研究論文

966. 低燃焼度ウラン-プルトニウム混合炭化物燃料の
照射挙動岩井 孝*, 鈴木 康文*,
前多 厚*, 笹山 龍雄*, 半田 宗男*

(1991年6月17日 受理)

*Performance of Uranium-Plutonium Mixed Carbide Fuels
Irradiated to Low Burnup*By Takashi IWAI, Yasufumi SUZUKI,
Atsushi MAEDA, Tatsuo SASAYAMA and Muneo HANDA

Four pins of U-Pu mixed carbide fuel, which is one of potential advanced fuels for FBRs, were irradiated in JRR-2 up to burn-ups of 1.5% FIMA without any pin failure. In spite of irradiations at relatively low linear heat powers of 42 and 64 kW/m, the change in the sizes of pores and grain size was observed. Pellet density and carbon content appreciably influenced to irradiation fuel performance, such as restructuring, cracking and FP gas release. It was revealed in the γ -spectrometry that Cs behaved similarly to FP gases and condensed at the plenum. A slight carburization was observed at the inside of 316 stainless steel cladding.

KEYWORDS : *post-irradiation examination, uranium, plutonium, mixed carbide fuels, FBR type reactors, pore distribution, grain growth, restructuring, cracking, fission product release, gamma spectrometry, carburization*

I. はじめに

ウラン・プルトニウム(U-Pu)混合炭・窒化物燃料は酸化物燃料に比べて核分裂性物質密度が高く、熱伝導度も大きいなどの優れた特性を有しており、FBR用の高性能新型燃料として位置づけられて欧米を中心にして開発が進められてきた⁽¹⁾。我が国でもこれらの優れた燃料特性に注目し、1976年から本格的に混合炭化物燃料の開発研究に着手した⁽²⁾。燃料製造技術を確認した後、1983年からはJRR-2(Japan Research Reactor-2)およびJMTR(Japan Materials Testing Reactor)を利用した照射試験を開始した⁽³⁾。また、炭化物燃料と同様に優れた燃料特性を有するU-Pu混合窒化物燃料についても1989年からJMTRを使って照射試験を進めている⁽⁴⁾。

これまでU-Pu混合炭化物燃料ピン9本を5体

のキャプセルに装荷して照射試験を実施しており⁽⁵⁾、このうち、JRR-2で照射したキャプセル2体(燃料ピン4本)については、照射後試験が終了している。これらの照射により1.5% FIMAの燃焼度までの照射健全性が明らかにされており、今後、JMTRで照射した燃料を逐次照射後試験して、高燃焼度下での燃料健全性の実証と燃料挙動の把握を行う予定である⁽⁶⁾。JRR-2で照射した2体のキャプセル(ICF-47HとICF-37H)には、それぞれ2本の燃料ピンが組み込まれており、それら2本の燃料ピンには組成の異なる2種類の燃料(U, Pu)C_{1.0}と(U, Pu)C_{1.1}ペレットが装填されている。

本報では、これらの4本の燃料ピンに関して照射後試験から得られた燃料挙動の結果を報告する。

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

II. 照 射

U-Pu 混合炭化物燃料ピン⁽⁹⁾はキャプセルに組み込んだ後、1983～86年にかけて JRR-2 インコア 6D で照射した。照射燃料の概略および照射条件を **Table 1** に、また、ICF-37H キャプセルの組立図を **Fig. 1** に示す。照射キャプセルは内筒および外筒の二重構造で燃料ピンを封じ込めており、燃料ピンとキャプセル内筒間の熱媒体としては NaK を用いた⁽⁹⁾。使用したステンレス鋼の特性上、被覆管温度を 825 K (最高許容温度: 925 K) に制限したため、線出力は炭化物燃料の標準的な値である約 80 kW/m⁽⁵⁾ よりも低いものとなった。特に ICF-37H キャプセ

ル(以下 ICF-37H)では、細径の燃料ピン(外径 6.5 mm)を使用したため、線出力は 42 kW/m (ピーク線出力)に抑えられた。

一方、ICF-47H キャプセル(以下 ICF-47H)では米国エネルギー省(DOE)から入手した外径 9.4 mm の太い燃料ピン⁽⁶⁾を採用し、線出力を 64 kW/m に高めた。最終燃焼度は、ICF-37H について 1.2 % FIMA (10 GWd/t)、ICF-47H について 1.5 % FIMA (13 GWd/t)であった。また、キャプセル内筒表面における高速中性子照射量(>0.1 MeV)は、ICF-37H で $1 \sim 2 \times 10^{20}$ nvt, ICF-47H で約 3×10^{20} nvt であった。

今回の照射は熱中性子炉で行なったものであり、

Table 1 Specifications of fuel pins and irradiation conditions of U-Pu mixed carbide fuels

