。

- 4) 2nd trefoil

Vipac pin 3本 (60,000 MWD/T)

pellet pin 2本 (40,000 MWD/T)

最終的には 135,000 MWD/T まで行いたい、現在はここまでである。

- 5) sub-assembly で照射したピンのうち DFR で non-destructive test を行い、その

うち9ピンを trefoil 3ケの中に入れて90,000MWD/まで燃焼させる(来年5月に終了)

Rapsodie 照射

ドイツ, ベルギー共同で照射している。

sub-assembly 2ケ

1 assembly 中のピンの数は34 pin pellet fuel で linear power は 570 w/cm
(max) $80,000 \text{ MWD/T}$; $T_s = 680 \text{ }^\circ\text{C}$

cladding の表面温度を高くしたのはドイツ側の事情を考えてのことである。

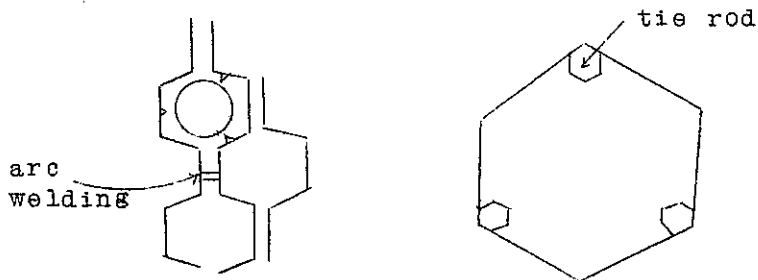
ピンの design は pin.OD 6 mm

cladding length 成々の design の実寸法

1970 Dec に照射開始し, 1972年 June に照射終了する。

照射後試験は1974年に終了する。

スペンサーは Grid (honey come)



tie rod を用いた。

central tie rod は使用しなかった。

Fermi reactor 照射

1965年に交渉開始

prototype fuel pin を照射する予定であつたが DFR 照射に切りかえた。

今後照射するものは spec が一寸異つており,

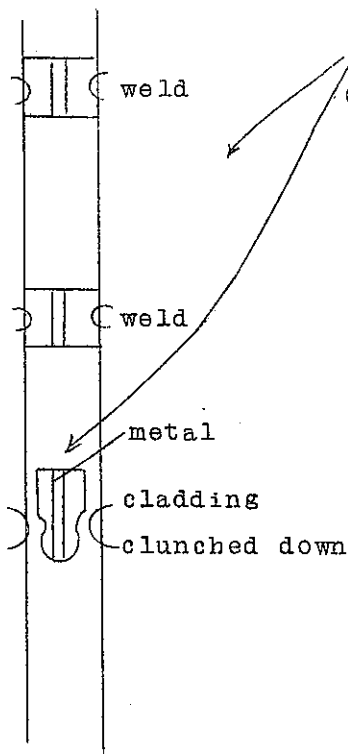
$\phi : 6.85 \text{ mm}$

fuel $\phi : 5.45 \text{ mm}$

APDA の人々の興味は3つの型の燃料にある

① スプリング付の classical design

② tight hold down の



cladding collapse type swaging をかけ、ギャップをなくす。

fabrication cost は高くなる。

collapsing の時ペレットにクラックを生ずるが燃料寿命の最終的には、どんな設計でも同じ結果になると考えられた。

BR-2照射

BR-2 に Na ループを設置し、Cd スクリーンをつけて照射している。

1968年に照射を始め、7ヶ月後に30,000MWD/Tに達した。

linear power 700w/cm

燃料ピンの表面温度 max 580℃

BR-2の照射計画は、pelletとVipac燃料について、instrumentationとCd screenをつけて照射することである。

① 50,000MWD/T

1969年7月

static condition

linear power 580w/cm

ピン表面温度 800℃

② 原子炉サイクル中、燃料出力をサイクル捨てる照射

80日間照射するがその間100サイクルする。

max linear power 580w/cm

ピン表面温度 600℃

③ 50,000MWD/T照射

昨年8月に照射開始

600 w/cm

表面温度 600℃

- ④ ①の50,000MWD/T照射したものについてサイクル照射する。
以上の条件について pellet と Vipac 双方について比較する。
- ⑤ ループ試験；2ケ目のループは燃料ピン40ピンを照射しうるよう設計してある。
燃料ピンの type は、

1) pellet pin

Gap の effect をみるために次の試料を作った。

- | | | |
|---|-------|-----------------|
| ① | 50 μ | } diametral に加工 |
| | 100 μ | |
| | 150 μ | |
| | 200 μ | |
| | 250 μ | |

- ② dice 2種類を用いて出き上り品を単純に選択したもの
5.1 ± 0.05 mm

(Belgonucleaire)

