

MAINE YANKEE第I炉心燃料の性能評価

EVALUATION OF FUEL ROD PERFORMANCE
IN MAINE YANKEE CORE I

1977年11月

動力炉・核燃料開発事業団

複製あるいは入手については、下記にお問い合わせください。

茨城県那珂郡東海村 〒319-11

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所技術部研究管理課 ☎ 東海(02928)2-1111 内線 237

© Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation—1977

Enquiries about copyright and reproduction should be adressed to ;

Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation,

Tokai, Ibaraki, Post No.319-11, Japan.

EVALUATION OF FUEL ROD PERFORMANCE IN MAINE YANKEE CORE I

TASK C

EPRI NP-218
(Research Project 586-1)

Final Report

November 1976

Prepared by

Combustion Engineering, Inc.
C-E Power System
1 000 Prospect Hill Road
Windsor, Connecticut 06095

Principal Investigators

N. Fuhrman
V. Pasupathi
D. B. Scott
S. M. Temple
S. R. Pati
T. E. Hollowell

Prepared for

Electric Power Research Institute
3412 Hillview Avenue
Palo Alto, California 94304

Project Manager
Adrian Roberts

MAINE YANKEE第 I 炉心燃料の性能評価

実施責任者 湯 本 録 三*

翻 訳 者 金 田 健一郎*

要 旨

この資料は、Maine Yankee 第 I 炉心燃料で発生した燃料破損の原因を調査するために EPRI (Electric Power Research Institute) と CE (Combustion Engineering) が共同で行なった照射後試験の最終報告書を翻訳したものである。この資料の構成は以下のとおりである。

1. 序論
2. 概要および結論
3. プールサイド検査計画
4. ホット・セル試験の結果
5. 燃料棒の照射履歴
6. データ解析
7. 初期被覆管破損の原因
8. 参考文献

照射後試験およびそれで得られたデータの解析に基づいて、Maine Yankee 第 I 炉心で発生した燃料破損の原因は、ヨウ素のような核分裂生成物の存在下においてペレット-被覆管相互作用によって引き起こされた応力腐食割れ (SCC) である可能性が最も大きいと結論づけている。

* プルトニウム燃料部設計課

訳者まえがき

最近商業用軽水炉における燃料破損の事例が報告*されて来ているが、Maine Yankee 第 I 炉心で発生した燃料破損に関する最終報告書に記載されている照射後試験の結果は実に詳細であり、商業用軽水炉において発生した燃料破損に関して照射後試験結果を含めこれだけ詳細に報告された資料は他に見当たらない。

本資料は EPRI によって発表されたもので、原子力産業会議主催の昭和 51 年度原子動力研究会の燃料グループ（主査、鈴木弘茂東工大教授）の定例研究会において軽水炉燃料サブグループ（幹事、大井昇 NFD 技術部副部長）が調査対象として取り上げた。調査結果の概要は昭和 51 年度の原子動力研究会年会報告書にも記載されているが、軽水炉燃料の挙動および燃料破損の原因を理解するとともに今後の照射後試験解析を行なうに際しての参考資料とするためその全部を訳出した。なお、原資料を貸して戴きました新型転換炉開発本部の東昌夫主任研究員に心から感謝致します。

* D. Cordall, R. M. Cornell, K. W. Jones, J. S. Waddington, "Fuel Failures in the Dodewaard Boiling Water Reactor", Nuclear Technology, 34, No 3, 438~448 (1977)

概 要

この最終報告書は、第1サイクル中に観察された冷却材中のヨウ素放射能の増加によって刺激された Maine Yankee 第I炉心燃料の包括的な性能評価の結果を記載している。この計画は1974年7月の炉停止後に開始され、プールサイドにおける燃料検査および代表的な燃料棒のホット・セル試験を含んでいた。ホット・セル試験は2つのキャンペーンに分かれて行なわれ、Combustion Engineering (CE) による最初の試験の後 EPRI / CE 共同の調査が行なわれた。全体計画の主要な目的は、被覆管破損の主な原因を決定することであった。またこの試験によって、燃料挙動コードを評価するための燃料棒の性能データも得ることができた。

燃料棒破損パターンの重要な特徴は以下のとおりであった。

- (1) 破損した燃料棒は事実上すべてバッチB集合体の高出力位置のものであった。
- (2) 冷却材中のヨウ素放射能履歴に基づくと、破損は炉心平均燃焼度が5,000 MWD / MTU に達した後に始まっており、主に2つの出力変化—炉心出力の88% (最大局部出力 = 8.3 kw/ft) への最初の上昇、およびその後の炉心出力の95% (最大局部出力 = 9.0 kw/ft) への最初の上昇—と関係していた。破損が生じていた期間中、バッチB集合体は一般に炉心における最大出力集合体であった。

同様な照射条件下で運転された燃料棒の間に、2種類の核分裂ガス放出率 (1%以下および11.3~15.3%) が観察された。金相試験によって、 UO_2 の等軸晶成長は高いガス放出率を示した燃料棒だけに生じているということが分った。核分裂生成物の再分布の形跡 (evidence) も高いガス放出率を示した燃料棒だけに観察された。これは次の3つから成っていた。

- (1) ペレット境界にセシウムのガンマ放射能ピークの位置があった。
- (2) 走査型電子顕微鏡 (SEM) 試験によって、被覆管の内表面上にセシウム、ヨウ素およびテールが検出された。
- (3) 燃料—被覆管固着 (bonded) 領域のエレクトロン・プローブ・マイクロアナリシス (electron probe microanalysis) によってセシウムに富んでいる中間層が見い出された。

高いガス放出率を示した燃料棒における高温運転の形跡の原因は、焼きしまりに関連した燃料棒熱伝達特性の減少過程に求められる。

原 著 謝 辞

両キャンペーンのホット・セル試験がV. Storhok氏の指揮の下に行なわれた Battelle - Columbus Laboratories および被覆管内表面のSEM解析がL. Neimark氏の指揮の下に行なわれた Argonne National Laboratory, Material Science Division の寄与に感謝の意を表したい。燃料棒の内部化学に関して有益な討論をして戴いた Stanford Research Institute の D. Cubicciotti 氏に対しても深甚なる謝意を表する。

原著まえがき

PWR 燃料性能に関する EPRI / C-E 共同プロジェクト (RP 586) は、軽水炉 (LWR) 燃料性能計画の中の燃料集合体調査サブプログラムの一部である。同様のプロジェクトが現在アメリカの燃料製造者のすべてと進行中である。燃料製造者と燃料性能監視協定を始める EPRI の目的は、電力会社 (utility) がたやすく利用できる、現在運転中の大型 BWR および PWR から得られる詳細な燃料性能データの量を実質上増やすことである。

原型炉的な (prototypic) 条件下で詳細な燃料棒性能データを集めることは、軽水炉の燃料性能、信頼性および安全性を向上させるための基本的なインプットであると考えられる。その結果として燃料性能に関する知見が向上すれば、電力会社は燃料調達仕様を良くすることができるとともに運転方法を最適化することができるであろう。発電所 (plant) の保守が容易でかつ頻度が少なく、また全出力プラント利用率 (full-power plant availability) が増加するならば、運転コストは減少するであろう。

このプロジェクト (RP 586) は3つの主要な作業に分けられる。

- (1) Calvert Cliffs - I 炉における3体の試験集合体の照射に基づいた現行の 14×14 燃料集合体の設計に対する包括的な基礎データを開発する。
- (2) Arkansas Nuclear One - 2 炉の6集合体から得られた照射データに基づいて設計された C-E の次の世代の燃料である 16×16 燃料集合体の性能を評価するために、統計的に有意な試料数の燃料棒に基づいたデータを提供する。
- (3) 第1サイクルの終わりに Maine Yankee 炉から取り出された照射燃料棒の詳細な性能評価を提供する。

この報告書は Maine Yankee 燃料評価の結果を記載している。この計画は、第1サイクル期間中に観察された冷却材中のヨウ素放射能の増加によって刺激された。作業の範囲はプールサイドにおける燃料検査および代表的な燃料棒のホット・セル試験を含んでおり、その目的は被覆管破損の主要な原因を決定することであった。ホット・セル試験は2つのキャンペーンで行なわれた：C-E が最初のキャンペーンを行なった後、EPRI / C-E 共同の調査が行なわれた。

ホット・セル試験で得られた広範な金相データおよび燃料棒破損パターンの強い出力依存性に基づいて、初期被覆管破損の最も可能性の大きい原因はペレット-被覆管相互作用と核分裂生成物によって引き起こされた応力腐食であるということが結論づけられた。燃料棒の破損機構は、不安定な (焼きしまりを起こしやすい) UO_2 燃料および燃料棒が初めに加圧されていなかったという事実の組合せの直接の帰結であるように思われる。現行の PWR 燃料棒設計では安定な UO_2 が採用され、ヘリウムによる予備加圧が行なわれている。

目 次

1.0	序論	1
2.0	概要および結論	9
2.1	照射後試験結果	9
2.2	被覆管破損の原因	11
3.0	プールサイド検査計画	13
3.1	予備的な外観検査	13
3.2	集合体の解体および燃料棒の検査	13
3.3	グリッド接触摩耗の観察	14
3.4	ホット・セル試験のための燃料棒の選択	14
4.0	ホット・セル試験の結果	18
4.1	範囲の概要	18
4.2	プロフィロメトリ（燃料棒の直径測定）	18
4.2.1	範囲および方法	18
4.2.2	燃料棒のオーバリティ	21
4.2.3	被覆管のリッジング	30
4.2.4	被覆管のクリープダウン	34
4.3	外観検査	34
4.3.1	健全な燃料棒	34
4.3.2	破損した燃料棒	35
4.4	燃料棒のパンクチュアおよびガス収集	42
4.4.1	方法	42
4.4.2	結果	42
4.4.3	核分裂ガスの放出に関する追加データ	45
4.4.4	破損した燃料棒の加圧試験	45
4.4.5	Xe/Kr 比	48
4.5	ガンマ・スキャンニング	48
4.5.1	グロス・ガンマスキャン	48
4.5.2	特定の同位元素に対するガンマ・スキャン	48
4.5.2.1	特定の同位元素手法に関する基礎	48
4.5.2.2	健全な燃料棒に対する結果	49

4.5.2.3	破損燃料棒に対する結果	51
4.5.3	スタック長の変化	54
4.6	渦電流探傷試験	54
4.7	被覆管の内面観察	61
4.7.1	範囲	61
4.7.2	被覆管切開の方法	61
4.7.3	切開した被覆管の外観検査結果	61
4.7.4	形状のおよび化学的特性化	66
4.7.4.1	試料の選択	76
4.7.4.2	ガンマ・スキャンニングの結果	76
4.7.4.3	走査型電子顕微鏡 (SEM) による観察	76
4.8	燃料および被覆管の金相試験	97
4.8.1	目的	97
4.8.2	試験手順	97
4.8.3	金相試験の結果	98
4.8.3.1	燃料-被覆管の固着	103
4.8.3.2	初期の被覆管破損	111
4.8.3.3	UO ₂ 微細組織の特性化	123
4.8.3.4	被覆管の特性化	135
4.8.3.5	破損した燃料棒の金相試験	135
4.9	SEMによる被覆管クラックの特性化	139
4.9.1	手順	139
4.9.2	SEM 観察の結果	140
4.10	燃料-被覆管反応領域のエレクトロン・マイクロプローブ分析	146
4.10.1	範囲	146
4.10.2	手順	146
4.10.3	結果	148
4.10.3.1	第1キャンペーン - JCN-199の92-9/16インチの 位置から採取した試料	148
4.10.3.2	第2キャンペーン	148
4.10.4	結果の考察	151
4.11	照射された燃料の密度測定	157
4.12	燃焼度解析	157
5.0	燃料棒の照射履歴	160

5.1	初期クラック位置における出力履歴	160
5.2	UO ₂ の等軸晶成長領域の出力履歴	164
5.3	Maine Yankee 第 I 炉心の異なったバッチ間の相対燃料棒出力	164
6.0	データ解析	169
6.1	ホット・セル試験の結果	169
6.2	燃料棒熱伝達特性の減少	169
6.2.1	核分裂ガス放出に影響を及ぼすパラメータ	169
6.2.2	熱伝達特性減少のメカニズム	175
6.3	燃料の焼きしまりとスエリング挙動	180
6.4	結晶成長データの解析	183
6.4.1	結晶粒径測定および等軸晶成長の境界	184
6.4.2	結晶成長温度のメカニズム的評価	184
6.4.3	等軸晶成長の温度解析	187
6.5	結晶成長と核分裂ガス放出の関係	189
6.6	燃料棒の寸法挙動	189
6.6.1	被覆管のクリープダウンおよびオーバリティ	189
6.6.2	リッジング	194
6.7	燃料棒熱伝達特性の減少, ペレット-被覆管相互作用および燃料棒破損	195
6.7.1	燃料棒熱伝達特性の減少と PCI	195
6.7.2	燃料棒熱伝達特性の減少と燃料棒破損	195
6.8	被覆管プリスターと初期クラックの出力依存性	197
7.0	初期被覆管破損の原因	199
7.1	ペレット-被覆管相互作用 (応力腐食)	199
7.2	1次水素化	201
7.3	被覆管予備損傷/ペレット-被覆管相互作用	202
7.4	被覆管破損に至る現象	203
8.0	参考文献	205
付録 A	プールサイドにおける検査結果の詳細	211
付録 B	プールサイドにおける渦電流探傷試験のデータ	217

1.0 序 論

EPRI (Electric Power Research Institute) と CE (Combustion Engineering, Inc.) 共同の PWR 燃料パフォーマンス評価計画の一部として、第1運転サイクル後の Maine Yankee 第I炉心燃料の追加ホット・セル試験が行なわれた。その結果がこの最終報告書に記載されている。

CEが行なった初期のホット・セル試験キャンペーンを含む第1次調査の結果を記載した中間報告書(1)が以前に発行された。この第1次調査は、第1サイクルの途中で冷却材中のヨウ素放射能の増加によって示された破損燃料棒*の出現に刺激されて行なわれた。

Maine Yankee 第I炉心燃料の仕様および第1サイクルの運転履歴をTable 1-1および1-2に示す。定常状態における評価値を示すことによって簡略化されたヨウ素放射能の履歴(存在する破損燃料棒本数の示標)を、時間の関数としてFig. 1-1に示す。この図は、I-131放射能の最初の急激な増加は炉心の平均燃焼度が5.627 MWD/MTUの時に発生したということを示している。その後、炉心の出力がそれぞれ初めて全出力の88%および95%に上昇された時、2つの大きなステップ状の増加が発生している。第1サイクルの末期における定常状態のI-131放射能に対応する破損燃料棒の総数は225本**であると見積られている。

1974年7月の第1サイクル停止期間中に217体の全炉心燃料集合体に対して行なった SHIPPING試験によって、全部で43体の燃料集合体に破損燃料棒が存在することが分った。このうち41体はバッチBからのものであり、バッチAおよびCからのものはたった1体ずつであった。これらの燃料集合体の位置および識別をFig. 1-2の炉心マップに示すが、この図にはBank No.4および5の制御棒集合体(CEA)の位置も示されている。これらは第1サイクル中の出力制御のために使われたが、それらがバッチAおよびCの燃料集合体にもみ置かれているということは注目すべきである。一般的に、バッチBの燃料集合体が最大の燃焼度(かつ最大の出力)を経験した。またFig. 1-3に示されているように、破損燃料棒は主に高出力であるバッチBの集合体に生じた。

* 訳者注：ここで言う破損燃料棒は、いわゆる“perforated rod”であり、被覆管に貫通孔があいたものである。

** この数字はI-131の逃散係数モデルに基づいており、そのモデルでMaine Yankeeの条件に対するI-131放射能の計算を行なうと、 $2.24 \times 10^{-8} \mu\text{Ci} / \text{ml}$ / 破損燃料棒である。

Table 1-1 Maine Yankee 燃料仕様

<u>炉心</u>	
出力, Mw (t)	2440
平均線出力, kw/ft (100%出力時)	5.9
<u>燃料集合体</u>	
全燃料集合体数	
炉心	217
バッチA	69
バッチB	80
バッチC	24 (C ₀), 36 (C ₁), 8 (C ₂)
集合体当りの燃料棒数	
バッチA	176 (ポイズン燃料棒なし)
バッチB	160 (ポイズン燃料棒16本)
バッチC	176 (C ₀), 164 (C ₁ -ポイズン燃料棒12本) 160 (C ₂ -ポイズン燃料棒16本)
燃料棒配列, 正方格子	14×14
燃料濃縮度, %	2.01(A), 2.40(B), 2.95(C)
燃料集合体材質	炉心領域はすべてジルカロイ
制御棒集合体数 (CEA)	85
燃料集合体当りの CEA 案内管数	5
<u>燃料棒</u>	
被覆管材質	ジルカロイ-4
ヘリウム充填ガス圧 (常温), psia	14.7
被覆管外径, インチ	0.440
被覆管内径, インチ	0.388
UO ₂ ペレット直径, インチ	0.3795
燃料有効長, インチ	136.7
ペレット密度, %TD	93
ペレットL/D	1.7
ペレットディッシュ深さ, ミル	15

Table 1-2 Maine Yankee 第 I 炉心運転履歴ハイライト

EOC における炉心平均燃焼度, MWD/MTU	10,368
原子炉圧力, psi	
BOL から 3800 MWD/MTU まで	2,000
3800 MWD/MTU から EOC まで	1,800
高温状態の時間, hr	12,744*
出力状態の時間 (臨界), hr	11,820
冷却材温度, °F 2000 psi	536 (入口)
	567 (出口)
1800 psi	525 (入口)
	570 (出口)
最大出力運転, %	95
最大出力運転時における燃焼度	
炉心平均, MWD/MTU	8,333
最大出力運転時における	
最大燃料棒出力, kw/ft	9.0

* 訳者注：原資料では 12,744 となっているが、これは 12,744 が正しい
ものと思われる。

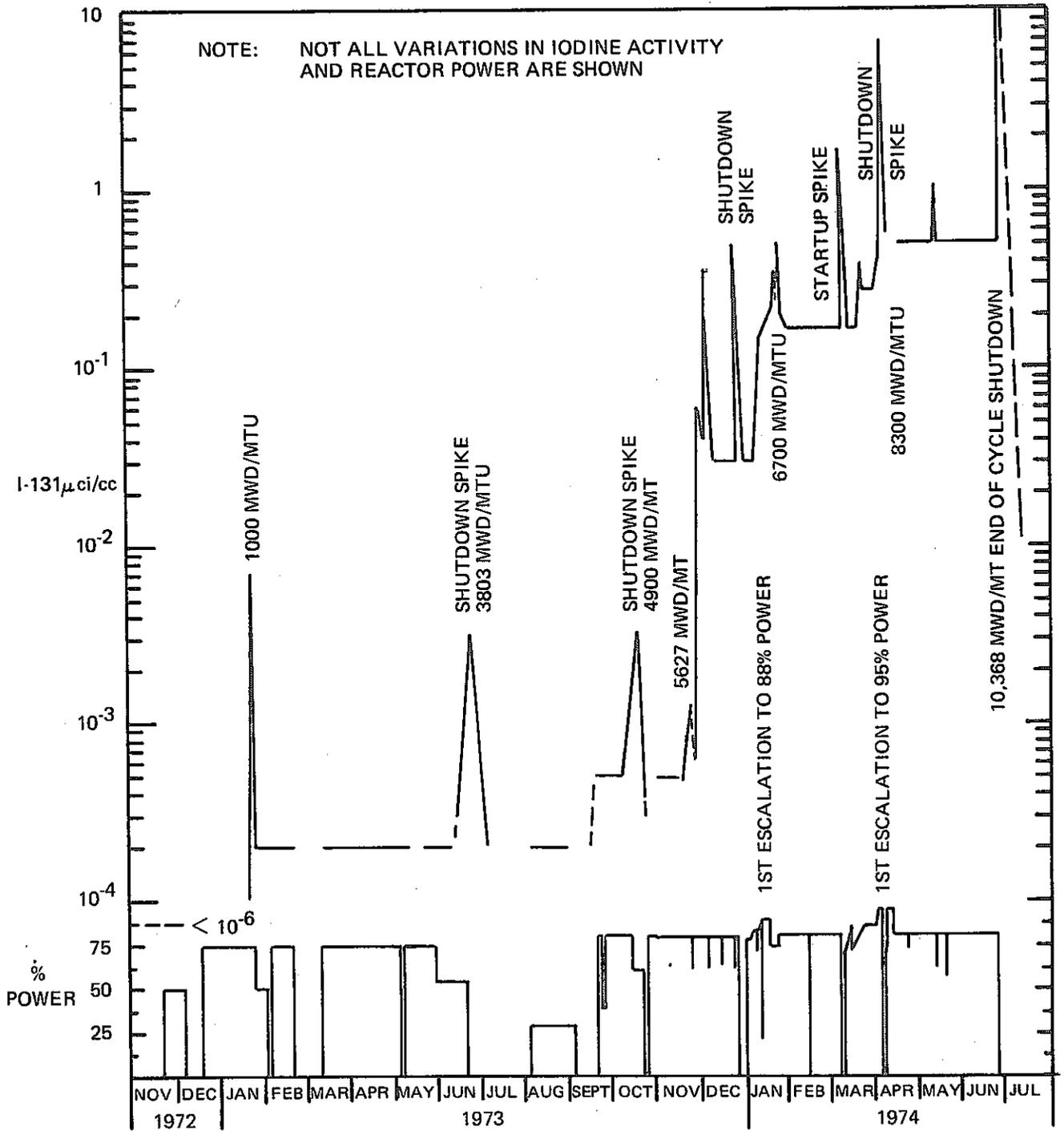


Fig. 1-1 Maine YankeeにおけるI-131放射能

1-5

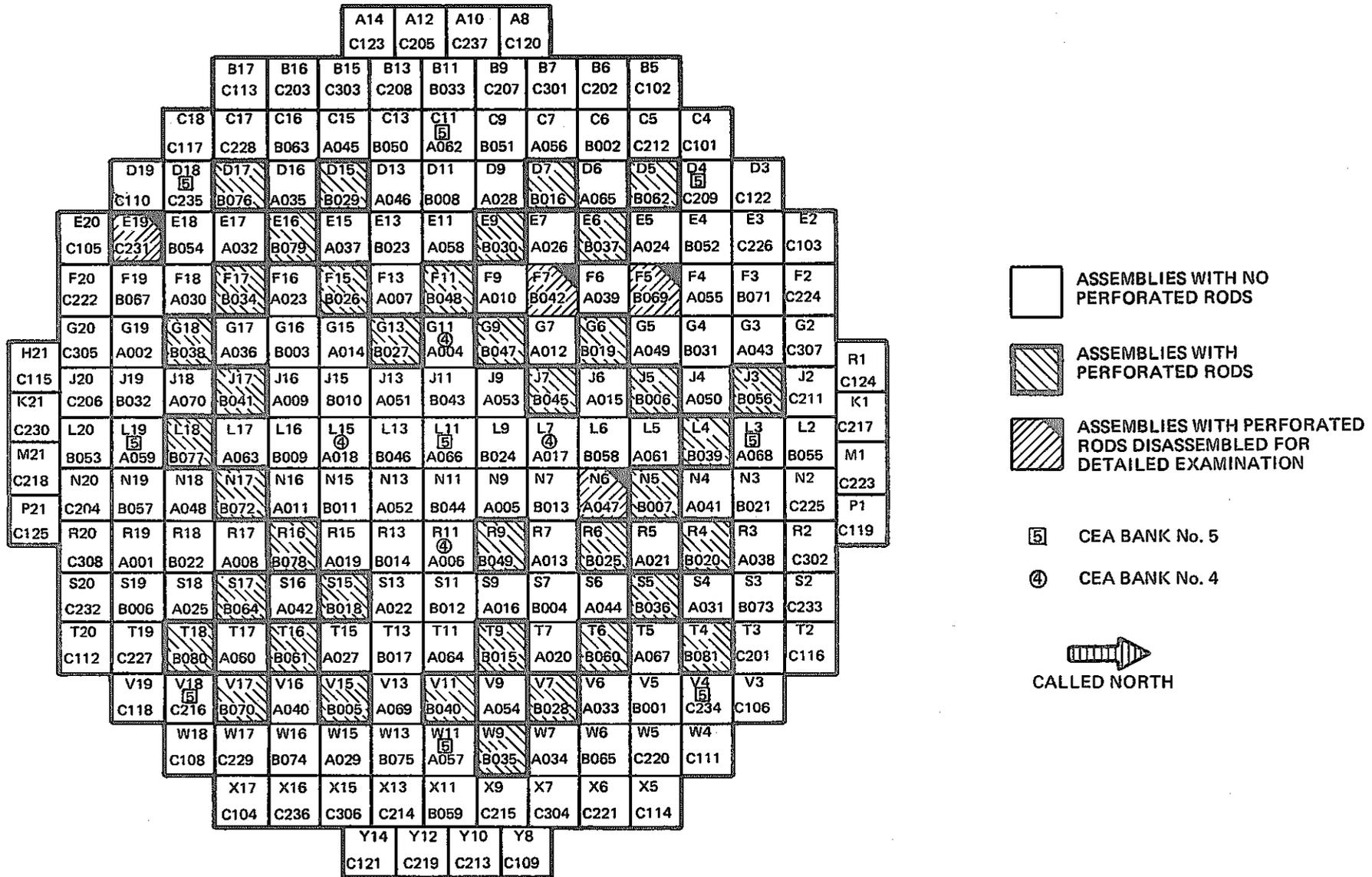


Fig. 1-2 Maine Yankee 第1サイクルにおける原子炉
炉心配置図 (集合体位置)

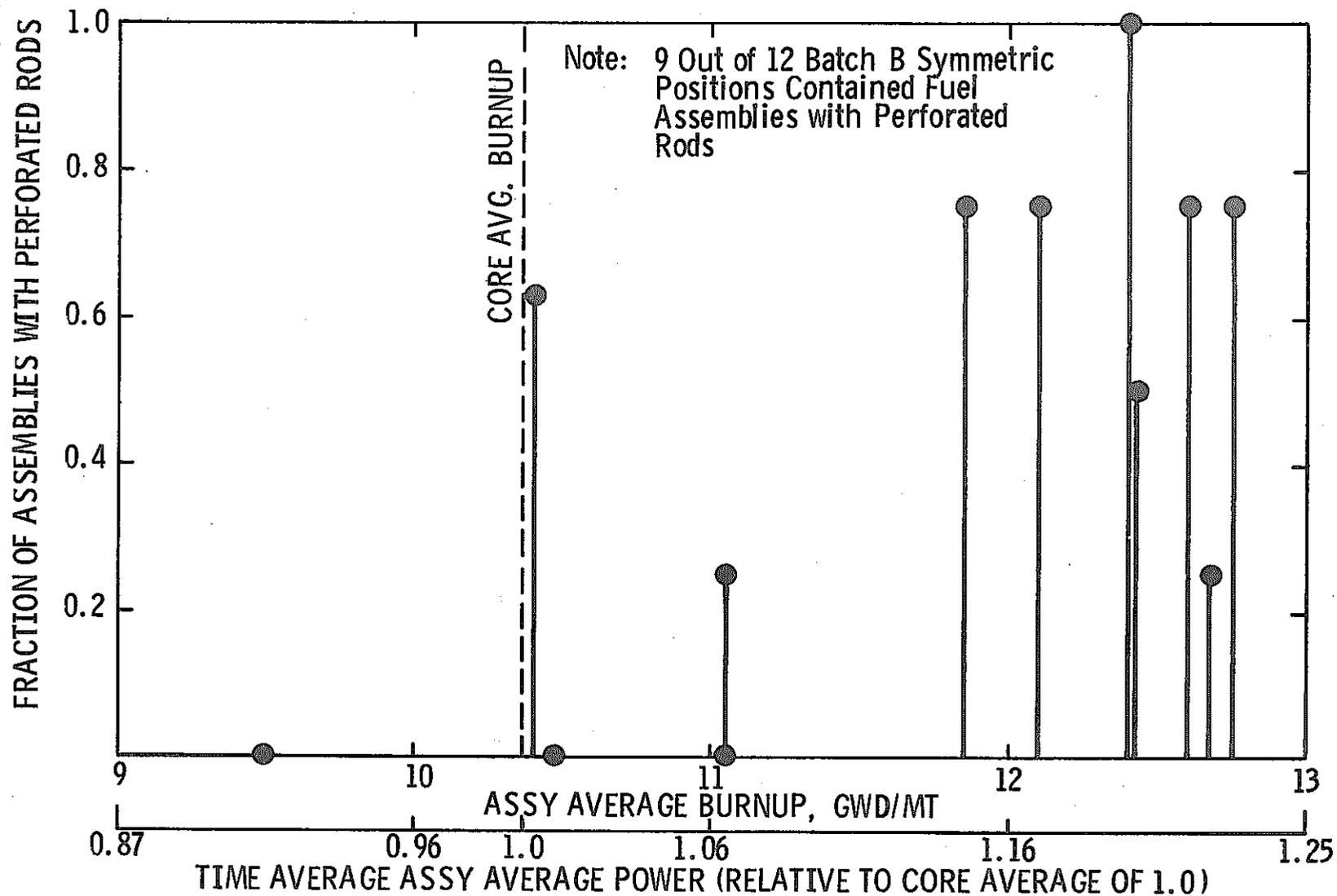


Fig. 1-3 各々の位置に対する集合体平均燃焼度の関数としての
各々の炉心対称位置における破損燃料棒を有したバッチB集合体の割合を示すヒストグラム

CEの最初の計画(1)は、破損燃料棒が存在する燃料集合体の分布を説明することのできる、被覆管の破損を引き起こすメカニズムを決定することが目的であった。この計画は、主に Maine Yankee の使用済燃料貯蔵プールにおける集合体の解体および4集合体の非破壊検査、ならびにこれらの集合体の代表的な燃料棒のホット・セル試験から構成されていた。これらの集合体は破損燃料棒が存在するものであり、バッチBから2体、バッチAおよびCからそれぞれ1体ずつであった。プールサイドにおける非破壊検査の結果、バッチBの燃料集合体の中で破損燃料棒が存在するのは第1サイクルにおいて比較的高出力で運転されたものであることが分った。

次の項目を含んだ広範囲な試験のために、30本の燃料棒が Battelle - Columbus のホット・セルに送られた。

	燃料棒総数	破損燃料棒数
外観検査	22	5
プロフィロメトリ	16	2
ガンマ・スキャンニング	11	1
核分裂ガス収集および分析	13	—
渦電流探傷試験	13	—
燃料-被覆管金相試験(24金相マウント)	8	1
燃焼度解析(2)	1	—

その試験の結果、同じような出力履歴を有するバッチBの燃料棒が非常に異なった運転温度の証拠(2つの異なった核分裂ガス放出率-11.3~13.5%および1%以下-を含めて)を示していることが見い出された。

この現象の解析によって、Maine Yankee の第I炉心の非加圧型燃料棒における UO_2 のデンシフィケーションの結果、ある特定の燃料棒に第1サイクルの途中で熱伝達特性の減少が起こり、高いガス放出率になったことが示された。同じ出力で運転された他の燃料棒では熱伝達特性の減少が起こらなかったため、低いガス放出率を示した。たぶん高いガス放出はトランジェント時に発生し、同時に化学反応性の核分裂生成物(例えば、ヨウ素およびセシウム)が短い時間に被覆管の方に多量に放出されたであろう。この放出は応力腐食割れに寄与しているであろう。

実際、一対のクラックによる初期破損の証拠(evidence)がバッチBの高いガス放出を示した燃料棒の被覆管内面から始まっているのが観察され、それらの外見はヨウ素による応力腐食割れと一致していた。

これらの結果の観点に立って、第2次のホット・セル試験キャンペーンおよびそれに関連したデータ解析が、EPRIとCE共同のPWR燃料パフォーマンス評価計画に基づいて、以下の目的で行なわれた。

1. 燃料棒のモデルを評価するためのデータを得るために、Maine Yankee の第I炉心燃料

のパフォーマンス挙動を調べる。

2. 燃料棒における熱伝達特性の減少を特性化し、それが起こる条件を決定する。
3. 燃料棒における熱伝達特性の減少とその結果起こる核分裂生成物の放出との間の関係を決定する。

他の主要な目的は、破損した Maine Yankee の第 I 炉心燃料棒の大部分における被覆管の初期破損の原因は蒸発性の核分裂生成物（例えば、ヨウ素および／またはセシウム）による応力腐食と結合したペレット-被覆管相互作用（PCI）である可能性が最も高いという中間報告における仮の結論を確認することであった。