Capsules		ICF-37H		ICF-47H	
Fuel pins		ICF37-1	ICF37-2	ICF47-1	ICF47-2
Fuel pin design					
Fuel pellets					
Fuel materials		(U, Pu)C	(U, Pu)C+(U, Pu) ₂ C ₃	(U, Pu)C	(U, Pu)C+(U, Pu) ₂ C ₃
Pu/(U+Pu) (atomic ratio)		0.205	0.204	0.190	0.190
Carbon content (wt %)		4.70	5.21	4.66	5.09
Oxygen content (wt %)		0.27	0.14	0.25	0.16
C _{eq} /(U+Pu) † (atomic ratio)		1.02	1.11	1.01	1.09
Pellet diameter (mm)		5.397	5.396	8.230	8.230
Pellet density (% T.D.)		90	93	83	84
Fuel pins					
Cladding materials		20 % CW SUS316	20 % CW SUS316	20 % CW SUS316	20 % CW SUS316
Clad thickness (mm)		0.47	0.46	0.51	0.51
Clad diameter (mm)		6.49	6.49	9.39	9.39
Smear density (% T.D.)		85	87	80	81
Bonding material		He	He	He	He
Irradiation conditions					
Irradiation period		Nov. 1983~July 1984		July 1985~Apr. 1986	
Accumulated time (h)		1,543		2,665	
Linear heat rate (kW/m)		42		64	
Temperature					
Cladding tube (K)		725		795	
Pellet					
Surface (K)		1,060		1,130	
Center (K)		1,275		1,420	
Burnup (% FIMA)		1.2		1.5	
Neutron fluence					
Thermal (nvt)		4.0~5.0×10 ²⁰		8.6~8.8×10 ²⁰	
Fast ;>0.1 MeV (nvt)		0.9~1.7×10 ²⁰		3.1~3.4×10 ²⁰	

[†] C_{eq} : carbon content + (12/16) × oxygen content

Fig. 1 Capsule for irradiation of mixed carbide fuels in JRR-2 (ICF-37H)

高速中性子照射条件と比べて燃料挙動に相違の出ることが予想される。例えば、核分裂収率が異なることのほか、特に、燃料中心領域での中性子束の低下が顕著である。THERMOS コードを用いて照射開始時点における燃料内の中性子束分布を計算すると、ICF-47H の燃料中央部では中性子束が表面部分と比べて約 1/4 に低下すると評価された。これらの中性子スペクトルの相違に伴う影響については、各試験結果の評価に当たって個々に検討を加える。

照射中では炭化物燃料キャプセルに特に異常は認められず、予定通りの照射が行われた。照射後、燃料は 10~12 ヶ月間程度冷却された後、照射後試験施設に搬入し、その α/γ セルおよび β/γ セルを用いて照射後試験を実施した。

III. 試験結果と考察

1. 燃料ピンの非破壊検査

キャプセルから取り出して熱媒体の NaK 洗浄を行なった後の燃料ピンの外観は、端栓溶接部等で一部変色が認められたものの、全体としては金属光沢を残しており、特に異常は認められていない。また、燃料ピンのプロフィロメトリーの結果では、測定精度に比べて大きな直径変化、リッジング、燃料棒の曲がり等は観察されなかった。代表的な測定結果を Fig. 2 に示す。

炭化物や窒化物燃料では、酸化物燃料と比べて、特に低温領域での照射誘起によるクリープ速度が小さく⁽⁷⁾⁽⁸⁾、スエリングによって燃料が被覆管に拘束された後では燃料と被覆管との機械的相互作用 (FCMI ; Fuel-Clad Mechanical Interaction) が起こり易いとされている。今回の試験で被覆管の変形が小さかったことは、1.2~1.5 % FIMA の燃焼度

範囲において燃料と被覆管とのギャップが完全には閉塞していないことを示唆している。後述するように、燃料断面マクロ組織観察から ICF-37H の燃料ピンでは、ギャップの存在が明らかに認められている。また、ICF-47H の燃料ピンについても、照射中にギャップが維持されていたと思われる、プロフィロメトリーの結果を裏づけている。

ギャップが閉塞して燃料のスエリングが被覆管に

Fig. 2 Comparison of diameter and bowing of (U, Pu) $C_{1.0}$ fuel pin before and after irradiation (1.5%FIMA). Horizontal position corresponds to figure of pin.

影響を及ぼし始める燃焼度については、燃料特性あるいは照射条件によって異なるが、標準的な燃料設計条件では2~3% FIMA であると考えられている⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。後述するように、燃料密度変化から評価したスエリング率はこれまでに報告された値とよい一致を示していることから、今回の1.2~1.5% FIMA においては、ギャップは閉塞せず、このため有意なFCMI が起らなかったものと結論づけられる。

2. クラッキングパターン

照射後の燃料ペレット断面の金相写真を **Photo.1** に示す。ICF-37H および ICF-47H の燃料に生じたクラックを比較すると明らかに相違が見られる。炭

化物燃料はその他のセラミック燃料と同様に引張応力に弱く、原子炉の起動・停止時において燃料内に発生する温度勾配に起因した熱応力によって割れが生ずるものと考えられている⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。このクラックは燃焼が進むにつれて燃料表面近傍の低温部を除いて回復すると報告されている⁽¹²⁾ が、今回の試験ではその回復現象は観察されていない。その理由としては燃料温度の低いことのほかに、燃焼度が低く、燃料が被覆管によって拘束を受けなかったこと⁽⁹⁾ が指摘できる。仮にクラックの回復が「蒸発-凝縮」プロセスによって起こると考えた場合、炭化物燃料でこのメカニズムが機能するためには高温と大きな温度勾配が必要である⁽¹²⁾。今回の照射条件では、燃料中心

Photo. 1 Ceramography of fuel pellets after irradiations

温度がICF-47Hの場合で1,425 Kと評価されているが、クラック回復のための条件を満たしていなかったものと結論される。

代表的な炭化物燃料のクラッキングパターンは、燃料中心を軸にして4分割程度に割れるものが多い⁽⁹⁾。今回の試験燃料で見られるクラッキングパターンは、代表的なパターンと比べて若干様子が異なっており、かつICF-37HとICF-47Hでも差異が見られる。このような差が現れた理由としては、燃料ペレットの特性が影響している可能性がある。すなわちICF-37Hには高密度ペレット(90~93% T. D., T. D.; 理論密度)を用いているのに対して、ICF-47Hには低密度ペレット(83~84 % T. D.)を採用している⁽³⁾。