②を試料としたのは

centerless grinding を使いたくなかつたことにあり、理由は経済的見地および我々の炉の tolerance が ± 0.05 mm であることから grinding の必要なしと判断した。

grinding しない時は density の tolerance が楽である。

grinding すると volume が変わるので linear density が均一にならない。Belgo では linear density と第一とし、gap を第二と考えている。

2) Vipac (Sol-Gel powder を使ったもの)

3) Vipac (Nodule を使ったもの)

Nodule を使っても Compact density は燃料軸方向でも variation なし。

この Vipac は economical である。

4) Spec ont の pellet の照射

Specification に合致しなかつた。

ペレットも照射している。

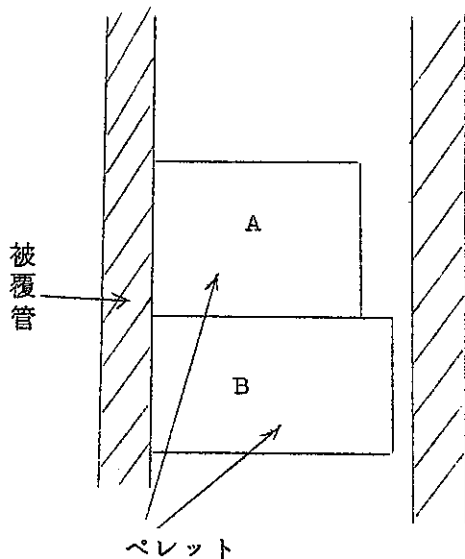
- Chipped
- broken pellet
- too low and too high density

これらの照射は fabrication の check として行っている。

燃焼度は 30,000 MWD/T ~ 60,000 MWD/T

linear power ~ 500 w/cm

Centerless grinding をかけるべきかどうかに対する考え方



焼き上りのペレットの ϕ は若干ばらつくが、直径を揃えるために centerless grind をかけるとピン中の linear density がばらつくことになり tolerance が十分 なくなる。

effective thermal conductivity は density の高い A ペレットではギャップが大きいがペレットの熱伝導率自体は高く、B ペレットはギャップが小さいもののペレット自体の熱伝導率が低いいため total としては互に compensate している。

以上の意味から gap 調整のための grinding はかけない方がよいと考えている。

KNK-2 照射

KNK-2 は、1972 中期に最初の炉心が完成する予定で fast reactor として hard spectrum である。B.R. は夫程高くない。

Belgonuclear では 2 ケの sub-assembly を照射する。

burn-up は 80,000 MWD/T 平均

100,000 MWD/T 一部

linear power 470 w/cm

である。

現在の spec は、80% smeared density (ペレットの Bulk density 88%)

(linear density は 1.90 g-cm (Fermi fuel は 2.2 g-cm, 90% Bulk density, 83%)
smeared density)

SNR の pu content は

6 2 ones pu 22%
 } 32%

(enrich Uは変えている)

KNK-2では、22% puO₂を照射している。

(Rapsodie 照射では30% puO₂を含む)

なお上記の照射試験については今年9月に行われる Karlsruhe の meeting に paper を提出する。その paper では Fermi fuel, BR-2 のデータを発表する。

照射結果

(BR-2 照射分)

① BR-2 で照射した燃料ピンは2本共破損した。

表面温度800℃になつたためである。

1本は大きい裂け目ができて燃料が外にでて腐生成物が生成にして外側に附着している。

双方共断面組織をみると大きい柱状晶ができています。

② ループ照射は30,000 MWD/Tまで

swelling なし

1½ in φ

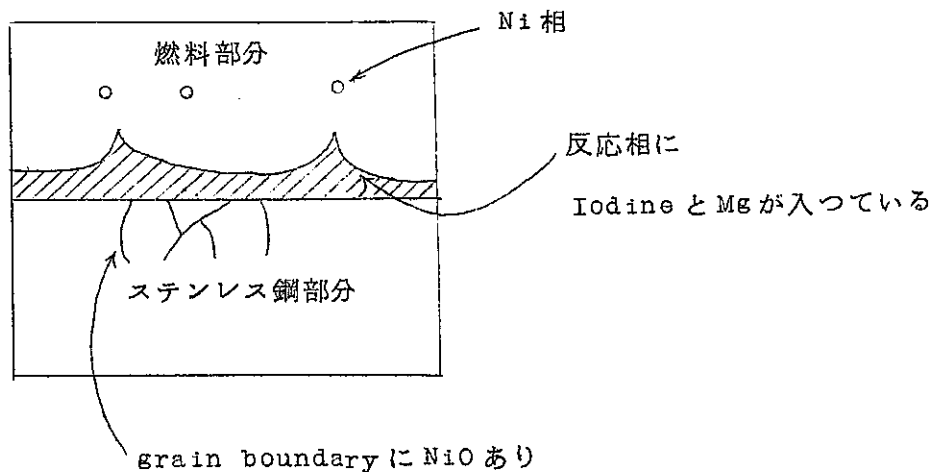
Ts 580℃

linear power 700 w/cm in max

中心に空洞を生じた。とけてはいない。

1部、中心の溶融したものもある。

stainless steel (3/6) と燃料間で反応を生じているのが特徴的結果である。



照射によつて燃料から生じた f.p のうち I がステンレス鋼中の Ni と反応して NiI を作る。

Ni 1が preferential に intergranular corrosion をおこしている。また Ni 1が燃料の方に戻つて入ることがあり融離して Ni が燃料中に析出する。