これらの目的を達成するために、非破壊試験（すなわち、プロフィロメトリ、ガンマ・スキニングならびに高燃焼度を達成した燃料棒の核分裂ガスの収集および分析）の拡張が行なわれた。また、破壊試験も以下のように拡張された。

1. バッチ B の健全な燃料棒における初期の被覆管破損の証拠をさらに調べるため、および高いガス放出を示した燃料棒における等軸晶の成長の程度を示すマップを作るための金相試験。
2. UO_2 燃料のデンシフィケーションおよびスエリングを調べるための密度測定。
3. 燃料中および被覆管内表面上の局所的な核分裂生成物の濃度を決定するためのマイクロプローブ分析および他の特性化手法。

この最終報告書は、第 2 次ホット・セル試験キャンペーンの結果を記載している。第 1 キャンペーンで得られた適切なデータがある場合には、適当な節に新しい情報と共に整理して載せている。

2.0 概要および結論

2.1 照射後試験結果

全体のホット・セル試験計画およびデータ解析で得られた有意な結果を以下にまとめて示す。

1. 核分裂ガスの放出挙動

第2ホット・セルキャンペーンで得られた核分裂ガスの解析データによって、2種類の核分裂ガス放出率が観察された第1キャンペーンの結果が確認された。結局、ホット・セルに送られた10本の健全なバッチB燃料棒のうちの7本が高いガス放出率(11.3~15.3%)を示した。低いガス放出率を示したすべての燃料棒は1%以下の放出率であった。それにもかかわらず、これらの燃料棒のうちの何本かは、高いガス放出率を示した燃料棒と同じような照射条件下で運転されたものである。金相試験によって、高いガス放出率を示した燃料棒だけにかかなりの等軸晶の成長が起こっていることがわかったが、このことはより高い温度で運転されたことを示している。結晶成長は燃料長の90%以上および燃料体積の25%にわたっていた。

バッチAの燃料棒にも高いガス放出率を示したものが見つかったが、その燃料スタック重量は相対的に低く、製造公差の下限近くの初期燃料密度を示していた。その結果はデンシフィケーションの観点から見て、それが高いガス放出を起こす原因であると信じられているので、驚くべきものではなかった。この燃料棒から取り出したペレットの密度測定の結果、約5%までの見かけのデンシフィケーション(92%から約97% T.Dまで)が起こっていることが分かった。

2. 燃料棒の熱伝達特性の減少

高いガス放出挙動およびそれに付随する燃料の高温化は、 UO_2 のデンシフィケーションの結果生じる燃料棒の熱伝達特性の減少にその原因を求めることができる。燃料が高密化しペレットと被覆管の間のギャップが増加した後の燃料寿命中のある時点では、燃料は等軸晶が成長する温度のわずかに下で運転されている。小さな出力上昇またはギャップ・コンダクタンスのわずかの減少によって温度が上昇するとともに等軸晶の成長が始まり、その結果結晶成長領域から高い率で核分裂ガスが放出され、一層ヘリウム充填ガスの熱伝達率が減少する。このようにして、熱伝達特性の減少によって燃料の温度が上昇し、結晶成長が燃料のより大きい体積に影響を及ぼすようになるまで広がり、その結果ガス放出がさらに多くなり燃料棒の熱伝達特性が一層減少する。燃料の高温化による燃料スエリングおよびペレットのリロケーションによってペレットと被覆管のギャップが減少し、その結果このプロセスが停止するので、このメカニズムは自己制限的である。

同じような出力レベルで運転されたすべての燃料棒が上のような挙動を示さなかったという

事実は、製造時のギャップ・サイズおよび UO_2 ペレットのデンシフィケーションの特性の差違に起因する運転中の燃料と被覆管の実際のギャップの変動の結果であると信じられている。初期のギャップが大きく、かつ炉内における UO_2 のデンシフィケーションが大きいほど、燃料の温度は高くなるであろう。初期のギャップが小さく、かつ UO_2 のデンシフィケーションが小さい燃料棒ほど、与えられた出力においてより低い温度で運転される傾向にあるので、等軸晶の成長が起こらなかつたのであろう。

3. 蒸発性核分裂生成物の再分布

高いガス放出率の燃料棒だけが、ペレットの境界でセシウムのガンマ・ピークを示した。これらの燃料棒における核分裂生成物の再分布の他の証拠が、被覆管内表面の外観検査および走査型電子顕微鏡 (SEM) 試験で観察された。これらによって、主にペレット境界の近くで燃料と被覆管のボンディングが起こっていることが分つた。X線スペクトロメトリによる化学分析の結果、燃料と被覆管のボンディング領域の化学組成は酸素と結合したセシウム、ウランおよびジルコニウムの混合物であることが分つた。また、再分布したヨウ素およびテルルが、被覆管の表面で検出された。燃料と被覆管のボンディング部に Cs-Zr-U-O 相が存在することが、金相試料の電子マイクロプローブ分析 (electron microprobe analysis) によって確認された。

4. 初期クラックの金相およびフラクトグラフィ

バッチBのうちで高いガス放出率を示した3本の燃料棒の高出力部に、被覆管肉厚の3分の2に達するクラックが観察された。すべての場合に、クラックは被覆管内表面に垂直であり、ペレット境界でペレットのクラック付近に発生していた。被覆管クラックの光学顕微鏡による外観は、他の研究者によってヨウ素による応力腐食であるとされているものに類似しているように思われた。さらに、クラックは幅が狭いので、被覆管のエッチングをしないで金相的に識別するのは困難であった。偏光による金相試験でも目に見えるほどの塑性変形をした証拠は観察されず、このことも応力腐食割れ (SCC) と一致している。

SEMによるフラクトグラフィ試験の結果でも、クラック表面上に延性を示すディンプルは観察されず、これは塑性変形が生じなかつたことをはっきりと示している。平らな劈開面とリバー・パターン (river pattern) のみが観察された。これらは応力腐食割れ機構によってジルカロイに生じるものである。

第I炉心のバッチCの破損した燃料棒のみが、1次水素化が被覆管破損の原因であったかも知れないということを示唆する形跡を示していた。バッチBの健全な燃料棒の被覆管内面の欠陥を調べるために、ホット・セルにおいて徹底的に金相試験が行なわれたが、1次水素化に起因する初期貫通は検出されなかつた。

プールサイドおよびホット・セルの両方における渦電流試験の信号—これは第1次試験における金相試料の選択の基礎になつたものである—が、被覆管内面の欠陥よりもむしろ燃料と被

覆管のボンディング領域を示していたということは注目に値する。したがって、第2キャンペーンにおいては渦電流試験による信号を有していないバッチBの高いガス放出率を示した燃料棒が試験され、試料の選択はプロフィロメトリおよびセシウムのガンマ・スキャンニングのデータに基礎を置いた。

5. グリッドと燃料の接触摩耗

ホット・セル試験の重要な結果は、グリッドと燃料棒の接触摩耗は大したものではないという観察であり、これによってプールサイド検査の結果も確認された。また、Maine Yankee 第1炉心におけるジルカロイ製グリッドは接触摩耗を起こさないとということが実証された。

2.2 被覆管破損の原因

プールサイド検査および両方のホット・セルキャンペーンで得られたすべてのデータの総合的な評価に基づいて、破損燃料棒の大部分が発生したバッチBの燃料に対して以下のことが結論づけられた。

1. 破損した燃料棒の初期の被覆管貫通の最も可能性の高い原因は、被覆管のクラッキングが核分裂生成物（例えば、ヨウ素および/またはセシウム）による応力腐食によって促進されたペレットと被覆管の相互作用機構（PCI）である。
2. 1次水素化は初期の被覆管貫通の原因ではない。（バッチBの破損した燃料棒上に目視で観察されたすべての水素化物ブリストアは、初期のクラックを通して侵入した水によって引き起こされた2次的なものである。）

これらの結論の基礎になったものを以下にまとめて示す。

1. すべての証拠が核分裂生成物によって助長された応力腐食を伴ったPCI機構と一致している。
 - a. その機構は出力に強く依存しており、破損した燃料棒は主にバッチB集合体の高出力位置で見い出された。
 - b. 燃料棒の熱伝達特性の減少はバッチBの高出力燃料棒の何本かに生じており、その結果温度の上昇、等軸晶の成長および高いガス放出率を引き起こした。
 - c. セシウムおよびヨウ素のような他の核分裂生成物は、高いガス放出率を示した燃料棒ではペレット境界に再分布していた。（セシウムは局所的な応力集中を増大させる燃料と被覆管のボンディングを促進させるし、ヨウ素による応力腐食はジルカロイでは十分に確認された現象である。）
 - d. UO_2 等軸晶の成長およびセシウムのガンマ・ピークも破損した燃料棒で観察されたが、これは高いガス放出率を示した挙動とも一致している。
 - e. 被覆管肉厚の3分の2に達するクラックがバッチBの高いガス放出率を示した3本の健全な燃料棒において、PCIパターンの特徴であるペレット境界で見い出された。

- f. SEMによるフラクトグラフィおよび光学顕微鏡による観察の結果、クラックの形態は SCC によるものと一致しているということが分った。
 - g. 出力履歴の調査の結果、なぜ燃料棒の破損が実際上すべてバッチBの燃料集合体に生じたのかということが分った。これら以外のバッチBの燃料棒のうちで、第1サイクル中に UO_2 のデンシフィケーションによってギャップ・コンダクタンスが最低になった時に高出力で運転されたものはほとんどない。他のバッチの燃料棒は、一般的に熱伝達特性の減少が生じにくかった。
2. 水素化は初期の被覆管貫通の原因ではなさそうである。というのは、証拠が1次水素化パターンとは一致していないからである。
- a. 水素化による初期破損の証拠は、健全な燃料棒の広範なホット・セル試験でも観察されなかった。
 - b. 実際上すべての破損は燃料寿命の初期ではなく、炉心の平均燃焼度が5,000 MWD/MTU以上に達した後で発生した。
 - c. 燃料棒の破損は出力に強く依存しており、通常観察されるランダムな分布ではない。
 - d. 過度の水分レベルは、製造データにも、また燃料ペレットの検査においても見い出されなかった。
3. 燃料寿命の後期に破損を引き起こす、PCI と結合した水素化物損傷もまた主要なメカニズムではなさそうである。というのは、1次水素化によるクラックの証拠はホット・セル試験においても検出されなかったからである。

3.0 プールサイド検査計画

3.1 予備的な外観検査

1974年7月の炉停止期間中に行なわれた SHIPPING 試験に加えて、30体（14体は被覆管が破損した燃料棒を含んでおり、16体はそれらを含んでいない）の燃料集合体の外観検査を水中観察装置を使って行なった。これは、燃料集合体の4つの側面の各々の外観を記録するためのテレビ・カメラおよびビデオテープ記録装置、ならびに集合体の周辺および内部の個々の燃料棒の拡大観察を行なうためのペリスコープで構成されている。（第2列の燃料棒はその表面の約25%以上をはっきりと観察することができる。）SHIPPING 試験によって健全であると判定された燃料集合体の中には被覆管破損の形跡は観察されなかった。バッチAおよびCの中でSHIPPING 試験によって被覆管の破損が検出された唯一の燃料集合体であるA047およびC231集合体の外観検査では、破損燃料棒の存在を明らかにすることはできなかった。SHIPPING 試験で破損が検出されたバッチBの12体の燃料集合体が検査されたが、そのうちの10体は被覆管の破損が目視ではっきりとわかる燃料棒を含んでいた。全部で18本の燃料棒（1本を除いて炉心の平均以上の燃焼度を達成している）が破損していることが分った。（詳細については、付録AのTable A-1を参照）SHIPPING 試験の結果得られた破損燃料集合体と高燃焼度（すなわち、高出力）の関係の観点に立てば、破損燃料棒が主に燃料集合体の高燃焼度の位置で見い出されたということは驚くべきことではない。

3.2 集合体の解体および燃料棒の検査

1974年9月に、より広範なプールサイド検査が行なわれ、これには4集合体の解体ならびに個々の燃料棒の引き抜きおよび試験が含まれていた。主な目的は、燃料棒破損のモードを特性化すること、およびホット・セルにおける詳細な試験のために初期破損の形跡を有する燃料棒を検出することであった。この計画は次の3つの検査ステップで構成されていた。

- (1) 初期の被覆管クラックまたはその他の初期破損と関連した被覆管の異常の検出およびその位置の確認を目的とした渦電流試験。
- (2) テレビジョンシステムを使っての観察およびビデオテープ記録。
- (3) ペリスコープを使っての詳細な外観検査。

解体のために選ばれたバッチBの燃料集合体はB042およびB069であった。というのは、それらは破損燃料棒を有する集合体の発生が最も多かった対称炉心位置の代表的なものだからである。この計画における他の2体はA047およびC231であったが、それらはバッチBのもの以外で破損燃料棒を有していた唯一の集合体である。以前に観察された燃料棒破損パターン

の観点から、試験のための燃料棒は主に高出力位置から選ばれた。すなわち、付録 A の集合体マップに示されているようにウォーター・チャンネル (water channel) に隣接したもの (案内管の周辺、案内管の中間および集合体の周辺部のもの) であった。

種々の試験のために取り出された燃料棒の本数および見つかった破損燃料棒についてのデータを、Table 3-1 にまとめて示す。バッチ B の破損したすべての燃料棒が比較的高い燃焼度を達成し、また比較的高い出力で運転されたものであるということは注目に値する。破損した燃料棒の識別および情報は付録 A の Table A-2 に詳しく示されている。また、それらの位置は、検査されたすべての燃料棒の位置と共に付録 A の集合体マップに示されている。

破損したすべての燃料棒には、多分水素化によって引き起こされたのであろうブリストア (blister) およびふくらみ (bulge) が目視で観察された。

3. 3 グリッド接触摩耗の観察

解体した集合体からの燃料棒をペリスコープを使って外観検査していた時、HBV-067 の燃料棒 (A047 集合体の C-13 の位置のもの) の一番上のグリッド接触部、および KCA-156 の燃料棒 (C231 集合体の N-14 の位置のもの) にわずかな摩耗が観察された。HBV-067 燃料棒のアーチ接触部の最大摩耗の深さは、後のホット・セル試験で 0.0035 インチ (0.089mm) であることが分った。

これらの観察の結果として、ペリスコープで観察されなかった A047 および C231 のすべての燃料棒の一番上のグリッド部を、ボアスコープ (borescope) を使って外観検査した。追加検査された 309 本のどの燃料棒にも摩耗の形跡は観察されなかった。グリッド部の接触摩耗の観察結果を Table 3-2 にまとめて示す。この計画 (6126 箇所の接触部を含む 1021 箇所のグリッド部) の結果に基づくと、グリッド接触摩耗は基本的にはなかったし、ジルカロイ製のグリッドは摩耗を起こさないことが示されたと結論づけられる。

3. 4 ホット・セル試験のための燃料棒の選択

プールサイド検査では初期の被覆管破損の原因に関して決定的なデータが得られないので、燃料棒をさらにホット・セルで試験することが決定された。Battelle -Columbus のホット・セルに送るための燃料棒の選択に使われた規準は、以下のとおりであった。

1. 代表的な破損燃料棒、および渦電流試験の結果に基づいて初期破損の信号またはその他の内表面の異常を含んでいる見かけ上健全な燃料棒を含むこと。
2. グリッド部に摩耗の形跡があるもの。
3. もし可能ならば、破損および健全な燃料棒に関して異なった燃料ロットのものを含むこと。

水の侵入による 2 次効果が、破損燃料棒においては初期の被覆管破損のメカニズムの形跡を消してしまう傾向にあるということが認識されているので、最も重要な選択規準は、見かけ上は健全であるけれども、貫通していない被覆管内表面のクラックからの渦電流信号を生じる燃料棒を含

Table 3-1 集合体解体計画-破損燃料棒データの概要

集合体No	渦電流およびTV によって検査され た燃料棒の数	ペリスコープ で観察された 燃料棒の数	破 損 燃 料 棒 デ ー タ		
			観察された破 損燃料棒の数	サイクルの終りにおける範囲	
				相対出力 ⁺	燃焼度(MWD/MTU)*
B-042	84	37	11	1.183-1.267	12,786-13,629
B-069	73	13	4	1.230-1.284	12,744-13,535
A-047	88	11	1	1.073	12,453
C-231	154	17	1	0.969	9,661
合 計	399	78	17		

+ 炉心平均に対する相対値

* 炉心平均燃焼度-10,368 MWD/MTU

Table 3-2 Maine Yankee 第I炉心グリッド接触摩耗観察

集 合 体	摩 耗 観 察 を 行 な っ た 燃 料 棒 の 数		
	トップ・グリッドのみ	全グリッド	燃料棒総数
A-047	164	12	176
C-231	145	20	165
B-042, B-069	—	57	57
合 計	309	89	398
観察した燃料棒総数	398		
グリッド位置の総数	1021		
観察したグリッド接触点の総数	6126		

めることである。

渦電流試験のデータは、100 kHz および400 kHz の高周波が通っている回転コイルを使って得られるトレース、およびオシロスコープ上の表示で構成されている。既知の内外表面欠陥を有する較正用の標準管で得られた同様のデータと比較することも可能である。全部で12本の健全な燃料棒が種々の渦電流信号を含んでいることが分かったが、そのうちのいくつかは被覆管の内表面から始まっているように思われた。得られた最も顕著な渦電流信号の例を付録Bに示すが、比較のため、これには較正用の内表面標準ノッチからの渦電流信号も含まれている。ホット・セル試験計画のために30本の燃料棒が選ばれた。(燃料棒の識別および選択の基礎についてはTable 3-3を参照) 8本の破損燃料棒、渦電流試験による信号を有する12本のすべての燃料棒、グリッド摩耗を有する3本の健全な燃料棒および渦電流信号のない7本の健全な燃料棒が含まれている。

Table 3-3 ホット・セルへ輸送するための Maine Yankee 燃料棒の選択

集合体 No.	燃料棒 位置	燃料棒 S/N	燃料 ロット	燃料 重量, g	炉 停 止 時		選 択 の 根 拠
					相対出力	燃焼度	
B-042	L2	JBP-016	614	2532.9	1.264	13667	破損
	K13	JBP-084	614	2537.6	1.245	13526	破損
	B12	JBP-003	614	2545.2	1.267	13629	破損
	G9	JBP-044	614	2517.7	1.223	12896	破損
	J1	JBP-027	614	2533.6	1.181	12826	渦電流信号
	E11	JBP-005	614	2548.8	1.213	13231	渦電流信号
	N12	JBP-004	614	2541.6	1.197	13189	渦電流信号
	C13	JBP-122	614	2540.8	1.265	13636	健全
B-069	N2	JCN-151	622	2556.6	1.230	12744	破損
	M12	JBY-145	617	2553.9	1.234	13535	破損
	E11	JBY-157	617	2531.2	1.232	12935	渦電流信号
	K1	JCN-182	622	2534.7	1.220	12635	渦電流信号
	J5	JBY-142	617	2540.4	1.202	12321	渦電流信号
	D2	JCN-199	622	2541.9	1.271	12842	渦電流信号
	C13	JBY-097	617	2523.6	1.285	13349	健全
	C2	JCN-196	622	2521.2	1.279	12904	健全
A-047	F7	HBV-001	516	2531.0	1.073	12453	破損
	B6	HBU-198	516	2536.7	1.019	11478	渦電流信号
	M10	HBV-007	516	2537.0	1.056	11946	渦電流信号
	E4	HBU-169	516	2505.5	1.081	12410	渦電流信号
	C13	HBV-067	516	2562.6	1.097	12437	摩耗-グリッド8
	I7	HBV-002	516	2526.8	1.075	12464	健全
	J6	HBV-009	516	2532.0	1.030	11801	健全
C 231	G10	KCA-109	719	2560.8	.969	9661	破損
	L2	KCA-019	719	2560.0	1.296	12762	燃料スタック下部における渦電流信号
	J13	KCA-185	719	2531.5	.998	9784	渦電流信号
	N14	KCA-156	719	2555.5	1.060	10172	摩耗-グリッド8
	A14	KCA-125	719	2543.8	.689	6747	摩耗-グリッド3および5
	E8	KCA-051	719	2566.8	.972	9743	健全
	N6	KCA-058	719	2546.2	1.142	11165	健全

4.0 ホット・セル試験の結果

4.1 範囲の概要

Maine Yankee 燃料棒のホット・セル試験は2つのキャンペーンで行なわれた。第1キャンペーンにおいては、主要な目的は初期の被覆管破損の原因の証拠を得ることであった。第2キャンペーンにおいてはこの目的を遂行することに加えて、燃料棒のパフォーマンスに関するデータおよび燃料棒のパフォーマンス・モデルを評価するのに役立つデータを得ることに重点が置かれた。燃料棒の選択および試験は、特に燃料棒の熱伝達特性の減少機構および第1キャンペーン(1)で観察された核分裂生成物の放出の調査に向けられた。

両方のキャンペーンで行なわれた試験の種類は、以下に示すとおりである。

1. プロフィロメトリースパイラル (spiral) ・スキャンおよび2方向の直線スキャン
2. 外観検査
3. ガンマ・スキャン・グロス・ガンマ (第1キャンペーン) および特定の同位元素に対するガンマ・スキャン (第2キャンペーン)
4. 燃料棒パンクチュアおよびガス収集
5. ホット・セルにおける渦電流試験
6. 被覆管内面観察のための被覆管切開
7. 燃料および被覆管の金相試験
8. SEMによる被覆管クラックの特性化
9. 照射された燃料の密度測定
10. 燃料と被覆管の反応領域の電子マイクロプローブ分析 (electron microprobe analysis)
11. 燃焼度測定

両方のキャンペーンで行なわれた個々の燃料棒に関する試験を Table 4-1 に示す。全体的なホット・セル試験の結果を以下の節に示す。

4.2 プロフィロメトリ (燃料棒の直径測定)

4.2.1 範囲および方法

第1ホット・セル試験キャンペーンの期間中に、燃料棒の局所的な直径の特性化ならびに燃料棒の全長にわたってオーバリティの程度および被覆管のクリープダウンの決定を行なうために、全部で16本の燃料棒 (14本は健全なもので2本は破損したもの) について連続的なプロフィロメトリ測定が行なわれた。測定は標準の燃料棒回転方式で行なわれた。

Table 4-1 Maine Yankee ホット・セル試験の概要

燃料棒 S/N	集合体 位置	燃料棒平均 燃 烧 度 MWD/MTU	外 観	プロフィロ メ ト リ	ガ ン マ ス キ ャ ン	核 分 裂 ガ ス	渦 電 流	燃料密度 サンプル数	燃料-被覆 管金相試験 サンプル数	燃 烧 度 サンプル数	被覆管 切開数
<u>B-042 集合体</u>											
JBP-027	J-1	12,826	×	×	×	×	-	-	2	-	1
JBP-003	B-12	13,629	×	×	⊗	破損燃料棒	-	-	②	-	-
JBP-004	N-12	13,189	×	×	⊗	×	×	⑥	-	-	①
JBP-005	E-11	13,231	×	×	×	×	×	-	6+②	2	-
JBP-122	C-13	13,636	⊗	×	⊗	×	×	-	③	-	-
JBP-044	G-9	12,896	×	-	⊗	破損燃料棒	-	-	-	-	-
JBP-016	L-2	13,667	破壊 (broken) 燃料棒 -- ホット・セル試験は行なわれなかった。								
JBP-084	K-13	13,526	破壊 (broken) 燃料棒 -- ホット・セル試験は行なわれなかった。								
<u>B-069 集合体</u>											
JBY-157	E-11	12,935	×	×	×	×	×	-	3	-	-
JCN-182	K-1	12,635	×	×	×	×	×	-	4	-	-
JBY-145	M-12	13,535	×	-	⊗	破損燃料棒	-	-	-	-	-
JCN-199	D-2	12,842	×	×	×	×	×	-	3	-	-
JBY-142	J-5	12,231	×	×	-	×	×	-	3	-	-
JCN-151	N-2	12,744	×	-	-	破損燃料棒	-	-	-	-	-
JCN-196	C-2	12,904	⊗	⊗	⊗	⊗	×	③	③	②	②
JBY-097	C-13	13,349	⊗	⊗	⊗	⊗	×	②	⑤	-	-
<u>A-047 集合体</u>											
HBU-198	B-6	11,478	×	×	×	×	-	-	-	-	-
HBV-007	M-10	11,946	×	×	×	×	-	-	-	-	-
HBV-002	I-7	12,464	⊗	⊗	⊗	⊗	×	-	-	-	-
HBU-169	E-4	12,410	×	×	⊗	⊗	×	④	③	①	①
HBV-067	C-13	12,437	×	-	-	×	-	-	2	-	-
HBV-009	J-6	11,801	×	-	-	⊗	×	-	-	-	-
HBV-001	F-7	12,453	破壊 (broken) 燃料棒 -- ホット・セル試験は行なわれなかった。								
<u>C-231 集合体</u>											
KCA-109	G-10	9,661	×	×	-	破損燃料棒	-	-	-	-	-
KCA-125	A-14	6,757	×	×	×	×	-	-	-	-	-
KCA-185	J-13	9,784	×	×	×	⊗	-	-	-	-	-
KCA-019	L-2	12,762	×	×	⊗	×	×	-	-	-	-
KCA-058	N-6	11,165	×	-	-	⊗	-	-	-	-	-
KCA-156	N-14	10,172	×	-	-	⊗	-	-	-	-	-
KCA-051	E-8	9,743	×	-	-	⊗	-	-	-	-	-

×=第1キャンペーンで試験を行なったもの

⊗=第2キャンペーンで試験を行なったもの

--=試験が行なわれなかったもの

第2キャンペーンでは、さらに3本の健全な燃料棒のプロフィロメトリが行なわれた。3本のうち2本については、さらに0度および90度の2方向に対して非回転方式（直線トレース）で直径のトレースが得られた。

この測定に使われたBattelleのプロフィロメータをFig. 4-1に模式的に示す。それは、燃料棒に沿って軸方向に移動する、180度離れて置かれた2つの線形可変差働トランスデューサ（LVDT）、燃料棒回転機構およびチャート記録装置で構成されている。燃料棒は、トランスデューサ・ヘッドの上・下に置かれた案内ローラーによって位置決めされる。トランスデューサは、燃料棒の軸方向に移動しながら燃料棒直径の変化に应答し、これらの应答は電气的に変換されてチャート記録計に書き込まれる。システムは、異なった直径を正確にステップ状に機械加工した丸い標準棒で校正されている。Maine Yankee燃料棒の測定に使われた標準棒は、2、3、4、5および6ミルのステップで直径が0.426から0.456インチまで変化している部分を含んでいた。各部分の直径の精度は±0.1ミルである。

燃料棒の測定に先立って、燃料棒の軸方向の位置を決めるために、下から2、35、70、105および140インチのところに軸方向のマーカを付けた。測定における軸方向位置の精度は±1/16インチである。各燃料棒は8回転/インチのピッチでプロフィルされ、チャート上に最大および最小直径が記録される。

プロフィロメータ・システムの正確さは±0.0002インチ（95%信頼度）であり、測定された平均直径の精度は±0.0002インチ（95%信頼度）である。

第1および第2キャンペーンで得られた直径測定の結果をTable 4-2に示すとともに、以下の各節で考察を行なう。

4.2.2 燃料棒のオーバリティ

燃料棒のオーバリティ（すなわち、与えられた軸方向位置における最大および最小直径の差）は、0.2から16.2ミルの範囲にわたっている。Table 4-3に、燃料棒の何本かで観察されたオーバリティの種々の範囲の積算長さを示す。積算長さは、与えられた範囲のオーバリティを有するすべての長さを加えることによって得られた値である。燃料棒で観察された典型的なオーバリティの範囲は、Fig. 4-2、4-3、および4-4に示されたプロフィロメトリ・トレースに見ることができる。それらは、それぞれJBP-005燃料棒の最大オーバリティ領域、典型的な領域およびプレナム領域である。

燃料棒の高オーバリティ領域が、ガンマ・スキャンニングによって検出された燃料スタックのギャップと一致しているのは、わずか2つの場合だけであった。JBY-157燃料棒の場合には、Fig. 4-5（Fig. 4-19のガンマ・スキャントレースも参照）に示されているように高オーバリティ領域はギャップ部と一致している。これは、ギャップがオーバリティに寄与していることを示唆している。もう1つJBP-027燃料棒の場合には、Fig. 4-6（Fig. 4-20のガ

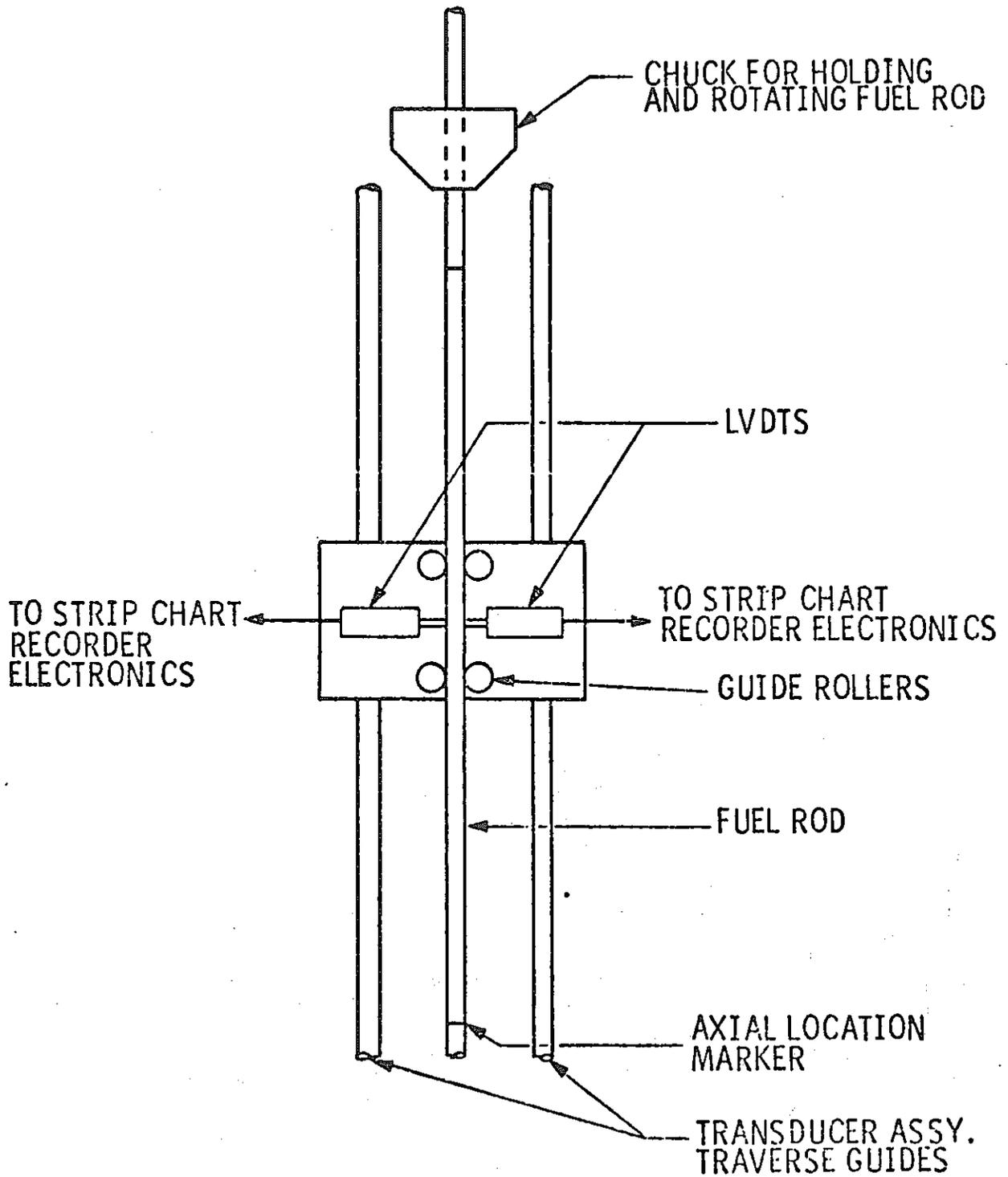


Fig. 4-1 Battelleのプロフィロメータ装置

Table 4-2 プロフィロメトリ データの概要

燃料棒 No	位置 および 集合体	燃焼度 MWD/MTU	炉停止時 相対出力	最大オーバーリティ (ミル) および 位置*		平均直径, インチ			最大直径 減少, ミル	備 考
						プレナム 140*	最 小 値 および位置*			
JBP-122	C13 B042	13,636	1.265	11.6	112-1/2	.4395	.4366	50 & 80	2.9	高ガス放出率
JBP-003	B12 B042	13,526	1.245	5.2	86-7/16	.4416	.4395	90	2.1	破 損
JBY-097	C13 B069	13,349	1.285	12.8	88-1/10	.4405	.4377	95	2.8	高ガス放出率
JBP-005	E11 B042	13,231	1.213	11.6	87-5/8	.4395	.4369	80-100	2.6	高ガス放出率
JBP-004	N12 B042	13,189	1.197	12.8	83-7/8	.4388	.4354	50 & 60	3.4	低ガス放出率
JBY-157	E11 B069	12,935	1.232	10.6	40-9/16	.4388	.4358	80	3.0	低ガス放出率
				10.4	81-1/8					
JCN-196	C2 B069	12,904	1.279	4.0	76	.4413	.4389	80	2.4	高ガス放出率
JCN-199	D2 B069	12,842	1.271	6.4	58-7/16	.4416	.4395	50 & 60	2.1	高ガス放出率
JBP-027	J1 E042	12,826	1.181	6.4	99-1/8	.4410	.4395	70	1.5	高ガス放出率
KCA-019	L2 C231	12,762	1.296	7.2	42-7/8 & 53-9/16	.4419	.4392	100	2.7	低ガス放出率
JCN-182	K1 B069	12,635	1.220	6.0	78-1/8	.4394	.4377	60	1.7	高ガス放出率
HBV-002	I7 A047	12,464	1.075	11.8	58-2/10	.4390	.4366	85	2.4	低ガス放出率
HBU-169	E4 A047	12,410	1.081	14.6	86-1/2	.4404	.4377	60 & 80	2.7	高ガス放出率
JBY-142	J5 B069	12,321	1.202	13.6	64-1/2	.4392	.4370	60 & 80	2.2	低ガス放出率
HBV-007	M10 A047	11,946	1.056	16.2	117-1/4	.4397	.4368	90	2.9	低ガス放出率
HBU-198	B6 A047	11,478	1.019	10.4	124-1/2	.4400	.4374	90	2.6	低ガス放出率
KCA-185	J13 C231	9,784	0.998	5.5	53-5/8 & 103-1/2	.4390	.4368	90, 100, 110	2.2	低ガス放出率
KCA-109	G10 C231	9,661	0.968	10.0	2 (bulge) 1.8 52-5/16	.4417	.4415	70, 90, 100	0.2	破 損
KCA-125	A14 C231	6,747	0.689	2.5	69-1/8	.4407	.4391	90	1.6	低ガス放出率

