

JAERI-Tech
97-066



ハルデン原子炉計画における日本の燃料照射研究
ーハルデン共同研究（1994ー96年）の成果ー

1998 年 1 月

ハルデン共同研究合同運営委員会

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 (株)高野高速印刷

ハルデン原子炉計画における日本の燃料照射研究
ーハルデン共同研究（1994－96年）の成果ー

日本原子力研究所東海研究所
ハルデン共同研究合同運営委員会*

（1997年12月2日受理）

原研は国内の諸機関との間でノルウェー・ハイデンにあるハルデン沸騰型重水原子炉（HBWR）を利用した多くの共同研究を行っている。これらの共同研究は、OECD/NEAハルデン原子炉計画（ハルデン計画）への原研の加盟期間の更新に合わせて、3年毎に更新する二者間の共同研究契約に基づいて実施している。本報告書は、各の共同研究についてその目的、内容及び1994年1月から1996年12月に亘る3年間の研究で得られた成果の概要をとりまとめたものである。今期は、10件の共同研究を行い、このうち2件が終了し、残り8件が次期期間への継続となった。研究項目は多岐にわたるが、その多くは、軽水炉燃料の高燃焼度化に対応した改良燃料や被覆管の照射挙動研究とプルサーマルの本格導入に備えたMOX燃料照射研究である。

燃料照射研究は、研究の性格上、長期に亘ることが多く、3年間では所期の成果は得られないことが8件継続とした理由である。本報告書にまとめた成果のうち、次期へ継続となった共同研究の成果は中間報告の段階にとどまっている。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

※ ハルデン共同研究合同運営委員会（1997年3月現在、順不同）

上塚 寛（委員長：原研）	中村 仁一（委員会幹事：原研）
木下 幹康（電力中央研究所）	上村勝一郎（動力炉・核燃料開発事業団）
林 洋（原子力発電技術機構）	服部 年逸（東京電力㈱）
永井 将之（日本核燃料開発㈱）	小松 和志（ニュークリア・デベロップメント㈱）
山上 純夫（三菱マテリアル㈱）	野俣 輝満（㈱東芝）
伊東 賢一（㈱日立製作所）	安部田貞昭（三菱重工業㈱）
小林 慎一（原子燃料工業㈱）	湯浅 敬久（原子燃料工業㈱）
坂本 俊（事務局：日本原子力産業会議）	宮川 修治（事務局：原研）

Fuel Irradiation Research of Japan at OECD Halden Reactor Project
— Achievement of Joint Researches between JAERI and other Organizations
in the Period from 1994 to 1996 —

The Committee of the Halden Joint Research Programme*

Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 2, 1997)

JAERI has performed cooperative researches with many Japanese agencies and companies by means of the Halden Boiling Heavy Water Reactor (HBWR) which is located at Halden in Norway. These cooperative researches are carried out based on the contracts of the cooperative researches, which are revised every three years, in accordance with the renewal of the participation of JAERI to the OECD Halden Reactor Project. This report summarizes the objectives, contents and the outlines of the achievements of the cooperative researches during the three years from 1994 January to 1996 December. During the period, ten cooperative researches had been carried out, and two of them had finished during the period and other eight researches has been continued to the next three year period. There are many research items, and most of them are irradiation test researches of advanced fuel and cladding concerned with the high burnup utilization of LWR fuel or MOX fuel irradiation researches to prepare for the introduction of Plutonium utilization in LWRs.

The researches of fuel irradiation usually take long time because of the characteristics of

* The members of Committee of the Halden Joint Research Programme (as of March 1997, Names not in order)

Hiroshi Uetsuka (Chairman, JAERI)

Motoyasu Kinoshita (CRIEPI)

Hiroshi Hayashi (NUPEC)

Masayuki Nagai (NFD)

Sumio Yamagami (MMC)

Kenichi Ito (Hitachi)

Shinichi Kobayashi (NFI)

Suguru Sakamoto (JAIF)

Jinichi Nakamura (Secretary, JAERI)

Katsuichiro Kamimura (PNC)

Toshiitsu Hattori (TEPCO)

Kazushi Komatsu (NDC)

Terumitsu Nomata (Toshiba)

Sadaaki Abeta (MHI)

Takahisa Yuasa (NFI)

Shyuji Miyakawa (JAERI)

these kind of research work, and three years are usually not enough to obtain some achievements from the irradiation tests. Therefore, eight tests have been continued after the three year period. In this report, the achievements of the continued researches to the next three year period are not final one but a kind of progress report.

Keywords : Halden, Cooperative Research, Fuel Irradiation, HBWR, Progress Report

目 次

1. まえがき	1
2. MOX燃料のHBWRにおける出力急昇試験 （動力炉・核燃料開発事業団／日本原子力研究所）	6
3. MOX-Gd ₂ O ₃ 燃料のHBWRにおける照射試験 （動力炉・核燃料開発事業団／日本原子力研究所）	12
4. ハルデン炉による高燃焼時の軽水炉燃料挙動に関する研究 （電力中央研究所／日本原子力研究所）	17
5. ハルデンHBWRにおける新型燃料の照射挙動に関する研究 （日本核燃料開発／日本原子力研究所）	22
6. HBWRにおけるBWR用混合酸化物燃料（MOX）の照射挙動に関する研究 （日本核燃料開発／日本原子力研究所）	41
7. 混合酸化物燃料（MOX）の照射特性に関するハルデン炉での照射試験 （三菱重工／日本原子力研究所）	43
8. HBWRにおけるBWR用改良燃料の照射挙動に関する研究 （原子燃料工業／日本原子力研究所）	60
9. 高燃焼度燃料被覆管のHBWRにおける照射試験 （原子力発電技術機構／日本原子力研究所）	63
10. 高燃焼度PWR改良被覆管燃料棒のHBWRにおける照射試験 （原子力発電技術機構／日本原子力研究所）	70
11. HBWRにおける過渡沸騰遷移挙動の照射研究 （東京電力／東芝／日本原子力研究所）	75
12. 総 括	83
謝 辞	84

Contents

1. Introduction	1
2. Power Ramp Test of MOX Fuel in HBWR (PNC/JAERI)	6
3. Irradiation Examination of MOX-Gd ₂ O ₃ Fuel in HBWR (PNC/JAERI)	12
4. Study of High Burnup LWR Fuel Behavior Making Use of HBWR (CRIEPI/JAERI)	17
5. Irradiation Study of Advanced Fuel Behavior in HBWR (NFD/JAERI)	22
6. Irradiation Test of BWR-MOX Pellets in HBWR (NFD/JAERI)	41
7. Irradiation Study of MOX Fuel Behavior in HBWR (MHI/JAERI)	43
8. Irradiation Study of Advanced BWR Fuel in HBWR (NFI/JAERI)	60
9. Irradiation Test of High Burn-up Fuel Cladding in HBWR (NUPEC/JAERI)	63
10. High Burn-up PWR Irradiation Test of Improved Clad in HBWR (NUPEC/JAERI)	70
11. Irradiation Test of Fuel Behavior under Transient Boiling Condition in HBWR (TEPCO/Toshiba/JAERI)	75
12. Summary	83
Acknowledgements.....	84

1. まえがき

OECD/NEA のハルデン原子炉計画（以下、ハルデン計画と記す。）は、ノルウェー・ハルデンにあるエネルギー技術研究所（IFE）のハルデン沸騰型重水原子炉(Halden Boiling Heavy Water Reactor, HBWR)を利用する国際協力研究で、1958 年に開始された。本計画は当初の数年間を例外として、その後は3年毎に協定を更新し現在に至っている。日本は、1967 年に日本原子力研究所（原研）を代表機関として本計画に加盟し、現在に至るまで10回の契約更新を重ね、燃料照射研究とコンピュータ応用研究から発展したマンマシン研究等を行ってきた。本計画には、加盟機関の合意・監督の下にハルデンプロジェクトが実施する合同試験（Joint Program）と加盟機関が IFE との双務契約の下で行う加盟者試験（Bilateral Program）とがある。日本の加盟者試験としては、原研独自の燃料照射試験とともに原研と諸機関、すなわち動力炉・核燃料開発事業団（動燃）、原子力発電技術機構（原技機構）等や民間会社との間の共同研究としての照射試験を実施してきた。これらの総数は、第10次協定期間の終了時点である1996年12月までの合計で56件を数える（Table 1.1 参照）。

ところで、燃料照射研究は一般に多額の予算と時間を要する。原研が、諸機関との共同研究を積極的に実施しているのは、研究を効率的に進めるためであり、このような認識は共同研究の相手である諸機関にも共通のものである。また、一つの共同研究で得られる知見は他の共同研究にとって極めて有用である場合が多い。このような事情から、原研を中心として、ハルデン炉を利用した共同研究を実施しているすべての機関及びその関係機関が参加して「ハルデン共同研究合同運営委員会」を設立した。この中では、各共同研究の進捗状況を紹介し、技術的な情報交換を行っている。

共同研究によって得られた成果は、個別の照射試験結果がまとまった時点や研究終了後に研究報告書や国際会議発表論文などの形で適宜報告されている。また、我が国がハルデン炉で実施している燃料照射研究を概観するための報告書として、下記の前研の公開報告書が随時公開されてきた。

- ・ハルデン HBWR における燃料照射共同研究 JAERI-M 84-031
- ・ハルデン原子炉計画における日本の燃料照射研究
 - ーハルデン共同研究（1988-90 年）の成果ー JAERI-M 92-155
- ・ハルデン原子炉計画における日本の燃料照射研究
 - ーハルデン共同研究（1991-93 年）の成果ー JAERI-Tech 94-021

本報告書は、上記報告書と同じく、第10次協定期間内に実施された研究をすべて網羅し、関係者等の利用に供することを目的にまとめたものである。第10次協定期間である1994年1月から1996年12月の3年間に実施した研究は、Table 1.2 に示すように10件である。1件（ハルデン HBWR における新型燃料の照射挙動に関する研究）は燃焼度の伸長を主な理由に前期協定から継続されたものであるが、他の9件は新たに開始されたものである。このうちの1件「MOX 燃料の HBWR における出力急昇試験」と前期から継続した「ハルデン HBWR における新型燃料の照射挙動に関する研究」は研究を終了したが、他の8件については、現在も照射試験を継続中であるため、必ずしも所期の成果は得られていない。また、別途詳細な報告書が作成されている研究については、参考のために、各章末に文献を添付した。

Table 1.1 ハルデン炉による日本燃料の照射試験
(1975年以前照射開始のもの)

No	燃料 番号	所 属	研 究 目 的	照射期間	燃焼度 (GWd/t)
1	IFA	原 研	JPDR-II 燃料の確性試験 (短尺)	11/67~10/69	11.3
2	106 107	原 研		11/67~ 8/68	4.2
3	149	原 研	JPDR-II 燃料の確性試験 (長尺)	5/68~ 5/69	7.2
4	150	原 研		5/68~ 4/70	11.5
5	159	動 燃	UO ₂ -PuO ₂ 水炉燃料の確性	6/68~ 5/70	9.4
6	160	動 燃		3/69~ 5/70	5.3
7	206	動 燃	ATR 燃料の確性試験	1/71~ 9/72	5.0
8	207	動 燃		5/71~ 1/73	7.2
9	208	原 研	高出力下のペレット・クラッド相互作用	1/71~ 9/71	6.3
10	209	原 研	水素富化被覆管燃料の挙動	5/71~ 5/73	10.1
11	210	原 燃 工	高出力下の燃料挙動	1/71~ 5/74	26.7
12	211	日 立	バーナブルポイズン効果, ペレット・クラッド相互作用	1/71~ 5/74	18.0
13	212	三 菱	PWR 型被覆管の照射効果	1/71~ 9/73	28.6
14	223	三 菱	バーナブルポイズン効果, ペレット・クラッド相互作用	5/71~10/74	22.5
15	224	原 研	低密度燃料のペレット・クラッド相互作用	2/72~11/73	11.8
16	225	原 研	燃料内水分の効果	2/72~ 6/72	3.5
17	230	原 燃 工	ペレット・クラッド相互作用	1/71~ 3/74	22.0
18	410	日立/東芝	燃料中心温度ペレット { } ・クラッド相互作用	11/73~ 2/77	11.3
19	411	日立/東芝		11/73~10/78	25.6
20	412	東 芝	長期間照射(ハルデン乗合リグ)-出力急昇	5/74~ 8/78	9.3
21	421	三 菱	ペレットの焼きしまり特性	10/74~11/76	5.4
22	423	動 燃	ATR 用 UO ₂ -PuO ₂ 燃料の確性	6/75~11/76	4.4
23	424	原 燃 工	ペレットの焼きしまり特性	10/74~ 5/77	9.3

Table 1.1 ハルデン炉による日本燃料の照射試験
(Ⅱ.1976年以後照射開始のもの)

1997年1月現在

No	燃料 番号	所 属	研 究 目 的	照射期間	燃焼度 (GWd/t)
24	501	日立／東芝	IFA-519用燃焼度蓄積	12/79~10/84	25.0
25	502	日立／東芝	出力変動と炉内直径測定	9/77~ 9/79	8.5
26	508	原 研	炉内直径測定によるペレット・クラッド相互作用	6/77~ 2/80	23.0
27	510	三 菱	燃料棒接触の効果	3/78~ 3/79	5.0
28	514	動 燃	軽水炉用 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ ペレットの焼きしまり, 他	7/79~11/88	40.5
29	515	原 研	IFA-508用燃焼度蓄積	9/77~ 3/81	17.0
30	519	日立／東芝	直径測定 (BWR 改良燃料)	9/79~10/84	14.0
31	520	原 研	BWR 型出力急昇試験	6/82~ 1/85	23.0
32	523	原 研	BWR ベース照射	2/80~ 1/85	23.0
33	524	原 研	PWR ベース照射	2/80~ 1/85	20.0
34	525	原 研	PWR 型出力急昇試験	6/82~ 1/85	20.0
35	529	動 燃	軽水炉用 $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ 照射燃料	6/80~10/86	25.4
36	530	東 芝	ガドリニア入り燃料の照射	11/81~ 3/84	8.0
37	539	三 菱	ガドリニア入り燃料棒の照射	2/84~ 9/85	10.0
38	551	日本核燃料開発	高燃焼度燃料の特性	12/86~10/95	45.0
39	554	動 燃	IFA-555用ベース照射	11/85~ 6/93	31.0
40	555	動 燃	ATR 実証炉燃料の負荷追従試験	11/85~ 6/93	32.7
41	559	三 菱	PWR 用 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ 燃料の特性	12/87~ 2/93	33.9
42	561	三 菱	高濃度ガドリニア入り及び改良燃料の照射	6/90~11/92	17.8
43	565	動 燃	軽水炉用 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ 燃料照射 (IFA-514 延長)	10/90~11/93	49.9
44	566	日本核燃料開発	高燃焼度加速照射	4/90~ 3/95	75.0
45	592	三菱原子力	ガンマサーモメーターの照射	8/92~12/93	12.3

Table 1.1 ハルデン炉による日本燃料の照射
(Ⅲ. 1993年以後照射開始のもの)

1997年1月現在

No	燃料 番号	所 属	研 究 目 的	照射期間	燃焼度 (GWd/t)
46	594	日本核燃料開発	MOX 燃料挙動	7/95~	照射中
47	595	日本核燃料開発	MOX 燃料挙動	7/95~	照射中
48	596	三 菱	MOX 燃料のふるまい	6/93~	照射中
49	601	電 中 研	高燃焼度リム効果	1/94~ 5/96	102.0
50	602	原 燃 工	大粒径ペレットの照射	1/95~	照射中
51	603	原 燃 工	改良被覆管の耐食性	1/95~	照射中
52	604	原 燃 工	改良被覆管の耐食性	1/95~	照射中
53	607	原 技 機 構	BWR 用被覆管の水側腐食	1/95~	照射中
54	608	原 技 機 構	BWR 用被覆管の水側腐食	1/95~	照射中
55	613	東京電力/東芝	過渡沸騰遷移挙動	6/96~	照射中
56	616	原 技 機 構	PWR 改良被覆管燃料棒の照射	6/95~	照射中

Table 1.2 ハルデン共同研究一覧

題 目	実 施 機 関	契 約 期 間
MOX 燃料の HBWR における 出力急昇試験	動力炉・核燃料開発事業団 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
MOX-Gd ₂ O ₃ 燃料の HBWR における照射試験	動力炉・核燃料開発事業団 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
HBWR による高燃焼時の軽水 炉燃料挙動に関する研究	電力中央研究所 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
ハルデン HBWR における新型 燃料の照射挙動に関する研究	日本核燃料開発 日本原子力研究所	昭和 61 年 12 月 ～ 平成 8 年 12 月
HBWR における BWR 用混合 酸化物燃料(MOX)の照射挙動 に関する研究	日本核燃料開発 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
混合酸化物燃料(MOX)の照射 特性に関する HBWR での照射 試験	三菱重工業 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
HBWR における BWR 用改良 燃料の照射挙動に関する研究	原子燃料工業 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
高燃焼度燃料被覆管の HBWR における照射試験	原子力発電技術機構 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
高燃焼度 PWR 改良被覆燃料 棒の HBWR における照射試験	原子力発電技術機構 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月
HBWR における過渡沸騰遷移 挙動の照射研究	東京電力 / 東芝 日本原子力研究所	平成 6 年 1 月 ～ 平成 8 年 12 月

2. MOX燃料のHBWRにおける出力急昇試験 Power Ramp Test of MOX Fuel in HBWR

(動力炉・核燃料開発事業団)

2.1 研究目的

異常な過渡変化におけるMOX燃料の破損しきい値を求めるとともに、Zrライナ付被覆管を使用した改良型燃料のふるまいを評価し、燃料挙動解析コードの検証を行って、MOX燃料の健全性評価基準の策定に資する。

2.2 研究内容

試験スケジュールをFig.2-1に示す。MOX燃料(11本)の出力急昇試験用セグメント燃料を含む36本クラスター構造の燃料集合体を製造した。燃料仕様をTable2-1に、燃料概略図をFig.2-2に示す。この燃料集合体を「ふげん」にて集合体平均燃焼度約18GWd/tまでベース照射した。集合体内のセグメント燃料位置をFig.2-3に、ベース照射結果をTable2-2に示す。ベース照射後、セグメント燃料要素に解体し、非破壊の照射後試験により燃料健全性を確認した上で、ハルデン炉において出力急昇試験を実施した。出力急昇シーケンスは、階段状のマルチステップとシングルステップの2種類(Fig.2-4)があり、各セグメント燃料要素には被覆管伸び計装あるいは内圧計装のどちらかを取り付け、出力急昇時の照射挙動を計測した。

2.3 成果

(1) 破損しきい線出力 (Fig.2-5~7)

到達線出力58~68kW/mまで出力急昇させたが、セグメント燃料要素は全数破損することなく、破損しきい値がこれ以上であることを示した。

(2) PCMI挙動 (Fig.2-8~11)

セグメント燃料要素に取り付けた被覆管伸び計装のオンラインデータから、出力急昇時に燃料棒軸方向の急激な伸びとそれに続くリラクゼーションが観察された。今回の燃焼度範囲では、伸びに対するリラクゼーション割合は、燃焼度やZrライナの有無によらないことが分かった。特に、55kW/mを超える高線出力では、この割合は80%以上となり、大幅なリラクゼーションによりPCMIが緩和されていることが分かった。マルチステップ及びシングルステップの両シーケンスで、サーマルフィードバック現象による時間遅れを伴う被覆管の伸びが観察された。

(3) FPガス放出挙動 (Fig.2-12~14)

内圧計装のオンラインデータから、出力急昇時の内圧上昇挙動が以下の3ステップモデルでよく説明できることを示した。1) FPガス放出しきい線出力を超えた際の結晶粒界及びボアからの急激なFPガス放出、2) 階段状に出力急昇しているにも係わらず、拡散や微構造の変化に伴い結晶粒内からの連続的なFPガス放出、3) 炉出力低下時のプレナム圧力の上昇である。

(4) コード解析結果 (Fig.2-15)

UO₂燃料の挙動解析用に開発された公開コードFEMAXI-IIIをベースにMOX燃料物性を組み込

み、MOX燃料のPIEデータに基づき検証し、MOX燃料の挙動評価コード（FEMAXI-ATR）を開発した。本コードを用いた計算値と実験値とは、出力急昇時の過渡変化についてもよく一致した。

参考文献

1. 河野 秀作ほか、ATR実証炉燃料の出力急昇試験（I）-試験計画、ベース照射及び照射後試験-、日本原子力学会 1995年春の年会 L39
2. 加藤 正人ほか、ATR実証炉燃料の出力急昇試験（II）-低燃焼度燃料のマルチステップランブ試験-、日本原子力学会 1995年春の年会 L40
3. 矢野 総一郎ほか、ATR実証炉燃料の出力急昇試験（III）-低燃焼度燃料のシングルステップランブ試験-、日本原子力学会 1995年秋の大会 H39
4. 加藤 正人ほか、ATR実証炉燃料の出力急昇試験、動燃技報 94-3 1995年6月
5. H. Ohara, et al. "Fuel behavior during power ramp tests," *Proc. 1994 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance*, West Palm Beach, Florida, April 17-21, 1994, pp674-686, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois (1994).
6. K. Asahi, et al. "Irradiation and post irradiation testing program of BWR MOX fuel rods," *ibid.*, pp726-733.
7. S. Kohno, et al. "MOX Fuel Irradiation Behaviour in Steady State (Irradiation Test in HBWR)," *ibid.*, pp256-263.
8. 小貫 徳彦ほか、熱中性子炉用MOX棒挙動解析コード「FEMAXI-ATR」の過渡時の検証、日本原子力学会 1996年秋の大会 E60
9. S. Uematsu, et al. "Development of High Burnup MOX fuel for ATR," *Proc. 1997 Int. Topical Meeting on LWR Fuel Performance*, Portland, Oregon, March 2-6, 1997, American Nuclear Society, La Grange Park, Illinois (1997).
10. S. Yano, et al. "Power Ramp Tests of MOX Fuel Rods For ATR (IFA-591)", *ibid.*

Table 2-1 Design parameters of the segment fuel rod

Item	IFA-591 fuel
1. Fuel Pellet	
Type	Sintered MOX
Form	Solid with dish and chamfer
Outer Diameter	12.4mm
Height	13.0mm
Density	95%TD
Pu Enrichment	3.71%
($^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$)/(Pu+U)	
2. Fuel Cladding	
Material	Zry-2 / Zry-2 with Zr liner
Outer Diameter	14.5mm
Wall Thickness	$\geq 0.82\text{mm}$
Zr Liner Thickness	0.075mm
3. Fuel Rod	
Rod Length	520mm
Pellet Stack Length	365mm
He Pressure	0.3MPa

Table 2-2 Achieved burnups of segment rods

Segment Rod No.	Burnup GWd/tM	Max. Linear Heat Rating kW/m	Ramp Test		Loading No.
			Ramp Sequence	Terminal Power kW/m	
IFA-591-1	15.5	18.1	Multi	65.3	IFA-591.1
-2*	15.5	18.1	Multi	66.3	IFA-591.1
-3	21.2	23.7	Multi	63.2	IFA-591.1
-4	16.3	18.1	Multi	66.4	IFA-591.2
-5*	16.3	18.1	Multi	68.4	IFA-591.2
-6	22.2	23.7	Multi	66.8	IFA-591.2
-7	16.3	18.1	Single	65.5	IFA-591.4
-8*	14.8	18.1	Single	68.0	IFA-591.4
-9*	16.6	18.1	Single	65.2	IFA-591.3
-10	21.2	23.7	Single	59.4	IFA-591.3
-11	22.2	23.7	Single	58.3	IFA-591.3

* : Zr liner cladding

Fig.2-1 Program time schedule

Item	Fiscal Year	'86	'87	'88	'89	'90	'91	'92	'93	'94	'95	'96	'97
Fuel manufacturing (PNC)													
Irradiation (Fugen)													
PIEs (JAERI & Kjeller)													
Ramp tests (Halden)													
PIEs after ramp test (Kjeller)													

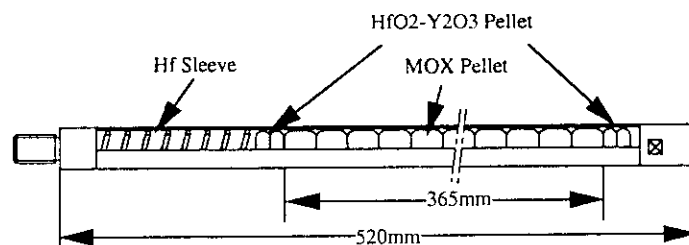


Fig.2-2 Schematic of the segment rod

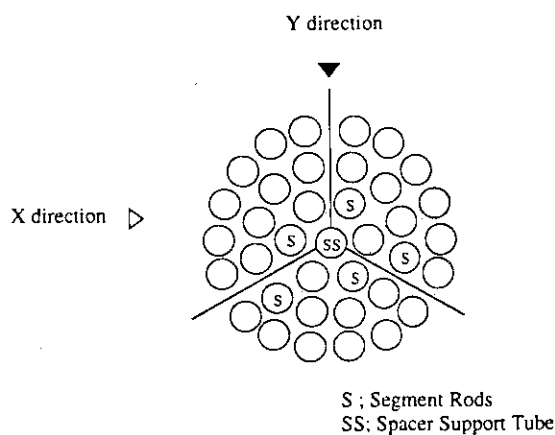


Fig.2-3 Positions of the segment rods in the assembly

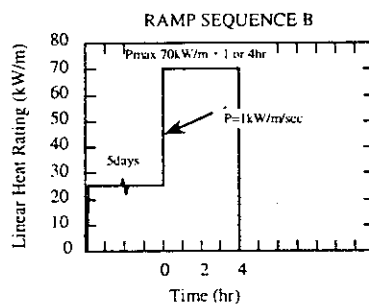
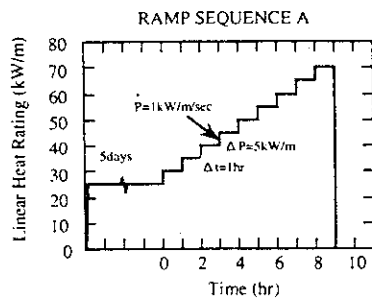


Fig. 2-4 Ramp Sequence

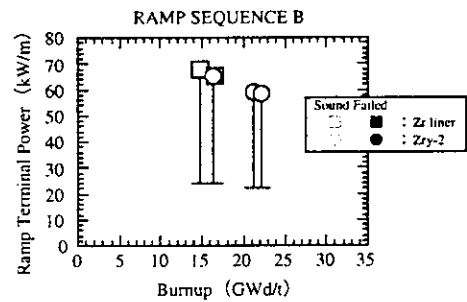
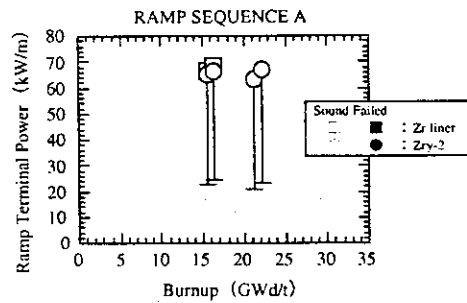
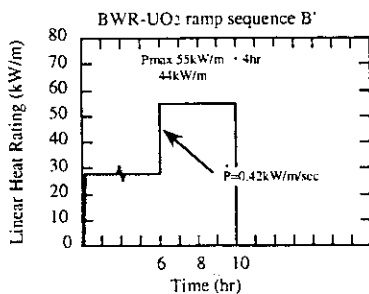
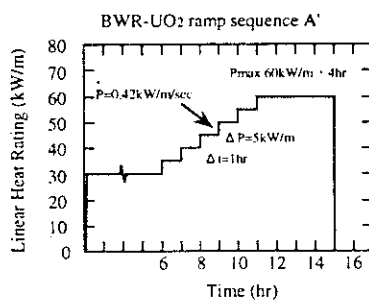
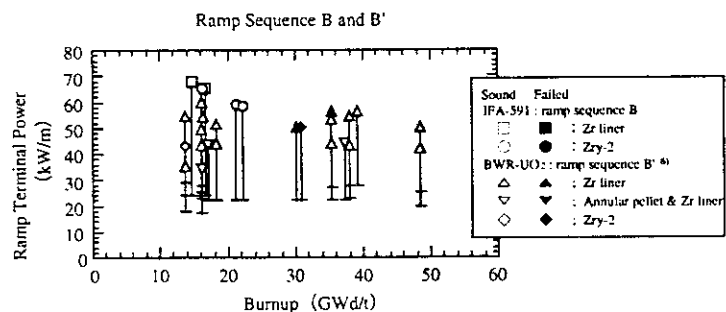
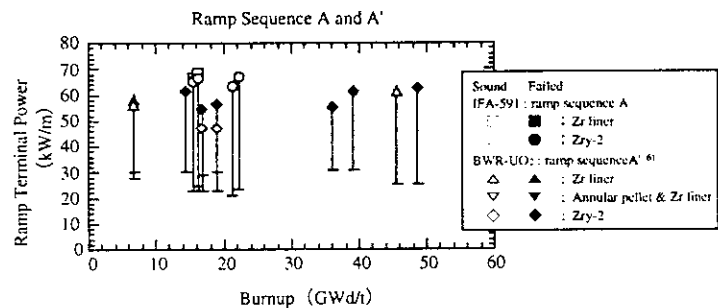


Fig. 2-5 Ramp Test Results


Fig.2-6 Ramp Sequence for BWR UO₂ fuel ⁶⁾

Fig.2-7 Ramp Test Results for ATR MOX (IFA-591) compared with BWR UO₂ fuel ⁶⁾

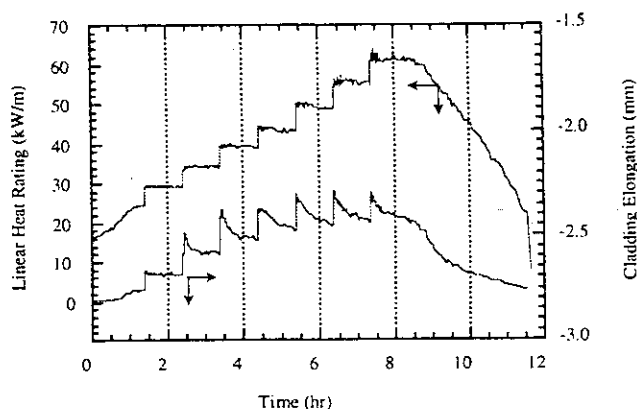


Fig.2-8 Linear heat rating and cladding elongation of IFA-591-3 as a function of time

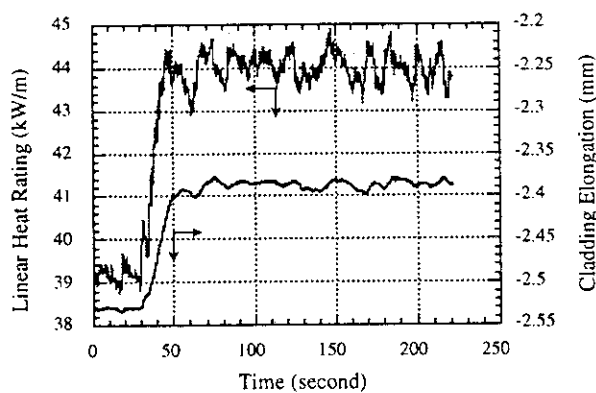


Fig. 2-9a Linear heat rating and cladding elongation of IFA-591-3 step4 as a function of time

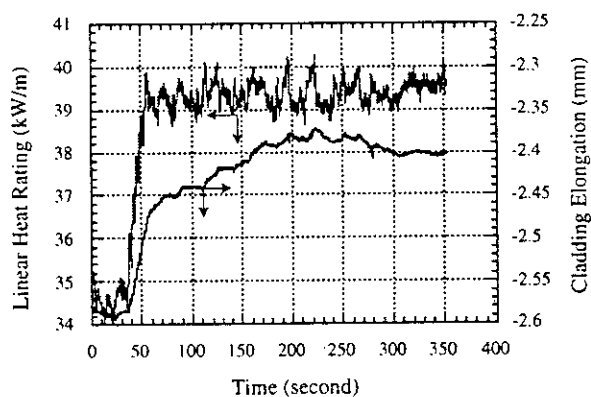


Fig. 2-9b Linear heat rating and cladding elongation of IFA-591-3 step3 as a function of time

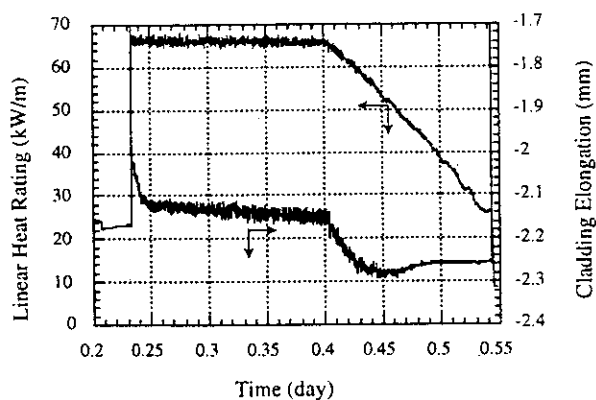


Fig.2-10 Linear heat rating and cladding elongation of IFA-591-7 as a function of time