高密度ペレットは微粉末を用いて製造しており、緻密な燃料マトリックスを確保しているが、低密度ペレットでは、密度制御のために高密度ペレット製造の場合よりも約60 K低い温度(1,960 K)で焼結を行なっている。このため低密度ペレットはICF-37Hの高密度ペレットと比べて組織的な安定性に劣り、ICF-47Hの低密度ペレットで多くのクラック

が発生したと考えられる。しかし、プロフィロメトリの測定値に有意な相違はなく、これらのクラッキングパターンの相違が被覆管に異なる影響を与えた兆候はない。

ペレット断面金相写真から一部のペレット(Photo. 1 参照)にエッチングによる濃淡が生じていることがわかる。その中でICF-47Hの(U, Pu)C_{1.1}ペレットについては燃料中間部にリング状の模様が現れ、この領域でエッチング感受性が高くなっていることが示唆されるが、この点については後で検討する。

3. 組織変化

ICF-47Hのペレットの断面金相写真をPhoto. 2に示す。この写真から燃料中心部や周辺部などの燃料内の位置によってマイクロ組織、特に結晶粒度と気孔分布が異なっていることがわかる。その他、三二炭化物を含む燃料では、燃料周辺部で製造時と同程度の三二炭化物の析出(白色粒)が認められるが、中心部においてはその析出量が小さくなっている。炭化物燃料は照射に伴って炭素とU, Puの比(C/M

Photo. 2 Microstructures of fuel pellets irradiated to 1.5% FIMA (ICF-47H); As-fabricated structures remain at outer part, but restructuring can be seen at central parts of pellets.

Table 2 Grain size of mixed carbide fuels irradiated up to 1.2 and 1.5 % FIMA

Capsules		ICF-37H		ICF-47H	
Fuel pins		ICF37-1	ICF37-2	ICF47-1	ICF47-2
Before irradiation	(μm)	n.d. [†]	n.d. [†]	6.3	2.8
After irradiation					
Outer region	(μm)	10.6	7.9	2.9	2.8
Intermediate region	(μm)	10.5	7.5	3.8	3.9
Central region	(μm)	14.3	7.3	6.3	4.9

† n.d.; not determined

[M=U+Pu]が減少するため⁽¹³⁾, 一般的には三二炭化物の析出量が燃焼とともに減少する。また, 照射下では燃料温度に依存するが, 燃料中心温度が1,400 Kを超えると, 炭素は燃料外周部にすみやかに移動するとの報告があり⁽¹⁴⁾, 三二炭化物の析出の状況はこれらの評価とよい一致を示している。

照射に伴う結晶粒度の変化を, 燃料断面の金相写真の画像解析によって調べた。その結果を **Table 2** に示す。照射前後の平均結晶粒度を比較すると, 燃料条件によってその状況は異なっているが, 燃料中心部では結晶粒が周辺部と比べて大きくなっていることがわかる。これまでの照射試験に関する報告から, 燃料周辺部ではほぼ燃料製造時の組織が維持されているのに対して, 中心部では組織再編が起り, 結晶粒の成長が進むとされている⁽⁹⁾⁽¹⁵⁾。今回の試験結果は, これらの報告と基本的によい一致を示す。特異な現象として, ICF-47Hの(U, Pu)C_{1.0}ペレットについて, 外周部の粒径が照射前の約6.3 μm より小さくなっていることが観察された。このことは, 照射によって組織が微細化することを意味する。しかし, (U, Pu)C_{1.1}ペレットでは微細化の傾向は認められておらず, さらにこれまでの欧米の照射試験でもこのような現象は報告されていない。

この現象は照射効果と熱履歴との重複効果によるものと推定されるが, 従来の燃料挙動に関する理論では説明が難しく, 今後の研究課題である。ICF-37HとICF-47Hで照射された燃料の結晶粒の大きさが異なるのは, 燃料製造時の焼結条件の相違が影響しているものと考えられる。また, 三二炭化物を含むペレットでは, 三二炭化物が一炭化物の粒界に析出して結晶成長を阻害するために, (U, Pu)C_{1.0}ペレットと比べて小さな結晶粒を持つが, その特徴は照射後においても明らかに認められている。高密度ペレットでは, 結晶粒径の変化は小さく, 燃料組織

が安定していることを示唆している。

照射に伴う気孔分布変化を測定した結果を **Table 3** に示す。照射前においても燃料製造条件の相違に起因してICF-37HとICF-47Hの燃料の気孔分布が異なること, および照射後では燃料内の位置によっても気孔分布が変化していることが観察された。欧米の照射試験の結果から, 組織再編に伴って燃料中心部で多孔質層が形成されるのに対して, 周辺部では燃料製造時の組織が維持され, その中間部では高密度化の起こることが知られている⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。今回の試験でも類似の現象が観察されており, **Photo. 2**に示したミクロ組織写真からも明らかなように, 燃料中央部で大きな気孔の存在割合が大きくなっている。これに対して外周部では, 微細な気孔割合が増加している。一方, 中間部では製造時と同様の気孔分布を示している。この傾向はICF-47Hで照射された低密度ペレットでより顕著である。