* 燃料棒下部からの位置 (インチ)

Table 4-3 選択した燃料棒におけるオーバーバリティの程度

燃料棒	燃焼度	各範囲の燃料棒オーバーバリティの累積長さ(インチ)					2ミル以上のオーバーバリティを有する長さ(インチ)
		2ミル以下	2-4ミル	4-6ミル	6-8ミル	8ミル以上	
JBP-122	13,636	25	39-7/8	37-1/2	28-1/8	12-5/8	118-1/8
JBP-027	12,826	97	41	4-3/4	1/4	なし	46
JBP-005	13,231	42	50-1/2	31-1/4	12-5/8	6-1/2	100-7/8
JCN-182	12,635	100	34	9-1/8	なし	なし	43-1/8
JBY-157	12,935	46	41-3/4	30-7/8	18-3/4	5-5/8	97

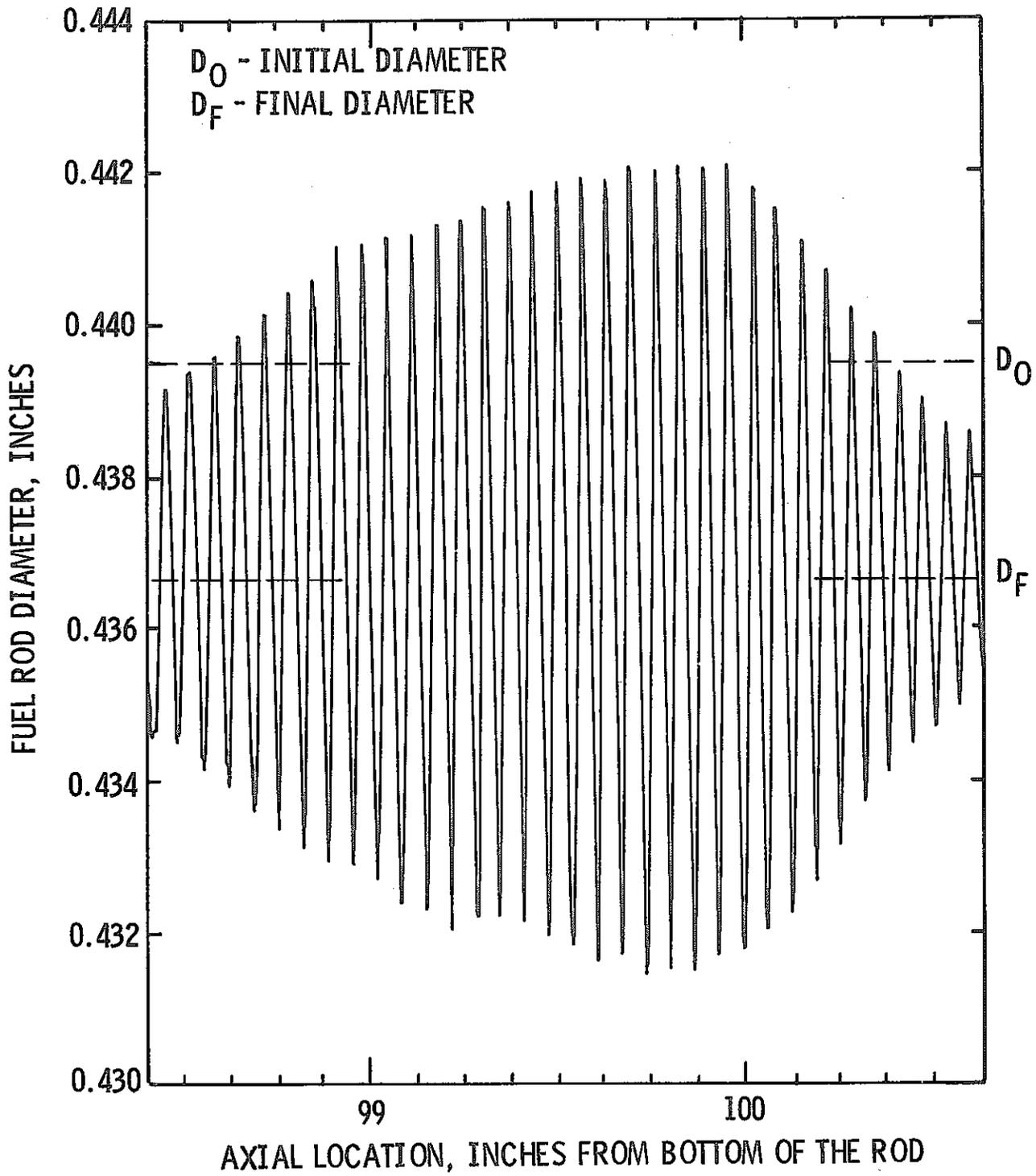


Fig. 4-2 大きなオーバーリティ (10.6ミル) を示している JBP
-005 のプロフィロメータ・トレースの一部

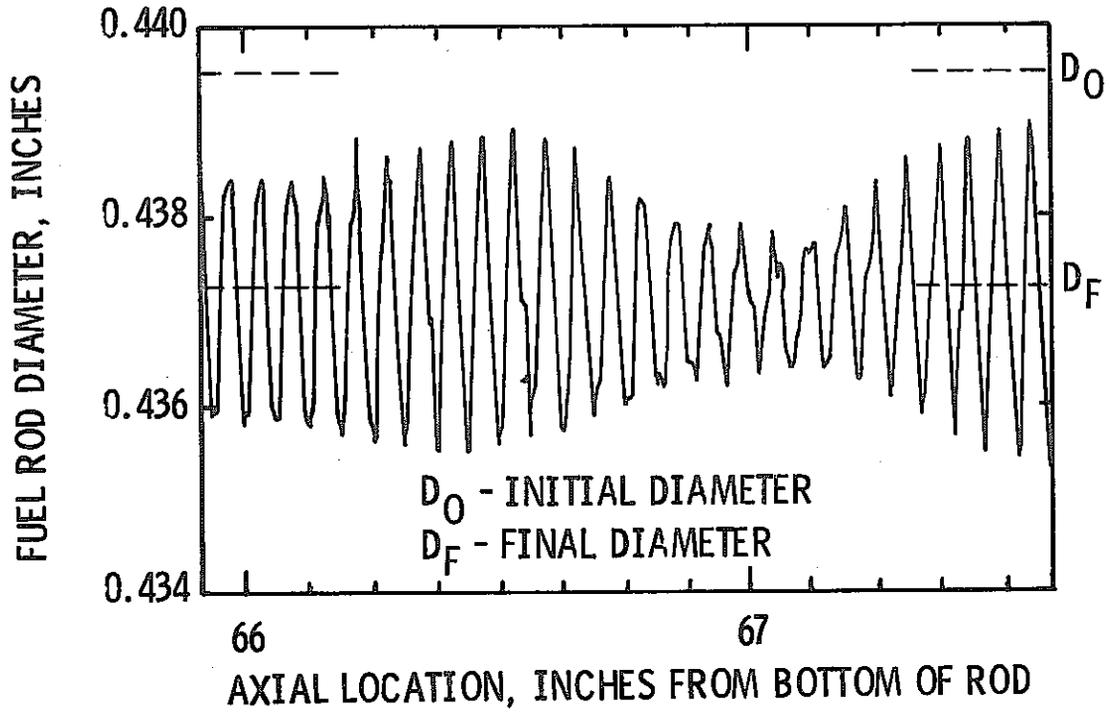


Fig. 4-3 典型的なオーバーリティ（約3.5ミル）を示している
JBP-005のプロフィロメータ・トレースの一部

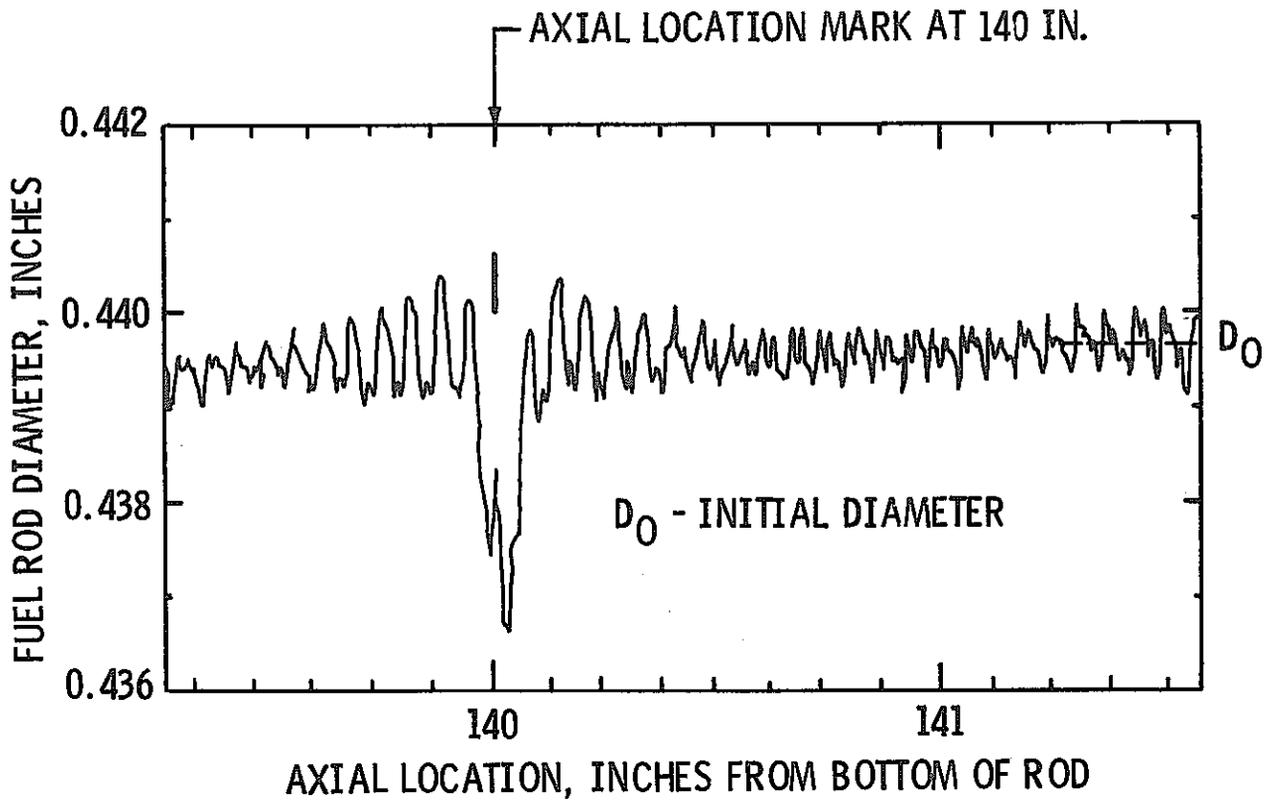


Fig. 4-4 プレナム領域を示しているJBP-005のプロフィロメータ・トレースの一部

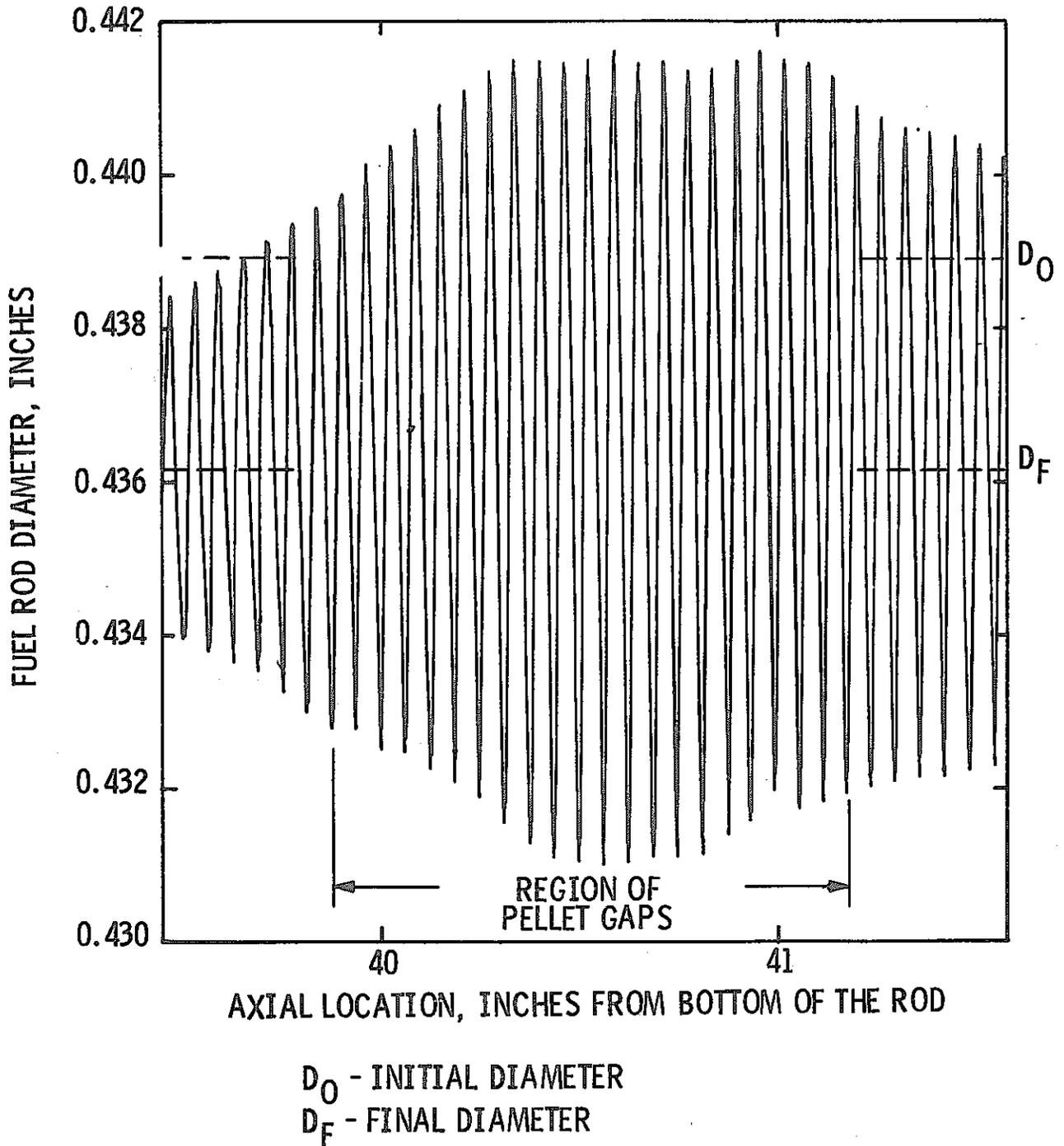


Fig. 4-5 ペレット・ギャップと高オーバーリティが一致した領域を示している JBY-157 のプロフィロメータ・トレースの一部

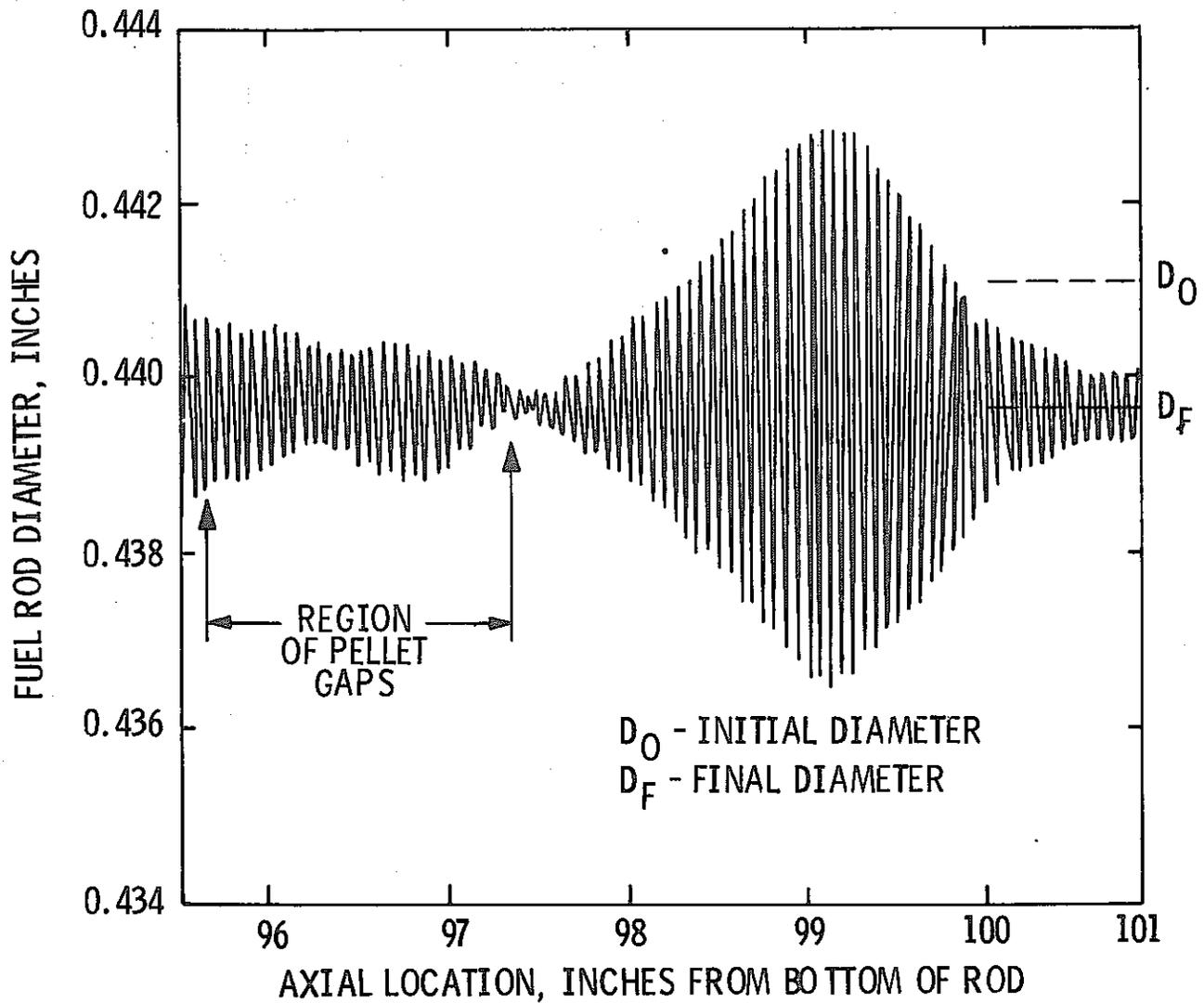


Fig. 4-6 ペレット・ギャップのすぐ上に最大のオーバーリティを有する領域を示しているJBP-027のプロフィロメータ・トレースの一部

ンマ・スキャントレースも参照)に示されているように、最大のオーバーリティ領域はペレットギャップのちょうど上に位置している。これに対しては、炉停止時に高オーバーリティ領域にペレットが引っかかり、その下にギャップが生じたという説明が可能である。

プロフィロメトリのデータによって、高燃焼度燃料棒の間に2つのかなり異なったオーバーリティがあることが示された。14本の健全な高燃焼度燃料棒(12,000 MWD/MTU以上)のうち5本における最大オーバーリティは4~7.2ミルの範囲であったが、残りの燃料棒は10.4~14.6ミルの範囲の最大オーバーリティを有していた。

その他の目立った観察結果は、オーバーリティの主軸の方向が周期的に変化していることである。方向変化の大部分は90度のオーダーであるように思える(すなわち、主軸が90度毎の回転を示している)。さらに、方向の変化は周期的であり、3~4インチの長さにわたって徐々に生じているように思われる。ほとんどすべての場合に、変化はオーバーリティの最小部を通ることによって生じている。これは、2方向の直線トレースを重ね合わせることによってFig. 4-7に表示されている。オーバーリティの回転は、被覆管にらせん状のオーバーリティ・パターンを引き起こす被覆管の製造工程の結果であると信じられている。それはまた、製造工程の結果である被覆管肉厚のらせん状のわずかな偏心に起因している可能性もある。

4.2.3 被覆管のリッジング

第1キャンペーンで得られた直径のらせん状トレースによると、燃料棒のほとんどに0.1ミル程度の高さの被覆管リッジングがわずかに示されていた。リッジは主に、燃料棒の下から70~120インチの間の軸方向の位置で観察された。約0.25ミルの高さの顕著なリッジも2,3個観察された。例えば、Fig. 4-8はJBP-005燃料棒で観察されたより顕著なリッジを示している。

被覆管リッジングの存在をもっとはっきり示す直径の直線トレース(0.4ミルまでのリッジが観察される)が、第2キャンペーンで2本の燃料棒について得られた。例えば、Fig. 4-9はJBY-097燃料棒のペレット境界で観察された被覆管のリッジングを示している。ペレット境界から離れたところにもリッジが観察されることに注意せよ。これらは、縦方向の被覆管の切開および燃料棒の試験で観察されるペレットの横断面方向のクラックパターンに関連したものであると信じられている。その他の目立った観察結果は、Fig. 4-9に見られるように、主に被覆管オーバーリティの短軸方向におけるリッジの存在である。被覆管のリッジが被覆管オーバーリティの主軸方向にはあまり観察されないという事実は、リッジは本当に存在し(すなわち、腐食生成物によって引き起こされたものではない)、また燃料棒の円周方向にわたって連続ではないということを示している。

被覆管リッジングの観察は、被覆管破損のメカニズムを調べる観点から見て重要なことであると信じられている。例えば、Fig. 4-9に示されている0度方向の直線トレースにおいて、JBY

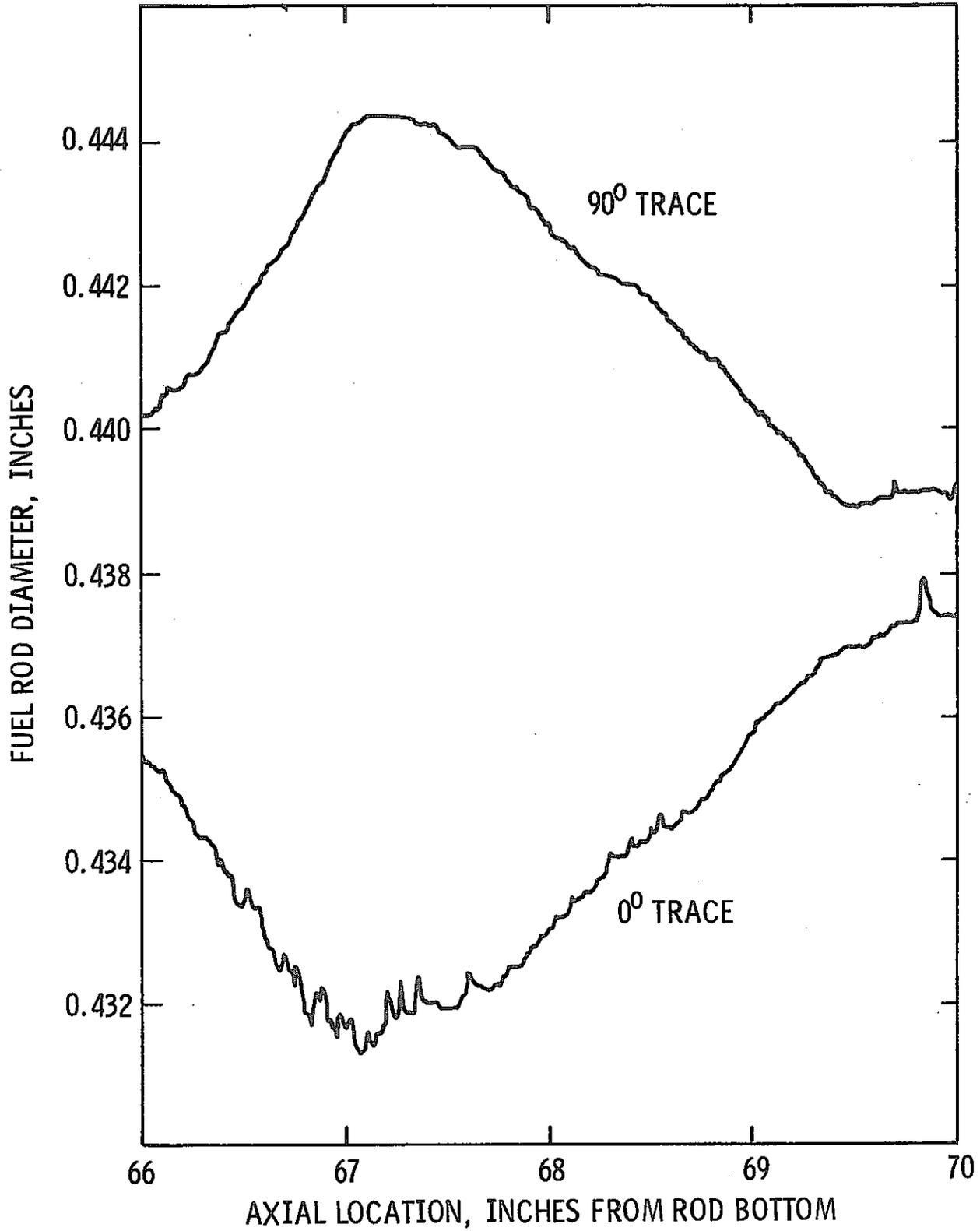


Fig. 4-7 燃料棒オーバリティの回転を示している, JBY-097
の0度および90度における直線直径トレースの重ね
合せ

APPROXIMATE PELLET LENGTH = 5/8 IN.