この現象は fast reactor へのステンレス鋼の主な drawback 要因である。

高速炉では燃料中の温度勾配が急激であるため Cs, I が燃料中を容易に diffuse していつて gap に concentrate する。

また cladding の温度が高速炉では熱中性子炉よりも高いため反応する。

chemical reaction は 580~600℃ に start する。

ステンレス鋼の使用温度を 580~600℃ 以下にすれば問題ない。

ドイツで使用している cladding material は 316 s/s であるが、3種類について研究した。

① WN 4981

ドイツ製ステンレス鋼

Nb stabilize した Austentic s/s で高温クリープが普通の 316 よりもよい。

② WN 4988

Nb と V (少量) を添加した。

Austentic s/s (N は 0.1% 含む)

③ Sweden の Sundwick 20-R-72

40~80 ppmB を含む 316 s/s B が He を生ずるので問題ではあるが溶接特性は他のものよりもよい。

①と②は NbC が grain boundary に析出している。

②と③が性質としてよい。

D Jillich 原子力研究所

(5月26日)

Reactor Materials Institute の Dr. Nickel, Dr. Kraozynski, Dr. Naoumides に
面会した。

この Institute は次のような構成になっている。

(1) Dr. Kraozynski

Irradiation testing Engineering and irradiation

(2) Dr. Nickel

chemistry

45人の課員で20人が研究員

(3) 現在 chief がいないが, Dr. Belthhsan が している。

Metallurgy + Ceramics irradiation testing の training も行う。

(4) Dr. Miiller

Hot cells (110人)

全体で220人

(2) と (3) で燃料を作り (1) で照射し (4) で照射後試験する。

現在 HTR 用 coated fuel に研究を集中している。

① 燃料製造開発 Dr. Nikel

bebble bed reactor 燃料の特徴は graphite coat spheres を bed に pack した
ものである。

sphere に対する基本的要求事項は次の通りである。

(1) high thermal conductivity in sphere

(2) 取扱中の摩擦 (abrasion) と圧縮 (impact) に対して強いこと。

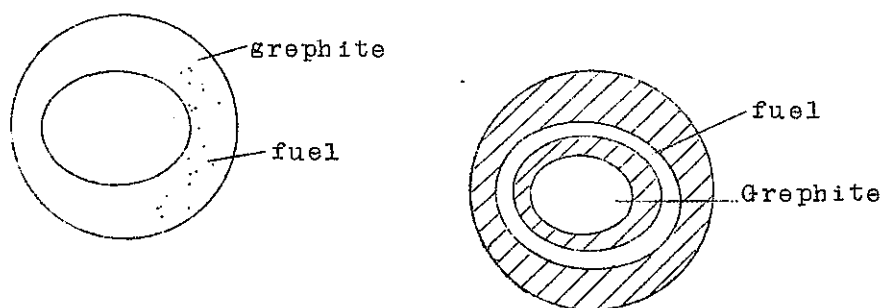
(3) thermal cycling による機械的損傷に強いこと。

(4) 化学的に安定であること。

(5) 分裂ガスを保有する能力が高いこと。

この から fuel particle を pyrolytic carbon と silicon carbide で coat する。

coating によつて f.p の殆んどが trap され coolant stream に f.p が入つて第一次回
路への放射能上昇を防ぐようにしている。



② Jiilich の燃料照射状況

Dr. KRAWCZYNSKI. S

HTGR 燃料の照射を 3,000,000 \$ かけて行っている。

UC 燃料にのみ今日は説明する。

照射試験に使用している原子炉は次の通り

1. STUDUK R-2 原子炉

計画中主な照射を行っている。

9本のHeループを使用

UCの線出力 2200 w/cm

He bonding

2. BR-2 (MO1)

UC particle irradiation

UC ピン

UCN ピン

UN ピン

3. DFR

4. PETTEN HFR(Grephte)

これまで終了した照射試験の結果は次のとおりである。(coated particleの方は省略, cylindricle pelletに限定)