燃料周辺部で認められる細かな気孔の増加については, 照射に伴うFPガス気泡が寄与していると推測される。これに対して中心部における多孔質組織の生成については, FPガス気泡の移動と成長メカニズムが一部寄与しているものの, 今回の試験条件では焼きしまりによって燃料製造時に存在していた気孔が集積した結果と考えられる。FPガス気泡の成長と移動については, 高温と大きな温度勾配が必要であると考えられており, 今回の照射条件では燃料温度が低く, FPガス気泡が検出可能な速度で移動・集積して多孔質組織を形成したとは考え難い。照射時の温度勾配を模擬した炉外試験の結果では, 低温で焼きしまりの起こることが報告されており⁽¹⁷⁾, 今回の結果とよい一致を示す。

4. 燃料密度の変化

照射前後における燃料密度の測定結果を **Table 4**

Table 3 Change of pore size distribution in mixed carbide pellets before and after irradiations

Capsules		ICF-37H						ICF-47H					
Fuel pins		ICF37-1			ICF37-2			ICF47-1			ICF47-2		
Fuel position		Outer region	Inter-mediate region	Central region	Outer region	Inter-mediate region	Central region	Outer region	Inter-mediate region	Central region	Outer region	Inter-mediate region	Central region
Pore distribution (%)													
Before irradiation													
<10 (μm^2)			91			88			82			79	
10~20 (μm^2)			5			6			9			9	
20~30 (μm^2)			2			2			3			3	
30~40 (μm^2)			<1			1			1			3	
40~ (μm^2)			2			2			5			6	
After irradiation													
~10 (μm^2)		97	88	77	97	90	90	93	86	19	95	82	52
10~20 (μm^2)		1	9	10	2	7	7	6	12	26	3	12	24
20~30 (μm^2)		<1	1	6	<1	1	3	1	1	23	2	5	13
30~40 (μm^2)		<1	<1	3	<1	<1	<1	—	<1	12	<1	<1	7
40~ (μm^2)		1	<1	4	—	<1	<1	—	—	20	—	<1	4

Table 4 Density and porosity of mixed carbide pellets after irradiations

Capsules		ICF-37H		ICF-47H	
Fuel pins		ICF37-1	ICF37-2	ICF47-1	ICF47-2
Density before irradiation : ρ_0 (g/cm ³)		12.17	12.60	11.30	11.30
Density after irradiation : ρ (g/cm ³)					
Pycnometric method		11.89	12.28	10.97	11.11
Archimedes' method		12.07	12.34	12.54	12.59
Volume expansion : $(\rho_0/\rho) - 1$ (%)		2.4	2.6	3.0	1.7
Swelling rate (%/FIMA)		2.0	2.2	2.0	1.1
Open porosity (%)		1.3	0.5	11.5	11.0
Closed porosity (%)		11.3	8.6	7.8	6.7

に示す。照射前の密度については、重量および寸法測定の結果から求めたものであり、照射後試験では、水銀を用いたピクノメータ法(開気孔を体積として含む密度が得られて寸法-重量法による密度に相当する)と、ノルマルヘキサンを用いたアルキメデス法(開気孔を体積から除いた密度が得られる)との2種類の方法で求めた。これらの結果から、密度変化がすべてスエリングによるものと仮定してスエリング率を評価した場合、ICF-47Hの(U, Pu) $\text{C}_{1.1}$ ペレットを除いてほぼ2%/FIMAの値が得られた。燃料が被覆管から拘束を受けていない状態では、1% FIMAあたりの自由スエリング率は1.5%程度(約1,275 K)⁽²⁰⁾あるいは約3%(1,675 K)⁽²¹⁾であると報

告されており、今回の密度測定から得られた結果と比較的に一致を示す。

これに対してICF-47Hの(U, Pu) $\text{C}_{1.1}$ のペレットについては、その他のものと比べて半分程度のスエリング率を示した。これは照射下での焼きしまり⁽¹⁹⁾に起因するものと推定される。すなわち、三二炭化物を含む炭化物ペレットは一炭化物単相のペレットよりも高密度が得られ易い⁽¹⁾。このため、低密度の(U, Pu) $\text{C}_{1.1}$ のペレットでより顕著に焼きしまりが起き、見掛け上スエリングを緩和させて他の燃料と比べて低い測定値が得られたものと結論づけられる。

高密度ペレットと低密度ペレットでは、Table 4

に示すように、開気孔率と閉気孔率の割合が大きく異なっている。この相違は、次に述べるように FP ガス放出挙動に大きな影響を与えたと考えられる。

5. FP ガスの放出

FP ガス(Kr, Xe)の放出挙動は、パンクチャー試験によって回収したガス量と質量分析による組成分析によって検討した。その結果を Table 5 に示す。ICF-37H で照射した燃料では、放出率が 1%未満であるのに対して ICF-47H の燃料では約 10%と大きな値を与えており、2 回の照射試験で対照的な結果が得られた。第 1 回照射の ICF-37H では、線出力が 42 kW/m と低く、このため燃料中心温度も標準的な設計の炭化物燃料と比べて低くなっている。また、高密度ペレットを用いており、これらの点は FP ガス放出率を低下させる傾向をもつ。これまでの研究によると 2~3% FIMA の低燃焼度では、FP ガス放出は極めて少ないとの報告もあり⁽¹¹⁾⁽²¹⁾、また EPMA(Electron Probe Micro-analyzer)による燃料中の Xe の分布に関する測定結果から、燃料周辺の低温部ではほとんどの Xe が燃料マトリックスに拘束されると報告されている⁽¹⁸⁾。ICF-37H の燃料ペレットの特性を考慮に入れると、低い FP ガス放出率は予想された結果とはいえ、欧米のデータともよい一致を示す⁽¹⁶⁾。低い FP ガス放出率は、主に燃料温度が低いことと高密度であることから説明できるが、そのほかに、照射後における密度測定の結果