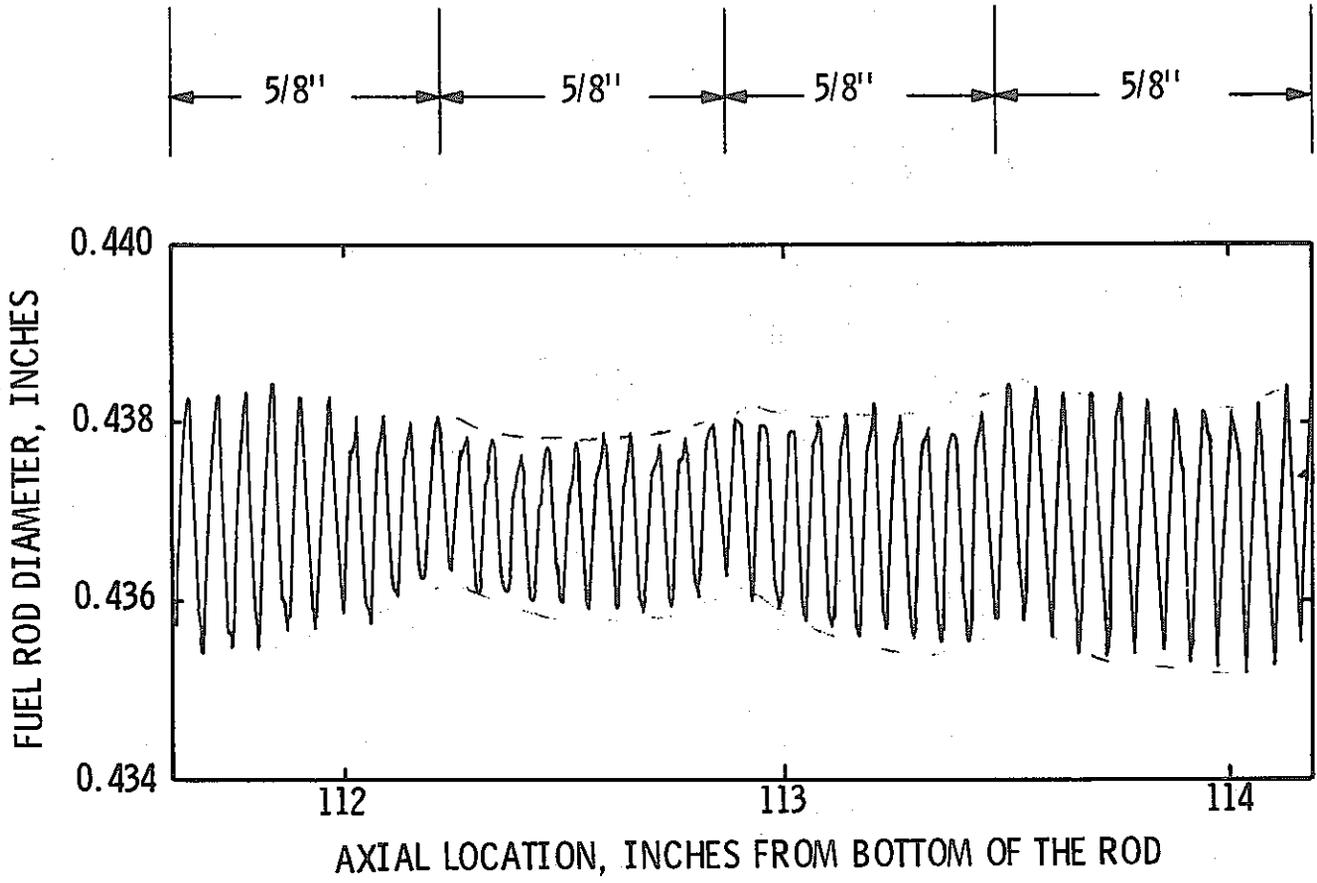


Fig. 4-8 燃料ペレット・リッジングを示しているJBP-005の
プロフィールメータ・トレースの一部

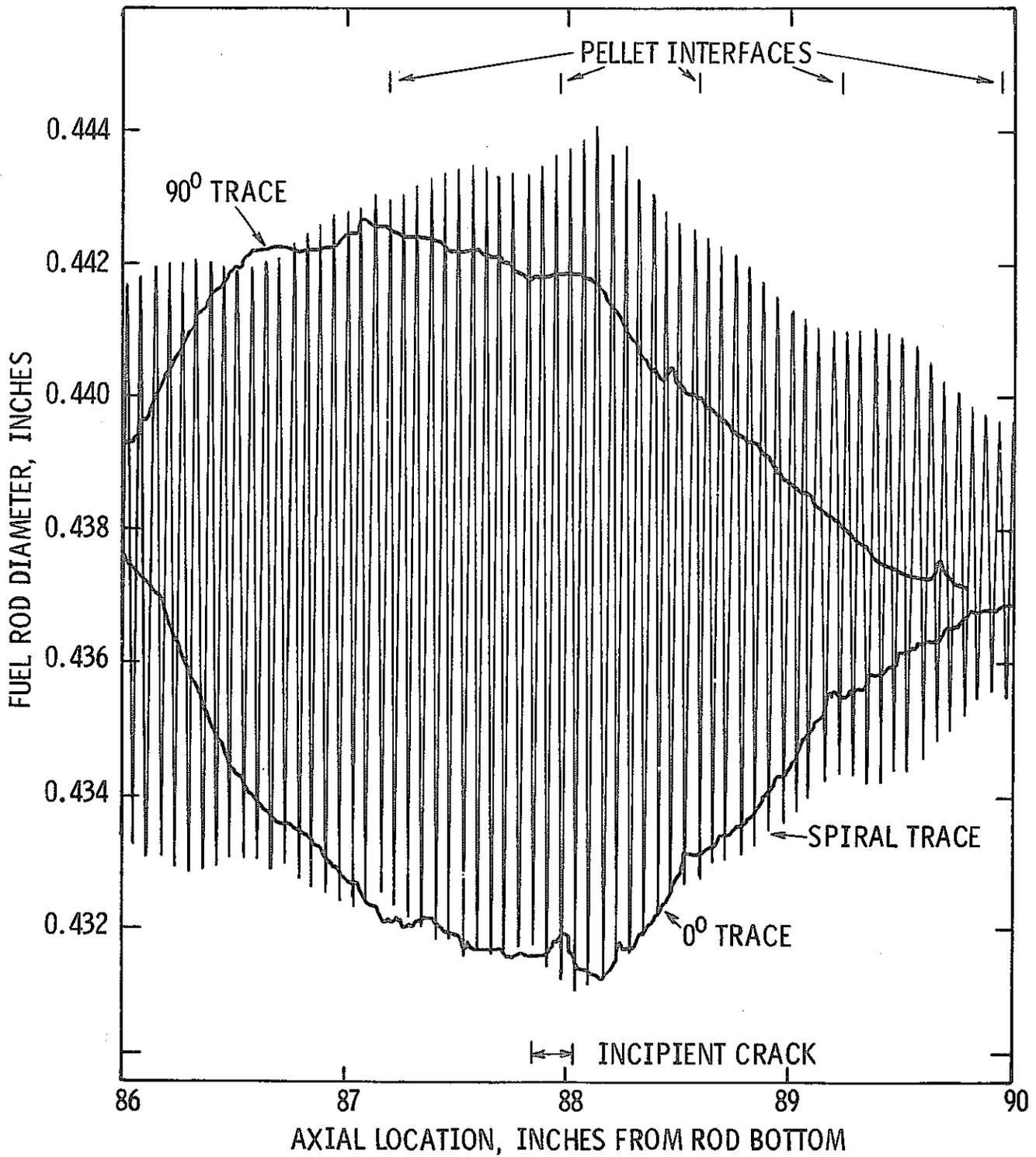


Fig. 4-9 JBY-097におけるペレット長間隔の被覆管リッジングを示している直線およびスパイラル直径トレースの重ね合せ

-097 燃料棒の下から88インチのところにある被覆管リッジは、金相試験（第4.8節参照）で観察された初期の被覆管クラックの位置に対応している。顕著な被覆管リッジングと初期の被覆管クラックの位置が一致することは、ペレットと被覆管の相互作用に関連したメカニズムを支持している。

4.2.4 被覆管のクリープダウン

Table 4-2に、照射後の燃料棒のプレナム部（燃料棒の下から140インチのところ）の直径が製造時の燃料棒直径の代表値であるという仮定の下で、プロフィロメータのトレースから得られた直径減少の程度がまとめられている。これらのデータは、平均の燃焼度が約13,000 MWD/MTUの燃料棒に対する直径減少は2~3ミルの範囲であることを示している。

JCN-199, JCN-182, JCN-196およびJBP-027の4本の健全な高燃焼度燃料棒は、同程度の燃焼度を達成した他の健全な燃料棒に比較して少ないクリープダウンおよび著しく低い最大オーバーティ（4~6.4ミル）を示していた。4本すべての燃料棒の核分裂ガス放出率は比較的高く、12.4%~15.3%（第4.4節参照）であったが、クリープダウンが小さいということは放出された核分裂ガスに起因する比較的高い内圧によっては説明することができなかった。高いガス放出率を示した他の4本の燃料棒、JBP-122, JBP-005, HBU-169およびJBY-097が、低いガス放出率を示した燃料棒と同程度のクリープダウンおよびオーバーティを示したということは注目されるべきである。プロフィロメトリデータに関するこれ以外の考察は、この報告書の第6節（データ解析）に記載されている。

Table 4-2には、破損した2本の燃料棒、KCA-109およびJBP-003から得られたデータも含まれている。破損した被覆管では圧力差がなくなるので、クリープダウンが停止しそうである。したがって、直径減少のデータは、KCA-109燃料棒（バッチCの中で破損した唯一の燃料棒）の被覆管は燃料寿命中の初期に破損し、JBP-003燃料棒の被覆管は寿命の末期に破損したことを示唆している。

4.3 外観検査

ホット・セル試験キャンペーン中に、全部で26本（破損した燃料棒5本および健全な燃料棒21本）の燃料棒が外観検査され、破損燃料棒の貫通部、腐食生成物の付着部およびグリッドの接触部の写真が撮られた。一般的に、ホット・セル試験中に行なわれた燃料棒の外観検査の結果は、プールサイド試験中に行なわれた検査結果と一致していた。

4.3.1 健全な燃料棒

健全な燃料棒の一般的な外観は、突起（bump）、よじれ（kink）およびみぞ（gouge）のような表面の異状もなく、非常に良い状態であると思われた。これらの燃料棒表面上の腐食生成物は

次のような2つのタイプであった。

1. 通常薄い黒灰色の物質でできている密着性の付着物。

時々、赤橙色の分厚いはん点の腐食生成物も見られた。大部分のはん点の厚さは、プロファイロメトリ測定で腐食生成物が検出できなかったことに基づいて、0.1ミル以下であると見積られた。

2. ブラシでたやすくすり落とすことのできる薄片状の腐食生成物。

プールサイドにおける観察で、腐食生成物は燃料棒の下部でより多く組織をなしているように見えたが、ホット・セル試験によってこの分布が確認された。羽毛状のフロー・パターンは各グリッドのある程度上方まで見られるが、保持グリッド（最下部のグリッド）および下部のスペーサ・グリッドのすぐ上方でより顕著であった。プレナム部には腐食生成物はほとんど観察されないか、あるいはまったく観察されなかった。

ホット・セルで観察された密着性の腐食生成物の量は、プールサイド試験時に観察された量と等しいように思われた。しかし、薄片状の腐食生成物の量は、プールサイド試験時に観察された量よりもかなり少なかった。これは多分取り扱い中のロスに起因するのであろう。Fig. 4-10～4-13は、外観検査中に燃料棒の表面に観察された種々のタイプの腐食生成物の典型的な外観を示している。2つのタイプの腐食生成物に加えて、腐食生成物の帯が何本かの燃料棒に観察される。Fig. 4-14は、JBY-157燃料棒で観察された腐食生成物の帯の典型的な外観を示している。この部分のガンマ・スキャンによって、この帯は燃料のデンシフィケーションによって引き起こされたペレット・スタック中のギャップと関連していることが示された（Fig. 4-19参照）。

4.3.2 破損した燃料棒

ホット・セルにおける破損した5本の燃料棒の外観検査の結果をTable 4-4にまとめて示す。これらの結果の概要は以下に示すとおりである。

1. 被覆管中にブリストア（blister）およびバルジ（bulge）が観察されたが、バルジについては観察されないものもあった。
2. 2～3個の小さなブリストアおよびバルジが他の場所でも観察されたが、ブリストアは主に燃料棒の下から70～105インチの間に位置しているように思われる。
3. 大きなブリストアの部分を除いて、被覆管中にクラックまたはスプリット（split）は観察されなかった。
4. 一般的に、ホット・セルで観察されたブリストアの外観および位置はプールサイドで得られた同様のデータと良く一致している。

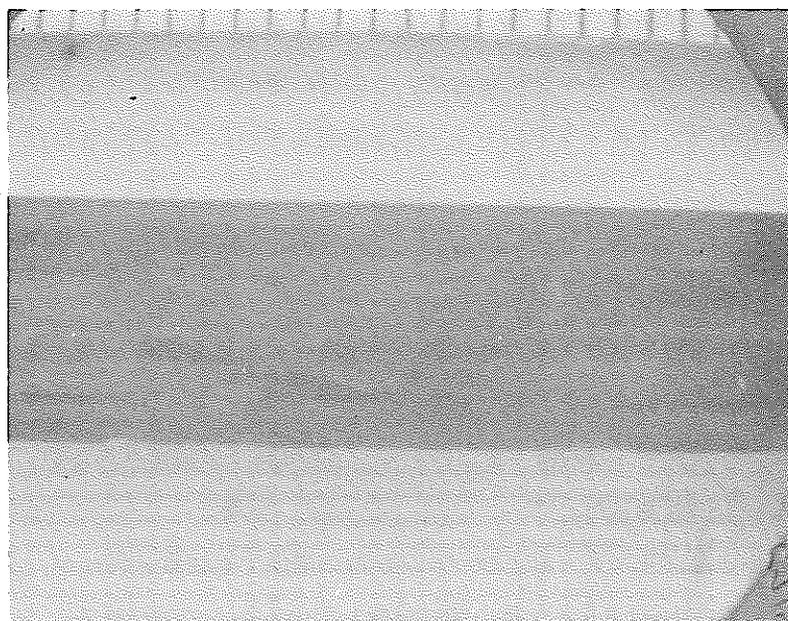
Fig. 4-15～4-18は、破損した燃料棒で観察されたブリストアおよびバルジの外観を示している。



P5709

3.5X

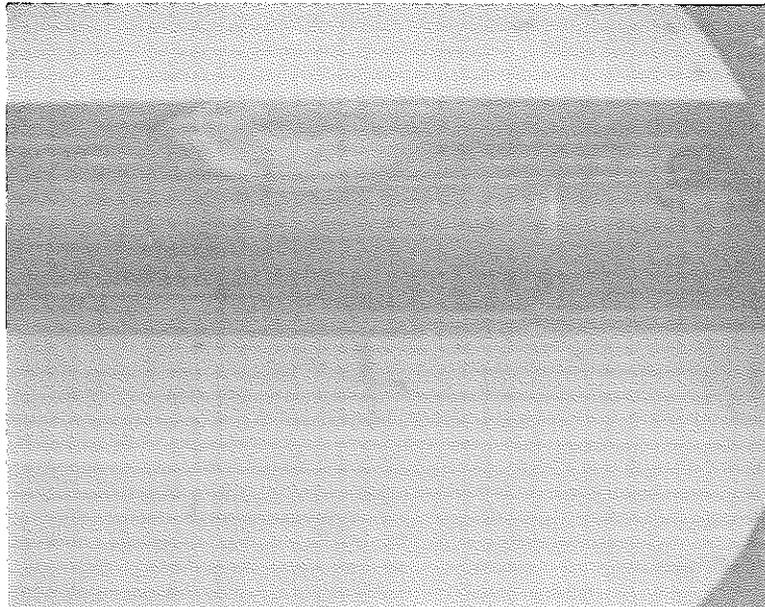
Fig. 4-10 KCA-058の37-3/4インチの位置におけるクラッド・パターン



P5715

3.5X

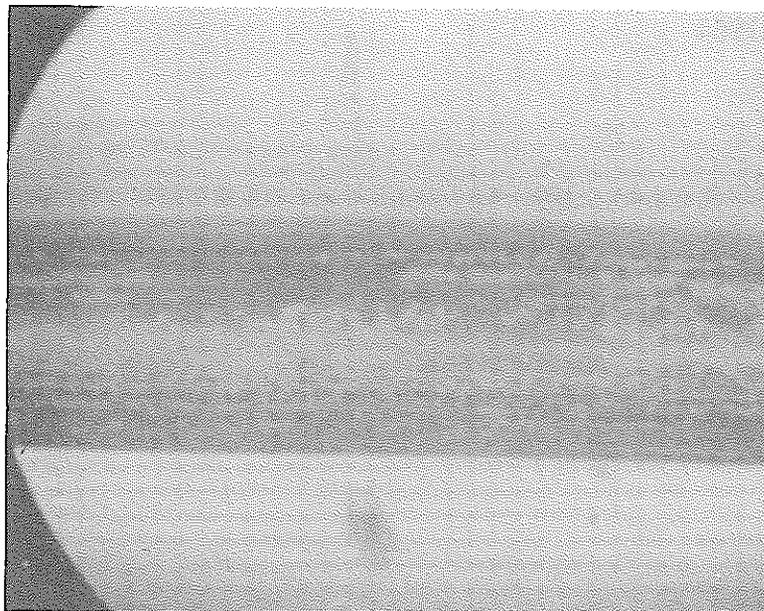
Fig. 4-11 HBV-009の33インチの位置における多量の黒色クラッド・パッチ



P5710

3.5X

Fig. 4-12 KCA-058の85-1/2インチの位置における明るいオレンジ色をしたクラッドのパッチ



P5716

3.5X

Fig. 4-13 HBV-009の93-3/8インチの位置における薄片状のクリーム色をしたクラッド

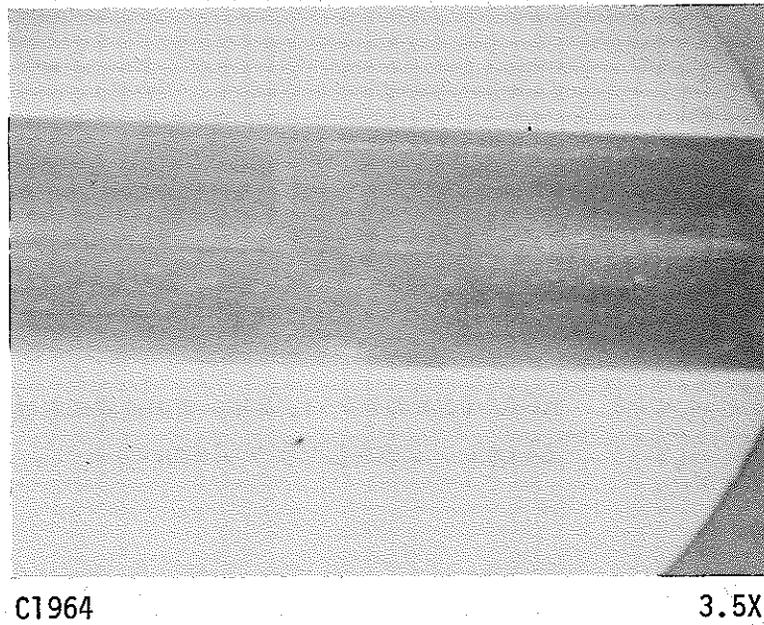
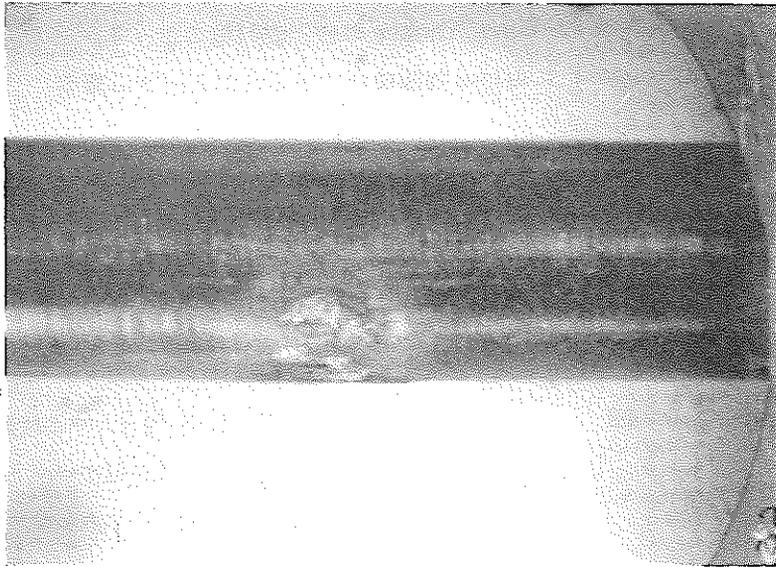


Fig. 4-14 JBY-157の41インチの位置で観察された典型的なクラッド・バンドの外観

Table 4-4 Maine Yankee の破損燃料棒のホット・セル
における外観検査で得られたデータの概要

燃料棒	位置および 集合体	燃 焼 度 MWD/MTU	ホット・セルにおける外観検査の結果*
KCA-109	G10, C231	9,661	ただ1つの欠陥が観察された。 直径が0.3インチの砕けたプリスターが88- 1/2インチの位置にあった。
JBP-003	B12, B042	13,629	13および18-3/4インチの位置にプリスター、 88-3/4インチの位置にバルジ、91-1/4イ ンチの位置にクラックの入ったプリスター、101 -1/4インチの位置にプリスター貫通孔(直径 0.2インチ)、38および76-3/8インチの位 置にその他のプリスター状のものが観察された。
JCN-151	N2, B069	12,744	96-1/8インチの位置で観察された欠陥(直径 0.2インチ)は貫通していた。 127-3/4インチの位置にプリスター、58- 1/2、65-1/2、65-3/4、91および97 インチの位置にプリスターらしきものがあつた。 下部端栓はプールサイド試験中に脱落した。
JBY-145	M12, B069	13,535	1-5/8および2-5/8インチの位置にバルジ、42- 11/16インチの位置にプリスター、82-3/8イン チの位置にクラックの入ったプリスター(直径0.3インチ)、 91インチの位置にプリスター、138-7/8インチの位 置にプリスターらしきものがあつた。
JBP-004	G9, B042	12,896	73-1/8、73-1/2、83-3/16、83-1/2、 101-1/2、101-3/4および102-3/4イン チの位置にプリスター、108-5/16、69-9/ 16および90-3/4インチの位置にプリスター 状のものがあつた。

*欠陥の位置は燃料棒の下部から表わしたものである。



P5802

3.5X

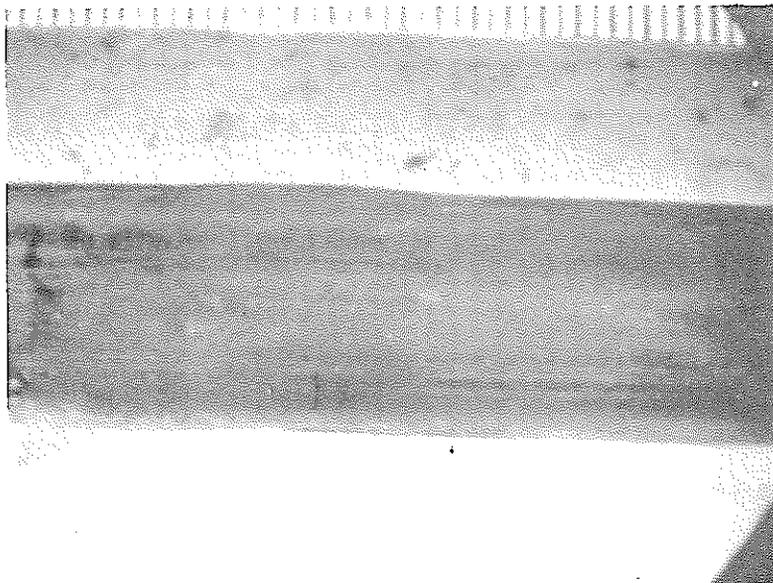
Fig. 4-15 JBP-003の10 1/4インチの位置における
ブリストー部の外観



C1933

3.5X

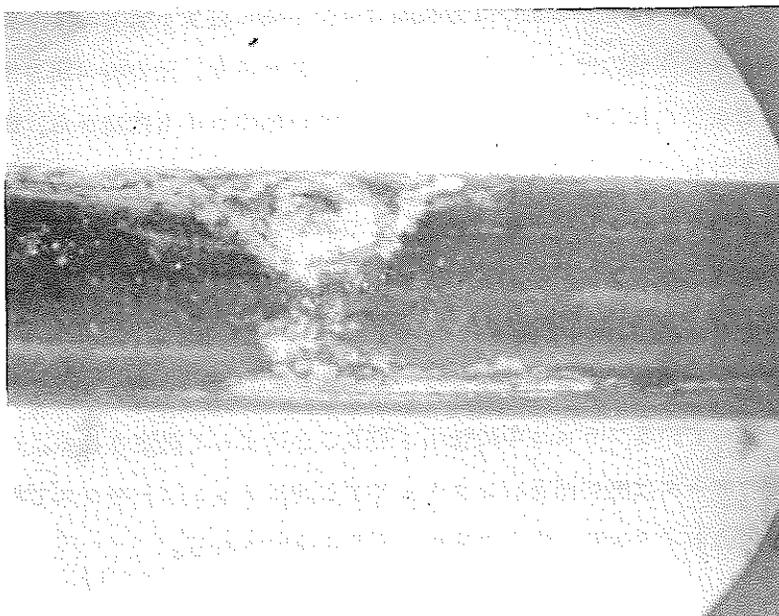
Fig. 4-16 KCA-109の8 1/2インチの位置における破損
したブリストー



C1994

3.5X

Fig. 4-17 JBY-145の1-5/8インチの位置におけるバルジ部



P5738

3.5X

Fig. 4-18 JCN-151の96-1/8インチの位置における破損したブリスター部

4.4 燃料棒のパンクチュアおよびガス収集

2回のホット・セル試験キャンペーンにおいて、16本の燃料棒（バッチBから10本、バッチAから5本、およびバッチCから1本）がパンクチュアされた。またこれらの燃料棒からガスを収集し、核分裂ガスの放出率を決定するため分析を行なった。

4.4.1 方法

これらの燃料棒をパンクチュアリングするために使われた方法の概要を以下に示す。

1. 気密性のパンチ・チャンバーに燃料棒を挿入し、チャンバーの両端をテフロン・シールでふさぎ真ちゆう製のナットでしめつける。
2. パンチ・チャンバー、膨張系、圧力計および収集系を含めた全体系を数ミクロンの圧力（通常5 μ Hg以下）まで真空中に排気する。系のセル内・外部のリーク率を決定する。
3. 系を再び排気し、パンチ・システムの圧力をパンチ・チャンバーおよび収集びんの温度と共に記録した後で、燃料棒をパンクチュアする。
4. 高圧圧力計または低圧圧力計（燃料棒中のガスの量および圧力に依存する）で圧力を読み、パンクチュア時ならびに2分および5分間隔で系が平衡に達するまで記録する。
5. 燃料棒中のガスを体積の分っているフラスコ中に膨張させ、その時の圧力を記録する。これらのデータおよびこれに続く操作で測定された燃料棒のボイド体積から、燃料棒中に含まれるガスの量を計算することができる。
6. 次に燃料棒中のガスを収集系に膨張させ、2つのガス収集バルブ中にテプラー・ポンプで排気する。これらのバルブを系から取りはずし、1つは質量分析用に供し、他の1つは予備として保存しておく。

次に燃料棒のボイド体積は、パンチ・チャンバーを排気し、燃料棒をヘリウムで約80 psiまで加圧した後体積の分っているフラスコ中に膨張させることによって決定される。この手順を10回くり返す。同様のデータは燃料棒をパンクチュアする前にチャンバーをガスで満たすことによって得られ、燃料棒のボイド体積は両方の体積の差から決定される。

4.4.2 結果

Table 4-5 および 4-6 に全体の計画で得られたデータを示す。燃料棒のパンクチュア時に行なわれたリーク・チェックおよび表に示されている収集ガスの成分の中に最初に充填したヘリウム・ガスが存在していることから、表に載っている燃料棒には貫通孔はなかったということが確認された。高燃焼度燃料棒の中に2種類のガス放出率の値—高い方は11.3~15.3%、低い方は1%以下—があることが分かる。高いガス放出率を示した燃料棒は、ホット・セルに送られたバッチBの10本の燃料棒の中の7本およびバッチAの燃料棒1本であった。第1キャンペーン

Table 4-5 Maine Yankee 燃料棒から得られた核分裂ガス放出データ

燃料棒 連続番号	位置 および 集合体	燃料棒 平均燃焼 度の計算値 MWD/MTU	時間平均 相対出力 ⁽⁴⁾	EOLにお けるボイド 体積の測定 値, cc	収集ガス の全体積 ⁽¹⁾ cc STP	収集され たHeの 体積 cc STP	収集された (Xe+Kr) の体積 cc STP	生成した (Xe+Kr) 体積の計算値 cc STP	核分裂ガス 放出率 %
JBP-027	J1, B042	12826	1.237	36.58	15249	30.95	12036	891.1	13.5
JBP-005	E11, B042	13231	1.276	34.26	15020	33.19	11691	919.1	12.7
JBP-004	N14, B042	13189	1.272	36.04	3570	30.32 ⁽²⁾	5.35 ⁽²⁾	916.2	0.58
JBP-122	C13, B042	13636	1.315	34.35	13638	28.91	10729	947.3	11.3
JCN-182	K1, B069	12635	1.218	36.18	14294	34.16	10861	877.7	12.4
JBY-157	E11, B069	12935	1.247	35.27	4102	32.32	8.66	898.6	0.96
JBY-142	J5, B069	12321	1.188	35.44	3213	28.56	3.51	855.9	0.41
HBU-198	B6, A047	11478	1.107	36.86	3196	29.18	2.72	797.4	0.34
HBV-007	M10, A047	11946	1.152	36.96	4056	35.36	5.15	829.9	0.62
KCA-125	A14, C231	6747	0.651	38.63	2926	25.42	2.82	468.7	0.60
HBV-067	C13, A047	12437	1.199	34.93	2381	20.71	3.05	864.0	0.35
JCN-199	D2, B069	12842	1.238	34.85	14228	23.60 ⁽³⁾	118.61 ⁽³⁾	892.1	13.3
JCN-196	C2, B069	12904	1.244	36.28	16362	25.85	137.28	896.4	15.3
HBU-169	E4, A047	12410	1.196	38.57	15008	26.41	123.56	862.1	14.3
JBY-097	C13, B069	13349	1.288	36.32	16372	39.13	124.36	927.3	13.4
HBV-002	I7, A047	12464	1.202	37.19	4098	34.83	6.01	865.9	0.69

(1) 2つの読み取り値の平均

(2) ガス試料中の4.98%の空気に対して修正された値

(3) ガス試料中の1.14%の空気に対して修正された値

(4) 炉心平均を1.0とした相対値

Table 4-6 Maine Yankee 燃料棒の核分裂ガス組成データ

燃料棒 連続番号	位 お よ び 集 合 体	燃料棒平均燃 焼度の計算値 MWD/MTU	収集ガス の全体積 ccSTP ⁽¹⁾	組 成 , 体 積 パ ー セ ン ト											核分裂ガス 放 出 率 %
				H ₂	He	CH ₄	H ₂ O	O ₂	N ₂	A	CO ₂	Kr	Xe	Xe/Kr	
JBP-027	J1, B042	12,826	15,249	.12	20.3	<.01	<.1	.11	.58	<.01	<.01	9.33	69.6	7.46	13.5
JBP-005	E11, B042	13,231	15,020	<.1	22.1	<.01	<.1	<.01	<.01	<.01	<.01	8.94	68.9	7.71	12.7
JBP-004	N12, B042	13,189	35.70	<.01	80.7	<.01	<.1	.98	4.00	.07	<.01	1.76	12.5	7.1	0.58 ⁽²⁾
JBP-122	C13, B042	13,636	136.38	<.1	21.2	<.01	<.1	<.01	<.01	<.01	<.01	9.17	69.5	7.58	11.3
JCN-182	K1, B069	12,635	14,294	.08	23.9	<.01	<.1	<.01	.02	<.01	<.01	9.18	66.8	7.28	12.4
JBY-157	E11, B069	12,935	41.02	.04	78.8	<.01	<.1	<.01	<.01	.07	<.01	2.72	18.4	6.77	0.96
JBY-142	J5, B069	12,321	32.13	<.01	88.9	<.01	<.1	<.01	.01	.08	<.01	1.40	9.55	6.82	0.41
HBU-198	B6, A047	11,478	31.96	<.01	91.3	<.01	<.1	<.01	.10	.08	<.01	1.07	7.45	6.96	0.34
HBV-007	M10, A047	11,946	40.56	<.01	87.2	<.01	<.1	<.01	.03	.06	<.01	1.52	11.2	7.37	0.62
KCA-125	A14, C231	6,747	29.26	<.01	90.3	<.01	<.1	<.01	.03	.03	<.01	1.33	8.34	6.27	0.60
HBV-067	C13, A047	12,437	23.81	<.01	87.0	<.01	<.1	<.01	.05	.07	<.01	1.53	11.3	7.38	0.35
JCN-199	D2, B069	12,842	142.88	<.01	16.4	<.01	<.1	.21	.93	<.01	<.01	9.61	72.8	7.58	13.3 ⁽³⁾
JCN-196	C2, B069	12,904	163.62	.2	15.8	<.01	<.1	<.01	.02	.01	<.01	10.1	73.8	7.31	15.3
HBU-169	E4, A047	12,410	150.08	.08	17.6	<.01	<.1	<.01	.03	.01	<.01	9.63	72.7	7.55	14.3
JBY-097	C13, B069	13,349	163.72	.11	23.9	<.01	<.1	<.01	.01	.01	<.01	8.96	67.0	7.48	13.4
HBV-002	I7, A047	12,464	40.98	<.01	85.0	<.01	<.1	.02	.21	.08	<.01	1.77	12.9	7.29	0.69

(1) 2つの読み取り値の平均

(2) 試料分析中に生じたと思われる4.98%の空気リークに対して修正された値

(3) 試料分析中に生じたと思われる1.14%の空気リークに対して修正された値

においては、高いガス放出率を示した燃料棒はバッチBの高燃焼度燃料棒のみに観察されたので、バッチAの燃料棒(HBU-169)が高いガス放出率を示したということは最初は驚きであった。この燃料棒に関する照射前データを調べたところ、燃料スタック重量が公称値よりも著しく小さいことが分った。スタック重量から計算された等価燃料密度によって、HBU-169の平均燃料密度は(公称値が93%T.Dであるのに対して)91.5%T.Dであることが分った。このタイプの燃料の炉内におけるデンシフィケーションは、その密度が低い程大きいと考えられており、この燃料棒から採取した試料に対して得られた照射後の密度測定の結果(第4.11節参照)から、燃料は約5%T.Dほど高密度化したことが分った。この燃料棒のガンマ・スキャンニングから得られたスタック長の短縮データも、HBU-169燃料棒中の燃料のデンシフィケーションが大きいことを確証した(第4.5節参照)。

HBU-169燃料棒で観察された高いガス放出率の重要性は、それが2種類の核分裂ガス放出率を説明するために第6節で提案される燃料棒熱伝達機構におけるデンシフィケーションに関連した減少を支持しているということである。

4.4.3 核分裂ガスの放出に関する追加データ

Table 4-5および4-6に示されている核分裂ガスの放出データに加えて、6本の健全な低燃焼度燃料棒からパンクチュア・データのみ(すなわち、ガスの収集および分析を行なわなかった)が得られた。これらのうちの5本はバッチCからのもの(KCA-019, KCA-051, KCA-058, KCA-156およびKCA-185)であり、残りの1本はバッチAからのもの(HBV-009)であった。6本全部の燃料棒の放出ガスの圧力は、他の低ガス放出率燃料棒から得られたものと同程度であった。したがって、これらの燃料棒のガス放出率は1%以下であると結論づけられた。

4.4.4 破損した燃料棒の加圧試験

第1キャンペーンにおいて、破損した燃料棒のうちの2本(JBY-145およびKCA-109)について、1つ以上の貫通した欠陥が存在するかどうかを調べるために加圧試験を行なった。2本の燃料棒の被覆管破損部全体を直径の大きい短い管でおおい、その管の両端をスウェージロック(Swagelok)端栓でシールした。次に燃料棒を、健全な燃料棒に対して使われたのと同様の方法でパンクチュアした後、ヘリウムで80 psiまで加圧し各燃料棒の全長にわたってリーク・チェックを行なった。JBY-145燃料棒は、下部端栓近くのふくらみ(bulge)部に第2の貫通孔のあることが分った。KCA-109燃料棒には他の貫通孔はなかった。この燃料棒では、ブリスターが被覆管の唯一の割れ目であったので、その金相特性(第4.8.3.5節参照)は第1次水素化が燃料棒の破損機構であったという結論を示唆している。

