

(T) 94' 10. 21

PNC N243 81-03

高速炉用燃料要素の照射実績



昭和 56 年 10 月

動力炉・核燃料開発事業団

PNC N243 81-03

昭和56年10月

高速炉用燃料要素の照射実績

石田泰一*
渡辺昌介**
小松純治*
河田東海夫*

要旨

高速炉用燃料開発計画の一環として、ラプソディ、DFR等、海外の高速炉を利用して行なった燃料要素照射試験の概要及び高速実験炉「常陽」における燃料の燃焼実績をまとめた。またこれらの燃料から得られた主要な照射後試験データを整理して示した。

* 高速増殖炉開発本部

** 大洗工学センター燃料材料試験部

目 次

1. まえがき	1
2. 国産燃料要素の高速炉照射実績	2
3. 海外における照射実績との比較	4
4. 主要な照射データの評価	6
5. まとめ	9

1. まえがき

高速実験炉「常陽」及び高速増殖原型炉「もんじゅ」に使用する燃料要素はともにプルトニウム・ウラン混合酸化物燃料ペレットをステンレス鋼製被ふく管に密封したもので、その基本仕様は過去の長期にわたる内外での研究成果や海外の高速炉での使用経験により、優れた性能が示されている典型的な高速炉燃料要素の仕様の範囲にその諸元が選択されている。各国の主な高速炉における燃料仕様を第1表に比較して示した。

「もんじゅ」用燃料を既に運転中の「常陽」用燃料と比較した場合の特徴は高燃焼度までの使用に耐えるよう被覆管肉厚を厚くし、また核分裂生成ガス（FPガス）を溜めるプレナム部の長さを十分とるとともに、燃料ペレットのスエリング吸収しろ確保のため、燃料ペレット密度を低く（約85%理論密度）設定していることである。

以上のような設計概念にもとづく国産の燃料要素について実際にその性能を確認し、評価するために動力炉・核燃料開発事業団（動燃）ではDFR（英）、ラプソディ（仏）等の高速実験炉を利用した一連の照射試験を計画し、実施してきた。試験は燃料要素のふるまいを燃焼を追って確認・評価するために燃焼度を段階的に変えて実施し、最終的には「もんじゅ」用燃料の最高燃焼度を上まわる113,000MWD/T（要素平均）の燃焼度を健全な状態で達成した。

2. 国産燃料要素の高速炉照射実績

(1) 海外の高速炉を利用した照射実績¹⁾

D F R およびラプソディで照射した燃料要素の仕様と照射条件の概略を第 2 表に、また試験のスケジュールを第 1 図に示した。これらの一連の試験でこれまでに照射した燃料要素本数は約 100 本になる。

試験に用いた照射リグまたは集合体は非密封型で、いずれの試験においても燃料要素は原子炉の一次冷却材で直接冷却されている。

試験に使用した燃料要素仕様の概略を「常陽」及び「もんじゅ」用の燃料と比較して第 2 図に示した。

こうした燃料要素を用いて行なった試験の照射条件を第 3 図に示すが、最高到達燃焼度は Rapsodie PNC-4 試験の 113,000 MWD/T(要素平均値)であり、「もんじゅ」燃料の最高燃焼度(98,000 MWD/T)を上まわる。

これらの燃料要素はいずれも国内のメーカーで製造された被覆管を用い、燃料ペレットの製造および要素の組立・加工は動燃東海事業所プルトニウム燃料部で行なわれた。完成した燃料要素は原子炉サイトに輸送され、照射リグへの組込み等は現地で行なわれた。

目標燃焼度の高い試験においては、燃焼途中におけるデータ取得のための中間検査を適宜実施した。

照射後試験は炉サイトおよび動燃大洗工学センターの照射後試験施設で実施したが、主要な試験項目としては次のようなものを含む。

非破壊試験

- 外観検査
- 寸法(直径、長さ、曲がり)測定
- 重量測定
- X線または中性子ラジオグラフィ
- ガンマ・スキャニング

破壊試験

- F P ガス捕集、分析
- 燃料断面の光顕観察

- 被ふく管スエリング測定
- 質量分析による燃焼度測定

(2) 高速実験炉「常陽」における燃焼実績

1977年に運転を開始した実験炉「常陽」では、1981年1月の時点で燃焼を終え炉外に取出されたもの及び炉内で燃焼中のものを合計すると、燃料集合体数で92体、燃料要素本数にして約8,400本となる。この間に達成した燃焼度のヒストグラムを第4図に示すが、最高到達燃焼度は約32,000MWD/Tである。

3. 海外における照射実績との比較

各国で開発が進められている高速炉用の燃料要素はいずれも「常陽」、「もんじゅ」の場合と同様に Pu-U酸化物燃料を 316 系またはそれと等価なオーステナイト系ステンレス鋼で被覆したものであるが、各国ともその性能確認のため多数の照射試験を実施している。海外における燃料要素照射実績（昭和 54 年はじめまで）を到達燃焼度（ペレット最高^注）に着目して整理すると以下の通りである。

(1) フランス 2)³⁾

フランスでは 1967 年に稼動開始した実験用高速炉ラプソディが 1970 年に照射用炉心（フォルティシモ炉心）に改造した後も順調な稼動を続け、これまでに約 27,500 本の燃料要素が照射されている。ラプソディ炉のドライバー燃料の目標燃焼度は当初約 60,000 MWD/T とされていたが、その後性能が優れていることが確認されるに従って引上げられ、現在では約 100,000 MWD/T となっている。第 5 図にラプソディ炉で照射された燃料要素の到達燃焼度別ヒストグラムを示したが、これまでに約 2,000 本が 100,000 MWD/T 以上の燃焼度に到達している。最高到達燃焼度はドライバー燃料で約 180,000 MWD/T、試験用燃料では 230,000 MWD/T に至っている。

1974 年に稼動開始した原型炉フェニックスでは 1980 年 4 月の時点で照射を終えた燃料要素本数は合計で約 90,000 本に達する。このうち 30,000 本以上が当初の目標燃焼度である 55,000 MWD/T を超えて照射され、最高約 96,000 MW D/T を達成したものもある。

(2) 米国⁴⁾

米国では EBR-II を利用してこれまでに 2,700 本以上の混合酸化物燃料要素の照射が行なわれている。これらの大部分は FFTF や CRBR 用燃料開発のために、主にワイヤ型の集合体で照射されたもので、多数本の燃料要素でピーク燃焼度が 100,000 MWD/T を超えており、中には約 180,000 MWD/T に至ったものである。