から示されるように開気孔の少ない組織であって、FP ガスの放出経路が確立していなかったことも寄与していると考えられる。このため、FP ガスのプレナムへの移行は、主にリコイル、ノックアウト⁽⁴⁾によるものであり、FP ガスの拡散や気泡の移動の寄与は僅かであると結論づけられる。

ICF-37 H に比べて高い FP ガス放出率を示した ICF-47H の燃料ピンは、線出力を 64 kW/m に高めており、燃料密度についても FCMI を緩和させる目的で 83~84% T.D.の低い値に設定している。これらの特徴的な燃料特性の相違が FP ガス放出を増加させる大きな要因であると考えられる。しかし、欧米における炭化物燃料の照射試験では、線出力等の照射条件ばかりでなく、燃料密度、ピン寸法等の燃料特性についても多様であり、試験結果を比較することは容易でないが、これまでに報告されている結果では、2~3% FIMA では FP ガス放出が極め小さいか⁽¹⁶⁾、あるいは FP ガス放出の燃焼度依存性に関してしきい値が存在すると指摘されている⁽¹³⁾。ICF-47H では、線出力が約 64 kW/m であり、燃料中心最高温度も 1,420 K 程度となっている。この燃料温度は、欧米での 70~100 kW/m で行われた照射試験での燃料温度(1,750~2,100 K)と比べて相当に低い。FP ガス放出率がスミア密度依存性をもつことを考慮しても従来の多くの照射試験の結果と比べた場合、ICF-47H 燃料の FP ガス放出率が大きいと判断できる。ICF-47H での燃料温度条件では気泡の

Table 5 Volume and composition of FP gases released from mixed carbide fuels

Capsules		ICF-37H		ICF-47H	
Fuel pins		ICF37-1	ICF37-2	ICF47-1	ICF47-2
Collected gas volume	(STD cm ³)	0.046	0.010	1.163	1.167
Gas composition	(%)				
He		Base	Base	Base	Base
N ₂		2.1	0.51	0.09	0.09
O ₂		0.40	0.10	0.02	0.02
Ar		0.93	2.2	0.13	0.07
Kr		0.33	0.054	1.66	1.69
Xe		4.9	1.1	27.7	28.3
Xe/Kr ratio observed		15	20	16.7	16.7
Gas volume calculated†	(STD cm ³)	10.5	10.8	12.4	12.5
Xe/Kr ratio calculated†		16.3	16.3	15.7	15.7
FP gas release rate	(%)	0.44	0.09	9.36	9.37

† Calculated by a use of ORIGEN code.

動きは非常に鈍く、またほとんどのFPガスが燃料マトリックスに拘束されると考えられ⁽¹⁸⁾、大きなFPガス放出率は説明できない。しかし、同時にBlankら⁽¹⁰⁾によれば製造時に与えられる燃料ペレットの特性が気泡の挙動やスエリング等の燃料挙動に影響を及ぼすと指摘されている。

このため、ICF-47Hに用いた燃料の特性から比較的大きなFPガス放出を説明できる可能性がある。すなわち、ICF-47Hの燃料は低密度であると同時に開気孔率の高いことが特徴である。ICF-37Hの燃料と比べて開気孔率が小さく、その一方で開気孔率が大きくなっている。欧米での照射試験に用いられている燃料について開気孔率の報告はないが、ICF-47H中の燃料がより大きな開気孔率をもっていたことが大きなFPガス放出の原因であると推定される。この点については、今後のJMTRで照射した燃料の照射後試験の結果とあわせて、検討を続けて行く予定であるが、前述したように、ICF-47Hに用いた燃料は低い焼結温度で製造されており、FPガス放出の低減化のためには、燃料製造条件を見直して開気孔率を減らす工夫が必要となる可能性が残されている。

FPガス放出の燃料組成依存性については、ICF-47H中の2本の燃料ピンの間で差異が認められなかったが、ICF-37H中の燃料ピンでは(U, Pu) $C_{1.0}$ ペレットと(U, Pu) $C_{1.1}$ ペレットの間に相違が見られた。しかし、ICF-37Hで照射した燃料ピンから捕集したFPガス量は僅かであり、必ずしも有意な差でないと考えられ、燃料組成がFPガス放出に及ぼす影響を明らかにすることができなかった。

6. 燃料内の α 放射性核種とFP分布

ICF-47Hの燃料について α および $\beta\cdot\gamma$ オートラジオグラフの結果をPhoto.3に示す。まず、 α オートラジオグラフでは、周辺部分で僅かに α 放射能の高いことを示す濃度勾配が認められる。欧米での照射試験では局所的な α 核種の析出⁽²²⁾や高密度領域へのリング状の析出⁽¹⁶⁾が報告されているが、今回得られた試験結果はその報告と比べて相違が認められる。

α 核種の移行に関しては、クラック部へのAmの析出⁽²²⁾やクラック回復部でのPuの濃縮⁽¹²⁾等が報告されているが、今回の試験では局所的な偏析は観察されなかった。 α オートラジオグラフで濃度が観