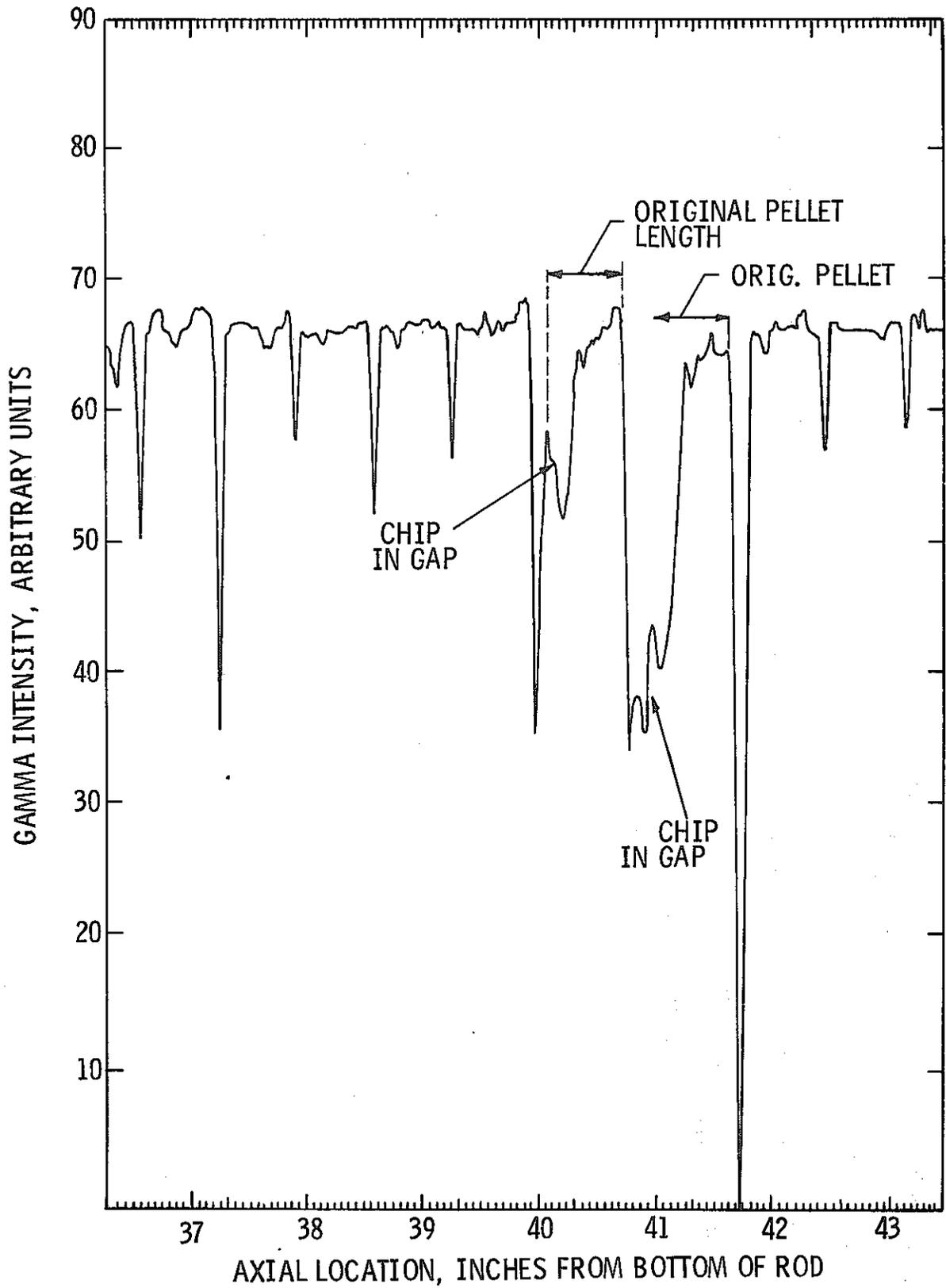


Fig. 4-19 ペレット・ギャップを示しているJBY-157の
ガンマ・スキャンの一部

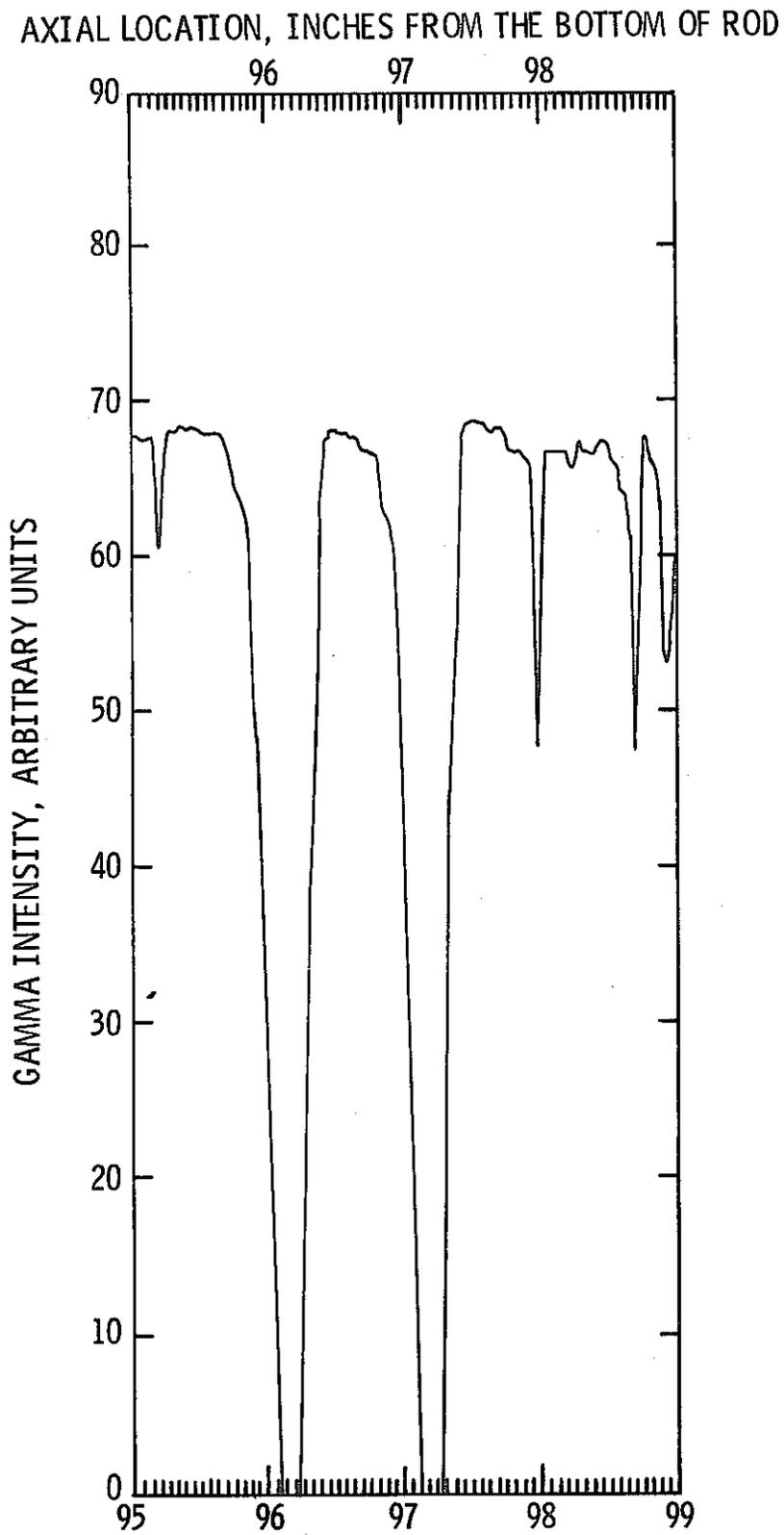


Fig. 4-20 ペレット・ギャップを示している JBP-027 の
ガンマ・スキャンの一部

4.4.5 Xe/Kr 比

高いガス放出が何本かの燃料棒で発生した時の燃焼度を確認する何らかの傾向を見定めるために、Table 4-6 に示されている Xe/Kr 比を調べた。燃料中の核分裂ガスは Pu-239 からの核分裂の寄与*を反映するので、燃料寿命の末期近くで発生する急激なガス放出の場合には Xe/Kr 比が大きくなると信じられている。しかし、データは高いガス放出率を示した燃料棒の間に Xe/Kr 比の際立った差異があることを示していない。そのかわり、燃料棒の燃焼度が増加するにつれてその比の値が徐々に増加しているのが観察される。これは、Pu-239 の核分裂からの仮定された寄与と一致している。Xe/Kr 比の測定値は、燃料棒の間のガス放出の履歴を比較するには役立たないということが結論づけられた。

4.5 ガンマ・スキャンニング

4.5.1 グロス・ガンマスキャン

第1ホット・セル試験キャンペーンにおいて、燃料スタックに関連した異常を検出し、いろいろな燃料棒の相対的な燃焼度プロファイルを決定するために、11本の燃料棒についてグロス・ガンマ・スキャンを行なった。ガンマ・スキャンのチャートは、ほとんどすべての燃料棒でペレットの境界に非常に小さなギャップが分布していることを示していた。数箇所に大きなギャップが観察され、最も大きなギャップは約0.4インチであった。Fig. 4-19および4-20に、JBY-157およびJBP-027燃料棒のギャップ領域で得られたガンマ・スキャンのトレースを示す。

いろいろな燃料棒の間で観察された相対的なガンマ線強度は、計算による燃料棒の平均燃焼度と一致しているように思われた。すべての燃料棒において、ガンマ線強度のピークは燃料棒の下から95~105インチの間の領域で観察された。

4.5.2 特定の同位元素に対するガンマ・スキャン

4.5.2.1 特定の同位元素手法に関する基礎

第2ホット・セル試験キャンペーンにおいて、10本の燃料棒に対して特定の同位元素-Cs-137, Zr/Nb-95およびCs-134-のガンマ・スキャンが行なわれた。特定の同位元素に対するガンマ・スキャンを行なうという決定は、以下に示されているように第1キャンペーンで得られた結果に基づいている。

1. 被覆管内面観察の外観検査および高いガス放出を示した燃料棒から採取した試料の燃料-被覆管の金相試験で得られた結果によって、相当量の燃料が被覆管とボンディングを起

* U-235の核分裂からのXe/Kr比は約7であり、Pu-239の核分裂からの比は約15である。

としていることが示された。そのような燃料のボンディング部のマイクロプローブ試験によって、燃料とジルコニウム酸化物層の間にセシウムに富んだ層が存在することが分った。このようにして、燃料のボンディングは核分裂生成物であるセシウムの燃料ペレット低温度部への移動およびペレット境界におけるセシウムの沈着と関連しているということが結論づけられた。

2. ある程度のセシウムの再分布は、JCN-196およびJBP-005燃料棒においていくつかのグロス・ガンマ・スキャンがペレット境界で小さなピークを示した時気付かれていた。第1キャンペーンにおいて、JBP-005燃料棒のガンマ・スキャンが最初のスキャンの約3ヶ月半後にくり返して行なわれた。予想されたように、ガンマ線強度は非常に低下しており、コリメータはガンマ線強度を増加させるために調節された。ガンマ線強度の軸方向プロファイルの形状は同じであったが、ペレット境界により多数のスパイクが観察された。これらのスパイクは、照射中にペレット境界に移動した核分裂生成物であるセシウムに起因したものである。
3. 計算による燃焼度プロファイルとグロス・ガンマ・スキャンとの比較によって、第1キャンペーンにおけるグロスのガンマ線強度は主に短半減期の同位元素（Zr/Nb-95のようなもの）によるものであるということが示唆された。このことは、グロスのガンマ線強度プロファイルは寿命中平均の出力履歴ではなく、むしろ寿命後期における出力履歴を表わしていることを意味している。セシウム137の分布は、その長半減期（約29年）の観点から、燃料棒の寿命中平均の燃焼履歴をより正確に表わしているものと信じられている。

特定の同位元素に対するスキャンはリチウムをドリフトしたゲルマニウムの結晶を使って行なわれた。Table 4-7にスキャンした燃料棒のリストおよび特定の同位元素に対する測定値を示す。

4.5.2.2 健全な燃料棒に対する結果

健全な燃料棒に対して得られた特定の同位元素に対するガンマ・スキャンの試験結果によって、以下のことが示された。

1. Cs-137によるガンマ線の強い周期的なピークがペレット境界に存在することが、高いガス放出を示した燃料棒のスキャンで観察された。それらのスキャンは、Zr/Nb-95のスキャン（これらはペレット境界で落ち込んでいる）と異なっている。観察されたセシウムのピーキングは、運転中における燃料ペレットからのセシウムの放出およびそれに続くペレット境界の被覆管上への沈着の結果であると信じられている。続いて行なった、高いガス放出を示した燃料棒の被覆管内面観察（ガンマ・スキャンニングを含む）の結果（第4.7節参照）はこの結論を支持している。
2. 低いガス放出を示した燃料棒ではペレット境界にCs-137のピークは観察されなから

Table 4-7 Maine Yankee 燃料棒の同位体ガンマ・スキヤニング
のまとめ

燃料棒 番号	ガス放出率 の分類	同位体スキヤン
HBU-169	高	Zr/Nb-95 (燃料棒全長) Cs-137 (燃料棒全長) Cs-134 (燃料棒全長)
JCN-196	高	Zr/Nb-95 (燃料棒全長) Cs-137 (燃料棒全長) Cs-134 (上部40インチ)
JBV-097	高	Zr/Nb-95 (燃料棒全長) Cs-137 (燃料棒全長) Cs-134 (上部40インチ)
JBP-004	低	Zr/Nb-95 (燃料棒全長) Cs-137 (燃料棒全長) Cs-134 (上部40インチ)
JBV-145	破損燃料棒	Cs-137 (燃料棒全長)
JBP-003	破損燃料棒	Zr/Nb-95 (燃料棒全長) Cs-137 (燃料棒全長)
JBP-044	破損燃料棒	Cs-137 (燃料棒全長)
JBP-122	高	Cs-137 (燃料棒全長) Cs-134 (上部40インチ)
KCA-019	低	Cs-137 (燃料棒全長)
HBV-002	低	Cs-137 (燃料棒全長)

た。Fig. 4-21に、高いガス放出を示した燃料棒および低いガス放出を示した燃料棒の同程度の高出力部における典型的なCs-137のスキュンを示すが、これはピーキングにおける著しい差異を実証している。高いガス放出を示した燃料棒の同じ軸方向位置におけるZr/Nb-95のスキュンも示されている。

3. 高いガス放出を示した燃料棒におけるセシウム・ピーキングの軸方向の広がり、および燃料棒の下から6~128インチの範囲であった。この範囲は、高いガス放出を示した燃料棒における等軸晶の成長（第4.8節でさらに検討されている）の軸方向の広がりに対して観察されたものと同じであり、このことは高い燃料温度とセシウムの再分布の関係を実証している。
4. 高いガス放出を示した燃料棒におけるCs-137の軸方向のプロファイルは、同程度の燃焼度で低いガス放出を示した燃料棒のものと非常に類似しており、このことはセシウムが全体的には軸方向に移動していないということを示している。
5. Zr/Nb-95の軸方向分布は、Cs-137のそれとは非常に異なっている。Fig. 4-22はJCN-196燃料棒におけるCs-137およびZr/Nb-95の軸方向分布を示している。また比較のために、グロスのガンマ線強度の分布も示されている。この図から、グロスのガンマ・スキュンの方がZr/Nb-95のそれにより類似していることが分かり、これら2つのスキュンの軸方向の形状は燃料寿命の末期近くで経験された燃料棒の軸方向出力分布にも類似している。このことは、グロス・ガンマ・スキュンは寿命平均の燃焼度分布よりもむしろ寿命末期近くの出力分布を表わすということを実証している。その長半減期および全体としての軸方向への移動はないという観察結果の観点から、Cs-137の分布は寿命平均の軸方向出力分布、したがって燃料棒の燃焼度分布を表わすと思われる。

この見方は、この燃料棒から得られた燃焼度分布（第4.12節で考察されている）によって確認された。この結果の重要性は、原子炉の運転中に軸方向の出力分布に変化がある場合にはグロス・ガンマ・スキュンは、短半減期の同位元素（例えば、Zr/Nb-95）が相当低いレベルまで崩壊した後で測定が行われなければ寿命平均の出力を示すものとして使うことはできないということである。

4.5.2.3 破損燃料棒に対する結果

3本の破損燃料棒に対するCs-137のスキュンは、高いガス放出を示した燃料棒と同様にペレット境界においてセシウムのピーキングを示した。ピークの軸方向の範囲も高いガス放出を示した燃料棒のそれに類似していた。しかし、放射線強度の絶対レベルは健全な燃料棒と比較して軸方向の位置によって相当な変化を示していた。これはたぶんセシウムに富んだ燃料部分と燃料棒中に入った冷却水との反応によって引き起こされたセシウムの再分布に起因しているであろう。

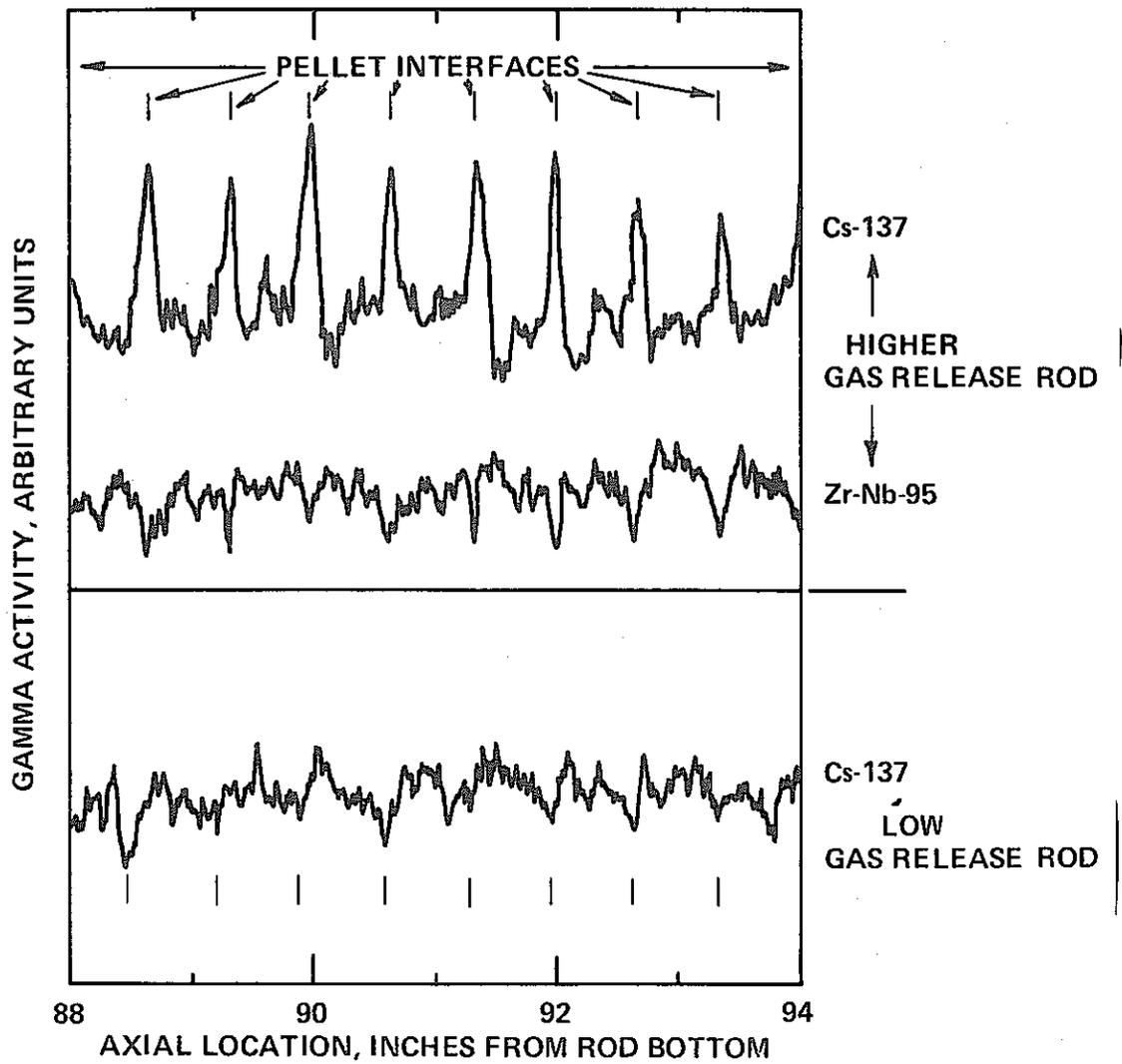


Fig. 4-21 ペレット境界におけるCs ピークの差異を示している、高および低ガス放出率燃料棒の最大出力位置（88-94インチ）から得られたCs-137 スキャンの一部

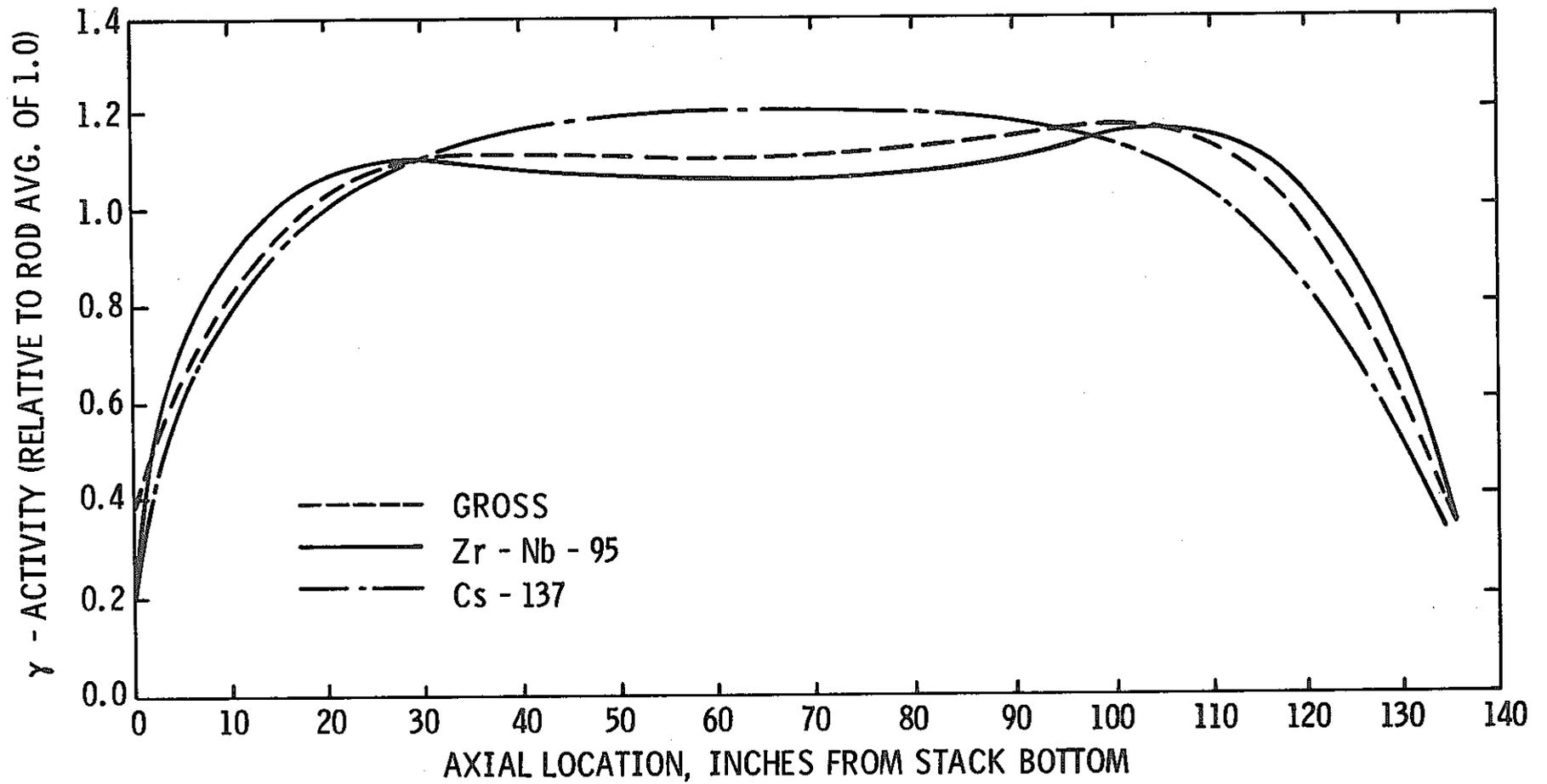


Fig. 4-22 JCN-196に対するグロスのガンマ・スキャン・プロフィールと特定の同位元素のガンマ・スキャンとの比較

4.5.3 スタック長の変化

Table 4-8 に示されている燃料スタック長の変化は、グロスおよび特定の同位元素に対するガンマ・スキャンから得られたものである。スキャンの結果から測定されたギャップの全長も示されている。すべての燃料棒が0.52から1.43%の範囲の燃料スタック長の短縮を示していることは注目すべきである。スタック長短縮の程度は、予想された燃料デンシフィケーションの量と一致している。スタック長短縮の最大値はHBU-169燃料棒で観察された。この燃料棒の初期の平均燃料密度は、初期の燃料スタック重量に基づくと相対的に低かった（公称値が93.0% T.Dであるのに比較して91.5%T.D）ように思われる。燃料が高密化する場合に、初期の密度が低ければ燃料は高密化しやすい傾向がある。したがって、この燃料棒で観察されたスタック長の大きな短縮は驚くには値しない。この燃料棒から採取した試料に対する照射後の密度測定（第4.11節に示されている）の結果によると、4～5%T.D程度の密度増加を示していたが、これは等方性のデンシフィケーションを仮定した場合における1.43%のスタック長短縮と一致している。

4.6 渦電流探傷試験

ホット・セルの燃料棒はMaine Yankeeの使用済燃料貯蔵プールにおいてすでに渦電流探傷試験を行っていたが、第1ホット・セルキャンペーンで被覆管の内表面上の欠陥をもっと正確に検出できる渦電流技術を使って、8本の健全な燃料棒が再試験された。プールサイドにおける試験で有意な信号を示さなかった5本の健全な燃料棒（JBP-122, JBY-097, JCN-196, HBV-002およびHBV-009）についても追加の再試験を行なったが、これらはこの試験でも欠陥信号を示さなかった。

ホット・セルにおける渦電流試験は、内表面の欠陥を検出するためのシステムの感度が少なくともプールサイドにあるシステムの感度と同程度であるという確証が得られた（CEの標準欠陥を使って）後で行なわれた。最初は、200KHzおよび500KHzの周波数で試験を行なった。次に、100KHzの周波数を使って試験を行なったが、内表面の欠陥に対して感度はより高かった。プールサイドにおける試験で示されたすべての信号はもちろん、他のいくつかの信号も得られた。

これらの結果に基づいて、第1キャンペーンで行なうセクショニングおよび金相試験のための優先候補として5本の燃料棒が選ばれた。欠陥信号の軸方向位置（±1/16インチの精度）を、Table 4-9に示す。欠陥信号のいくつかを含んでいる渦電流トレースの1部をFig. 4-23からFig. 4-25に示す。比較のために、標準欠陥に対して得られた信号をFig. 4-26に示す。

Table 4-8 Maine Yankee 燃料棒の燃料ペレット・スタック長減少データ

燃料棒	燃 焼 度 MWD/MTU	ギャップを含んだスタック長 イ ン チ	ギャップの全長 イ ン チ	最 終 スタック長 イ ン チ	スタック長減少 ⁽¹⁾	
					イ ン チ	%
HBV-007	11,946	135.494	0.280	135.314	1.486	1.09
HBU-198	11,478	135.588	0.360	135.228	1.472	1.08
KCA-185	9,784	135.307	0.270	135.037	1.663	1.22
KCA-125	6,757	134.775	0	134.775	1.925	1.41
JBV-157	12,935	135.744	0.580	135.164	1.536	1.12
JCN-199	12,842	135.744	0.250	135.494	1.206	0.88
JBP-005	13,231	136.119	0.190	134.929	0.771	0.56
JBP-027	12,826	137.119	0.810	135.309	1.391	1.01
JCN-182	12,635	135.994	0	135.994	0.706	0.52
JCN-196	12,904	135.557	0.52	135.037	1.663	1.22
JBP-003 ⁽²⁾	13,629	135.744	0	135.744	0.956	0.70
JBV-097	13,349	135.744	0.600	135.144	1.556	1.14
HBV-002	12,464	135.306	0.312	134.994	1.706	1.25
JBP-122	13,636	135.681	0	135.681	1.019	0.75
JBP-004	13,189	135.744	0.125	135.619	1.081	0.79
KCA-019	12,762	135.931	0.312	135.619	1.081	0.79
HBU-169	12,410	134.744	0	134.744	1.956	1.43
JBV-145 ⁽²⁾	13,535	135.844	0	135.844	0.856	0.63
JBP-044 ⁽²⁾	12,896	135.438	0	135.438	1.262	0.92

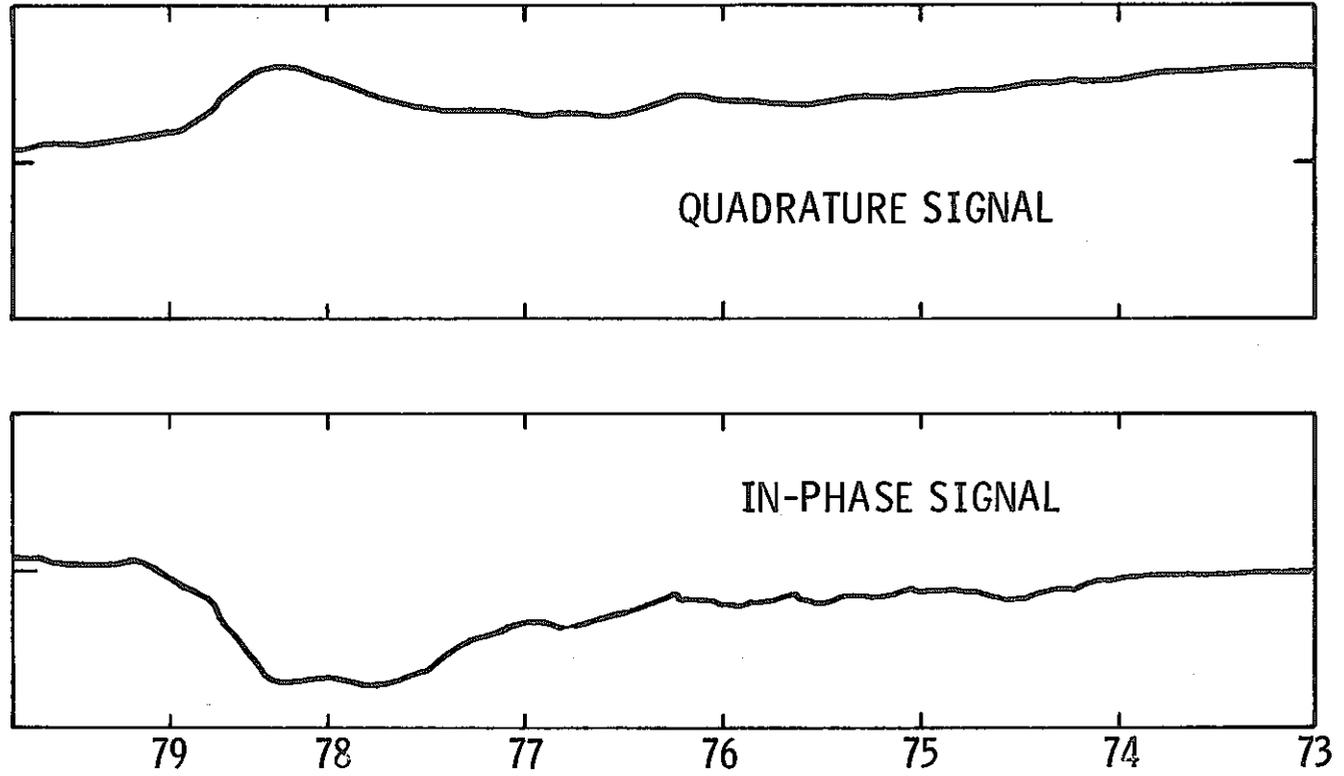
(1) 136.700±0.250インチ(±0.18%)という最初の公称スタック長に基づいている。