UCの寸法

8.8mm中

claddingの厚み 0.3mm

材料 316と304 s/s

He bondingではあるが、實際上direct contactであつた。

heat rating は 1300 w/cm で burn up は $40,000 \text{ MWD/T}$, $40,000 \text{ MWD/T}$ で 3 ~ 5 % の volume change , 今後 UC の cylindrical fuel は Central hole をつくるつもりである。Halden で JABRI が center に dish をつけ端部をおとしたペレットを照射しているがあの形はよくないと思う。

照射結果は 9 月 28 日のカールスルーエでの ANS meeting で発表する。

③ H. J. Leyers との討議

Dr. Leyers は実直な研究者で燃料の熱的性質を測定している。この日は彼の熱伝導率の装置をみせてもらうと共に測定方式, 程度をあげるための要点について討論した。

添付図に示すように Compact にまとまった径方向熱流方式の装置を用いている。

彼の測定材料は HTR 用の coated fuel であるが測定方法自体は他の燃料を測定するものである。graphite の holder の中に coated fuel を pack する。熱電対はぎりこみをつけてきちんと set する。試料に与えられる熱量は電流電圧より計算する。炉の中の軸方向の温度勾配の存在による熱量の分布は calibration しているとのこと。(ただし, この方法は測定温度に影響するので問題のある点である)