察されたのは、照射中において α 核種が燃料周辺部へ移行したためではなく、燃料中心部での中性子束の低下を反映した核種生成分布状況を示すものと解釈される。ICF-37Hの燃料では α オートラジオグラフでの濃度勾配は観察されていない。なお、熱中性子照射では超プルトニウム核種の生成割合が大きく、 α オートラジオグラフの結果は主に超プルトニウム核種である ^{242}Cm の寄与である。 α オートラジオグラフに対して、 $\beta\cdot\gamma$ オートラジオグラフの結果では明確な濃度が現れており、燃料周辺部において γ 放射能の強いことを示している。

ペレット断面での γ 線強度については、代表的な核種として ^{95}Nb 、 ^{106}Rh 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Pr を選んで微細 γ スキャンングを実施した。代表的な結果をFig. 3に示す。ICF-37HとICF-47Hの燃料での分布を比較した場合、 γ 線強度に相違があるが、各核種の燃料内分布については共通の特徴が認められ、いずれも燃料中央部に比較して周辺部で γ 線強度が高くなっていることがわかった。

今回得られた結果は欧米の照射結果と類似しているが、照射条件の相違を考慮した場合、FP挙動に関して明確な判断はできず、今後の検討課題である。しかし、燃料温度条件、 $\beta\cdot\gamma$ オートラジオグラフ、微細 γ スキャンングの結果から判断すると多くのFPが周辺部に集まっているのは、温度勾配によ

Fig. 3 Results of micro γ -ray scanning of ^{95}Zr , ^{106}Rh , ^{134}Cs , ^{137}Cs and ^{144}Pr in (U, Pu) $C_{1.1}$ fuel pellet (ICF-47H)

α $\beta\cdot\gamma$ (U, Pu) $C_{1.0}$ fuel pellet α $\beta\cdot\gamma$ (U, Pu) $C_{1.1}$ fuel pellet**Photo. 3** α and $\beta\cdot\gamma$ autoradiographies of mixed carbide pellets (ICF-47H)

てFPの移動が顕著に生じたためではなく、むしろ燃料内の中性子束分布に対応して現れた可能性が高いと推測される。

炭化物燃料中で白金族金属や希土類金属等の一部の固体状FPは、そのほかのFPと異なる挙動を示すことが知られており、温度勾配に沿って低温部に移行して燃料中心から径方向に対して、 γ 付近の位置の高密度領域にリング状に析出・集積すると報告されている⁽²²⁾⁽²³⁾。

ペレット断面金相写真では、リング状のエッチング感受性の高い領域が観察されており(Photo.1参照)、白金族金属等の一部のFPがリング状に析出することとの関連性が示唆される。しかし、微細 γ スキニングの結果では、白金族金属等の析出を裏づ

けることはできなかった。今後、より燃焼度の進んだ燃料を試験することによって、白金族金属の析出と関連づけながらエッチング感受性の高い領域の生成理由を解明して行く予定である。

ICF-47Hについて燃料ピンの軸方向に対して実施した γ スキニングの結果のうち、Csに関する結果をFig.4に示す。これからCsがプレナム部に移行している様子が認められる。この現象はICF-37Hの燃料ではそれほど顕著でない。まず、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の析出状況が類似していることなどから、プレナム部分に見られるCsは燃料中から直接放出されたものであると判断される。

炭化物燃料中では、Csは金属状態あるいは Cs_2Te 等の低沸点の化合物として存在し⁽²⁴⁾、FPガスと類

Fig. 4 Axial distribution of ^{134}Cs and ^{137}Cs in $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin (ICF-47H); Migration of Cs to plenum is shown.

似の挙動を示す⁽¹⁸⁾と考えられている。ICF-47Hの燃料では約10%のFPガス放出が観察されており、FPガスと類似の挙動を示すCsがプレンムへ移行したものと判断される。なお、このような現象はEBR-IIで照射された混合炭化物燃料にも見られているが、被覆材に対して特に悪い影響を及ぼすことはないと言われている⁽²⁵⁾。

7. 被覆管の炭化現象

炭化物燃料の健全性に影響を及ぼすおそれのある現象として、ステンレス鋼被覆管の炭化(浸炭)現象が挙げられる。例えば、4.6~9.6% FIMAで316ステンレス鋼被覆の浸炭層は36~72 μm であり、一炭化物単相燃料の場合には、9.4% FIMAで36 μm 程度になるとの報告がある⁽²³⁾。また、約1,000 K以下の温度では浸炭の進行は遅いとの指摘もあり⁽¹¹⁾、これらの点に注目して被覆管に関する試験を行なった。浸炭現象の面から見て、特に条件が厳しいと思われるICF-47H中の $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ 燃料ピンの燃料被覆管についての代表的な金相写真をPhoto. 4に示す。

いずれの燃料ピンにも、被覆管内側に僅かに粒界が強くエッチングされた層の存在が認められた。その厚みはICF-37H中の燃料ピンで10~20 μm 、ICF-47H中の燃料ピンでは50 μm 程度であり、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.0}$ と $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ 燃料ピンの間に大きな相違はないと考えられる。これらの層の存在は、炭素が粒界へ拡散して炭化物が形成したため、エッチング感受性が高まったものと示唆される。しかし、

Photo. 4 Typical microstructure of stainless steel cladding of $(\text{U}, \text{Pu})\text{C}_{1.1}$ fuel pin (ICF-47H); Internal grain boundaries seem to be attacked by chemical etching.