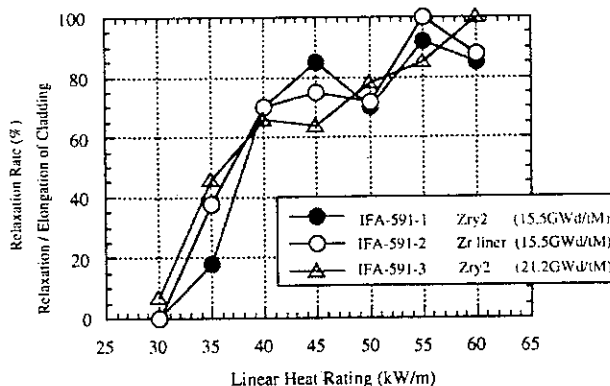


Fig.2-11 Relaxation of cladding as a function of linear heat rating

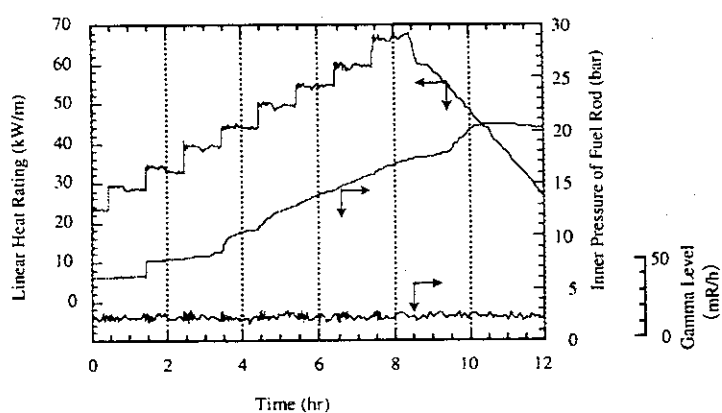


Fig.2-12 Linear heat rating and pressure of IFA-591-6 as a function of time

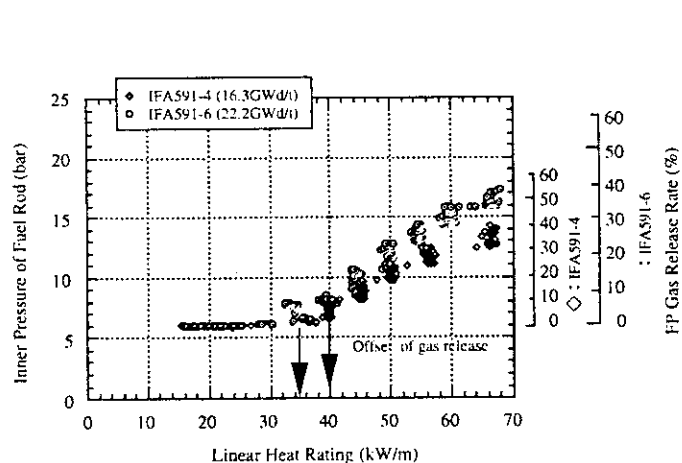


Fig.2-13 FP gas release of IFA-591-4 and -6 as a function of linear heat rating

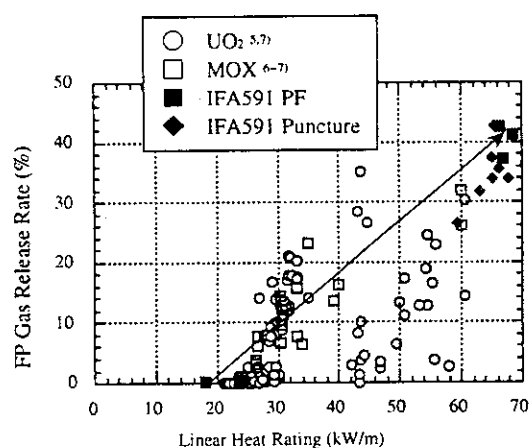


Fig.2-14 FP gas release rate as a function of linear heat rating experienced above 10GWd/t

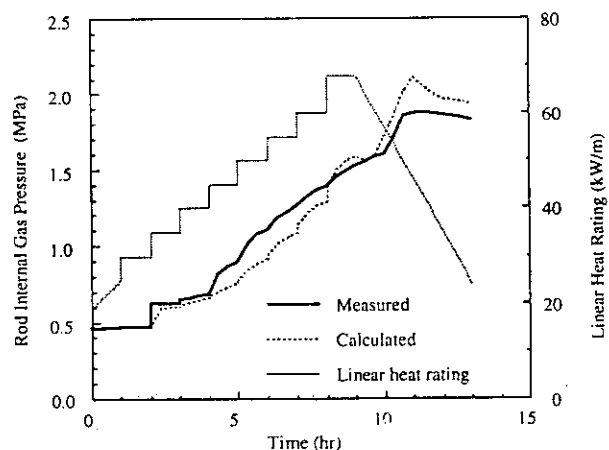


Fig.2-15 Validation result for rod internal gas pressure of IFA-591-6

3. MOX-Gd₂O₃燃料のHBWRにおける照射試験

Irradiation Examination of MOX-Gd₂O₃ Fuel in HBWR

(動力炉・核燃料開発事業団)

3.1 研究目的

高燃焼度MOX燃料開発の一環として、MOX-Gd₂O₃燃料の定常照射試験を行い、照射挙動を把握する。

3.2 研究内容

水炉用MOX燃料を高燃焼度化する場合、燃焼初期の出力ピーキングを抑制する必要があるが、この抑制方法としてバーナブルボイズンであるGd₂O₃を添加する方法がある。すでに軽水炉UO₂燃料ではGd₂O₃をペレット中に均一固溶させた燃料が実用化している。一方、MOX燃料ではGd₂O₃を添加した燃料の使用実績はない。Gd₂O₃を添加する方法として均一固溶の他、中空MOXペレットにGd₂O₃棒を挿入するDuplex型 (Fig.3-1) が考えられる。Duplex型には、均一固溶型に比べて以下に示すメリットがある。

- 1) 核特性上、燃料要素1体当たりの反応度抑制効果が小さく、Gd₂O₃の燃焼が緩やかであるため、高い中性子フラックス位置でも配置することができ、燃焼に伴う出力ピーキングの変化が小さい。また、集合体内の径方向の出力分布を平坦化することができる [1] [2]。
- 2) 製造の観点からは、中空MOXを製造して、被覆管に充填する際、中空部にGd₂O₃棒を挿入すればよいので、MOX-Gd₂O₃専用ラインを設ける必要がなく、コスト低減化が図れる。
- 3) 照射挙動の観点からは、Duplex型中空ペレットを用いること及びGd₂O₃添加に伴う熱伝導度の低下がないことから、燃料温度を均一固溶型に比べて低くでき、FPガスの放出率を抑えることが期待される。

Duplex型の照射燃料を製造し、40GWd/tまで照射する計画である。照射期間中は燃料要素に取り付けた計装により燃料伸び等のデータを計測し、照射挙動を解析・評価する。燃料仕様をTable3-1に示す。試験パラメータは、Table3-2に示すとおりGd濃度 (Gd₂O₃及びZrで希釈したGd_{0.405}Zr_{0.595}O_yの2種類) 及びペレット/被覆管ギャップ (3水準) とし、Duplex型のUO₂-Gd₂O₃をレファレンスとして同時照射する。照射リグ中のクラスターは、上下2つのクラスターから構成されている。下部クラスターは、燃焼中期に、Gdが燃焼してしまったクラスター (LC1) からペレット/被覆管ギャップの効果を調べるためのクラスター (LC2) に、交換する計画である。照射条件は、最大線出力439W/cm、冷却材温度240℃、冷却材圧力35.5kg/cm²である。

3.3 成果

(1) 照射挙動予備評価

燃料棒平均燃焼度40GWd/tまでの本燃料の燃料設計評価をMOX燃料棒照射挙動解析コード「FEMAXI-ATR」を用いて実施し、燃料ペレット温度、被覆管応力及び歪等の設計評価した結果、ハルデン炉において、本燃料の健全性が保たれる見通しを得た [3]。Fig.3-2に燃料中心温度の燃焼度履歴をDuplex型と均一固溶型で比較して示した。Duplex型が全燃焼期間を通じて約150℃程度中心温度が低いことが分かる。

(2) 照射燃料ピンの製作

現在までに照射用燃料ピン24本及び照射用リグの製作を終了した [4]~[6]。

参考文献

1. 周治 愛之ほか、Duplex MOX-Gd燃料の核特性評価、日本原子力学会 1996年秋の大会 E61
2. T. Yamaguchi, et al. "Neutronics Analysis of a Duplex-Type MOX-Gd Fuel in ATR," *ANS Advances in Nuclear Fuel Management II*, Ocean dunes Resorts & Villas Myrtle Beach, South Carolina, March 23-26, 1997.
3. 菊池 圭一ほか、MOX-Gd₂O₃ 燃料開発 (2) -燃料設計-、日本原子力学会 1996年春の年会 K18
4. 加藤 正人ほか、MOX-Gd₂O₃ 燃料開発 (1) -燃料製造と照射試験計画-、日本原子力学会 1996年春の年会 K17
5. 河野 秀作ほか、MOX-Gd₂O₃ 燃料開発 -照射用計装付燃料棒の製作と照射試験計画-、動燃技報 96-7 1995年12月
6. M. Kato, et al. "Development of Duplex Type MOX-Gd₂O₃ Fuel for Water Reactors," *IAEA Technical Committee Meeting on Advances in Pellet Technology for Improved Performance at High Burnup*, Tokyo, October 28-November 1, 1996.

Table 3-1 Specification of fuel rods for irradiation test

項 目	MOX燃料	UO ₂ 燃料
燃料ペレット		
形 状	中実(ディッシュチャンネル付き) / 中空	同左
直 径	9.05、9.10、9.15mm	同左
内径 (中空のみ)	1.9mm (Gd棒) / 2.7mm (Gd-Zr棒)	1.9mm
高 さ	13mm	同左
密 度	95%TD	同左
核分裂性物質	6.8%Pufiss	10.5%EU
被覆管		
材 質	Zry-2 SR材	同左
外 径	10.8mm	同左
内 径	9.3mm	同左
ライナー厚	90 μ m	同左
燃料要素		
燃料有効長	338mm	同左
ペレット-被覆管ギャップ幅	0.15、0.20、0.25mm	0.20mm
封入ガス	Heガス 5kg/cm ²	同左

Table 3-2 Test Parameter

位置	クラスター名	燃料要素 No.	燃料の種類	燃料 内径	Gdの種類	被覆管材	ヘレット- 被覆管 ギャップ*	計装
上部 クラスター	UC	No.1	MOX (中空)	1.9mm	-	SR材	0.20mm	PF, ET
		No.2	MOX (中空)	1.9mm	-			PF, ET
		No.3	MOX (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			PF, EC
		No.4	MOX (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			PF, EF
		No.5	MOX (Duplex)	2.7mm	Gd _{0.405} Zr _{0.595} O _y			PF, EC
		No.6	MOX (Duplex)	2.7mm	Gd _{0.405} Zr _{0.595} O _y			PF, EF
		No.7	UO ₂ (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			PF, EC
		No.8	UO ₂ (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			PF, EF
下部 クラスター	LC-1	No.9	MOX (中実)	-	-	SR材	0.20mm	PF
		No.10	MOX (中空)	1.9mm	-			ET
		No.11	MOX (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			PF
		No.12	MOX (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			EC
		No.13	MOX (Duplex)	2.7mm	Gd _{0.405} Zr _{0.595} O _y			PF
		No.14	MOX (Duplex)	2.7mm	Gd _{0.405} Zr _{0.595} O _y			EC
		No.15	UO ₂ (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			PF
		No.16	UO ₂ (Duplex)	1.9mm	Gd ₂ O ₃			EC
	LC-2	No.17	MOX (中実)	-	/	SR材	0.20mm	PF
		No.18	MOX (中空)	1.9mm			0.20mm	ET
		No.19	MOX (中実)	-			0.15mm	PF
		No.20	MOX (中空)	1.9mm			0.15mm	ET
		No.21	MOX (中実)	-			0.25mm	PF
		No.22	MOX (中空)	1.9mm			0.25mm	ET
		No.23	MOX (中実)	-			0.20mm	PF
		No.24	MOX (中空)	1.9mm			0.20mm	ET

PF：内圧測定
ET：中心温度
EC：被覆管伸び
EF：燃料スタック長

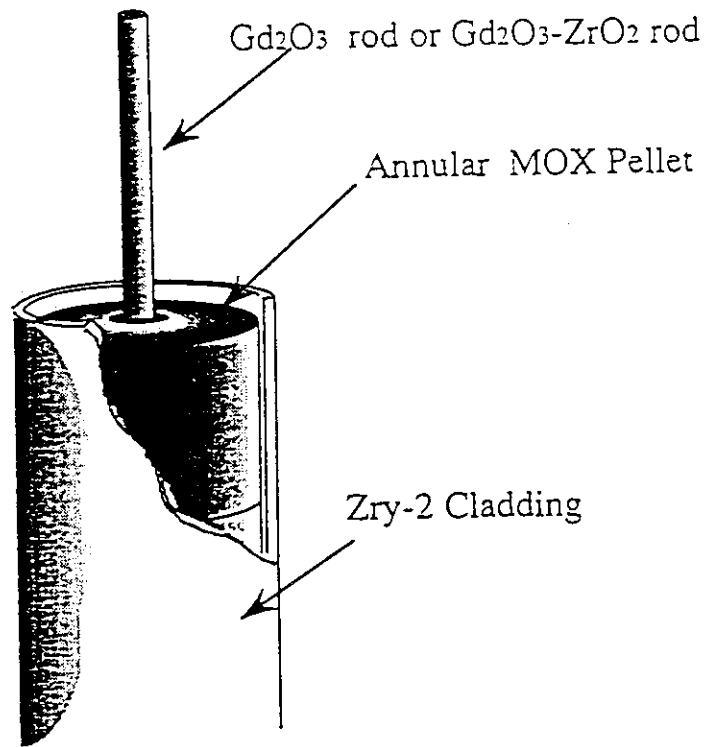
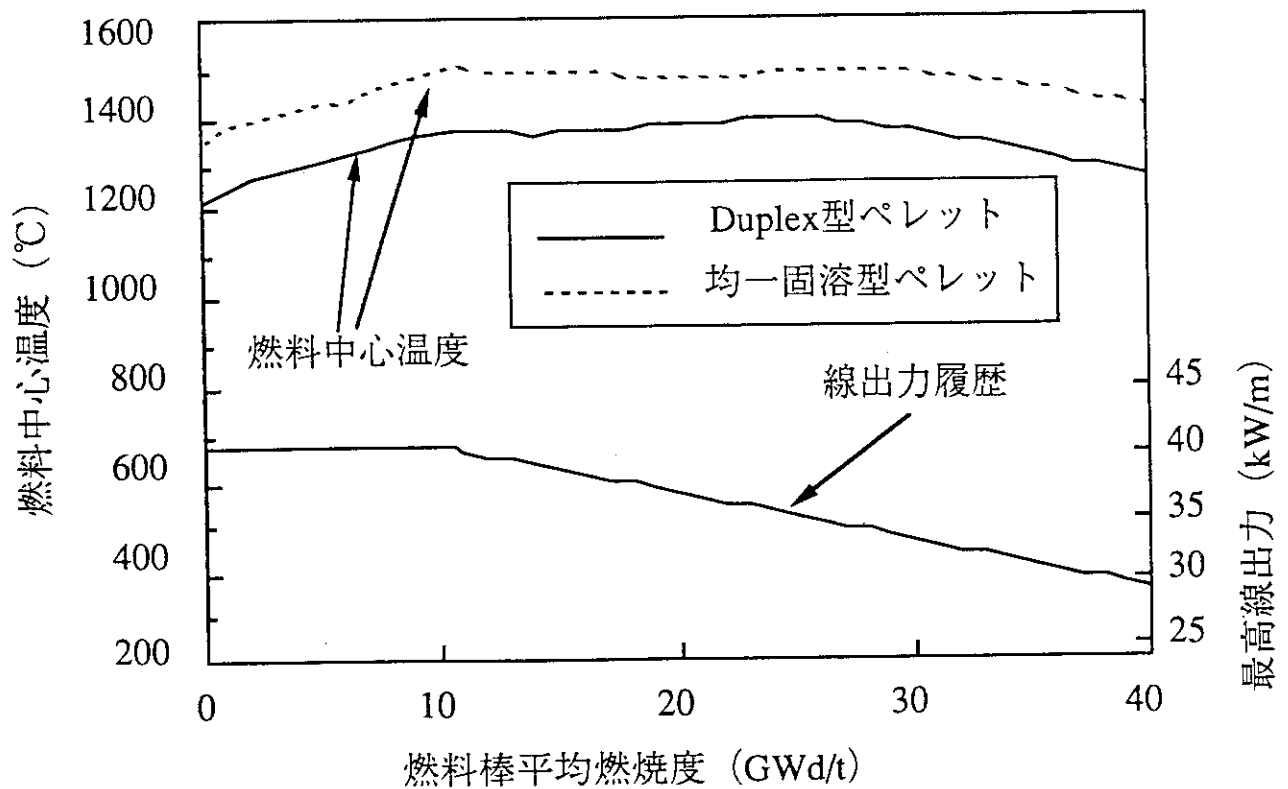
Fig.3-1 Duplex型MOX-Gd₂O₃燃料の構成

Fig.3-2 燃料中心温度の燃焼度依存性

4. ハルデン炉による高燃焼時の軽水炉燃料挙動に関する研究

Study of High Burnup LWR Fuel Behavior making use of HBWR

((財)電力中央研究所)

4. 1. 研究目的

軽水炉燃料の高燃焼時にはペレット周辺に高空孔率のリム組織が発生する。この新しい高燃焼度組織が燃料挙動に与える影響を解明するには、照射温度が明らかでかつ燃焼度が均一な試料を得ることが望ましい。そこでハルデン炉を用いディスク形状の高濃縮度ウラン燃料を大幅な高燃焼度まで照射中の温度をほぼ一定に保ち加速的に照射した。

4. 2. 研究内容

照射試料は直径 5mm 厚さ 1mm の円盤（ディスク）型、濃縮度 26%UO₂ とし、モリブデン円盤でサンドイッチ状に多重に挟むスタック構造とした。目標温度および燃焼度は 600, 800, 1000, 1200 °C、55, 70, 85, 100MWd/kgU、の 16 組、および加圧／非加圧キャプセルの 2 組、計 18 組とした。これらの燃料スタックを、燃料棒ごとに試料温度が一定となるよう設計した 4 本の燃料棒に装荷し、その上下端に熱電対を装着した。設計概要を Table 4.1 に示す。ハルデン炉の上部に配置した様子を Fig.4.1 に示す。照射中の試料温度を推定するため、各燃料棒の上端と下端の燃料スタックのモリブデン円盤温度を熱電対により継続的に測定した。各燃料棒の封入は炉外から照射中に交換可能とし、ガスのアルゴン／ヘリウム混合比の調整により温度の制御を行うとともに、短寿命の放出された FP ガス量を測定することで試料の比表面積(S/V)の燃焼度変化を推定可能とした。

試料内の燃焼度分布を推定するため、中性子物理解析コードによる数値解析を実施した。照射リグ中の減速材と燃料試料の配置を入力とし、ディスク試料の径方向と軸方向の出力分布と燃焼度分布を予測した。照射中の試料温度を評価するため熱伝達を軸対称有限要素法により数値解析し、ディスク試料の径方向と軸方向の温度分布を推定した。

4. 3. 成果

4. 3. 1 ハルデン炉における照射

ディスク円盤型の UO₂ 燃料は EC 超ウラン元素研究所（独国カールスルーエ）にて製造された。照射リグ IFA-601 はハルデンにて製作され燃料スタックの組み上げと燃料棒への封入とリグへの取り付けは IFE(Kjeller) にて行われた。照射リグは 1993 年 12 月にハルデン炉に装荷され 1996 年 5 月、当初目的の燃焼度最高値 100MWd/kgU に達し照射を終了した。照射期間中の試料温度は概ね一定に保持された。ガスフローラインを用い、一定燃焼度間隔で燃料棒ごとに試料の S/V 比を推定した。

4. 3. 2 中性子物理解析

最高燃焼度に達したディスク試料について、半径方向および軸方向(厚み方向)出力分布の解析結果を Fig. 4.2, Fig.4.3 に示す。モンテカルロコード VIMBURN を用い 5 mm 直径、1 mm 厚の UO₂ 試料が 8.26 mm 直径、3 mm 厚のモリブデン円盤により上下を挟まれた構造を考慮し計算した。この照射初期のディスク中心部は平均より約 5% 出力が低い、その差は燃焼進展に伴い減少する。ディスクの周辺部では照射初期には 10% 程度平均より高い出力が認められ、従って照射後試験では半径方向の燃焼度分布の考慮が望ましいと予想される。軸方向の出力変化はディスク中心部で平均の 1% 程度であり、ディスクのごく表面を除いてその効果は無視できると推定された。

4. 3. 3 軸対称有限要素法による温度解析

燃料棒内部から冷却水に至る伝熱について軸対称を仮定し、核発熱する試料 UO_2 ディスクからモリブデン円盤への接触熱伝達、被覆管と UO_2 ディスクおよびモリブデン円盤とのギャップ間のガスおよび輻射熱伝達を MARC コードを用いて解析した。境界条件としてハルデン炉の冷却水温度 240°C 、および照射中に計測されたモリブデン円盤温度を用い、計測温度を再現するようにギャップ熱伝達率を調整した。燃料 UO_2 試料の熱伝導度の燃焼度変化の相関式は、RISO 計画、およびハルデン燃料温度計測データから導いた独自のものを用いた。

最高燃焼度に達した試料のうち、最高温度に設定したスタック S 4 1 (Fig.4.1、燃料棒 Nr.4、最下端) について、照射終了直前の温度分布推定結果を Fig. 4.4 に示す。試料の形状が小さいにもかかわらず、その高い出力密度と熱伝導度の低下のため、試料内部に大きな温度差が生じる。特に軸方向(厚み方向) 0. 25 mm間の温度差は約 200°C を推定される。この温度差はリム組織の発生過程にも影響すると予想される。したがって照射後試験では試料内部の温度分布を考慮した試験観察が必要となることが明らかとなった。

Table 4.1 Rod design of IFA-601 for irradiation of eighteen disc stacks

Rod number		1	2	3	4
Nominal fuel temperature (°C)		500	700	950	1200
Fill gas composition		He 100%	~75% He +Ar	~45% He +Ar	Ar 100%
Mo disk diameter (mm)		8.26	8.16	8.01	7.76
Mo disc/cladding radial gap (mm)		0.05	0.1	0.175	0.3
Mo disk thickness (mm) ⁽¹⁾	1 Bottom	3.0	3.0	3.0	3.0
	2	2.4	2.4	2.4	2.4
	3	1.8	1.8	1.8	1.8
	4 top	1.2	1.2	1.2	1.2

⁽¹⁾Position 1 is the bottom of the rod placed at the mid height of the reactor elevation targeting the highest burnup. Position 4 is the top of the rod.

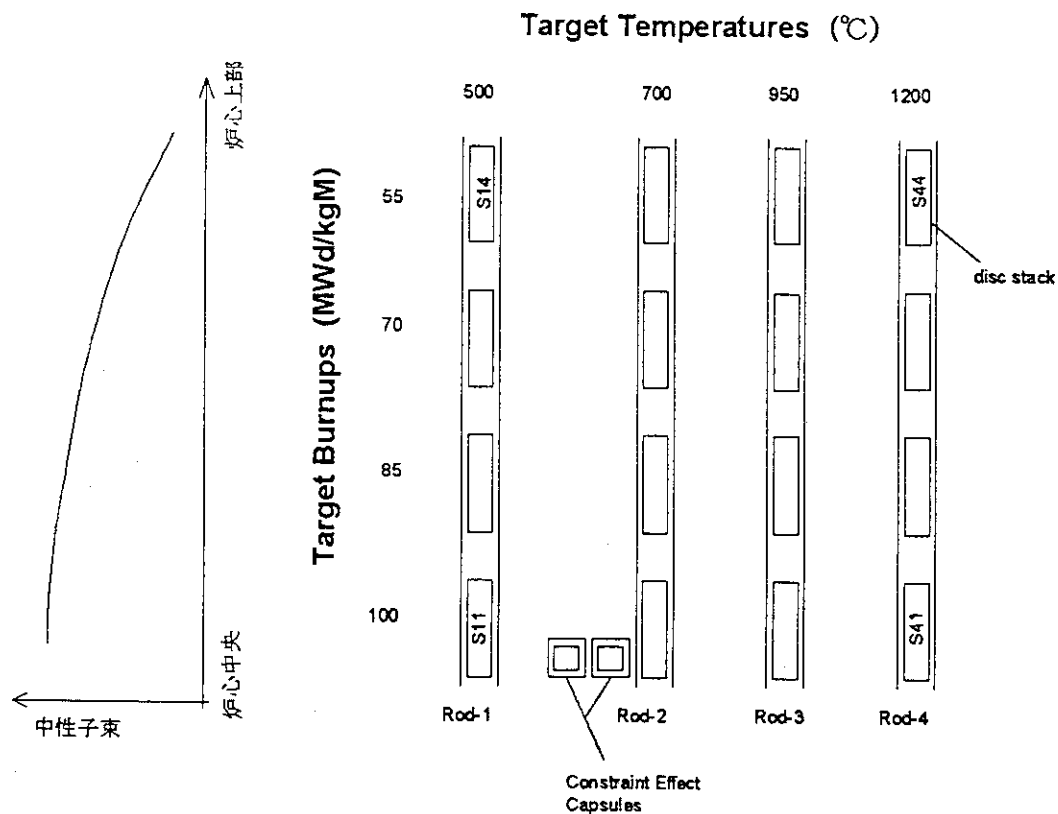


Fig.4.1 Fuel stack composition and nominal temperature and burnup (Rod and stack numbers are indicated).

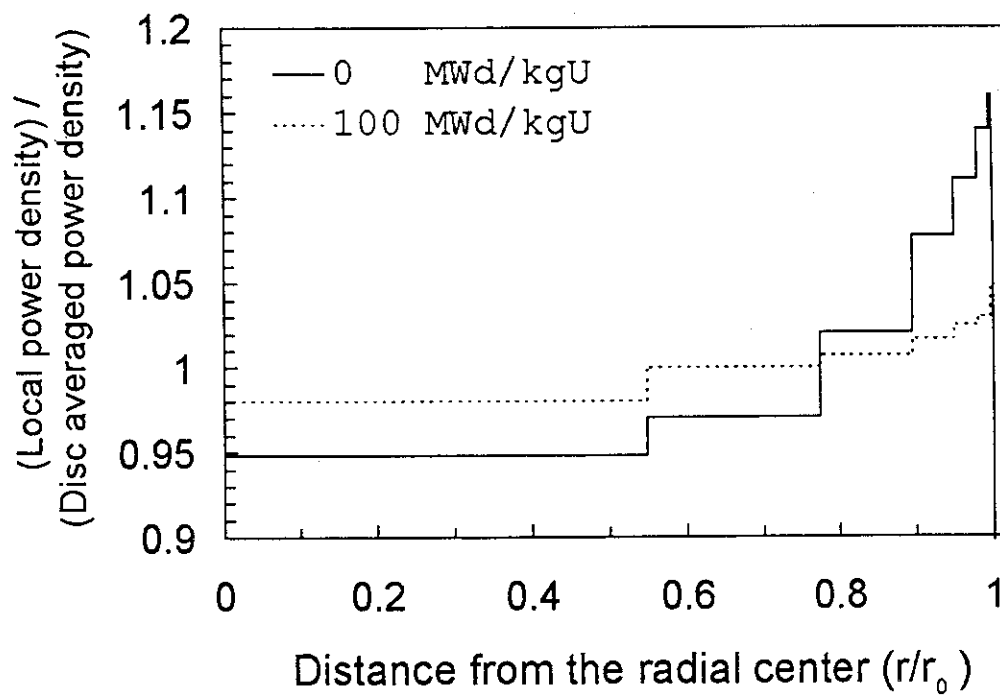


Fig. 4.2 Radial power profile in the fuel disc between 3 mm thick Mo discs at the highest burnup stacks

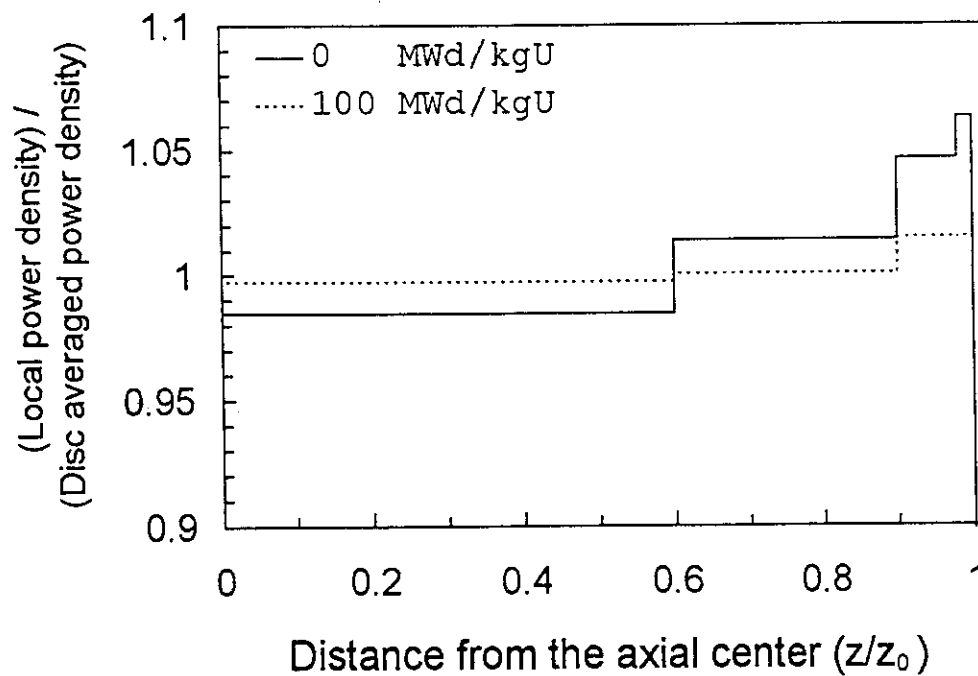
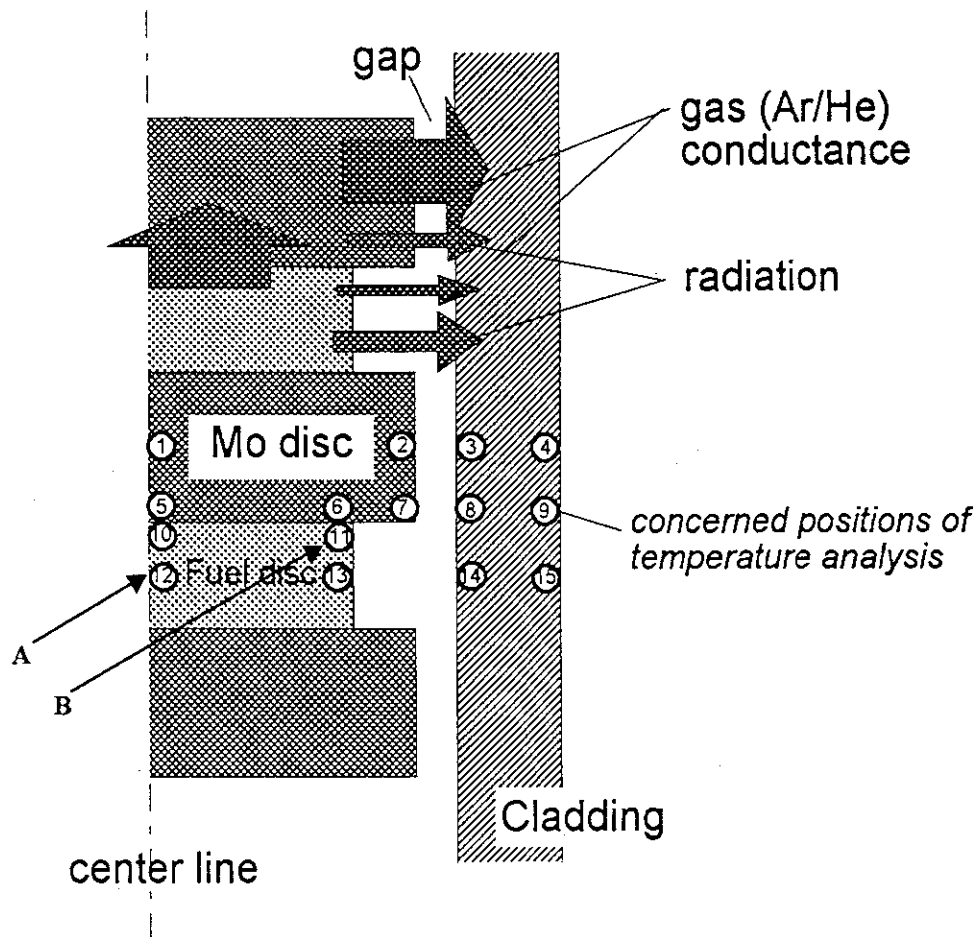


Fig. 4.3 Axial power profile in the fuel disc between 3 mm thick Mo discs at the highest burnup stacks



Calculated temperatures at circled positions (°C)

1) 1144		2) 1133	3) 288	4) 270
5) 1149	6) 1140	7) 1132	8) 285	9) 270
10) 1215	11) 1176			
12) 1442	13) 1356		14) 283	15) 270

B 最低温度位置(ディスク外周端)

A 最高温度位置(ディスク中心)

Fig.4.4 Radial heat flux through gap and cladding in the argon filled rod at the highest rating position just before the discharge (102MWd/kgU)

5. ハルデンHBWRにおける新型燃料の照射挙動に関する研究 Irradiation Study of Advanced Fuel Behavior in HBWR

(日本核燃料開発㈱)

5. 1 研究目的

新型ペレットを高燃焼度（目標、約50GWd/tUおよび約100GWd/tU）まで照射し、照射中のF Pガス放出量を測定することにより、高燃焼度下でのF Pガス挙動を評価する。

5. 2 研究内容

商用BWRサイズの試験燃料棒を照射する照射リグ1体、および燃焼を加速し、早期に高燃焼度下における燃料挙動を評価することを目的とした細径燃料棒を照射する照射リグ1体を用いて、新型ペレットを照射し、高燃焼度におけるF Pガス放出挙動を評価する。商用BWR燃料サイズ燃料棒用集合体は、上、下2クラスタからなり、各6本、合計18本の試験燃料棒が装荷できる。これら燃料棒には燃料棒内圧計が装備されており、照射下における燃料棒内圧を計測・記録する。細径燃料棒用集合体は、上、中、下3クラスタからなり、各6本、計18本が装荷できる。すべての燃料棒に内圧計が、また上部クラスタ燃料棒6本の内3本にスタック伸び計が装備されており、照射下のF Pガス放出およびスタック伸び挙動をオンラインで計測・記録する。新型ペレットは、高濃縮ウラン（商用BWRサイズ燃料棒；濃縮度約8%、細径燃料棒；濃縮度約13%）を用いて作製した。

5. 3 成果

商用BWRサイズ試験燃料棒として、8×8型仕様燃料棒を合計12本装荷して、1986年12月から照射を開始した。1989年11月に、下部クラスタ燃料棒を燃焼度約23GWd/tUで取出し、これと入れ替えに、9×9型仕様燃料棒（差替燃料棒）6本を装荷し、1990年3月から照射を開始した。1992年5月に、上部クラスタ燃料棒を燃焼度約30GWd/tUで取出し、パンクチャ試験を実施した。上部クラスタには、新たな改良ペレットを追加照射燃料棒として装荷し、1993年3月から照射を開始した。1995年10月に、差替燃料棒を燃焼度約45GWd/tUで、また追加照射燃料棒を燃焼度約20GWd/tUで取出し、照射試験を終了した。また、商用BWRサイズ燃料と同等な燃料温度で、かつ燃焼度を加速する目的で、細径燃料棒を合計18本装荷して、1990年4月より照射を開始した。1991年10月に下部クラスタ燃料棒（燃焼度約30GWd/tU）を、1992年5月に中部クラスタ燃料棒（燃焼度60GWd/tU）を取出した。中部クラスタには、追加照射燃料として、新たな改良燃料が装荷され、1993年3月から照射が開始された。1995年3月に、上部クラスタ燃料棒（燃焼度約75GWd/tU）および中部クラスタの追加照射燃料棒（燃焼度約60GWd/tU）を取出し、照射試験を終了した。照射終了後、照射後試験を実施し、燃料ふるまいを詳細に調べた。