測定データを添付した。

測定カプセルの $\phi 6 \text{ cm}$, 長さ 25 cm , 熱電対は pt/ptRh, 絶縁材 Al_2O_3

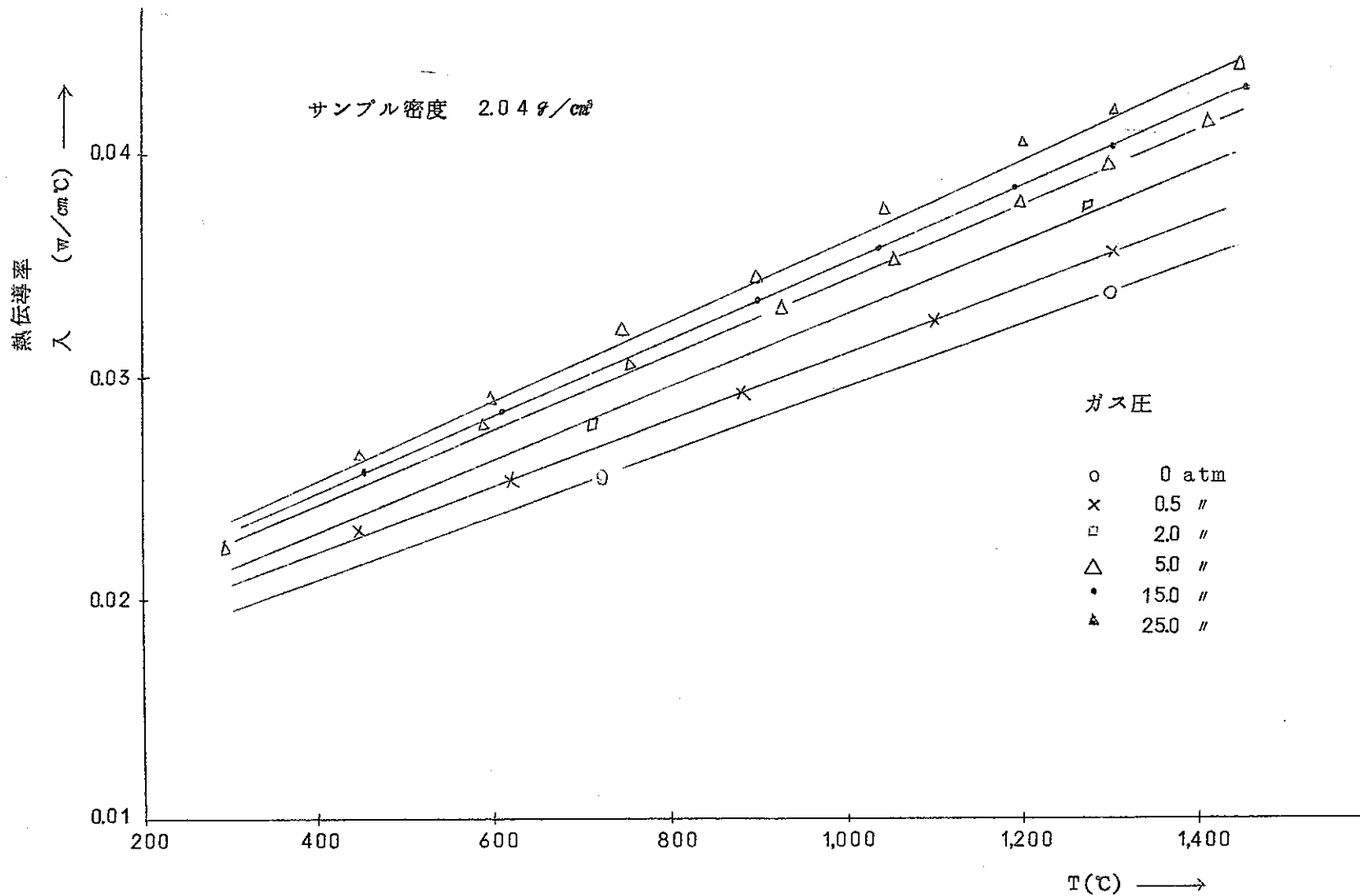
試料の coated particle の直径 650μ

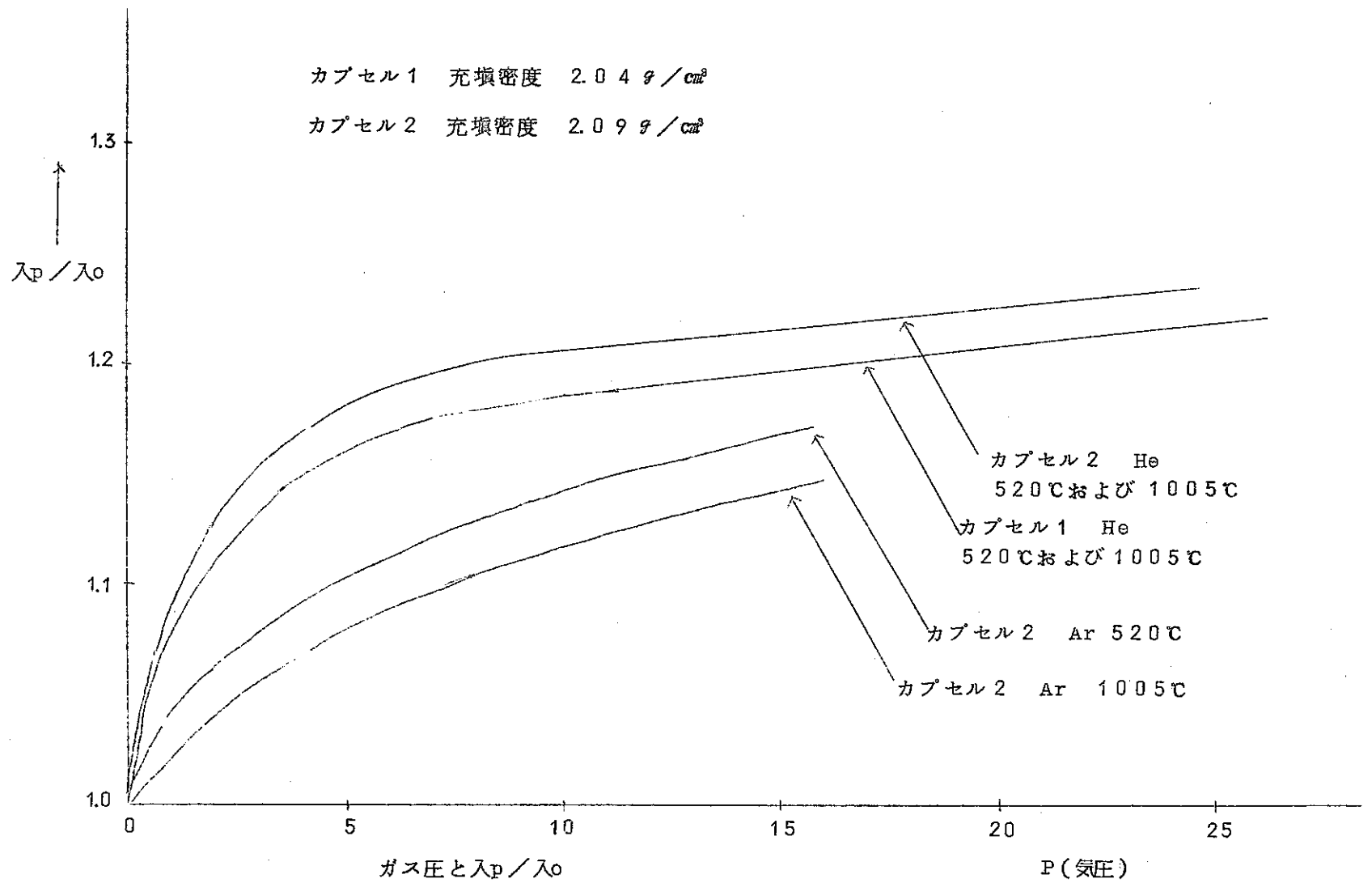
core material UC₂

外殻 二重 pyrographite

グラフアイト殻の密度 1.56 g/cm^3

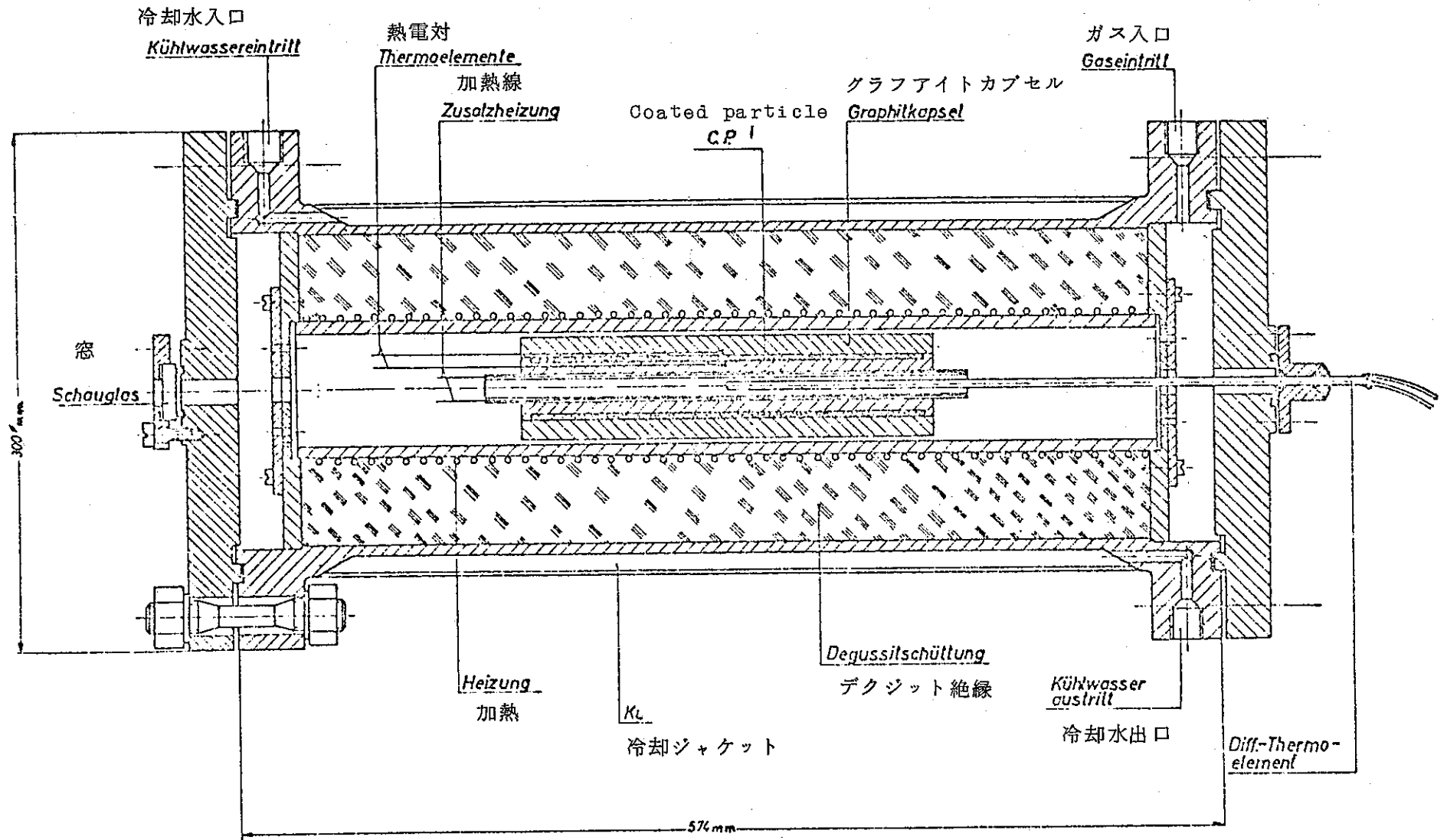
coated particle 平均密度 3.17 g/cm^3





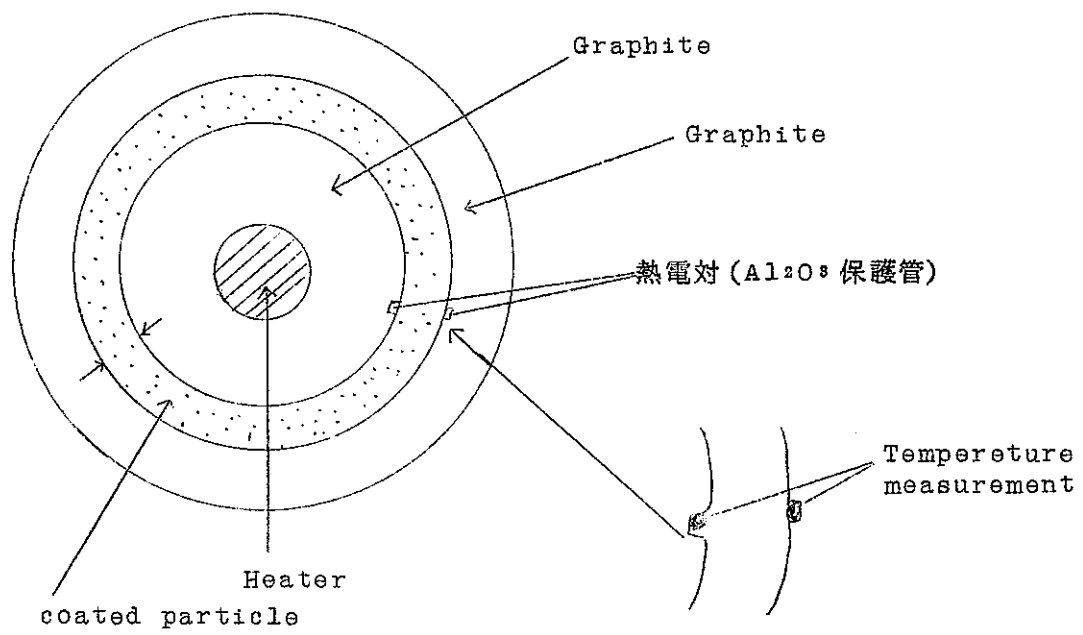
λ_p : ガス圧力下の熱伝導率

λ₀ : 真空時の熱伝導率



熱伝導率測定装置 (温度 1500°C迄, ガス圧 40気圧まで)

Fig.1 Schutzgasofen mit Graphitkapsel für Temperaturen bis 1500°C und Drücke bis 40 atü



Coated particle 3layer ~ 10layer

田 カールスルーエ 原子力研究所 (ドイツ)

5月26日

面会者 Dr. Wedemeyer

1. セラミック燃料の溶解について

Leybold-Heraeus 社と共同で高純度セラミック物質のアーケ溶解炉を開発した。

(pressure 20気圧まで可能)

炉は75V 2250A,あるいは150V 1120Aである。