(3) 英国⁵⁾

英国における混合酸化物燃料要素の照射試験は DFR で実施され、

^注 試験燃料における燃焼度のペレット・ピーク対要素平均値は約 1.1 ~ 1.2 である。

1977年に炉が閉鎖されるまでの間に約1,100本が照射された。これらはグリッド型集合体か、またはトレフォイルと呼ばれるキャップセルによって照射されたもので、集合体照射では約130,000MWD/Tの燃焼度が達成されている。またキャップセルによる燃料要素照射では最高190,000MWD/Tの燃焼度を得ている。

一方、原型炉PFRのドライバー燃料(325本の燃料要素からなるグリッド型集合体)は1980年3月の時点で約50,000MWD/Tの燃焼度に至っており、また同炉内で照射されている先行加速試験用燃料要素の場合にはピーク燃焼度は約80,000MWD/Tに到達している。

(4) 西独⁶⁾

西独ではSNR-300用の燃料開発のために英国のDFRおよびフランスのラプソディ高速実験炉で合計約200本の混合酸化物燃料要素の照射を行なった。この照射計画の中で最高105,000MWD/Tの燃焼度を達成している。

以上各国の高速炉用燃料における燃焼度達成実績を第3表に整理して示した。この表から明らかなように各国の燃料で100,000MWD/Tを超す燃焼度が達成されており、一般に高速炉用燃料要素がこうした高い燃焼度まで優れた安定性を發揮することが示されている。

4. 主要な照射データの評価

(1) 燃料の熱的特性

85%理論密度の燃料ペレットを使用した燃料要素の照射後断面金相写真の典型例を第6図に示す。高速炉用燃料の場合、ある程度高い線出力条件下($>300\text{W/cm}$)ではペレット内に生ずる急激な温度勾配の影響で燃料組織の変化が起こり、第6図の例に見られるような中心空孔が生成する。この様な組織変化の状態から燃料ペレットのおおよその温度を評価することができ、照射条件を考慮することにより燃料温度計算上重要なパラメータであるギャップ・コンダクタンスを算出することができる。こうした方法により多数の照射後燃料断面の金相写真データを解析評価した結果を設計に反映している。

なお一連の高速炉照射試験における燃料の最高線出力は第6図に示したように約400～500W/cmであり、最高燃焼度は100,000MWD/Tを超えており、いずれの試験においても、照射後断面金相写真上で燃料の溶融は認められなかった。

(2) FPガス放出率

一連の高速炉照射試験で得られたFPガス放出率データを整理すると、第7図に示すように燃焼度とともに増大し、約70,000MWD/T以上では90%以上となる。FPガス放出率は一般に線出力が高くなるに従って増加する傾向がある。

(3) 被覆管内面の腐食

高速炉用燃料被覆管としては、各国の炉とも高温強度と耐食性に優れた316系またはそれと類似のオーステナイト系ステンレス鋼を使用しているが、燃焼度が高くなると内部に蓄積する核分裂生成物の影響により、被覆管内面には高温部で第6図に見られるような腐食が起こる。腐食深さはこうした燃料要素断面の金相写真から被覆管残留肉厚を測定することにより、評価することができる。

高速炉で照射した国産燃料要素の被覆管で測定された内面腐食データを被覆管内面温度に対して整理して第8図に示す。同図では腐食は500°C以上で起こり、温度とともに増大するが、600°Cを超えると飽和傾向かまたはむしろ減少の傾向が現れている。腐食深さはこのほか燃料の酸素対金属比(O/M)や燃焼度に依存することが明らかになっており、O/Mについてはこれが大きくなるに従って腐食深さは増大する傾向がある。⁷⁾第8図ではO/Mに関しては通常の燃料仕様の上限である約2.0が

包絡されており、また燃焼度については要素平均で最高約 113,000 MWD/Tまでのデータが含まれている。

被覆管内面の腐食は燃料の O/M 比を低めにすることによって抑えられるほか、被覆管内面または燃料ペレット表面を Ti 等の酸素ゲッターでコーティングすることによっても、低減化できることが明らかになっており、内外でこうした方面での研究開発が進められている。

(4) 被覆管の外径増加

燃料要素の被覆管外径は燃焼の進行に伴って次第に増加する。その原因は主に高速中性子照射の影響によって起こる被覆管自身のスエリング(膨脹)と FP ガス内圧の影響下での照射クリープによる変形であり、高燃焼度まで燃焼後の燃料要素で観察された外径増加の軸方向分布の典型例を第 9 図に示す。この例では外径増加率の最大値は約 2.4 % で、そのうち約 1.3 % がスエリングの寄与であり、残りが照射クリープ変形であるが、海外の照射試験では被覆管が損傷することなく外径増加率が 10 % 近くまで到達した例も報告されている。⁸⁾こうした試験結果から、スエリング及び照射クリープによる変形は被覆管の健全性を直接損うものではないと考えられるが、寸法形状安定性の観点からは、これらはできる限り小さいことが望ましい。

第 9 図に外径増加の例を示した燃料要素の被覆管としては 316 ステンレス鋼が用いられている。316 ステンレス鋼は 304 ステンレス鋼等と比べると耐スエリング特性に優れた材料であるが、その後の内外の研究によりそのスエリング特性は従来単に不純物と見做されていた微量元素によっても影響を受けることが明らかにされ、こうした微量元素量の最適化により 316 ステンレス鋼の耐スエリング性を更に改善する研究開発が過去数年間にわたって進められてきた。

高速増殖原型炉「もんじゅ」では、高速実験炉「常陽」に比べ、燃料をより高い燃焼度まで使用するため、こうして耐スエリング性の向上をはかった 316 ステンレス鋼が被覆管に用いられる。

ま　と　め

国産の高速炉用燃料要素の照射実績を整理した。これらの試験で達成された最高燃焼度は約 113,000 MWD/T で高速増殖原型炉「もんじゅ」用燃料の最高使用条件を上まわる。

また海外においては更に高い燃焼度を達成した例が多数報告されている。

一連の照射試験から FP ガス放出率その他燃料設計上、重要なデータを燃焼度その他の照射条件や燃料製造条件をパラメータに系統的に得ることができ、これらは「もんじゅ」等の燃料の設計に反映されている。