同時に行なった硬度測定では、ICF-37Hの被覆管全体について中性子照射の影響と考えられる硬度上昇(15~20%程度)が認められたものの、径方向に対しては有意の硬度変化はなく、被覆管の炭化については必ずしも明確にならなかった。

また、EPMAによるX線微小分析でも、炭素や炭化とともに粒界に析出すると考えられているCrの偏析が観察されなかった。被覆管硬度については、その内面近傍(約50 μm 以内)での測定が困難であり、今後のより燃焼の進んだ燃料についての試験結果を見ないと正確な評価はできないが、被覆管内面の粒界へ若干の炭素の拡散進入が起こっていると結論される。しかし、浸炭層の厚みは被覆管全体(肉厚510 μm)と比べて小さく、浸炭が燃料の健全性に影響を及ぼすようなものでないと考えられる。浸炭現象は照射開始後、直ちに発生せずに1.5% FIMA程度の潜伏期を持ち⁽²⁶⁾、ギャップが閉塞するまでは顕在化しない⁽¹⁴⁾という欧米の報告と比べると、今回の試験結果は大きめの浸炭層を持つといえる。

ICF-37HとICF-47Hの燃料ピンを比較した場合、浸炭の影響を受けた層の厚みは異なるが、被覆管材質や燃焼度の影響は小さく、被覆管温度(Table 1参照)の差が大きく寄与しているものと推測される⁽²⁶⁾。また、燃料中の残存酸素との反応から生成したCOガスのギャップへの移行により浸炭が進行するメカニズムも考えられており⁽¹⁴⁾、この点でも低密

度の燃料ペレットを用いた ICF-47H 中の被覆管でより大きな浸炭が観察された原因のひとつであると推測される。なお、被覆管結晶粒の大きさには、特に照射前後で顕著な変化は認められなかった。

被覆管全体では、その内面に特に異常が認められなかったが、極めて一部の領域で例外的に脱粒が観察された。その様子を Photo. 5 に示す。はがれた結晶粒の厚みは最大で $50\text{ }\mu\text{m}$ 程度であり、エッチング感受性の高い粒界の存在する厚みと同程度である。この領域がごく一部であることから照射によるものではなく、照射後試験の作業工程で発生した可能性もあるが、いずれにしても被覆管の強度低下が起きていることが示唆される。今回の照射試験では被覆管の浸炭については、それぞれの試験項目の結果が必ずしも一致しておらず、浸炭現象に対して明確な結論を出すことができなかった。しかし、同じ被覆管を用いてより高い燃焼度を狙った照射を JMTR を用いて行っており、それらの試験結果と照合することによって結論が得られるものと考えられる。

Photo. 5 Microstructure of restricted region of stainless steel cladding of (U, Pu) $\text{C}_{1.1}$ fuel pin (ICF-47H); Removal of some grains can be seen.

IV. 結 論

JRR-2 で照射した U-Pu 混合炭化物燃料は、1.2

% FIMA および 1.5 % FIMA と低燃焼度ではあるものの、燃料の健全性を確認することができた。同時に組織再編、FP ガス放出等の燃料挙動が燃料の製造履歴や照射条件によって強く影響されうることが明らかとなった。今回の試験で得られた主要な結果は以下の通りである。

- (1) 1.2~1.5 % FIMA の燃焼度では、被覆管と燃料ペレットの間のギャップは閉塞せず、燃料と被覆管との機械的相互作用は無視できる。
- (2) 組織再編や焼きしまりによって、結晶粒成長や気孔分布の変化が認められた。また、燃料製造条件などの特性の相違によってクラッキングパターンが異なることが観察された。
- (3) 密度変化から評価した自由スエリング率は約 2 %/FIMA であり、これまでの報告からの予測とほぼ一致した結果を得た。
- (4) FP ガス放出率は高密度ペレット (1.2 % FIMA) で 1 % 未満、低密度ペレット (1.5 % FIMA) で約 9 % であり、燃料特性の影響が大きいことが明らかになった。
- (5) Cs がプレンラム部へ移行・沈着していることが観察され、準揮発性の挙動を示すことがわかった。また、Rh や Pr などの固体状 FP の多くは、中性子束分布に対応して、燃料周辺部に蓄積していることが観察された。
- (6) ステンレス鋼被覆管内面において最大 $50\text{ }\mu\text{m}$ 程度の浸炭現象が観察された。

炭化物燃料の照射試験計画では、合計 9 本の燃料ピンを試験することとなっており、1992 年には最後の燃料ピンの照射が終了し、1993 年頃には照射後試験の結果が明らかになる予定である。これらの照射試験によって、約 6 % FIMA の燃焼度までの炭化物燃料の健全性が実証できると期待される。現在は炭化物燃料と同様に、FBR 用新型燃料として優れた特性をもつ窒化物燃料に研究の焦点をあて、その照射試験を進めている。

FBR 燃料の開発の最終段階としては今後、高速実験炉「常陽」でこれらの炭化物燃料および窒化物燃料の基礎照射を行い、高速中性子条件での燃料健全性の確認と燃料挙動把握を実施する計画を進めている。すでに燃料ピンの詳細設計等を実施しており、1994 年頃から照射を行なって 1995 年頃には照射後試験を実施する予定である。

終わりに本研究に対してご指導、ご鞭撻を頂いた日本原子力研究所東海研究所近藤達男燃料・材料工学部長、柴 是行燃料安全工学部長および伊丹宏治ホット試験室長に感謝いたします。また、炭化物燃料の製作、照射および照射後試験の遂行に当たり、大洗研究所管理部、東海研究所技術部工作課、研究炉管理部研究炉利用課、ホット試験室ほか、各方面から多くのご支援を頂いた。ここに厚くお礼を申し上げます。