照射試験に供した燃料ペレットの種類、結晶粒径および密度をTable 5-1に示す。また、試験燃料棒の仕様をTable 5-2に示す。各クラスタには、新型ペレットからなる燃料とともに標準ペレットからなる燃料も同時に装荷されている。各クラスタの出力履歴をFig. 5-1およびFig. 5-2に示す。各燃料棒は、線出力約20～45kW/mの範囲で照射され、最高で燃料棒平

均燃焼度75GWd/t、ペレット最高燃焼度88GWd/tに到達した。

F Pガス放出率の結果を、Fig. 5-3からFig. 5-5に示す。図に示すように、○で示す標準燃料に対し、大粒径化した新型燃料はF Pガス放出が抑制されていることがわかる。Fig. 5-6には、各燃焼度のF Pガス放出率（FGR）の結晶粒径依存性を示す。縦軸は、同時に照射された標準燃料のFGRに対する相対FGRで、横軸は結晶粒径の逆数である。燃料タイプ、燃焼度にかかわらず、大粒径化によりF Pガス放出が抑制されていることがわかる。また、この相対FGRを燃焼度に対してプロットしたものをFig. 5-7に示す。一部の高出力で照射されたペレットを除き、いずれの新型燃料においても、大粒径化による20%～50%のFGR低減効果が、高燃焼度まで持続することが示された。この大粒径化によるFGR低減効果は、ガドリ入り燃料にも有効であることが確認された。Fig. 5-8は、微量のAl-Si-Oを添加し大粒径化したガドリ入り燃料と通常の結晶粒径のガドリ入り燃料のFGRを比較したものである。大粒径化することにより、F Pガス放出率は約40%程度低減していることがわかる。

最高燃焼度に達した燃料について、燃料棒直径変化を測定した結果をFig. 5-9に示す。図に示すように、大粒径化により直径変化が抑制されており、大粒径化によりPCIが低減したことが示唆された。密度変化測定結果をFig. 5-10に示す。60GWd/t程度までは、標準、無添加大粒径、Al-Si-O添加大粒径ペレットの間で密度変化に大きな差は見られないが、より高燃焼度では、大粒径化により若干スエリングが低減している傾向が見られる。このように高燃焼度下で直径変化・密度変化に差が生じたのは、主に気泡スエリングが低減したことと起因していると考えられる。一方、TiやNbを添加しペレット製造時のカチオンの拡散を促進させて大粒径化したものは、やや大きなスエリングを示した。

温度過渡時における燃料の挙動を評価する目的で、照射後焼鈍試験を実施し、温度過渡時のバースト放出率および気泡スエリング率を求めた。結果をFig. 5-11およびFig. 5-12に示す。いずれも、大粒径化することによりバースト放出率および気泡スエリング率は低減する。ただし、Ti等の拡散係数を増加させて大粒径化したペレットは、大きなバースト放出率および気泡スエリング率を示し、高燃焼度に至っても、製造時に添加した拡散促進剤の効果が残存し、温度過渡時の挙動が不安定となることが示され、高燃焼度燃料として適切でないと考えられる。

高燃焼度燃料に特徴的な微細組織変化（リム組織形成）について、SEM/TEM観察を行った結果、大粒径化により微細組織変化が抑制されることが示された。Fig. 5-13およびFig. 5-14に、60GWd/tまで燃焼した細径燃料棒（標準ペレット）の金相、SEM像、TEM像を示す。Fig. 5-14に示すように、粗大気泡を取り囲むように再結晶粒が見られ、その周りに照射欠陥が多数蓄積した領域が見られる。再結晶化することにより、粗大気泡が生成し、リム組織となると考えられることから、全視野に対する再結晶化領域の割合を再結晶化率と定義し、微細組織変化のし易さの指標と考えた。この再結晶化率は、Fig. 5-15に示すように大粒径化することにより抑制されることが示された。

これらの成果を、以下の学会等で報告した。

5-1. 軽水炉燃料挙動に関する国際会議（ANS主催、1994年4月17-20日、米国、フロリダ）で発表。

5-2. 日本原子力学会（1994年3月、春の年会）にて発表。

5-3. 日本原子力学会（1996年9月、秋の大会）にて発表。

5-4. 軽水炉燃料挙動に関する国際会議（ANS主催、1997年3月2－6日、米国、ポートランド）で発表。

Table 5-1 Additive concentration, grain size and density of fuel pellets

Pellet type	8x8 type fuel rod		9x9 type fuel rod		Small diameter fuel rod	
	Grain diameter (μm)	Relative density (%TD)	Grain diameter (μm)	Relative density (%TD)	Grain diameter (μm)	Relative density (%TD)
Undoped standard grain	15	96.0	10	96.8	9	97.2
Undoped large grained	42	96.5	63	96.4	51	96.9
0.025wt%Al-Si-O ¹ doped large grained	-	-	45	98.2	37	97.8
0.1wt%Al-Si-O ¹ doped large grained	-	-	58	97.4	56	97.3
0.25wt%Al-Si-O ¹ doped large grained	-	-	54	97.1	46	97.8
1.0wt% Kaolinite doped	15	98.7	-	-	-	-
0.5wt% Bentonite doped	28	95.2	-	-	-	-
0.7wt%Nb ₂ O ₅ doped large grained	110	99.3	-	-	-	-
0.2wt%TiO ₂ doped large grained	85	98.5	99	99.4	68	99.5
0.25wt%Ti-Si-O ² doped large grained	-	-	153	98.6	135	99.5
10wt%Gd ₂ O ₃ doped standard grain	-	-	5	97.2	5	96.4
10wt%Gd ₂ O ₃ doped large grain	-	-	59	96.5	46	97.1
10wt%Gd ₂ O ₃ +0.025wt% Al-Si-O ¹ doped large grain	-	-	35	96.5	31	96.3

1: Synthetic alumino-silicate

2: Synthetic titania-silicate

Table 5-2 Fuel rod specifications

		8x8 type fuel rod	9x9 type fuel rod	Small diameter fuel rod
Pellet	Outer diameter (mm)	10.4	9.6	5.5
	Height (mm)	10.3	9.6	5.5
	Enrichment (%)	3.9	8	11
Cladding	Cladding type	Zry-2 + Zr liner	Zry-2 + Zr liner	Zry-2 + Zr liner
	Outer diameter (mm)	12.3	11.2	6.5
Rod	Stack length (mm)	500	400	240
	Gap (mm)	0.2	0.2	0.11
	Free volume (cm ³)	5	9	3
	He pressure (bar)	5	10	10

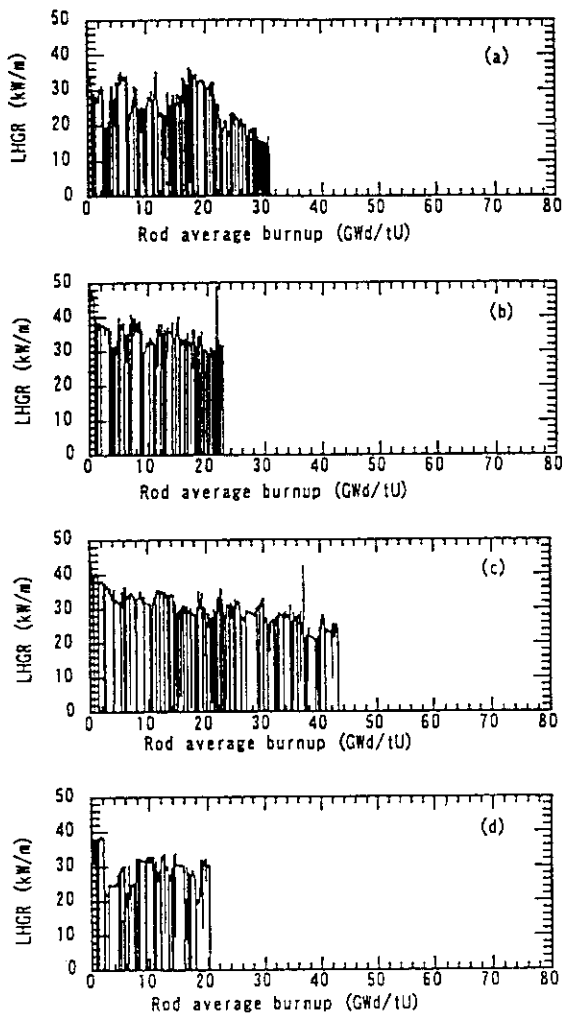


Fig.5-1 Power history of 8x8 and 9x9 type fuel rods.

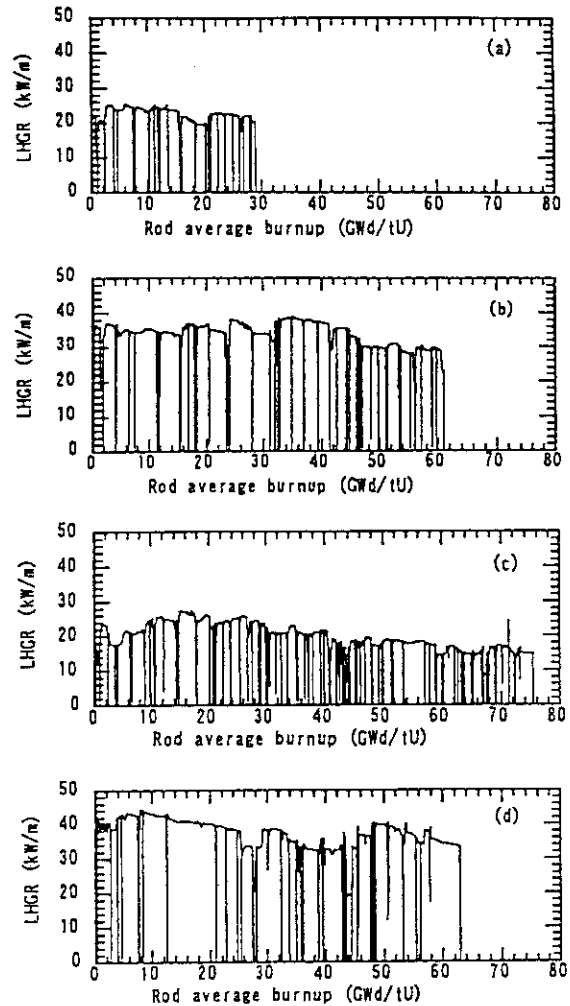


Fig.5-2 Power history of small diameter fuel rods.

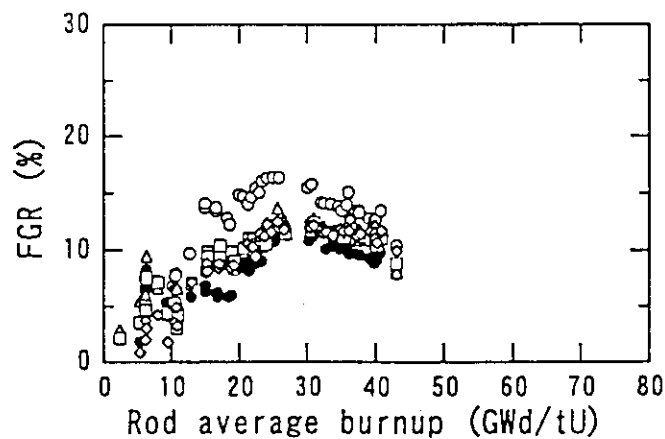


Fig.5-3 Fission gas release for 9x9 type fuel rods irradiated up to 43 GWd/t.

○: Standard, ●: Un-doped large grained, △: TiO_2 added large grained, □: Al-Si-O added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

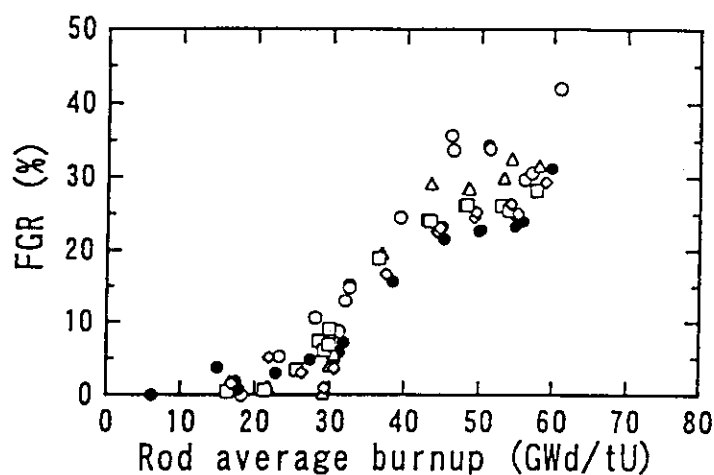


Fig.5-4 Fission gas release for small diameter fuel rods irradiated up to 60 GWd/t.

○: Standard, ●: Undoped large grained, △: TiO_2 added large grained, □: Al-Si-O added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

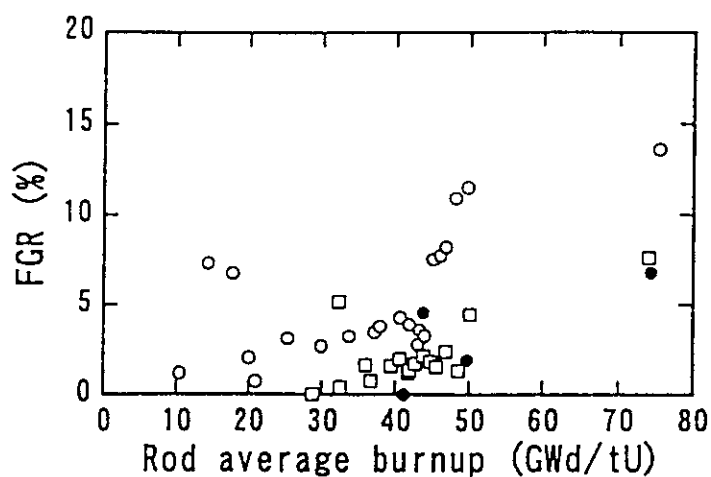


Fig.5-5 Fission gas release for small diameter fuel rods irradiated up to 75 GWd/t.

○: Standard, ●: Undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained.

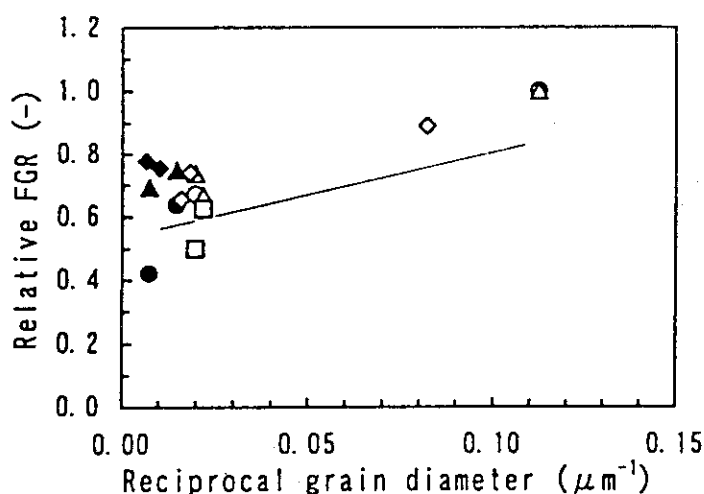


Fig.5-6 Grain size dependence of relative FGR.
 ○ and ●: 31 GWd/t, △ and ▲: 60 GWd/t,
 □ and ■: 75 GWd/t, ◇ and ◆: 43 GWd/t,
 Open marks: standard, undoped large grained and Al-Si-O added large grained, Solid marks: TiO₂ added large grained and Ti-Si-O added large grained.

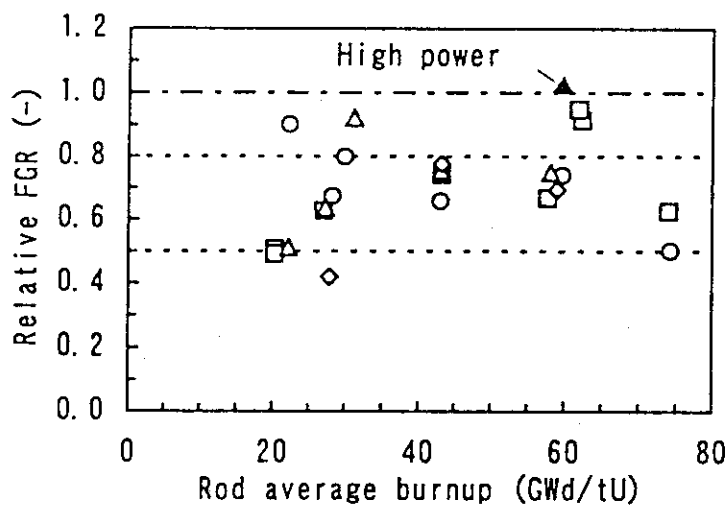


Fig.5-7 Dependence of rod average burnup on relative FGR.
 ○: undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, △: TiO₂ added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained. Data marked with an arrow correspond to rods irradiated under high power.

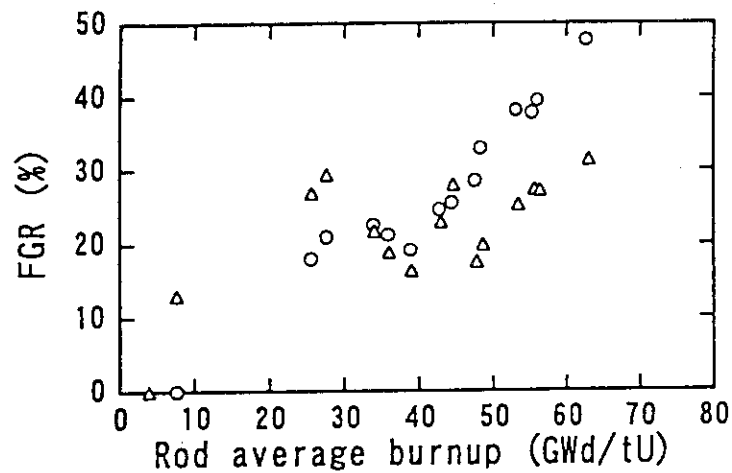


Fig.5-8 FGR of small diameter rods containing UO_2 with 10 wt% gadolinia.

○: Standard grain, △: Al-Si-O added large grained.

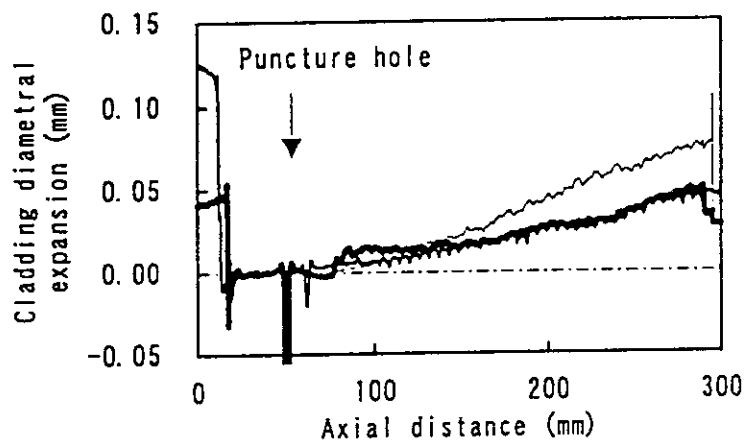


Fig.5-9 Profilometry results for small diameter fuel rods irradiated to rod average burnup of 75 GWd/t.

— : Standard, — Undoped large grained,
 — : Al-Si-O added large grained.

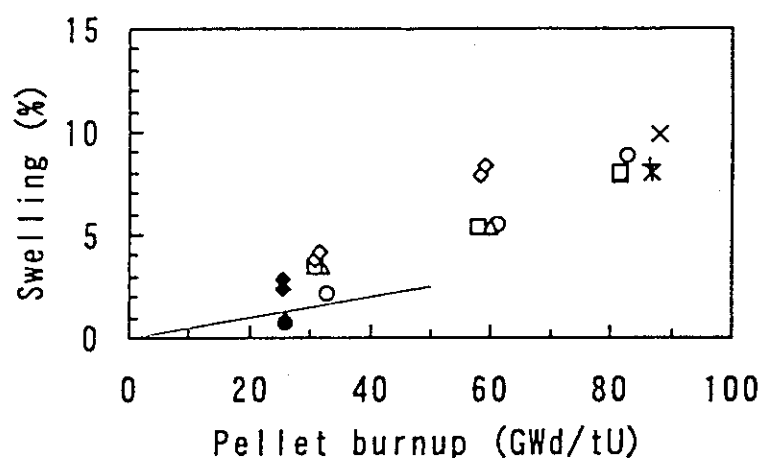


Fig.5-10 Pellet swelling during steady state irradiation.

○: Standard, △: Undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, ◇: Ti or Nb added, ×, * +: estimated from profilometry data for standard, Undoped large grained, Al-Si-O added large grained. Open marks: small diameter fuel rods, Solid marks: 8x8 type fuel rods.

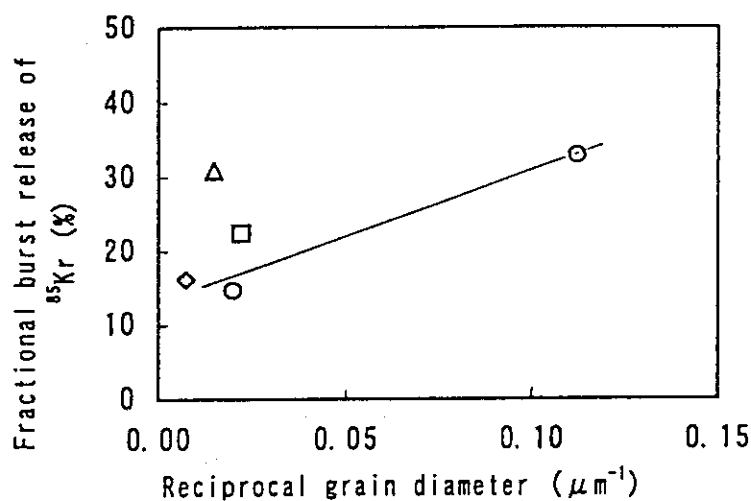


Fig.5-11 Grain size dependence of fractional burst release of ^{85}Kr during post-irradiation annealing tests. (Small diameter rods irradiated up to 60 GWd/t).

○: Standard and undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, △: TiO_2 added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

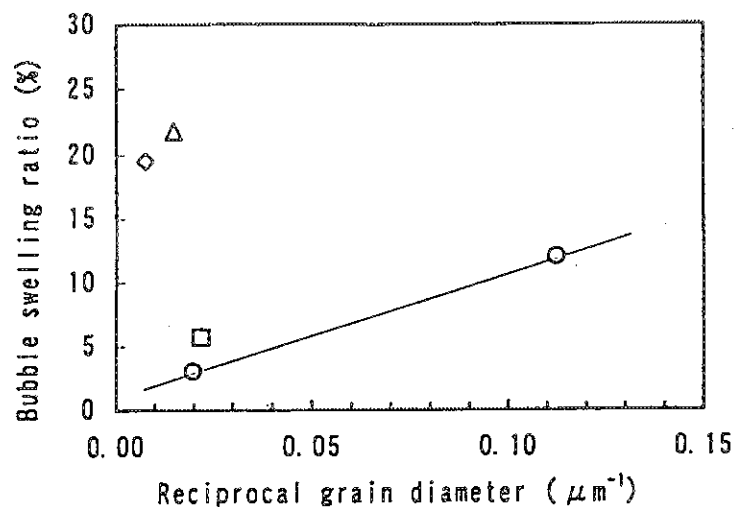


Fig.5-12 Grain size dependence of bubble swelling during post-irradiation annealing tests.

(Small diameter rods irradiated up to 60 GWd/t).

○: Standard and undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, △: TiO₂ added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

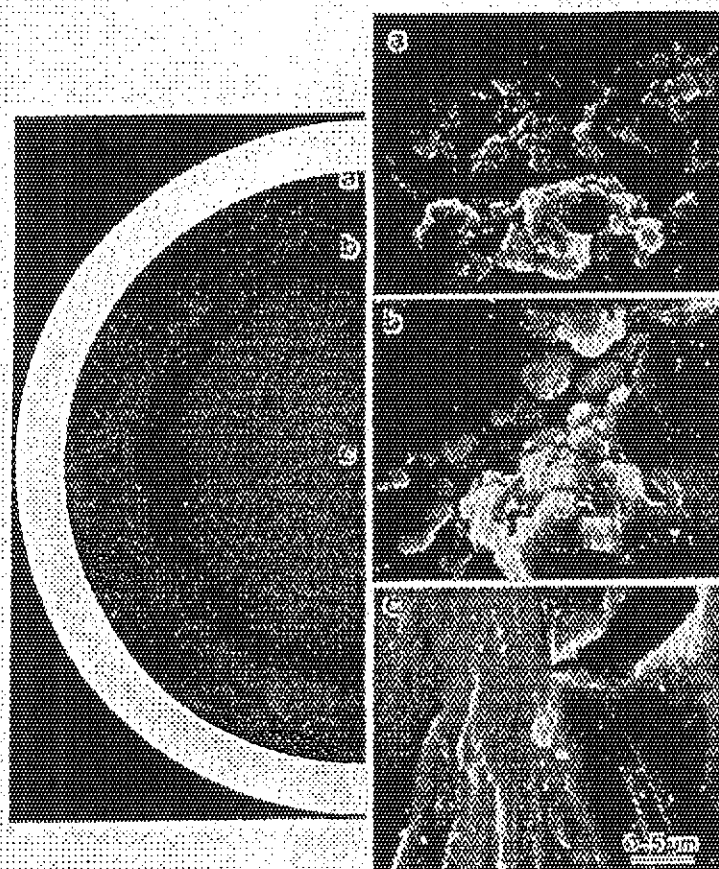


Fig.5-13 Ceramograph and SEM images for standard pellet of small diameter rod irradiated to 60 GWd/t.

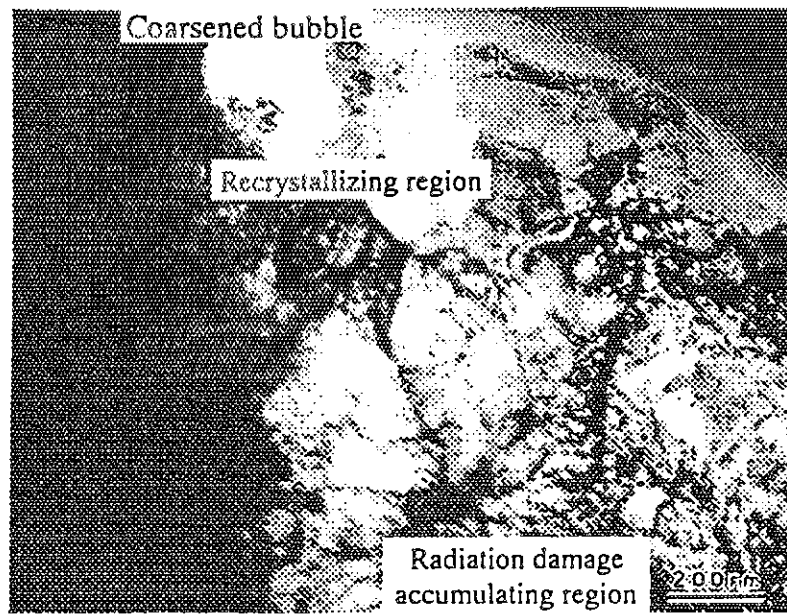


Fig.5-14 TEM image of pellet periphery for standard UO_2 of small diameter rod irradiated to 60 GWd/t.

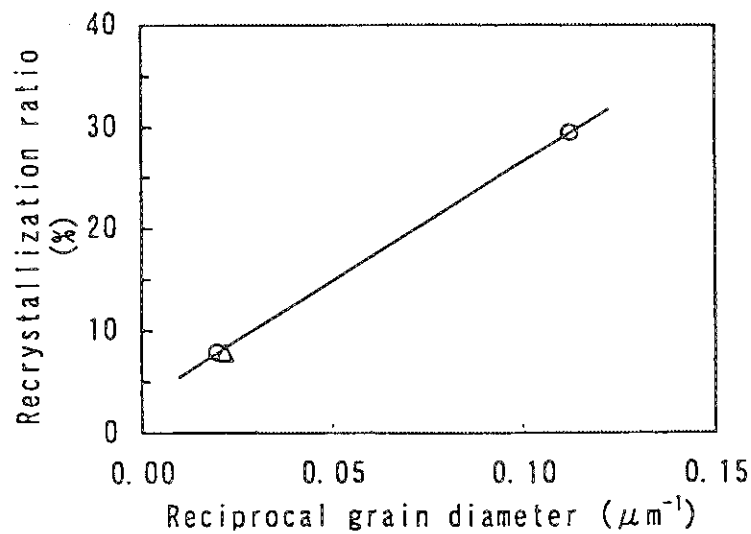


Fig.5-15 Grain size dependence of recrystallization ratio for small diameter samples irradiated to 60 GWd/t.²¹

○: Standard and undoped large grained, Δ : Al-Si-O added large grained.

PERFORMANCE OF IMPROVED UO_2 PELLETS AT HIGH BURNUP

M. Hirai, T. Hosokawa, R. Yuda, K. Une,
S. Kashibe and K. Nogita
Nippon Nuclear Fuel Development Co., Ltd.
2163 Narita-cho, Oarai-machi, Higashi-Ibaraki-gun,
Ibaraki-ken 311-13, Japan
81 (29) 266-2131

Y. Shirai and H. Harada
Tokyo Electric Power Company
1-3 Uchisaiwai-cho, 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo
100, Japan

T. Kogai,
Toshiba Corporation
8 Shinsugita-cho, Isogo-ku,
Yokohama 235, Japan

T. Kubo,
Hitachi, Ltd.
1-1 Saiwai-cho, 3-chome, Hitachi-
shi, Ibaraki-ken 317, Japan

J. H. Davies
GE Nuclear Energy
Vallecitos Nuclear Center,
Pleasanton, CA 94566, USA

ABSTRACT

Fission gas release (FGR), swelling and microstructural change were studied through high burnup for several types of modified UO_2 pellets with controlled microstructure. The modified UO_2 pellets were loaded in fuel rods equipped with a pressure gauge and irradiated in the Halden Boiling Water Reactor after which they were subjected to post irradiation examinations. It was concluded that enlarging grain size in UO_2 pellets suppressed FGR and swelling during base irradiation and temperature ramp. Alumino-silicate addition was suggested to be effective against PCI due to the increased creep rate of pellets. On the other hand, it was shown that niobium or titanium addition enhanced the intrinsic fission gas diffusion even in higher burnup fuel and the pellets with these additives showed higher FGR and swelling, especially during excursion to higher temperature.

1. INTRODUCTION

Fuel discharge burnup has been gradually extended as a means to reduce the nuclear fuel cycle cost for LWRs. The increase in fuel rod internal pressure due to higher fission gas release (FGR) and the increase in pellet cladding interaction (PCI) by gas bubble swelling are key problems affecting fuel reliability at higher burnup. Moreover, microstructural change becomes remarkable above a pellet burnup of 40 GWd/t, with many coarsened bubbles being observed, especially in the pellet periphery.¹⁻⁴ This microstructural change is considered to be caused by accumulation of radiation damage.^{3, 5} FGR and bubble swelling have been considered to be

reduced, in principle, by expanding the diffusion distance of fission gas from grain interiors to a grain boundary and/or suppressing the diffusion rate of the fission gas and vacancies. Therefore, enlarging the grain size of UO_2 pellets has been considered to be effective for suppressing FGR and swelling.⁶

Many studies have included both irradiation tests and post-irradiation examinations (PIEs) to clarify the effectiveness of enlarging grain size of the fuel pellets as a means of reducing FGR and bubble swelling.⁶⁻¹³ The large grained pellets were prepared in several ways,^{6, 8-13} which can be classified according to controlling powder characteristics and/or sintering conditions, cation accelerator addition and using liquid phase sintering. A cation accelerator, such as TiO_2 or Nb_2O_5 , dissolves in the UO_2 matrix to enhance cation diffusion and accelerate the sintering and grain growth. While alumino-silicate forms a liquid phase along the grain boundary during the sintering process and enhances the grain growth.⁶

Previous results showed that the FGR was smaller for large grained fuels than small grained fuels during base irradiation up to 27 GWd/t.^{6, 14} Also the burst release of fission gas and bubble swelling during post-irradiation annealing tests were distinctly lower than those for standard fuels.^{6, 14} Furthermore, Nogita and Une¹⁵ reported that the large grain structure accumulated fewer irradiation induced defects than the small grain structure. By contrast, TiO_2 or Nb_2O_5 doped large grained fuels showed acceleration of FGR and bubble swelling at relatively low burnup of 23 GWd/t during post-irradiation annealing tests. However, their behaviors at high burnup have not been clarified yet.

Table 1 Additive concentration, grain size and density of fuel pellets

Pellet type	8x8 type fuel rod		9x9 type fuel rod		Small diameter fuel rod	
	Grain diameter (μm)	Relative density (%TD)	Grain diameter (μm)	Relative density (%TD)	Grain diameter (μm)	Relative density (%TD)
Undoped standard grain	15	96.0	10	96.8	9	97.2
Undoped large grained	42	96.5	63	96.4	51	96.9
0.025wt%Al-Si-O ¹ doped large grained	-	-	45	98.2	37	97.8
0.1wt%Al-Si-O ¹ doped large grained	-	-	58	97.4	56	97.3
0.25wt%Al-Si-O ¹ doped large grained	-	-	54	97.1	46	97.8
1.0wt% Kaolinite doped	15	98.7	-	-	-	-
0.5wt% Bentonite doped	28	95.2	-	-	-	-
0.7wt%Nb ₂ O ₅ doped large grained	110	99.3	-	-	-	-
0.2wt%TiO ₂ doped large grained	85	98.5	99	99.4	68	99.5
0.25wt%Ti-Si-O ² doped large grained	-	-	153	98.6	135	99.5
10wt%Gd ₂ O ₃ doped standard grain	-	-	5	97.2	5	96.4
10wt%Gd ₂ O ₃ doped large grain	-	-	59	96.5	46	97.1
10wt%Gd ₂ O ₃ +0.025wt% Al-Si-O ¹ doped large grain	-	-	35	96.5	31	96.3

1: Synthetic alumino-silicate

2: Synthetic titania-silicate

In this study, several types of modified UO₂ pellets have been developed for the reduction of FGR and swelling. These fuel pellets were irradiated in the Halden BWR (HBWR) to study the effects on the fuel performance through high burnup of grain size, solution and grain boundary segregation of additives. The evaluations were made through PIEs.