高速実験炉「常陽」は現在の「MK-Ⅰ」と呼ばれている炉心構成で熱出力 7.5 MW の運転を継続しているが、1981年末月をもって運転を完了し、新たに照射試験炉として「MK-Ⅱ」炉心に移行することが計画されている。「MK-Ⅰ」運転完了時には燃料要素数にして約 8,900 本が照射されたことになり、最高到達燃焼度は約 42,000 MWD/T となる見込みである。これらの燃料の照射後試験および解析によってデータの一層の拡充が行なえるとともに、従来不充分であった集合体全体としての炉内挙動に関するデータが蓄積されつつある。

なお、「常陽、MK-Ⅱ」における新たな一連の照射試験に関しては、既にその一部について照射装置製作の準備等が開始されている。当初の計画の主要部分は「もんじゅ」型の燃料要素または集合体の照射試験であり、実機の運転に先行してその性能を確認することを主眼としているが、これらは今後の高速炉燃料設計において信頼性および経済性を一段と向上させる上で貴重なデータを提供することとなる。

参考文献

- (1) 動燃事業団「高速増殖炉開発のための燃料材料照射計画進捗状況」(1978年度版)、
N241 78-09, 1978年4月
- (2) P.M.Chantoin, "Rapsodie-Outil Experimental d'Irradiation,"
Proceedings of International Conference on Irradiation Behaviour
of Metalic Materials for Fast Reactor Core Components, Ajaccio, 1979
- (3) F.Conte, "La Centrale Nucleaire PHENIX Apres Six Annees d'
Exploitation", April 1980 (CEA発行パンフレット)
- (4) R.D. Leggett et al., "Steady-State Irradiation Behavior of Mixed
Oxide Fuel Pins Irradiated in EBR-II", Proceedings of International
Conforence on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey,
March 1979
- (5) E.Edmonds et al., "Mixed Oxide Fuel Performance", Proceedings
of International Conference on Fast Breeder Reactor Fuel Perfor-
mance, Monterey, March 1979
- (6) K.R.Kummerer, "The German Oxide Fuel Pin Irradiation Test
Experience for East Reactors", Proceedings of International
Conference on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey,
March 1979
- (7) L.A.Lawrence et.al., "Effects of Stoichiometry on Cladding Reaction
in Mixed-Oxide Fuel at High Burnup", Trans. Am. Nucl. Soc., 28,
210, 1978
- (8) G.Marbach et.al., "Cladding Deformations in Rapsodie and
Consequences", Proceedings of International Conference on Fast
Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, March 1979

第1表 各国の高速炉用炉心燃料の主要目の比較

項目	「常陽」Mk-I (日)	もんじゅ (日)	Rapsodie Fortissimo (仏)	Phenix (仏)	CRBR (米)	PFR (英)	SNR (西独)
被覆管外径 (mm)	6.3	6.5	5.1	6.55	5.84	5.84	6.0
肉厚 (mm)	0.35	0.47	0.37	0.45	0.38	0.38	0.38
燃料ペレット径 (mm)	5.4	5.4	4.2	5.5	4.9	—	5.1
燃料密度 (%TD)	93.5	85	92	85	91.3	80 (スマニア密度)	86.5
ペレット被覆管ギャップ (μ)	200	160	130	150	165	—	150
燃料要素全長 (m)	約1.9	約2.8	約0.53	約1.8	約2.7	約2.3	約2.5
炉心燃料長さ (mm)	600	930	322	850	914	914	950
軸方向ブランケット長さ (mm)	400/400	300/350	—	* / 300	355/355	* / 457	400/400
プレナム対炉心燃料長さ比 (mm)	約0.7(上)	約1.2(上)	約0.5(下)	約0.6(下)	約1.3(上)	約0.8(下)	約0.7(下)
集合体全長 (m)	約3.0	約4.2	約1.7	約4.3	約4.6	約3.8	約3.7
ラッパ管外対面間寸法 (mm)	78.5	110.6	49.8	123.7	116.2	142	110.2
燃料要素本数	91	169	61	217	217	325	166
スペーサ型式	ワイヤー	ワイヤー	ワイヤー	ワイヤー	ワイヤー	グリッド	グリッド

* 上部ブランケット分離型

第2表 燃料要素の仕様および照射条件概略

試験名	概要	燃料要素仕様概略										照射条件概略						
		本数	燃料要素長さ			被ふく管			燃料			照射炉	最大線出力密度(W/cm)	被ふく管最高温度(°C)	最高燃焼度(MWD/T)	フレックス(E>0.1MeV)(10 ²² n/cm ²)		
			全長(mm)	燃料カラム(mm)	ガスブレナム(mm)	外径(mm)	肉厚(mm)	加工度(%)	ペレット径(mm)	密度(%TD)	PuO ₂ 富化度(%)							
DFR332/2	短尺燃料ピンを高速中性子下で照射。 冷却材はNaK下向流。	6	266	195	20 1 30	6.3	0.35	10	5.5	96	18	DFR	510	642	11,000	0.8		
DFR332/3	中尺燃料ピンを高速中性子下で照射。 冷却材はNaK下向流。	3	530	370	82	6.3	0.35	10	5.5	94	18	DFR	506	646	40,000	3.1		
DFR332/5	中尺燃料ピンを高速中性子下で照射。 冷却材はNaK下向流。	3	550	380	120	6.3	0.35	10	5.5	94	18	DFR	432	652	50,000	5.4		
Rapsodie PNC-1	燃料集合体(グリッド型)を高速中性子束下で照射。 冷却材はNa上向流。	34	1,000	320	185	6.3	0.35	10	5.5	92 96	18	Rapsodie	416	604	32,000	3.1		
DFR332/6	中尺燃料ピンを高速中性子下で照射。 冷却材はNaK下向流。	3	550	390	110	6.3	0.35	10	5.4	85	20	DFR	412	650	57,000	4.4		
DFR332/9	同上	3	550	360	140	6.3	0.35	10	5.4	85	20	DFR	423	663	82,000	6.4		
DFR332/10	DFR332/9のうちの2本ピンを破損に至るまで照射することにより、実際のピン寿命を把握する。未照射ピン1本をあわせて照射。	2 1	550	360	140	6.3	0.35	10	5.4	85	20	DFR	434 495	662 688	109,000 31,000	8.7 2.4		
Rapsodie PNC-2	中尺燃料ピンを高速中性子下で照射。 冷却材はNa上向流。	4	1,000	320	222	6.3	0.35	10	5.4	85	20	Rapsodie	494	616	62,000	6.6		
Rapsodie PNC-4	同上	3 1 3	1,000 320 242	320 242	6.3	0.35	10	5.4	85	20	Rapsodie	481 474 488	611 608 613	50,000 113,000 68,000	5.3 12.3 7.1			
Rapsodie PNC-5	燃料集合体(グリッド型)を高速中性子束下で照射。 冷却材はNa上向流。	34	985	320	190	6.5	0.45	20	5.4	85	20	Rapsodie	480	608	52,500	4.6		