不活性高圧ガス中で溶解するので例えば UO_2 とCuのように異なる融点の物質の混合物を同時に溶解することが可能である。

N_2 圧を高くすることにより融点の高い金属をnitrideにすることができる。

上記の炉を使うことによつてUN, U(N, C), U(O, C)のように将来の燃料として有望な燃料物質を製造することができた。

N_2 15~20気圧でUの電極を使い,電極と溶解物との間隔を一定に保つようによつておくとによつてfree uranのない均一なUNを作ることができる。

高次ウラン窒化物は製品を焼化することによつて取り除きうる。

U(N, C)はUNの塊とUNの塊を3~5気圧の N_2 中で永久電極を使つてとかすことによつて作ることができる。

UO_2 とUCをCarbon電極を使つて3~5気圧のアルゴン中で溶解することによりU(O, C)を作ることができる。なお,この場合,U metalがgrain boundingに析出する。そこでCarbonを適切量加えてやるとuran metalを取り除くことができる。

この他,タングステン電極を使つて5気圧のアルゴン中で $DyNi_2$, $DyAl_2$, $HoFe_2$, $HoAl_2$ を作つた。また2~5気圧の窒素中で HoN , DyN のようなRare earth metalのnitrideを使うことができた。

N_2 2気圧, Tiスポンジをとかして高純のTiNを15気圧の N_2 中でTi metalをとかしてTiNを作つた。

2. UN焼結ペレット製造研究