II. EXPERIMENTAL

A. Fuel rods and pellets

BWR 8x8 type fuel rods, BWR 9x9 type fuel rods and small diameter fuel rods were provided for the irradiation tests in the HBWR. Each rod was equipped with in-reactor instrumentation (a pressure

transducer and/or a fuel stack elongation gauge). Several types of improved fuel pellets were fabricated and loaded in these fuel rods. Main pellet characteristics and fuel rod specifications are summarized in tables 1 and 2, respectively. The composition of the synthetic alumino-silicate was 60 wt% SiO₂ - 40 wt% Al₂O₃ and that of the synthetic titania-silicate was 50 wt%SiO₂ - 50 wt%TiO₂. Alumino-silicate forms a liquid phase during the sintering process and enhances sintering and grain growth. After sintering, alumino-silicate segregates along a grain boundary, while, TiO₂ and Nb₂O₅ dissolve into the UO₂ matrix and enhance the sintering and grain growth by accelerating cation diffusion there. Titania-silicate forms a liquid phase during sintering and part of these titanium ions are in

Table 2 Fuel rod specifications

		8x8 type fuel rod	9x9 type fuel rod	Small diameter fuel rod
Pellet	Outer diameter (mm)	10.4	9.6	5.5
	Height (mm)	10.3	9.6	5.5
	Enrichment (%)	3.9	8	11
Cladding	Cladding type	Zry-2 + Zr liner	Zry-2 + Zr liner	Zry-2 + Zr liner
	Outer diameter (mm)	12.3	11.2	6.5
Rod	Stack length (mm)	500	400	240
	Gap (mm)	0.2	0.2	0.11
	Free volume (cm ³)	5	9	3
	He pressure (bar)	5	10	10

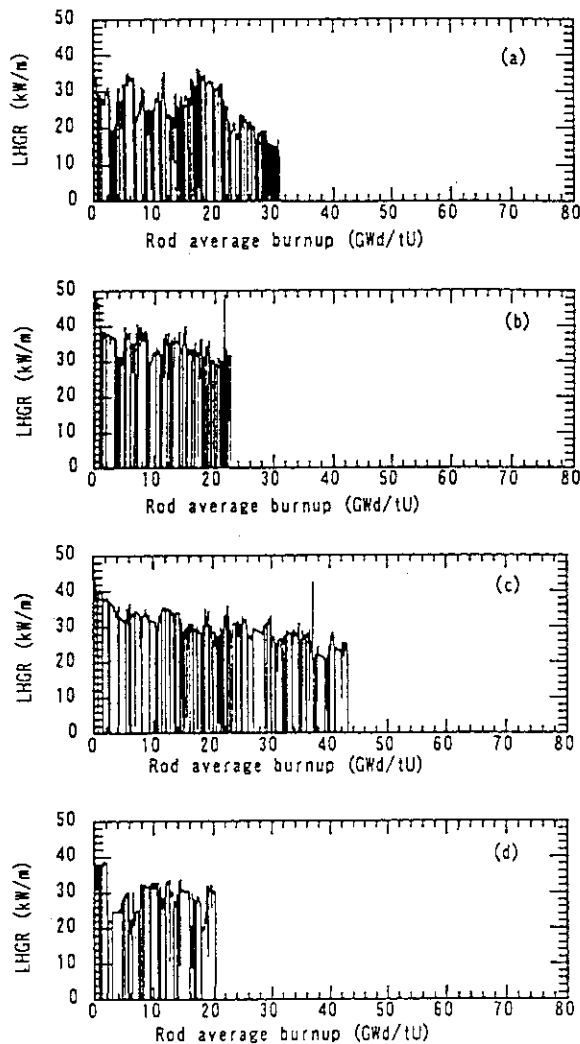


Fig. 1 Power history of 8x8 and 9x9 type fuel rods.

solution in the matrix. The uranium was enriched to 3.9, 8, 11 wt% ^{235}U for 8x8 type fuel rods, 9x9 type fuel rods and small diameter fuel rods, respectively. The gadolinium (^{160}Gd) used here was depleted in the high neutron cross section isotopes to avoid uncertainties in the power estimation.

The powder and additives were blended mechanically and pressed into green pellets, having a density of about 50 %TD. Most of the green pellets were sintered at about 2000 K for a few hours in dry or wet H_2 gas. Undoped large grained UO_2 and 10 wt% Gd_2O_3 added large grained UO_2 pellets were sintered in 60 %CO - 40% CO_2 mixed gas and reduced in N_2 - 2 % H_2 gas.

Grain diameter was evaluated by the linear

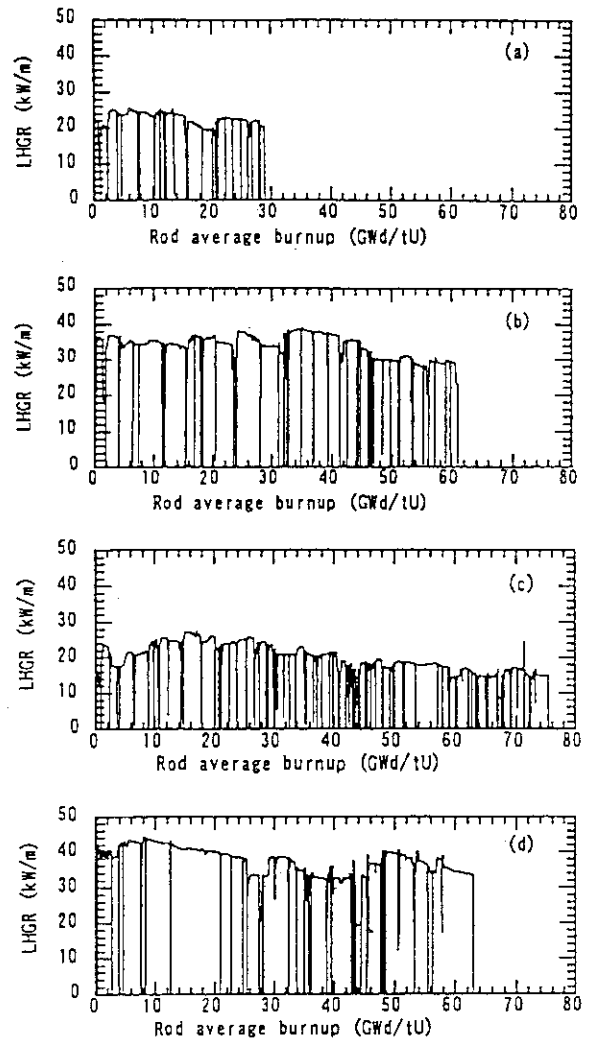


Fig. 2 Power history of small diameter fuel rods.

intercept method. The average linear intercept was converted to the three dimensional value with a multiplier of 1.56 and the value is shown in table 1.

B. Irradiation history

The fuel rods equipped with in pile instrumentation were loaded into two rigs, one of which was for 8x8 or 9x9 type fuel rods and the other for small diameter fuel rods. The former rig had two clusters and six rods could be loaded in each cluster. The latter had three clusters and again six rods could be loaded in each.

Fuel rods were irradiated at a power level of about 20 to 40 kW/m up to a rod average burnup of 43 GWd/t for 9x9 type fuel rods and a rod average

burnup of 75 GWd/t for small diameter fuel rods. Typical power histories are shown in figs. 1 and 2. During irradiation, rod internal pressure was measured by a pressure gauge, which signal was acquired through a transducer. The data from the pressure gauge were finally corrected by PIE data. Fuel rods were retrieved after reaching the required burnup. After the irradiation tests, most of the fuel rods were shipped to the NFD hot laboratory for PIEs.

C. Post-irradiation examinations

FGR during base irradiation was evaluated by pin puncture tests and retained gas measurements by a dissolution method into nitric acid. Swelling during base irradiation was evaluated by profilometry and density measurements. The profilometry was done at four orientations of 0, 90, 180 and 270 degrees. The results were averaged to obtain a rod diametral profile. Fuel cladding expansion was estimated by subtracting the diameter value at the plenum region of irradiated fuel from the results. Post-irradiation annealing tests were also carried out for 8x8 samples of 27 GWd/t and small diameter samples of 34 and 60 GWd/t to evaluate FGR and swelling during temperature transient. Details of the annealing test have been described elsewhere.¹⁴ Samples were heated up to 2073 K in about 20 min and kept at that temperature for 5 hours. FGR was determined by continuous measurement of the β -activity of ^{85}Kr released from a sample during the annealing test. After the experiment, a ceramographic examination was made to evaluate bubble swelling during the annealing test.

Ceramography, SEM and TEM studies were performed to evaluate the microstructural change induced by irradiation. In particular, TEM using an ion thinning method was done for small diameter samples of 60 GWd/t to evaluate quantitatively effects of the microstructure as fabricated on resistance of pellets re-crystallization. Details of the TEM experiments have been described elsewhere.¹⁵

D. Steady state creep rate and thermal diffusivity measurements

Steady state creep rate and thermal diffusivity of almino-silicate added UO_2 pellets were measured by using un-irradiated samples. Creep rate was measured by a uniaxial constant loaded compressive

method. The experiments were carried out at a stress of 12MPa in the range of 1700 to 1820 K in N_2 -8% H_2 . Thermal diffusivity was measured by a laser flash method. Experimental details of the thermal diffusivity measurements have been described elsewhere.¹⁶

III. RESULTS AND DISCUSSIONS

A. FGR and swelling during base irradiation

1. FGR

FGR during base irradiation is shown for 9x9 type UO_2 fuel rods with several modified pellets in fig. 3. The power history of these rods is shown in fig. 1(c). FGR is shown in figs. 4 and 5 for the small diameter rods. The power histories of these rods are shown in figs. 2(b) and (c), respectively. In figs. 4 and 5, the data indicated by solid marks at the highest burnup were obtained by PIEs. All large grained fuels show lower FGR during base irradiation than the standard fuels as shown in figs. 3 to 5. Relative FGR of improved pellets to those of pellets with standard grain size was calculated from PIE data and is plotted against reciprocal grain diameter in fig. 6. As shown in this figure, FGR clearly drops with increasing grain size at both burnups of 30 and 60 GWd/t. Fission gas release to birth ratio (R/B) can be expressed approximately by the following equation,¹⁷

$$(R/B) \propto D^{1/2} t^{-1}, \quad (1)$$

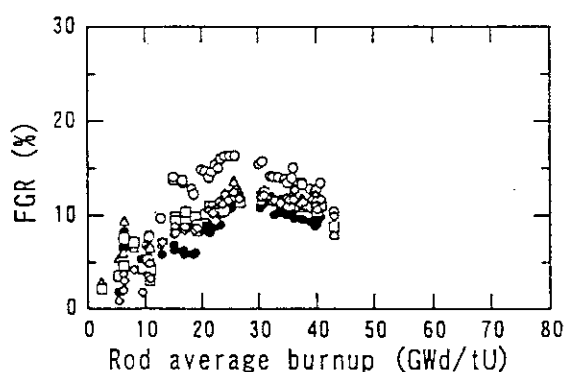


Fig.3 Fission gas release for 9x9 type fuel rods irradiated up to 43 GWd/t.

○: Standard, ●: Un-doped large grained, △: TiO_2 added large grained, □: Al-Si-O added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

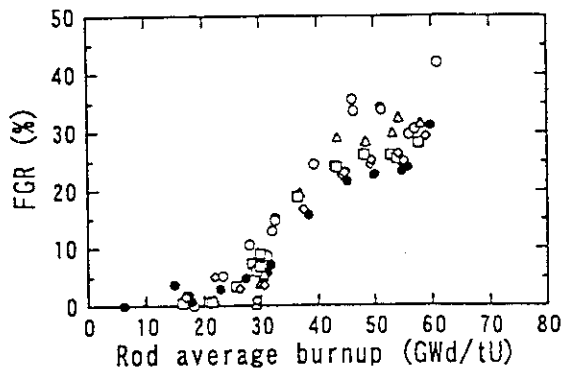


Fig. 4 Fission gas release for small diameter fuel rods irradiated up to 60 GWd/t.

○: Standard, ●: Undoped large grained, △: TiO_2 added large grained, □: Al-Si-O added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

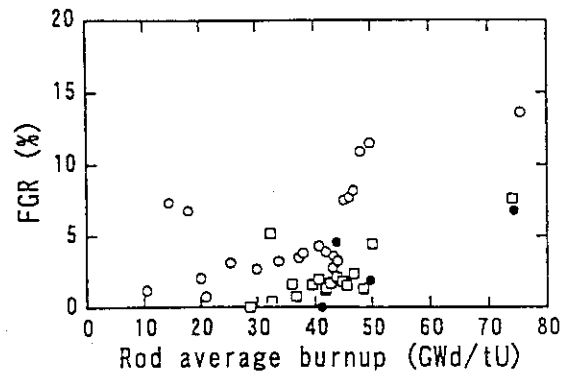


Fig. 5 Fission gas release for small diameter fuel rods irradiated up to 75 GWd/t.

○: Standard, ●: Undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained.

where D is the effective diffusion coefficient and d , a diameter of Booth's equivalent sphere. In this study, it is assumed that d is equal roughly to the grain diameter as-fabricated. Simply stated eq.(1) means FGR was expected to be in an inverse proportion to grain size. However, the data were not so. This inconsistency may be mainly caused by a limitation of the region where enlarging grain size is effective for FGR suppression. In the center region of the pellets, almost all of the fission gas has been released

from the pellet, and in the periphery, almost all of the fission gas has been retained in the pellet even if it has been released from the matrix.¹⁸ Therefore, enlarging grain size can be considered to affect FGR suppression only in a relative radius region of $r/r_0 \approx 0.4$ to 0.7 in the case of this study. Moreover, eq.(1) is only suitable below a local FGR of 10%¹⁷ and at higher FGRs, the grain size effect becomes small. Considering these corrections, FGR for the large grained pellets in this study is expected to be about 60 % that for standard UO_2 .

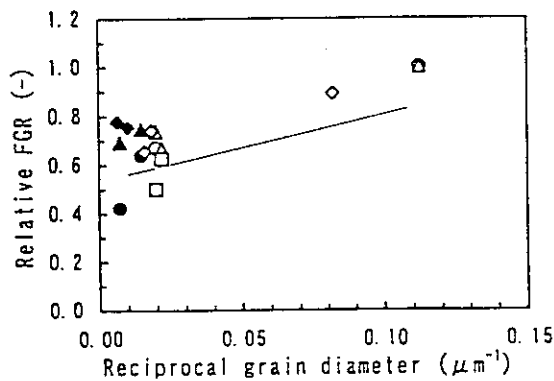


Fig. 6 Grain size dependence of relative FGR.

○ and ●: 31 GWd/t, △ and ▲: 60 GWd/t, □ and ■: 75 GWd/t, ◇ and ◆: 43 GWd/t, Open marks: standard, undoped large grained and Al-Si-O added large grained, Solid marks: TiO_2 added large grained and Ti-Si-O added large grained.

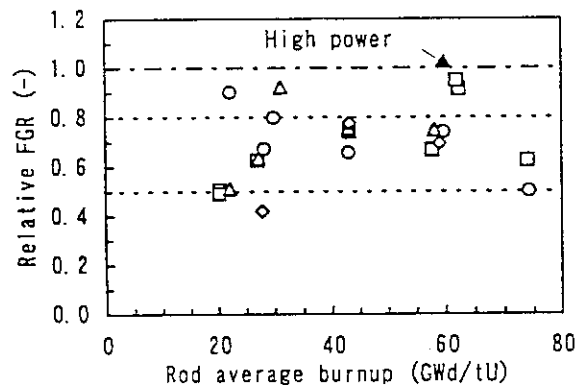


Fig. 7 Dependence of rod average burnup on relative FGR.

○: undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, △: TiO_2 added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained. Data marked with an arrow correspond to rods irradiated under high power.

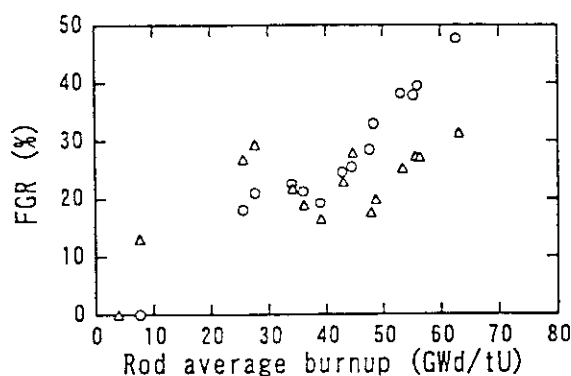


Fig. 8 FGR of small diameter rods containing UO_2 with 10 wt% gadolinia.

○: Standard grain, △: Al-Si-O added large grained.

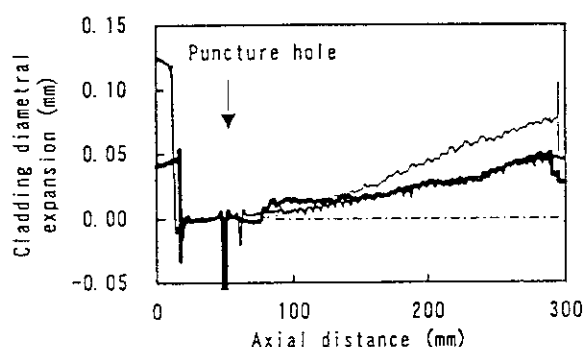


Fig. 9 Profilometry results for small diameter fuel rods irradiated to rod average burnup of 75 GWd/t.

— : Standard, — Undoped large grained,
— : Al-Si-O added large grained.

The relative FGRs are plotted against rod average burnup in fig. 7. FGRs of large grained fuels are about 50 to 80 % of that of the standard, except for a few data, *i.e.*, those for the rods experiencing a high temperature. Enlarging grain size is considered to be effective for FGR suppression up to a rod average burnup of 75 GWd/tU.

For gadolinia added pellets, grain size effect on FGR suppression is shown in fig. 8. The FGRs of large grained UO_2 fuel with 10 wt% gadolinia are less than that of 10 wt% gadolinia added UO_2 with standard grain size.

2. Swelling

Cladding expansions are shown for rods

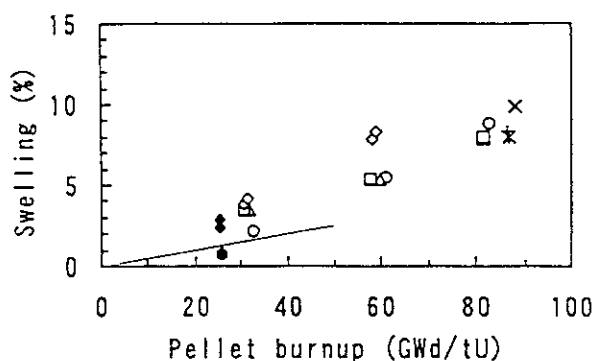


Fig. 10 Pellet swelling during steady state irradiation.

○: Standard, △: Undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, ◇: Ti or Nb added, ×, * +: estimated from profilometry data for standard, Undoped large grained, Al-Si-O added large grained. Open marks: small diameter fuel rods, Solid marks: 8x8 type fuel rods.

irradiated to a rod average burnup of 75 GWd/t with standard, undoped large grained and alumino-silicate added large grained pellets in fig.9. The cladding expansions of rods with large grained pellets are smaller than that of standard rod, indicating that enlarging grain size suppresses PCI due to pellet swelling reduction. In fig. 10, pellet swelling is shown for small diameter rods. The pellet swelling was evaluated from density measurement results for the samples of 30, 34 and 60 GWd/t burnups and from cladding expansion data for the sample of 88 GWd/t. Solid marks indicate the data for 8x8 type fuel rods and open marks are the data for small diameter fuels. Solid line indicates solid swelling for the fuels irradiated in a commercial reactor. The results for small diameter fuels are higher than the solid line even at lower burnup. This is considered to be caused by gas bubble swelling during irradiation. Up to 60 GWd/t, no obvious difference appears in pellet swelling among standard, undoped large grained and alumino-silicate added large grained pellets. At 88 GWd/t, however, standard pellet shows higher swelling than both large grained pellets. These results indicate that enlarging grain size is effective for bubble swelling suppression, and consequently reduces PCI, especially at high burnup. On the other hand, large grained pellets with titanium and niobium atoms show a little larger swelling than

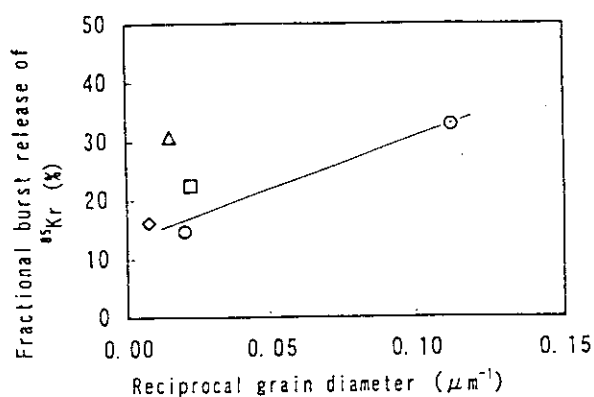


Fig. 11 Grain size dependence of fractional burst release of ^{85}Kr during post-irradiation annealing tests. (Small diameter rods irradiated up to 60 GWd/t).
○: Standard and undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, △: TiO₂ added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

undoped large grained and alumino-silicate added large grained pellets. This is because bubble swelling is enhanced by titanium and niobium ion dissolved in UO₂ matrix.

From the results of FGR and swelling during base irradiation, it was concluded that enlarging grain size was effective for FGR and swelling suppression during irradiation under the steady state condition.

B. Fission gas release and bubble swelling during temperature transient

1. FGR

The fractional burst release of ^{85}Kr during post-annealing tests is shown for the samples irradiated up to 60 GWd/t in fig. 11. The trend in results is quite similar to that for the sample of 30GWd/t.⁶ The burst release of fission gas is roughly proportional to reciprocal grain diameter for undoped UO₂ pellet. The data for alumino-silicate added UO₂ pellet are similar to those undoped large grain pellet. On the other hand, TiO₂ added pellets show very large burst release. In this type of pellets, it has been reported that titanium ion dissolves in UO₂ matrix and enhances cation and fission gas diffusions¹⁴ at lower burnup. From the present results, it was confirmed that the FGR can be reduced by enlarging grain size and that the effect of titanium on fission gas enhancement is maintained in the pellets irradiated to

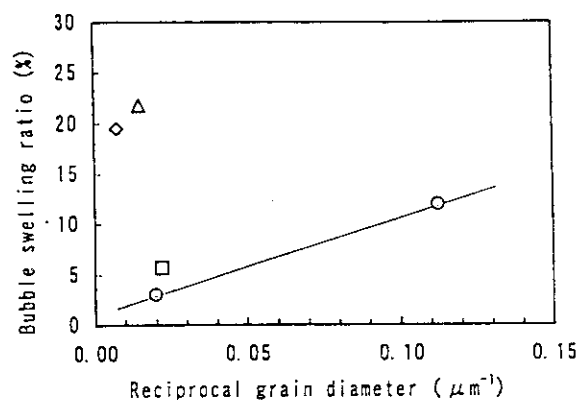


Fig. 12 Grain size dependence of bubble swelling during post-irradiation annealing tests. (Small diameter rods irradiated up to 60 GWd/t).
○: Standard and undoped large grained, □: Al-Si-O added large grained, △: TiO₂ added large grained, ◇: Ti-Si-O added large grained.

higher burnup.

2. Swelling

The bubble swelling during temperature ramp is shown for the samples irradiated up to 60 GWd/t in fig. 12. The results are quite similar to the previous values.⁶ The bubble swelling is in proportion to reciprocal grain diameter for undoped UO₂ and alumino-silicate added UO₂ pellets, while, titania or titania-silicate added pellets show very large swelling. This result also shows that the titanium addition enhances fission gas and vacancy migration.

From the results of fission gas burst release and bubble swelling during temperature ramp, it was concluded that enlarging grain size is effective for FGR and swelling reductions during a transient and that cation accelerator (titanium, niobium etc.) addition in the fabrication process is not suitable for transient fuel performance.

C. Creep rate and thermal diffusivity of alumino-silicate added UO₂ pellets

The steady state creep rate at low stress level is in an inverse proportion to the square of the grain diameter.²⁰ Therefore, enlarging grain size by four times the grain size of the standard gives a creep rate of about one tenth that for standard UO₂. Although the grain size of alumino-silicate added pellet (40 μm) is three times larger than that of standard (13

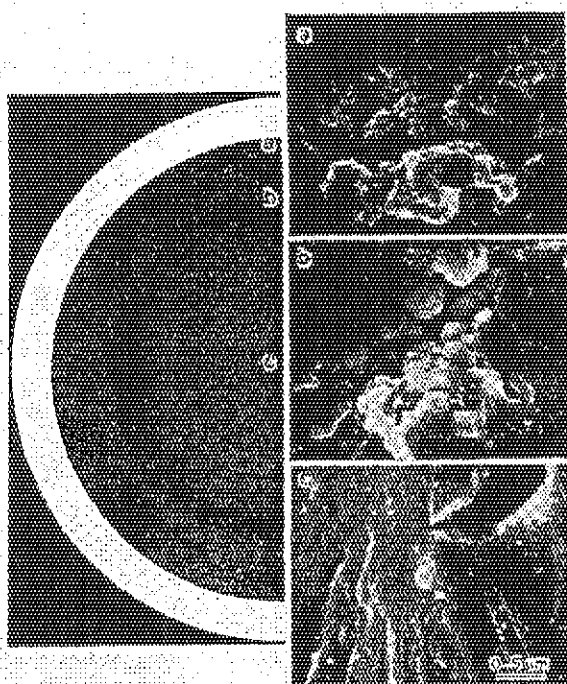


Fig. 13 Ceramograph and SEM images for standard pellet of small diameter rod irradiated to 60 GWd/t.

μm), the former shows a similar steady state creep rate to the latter. In other words, it becomes possible to enlarge grain size by alumino-silicate addition without an adverse effect on creep rate.

In order to determine the effect of alumino-silicate addition on thermal conductivity, thermal diffusivity of unirradiated 2500 ppm alumino-silicate added pellets was measured and found to be the same as the reported value for undoped UO_2 .¹⁶ Since heat capacity of the 2500 ppm alumino-silicate added pellet is considered to be similar to that for undoped UO_2 , the effect of alumino-silicate addition on thermal conductivity was concluded to be negligible.

D. Microstructural change induced irradiation

A ceramograph is shown in fig.13 for standard pellets of small diameter fuel rod irradiated up to 60 GWd/t. Dark zone is observed not only in the pellet periphery, but also in the mid radius region. In the dark zone, many intragranular bubbles and subdivided grains appear, similar to those reported in the literature.³ These structures are not observed in the small diameter fuel samples irradiated to 30GWd/t. The microstructure was studied in detail by TEM.

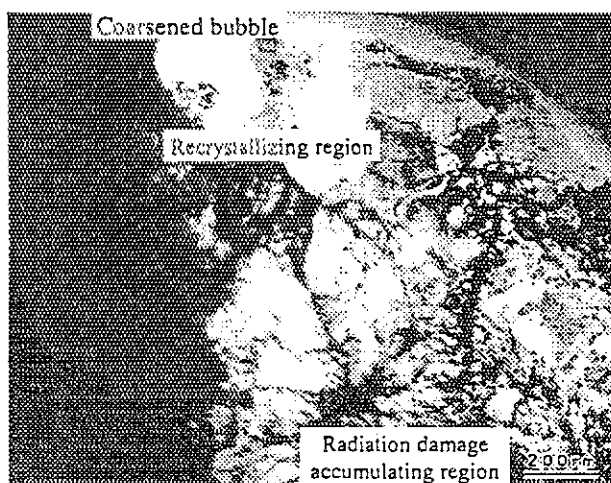


Fig. 14 TEM image of pellet periphery for standard UO_2 of small diameter rod irradiated to 60 GWd/t.

A typical TEM image for standard pellet is shown in fig.14. There are coarsened bubbles, and recrystallized grains surrounding the coarsened bubble and many tangled dislocations. The same structures are observed in the mid radius dark zone. This mid radius dark zone may be due to a high fission density. The mechanism of microstructural change is still unclear, but a proposal has been made.²¹ A recrystallization ratio R was defined by Nogita and Une,²¹

$$R = \frac{A_r}{A_{\text{tot}} - A_b}, \quad (2)$$

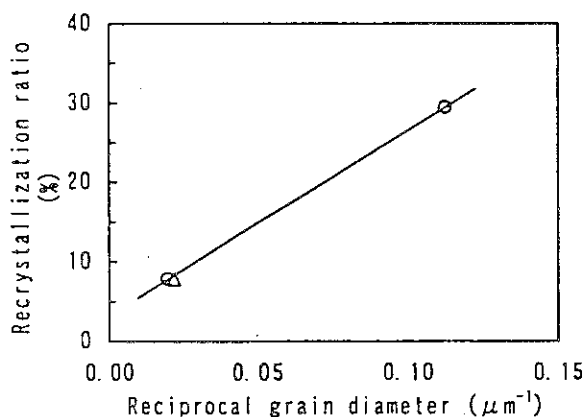


Fig. 15 Grain size dependence of recrystallization ratio for small diameter samples irradiated to 60 GWd/t.²¹

○: Standard and undoped large grained, Δ: Al-Si-O added large grained.

where A_r is area of recrystallized grains in TEM images; A_{tot} , total area examined by TEM; A_b , area of bubbles. In fig. 15, the results are summarized for the pellets (standard, undoped large grained and alumino-silicate added large grained pellet) of small diameter fuel rods irradiated to 60 GWd/t against reciprocal grain diameter. The recrystallization ratio is in proportion to the reciprocal of the grain diameter, suggesting that enlarging grain size suppresses the microstructural change regardless of alumino-silicate addition. This is considered possible because a large grain has better resistance to accumulation of irradiation damage, which causes lattice expansion¹⁵, and because the effect of alumino-silicate addition on matrix characteristics is negligible.⁶

IV. CONCLUSIONS

Fuel performance was studied by irradiation, post-irradiation and out-of-reactor examinations for several types of modified UO_2 and gadolinia added UO_2 pellets with controlled microstructure. Enlarging grain size was effective for suppression of fission gas release and swelling both during steady state irradiation and temperature transient up to a rod average burnup of 75 GWd/t. On the other hand, additives enhancing cation diffusion, which were added to UO_2 powder during fabrication process to enlarge grain size, accelerated fission gas release and swelling up to high burnup, especially during temperature ramp. Alumino-silicate addition enhanced creep rate of enlarged grain UO_2 . This suggested that alumino-silicate addition was effective for reducing pellet cladding interaction. In high burnup fuel, some microstructural change was observed. The recrystallization area in standard grain UO_2 was wider than in large grained UO_2 , indicating that large grained UO_2 had higher resistance to microstructural change.

ACKNOWLEDGMENTS

This study was carried out through the cooperation of the Nippon Nuclear Fuel Development Co. Ltd., the Japanese Joint Utility Group (Tokyo, Tohoku, Chubu, Hokuriku, and Chugoku Electric Power Corporations and Japan Atomic Power Co.), Toshiba Corp., Hitachi Ltd., GE Nuclear Energy and CRIEPI.

The authors wish to acknowledge the aid of the many persons who participated in it.