第3表 高速炉用燃料要素照射実績の比較

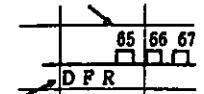
国 名	照 射 炉	燃料要素 照射本数	最高到達燃焼度 (ペレット・ピーク値) MWD/T	備 考
フランス	ラプソディ	約27,500	Ⓐ 約180,000 Ⓑ 約230,000	1978年末まで
	フェニックス	約90,000	Ⓐ 約 96,000	1980年4月まで
米 国	EBR-II	約 2,700	Ⓐ 約180,000	1978年末まで
英 国	DFR	約 1,100	Ⓐ 約130,000 Ⓑ 約190,000	1977年末まで
	PFR	約40,000	Ⓐ 約 50,000 Ⓑ 約 80,000	1980年3月まで
西 独	ラプソディ DFR	約 200	Ⓐ 約105,000	1978年末まで
日 本	ラプソディ DFR	約 100	Ⓐ 約 59,000 Ⓑ 約128,000	1981年1月まで
	常 陽	約 8,400	Ⓐ 約 32,000	1981年1月まで

{Ⓐ 集合体としての照射
Ⓑ 少数または単体の燃料要素としての照射

第1図 高速炉燃料照射計画

No.	試験名	44		45		46		47		48		49		50		51		52		53		54		
		4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	4	10	
1	DFR 332/2			64																				
2	DFR 332/3				66	67	68	69																
3	DFR 332/5				68	69	70	71			73													
4	Rapsodie PNC-1			14	15	16	17	18																
5	DFR 332/6				69	70	71	72	73															
6	DFR 332/9				69	70	71	72	73		75	76												
7	DFR 332/10 (DFR-RTF)															78	79							
8	Rapsodie PNC-2				28	29	30	31	32	33	34													
9	Rapsodie PNC-4									33	34	35	36	37										
10	Rapsodie PNC-5										39	40	41	43	44	45								

炉の運転サイクル No.