(2) 破損燃料棒

Table 4-9 健全な燃料棒における渦電流欠陥信号の軸方向位置

燃料棒	位置および集合体	信号の位置*	備考
JCN-182	K1, B069	78-5/16~78-3/8	長い信号——同様の信号がプールサイド試験中に観察された。
		81-1/2	弱い信号——プールサイド試験中には観察されなかった。
		76-13/16	弱い信号——プールサイド試験中には観察されなかった。
		74-7/16	弱い信号——プールサイド試験中には観察されなかった。
JCN-199	D2, B069	92-5/16	対応するプールサイド信号は91-3/16インチの位置。
		87-1/2	プールサイドでは観察されなかった。
		48-27/32	プールサイドでは観察されなかった。
JBY-142	J5, B069	90-1/16	プールサイドでは観察されなかった。
		87-9/32	対応するプールサイド信号は89-7/16インチの位置。
		37-5/8	対応するプールサイド信号は37-5/16インチの位置。
JBY-157	E11, B069	40-5/16)	これらの信号はプールサイドでも観察された。その位置は、ガンマ・スキヤン・トレースで観察された燃料スタック中のギャップと一致している。
		40-5/32)	
JBP-005	E11, B042	94-3/16)	数個の他の弱い信号が観察された。これらのうちの1つを除いたすべてのものがプールサイドで観察された。
		37-7/16)	

* すべての位置は燃料棒の下部からインチで表わされている。



Fig・4 - 23 燃料棒の下部から 78-5/16 と 78 - 3/8 インチの間における強い内表面信号を示している, JCN-182 の 100 KHZ における渦電流トレース

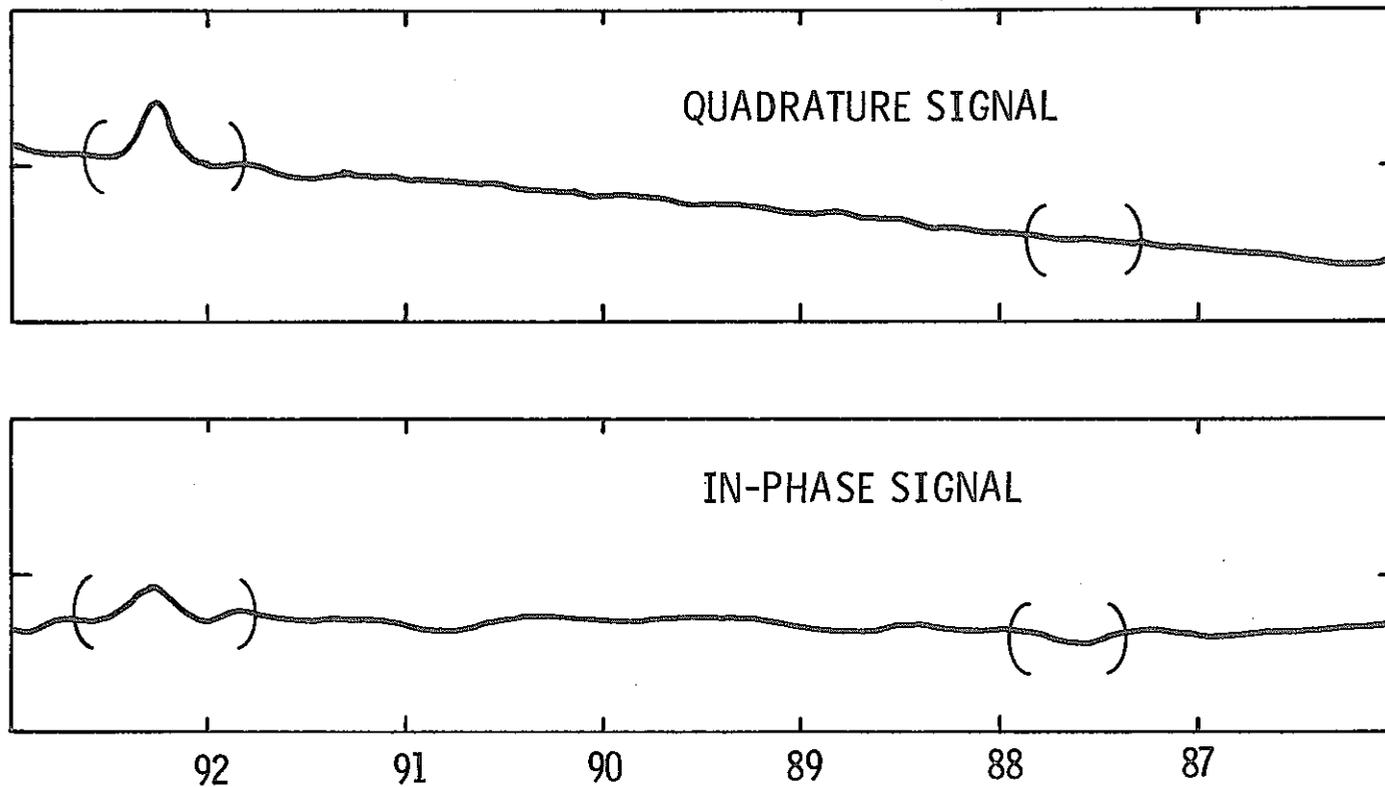


Fig. 4-24 燃料棒の下部から92-5/16および87-1/2インチ
 の位置における信号を示している, JCN-199の100
 KHZにおける渦電流トレース

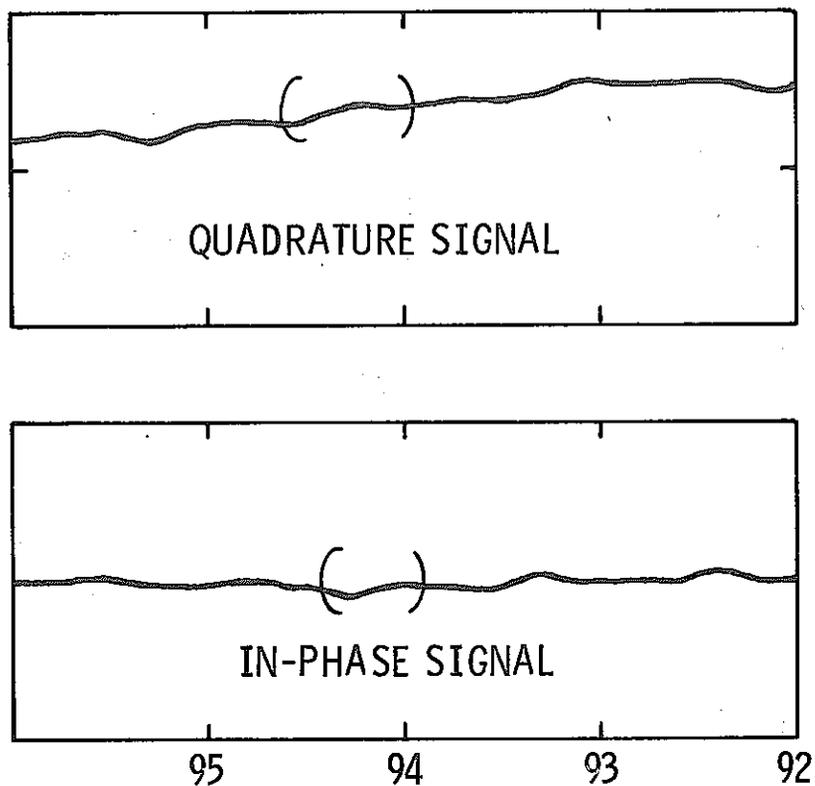


Fig. 4-25 燃料棒の下部から94-3/16インチの位置における信号を示している、JBP-005の100KHZにおける渦電流トレース

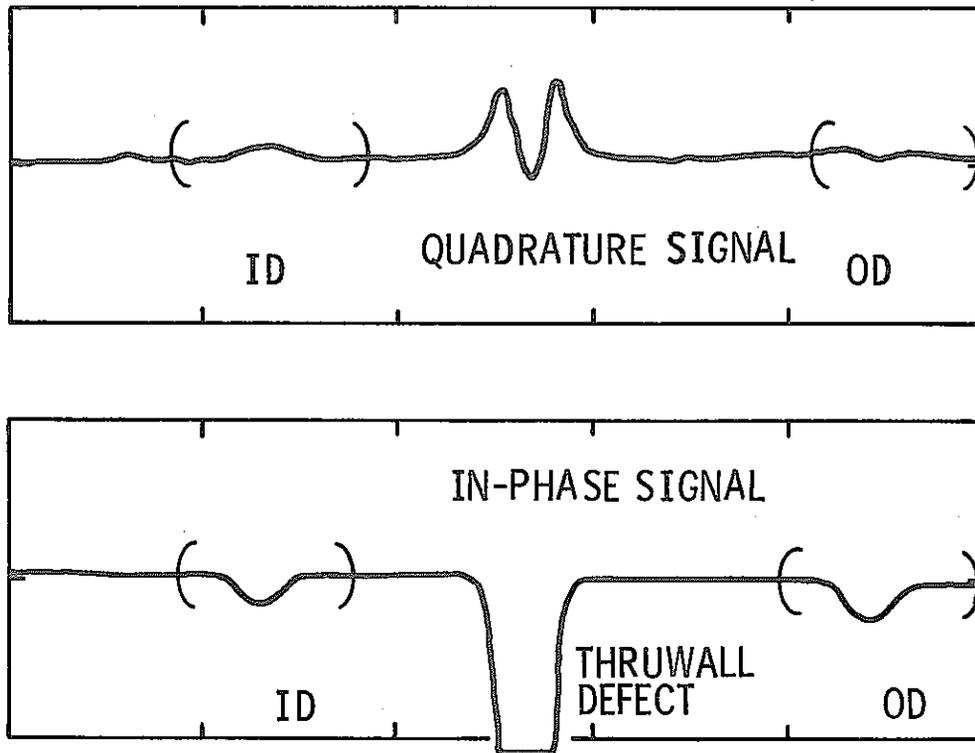


Fig. 4-26 ジルカロイ-4管の内外表面欠陥から得られた信号を示している。校正用標準の渦電流トレース

4.7 被覆管の内表面観察

4.7.1 範囲

第1ホット・セルキャンペーンでは、プールサイドにおける試験で高いガス放出率を示した燃料棒（JBY-027）から得られた顕著な渦電流信号の原因を、被覆管内表面の外観検査によって調査した。第1キャンペーンにおいて燃料と被覆管の固着が発見され、また後で行なわれた金相試験によって高いガス放出率を示したすべての燃料棒にこの現象が発生していることが分かったので、第2キャンペーンでは代表的な燃料棒の被覆管内表面の調査がさらに行なわれた。これには、燃料棒の切断、被覆管の軸方向への切開および燃料を取り除くことが含まれていた。

試験のために選ばれた切断部を Table 4-10 に示す。第2キャンペーンで試験された4つのうちの2つは、同じような出力履歴を有する被覆管の比較を行なうために、高いガス放出率を示したバッチBの燃料棒および低いガス放出率を示したバッチBの燃料棒の同じ軸方向位置から採取された。また、高いガス放出率を示した唯一のバッチAの燃料棒の同じ位置からも1つの試料が採取された。4つ目の試料は、高いガス放出率を示したバッチBの燃料棒のセシウム・ピークがある部分とない部分の分かれ目を含んだ下部の領域から採取された。表面の形状および化学成分を特性化するために、切開した被覆管から採取した代表的な試料は外観検査に加えて、Argonne 国立研究所（ANL）において主に走査型電子顕微鏡（SEM）およびX線分析によってさらに試験された。

4.7.2 被覆管切開の方法

燃料棒の切断後、各切断試験の直径を測定し、長径と短径方向の位置を決める。すべての場合に、最小直径領域の表面検査を行ないやすくするために、長径方向に沿って被覆管を切開した。試料を万力ではさみ、回転ノコで切開を行なった。最初の切断の後で試料を180度回転し、2回目の切断をした。次に切開部を開き、燃料と被覆管の外形を特性化するためにステレオ顕微鏡で調べた。

2つの切開部の被覆管表面を調べるために、その後で燃料を取り除きブラシでこすった。燃料と被覆管の外観は、写真によって記録された。

4.7.3 切開した被覆管の外観検査結果

JBY-027から採取した試料の検査結果から、Fig. 4-27に見られるように主にペレット境界において燃料片が被覆管に強く固着していることが分かった。一般的な特性化の目的に加えて、この部分を選択した大きな理由はそれがプールサイド試験において強い渦電流信号（燃料棒の下部から53-1/4インチの位置）を含んでいたからである。Fig. 4-28に示されているように、

Table 4-10 被覆管内表面の観察

ホット・セル キャンペーン	燃料棒	ガス放出 率の分類	軸方向の位置 (燃料棒下部からの 距離, インチ)	選 択 の 理 由
第 1	JBY-027	高	50-58-1/2	53-1/4インチの位置で強い渦電流 信号 (付録Bの Fig.B-1 参照)
第 2	JCN-196	高	1-1/4-13-1/4	ガンマ・スキャンによるセシウム・ピ ークの変化が観察された燃料棒の下部
第 2	JCN-196	高	80-91	ガンマ・スキャン ピークを有する高出 力部
第 2	HBU-169	高	80-91	バッチ Aの中で高いガス放出率を示し た唯一の燃料棒。上と同じ位置
第 2	JBP-004	低	80-91	高いガス放出率を示した燃料棒との比較 のために, バッチ Bの低いガス放出率 を示した燃料棒から採取した試料

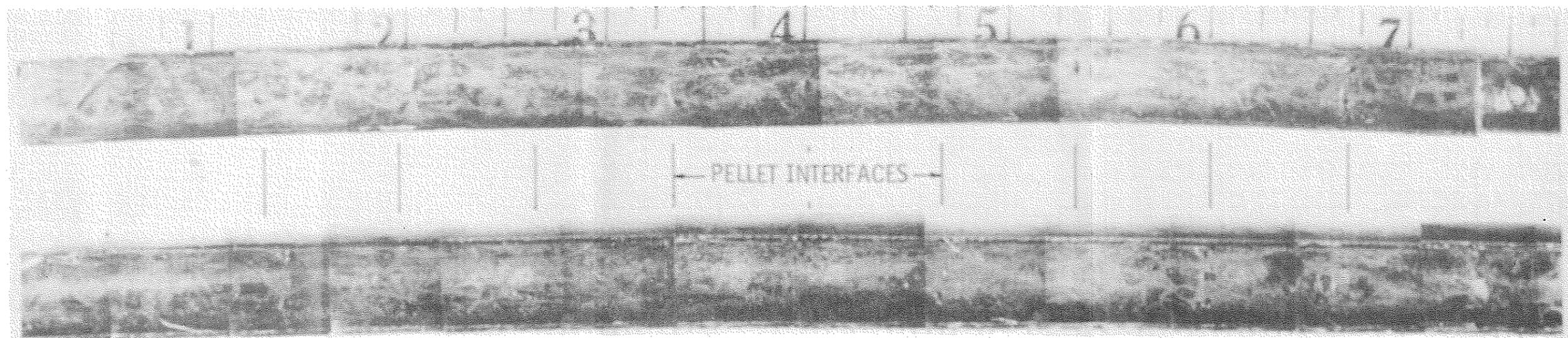


Fig. 4-27 ペレット境界における燃料-被覆管ボンディングを有する2つのシェルを示している、JBP-027の切開した被覆管の合成写真



P5597

5X

Fig. 4-28 固着した燃料の破片を示している、JBP-027の切開した被覆管の一部

かなり大きな燃料片がこの信号の位置の近くに固着しているのが観察された。ピットやクラックのような異常は被覆管表面には見られなかった。したがってこれらの観察結果は、渦電流信号は高いガス放出率を示した燃料棒における異常な燃料と被覆管の固着 (bonding) を示しているということを示唆する最初の証拠となった。

追加の試験から得られた主要な観察結果は以下のとおりである。

1. 高いガス放出率を示したバッチBの燃料棒 (JCN-196)では、ペレット境界における燃料と被覆管の固着は燃料棒の下部から4インチのところではまっているように見える。これはJCN-196の下部の0度面の合成写真である Fig. 4-29 に示されており、この位置より上のすべてのペレット境界に固着が生じていることを示している。Fig. 4-30 に示されているこの部分の切開する前の Cs-137 ガンマ・スキャンも、4インチより下の部分を除いたすべてのペレット境界にセシウムのピークがあることを示しているということは注目に値する。この部分の内表面には、Fig. 4-29 に見られるようにペレットのクラック・パターンに関連したマークも示されていた。
2. JCN-196の80から90インチの部分だけは切開の後も燃料の配列を保存することができたので、ペレットのクラック・パターンの観察が可能であった。興味深いのは、軸方向のクラックの多くは Fig. 4-31 に示されているように、1つのペレットから次のペレットにかけて同一の軸方向に連続して発生しているように見える。このことは、ペレット境界におけるペレットのクラック上の被覆管の応力集中パターンをモデリングする場合、ペレットのクラックは軸方向に一致しているとするのが適当であることを示唆している。
3. Fig. 4-32 から明らかなように、低いガス放出率を示したバッチBの燃料棒 (JBP-004) の被覆管内表面には、高いガス放出率を示した燃料棒の同じ位置のものと比較して実質上固着は生じていない。
4. バッチBの燃料棒 (第1キャンペーンにおける JBP-027 および第2キャンペーンにおける JCN-196) と違って、高いガス放出率を示したバッチAの燃料棒 (HBU-169) の被覆管内表面にはペレット境界においても顕著な燃料と被覆管の固着は観察されなかった。しかし、90度面の合成写真である Fig. 4-33 に示されているように、被覆管の表面に付着している円形の“沈着物 (deposit)” が観察された。これらの沈着物は、切開する前に被覆管と接触していた UO_2 ペレット上の円形のスポット (spot) に対応させることができた (Fig. 4-34 参照)。より詳細な観察によって、この沈着物の特徴はそれが円形状であること以外に、ペレットのクラックおよびペレットの端面の近傍に生じる傾向にあるということが分かった。これらの特徴は、Fig. 4-32 に示されているように、JCN-196 の同じ位置の被覆管内表面上には容易に認められなかった。

4.7.4 形状および化学的特性化

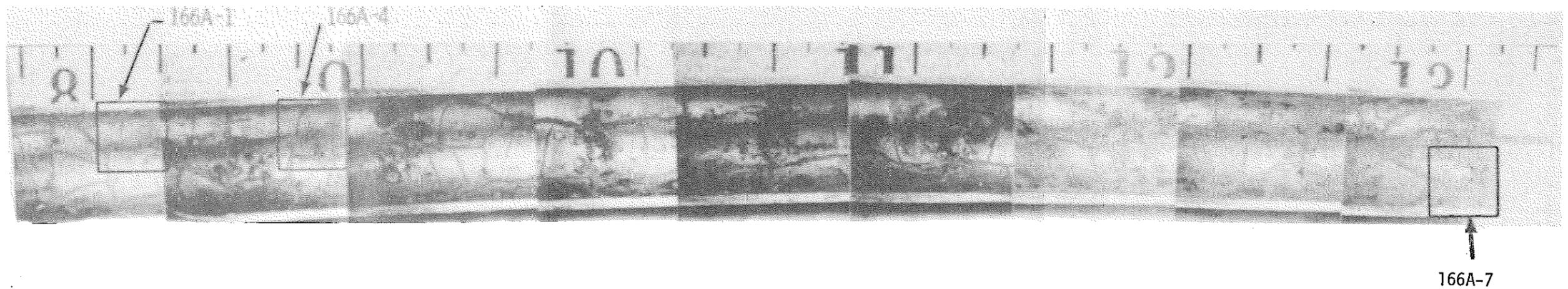
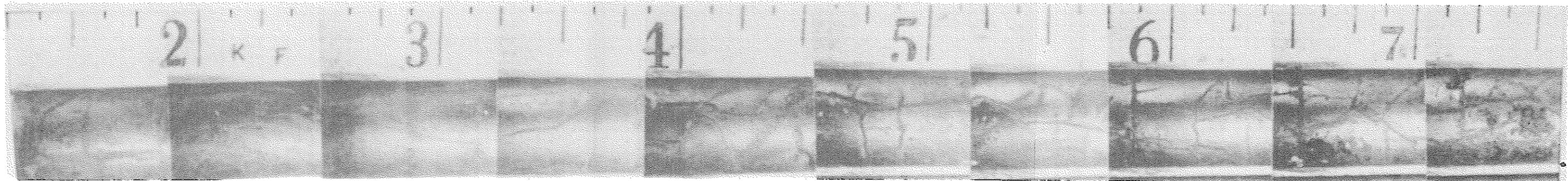


Fig. 4-29 ANL において SEM 試験が行なわれた JCN-196 の下端
($8-1/4-13-1/4$ インチの部分) の切開した被覆管
の 0 度面の合成写真—試料の大体の位置および識別番号
が示されている。

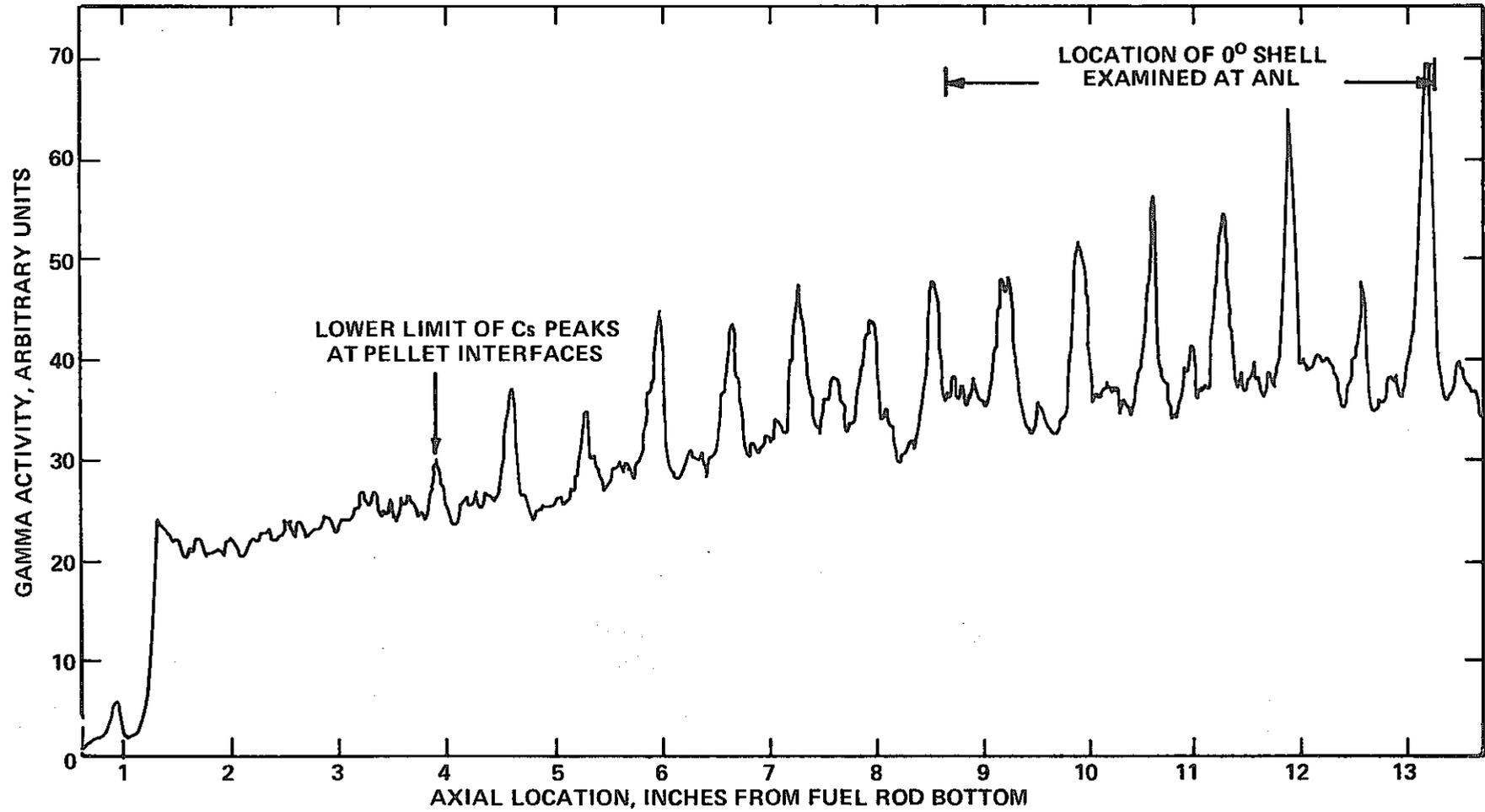


Fig. 4-30 被覆管内面試験に供された JCN-196 の下端の完全な燃料棒 (whole rod) に対する Cs-137 のガンマ・スキャン

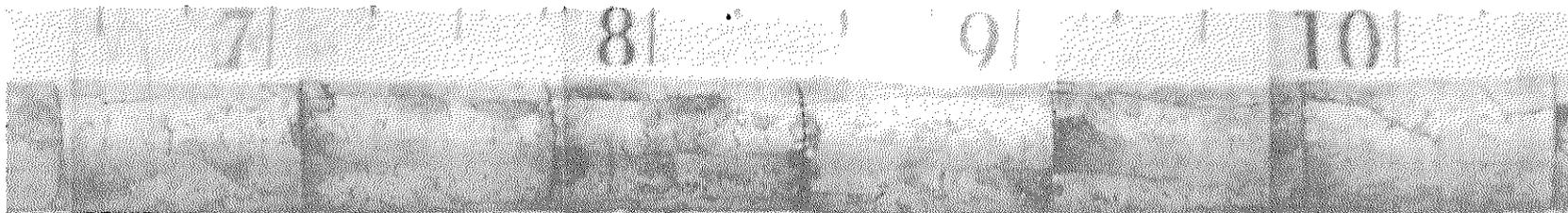
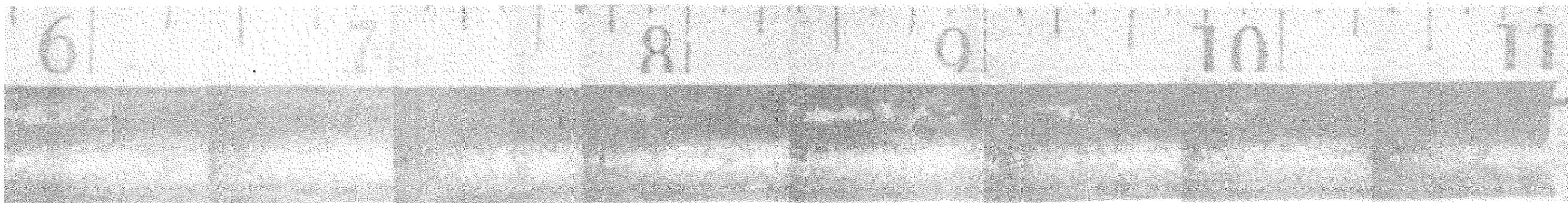


Fig. 4-31 ペレットからペレットへの軸方向クラックの連続性を示しているJCN-196の一部（燃料棒の下部から86-1/2-90-1/2インチ）

JCN-196
(86-91 INCHES)



IBP-004
(86-91 INCHES)

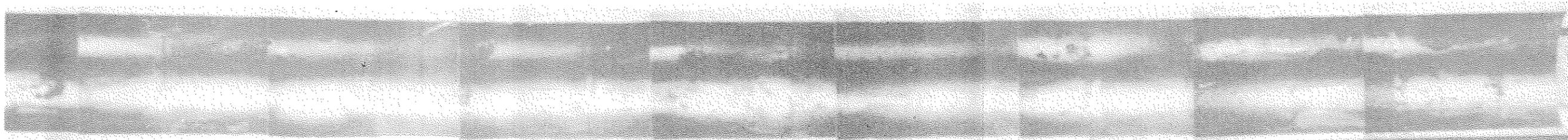


Fig. 4-32 高いガス放出率を示した燃料棒 JCN-196 と低いガス放出率を示した燃料棒 JBP-004 の 86-91 インチの部分における被覆管内表面の外観の比較 (上に示されている JCN-196 の被覆管はさらに試験を行なうために ANL に送られた。)

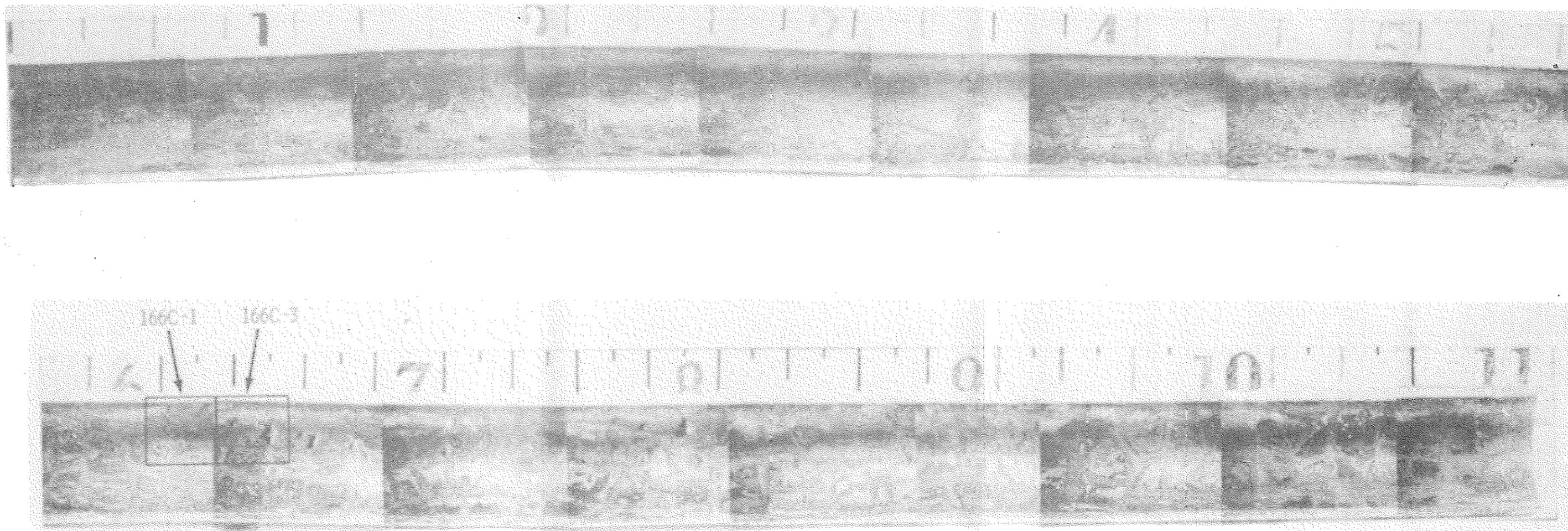


Fig. 4-33 ANLにおいてSEMによる試験が行なわれたハッチAの高
ガス放出率燃料棒（HBU-169-燃料棒の下部から80-
91インチ）の被覆管内表面の外観- 試料の大体の位置と
識別番号が示されている。