REFERENCES

1. H. J. Matzke et al., *J. Nucl. Mater.* **166**(1989)165.
2. S. Koizumi et al., *Proc. IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Performance at High Burnup for Water Reactors*, Nykoping (1990)102.
3. K. Une et al., *J. Nucl. Mater.* **188**(1992)65.
4. N. E. Cunningham et al., *J. Nucl. Mater.* **188**(1992)19.
5. K. Nogita and K. Une, *Nucl. Instr. Meth.* **B91**(1994)301.
6. T. Kubo et al., *Proc. of 1994 International Topical Mtg. on Light Water Reactor Fuel Performance*, ANS, West Palm Beach, Florida, April 17 - 21 (1994).
7. T. W. Zawidzki et al., *J. Amer. Ceram. Soc.* **67**(1984)361.
8. W. I. Staurt and R. B. Adams, *J. Nucl. Mater.* **58**(1975)201.
9. R. N. Singh, *J. Nucl. Mater.* **64**(1977)174.
10. J. A. Turnbull, *J. Nucl. Mater.* **50**(1974)62.
11. H. Zimmermann, *J. Nucl. Mater.* **75**(1978)154.
12. K. C. Radford and J. M. Pope, *J. Nucl. Mater.* **116**(1983)305.
13. J. B. Ainscough et al., *J. Nucl. Mater.* **52**(1974)191.
14. K. Une et al., *J. Nucl. Sci. Technol.* **30**[3](1993)221.
15. K. Nogita and K. Une, *J. Nucl. Sci. Technol.* **31**[9](1994)929.
16. M. Hirai, *J. Nucl. Mater.* **173**(1990)247.
17. A. H. Booth, CRDC-721 (1958).
18. R. Yuda et al., to be published in *J. Nucl. Mater.*
19. K. Une et al., *Proc. of 1997 International Topical Mtg. on Light Water Reactor Fuel Performance*, ANS, Portland, Oregon, March 2 - 6 (1997).
20. P. E. Bohaboy et al., GEAP-10054 (1969).
21. K. Nogita et al., *Proc. of International Workshop on Interfacial Effects in Quantum Engineering Systems (IEQES-96)*, August 21-23, Mito, Japan, (1996), to be published in *J. Nucl. Mater.*

6. HBWRにおけるBWR用混合酸化物燃料(MOX)の照射挙動に関する研究 Irradiation Test of BWR-MOX Pellets in HBWR

(日本核燃料開発株)

6.1 研究目的

BWR燃料仕様の混合酸化物燃料をHBWRで照射し、その健全性を確認すると共に、照射挙動データの蓄積を図る。

6.2 研究内容

燃料棒寸法の異なるBWR用混合酸化物燃料を選定し、炉内計装を取り付けてHBWRで最大約7年に涉って照射を行い、FPガス放出等に係わるデータを取得する。

照射リグ内の下部/上部クラスタにはMOXペレットあるいは比較・対照用の UO_2 ペレットが装荷された照射用短尺燃料棒がそれぞれ6本ずつ配置される(Fig.6-1)。照射燃料棒の仕様をTable 6-1に示す。照射リグは2体照射され、それぞれのリグには異なる外径のペレット(8×8仕様/9×9仕様)が装荷されている。リグには中性子検出器(ND)が計装される他、照射燃料棒には燃料棒内圧計(PF)・熱電対中心温度計(TF)及び熱膨張中心温度計(ET)が計装されており(Fig.6-2)、出力分布・燃料中心温度・燃料棒内圧を計測する。また、照射された燃料棒は照射後試験に供する。FPガス放出開始前後の燃料の状態を調べるため、一部の燃料棒については約3年照射された時点で照射後試験に供する。

6.3 成果

(1) 試験燃料棒の製作

平成7年2月にMOXペレットをBNFLからIFEシェラー研究所に輸送した。当研究所でMOX及び UO_2 試験燃料棒を製造した後ハルデン炉に輸送し、照射リグ2体(IFA-594/595)を製作した。

(2) 照射

平成7年7月7日に照射を開始し、平成8年9月には平均燃焼度約7GWd/tに達した。

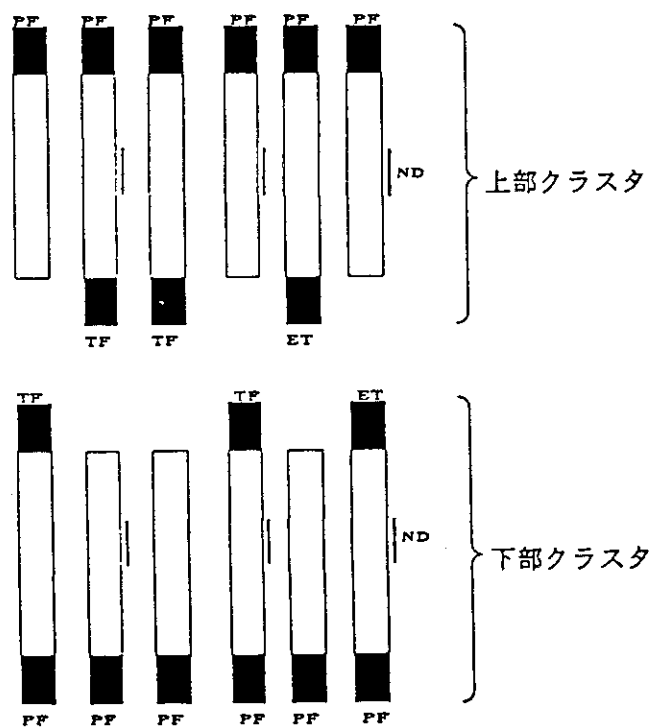
(3) 計測データ

燃焼度が未だ低いため、計測データにFPガス放出を示すような顕著な変化は表れていない。

Table 6-1 Specification of fuel rods

	MOX燃料棒	UO ₂ 燃料棒
ウラン濃縮度(wt%)	劣化ウラン	11
Pu _x 濃度(wt%)	8	—
被覆管材質	ジルカロイ-2 (ジルコニウムライナ)	
被覆管外径(mm)	2種類(12.3及び11.2)	
燃料有効長(mm)	250	
ペレット外径(mm)	2種類(10.4及び9.6)	
計装	燃料棒内圧計、熱電対、 熱膨張温度計	

MOX: ウラン・プルトニウム混合酸化物

Pu_x: 核分裂性プルトニウム

PF: 燃料棒内圧計 TF: 熱電対
 ET: 熱膨張温度計 ND: 中性子検出器

Fig.6-2 Rod configuration

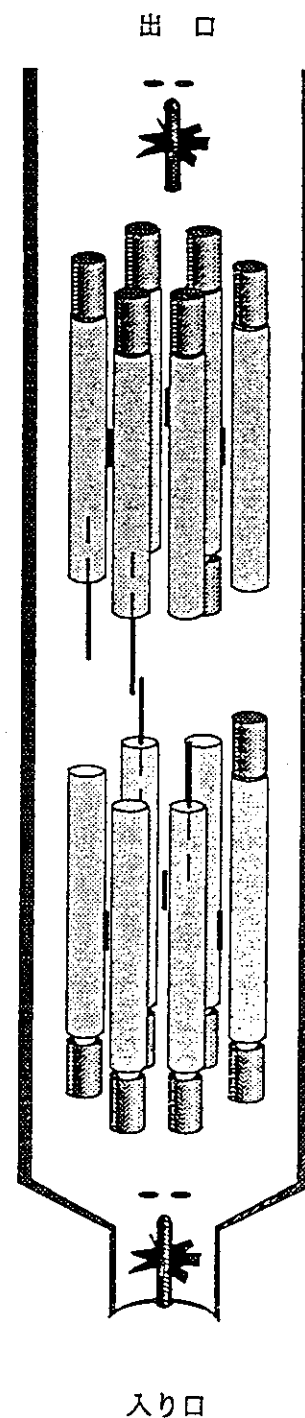


Fig.6-1 Irradiation test rig

7. 混合酸化物燃料(MOX)の照射特性に関するハルデン炉での照射試験 Irradiation Study of MOX Fuel Behavior in HBWR

(三菱重工業(株))

7. 1 研究目的

PWRにおけるMOX燃料の高燃焼度利用を目指し、ハルデンHBWRにおいて海外加工メーカーで製造したMOX燃料を照射し、MOX燃料棒の照射挙動について評価することを目的とする。

7. 2 研究内容

(1) IFA-596

燃料ペレットの外径を若干細く(5.9mm)したBritish Nuclear Fuels (BNFL) 製造のMOX燃料棒3本およびレファランス用のUO₂燃料棒3本を、平成5年6月より照射開始した。燃焼度約80GWd/tを目標に平成11年中頃まで照射する。

供試MOX燃料のPu富化度は6.7%Pufである。

中心温度(ET)、燃料棒内圧(PF)および燃料スタック長(EF)のセンサーを燃料に取付、照射中の燃料挙動データを採取した。

照射リグの構造をFig. 7-1に、試験燃料棒マトリクスをFig. 7-2に示す。

本試験はPWR5電力委託研究として実施しているものである。

(2) IFA-609

PWR用17×17型燃料と同等の仕様で製造されたMOX燃料棒8本、およびレファランス用のUO₂燃料棒3本を、平成7年7月より照射開始した。燃焼度約70GWd/tを目標に平成13年前半頃まで照射する。

供試MOX燃料はBNFL製およびCOMMOX製であり、Pu富化度は6.1%Pufである。

中心温度(ET)、燃料棒内圧(PF)および燃料スタック長(EF)のセンサーを燃料に取付、照射中の燃料挙動データを採取した。

照射リグの構造をFig. 7-3に、試験燃料棒マトリクスをFig. 7-4に示す。

本試験はPWR5電力/原子燃料工業との共同研究として実施しているものである。

7. 3 成果

(1) IFA-596

平成9年4月末までの照射により、目標燃焼度約60GWd/tを達成する予定である。燃料中心温度の履歴および燃料棒平均線出力の履歴をFig. 7-5に示す。下記の結果が確認されており、その成果については1997年3月、米国オレゴン州ポートランドで開催されたAmerican Nuclear Society主催のInternational Topical Meeting on LWR Fuel Performanceにおいて発表した。発表論文を本章の末尾に添付7-1として添付する。

- ・燃料中心温度

燃料中心温度は同一出力で比較した場合、MOX燃料の中心温度は約870°Cと、UO₂燃料棒の約830°Cに比べ高い。これはペレット熱伝導率とペレット径方向出力分布の違いによると考えられる。

三菱燃料棒設計コード (FINE) によりMOX燃料棒の中心温度を評価した結果、FINEコードは安全側に評価することが確認された。

- ・燃料スタック長

スタック長の減少から評価するとMOX燃料はUO₂燃料より大きい。供試ペレットは、UO₂燃料では数10 μ m以上の比較的大きな気孔が多く見られるのに対し、MOX燃料の気孔はペレットマトリクス中にはほぼ均一に分布しており、顕著に大きな気孔はみられない特徴を有している。このペレット微細組織の違いは、製造に用いられた粉末特性の違いによるものであるが、この違いにより、UO₂燃料とMOX燃料のスタック長変化挙動（緻密化挙動）のに差異が生じたものと考えられる。一方、スエリング挙動に差異はみられない。

- ・内圧

MOX燃料棒ではFPガス放出によると考えられる内圧上昇がみられている。これは、前述の燃料温度が高いこと等が主因であると考えられる。今後もウラン燃料の挙動と併せて継続検討していく。

(2) IFA-609

平成8年11月末までの照射により、燃焼度約13GWd/tを達成した。燃料中心温度の履歴および燃料棒平均線出力の履歴をFig. 7-6に示すが、計装の一部に不調があり、新しい照射リグに燃料棒を移し替える予定である。主な結果として以下が確認された。

- ・燃料中心温度

MOX燃料の出力が高いことにより、MOX燃料棒の中心温度はUO₂燃料に比べ約100～150°C高い。

- ・燃料スタック長

3データで計装異常があるが、特異なものはみられていない。

- ・燃料棒内圧

1データで計装異常があるが、特異なものはみられていない。

- ・燃料棒伸び

計装不調によりデータ未取得である。

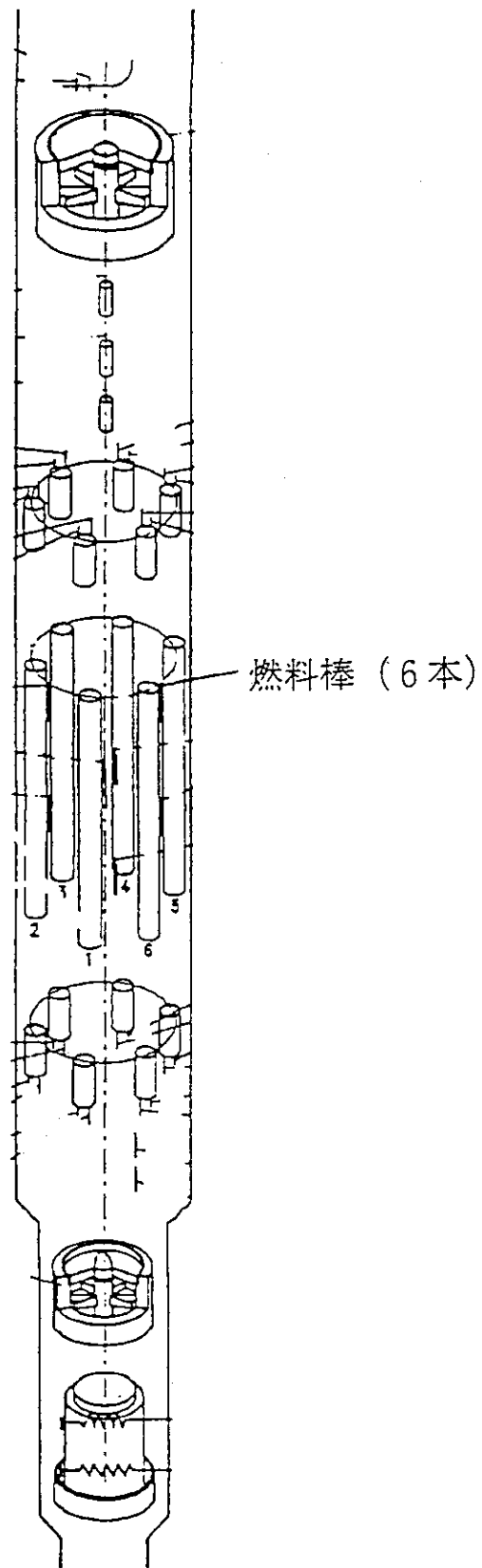
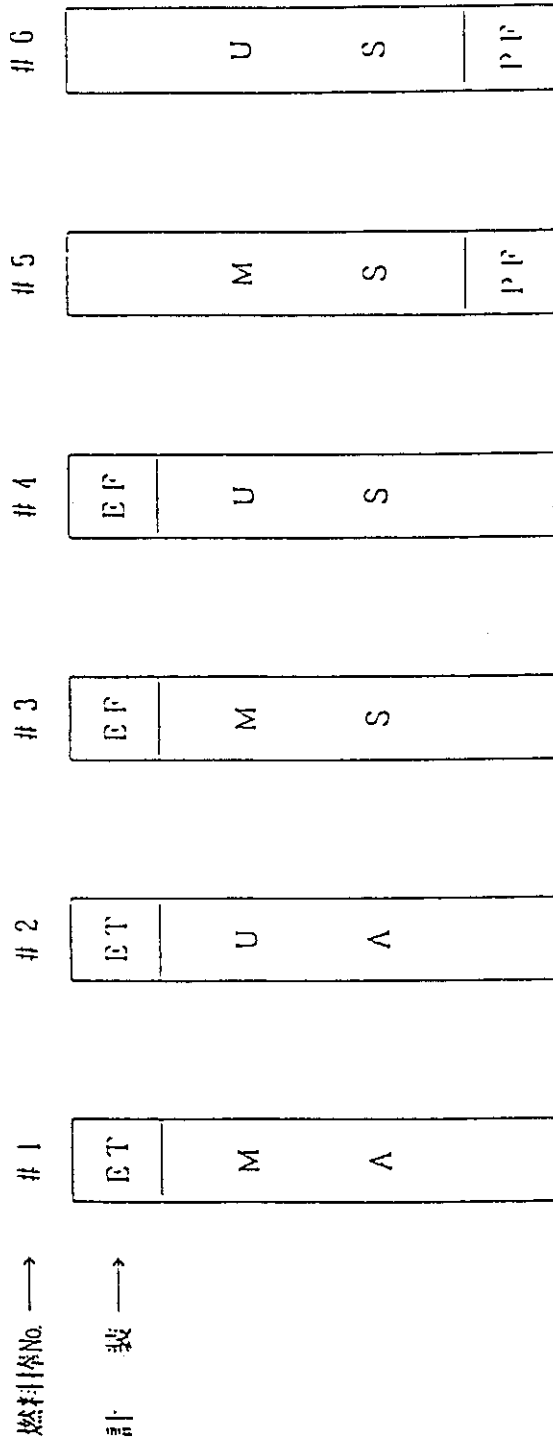


Fig. 7-1 IFA-596照射リグ概略構造



(注1) 計装種類

ET : 燃料中心温度
EF : 燃料スツック長
PF : 燃料棒内圧

(注2) 燃料棒種類

M : MOX燃料, U : UO₂ 燃料
A : 中空ペレット, S : 中実ペレット

Fig. 7-2 IFA-596試験燃料棒マトリクス

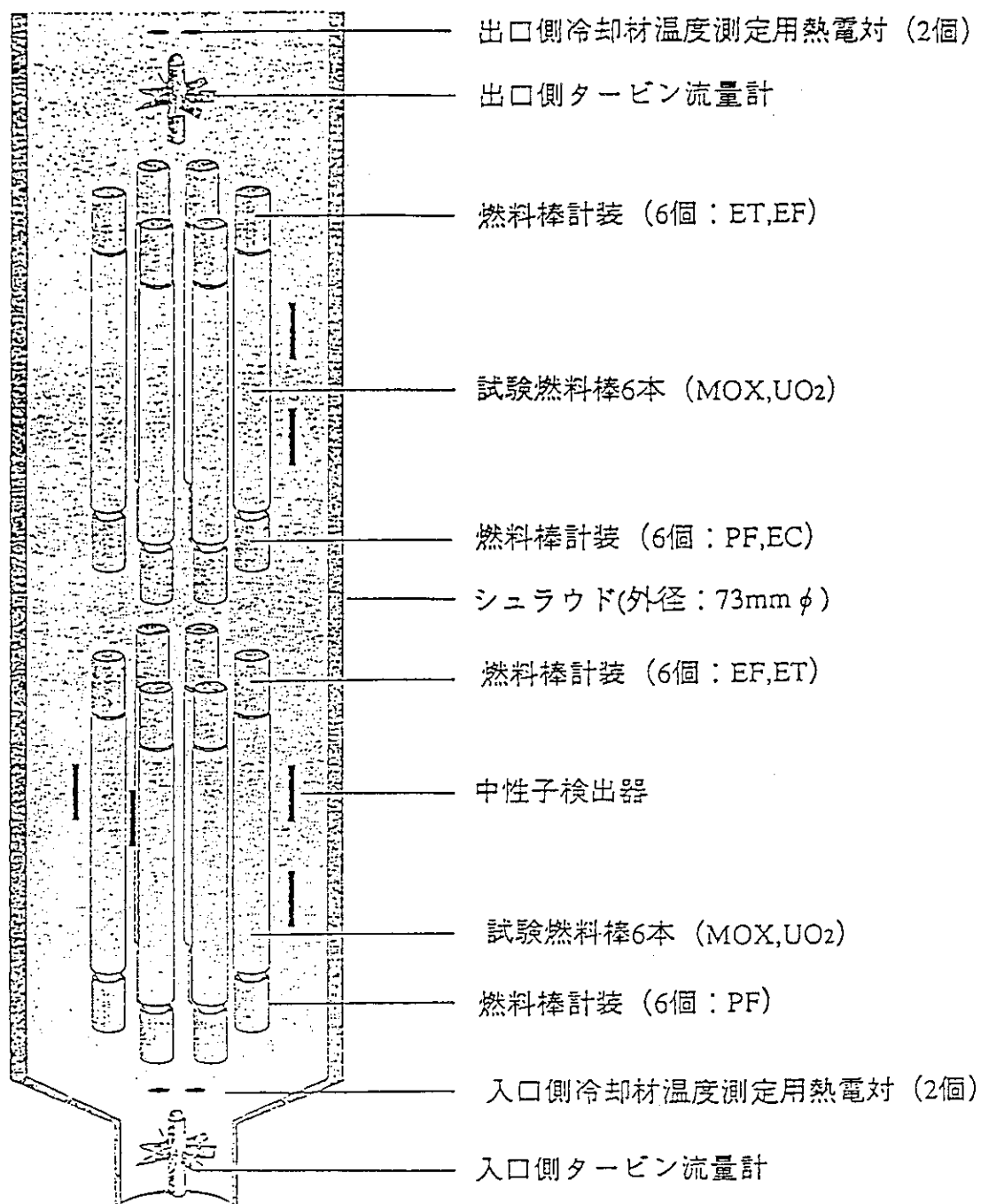


Fig. 7-3 IFA-609照射リグ概略構造

(上部クラスタ)

ET	ET	ET	EF	EF	EF
SBR	MIMAS	UO ₂	SBR	MIMAS	UO ₂
MOX	MOX		MOX	MOX	
PF	PF	PF	EC	EC	EC

(下部クラスタ)

ET	ET	ET	EF	EF	EF
SBR	MIMAS	UO ₂	SBR	MIMAS	UO ₂
MOX	MOX		MOX	MOX	
PF	PF	PF	PF	PF	PF

PF : 内圧

EF : 燃料有効長伸び

ET : 燃料温度

EC : 燃料棒伸び

Fig. 7-4 IFA-609試験燃料棒マトリクス

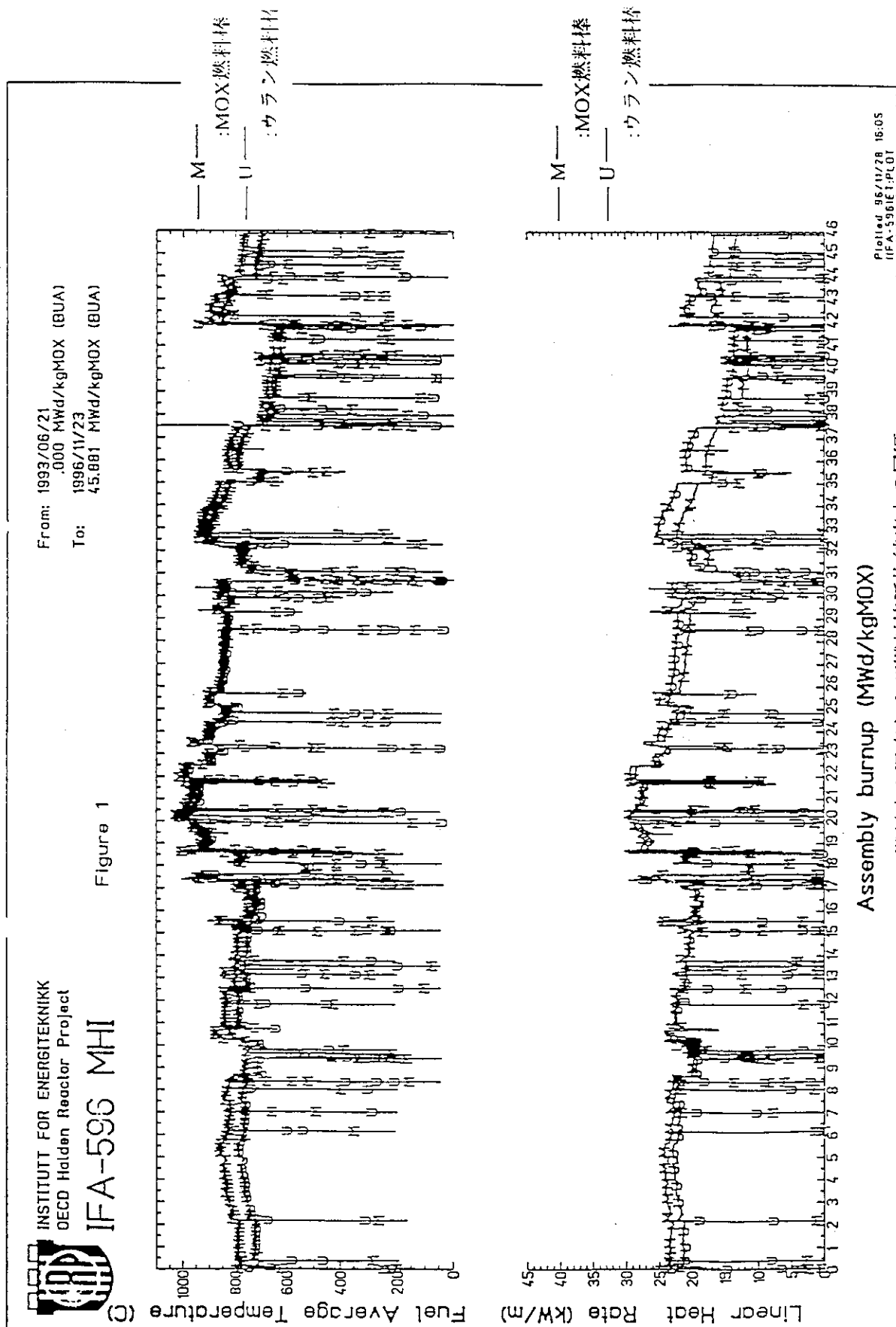


Fig. 7-5 IFA-596燃料中心温度および燃料棒平均線出力の履歴

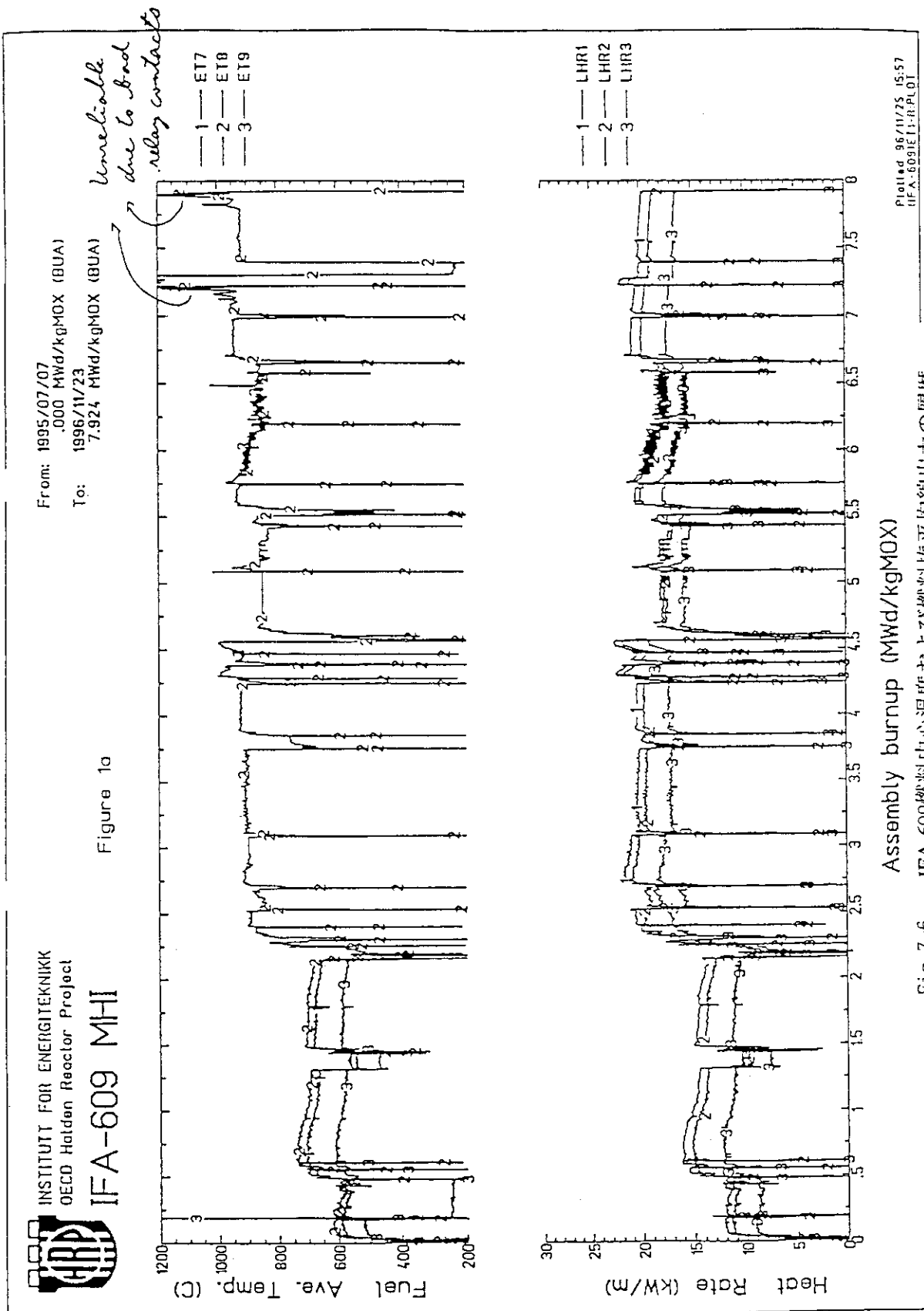


Fig. 7-6 IFA-609燃料中心温度および燃料棒平均線出力の履歴

添付 7-1

S.Doi et al.,

High Burnup MOX Fuel and Fuel Rod Design Improvement

1997 International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance

Portland, Oregon March 2-6, 1997

HIGH BURNUP MOX FUEL AND FUEL ROD DESIGN IMPROVEMENT

S.Doii
Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.
1-1-1, Wadasakic-ho, Hyogo-ku,
Kobe 652, Japan
(078)672-5732

K.Yamate
The Kansai Electric Power Co., Inc.
3-3-22, Nakanoshima, Kita-ku,
Osaka 530-70, Japan
(06)-441-8821

ABSTRACT

Plutonium from re-processing plans to be used in PWR plants. In PWR usage, Plutonia is blended with Urania powder to be mixed oxide (MOX) fuel. Pu content is about 13wt% total Pu and within these low Pu content, characteristics and behavior of MOX fuel is considered to be almost equivalent to ones of UO₂ fuel which has many experiences. However thermal conductivity and melting point of MOX pellet drops down with Pu content and slightly more fission gas might be released from MOX pellet and these features are considered adequately in MOX fuel rod design. Fission gas release behavior is one of the most important and is strongly affected with Pu in homogeneity rather than Pu content. Some more homogenized MOX irradiation experiments have been under going in order to grab MOX fuel behavior fabricated by improved current process and to exclude such a conservatism.

I. INTRODUCTION

MOX(Mixed-OXide) fuel used in LWR has low Pu content and therefore MOX fuel characteristics is very similar to ones of UO₂(Uranium de-oxide). But MOX fuel has several different features from UO₂ fuel. One is that both of melting point and thermal conductivity drop down with Pu content. The other is that fission gas tends to be released from pellet slightly larger than UO₂. The latter is very related to MOX fuel fabrication process. Generally, MOX fuel is fabricated from PuO₂ powder and UO₂ powder and at first step of process these powders are blending mechanically. As the result, some PuO₂-riched regions (Pu spot) are observed ceramographically. In such regions, power, temperature and burnup are higher than the surrounding homogenous (U,Pu)O₂ region and it makes

more fission gas release from there. MOX pellet fabricated by the old process has more Pu spots but recently PuO₂ powder and UO₂ powder are very well-blended under the current fabrication process and then MOX has fewer Pu spots.

In this paper the high burnup irradiation behavior, especially fission gas release of MOX fuel from new process is expressed and fuel rod design improvement is described.

II. MOX FUEL PROPERTIES

PuO₂ and UO₂ powder form solid-solution to MOX during sintering. Crystal structure is similar to UO₂ and it is estimated that its material properties are similar to UO₂. The following three properties of the most important properties were measured under one of our MOX fuel development.[1][2] The results are summarized as follows.

1. Melting Point

About 10wt%PuO₂ MOX fuel was encapsuled in tungsten capsule and was heated up over melting. During heating up, the temperature rising of capsule was recording and phase change points were determined from inflexion point of recorded curve. This result is illustrated in figure 1 with measured UO₂ data and other published data. The melting point of MOX fuel drops down slightly to UO₂. These data are very consistent to each other.

2. Thermal expansion

The thermal expansion of MOX fuel was measured comparing with UO₂. The result is shown in figure 2 and is very close to UO₂.

3. Thermal Conductivity

The diffusivity of the same PuO₂ content MOX fuel was measured with the laser-flash method and the thermal conductivity was calculated using the measured specimen density and the published specific heat with the following equation;

$$\lambda = k \cdot \rho \cdot C_p$$

(λ ; thermal diffusivity, k ; thermal conductivity, ρ ; density, C_p ; specific heat).

The results are illustrated in figure 3 and a small degradation of thermal conductivity from the UO₂ design model is seen.

In the MOX fuel rod design code, FINE code[3], this degradation of MOX thermal conductivity is considered and the other material properties are assumed to be the same as UO₂.

III. MOX FUEL IRRADIATION BEHAVIOR AT HIGH BURNUP

Two Belgonuclear (BN) MOX fuel rods of which PuO₂ content is 10wt% were irradiated in BR3 reactor and BR2 Callisto in-pile-section up to higher burnup of 45, 57GWd/t (Pellet peak). The other 3 BNFL (British Nuclear Fuel Limited) MOX fuel rods of which contained 9 wt% PuO₂ are being irradiated at Halden reactor and have achieved the burnup of about 47GWd/t. These MOX fuel pellets were fabricated through new process at which PuO₂ and UO₂ powder are well-blended and these have well-homogenized microstructure. It is expected that the irradiation behaviors of these MOX fuel are more closer to ones of UO₂.

1. BR3&Callisto Loop Irradiation Experiment

(1) Fuel Rods and Irradiation History

Two MOX fuel rods were fabricated by BN and PuO₂ content is 10wt%. These rods are 17X17 PWR fuel rod design except that stack lengths are only 1000mm. The overall fuel rod is illustrated in figure 4 and the abstract specifications are summarized in table 1. As these pellets were fabricated through MIMAS (Micronized MASTer blending) process, the homogeneity of MOX pellets are better comparing with MOX pellet from the previous fabrication process. The averaged and maximum size of PuO₂ particle are approximately 21 μ m and 190 μ m. From

this microstructure of pellet, it could be expected that fission gas release from pellets is low. These two rods were irradiated through two cycles in BR3 reactor and then continued to be irradiated over two years in Callisto in-pile-loop of BR2 reactor up to higher burnup.

The final achieved burnups are 45 GWd/t and 57GWd/t at pellet peak. And the power levels at final period were quite high, around 30KW/m.

(2) Post-Irradiation Examinations

After irradiation these rods were examined at Mol hot-cell. Visual inspection showed no anomalous appearances. The rod profiles are shown in figure 5 and the creepout is seen at the center regions. These feature can be explained by high power at final irradiation stage. The axial γ -scanning is shown in figure 6 and it is estimated that pellet dishes are filled with pellet gas bubble swelling and/or pellet creep at center high power region. The fission gas release rates are plotted in figure 7 with other MOX fuel[4] and UO₂ fuel data[5]. These fission gas rates stay at upper band of fission gas release data because the power was higher than that of commercial reactor.

2. Halden Reactor Irradiation Experiment

(1) Fuel Rods

MOX fuel pellets of which PuO₂ content is 9wt% were fabricated by BNFL through SBR (Short Binderless Route). These pellets were loaded to three rods and these were assembled to one rig with three reference UO₂ fuel rods. These pellets diameter is 5.9 mm and smaller than usual PWR 17x17 design. This smaller diameter design means smaller amount of Pu and U loading in fuel rod, that is, it is possible to obtain higher burnup faster. All of fuel rods were equipped with the instrumentations for fuel center temperature, fuel stack length change and fuel rod internal pressure. The data from these instrumentations are obtained continuously on power. The specifications are summarized in table 2.

Three MOX and three UO₂ rods were arranged at hexagonal configuration into one rig assembly and are being irradiated in Halden reactor. The achieved burnup was about 45GWd/t (Rod) at the date of May, 1996. The maximum power was about 30KW/m and the averaged power was about 20KW/m. At the latter half of irradiation, the power dropped down to about 10KW/m.

(2) Irradiation Experiment and Analysis

Both fuel center temperature of MOX and UO₂ are

illustrated in figure 8 and figure 9. Both of the irradiation power history are very similar each other. The MOX fuel temperature tend to be slightly higher due to the degradation of pellet thermal conductivity by Pu content. At middle of irradiation, the power occurred jumps and maybe some fission gas might be released. If so happen, the fuel temperature might be increased more than power jump. Before these temperature jump, the fuel rod design code, FINE code analysis was performed for both of rods and the results are illustrated in figure 10 and figure 11. In these figures, the prediction bands means the pellet relocation assumptions. That is, the measured fuel temperature might be sometime affected by pellet fragment movement in pellet and cladding gap. This occurs at random and it is difficult to consider its influence in analysis. So in this analysis, the gap filling by pellet relocation was assumed to be between 0% to about 70%. These assumptions are corresponding to the upper and the lower prediction. In these figure, it is observed that the measured temperatures are laid down within prediction ranges. The next figure 12 and figure 13 shows the same comparisons with burnup. The same features are observed but after power jumps at middle of irradiation the upper predictions tend to be more conservative. This is because significant fission gas releases were predicted in FINE calculations. The lower predictions tend to decrease steeper than the measurements and this might means the irradiation degradation of pellet thermal conductivity. However it is difficult to find out the degradation from these data because of the influence of some fission gas release.