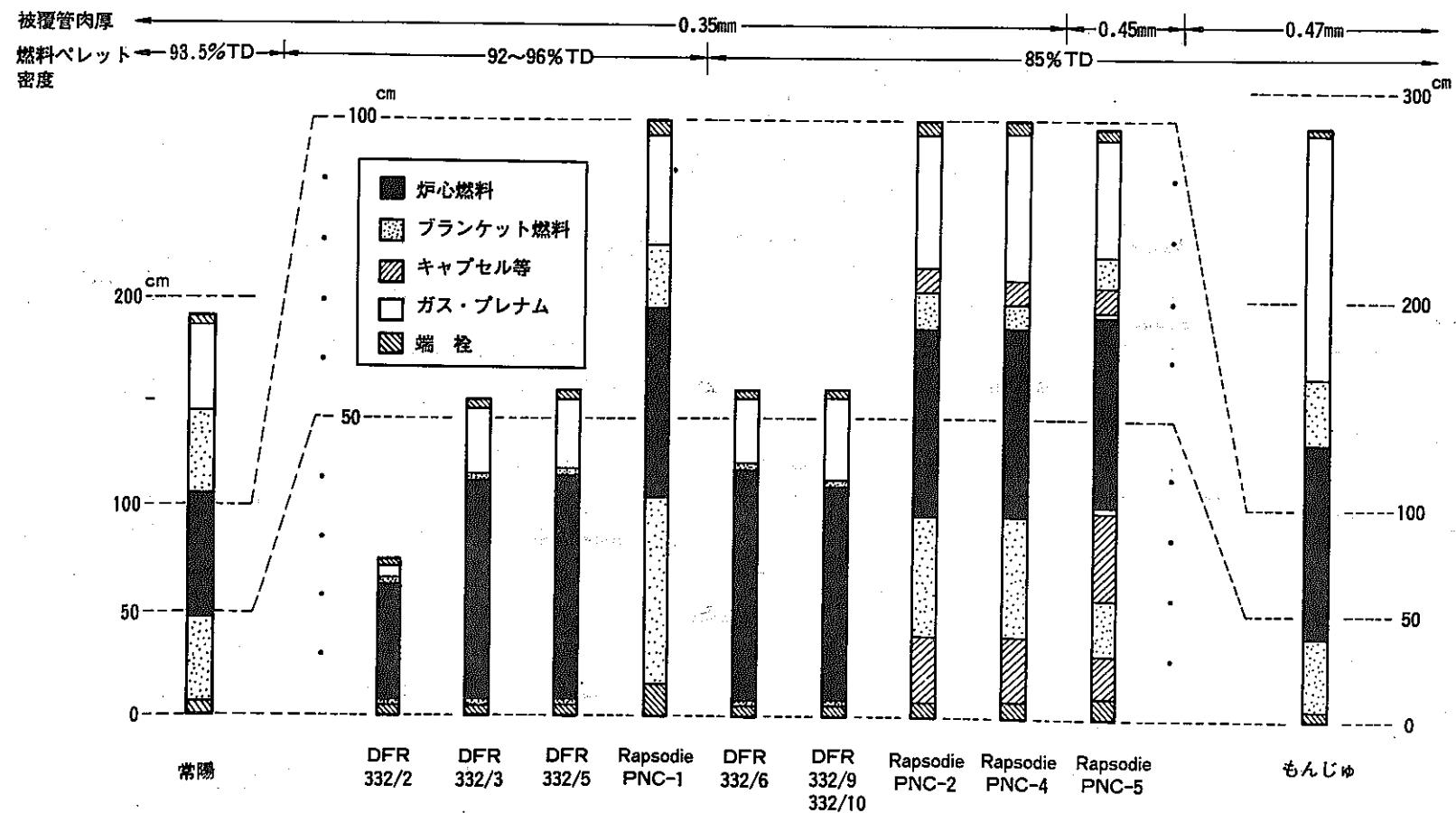
利用照射炉名

照 射

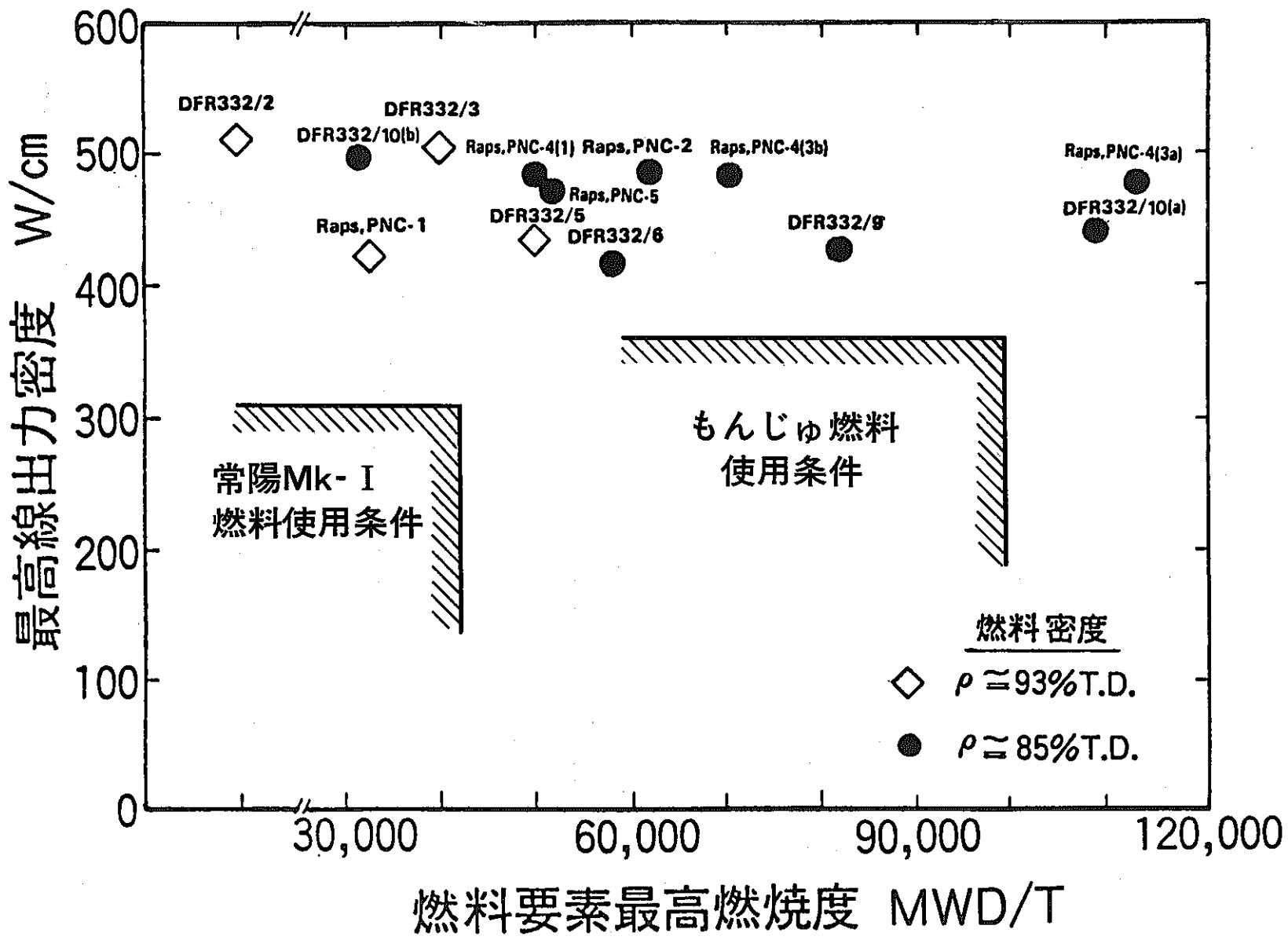
中間検査

原子炉のサイトに
おける 照射後試験

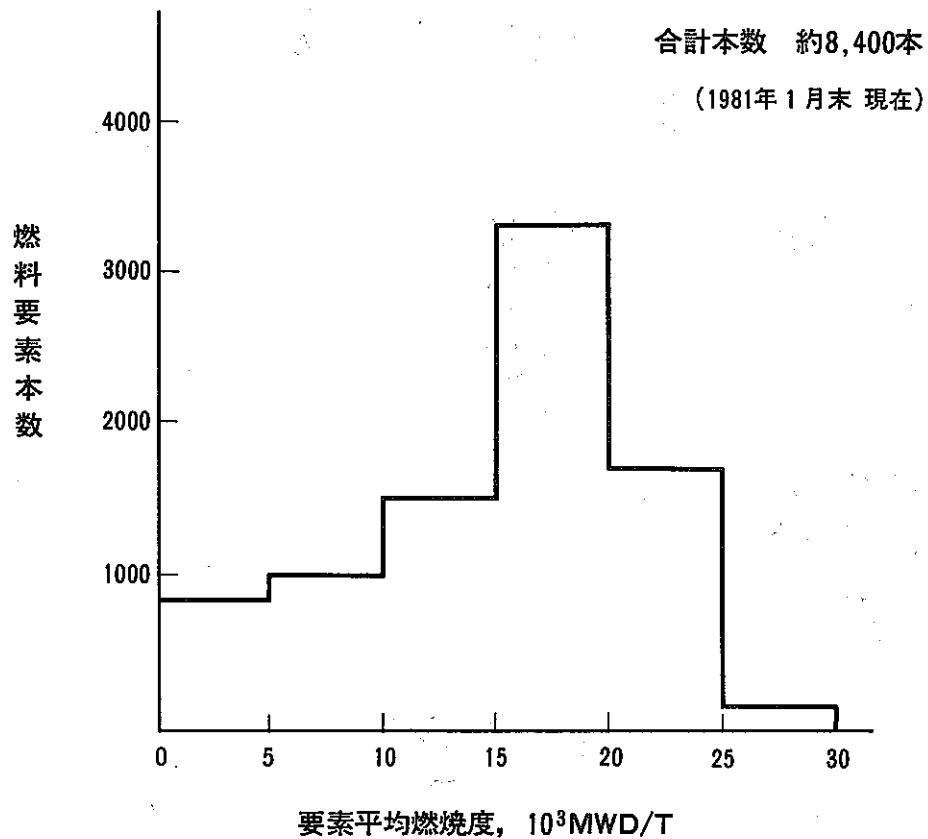
大洗工学センター
(AGF) における