1~6 μ の粉末を使用することにより非常に高純度の不活性ガス雰囲気での処理を必要としなかつた。空気中で圧縮成立し窒素中で焼結した。焼結温度は1800°Cで6hr,ペレット密度は95%FD。

なお光学顕微鏡の結果 UO_2 相が認められた。

化学分析の結果では、O₂が0.2%、N 5.4~5.5%、C 0.1%であつた。

また低密度ペレットを作る際はU₂N₃を加えた。

3. UNと金属酸化物との反応生成物

UNとBeO, MgO, 2-Al₂O₃, 2-Al₂O₃, SiO₂, TiO₂, CeO₂, ThO₂夫々を混ぜてプレスしたサンプルを作り、高真空中600℃および1,100℃で10~25hr加熱し、反応生成物を調べた。混合比はUN30vol%, 金属酸化物70vol%である。

結果は次の通り。

UN+.....	加熱時間	プレス雰囲気	加熱温度600℃	1,100℃
BeO	25	Ar	反応なし	UO ₂
MgO	25	Ar	UO ₂ , U ₂ N ₃	UO ₂ , (Mg)
2-Al ₂ O ₃	25	Ar	UO ₂ , (Al), AlN	UO ₂ , Al, AlN
2-Al ₂ O ₃	25	Ar	UO ₂ , U ₂ N ₃ , (Al)	UO ₂ , Al, AlN 2-Al ₂ O ₃
SiO ₂	25	Ar	反応なし	UO ₂ , (Si)
TiO ₂	10	空気	UO ₂ , U ₂ N ₃	UO ₂ , TiN, Ti ₂ O ₃ Ti ₃ O ₅
ZrO ₂	10	空気	反応なし	UO ₂ , ZrN
CeO ₂	10	空気	(CeN)	UO ₂ , Ce ₂ O ₃
ThO ₂	25	Ar	反応なし	反応なし