The figure 14 shows MOX fuel rod internal pressure. Two large pressure jumps and one small pressure jump are observed corresponding to power jumps. It is estimated that the significant fission gas is released. On the other hand no significant fission gas release is observed for UO₂ fuel in figure 15. Both of rod internal pressures were analyzed with FINE code and the results are illustrated in these figures. In figure 14 of MOX fuel, FINE code in which MOX fission gas release is assumed to be higher than UO₂ predicts higher pressure. But when fission gas release is assumed to be the same as UO₂, FINE code predicts slightly lower pressure as shown in this figure. It could mean that the fission gas of MOX fuel is released slightly higher than UO₂ but that the current FINE code for MOX fuel predicts MOX fission gas release conservatively.

The figure 16 shows both fuel stack length changes of MOX and UO₂ at zero power level. Both of them shows stack length shrinkage due to densification at lower burnup

and then growths due to swelling. The amount of MOX fuel densification is larger than UO₂ and this is corresponding to the amount of out-of-pile resintering test. The density increase of UO₂ at resintering test was smaller than MOX pellet. And the maximum in-pile densification of MOX fuel is estimated to be about 0.24% Δ L/L. When the densification is isotropic, the maximum densification is calculated to be about 0.7% Δ L/L and this is consistent to the density increase, about 0.6%TD at out-of-pile resintering test. At the latter half, both of fuel stack lengths grow approximately proportional to burnup. Both of increase rate, that is swelling behaviors are very closer each other.

From these observation, it is concluded that the densification and swelling behavior of MOX fuel wasn't affected by Pu content.

IV. MOX FUEL ROD DESIGN IMPROVEMENT

Fuel rod design code, FINE code has been verified by a large amount of UO₂ data and used for UO₂ fuel rod design and evaluation. FINE code has been modified for MOX fuel by MOX fuel from old fabrication process, of which achieved burnups were higher. This old type of MOX fuel doesn't have so good homogeneity and has quite a lot of Pu-ricked spots. This feature could affect particularly fission gas release.

Recently MOX fuel data from the new process, for example MIMAS process and SBR process, which has good homogeneity has been accumulated up to higher burnup. These type of MOX fuel tend to release lower fission gas. When based on these current MOX fuel data, it is impossible to improve the fuel rod design and to employ the reasonable fuel rod design.

1. Fission Gas Release from Pellet

Fission gas release comparisons of measurement and prediction by FINE code are illustrated in figure 17 with UO₂ fuel data. It is observed that FINE code could predict larger fission gas release fraction to other all of MOX fuel except old process MOX fuel. In this figure fission gas release of MOX and UO₂ in Halden were estimated from rod internal pressure. From these comparisons and the previous Halden internal pressure figure, it is found that current FINE code for MOX fuel has conservatism to fission gas release and that fission gas release of MOX fuel is closer to UO₂. It is estimated from this Halden data that MOX fuel would release fission gas slightly larger than UO₂.

2. Rod Internal Pressure

FINE code for MOX fuel also considers more He production in MOX pellet. Rod internal pressure comparisons of measurement and prediction by FINE code are illustrated in figure 18 with UO₂ fuel data. The predictions to MOX fuel rods are laid down within the scattering of UO₂ data and have conservatism. This is due to the over-prediction of fission gas release.

3. Densification and Swelling

Densification and swelling behavior is similar to UO₂ as described above. FINE code assumes the same behavior for MOX fuel as UO₂. The predictions for pellet density changes are illustrated in figure 19. The predictability is laid down within the scattering of UO₂ fuel.

The current FINE code for MOX fuel is based on the data from the previous fabrication process and it has conservatism particularly to fission gas release of the current process MOX fuel. There is possibility to improve the design model and to reach more reasonable fuel design.

V. CONCLUSION AND FUTURE

One of the characteristics of MOX fuel is the degradation of pellet thermal conductivity and the larger fission gas release. The latter one might be related to Pu spots of which amount is dependent upon the fabrication process. The recent process produces less Pu spots pellets and therefor its results into these release less fission gas release. When based on the data from the current process, it is expected that MOX fuel rod design is reasonable. It was confirmed that densification and swelling was very similar to UO₂.

The above Halden MOX fuel is now being irradiated to higher burnup and the behaviors will be followed continuously. Including these data, more MOX fuel data from the current fabrication process is necessary and the more accumulating could derive more reasonable MOX fuel design.

ACKNOWLEDGEMENT

These MOX fuel irradiation experiments is conducted with the following companies and the authors would appreciate their greatful cooperations.

Hokkaido Electric Power Co., Inc.
Shikoku Electric Power Co., Inc.
Kyusyu Electric Power Co., Inc.
Japan Atomic Power Co., Inc.

REFERENCES

- [1] I.R. Topliss et. al., Measurement and Analysis of MOX Physical Properties, IAEA Technical Committee Meeting, Windermere, UK, July 1995
- [2] K.Yamate et.al., MOX Fuel Design and Development Consideration, IAEA Technical Committee Meeting, Windermere, UK, July 1995
- [3] S.Suzuki et.al., PWR Fuel Performance and Burnup Extension Programme in Japan, IAEA Symposium, Stockholm Sweden, September 1986
- [4] S.Inoue, et. al., The Results of PIE on MOX Fuel Rods Irradated in Mihama Unit1, ANS Topical Meeting, West Palm Beach USA, April 1994
- [5] S.Doi, et.al., High Burnup Experience of PWR Fuel in Japan, ANS/ENS Topical Meeting, Avignon France, April 1991

Table 1 BN MOX Fuel Rod in BR3

Pellet	
material	(U,Pu)O ₂
PuO ₂ (total)	10wt%
geometrical density	94.6%TD
diameter	8.04mm
length	9.22mm
Cladding	
material	Zircaloy4
outer diameter	9.50mm
inner diameter	8.23mm
Fuel Rod	
fuel stack length	1000mm
total fuel rod length	1136mm

Table2 BNFL MOX Fuel Rod in Halden

Pellet	
material	(U,Pu)O ₂
PuO ₂ (total)	9wt%
geometrical density	95.5%TD
diameter	5.90mm
length	7.08mm
center hole dia.	1.90mm
Cladding	
material	Zircaloy2
outer diameter	7.00mm
inner diameter	6.02mm
Fuel Rod	
fuel stack length	400mm

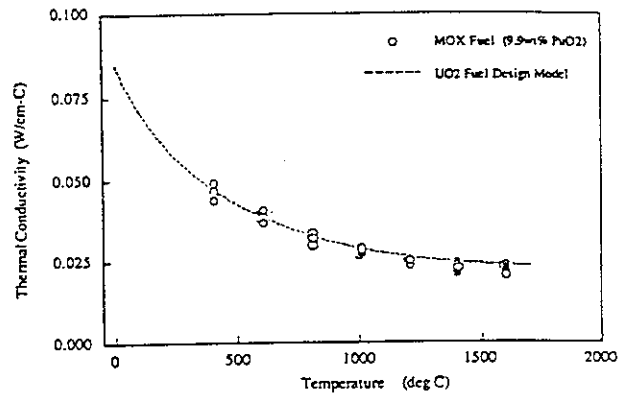


Figure 3 Thermal Conductivity of MOX Fuel

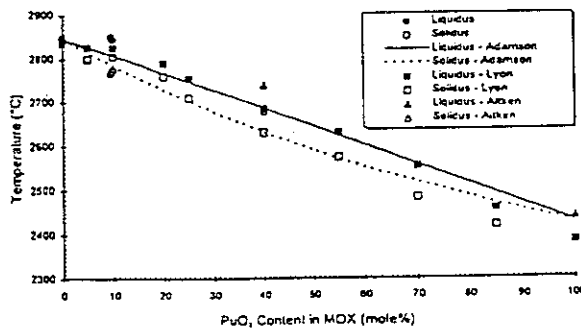


Figure 1 Melting Points of MOX Fuel

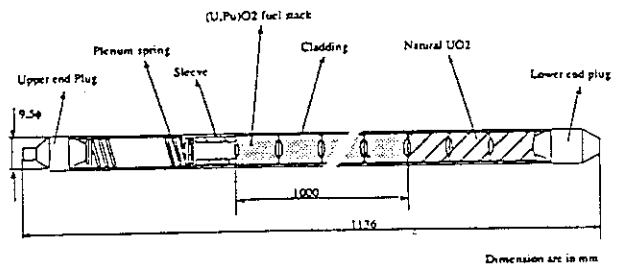


Figure 4 BN MOX Fuel Rod

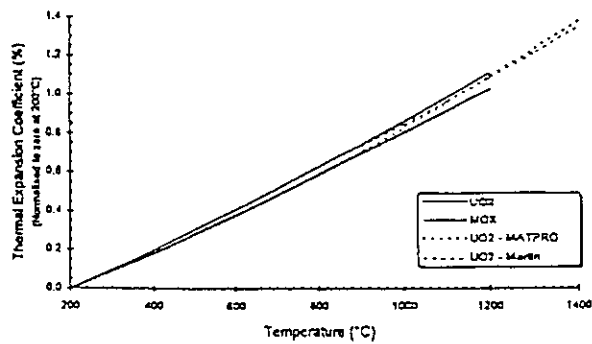


Figure 2 Thermal Expansion of MOX Fuel

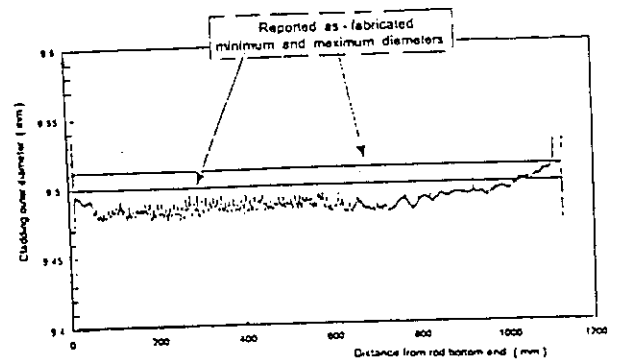


Figure 5 BN MOX Fuel Profilometry

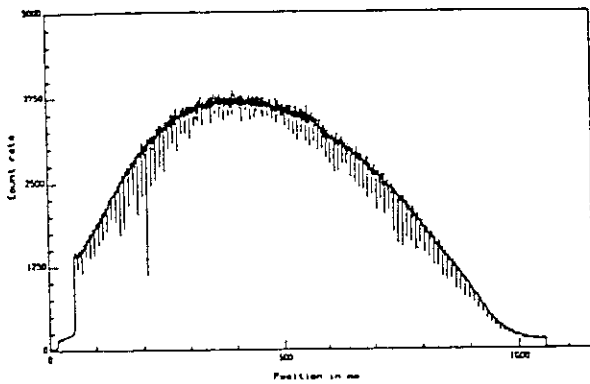


Figure 6 BN-MOX Fuel Axial Gross γ -Scanning

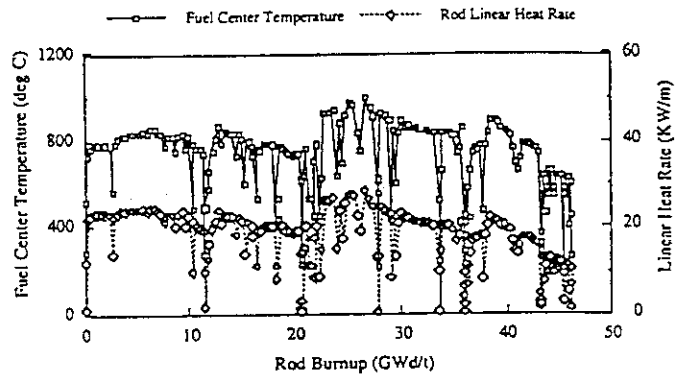


Figure 8 MOX Fuel Center Temperature Changes in Halden

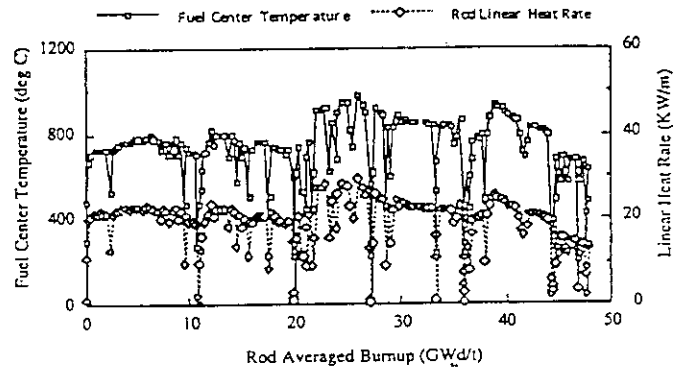


Figure 9 UO₂ Fuel Center Temperature Changes in Halden

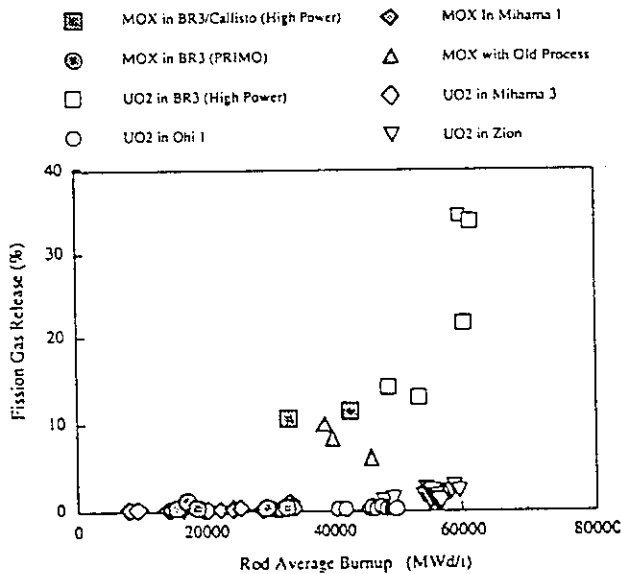


Figure 7 Burnup vs Fission Gas Release

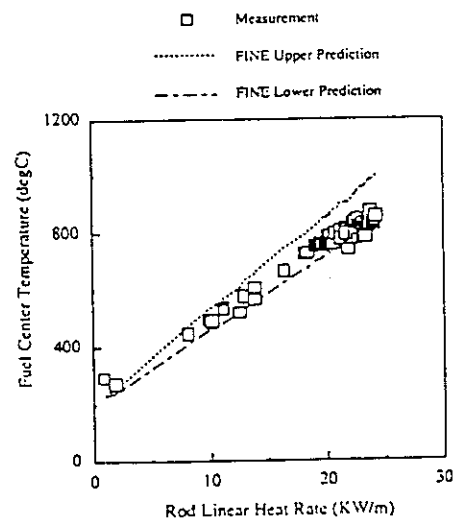


Figure 10 MOX Fuel Center Temperature Measurement and Prediction

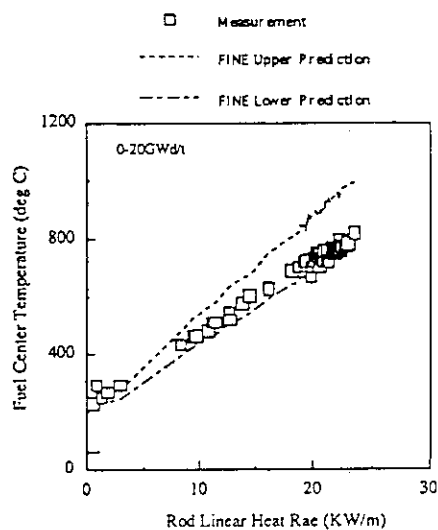


Figure 11 UO₂ Fuel Center Temperature Measurement and Prediction

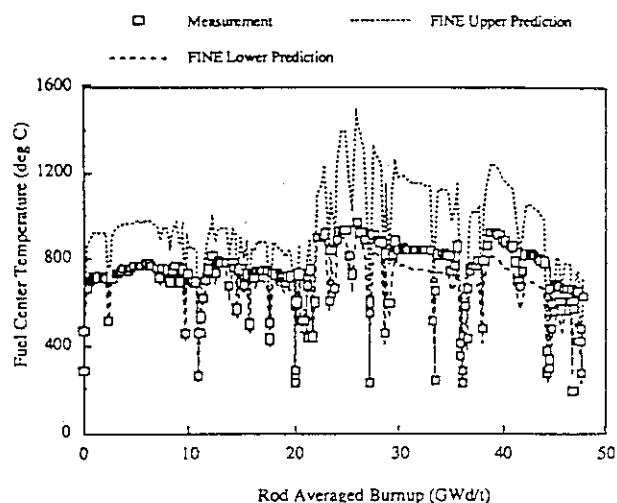


Figure 13 Burnup vs UO₂ Fuel Center Temperature Measurement and Prediction

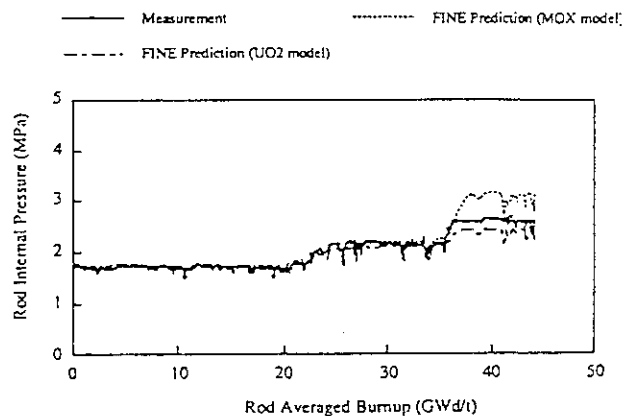


Figure 14 Burnup vs MOX Fuel Rod Internal Pressure Measurement and Prediction

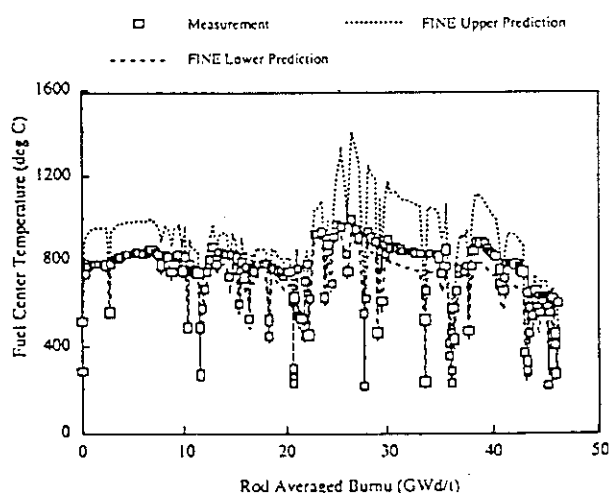


Figure 12 Burnup vs MOX Fuel Center Temperature Measurement and Prediction

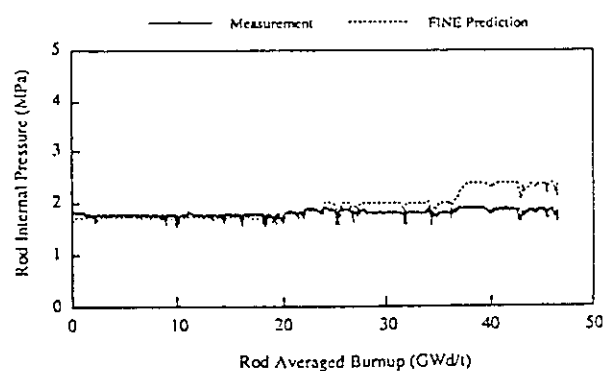


Figure 15 Burnup vs UO₂ Fuel Rod Internal Pressure Measurement and Prediction

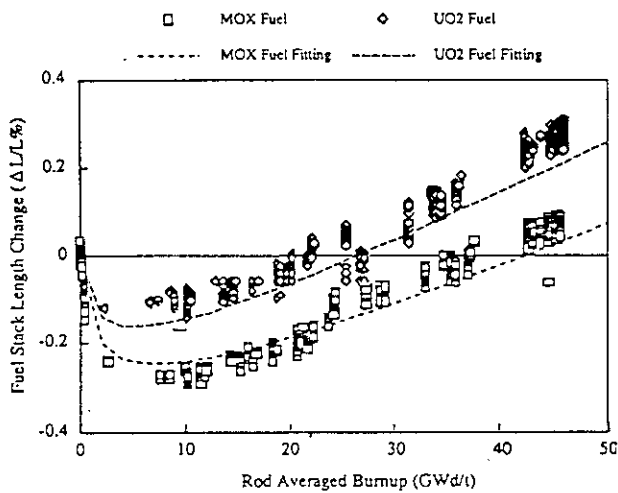


Figure 16 Burnup vs MOX and UO₂ Fuel Stack Length Changes

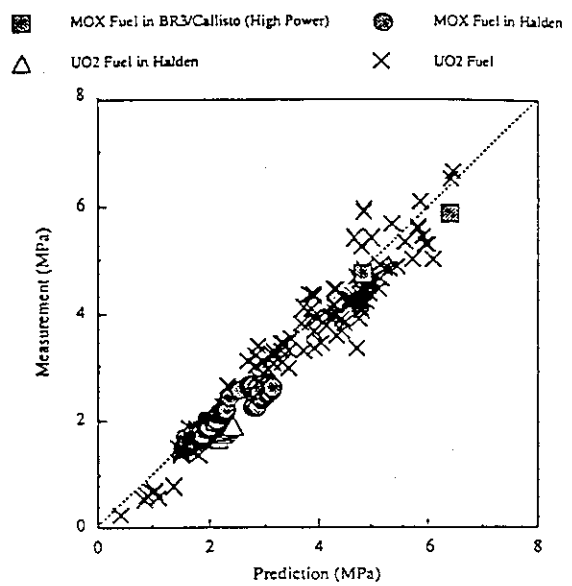


Figure 18 Rod Internal Pressure Prediction versus Measurement

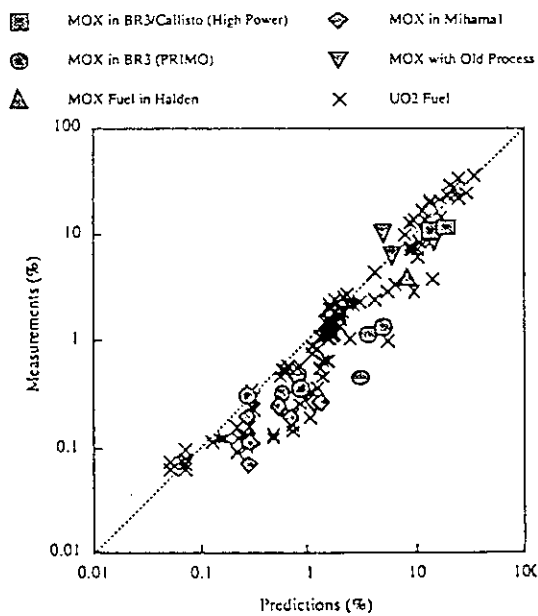


Figure 17 Fission Gas Release Prediction versus Measurement

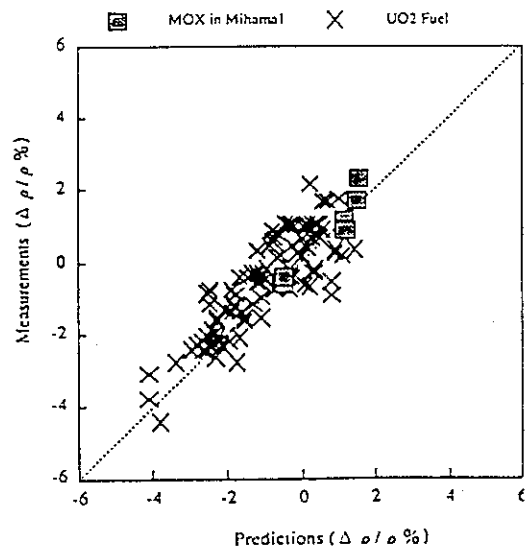


Figure 19 Pellet Density Changes Prediction versus Measurement

8. HBWRにおけるBWR用改良燃料の照射挙動に関する研究 Irradiation Study of Advanced BWR Fuel in HBWR

(原子燃料工業㈱)

8.1 研究目的

結晶粒径を粗大化したペレットを照射し、照射中の燃料挙動を測定することにより性能を確認する。また、耐食性を改善した被覆管を使用し、その性能を確認する。

8.2 研究内容

計装付試験燃料集合体としてIFA-602（下部クラスター8本、上部クラスター4本）を使用して、ハルデンHBWR条件で照射試験を行い、数種類の大粒径ペレットについて、照射中の燃料棒内圧、中心温度等の挙動を測定することにより性能を確認する。また、一部の燃料棒には耐食性を改良した被覆管を用い、BWR条件下での照射試験をIFA-603および604（各2本）を使用して実施し、その性能を確認する。試験に供したペレットおよび被覆管の種類をTable 8-1に、また各リグの構成をFig. 8-1, Fig. 8-2にそれぞれ示す。

（進捗状況）

各リグの照射は、1995年1月2日から開始され、1996年11月23日時点でIFA-602の下部クラスターが平均燃焼度約22GWd/tUO₂、上部クラスターが約16GWd/tUO₂に達している。また、IFA-603は、約18GWd/tUO₂、IFA-604は、約16GWd/tUO₂にそれぞれ達している。現在、IFA-602に取り付けられた各計装により内圧、燃料中心温度および燃料スタック伸びの測定が継続されている。

（今後の予定）

IFA-602は、HBWR条件下で約60GWd/tUまで、またIFA-603および604は、BWR条件下で約60GWd/tUまで照射し、1999年に照射を終了する予定である。IFA-603および604については約20GWd/tUごとに非破壊の中間検査を実施する予定となっている。

8.3 成果

IFA-602について約20GWd/tUO₂までの計装測定結果から各ペレットのFGR%を求めたが、2～6%の間でばらついており、通常ペレットと大粒径ペレットの間に明確な差は見られなかった。

Table 8-1 ペレットおよび被覆管種類

A. 被覆管 4 種類

	種 類
改良ジルコニウム 合金	合金 1 (高 Fe)
	合金 2 (高 Fe, 低 Sn)
	合金 3 (高 Fe, 微量 Nb 添加)
比較材	ジルコイ-2 ASTM規格相当

B. ペレット 6 種類

	種 類
無添加型組織 改良ペレット	焼結雰囲気調整法 UO_2 ペレット
	Al/Si 量調整法 (U, Gd) O_2 ペレット
比較ペレット	現行 UO_2 ペレット
	現行 (U, Gd) O_2 ペレット
	長時間焼結法 UO_2 ペレット
	Al/Si 量調整法 UO_2 ペレット

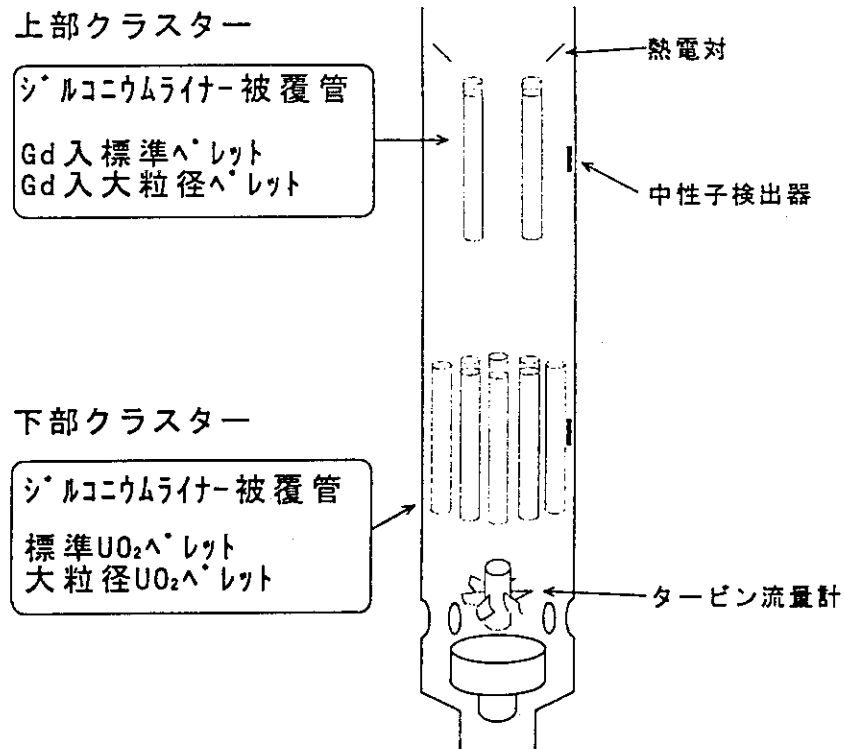


Fig. 8-1 リグの構成 (IFA-602)

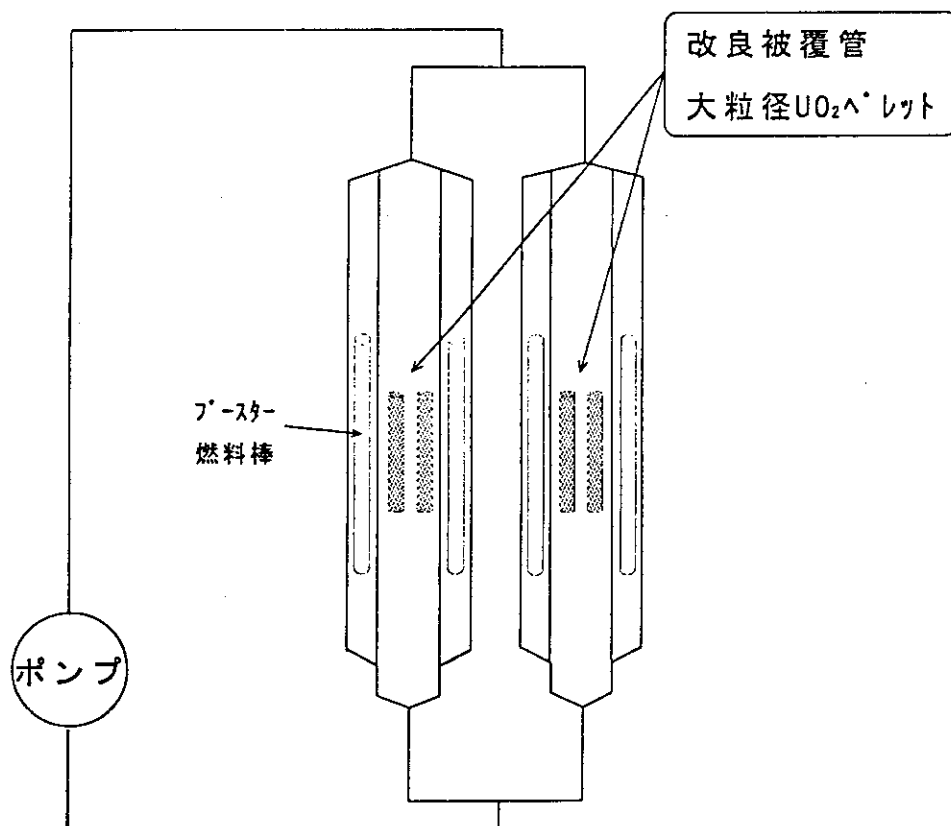


Fig. 8-2 リグの構成 (IFA-603, 604)

9. 高燃焼度燃料被覆管のHBWRにおける照射試験

Irradiation Test of High Burn-Up Fuel Cladding in HBWR

((財) 原子力発電技術機構)

9. 1 研究目的

BWR型高燃焼度燃料被覆管の水側腐食挙動のデータを得るため、ハルデン炉において、BWR燃料使用環境を模擬して照射試験を行う。

9. 2 研究内容

被覆管水側腐食に及ぼす放射線(中性子線, β 線, γ 線)および熱流束の影響を調べるため、ハルデン炉にてBWR燃料使用環境を模擬した2体の照射リグを有する腐食試験ループを設けて被覆管の照射下腐食試験を行う。(Fig.9-1)

照射期間は、1回あたりハルデン炉運転サイクル(3~4ヶ月)で2サイクルとし、異なる腐食環境下で全3回の試験を計画している。(Table9-1)

照射リグの構造は Fig.9-2 に示すとおりで、被覆管試料外側のプースター燃料、 β エミッタ、 γ エミッタ、被覆管試料内のペレット等の条件を変えて試験パラメータを設定している。

試験に供する被覆管材料は、BWRの9×9型燃料被覆管に使用される予定の高耐食性ジルカロイ-2材(以下9×9型試料と略記する)と従来の8×8型燃料被覆管に使用されていた材料(以下8×8型試料と略記する)の2種類である。

9. 3 成果

9. 3. 1 第1回照射試験

第1回照射試験は、1995年1月に照射を開始し、定検のための約2ヶ月の炉停止をはさみ1995年10月に終了した。照射環境はほぼ計画したとおりであった。

照射後の外観観察の結果は以下のとおりである。(Fig.9-3)

- ・上部プレナム部、アルミナペレット部および非沸騰部の被覆管表面は黒色であった。
- ・8×8型試料にはノジュラー腐食が見られ、 β エミッタ、 γ エミッタの対向部近傍ではノジュラー腐食の増加が見られた。
- ・9×9型試料ではノジュラー腐食は見られず、均一な腐食が見られた。

照射後に実施した渦電流法による酸化膜厚さ測定結果を Fig.9-4 に示す。8×8型試料では β エミッタ、 γ エミッタの対向部近傍で、また9×9型試料では β エミッタの対向部近傍で酸化膜厚さが厚くなっていた。

9. 3. 2 第2回照射試験

第2回照射試験は、1996年1月に照射を開始し、定検のための約2ヶ月の炉停止をはさみ1996年11月に終了した。照射環境はほぼ計画したとおりであった。

照射後の外観観察の結果、8×8型試料、9×9型試料ともに明確なノジュラー腐食は見ら

れなかった。







照射後に実施した渦電流法による酸化膜厚さ測定結果は以下のとおりである。(Fig.9-5)

- ・ 8×8型試料と9×9型試料とでは、8×8型試料の方が酸化膜厚さがやや厚い。
- ・ 8×8型試料、9×9型試料ともに、酸化膜厚さは高速中性子束レベルの高い方が幾分厚い傾向があった。

9. 3. 3 第3回照射試験

第3回照射試験は、1997年1月に照射を開始する計画である。

Table 9-1 高燃焼度燃料被覆管のHBWRにおける照射試験工程

項 目	1994	1995	1996	1997
第1回照射試験 照射リグ設計、製作 第1回照射				
第2回照射試験 照射リグ改造 第2回照射				
第3回照射試験 照射リグ設計、製作 第3回照射				