照射後試験



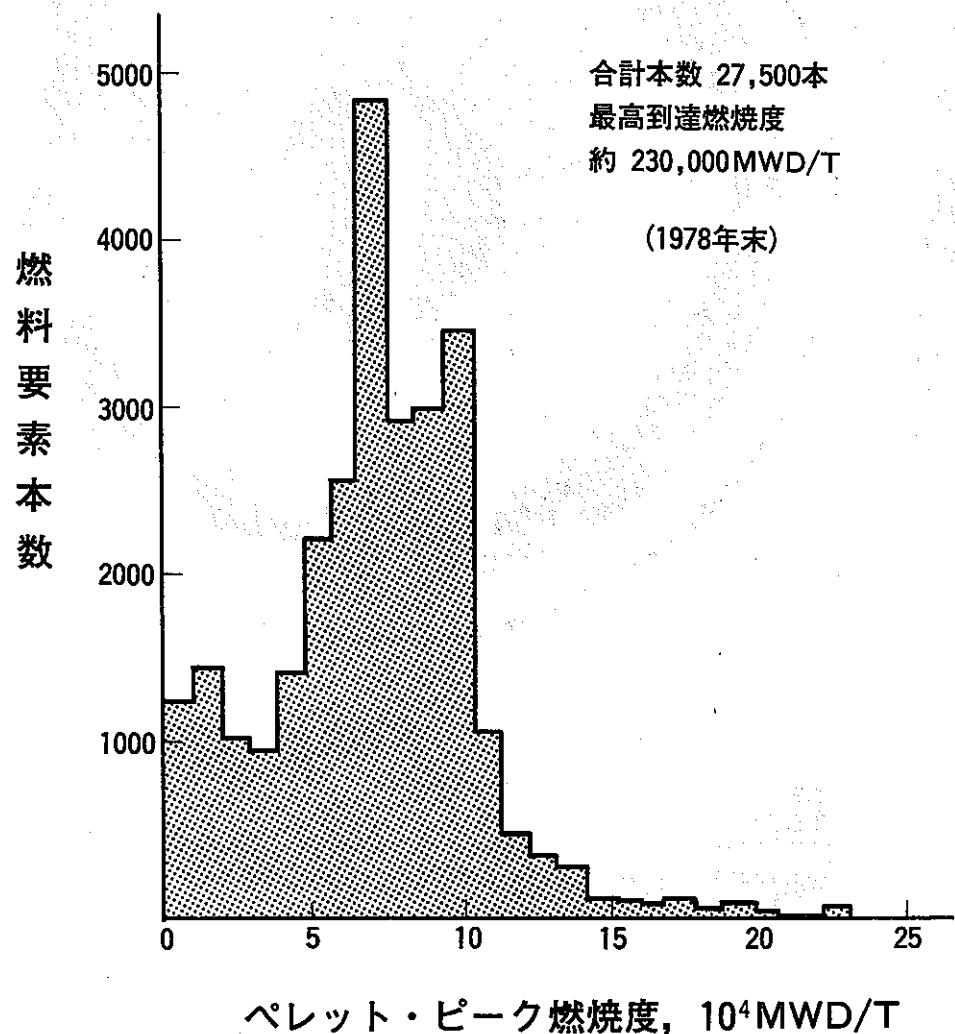
第2図 照射試験用燃料要素の比較



第3図 国産高速炉用燃料要素の照射実績

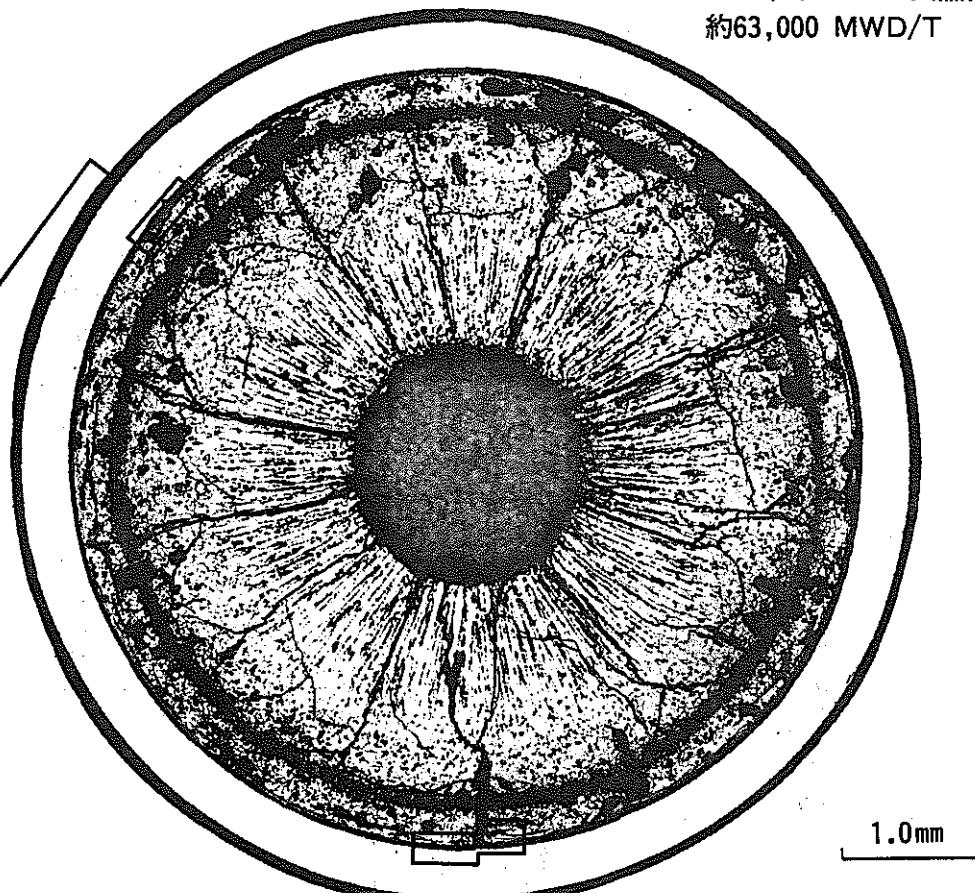
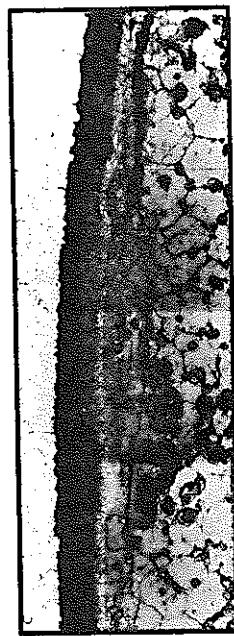