— 参 考 文 献 —

- (1) MATZKE, H.J.: "Science of Advanced LMFBF Fuels", (1986), North-Hollands, Amsterdam.
- (2) 半田宗男, 鈴木康文: 原子力誌, 26 [1], 2 (1984).
- (3) 鈴木康文, 荒井康夫, 笹山龍雄, 前多 厚, 岩井 孝, 大道敏彦, 半田宗男: 同上, 34 [1], 16 (1992).
- (4) 鈴木康文, 岩井 孝, 荒井康夫, 笹山龍雄, 塩沢憲一, 大道敏彦, 半田宗男: JAERI-M 90-116, (1990).
- (5) KUMMERER, K.R.: J. Nucl. Mater., 124, 147 (1984).
- (6) HARRY, G.R., PETTY, R.L.: Trans. Am. Nucl. Soc., 39, 411 (1981).
- (7) MULLER-LYDA, I., DIENST, W.: J. Nucl. Mater., 90, 232 (1980).
- (8) CLOUGH, D.J.: ibid., 65, 24 (1977).
- (9) BLANK, H., COQUERELLE, M., RAY, I.L.F., RICHTER, K., WALKER, C.T.: Proc. on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson, Sept. 7~11, 1986.
- (10) BLANK, H.: Less-Comm. Met., 121, 583 (1986).
- (11) HERBST, R.J., STRATTON, R.W.: Ref. (9).
- (12) SARI, C.: Nucl. Technol., 35, 145 (1977).
- (13) BRADBURY, M.H., MATZKE, H.J.: J. Nucl. Mater., 91, 13 (1980).
- (14) RONCHI, C., COQUERELLE, M., BLANK, H., ROUAULT, J.: J. Nucl. Technol., 67, 73 (1984).
- (15) RONCHI, C., SARI, C.: J. Nucl. Mater., 58, 140 (1975).
- (16) PETTY, R.L., LATIMER, T.W.: Trans. Am. Nucl. Soc., 39, 413 (1981).
- (17) SARI, C.: EUR-5812 EN, (1978).
- (18) COQUERELLE, M., WALKER, C.T.: Nucl. Technol., 48, 43 (1979).
- (19) DIENST, W.: J. Nucl. Mater., 124, 153 (1984).
- (20) ZIMMERMANN, H.: ibid., 105, 56 (1982).
- (21) STEINER, H., FREUND, D., GEITHOFF, D.: KfK 3335, (1982).
- (22) KLEYKAMP, H.: Proc. on Advanced LMFBF Fuels, Oct. 10~13, Tucson, 1977, p. 166.
- (23) LATIMER, T.W., BARNER, J.O., KERRICK, J.F., GREEN, J. L.: LA-6249-MS, (1976).
- (24) ARAI, Y., IWAI, T., OHMICHU, T.: J. Nucl. Mater., 151, 63 (1987).
- (25) NAYAK, U.P., LEVINE, P.J., BOLTAX, A.: Trans. Am. Nucl. Soc., 39, 412 (1981).
- (26) BLANK, H.: Ref. (22), p. 482.

○理化学研究所 研究員公募○

公募人員 研究員または研究員補1名
所属部門 サイクロトロン研究室
仕事の内容 広い意味の加速器物理, リングサイクロトロンおよび大型実験装置の加速器物理学的研究と技術開発および運転の指導に従事する。高周波系の分野に意欲的な人が望ましい。
応募資格 修士課程終了者またはこれと同等以上の学力を有する方で原則として32歳以下の方。
提出書類 ①履歴書(写真添付), ②業績リストおよび主要論文別刷(2~3編), ③本人に関する推薦書, ④成績証明書, 卒業(終了)証明書。
応募期限 7月11日(土)
着任時期 1992年10月1日以降のなるべく早い時期
書類送付先 (〒351-01)和光市広沢2-1
 理化学研究所サイクロトロン研究室 矢野安重
問合せ先 同研究室 矢野安重または後藤 彰
 (0484-62-1111, 内線4011)
 (郵送の場合は書留とし, 「応募書類在中」と朱書きのこと)

○東京工業大学原子炉工学研究所○ 教 官 公 募

公募人員 助教授1名
所属部門 エネルギー工学部門
専門分野 高密度エネルギー(核反応制御, 中性子工学)
 原子核反応を高度に制御することにより, 高密度エネルギーを安全に発生することを目的として, 中性子の輸送等中性子工学研究, 原子炉炉心の炉物理および核反応制御に関する研究, エネルギー発生の高密度化技術の研究を行う。
着任時期 採用決定後できるだけ早い時期
提出書類 ①履歴書(市販の用紙に, 学歴, 研究・職歴, 学位・賞の取得, 家族状況を記入), ②研究業績リスト(論文, 著作等を年代順にタイプ。なお, 主要な業績については別刷を添付), ③推薦者(推薦の場合もしあれば同封)
応募期限 6月20日(土)
書類提出先 (〒152)東京都目黒区大岡山2-12-1
 東工大原子炉工学研 事務長
 (03-3726-1111, 内線3052; FAX03-3729-1875)
問合せ先 東工大原子炉研 清水彰直教授(内線3062)
 (郵送によるときは, 「応募書類在中」と表記し, 書留で送付)