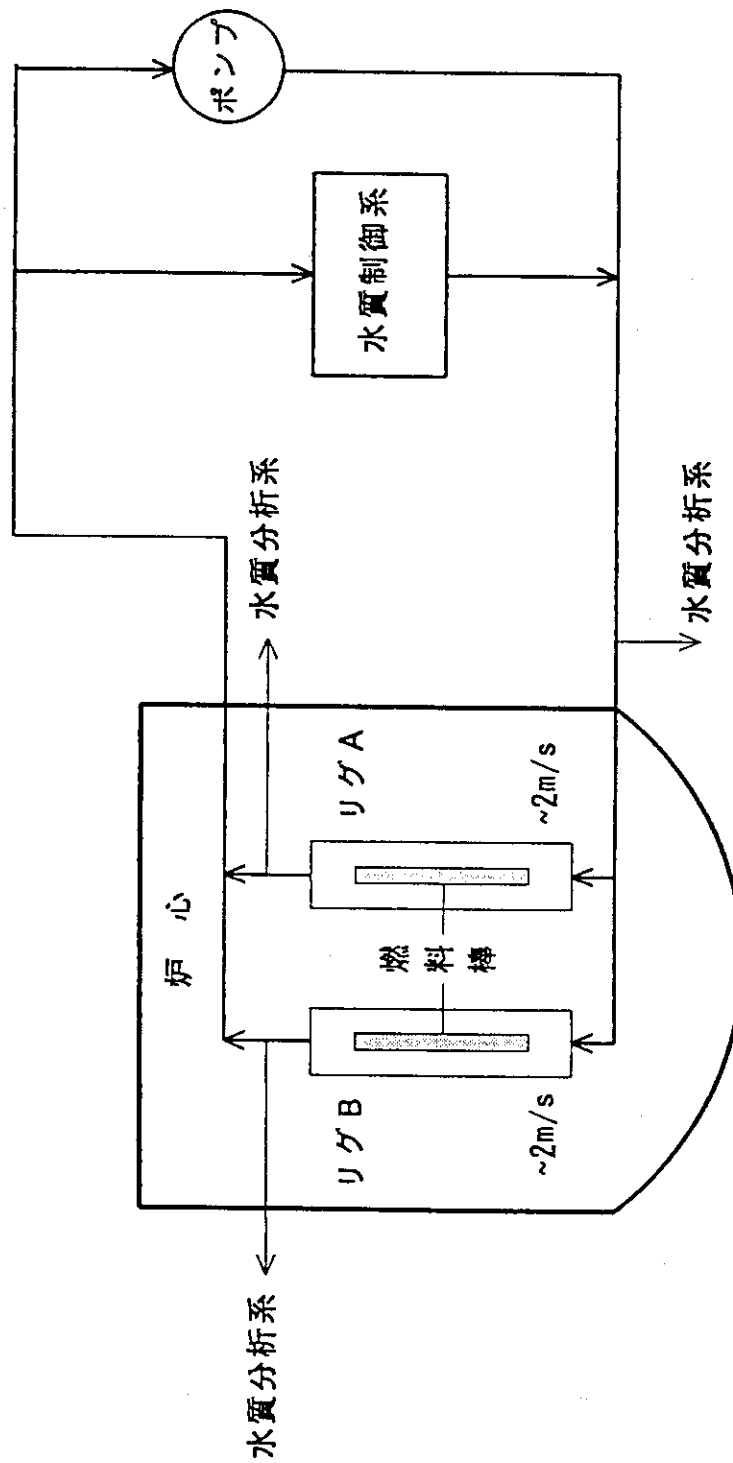


Fig.9-1 ハルデン炉照射試験ループ概略図

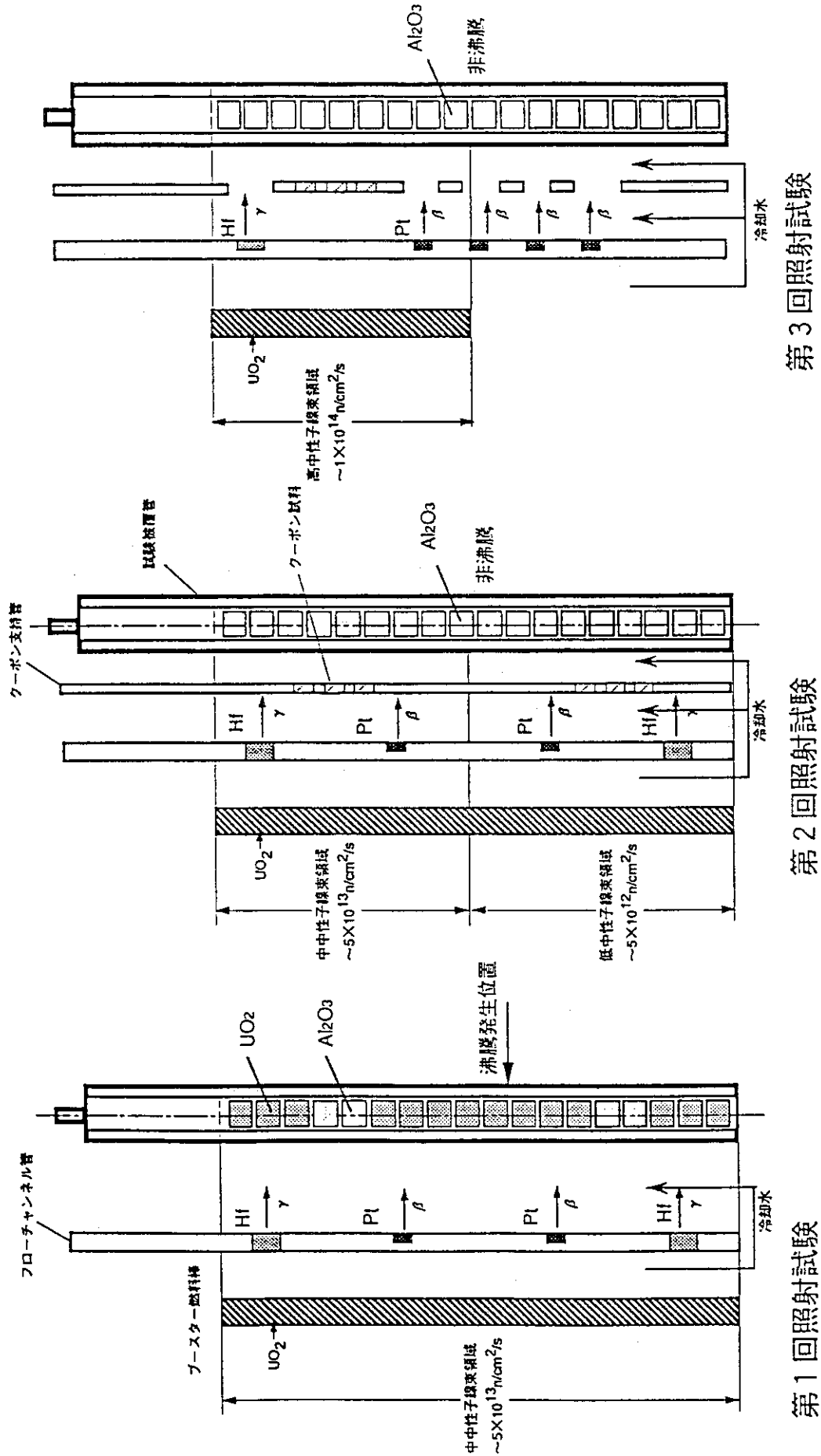


Fig.9-2 ハルデン炉照射試験リグ概略図

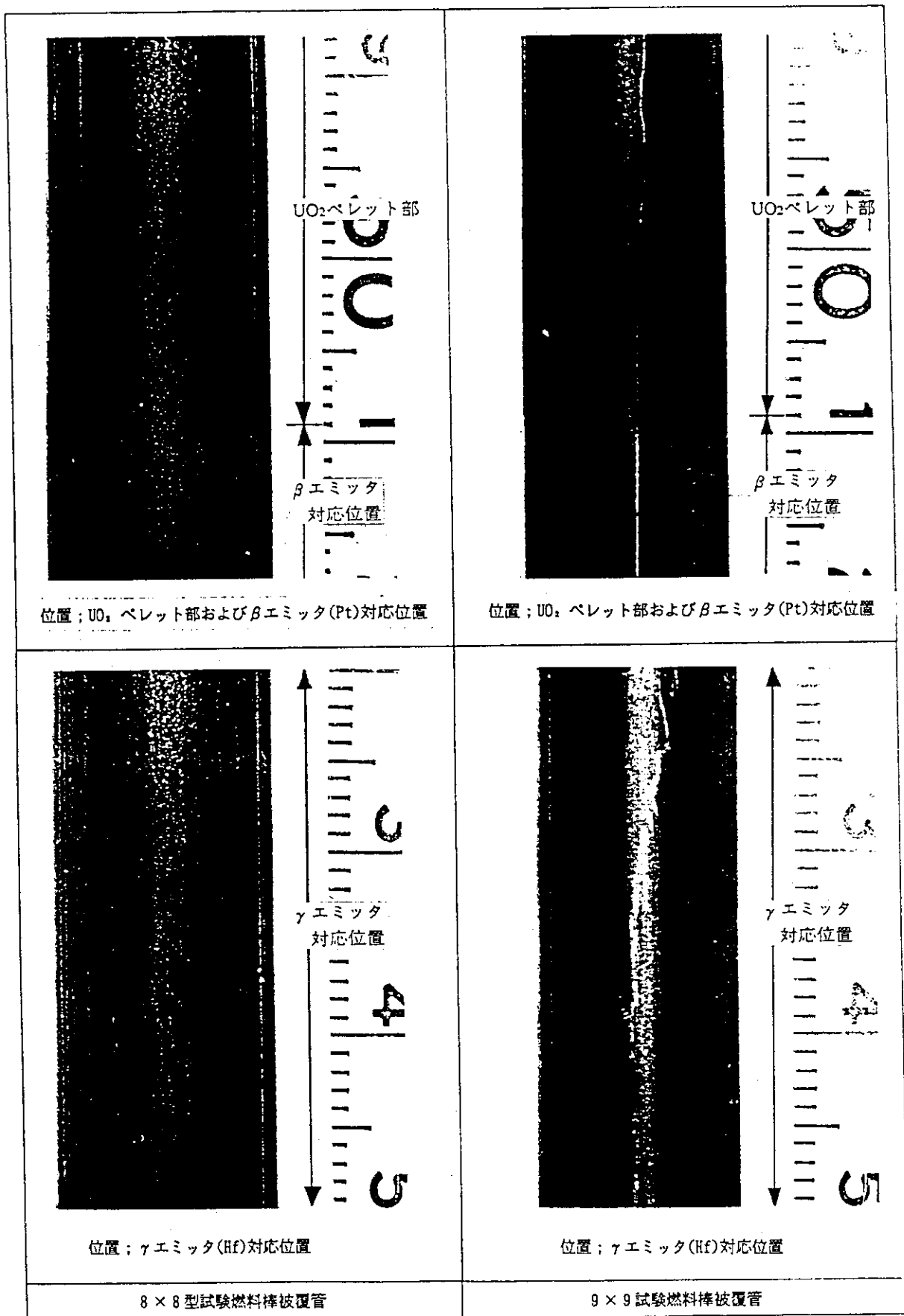


Fig.9-3 第1回照射試験後の被覆管外観観察写真

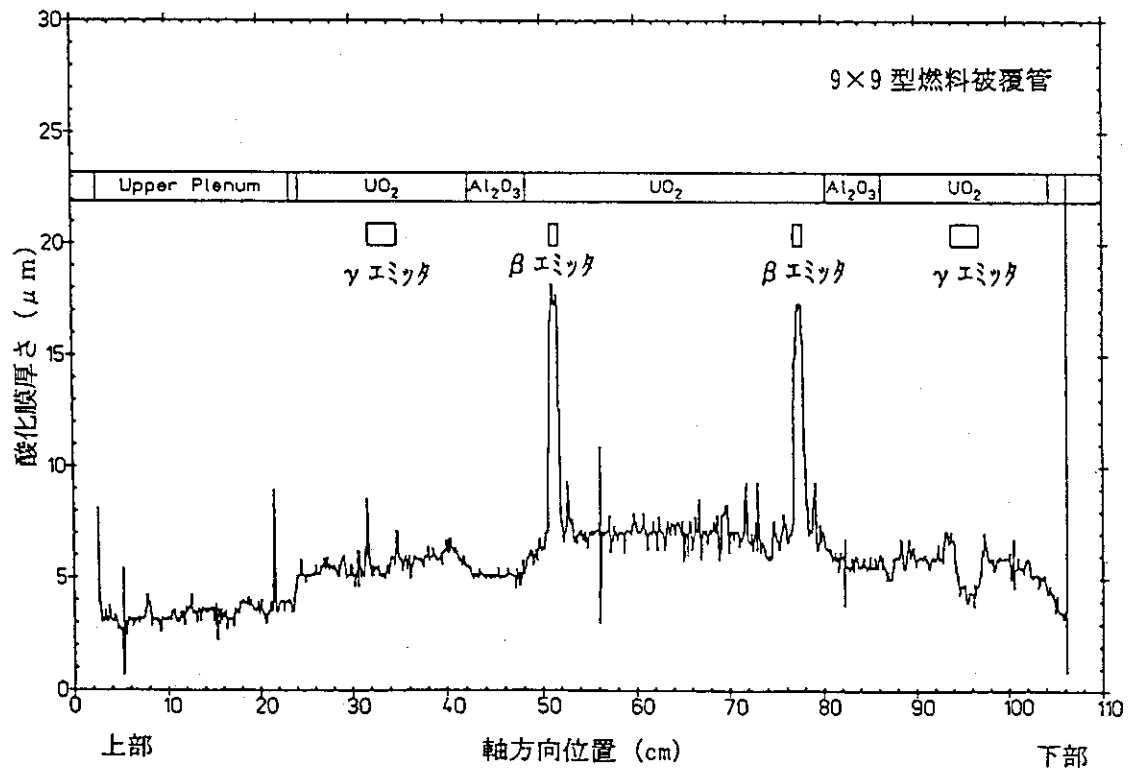
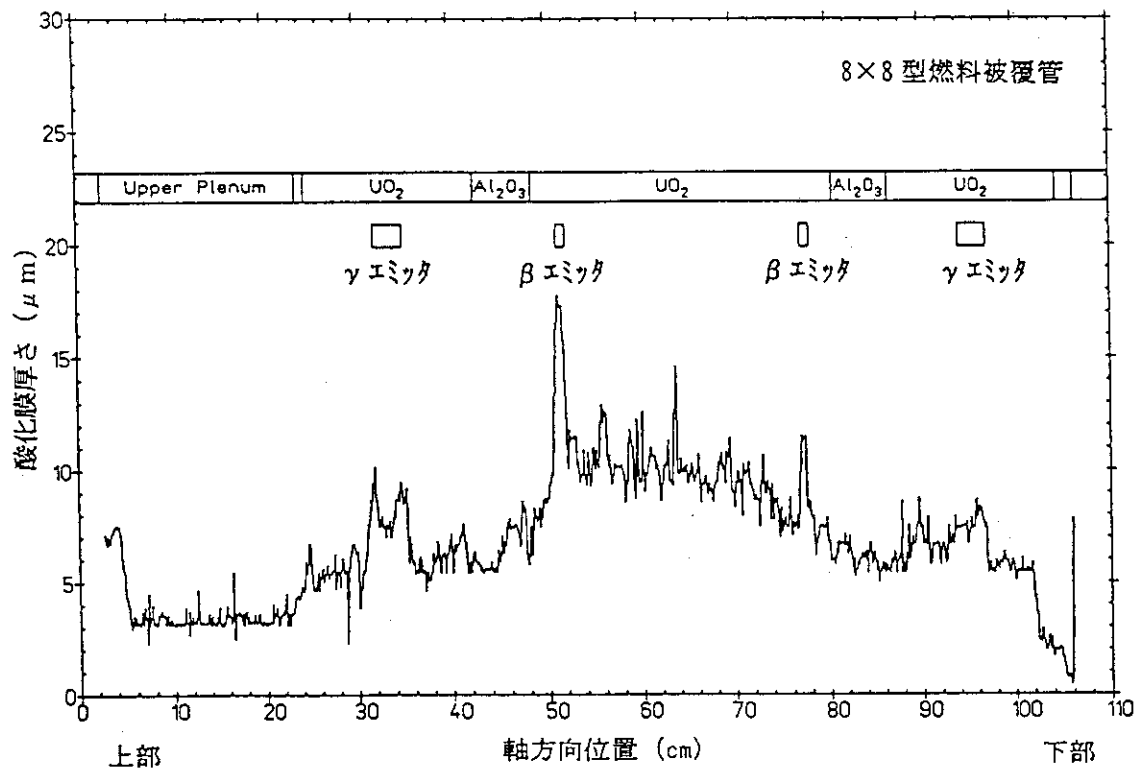


Fig.9-4 第1回照射試験後の被覆管酸化膜厚さの軸方向分布

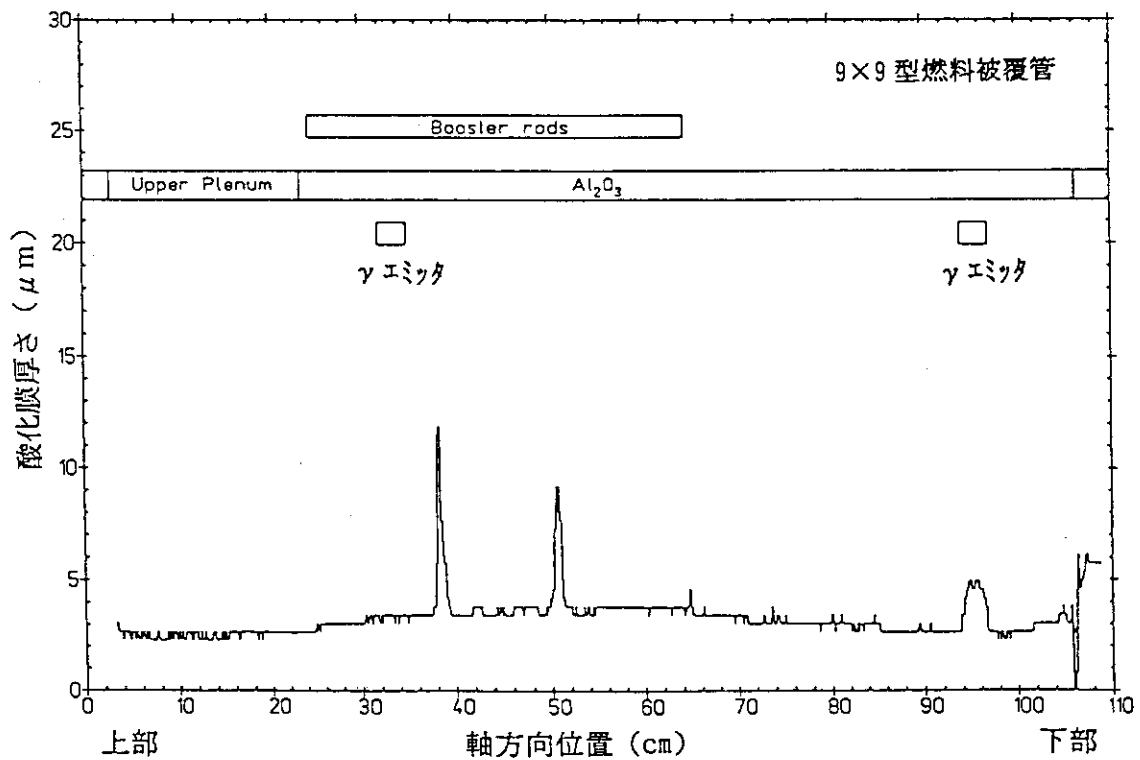
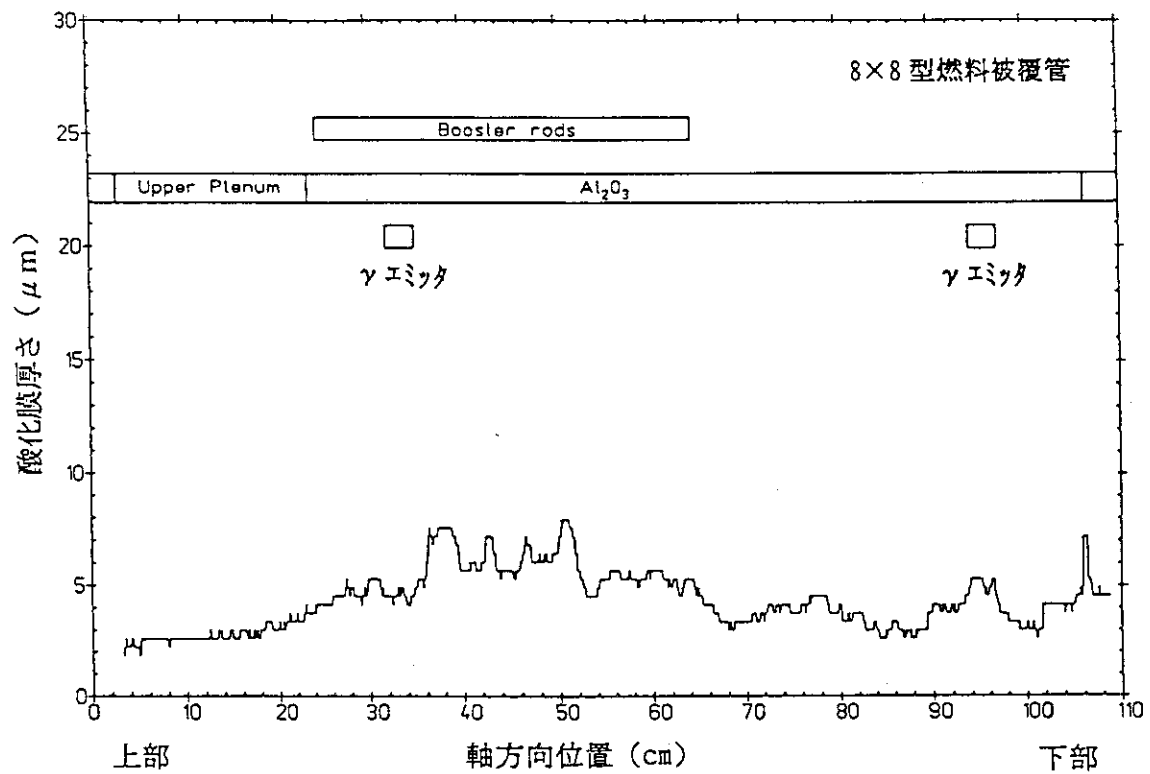


Fig.9-5 第2回照射試験後の被覆管酸化膜厚さの軸方向分布

10. 高燃焼度PWR改良被覆管燃料棒のHBWRにおける照射試験

High Burn-up PWR Irradiation Test of Improved Clad in HBWR

((財) 原子力発電技術機構)

10.1 研究目的

PWR高燃焼度確証用燃料被覆管(B型)を試験用燃料棒及び腐食試験片の形状でハルデン炉にて照射し、炉内腐食特性に関するデータを取得し、同被覆管の耐食性を評価するとともに腐食のメカニズムについての知見を得る。また、同被覆管の耐PCI性能を評価するために、照射後に出力急昇試験を実施する。さらに、燃料棒に大粒径ペレットを組み込んでFPガス放出特性に関するデータを取得する。

10.2 研究内容

ハルデン炉内にPWR条件を模擬したループを設置し、ループ内に試験用燃料棒8本及び腐食試験片44サンプルを設置した試験用リグ(Fig.10-1)を照射する。試験用燃料棒及び腐食試験片は、約1年ごとに取り出して中間検査を行う。また、試験用燃料棒については、2.5年間照射(目標燃焼度約20GWd/t)後に2本の燃料棒について、5.5年間照射(目標燃焼度約55GWd/t)後に6本の燃料棒について、それぞれ出力急昇試験及びホットセルPIEを行う。また、2.5年間照射後に取り出す燃料棒の位置には別途2本の新燃料棒をリグに組み込んで3年間照射(目標燃焼度約30GWd/t)し、照射後に出力急昇試験及びホットセルPIEを実施する。なお、試験用燃料棒には、燃料棒伸び及び燃料棒内圧測定のための計装を取り付け、照射中の燃料棒伸びデータ及び内圧データを取得する。

試験用リグは1995年7月に装荷され、約10GWd/tまで照射が進んでいる。

10.3 成果

10.3.1 炉出力及び燃焼度

炉出力及び燃料棒燃焼度の時刻歴をFig.10-2に示す。図中のデータは1995年10月までのデータである。各燃料棒とも約4.1GWd/tの燃焼度を達成したことがわかる。

10.3.2 燃料棒内圧

燃料棒内圧の燃焼度依存性を炉出力、燃料棒の線出力履歴と共にFig.10-3に示す。図中のデータは1995年10月までのデータである。内圧はいずれも最大45barと燃料製造時封入圧の21barの2倍強である。これは照射中の燃料棒の絶対温度が室温の約2倍であることを考えると妥当な値であり、内圧の異常な上昇は見られなかった。なお、ペレットの種類による内圧の差は現在のところ明確でない。

10.3.3 燃料棒伸び

燃料棒伸びの燃焼度依存性を炉出力、燃料棒の線出力履歴と共にFig.10-4に示す。図中のデータは1995年10月までのデータである。燃料棒伸びは線出力の変化とよく対応している。また、被覆管の種類による差は現在のところ明確でない。なお、伸びの値が負の値を示しているところがあるが、これは照射に伴って原点がずれたことによるものである。この点については、1年間照射後の中間停止の際に伸び計の零点補正を行った。