第4図 「常陽」における燃焼度到達実績

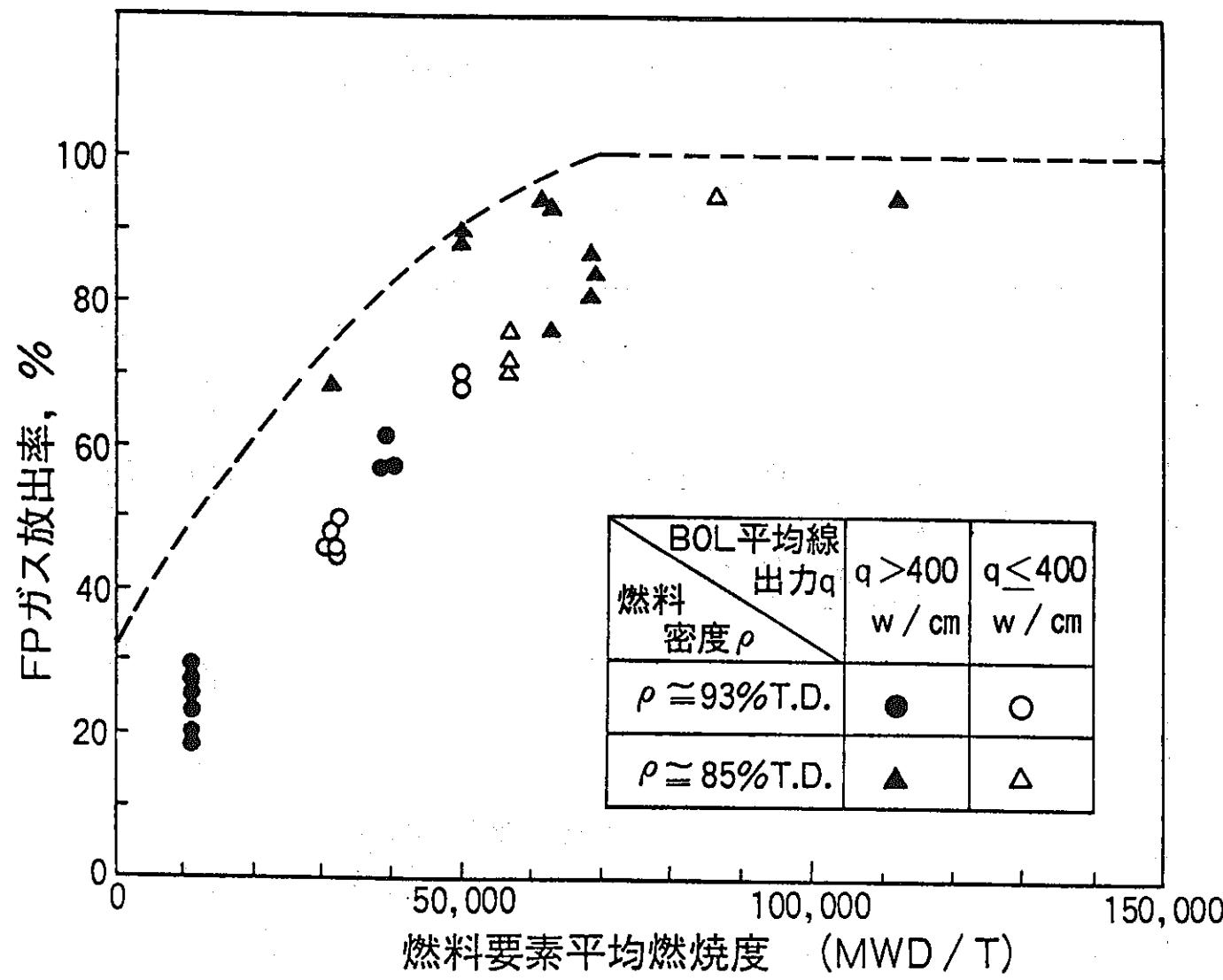


第5図 ラプソディ炉における
燃焼度到達実績(フランス)