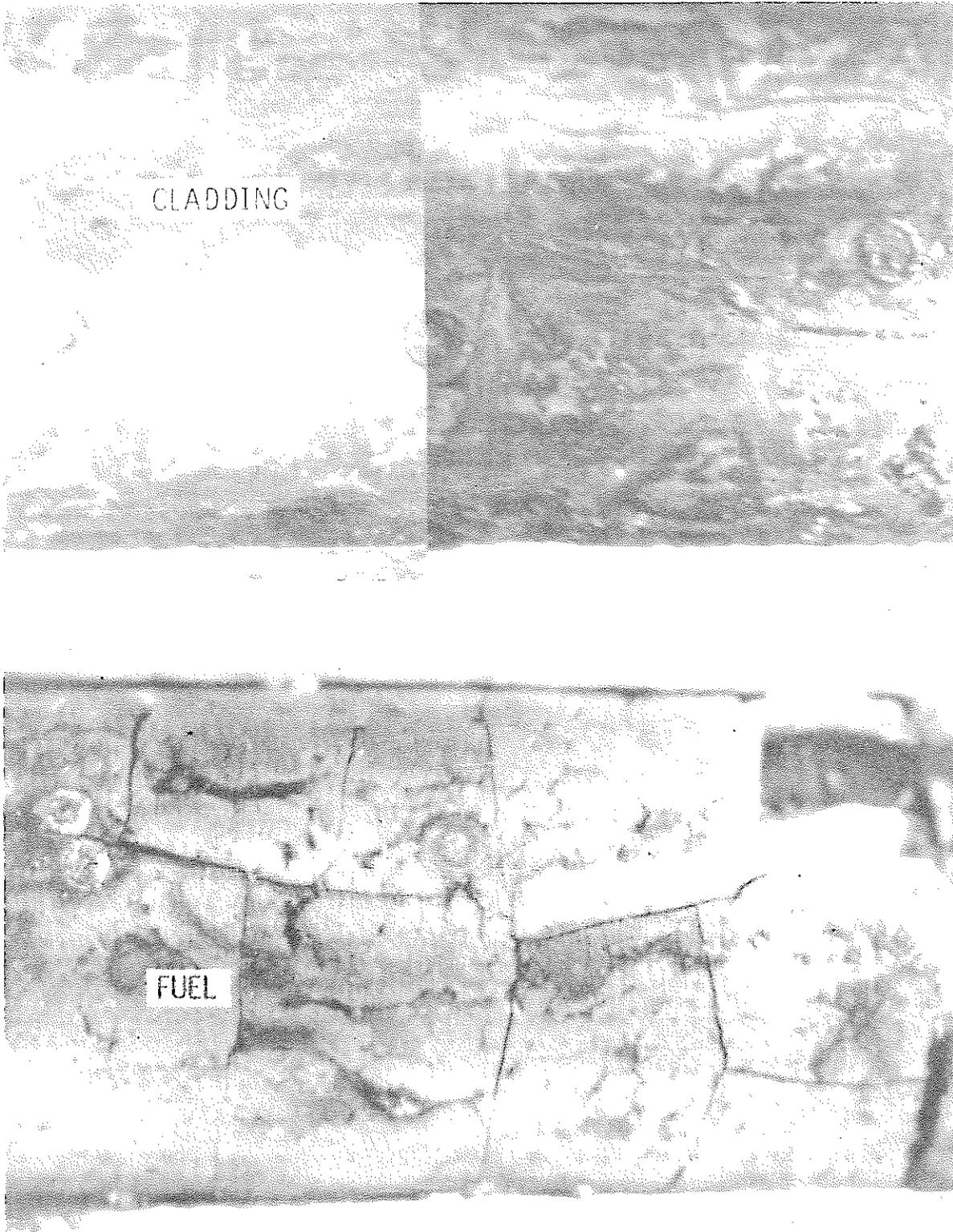


Fig. 4-34 内表面上の円形の沈着物を有した被覆管を示している
HBU-169の切開した被覆管とそれに対応する UO_2
ペレット上のスポット

4.7.4.1 試料の選択

高いガス放出率を示した燃料棒の内表面で観察された特徴をさらに特性化するために、長さが5インチの3つの代表的な試料を Battelle -Columbus のホット・セル施設から ANLの材料科学部 (Materials Science Division) に送った。試料は次の位置から採取された。

燃料棒番号	切開面	軸方向位置 (燃料棒下部からの距離, インチ)
JCN-196	180度	86-91
JCN-196	0度	8-1/4-13-1/4
HBU-169	90度	86-91

4.7.4.2 ガンマ・スキャンニングの結果

放射性物質の軸方向分布およびその同定を行なうために、最初に3つの切開した試料の内表面に対してガンマ・スキャンニングを行なった。各々の試料に対してそれぞれグロス・ガンマならびにCs-137およびCs-134のガンマ・スキャンが行なわれた。この試験で得られた主要な結論は以下のとおりである。

1. 3種類のスキャンのすべてがペレット境界で強いピークを示しており、これは被覆管内表面に固着している物質のガンマ放射核分裂生成物の主要な成分がセシウムであることを示している。
2. 切開する前の燃料棒に対するガンマ・スキャンおよびそれに対応する内表面のガンマ・スキャンは、Fig. 4-35に示されているように類似のセシウム・ピーキングパターンを示しているが、これは両方の測定においてセシウムの源は固着した物質であるということを示唆している。
3. Fig. 4-35から明らかのように、HBU-169から採取した試料は他の2つの試料と違って、ペレット境界の中間にかなり規則的な2次セシウム・ピークを示した。これは、HBU-169の切開面の外観検査で観察された固着物質の比較的均一な軸方向分布とも一致しているように見える。

4.7.4.3 走査型電子顕微鏡 (SEM) による観察

Argonne のSEMで観察するために、JCN-196の0度面から3つの試料、またHBU-169の90度面から2つの試料を採取した。試料の位置はそれぞれFig. 4-29およびFig. 4-33に示されている。被覆管内表面の形状を決定する以外に、X線分析によって存在する元素の同定を行なった。この方法ではナトリウムの原子番号 ($Z = 11$) 以下の原子番号を有する元素は検出することができない。したがって、おそらく酸素 ($Z = 8$) は大部分の固着物質中に酸化物の形で存在しているのであろうが、それは検出できなかった。

A. JCN-196 燃料被覆管の内表面

JCN 196の3つの試料 (166A-1, -4 および -7) に対する低倍率の走査型電子顕微

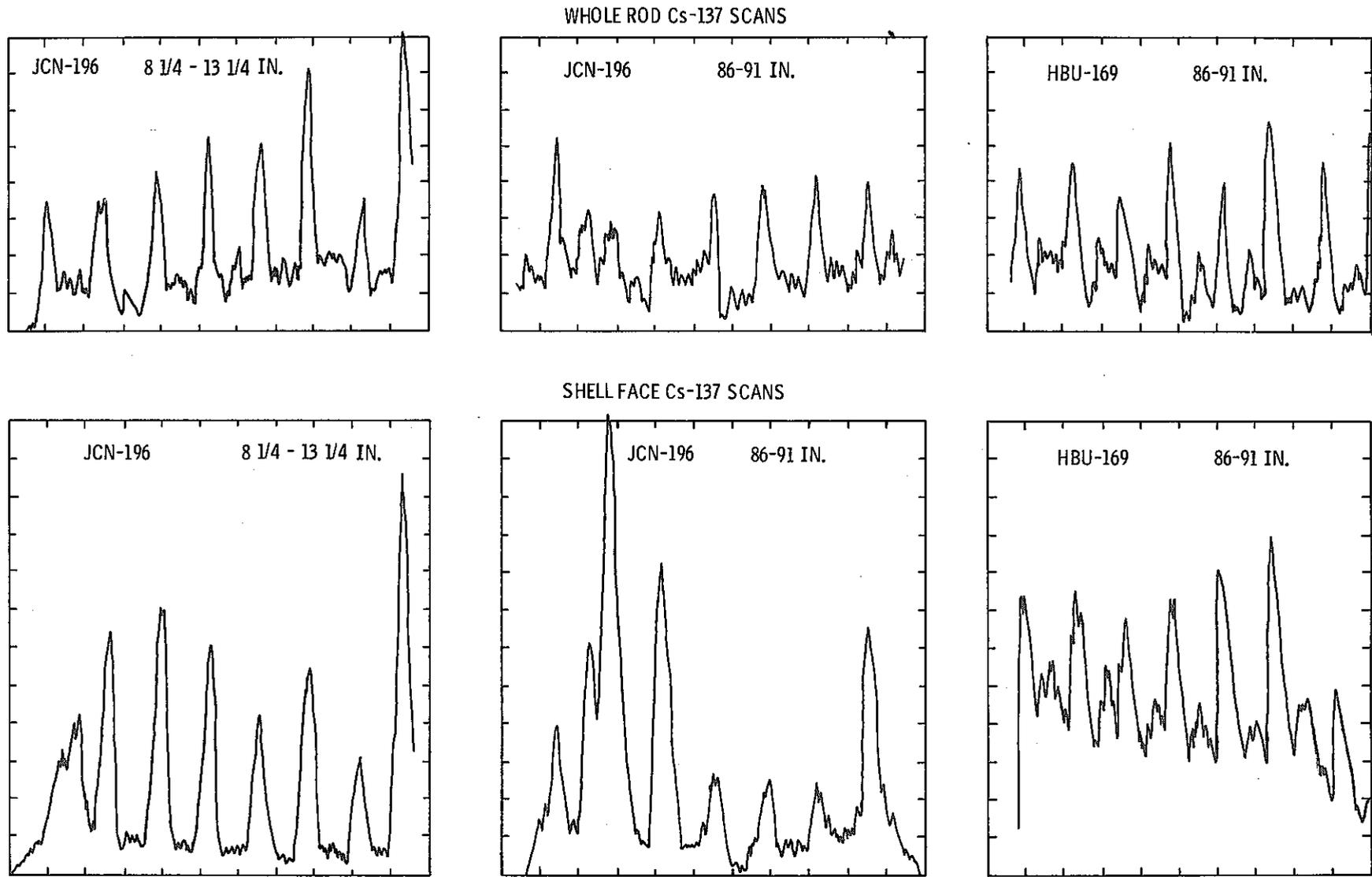
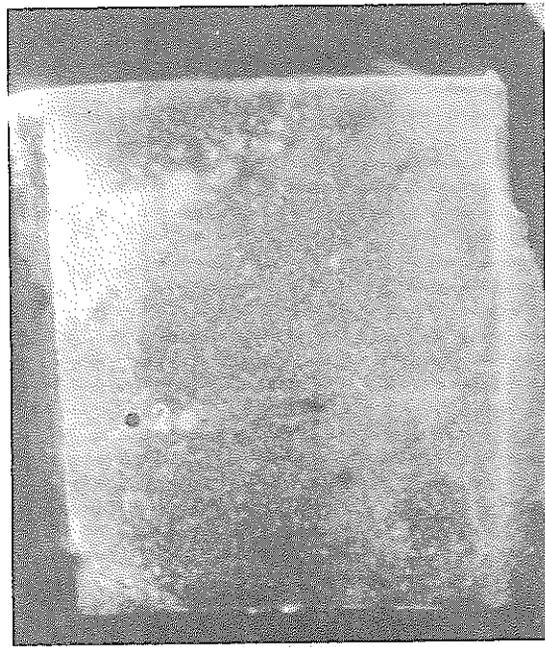


Fig. 4-35 ペレット境界におけるセシウム濃度の集中を示している、完全な燃料棒と切開した面に対するCs-137のガンマ・スキンの比較

鏡写真が、Fig. 4-36 および 4-37 に示されている。すべての試料は、最初の長さが1/4インチで周方向の幅も1/4インチの大きさであった。166A-7の試料の場合には、検出器がバックグランド放射で飽和するのを防ぐため金製のコリメータを使ったにもかかわらず、放射能が強すぎてX線分析は不可能であった。したがって、化学的な特性化を行なうために、Fig. 4-37 に示されているようにこの試料を2つの小さな試料(166A-7-1 および 166A-7-3)に分割した。

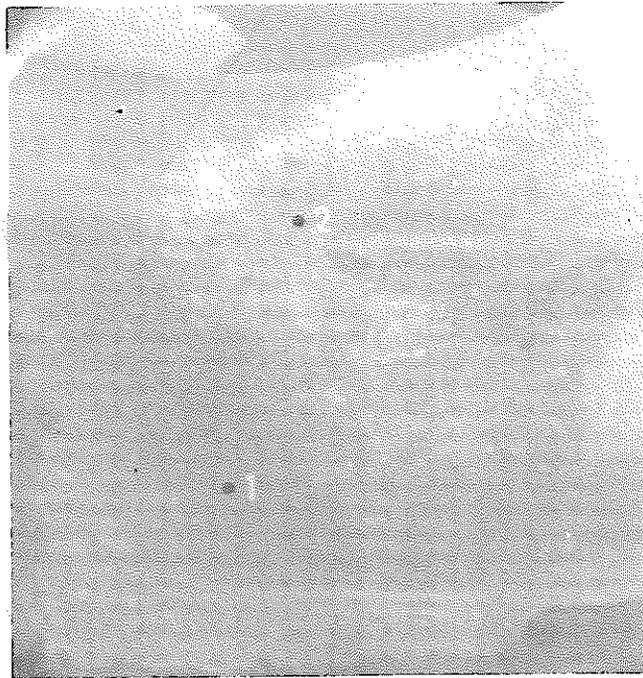
1. SEM写真でしま状に見える被覆管上のペレット・クラックのマークは、いろいろな大きさと形の微粒子が固着している領域で構成されている。このしま状に見える部分のその他の興味ある特徴は、それらの両側に沿って非常に小さなノジュール(nodule)がかなり均一に分布しているということである。これらの観察結果はしま領域の典型的なSEM写真であるFig. 4-38, 4-39, 4-40 および 4-41 に示されている。
2. Fig. 4-42 に示されている小さなノジュールの典型的なX線スペクトルは、それがウランおよびセシウムを含んでいるということ、ならびに見かけ上ジルコニウムが主な成分であるということを示している。しかし、これらは非常に小さな粒子であるので、ジルコニウムのX線はバックグランドから放射されたものかも知れない。
3. もっと重要なことはしま状領域に分布しているいろいろな粒子の化学的な特性化の結果である。X線分析によって比較的多量のセシウムが見つけれられたばかりではなく、テルルおよびヨウ素も検出された。例えば、Fig. 4-43のX線スペクトルにおいてテルル、セシウム、ウランおよびジルコニウムが粒子の成分であることが示されている。Fig. 4-41 に示されている3つの小さな結晶(L, M および N)のX線スペクトルは、それによって主にセシウムとヨウ素が存在することが示されているが故により興味深いものである。これは、3つのすべての結晶に対して得られたX線スペクトルの典型的なものであるFig. 4-44 に示されている。X線スペクトロメータを校正するために同一の測定系で純粋なヨウ化セシウムを分析したということに注目すべきである。この分析に基づいてセシウムとヨウ素のX線ピークの予想位置がFig. 4-44 に示されている。被覆管試料がすでに実験室の空気にふれたという観点から、結晶の化学成分は純粋なヨウ化セシウムよりもセシウムおよびヨウ素の酸化物および/または水和物になっていそうであると思われる。被覆管表面にセシウムと共にテルルおよびヨウ素が発見されたことにより、今までは単なる予想でしかなかったそれらの被覆管表面上における存在(特にヨウ素)が今はっきりと検出された。さらにこの結果は、高いガス放出率を示した燃料棒においてはセシウムと同様に比較的蒸発性であるテルルとヨウ素も再分布しているということを示している。続いて行なわれたX線スペクトロメトリよりもずっと感度の良いANLのイオン・マイクロプローブ(Ion Microprobe)による被覆管内表面の分析によってもこれらの元素の存在が確認された。



240B

10X

166A-1



190

15X

166A-4

Fig. 4-36 JCN-196の被覆管試料の低倍率SEM写真

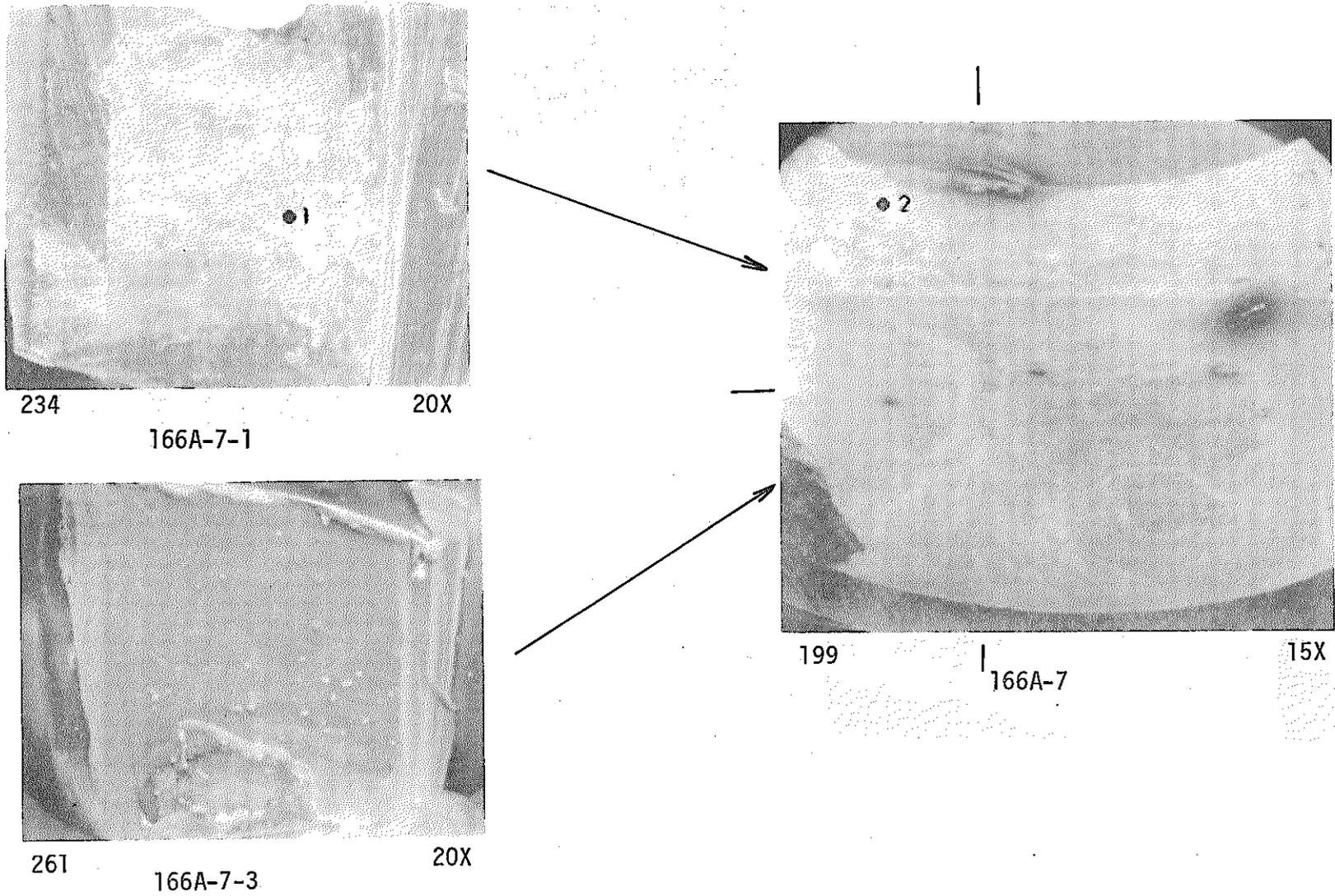
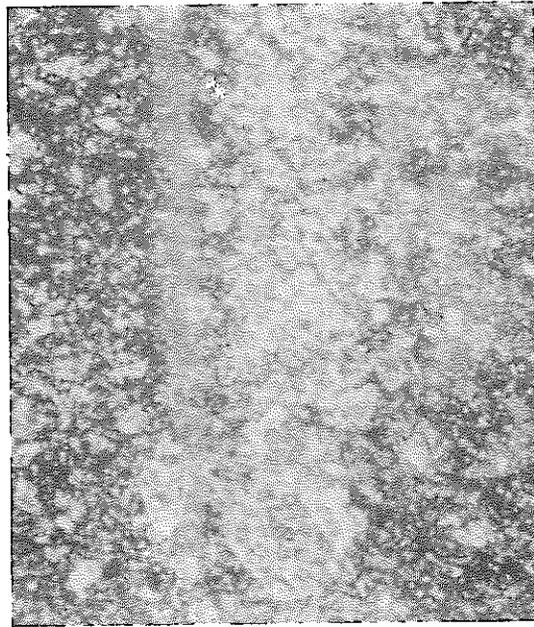


Fig. 4-37 放射線強度を減少させるために分割された, JCN-196 の被覆管試料 166A-7 の低倍率 SEM 写真



253

130X



254

260X

Fig. 4-38 左側に均一で小さなノジュールのバンドを有する，被覆管ストライプ上に集中した粒子を示している166A-1 (Fig. 4-36) のポイント2近傍のSEM写真



193

150X



195

1200X

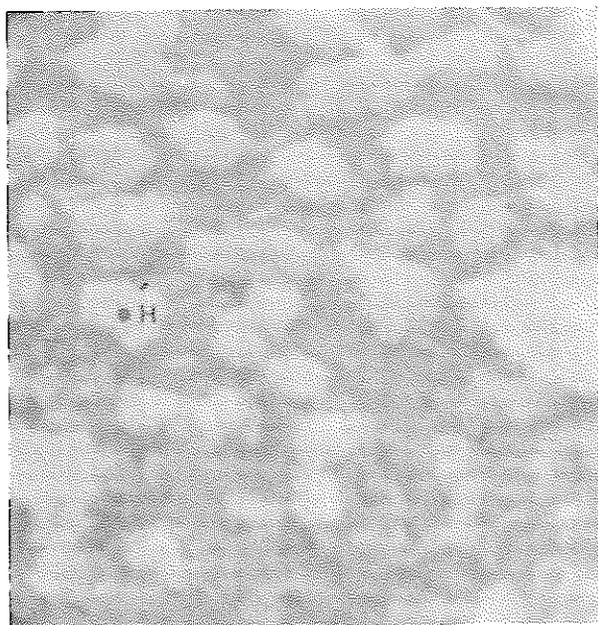
Fig. 4-39 上-被覆管ストライプを示している166A-4 (Fig. 4-36)のポイント2の近傍のSEM写真

下-ストライプの上側に小さなノジュールのバンドを示している, 上の写真のポイント3近傍の詳細



317

600X



196

6000X

Fig. 4-40 上-Fig. 4-39 (上)のポイント3近傍の被覆管ストライプ
上にある小さな粒子を示しているSEM写真
下-Fig. 4-39 (下)にあるノジュールの高倍率
SEM写真



Fig. 4-41 Fig. 4-40 (上)のストライプ中の小さな結晶の高倍率SEM写真

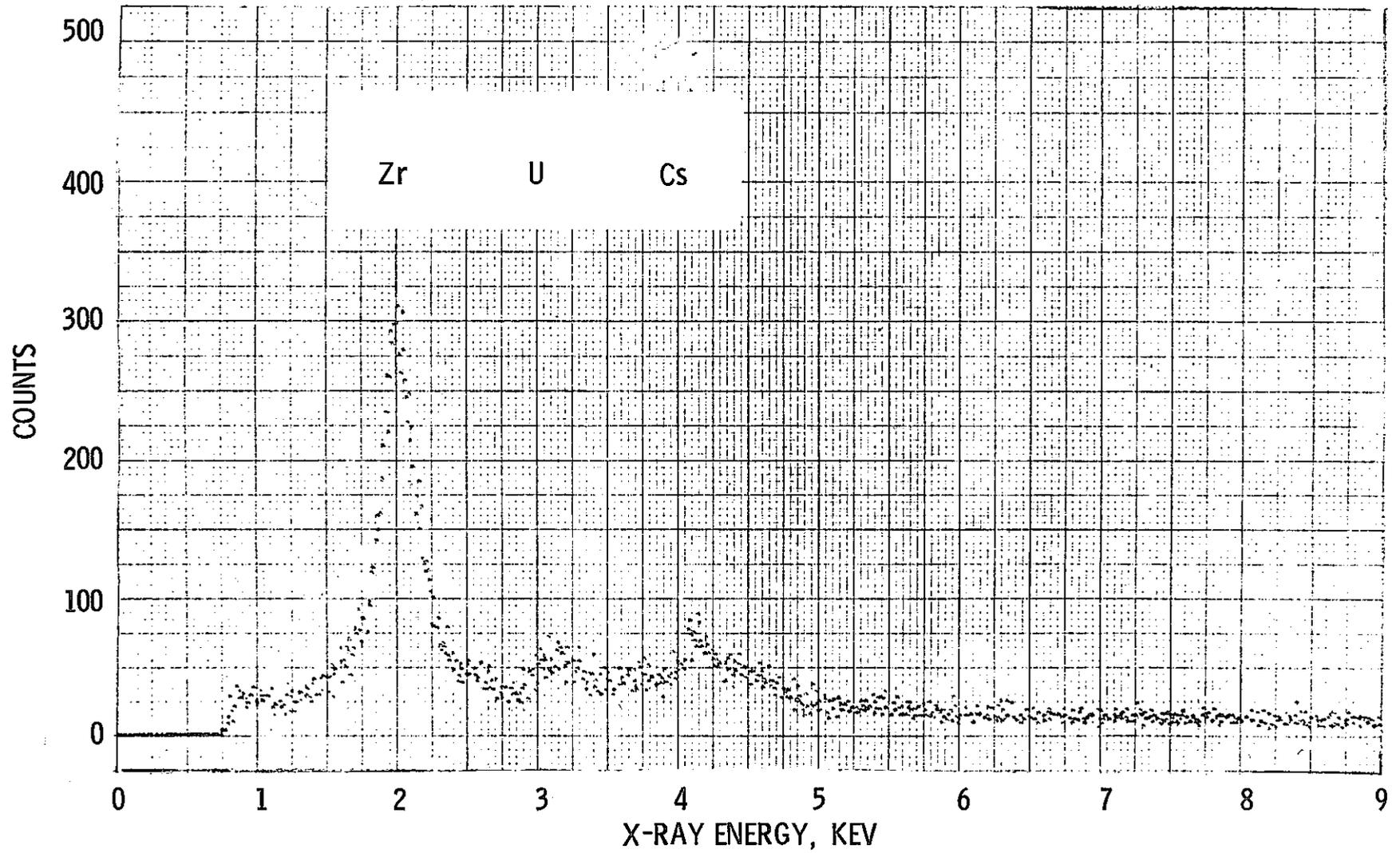


Fig. 4-42 ノデュールの中にZr, Cs およびUが存在することを示している, Fig. 4-40中のポイントHのX線スペクトル

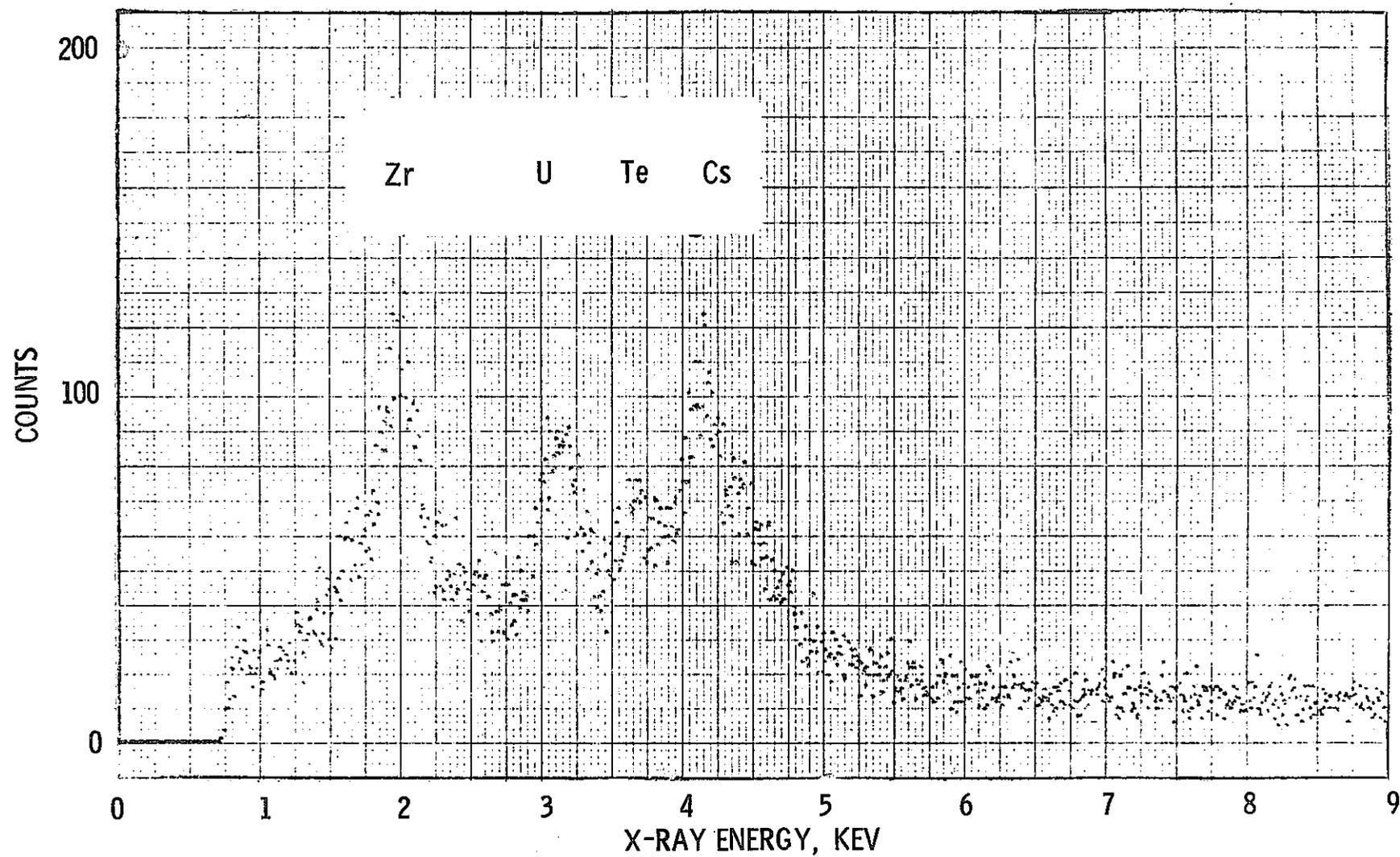


Fig. 4-43 Zr, Cs, UおよびTeの存在を示している, Fig. 4-40(上)中のポイントGのX線スペクトル

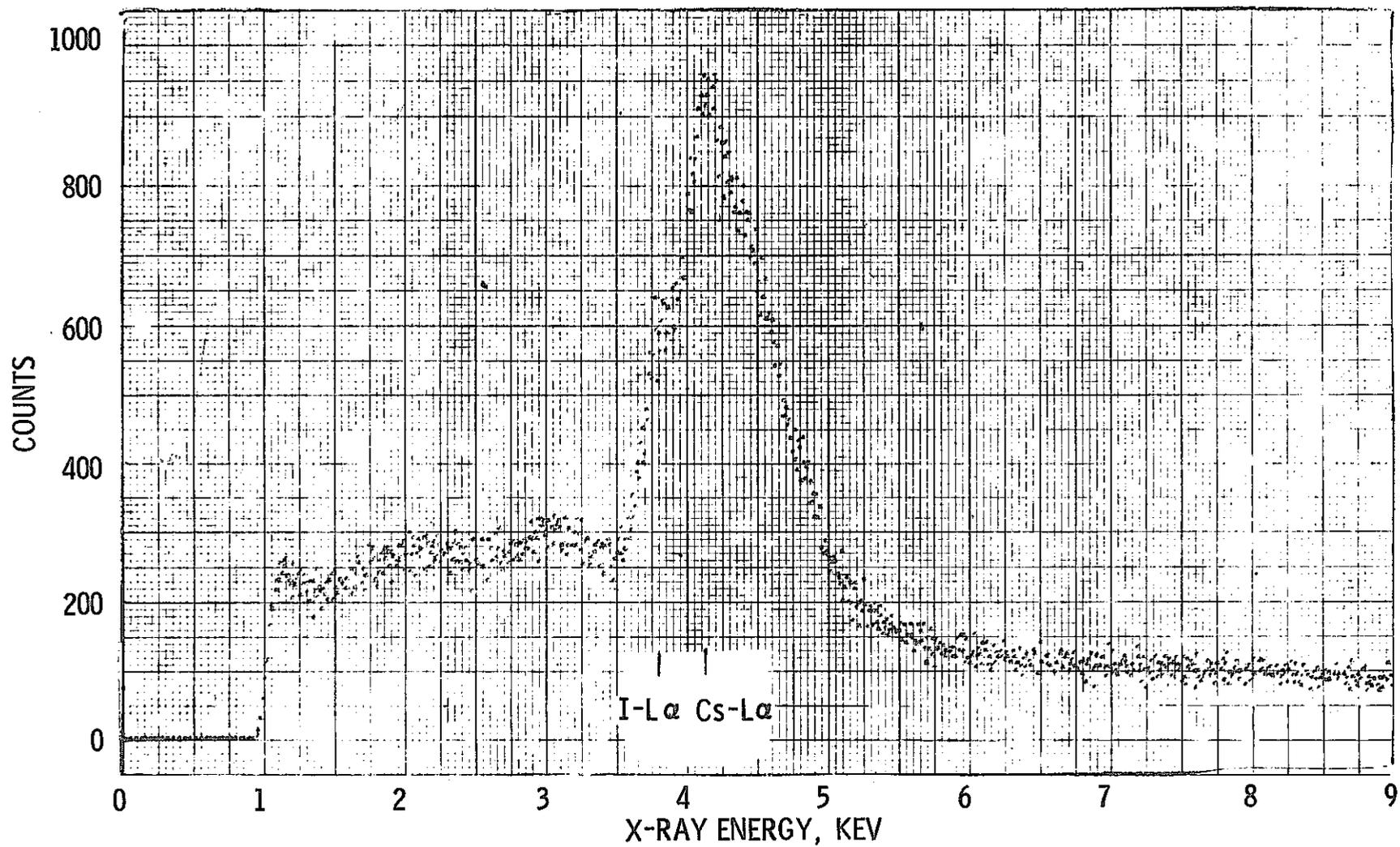


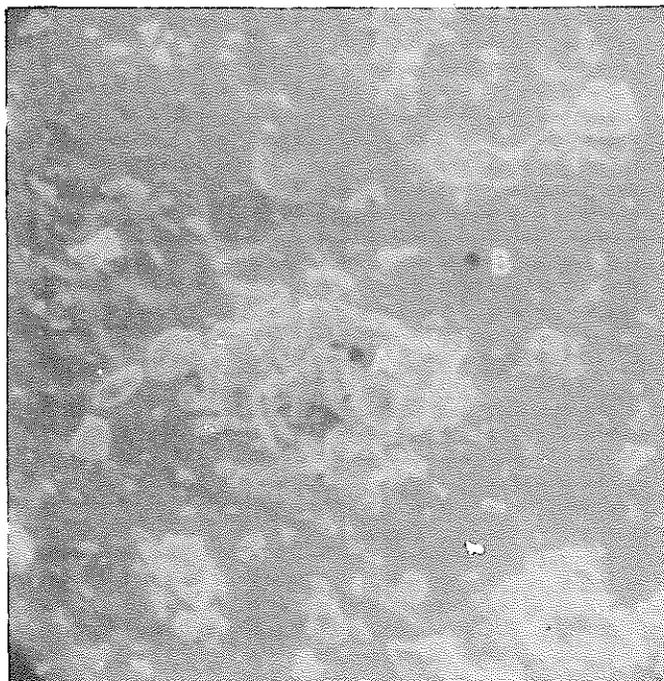
Fig. 4-44 セシウムおよびウランが主要な元素として存在することを示している, Fig. 4-41中の粒子のX線スペクトル