ThO₂がUNと反応しないことは特筆すべき結果で、UN焼結体を作る際のルツボ等の選定に役立つ結果である。

Oxide燃料とステンレス鋼の共存性に対する金属分裂生成物の影響

酸化物燃料とステンレス鋼の共存性が照射中において発生した分裂生成物によつて影響されるため、ステンレス鋼被覆管の安全性について十分な研究の必要性を生じているが、カールスルーエでは分裂生成物として考えられる。Cs₂CO₃, SrO, CeO₂, ZrO₂, MO, Pdを321s/sと316s/s粉末およびUO₂粉末と混合して圧縮成型してペレットを作り加熱した。

加熱温度は750℃~1250℃、時間は1000hrであつた。

CsCO₃を混ぜた時、stainless steelと750℃で激しく反応し、Cs₂CrO₄を生じた。

316s/s + Cs₂CO₃, 800℃, 1000hr

(sst: very strong, st: strong, m: moderate, sw: weak, ssw: very weak)

2-Fe sst

Cs₂CrO₄ st

Cs₂NiO₃ m

Cs_2MoO_4	m
$(Cr, Fe)_2O_3$	m
$Cs_2Cr_3O_8$	sw
$Cs_2Cr_2O_7$	sw
$NiCO_3$	sw
$FeCO_3$	sw
Fe_3C	ssw
$Cr_2_3C_8$	ssw
r-Fe	sw

ペレット中(あるいはステンレス中の carbon)が分裂生成物の Cs と反応して $CsCO_3$ を作る時は上記の可能性が出現するわけである。

この他の CeO_2 , ZrO_2 , pd, MO 等の分裂生成物では反応は 1,000 °C 以上になつた場合に見られた。

	UO ₂ +316s/s	UO ₂ +316s/s +MO	UO ₂ +316s/s +pd	UO ₂ +316s/s +CeO ₂	UO ₂ +316s/s +ZrO ₂	UO ₂ +316s/s +Cs ₂ CO ₃	UO ₂ +316s/s+SrO
750℃/5h	反応なし	反応なし	反応なし	反応なし	反応なし	反応激し α-Fe sst Cs ₂ CrO ₄ st CsCr ³ O ₈ m Cs ₂ UO ₄ sw U ₃ O ₈ sw FeCr ₂ O ₄ m	弱い反応 SrUO ₃ m SrUO ₄ m FeCr ₂ O ₄ sw Fe ₃ O ₄ sw Cr ₂ U ₂ O ₇ ssw
1000℃/5h	反応なし	反応なし	—	反応なし	反応なし		強い反応 SrUO ₃ st SrUO ₄ st Sr st SrCrO ₄ m Cr ₂ U ₂ O ₇ m (Cr, Fe) ₂ O ₃ ssw
1250℃/5h	反応なし	α-Fe ₂ MO sw β-Fe ₂ MO ₂ sw				反応激し α-Fe sst Cs ₂ CrO ₄ st CsCr ³ O ₈ m U ₃ O ₈ st FeCr ₂ O ₄ m Cs ₂ U ₃ O ₄ sw Cs ₂ U ₃ O ₇ sw Cr ₂ U ₂ O ₇ sw	
125℃/25h	反応なし						

F マックスプランク研究所(ドイツ)

stuttgart

Max-planck 粉体金属研究所訪問

面会者 Dr. Lukas MrReiner F.Pabst, Dr. Hikaru Itoh

stuttgart 郊外 Vaihingen にある Max-Planck 研究所の粉体金属研究所を訪問した。

この研究所の主な仕事は原子炉用 BeO の製造研究および照射試験であつた。BeO 製造設備はグローブボックスを使用した立派なものである。日本硝子に依頼されて照射試験も含む BeO の開発試験を行つていた。

BeO の加工法は cold press あるいは hot press した後に焼結するものである。

一回の焼結では気孔率の高いものしか得られないので Be 塩を含浸させた後、2 回目の焼結を行い、高密度のものを得る。到達密度および強度の性質を改良するため種々の添加物を加えている。

BeO は照射によつて、He 等のガスを発生するため smell する問題があり、これらガスを BeO の形状に影響を与えずに放出し、かつ高密度の焼結体を得るための研究努力がなされている。

所有する検査研究設備は通常のセラミック研究設備と同様である。

今後の研究開発項目として、 ZrO_2 、 Al_2O_3 に興味を有していた。