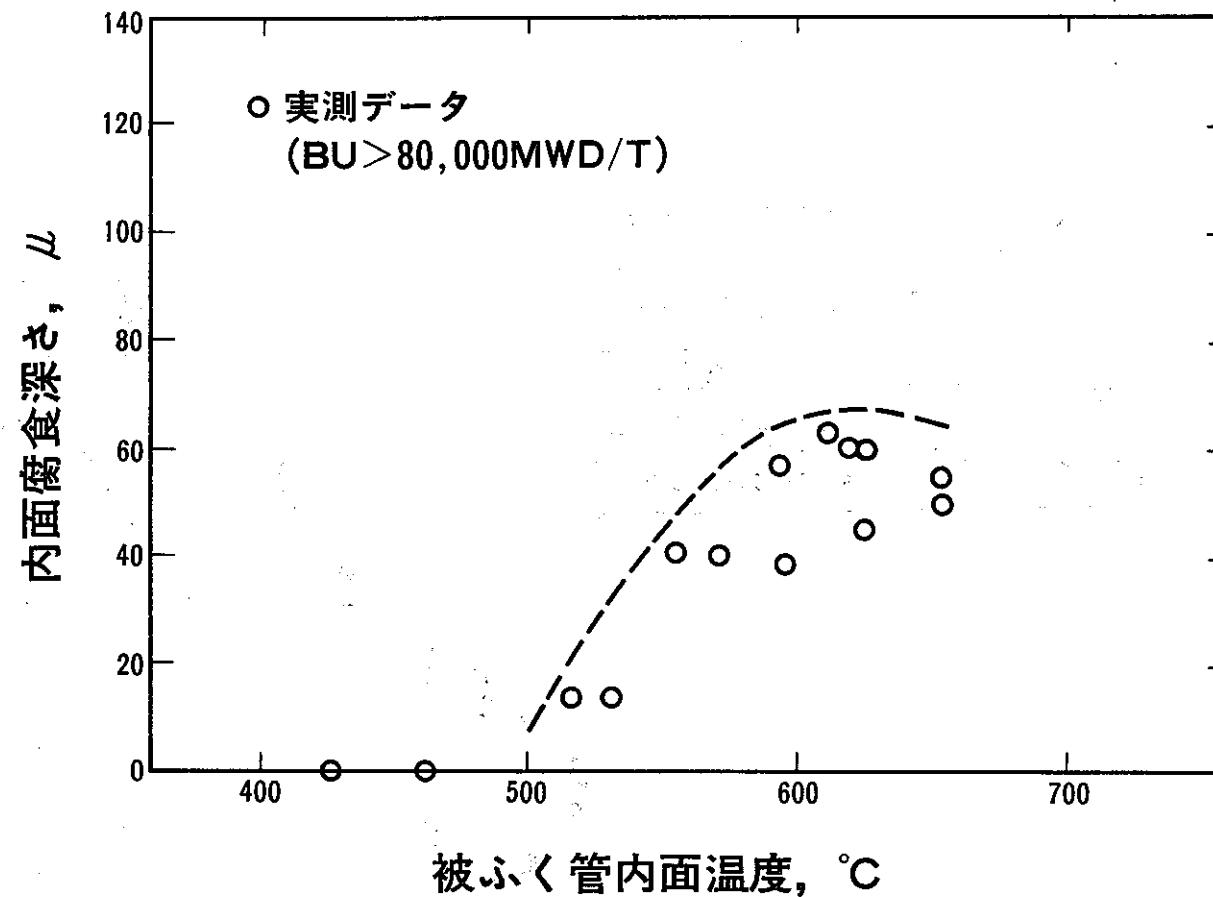
DFR 332/6
Pin No. 6 - 4
ペレット・ピーク燃焼度
約63,000 MWD/T



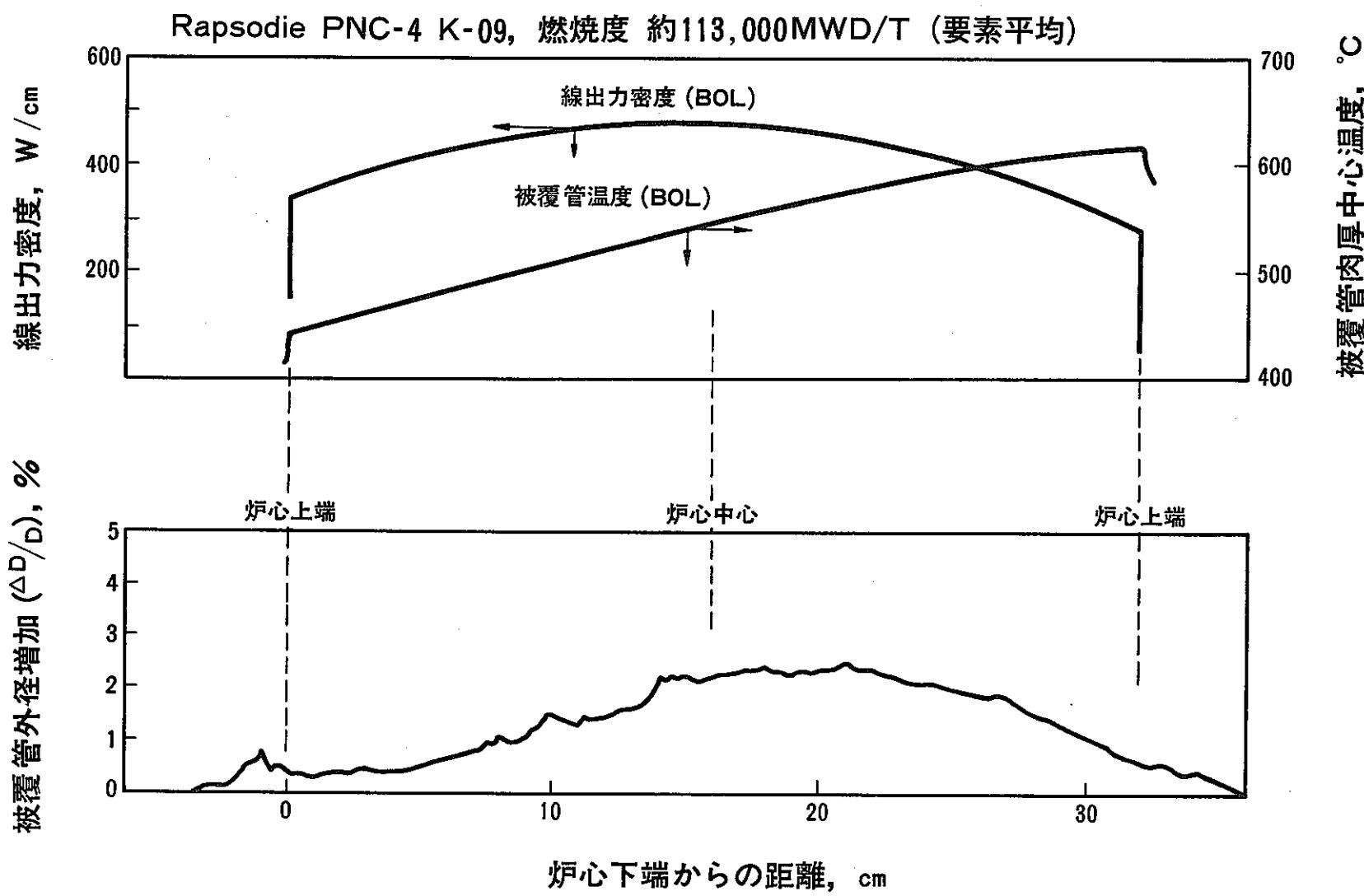
第6図 照射後燃料要素断面の金相写真の例



第7図 国産混合酸化物燃料のF.P.ガス放出率



第8図 被覆管内面腐食深さの温度依存性



第9図 燃料被覆管外径増加の測定例