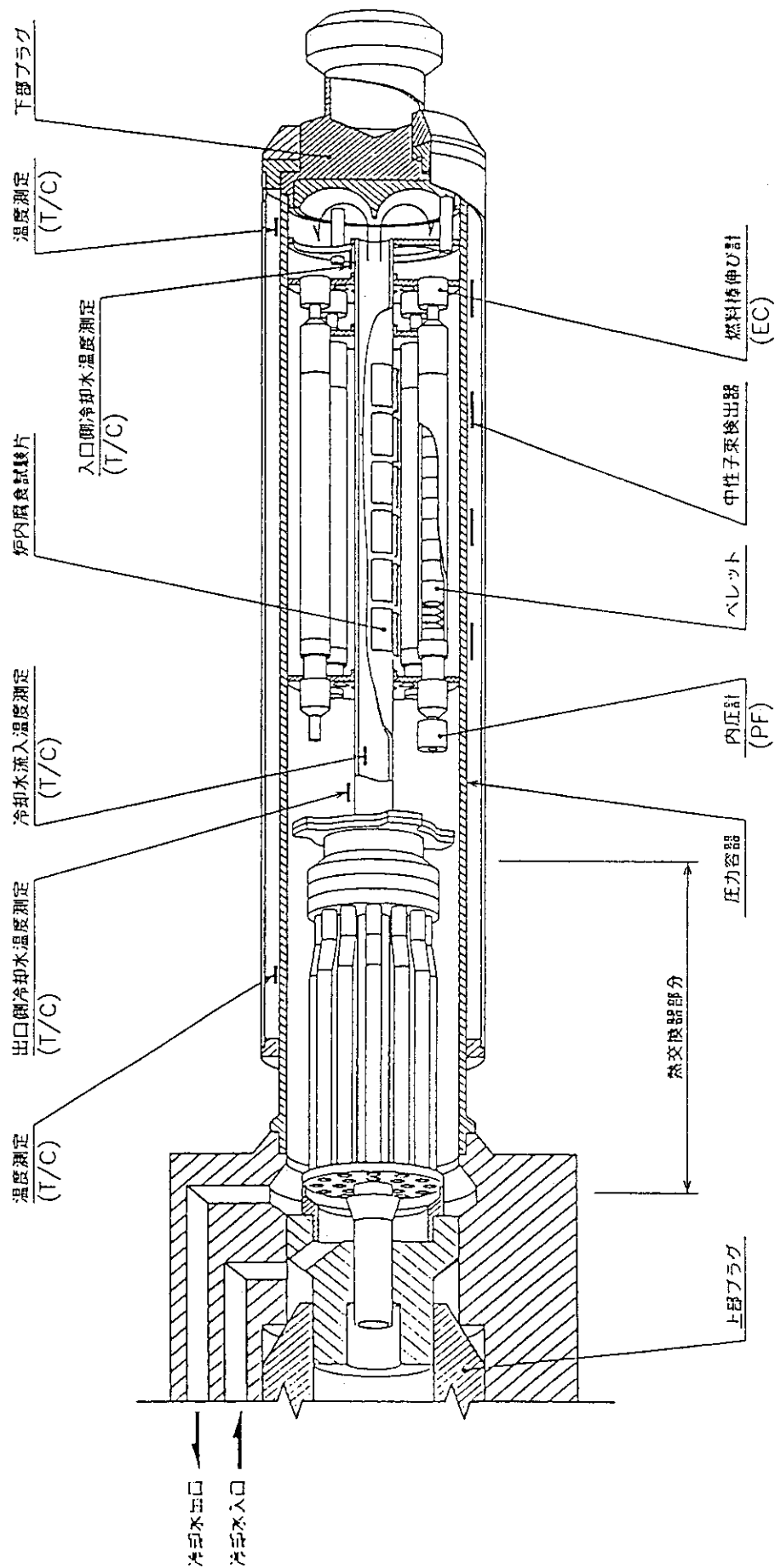


Fig.10-1 ハルデン炉照射試験用リグの概要

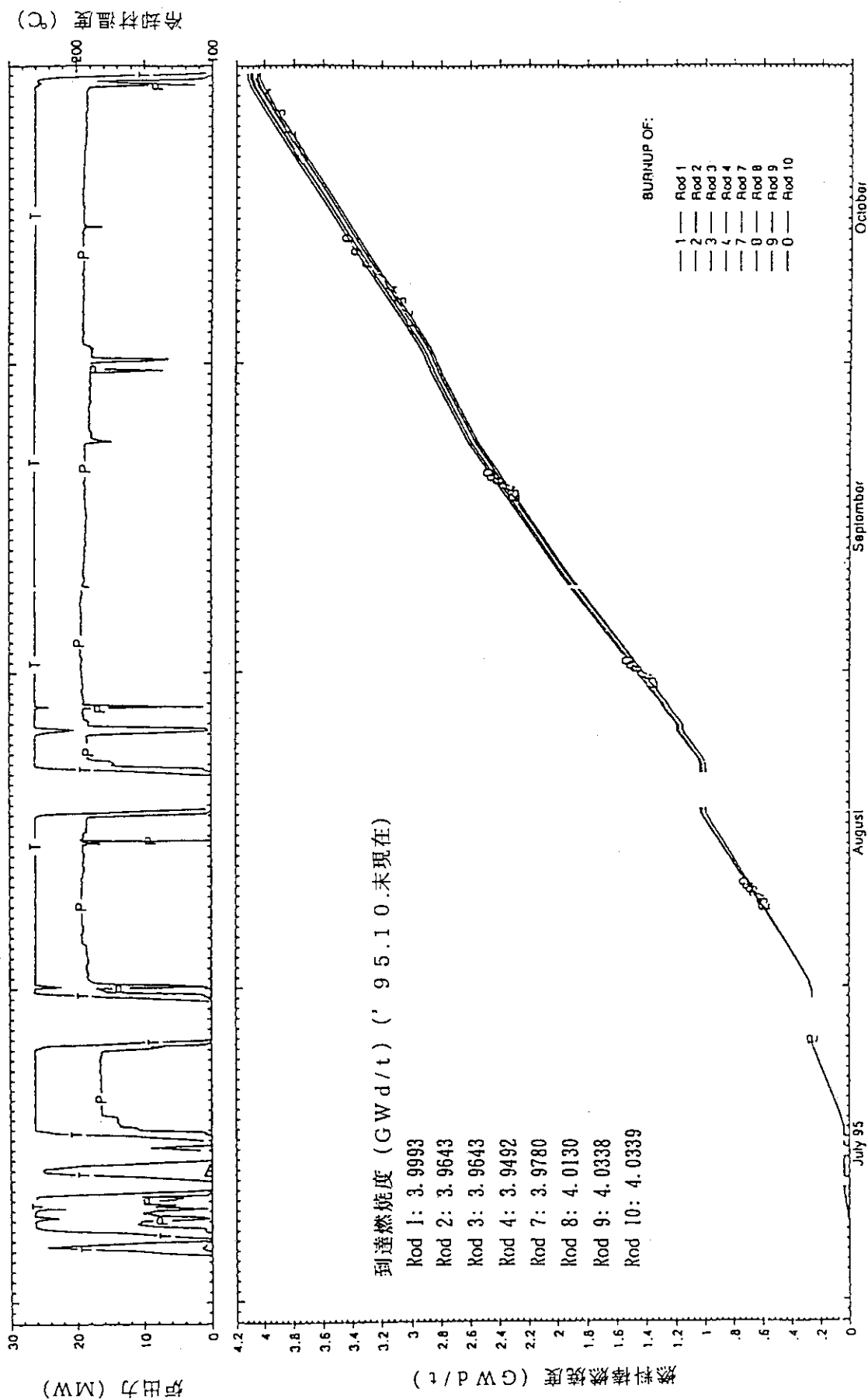


Fig.10-2 炉出力及び燃料棒燃焼度の時刻歴

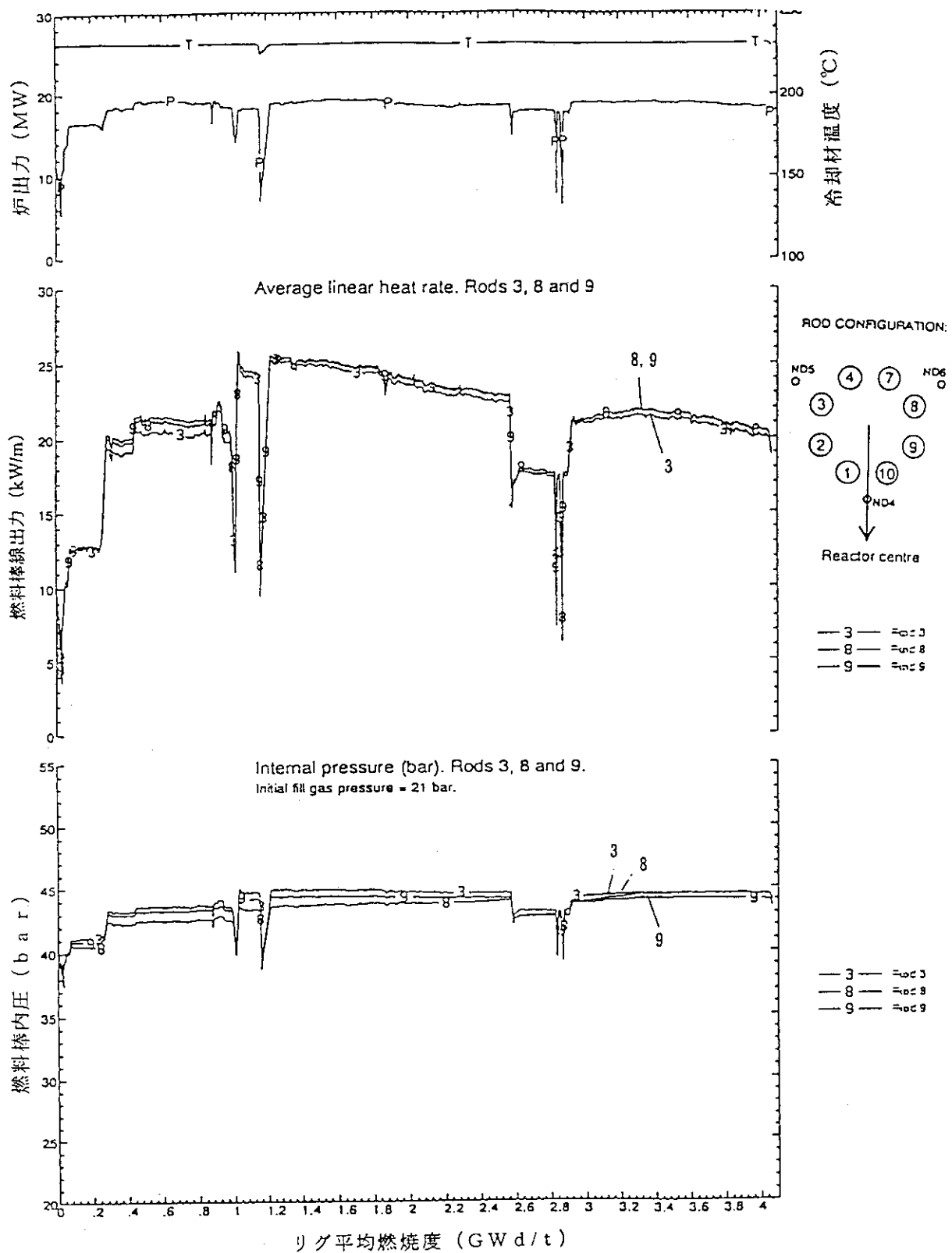


Fig.10-3 燃料棒内圧の燃料度依存性

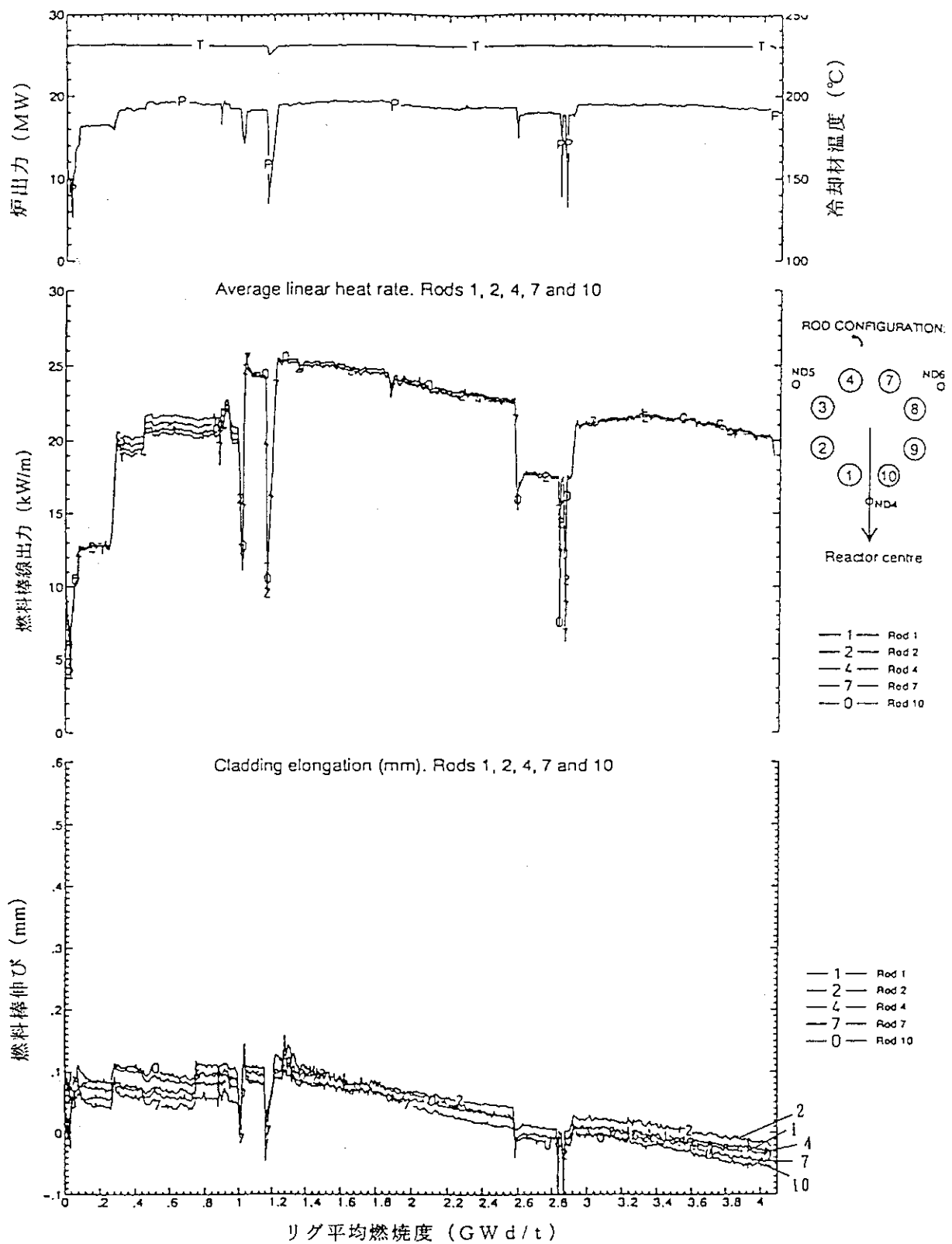


Fig.10-4 燃料棒伸びの燃焼度依存性

1 1. HBWRにおける過渡沸騰遷移挙動の照射研究

Irradiation Test of Fuel Behavior under Transient Boiling Condition in HBWR

(東京電力(株))

11.1 研究目的

BWRでは、通常運転状態及び運転時の異常な過渡変化において沸騰遷移を生じないよう設計することが要求されている。しかしながら、燃料の健全性を維持するための条件としては、一時的に沸騰遷移が生じても問題ないという知見が炉外試験によって蓄えられてきている。特に熱水力的な特性については炉外ループ試験によるデータが集積されてきているが、燃料自体の挙動や過渡的な温度上昇を経験した場合の特性の変化については、炉外試験に加えて、実際のBWRの運転環境での実験データの取得が望まれる状況にある。このような観点から、HBWRにおいてBWR燃料被覆管を用いた過渡沸騰遷移試験を行い、流量コストダウン及び流量振動条件下において沸騰遷移事象を生じさせ、オンラインで被覆管温度や伸びのデータを採取する。さらに、沸騰遷移を経験した同燃料を照射後試験に供し、材料の特性データを採取する。

以上の試験により、実際の燃料照射環境下における過渡沸騰遷移を生じさせた場合の燃料への影響の確認を行うと共に、照射後試験による燃料特性の変化の有無を確認し、本現象に対する知見を充実させる。

11.2 研究内容

11.2.1 過渡沸騰遷移試験

BWRの運転条件を模擬することが可能な試験ループ (Fig.11-1) の中に照射及び未照射のセグメント燃料から構成される照射リグ (Fig.11-2,-3,-4) を設置し、冷却材流量の急速コストダウン及び流量振動を模擬して過渡沸騰遷移状態に至らしめる (Fig.11-5)。また、この際の燃料被覆管の表面温度及び燃料棒伸びをオンライン計測する。

11.2.2 照射後試験

過渡沸騰遷移試験に供したセグメント燃料をプールサイド検査及びホットラゴ検査により材料特性の詳細を調べる。具体的な照射後試験項目としては以下を実施する。

非破壊試験

- ・ 外観検査
- ・ 直径プロファイル／
燃料棒伸び、曲がり
- ・ 酸化膜厚さ
- ・ γ -スキャン
- ・ 渦電流探傷
- ・ 中性子ラジオグラフィー
- ・ その他必要な検査

破壊試験

- ・ F.Pガス放出率
- ・ セラモグラフィー
- ・ 金相観察
- ・ 水素分析
- ・ 機械強度
- ・ SEM観察
- ・ ピッカース硬さ

11.3 成果

3つの照射リグの内2つの実験を終了した。目標温度を設定した条件下では安定なドライアウトコンディションが得られないため、単純に流量を絞り切ることにより沸騰遷移状態に移行する方法を採用した。この方法では550℃あるいは650℃の目標温度に保持することができなくなるため、目標温度に到達した段階で流量を回復する操作を複数回行うことにより目標とする温度及び時間を得ることとした。またリグ1において不安定性を模擬した流量振動試験を実施したが、流量を増減しても被覆管の温度上昇が見られないことを確認した。

・ 試験結果

<リグ1>

- (1) 24GWd/tの照射材：最高温度約710℃、650℃以上の時間約25秒
- (2) 29GWd/tの照射材：最高温度約560℃、550℃以上の時間約22秒

<リグ2>

- (1) 26GWd/tの照射材：最高温度約730℃、650℃以上の時間約17秒
- (2) 40GWd/tの照射材：最高温度約800℃、650℃以上の時間約14秒
- (3) 22GWd/tの照射材：熱電対不良のため実験中止

今後は、残り1つの照射リグを実施すると共に、過渡沸騰遷移試験に供したセグメント燃料の照射後試験を行う予定である (Fig.11-6)。

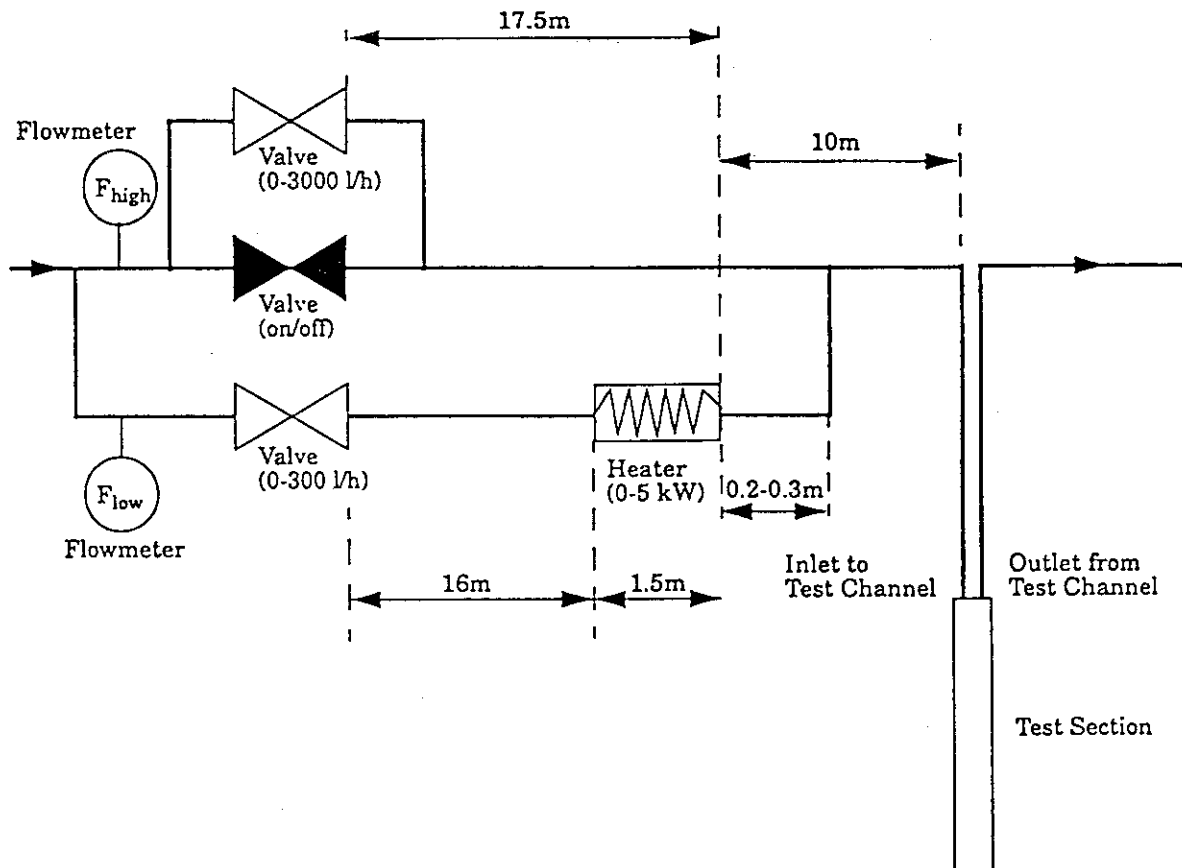


Fig.11-1 Flow Control System

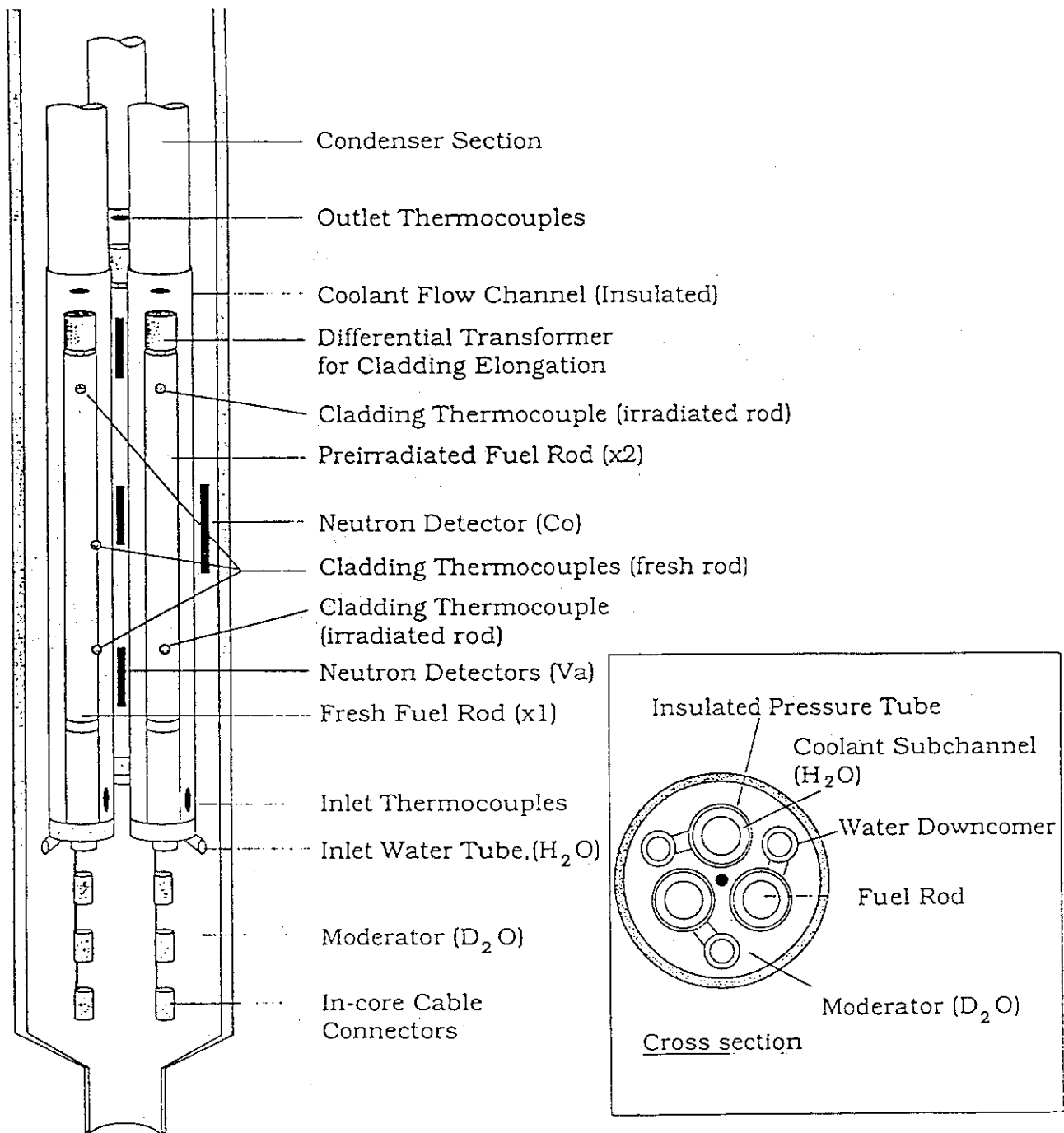


Fig.11-2 Schematic of Test Rig IFA-613

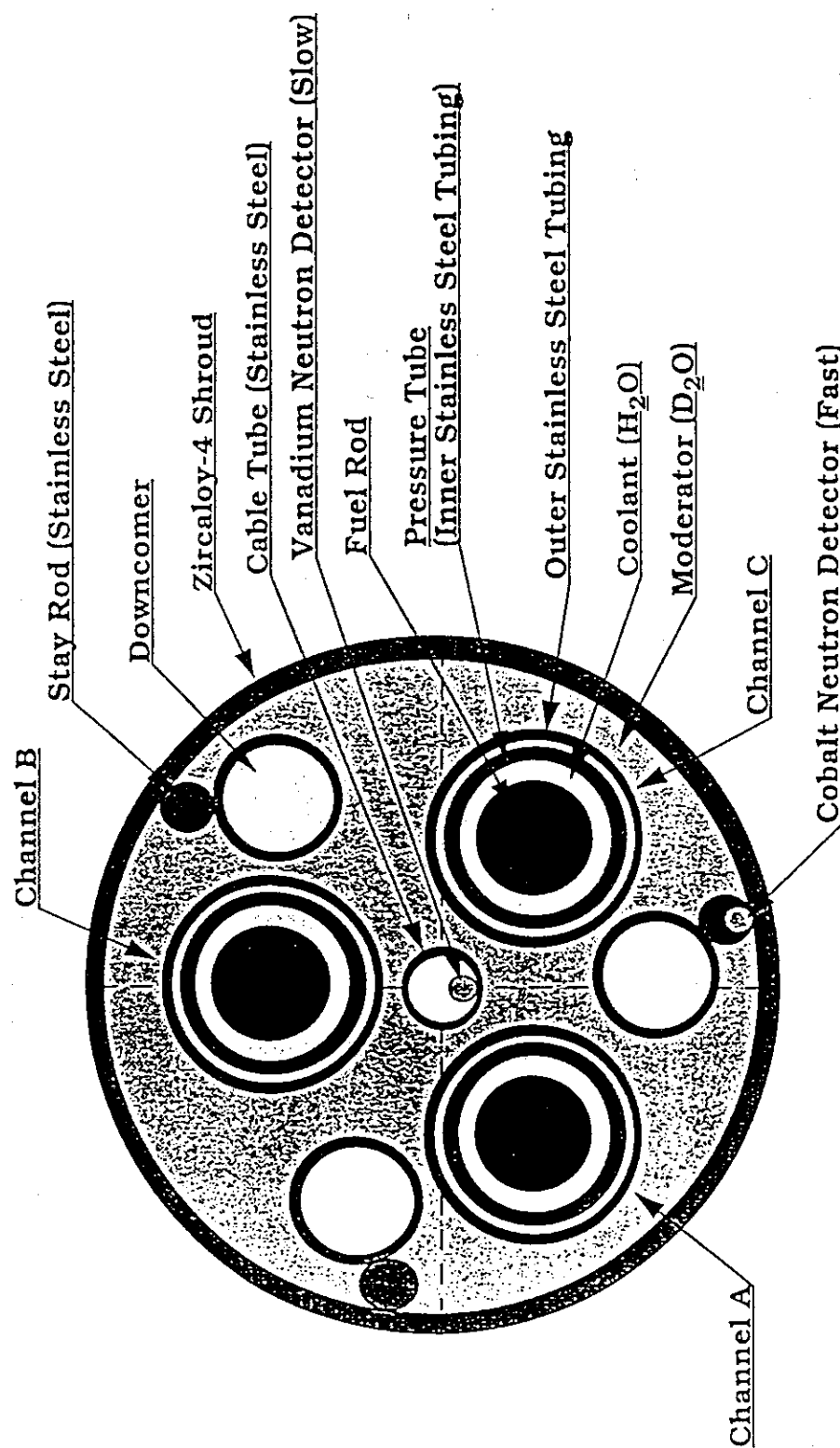


Fig.11-3 Cross Section of IFA-613

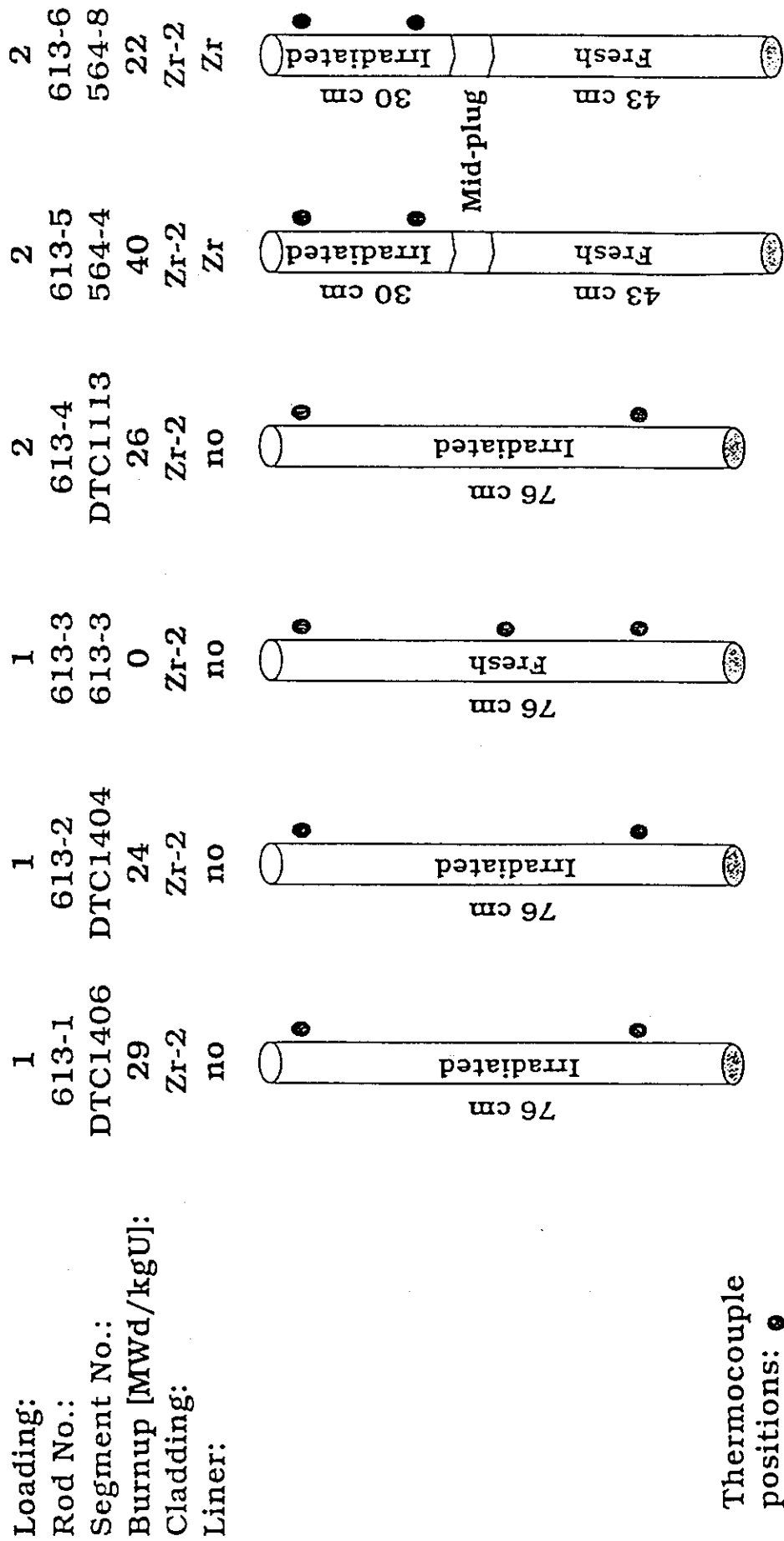


Fig.11-4 Segments Tested in IFA-613.1 & IFA-613.2

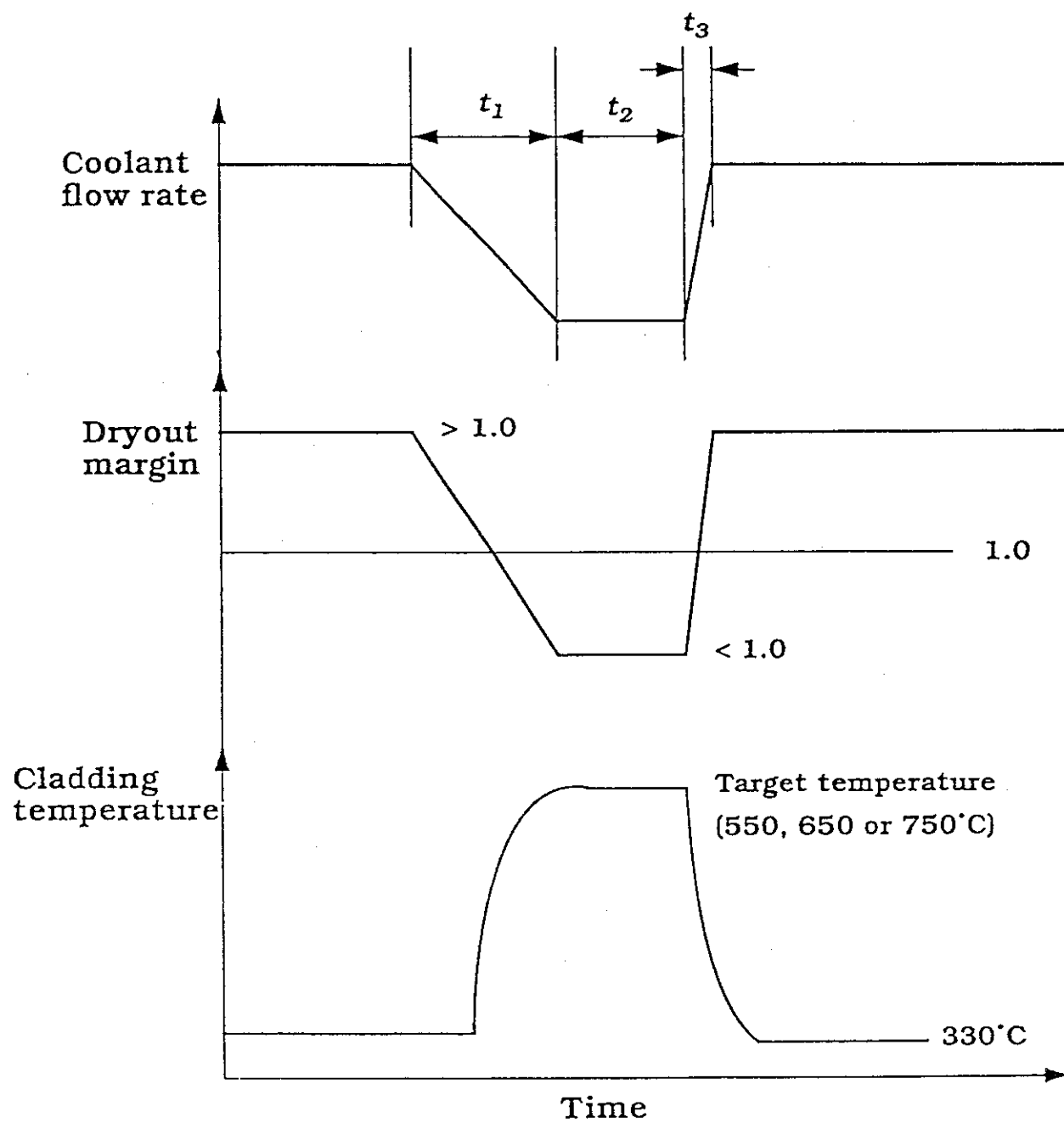


Fig.11-5 Idealised Experimental Procedure

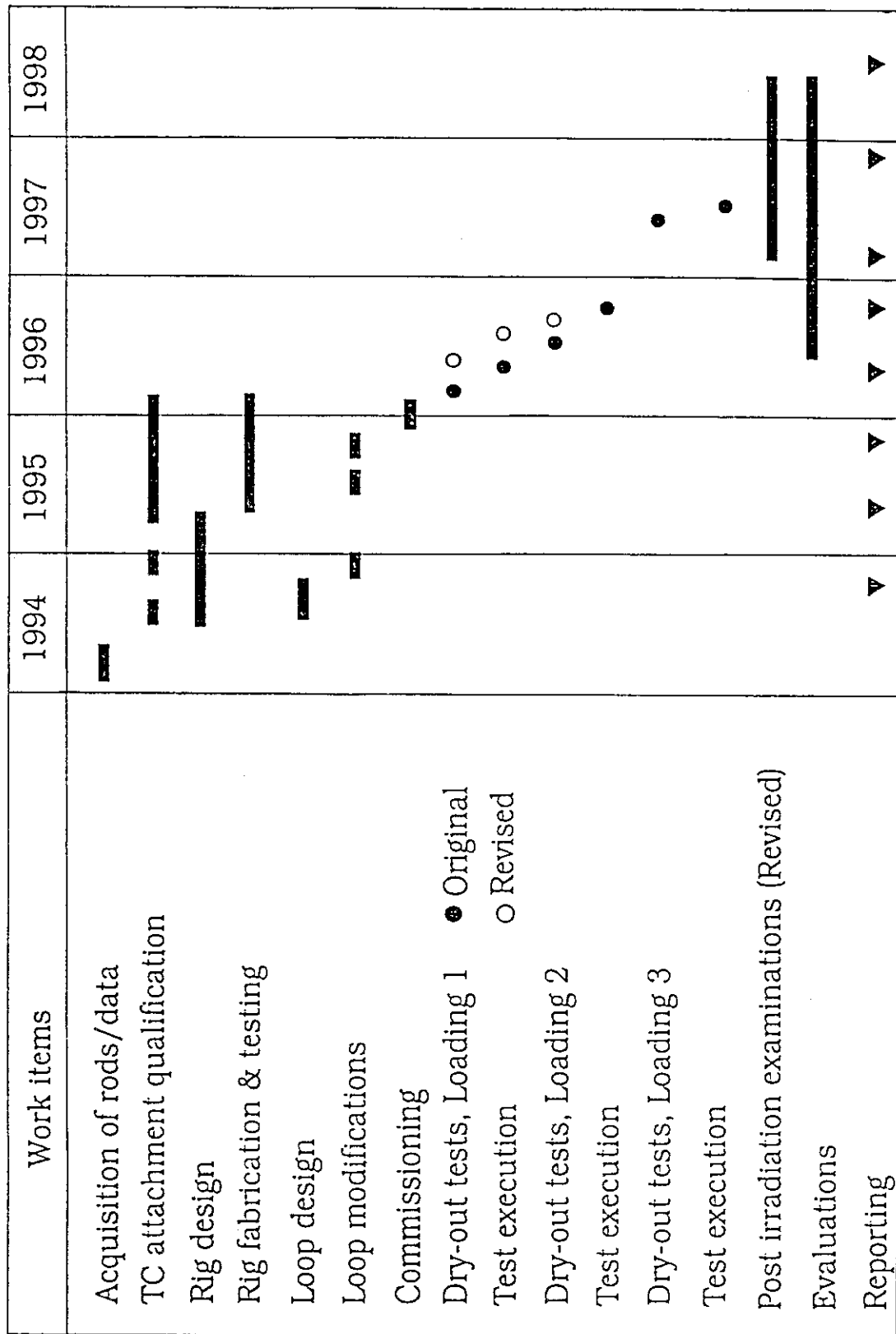


Fig.11-6 Time Schedule (Revised December, 1996)

12. 総 括

一般に燃料照射研究は、計画の立案に始まり、試験燃料の製作、原子炉での照射、ホットラボでの照射後試験、試験結果の評価という手順を踏むため、研究成果を得るまでには長い時間を要する。さらに、最近では経済性向上のための高燃焼度化が強く指向されているため、開発研究としての燃料照射試験においても照射期間の長期化が一般化している。

今期、すなわち第10次協定の期間には、以下の10件のハルデン共同研究を実施した。

1. MOX燃料のHBWRにおける出力急昇試験
(動力炉・核燃料開発事業団／日本原子力研究所)
2. MOX-Gd₂O₃燃料のHBWRにおける照射試験
(動力炉・核燃料開発事業団／日本原子力研究所)
3. HBWRによる高燃焼時の軽水炉燃料挙動に関する研究
(電力中央研究所／日本原子力研究所)
4. ハルデンHBWRにおける新型燃料の照射挙動に関する研究
(日本核燃料開発／日本原子力研究所)
5. HBWRにおけるBWR用混合酸化物燃料(MOX)の照射挙動に関する研究
(日本核燃料開発／日本原子力研究所)
6. 混合酸化物燃料(MOX)の照射特性に関するハルデン炉での照射試験
(三菱重工／日本原子力研究所)
7. HBWRにおけるBWR用改良燃料の照射挙動に関する研究
(原子燃料工業／日本原子力研究所)
8. 高燃焼度燃料被覆管のHBWRにおける照射試験
(原子力発電技術機構／日本原子力研究所)
9. 高燃焼度PWR改良被覆管燃料棒のHBWRにおける照射試験
(原子力発電技術機構／日本原子力研究所)
10. HBWRにおける過渡沸騰遷移挙動の照射研究
(東京電力／東芝／日本原子力研究所)

このうちの2件、すなわち「MOX燃料のHBWRにおける出力急昇試験」(動燃事業団／原研)と「ハルデンHBWRにおける新型燃料の照射挙動に関する研究」(日本核燃料開発／原研)は、所期の成果を得て終了した。残り8件の共同研究は、1997年1月から1999年12月を契約期間とする第11次ハルデン協定が締結されたことに伴い、共同研究契約を更新し研究を継続実施中である。

今期の共同研究により、MOX燃料や高燃焼度化に対応して開発された新型燃料の照射挙動等に関して有用な知見が取得された。

謝 辞

ハルデン共同研究は日本原子力研究所と国内諸機関が共同研究契約に基づいて実施している研究であり、OECD / ハルデン原子炉計画との密接な関連の下で進めているものである。国内外の多くの関係者の協力を得てはじめて実現できる研究であることは言を待たない。ここに本計画の運営や共同研究の円滑な遂行に対して御協力頂いた多くの方々に深謝する。