4. しま状領域から遠く離れた被覆管内面上の小さな粒子は、ウランおよびセシウムから構成されていることが分った。Fig. 4-45 にそのような粒子を示すと共に、Fig. 4-46 には対応する X線スペクトルを示す。この粒子に隣接する領域の X線スペクトルである Fig. 4-47 にジルコニウムだけしか観察されないことから、暗いバックグラウンドは被覆管表面であることが確認された。
5. 切開した被覆管面上に観察された（特に HBU-169 の場合に）大きな、厚い沈着物（deposit）は、Fig. 4-37 における 166A-7 の試料の SEM写真で明らかなように JCN-196 の表面上にも観察された。166A-7-1 の試料中のそのような沈着物の X線分析によって示されているように（Fig. 4-48）、これらはウランおよびセシウムを高濃度に含有しているように思われる。この沈着物の厚さが薄いように見える部分の分析を試みたが、強い放射能のために X線検出器が飽和してうまく行かなかった。検出器に達するビームはかなり良くコリメートされているので、この薄い部分は Fig. 4-48 に示されている部分よりも強い放射能を有していると結論づけられ、セシウムが唯一の主要な放射エネルギーであるが故に、このことは沈着物の被覆管表面に近い部分が比較的高濃度のセシウムを含んでいることを示唆している。これらの観察結果は、第 4.10 節に記載されている横断面の金相試料の電子・マイクロプローブ（electron microprobe）分析の結果とも一致している。
6. これらの大きな、厚い沈着物の著しい特徴は、それらの形が円形または楕円形であるということである。この円形の傾向は割れのパターンにも現われており、Fig. 4-49 に示されているように同心円状になっている。したがって、そのような SEM写真によって JCN-196 の被覆管上に付着している物質は、目視による外観検査でもっと明らかに円形状に見えた HBU-169 の被覆管上の沈着物と類似しているということが確認された。

B. HBU-169 燃料被覆管の内表面

HBU-169 から採取された 2 つの試料（そのうちの 1 つは Fig. 4-50 に示されている）は放射線が強すぎて X線による分析はできなかった。したがって SEM による試験は、JCN-196 の試料との形状的な類似性を証明するための追加データを得ることに限定された。（形状が類似していれば化学的組成の類似性の証拠にもなるであろう。）

この観察の結果として、HBU-169 の沈着物は JCN-196 の被覆管上の沈着物と外観が事実上同一であるということが明らかになった。例えば、大きな沈着物の円形および同心円状の割れパターンを示している Fig. 4-51 は、Fig. 4-49 に示されている JCN-196 の場合の写しであると考えられる。HBU-169 の沈着物が円形であるという他の例が Fig. 4-52 に示されている。それで 2 つの被覆管試料上の沈着物は、たぶん同じような核分裂生成物の放出挙動および同じような化学過程によって生じたものであろう。



191

600X

Fig. 4-45 166A-4 (Fig. 4-36) 試料上のポイント1近傍の
粒子のSEM写真

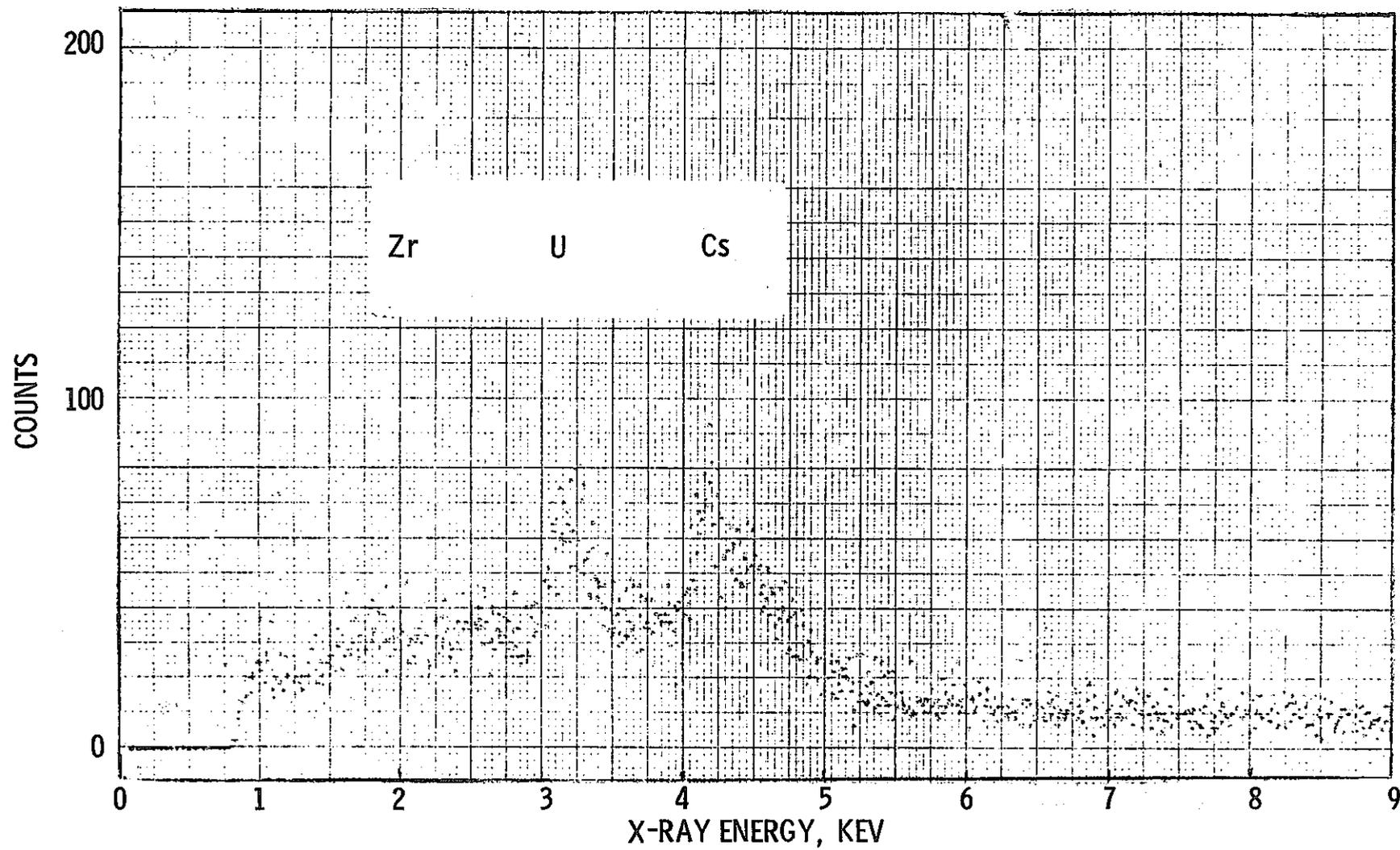


Fig. 4-46 ウランおよびセシウムが存在を示している, Fig. 4-45中の粒子AのX線スペクトル

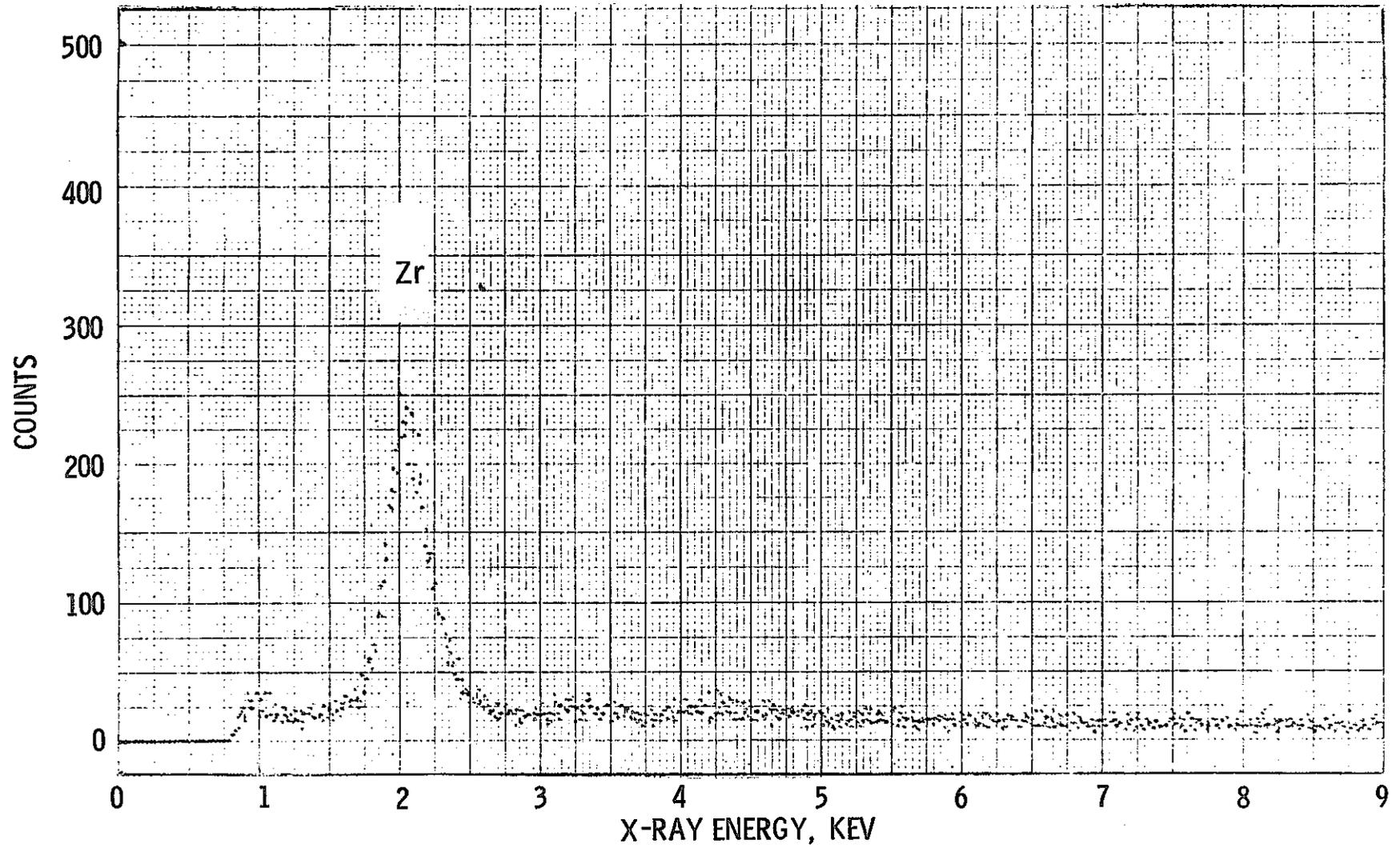
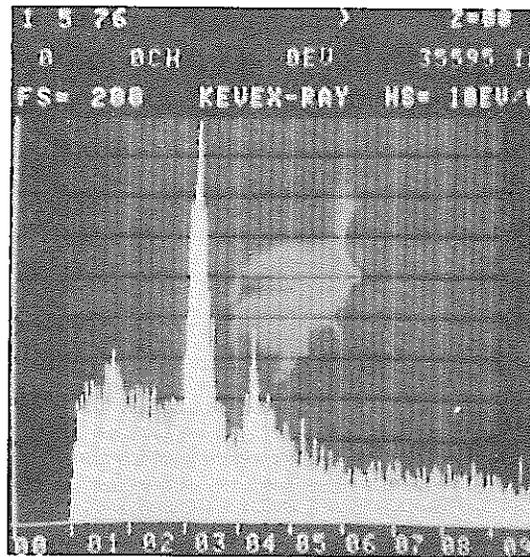


Fig. 4-47 ジルカロイ被覆管表面上の黒色のバックグラウンド物質中に
ジルコニウムが存在することを示している, Fig. 4-45
中のポイントBのX線スペクトル



220

130X



221

Fig. 4-48 Fig. 4-37中の166A-7-1のポイント1近傍のSEM写真およびウランとセシウムの存在を示しているポイントCのX線スペクトル



212

120X

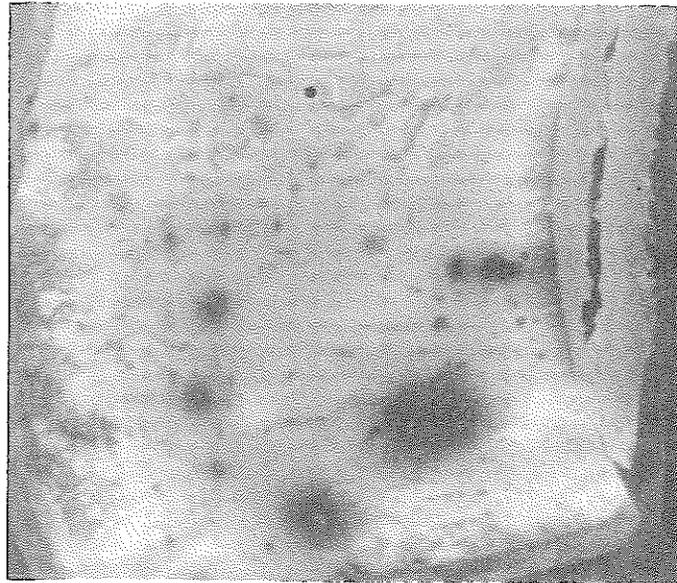


213

1200X

Fig. 4-49 上-円形の特徴を示している, Fig. 4-37 中の 166
A-7 のポイント 2 近傍の沈着物

下-上の写真のポイント A 近傍の同心円割れパターンの
の詳細



268

11X

Fig. 4-50 HBU-169の被覆管試料166C-3の低倍率SEM
写真



298

40X



305

400X

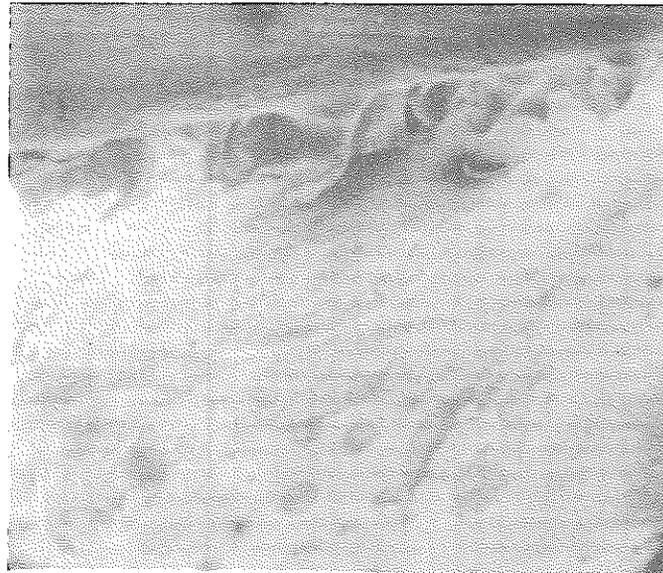


306

1000X

Detail of Point 1 on Left

Fig. 4-51 Fig. 4-50 中の 166C-1 のポイント 2 近傍の沈着物の円形状および同心円割れパターンを示している SEM 写真 (Fig. 4-49 の割れパターンとの類似性に注目)



272

22X



273

44X

Fig. 4-52 Fig. 4-50中の166C-3のポイント1近傍の沈着物の円形状を示しているSEM写真

4. 8 燃料および被覆管の金相試験

4. 8. 1 目的

切開した被覆管の内面観察に加えて、主に以下の目的で広範な燃料および被覆管の金相試験を行なうために燃料棒が組織的に切断された。

1. 切断部選択の基礎として非破壊試験のデータを使用し、健全な燃料棒における初期の被覆管破損 (cladding perforation) の形跡を調べる。
2. UO_2 の微細組織を特性化する。特に、高いガス放出率を示した燃料棒における等軸晶の成長の程度を調べる。

第1ホット・セルキャンペーンにおいては、渦電流試験のデータ (プールサイドおよびホット・セル試験の両方から得られたもの) が初期クラックを調べるための唯一の基礎であった。しかし、渦電流信号はほとんどの場合に燃料と被覆管の固着 (bonding) を示していることが分かったので、第2ホット・セルキャンペーンにおいては初期クラックが起っている可能性のある位置 (例えば円周方向のリッジング部、オーバリティの大きい部分および高燃焼度位置においてガンマ・スキャンによるセシウム・ピーキングを示した部分) を正確にとらえるために、プロフィロメトリおよびガンマ・スキャンのデータに重点が移された。

破損した燃料棒よりもむしろ健全な燃料棒に対して調査の重点を置いた基本的な理由は、破損した燃料棒においては被覆管の初期破損の特徴が水の侵入による2次水素化によって消されてしまうであろうと思ったからであり、さらに、健全な燃料棒において初期破損の形跡が見い出されたならば、それはすべての燃料棒における初期破損の原因を決定するための基礎として役立つことができるからである。

4. 8. 2 試験手順

横断面の金相試験を行なうための手順は両方のキャンペーンにおいて同一であった。まず燃料棒を1インチの長さに切断し、それをステンレス鋼製の支持管の中に入れ、次にエポキシ樹脂によってベークライト製のマウントに保持する。軸方向の向きはマウントに取り付けられているステンレス鋼製のピンを使って維持された。縦断面の金相試験を行なうための試料は、その断面が中心面で試験されるようにマウントされた。

一般的に、試料は多くの表面の試験ができるように少しづつ研磨された。試料研磨の進み具合は新しい表面が仕上がる毎にマイクロメータでマウントの長さを測定することによって調べられた。研磨にはシリコン・カーバイドの研磨紙を使い、順次細かくして行って600番 (600 grit) まで行なわれた。その後で2%のクロム酸溶液中に1ミクロンのアルミナを混ぜた懸濁液で研磨した。各々の表面は研磨したままの状態、ならびに被覆管中の水素化物の量および方向を見るために48 v/o H_2O_2 (30%) + 48 v/o HNO_3 (70%) + 4 v/o HF (48%) の混酸でエッチングし

た状態の両方で観察された。単に UO_2 の微細組織だけを調べるための試料は番数の小さい研磨紙で研磨されただけである。燃料の組織を現わすために使われたエッチング液の組成は 85 v/o H_2O_2 (30%) + 15 v/o H_2SO_4 (98%) であった。

被覆管中に初期クラックが見つかった場合には、違った手順が使われた。過酸化水素をベースにしたエッチング液はクラック領域を激しく侵すので、試料の表面を約 0.01 インチ取り除く程度に軽く再研磨し、次に水をベースにした組成 (57.5 v/o H_2O + 39 v/o HNO_3 (70%) + 3.5 v/o HF (48%)) で侵蝕性の弱い液でエッチングした。次いで、被覆管の結晶組織の偏光による観察を容易にするために、Picklesimer(2) および Kaufmann ら(3) によって記述されている手法で試料を電解研磨した。電解液の組成は次のとおりである。

修 酸	: 50g
クエン酸	: 50g
ホウ酸	: 50mℓ
乳酸	: 100mℓ
水	: 350mℓ
エタノール	: 600mℓ

被覆管試料を陽極にし、陰極としてステンレス板が使われた。ステンレス線を試料にクランプでとめ、50 ボルトで 30~45 秒間電流を流した。

4.8.3 金相試験の結果

第1および第2ホット・セルキャンペーンで試験されたすべての金相試験試料の概要が、それぞれ Table 4-11 および 4-12 に示されている。これらの表には試料採取の位置、試験の理由およびそれらの結果が含まれている。この試験の範囲は以下のように要約される。

A. 第1キャンペーン

1. 全試料数 - 24 個 (すべて横断面)
2. プールサイドおよびホット・セルにおける渦電流試験で観察された渦電流信号 (ECI) を使って健全な燃料棒における初期クラックを調べるための試料 - 17 個
3. UO_2 の微細組織を特性化するための試料 - 4 個 (3つは高いガス放出率を示した燃料棒からのもの) (UO_2 の微細組織の特性化に関するその他のデータは ECI 調査のために選ばれた試料から得られたものである。)
4. バッチ C の破損した燃料棒で、その唯一の被覆管破裂 (breach) 部から採取した試料 - 1 個
5. グリッドの接触摩耗の深さを評価するための試料 - 2 個 (1つは目視で摩耗が分かる部分からのもので、1つは典型的なグリッド接触部からのもの)

B. 第2キャンペーン

Table 4-11 ホット・セル金相試験のまとめ - 第1キャンペーン

マウント 番号	燃料棒 番号	信号位置*	試験した 表面の総数	ECI** からの研摩深さ インチ	試験の 理由	金相試験観察結果
X-330	JCN-182	78-5/16	23	0.110	ECI**	広範囲にわたる燃料ボンディング。
X-331	JCN-182	76-13/16	17	0.186	ECI	いくつかの燃料ボンディング。
X-332	JBY-142	90-1/16	23	0.237	ECI	ECI から98.6ミル過ぎたところに非常に小さな(0.002インチ以下)内表面欠陥。
X-333	JBY-142	87-9/32	17	0.106	ECI	ほんのわずかのボンディング。
X-334	JBY-142	37-5/8	21	0.162	ECI	燃料が中心部で非常に高密度化。その他なし
X-335	HBV-067	グリッド#8	20	-	グリッド摩耗 マーク	2つの低いアーチ・マークは深さが3.5および2.9ミルであった。2つのスプリング・マークは深さが3.0および1.0ミルであった。
X-336	HBV-067	グリッド#2	10	-	グリッド摩耗 マーク	マークが浅いため確定的でないが、最大深さは1.0ミルと見積られた。
X-337	JBY-157	40-15/16	8	0.146	ECI	反応領域を有しないいくつかの燃料ボンディング。
X-338	JBY-157	40-5/32	7	0.099	ECI	異常なし。
X-339	JCN-199	92-5/16	9	0.083	ECI	広範囲のボンディング。電子顕微鏡観察が行なわれた。
X-340	JCN-199	87-1/2	9	0.113	ECI	多量の燃料ボンディング。
X-341	JCN-199	49-27/32	6	0.108	ECI	多量の燃料ボンディング。
X-342	JBP-005	94-3/16	12	0.083	ECI	被覆管中に2つの半径方向クラック。75度において最大深さ17.0ミル、80度において最大深さ12.2ミルであった。いくつかのボンディング。
X-343	JBP-005	37-7/16	6	0.115	ECI	ほんのわずかの燃料ボンディング。
X-344	KCA-109	88-1/2	10	-	破損した“C” 燃料棒の唯一の プリスター	典型的なプリスター断面。
X-345	JBY-157	96	2	-	UO ₂ の微細組織	等軸晶成長なし。
X-355	JCN-182	81-1/2	8	0.084	ECI	多量のボンディング。
X-356	JCN-182	74-7/16	8	0.080	ECI	いくつかのボンディング。
X-357	JBP-005	31-15/16	8	0.126	ECI	グリッド部の0度から120度にわたって厚い外表面酸化物。
X-358	JBP-005	24-1/8	1	-	UO ₂ の微細組織	等軸晶成長が観察された。
X-359	JBP-005	16-1/4	1	-	UO ₂ の微細組織	等軸晶成長が観察された。
X-360	JBP-005	10-7/8	1	-	UO ₂ の微細組織	等軸晶成長が観察された。
59-1/8 下部	JBP-027	59-5/16	6	-	ECI	いくつかの燃料ボンディング。燃料中に金属インクルージョン。
59-1/8 上部	JBP-027	58-7/8	15	-	プリスター状のス ポットが目視で観 察された。	特になし、スポットは被覆管外表面のきず(blemish)であると結論された。
表面の総数 (全マウント)			248			

* 燃料棒の下部からインチで表わしたもの

** 内表面欠陥の渦電流信号

Table 4-12 ホット・セル金相試験のまとめ - 第2キャンペーン

マウント 番号	燃料棒 番号	軸方向 位置*	選 択 の 理 由	試験した 表面の総数	結 果
<u>分類 I - 未破損燃料棒中の初期クラックの調査 - 横断面金相による</u>					
X-412	HBU-169	112-1/2- 113-1/2	1.113-1/4インチの位置において渦電流信号。 2.Cs スキャンの不連続。 3.この位置におけるオーバーリテイは、15ミルという最大のオーバーリテイを有する燃料棒と比較すると無視できる程度(0.1ミル)である。 4.オーバーリテイおよびCs ピークはこの位置の下側である。	18	燃料ボンディングが観察された。 被覆管には異常なし。
X-410	HBU-169	13-1/8- 14-1/8	1.多数のCs ピーク。 2.わずかな直径変化(プロフィロメトリより)。 3.13-11/16インチの位置において燃料スタックに小さなギャップ(Zr-Nb スキャン)。	18	
X-418	JCN-196	37-1/4- 38-1/4	1.38インチの位置において弱い渦電流信号。 2.強いCs ピーク。	8	
X-419	JCN-196	75-5/8- 76-5/8	1.プロフィロメトリが円周方向リッジの証拠を示している。 2.Cs ピーク。	1	多量の燃料ボンディング。 電子顕微鏡解析に使用された試料。
X-420	JCN-196	91-92	1.91-3/4インチの位置において渦電流信号。 2.Cs ピーク。	14	異常は観察されなかった。
X-424	JB Y-097	43-1/8- 44-1/8	1.リッジ 2.Cs ピーク 3.約43-1/4インチの位置において渦電流信号(プールサイド試験から)。	8	X-418のものと類似のものが観察された。 電子顕微鏡解析に使用された試料。
X-421	JB Y-097	87-3/8- 88-3/8	1.はっきりしたリッジを有した最大オーバーリテイ領域。 2.Cs ピーク。	11	被覆管にクラックが1つ観察された。 SEMフラクトグラフィに使用された試料。
X-431	JBP-122	94-95	1.高燃焼度, 高オーバーリテイ領域。 2.リッジの証拠。	2	被覆管にクラックが4つ観察された。 これ以外の試験が行なわれなかった試料。
X-432	JBP-122	111-1/8- 112-1/8	最大オーバーリテイ領域。	7	異常は観察されなかった。
X-433	JBP-122	86-5/8- 87-5/8	直径トレース中に“突起(bump)”が観察された。	7	異常は観察されなかった。
<u>分類 II - 破損燃料棒中の初期クラックの調査 - 横断面金相による</u>					
X-415	JBP-003	83-1/16- 85-1/16	1.はっきりしたリッジ。 2.燃料スタック中の非常に小さなギャップ。 3.Cs スキャン不連続。 4.強い渦電流信号(プールサイド試験から)。	2	被覆管の酸化および水素化が観察された。
X-416	JBP-003	18-1/2- 19-1/2	1.17-19インチの位置にはっきりしたリッジ, および18-7/8インチの位置に1つの突起(bump)。 2.渦電流信号(プールサイド試験から)。 3.小さなCs ピーク。	1	
<u>分類 III - UO₂ 微細組織の特性化 - 横断面金相による</u>					
X-411	HBU-169	50-1/8	1.高オーバーリテイ領域。 2.高燃焼度位置。 3.高いガス放出率を示したバッチAの燃料棒。	7	等軸晶成長が観察された。
X-413	JBP-005	6	等軸晶成長の軸方向範囲を決定するための完全なデータ。	2	等軸晶成長は観察されなかった。
X-414	JBP-005	128	等軸晶成長の軸方向範囲を決定するための完全なデータ。	2	等軸晶成長が観察された。
X-422	JB Y-097	6	比較のためにJBP-005と同じ位置	2	
X-426	JB Y-097	128	比較のためにJBP-005と同じ位置	2	
<u>分類 IV - 燃料 - 被覆管配列 - 縦断面金相による</u>					
X-425	JB Y-097	35-5/8- 36-5/8	ペレット境界のリッジ。 試料は中心面で試験された。	2	ペレット境界の近くに燃料 - 被覆管ボンディングが観察された。
				表面の総数 (全マウント)	114

* 燃料棒下部からインチで表わしたもの

1. 全試料数 - 18 個 (横断面 17, 縦断面 1)
2. 試料選択の基礎としてプロフィロメトリおよびガンマ・スキャンで得られた非破壊試験のデータを使っての健全な燃料棒における初期クラックの調査, ならびに燃料の固着特性を調べるための燃料 - 被覆管境界の検査を行なうための試料 - 10 個
3. 破損した燃料棒における初期クラックの調査を行なうための試料 - 2 個
4. 高いガス放出率を示した燃料棒における UO_2 の微細組織を特性化し, 軸方向における等軸晶成長の程度を決定するための試料 - 5 個
5. 燃料 - 被覆管の固着特性を調べるための縦断面試料 - 1 個

この金相試験において得られた主な観察結果を以下の節に示す。

4.8.3.1 燃料 - 被覆管の固着

金相試験で得られた著しい結果の 1 つは, 高いガス放出率を示した燃料棒において被覆管への燃料の固着がしばしば観察されたことである。しかし, そのような燃料固着の形跡は, 切開した被覆管の内面検査において主にペレットの境界部で燃料が被覆管に固着しているということが観察された点から見て, 予期されぬことではなかった。

燃料 - 被覆管の固着は, プールサイドにおける渦電流探傷試験で 59-5/16 インチの位置に強い信号が生じたために選択された JBP-027 燃料棒から採取した試料で最初観察された。(付録 B に示されているように, JBP-027 燃料棒はプールサイドにおける渦電流試験で強い信号を示した。この観点から, この燃料棒はホット・セルにおける渦電流試験で試料が必要になる前に切断された。) 少しづつ研磨を行ない金相試験を行なったが, Fig. 4-53 から 4-55 に示されているような燃料 - 被覆管の固着を除いて異常は観察されなかった。

この結果は, プールサイド試験で得られた大きな渦電流信号はホット・セル試験で得られたものと同様に被覆管の欠陥 (defect) よりも燃料 - 被覆管の固着と関連しているということを示唆している。Fig. 4-56 に示されているように JCN-182 燃料棒のマウント No. X-330 が固着以外の異常を示さなかったことによって確証された。この試料は, Fig. 4-23 のトレースに示されているようにホット・セルにおける渦電流試験で内表面に大きな ECI が観察されたために選択された。

Table 4-11 に記されているように, 第 1 キャンペーンにおいて高いガス放出率を示した燃料棒から採取されたすべての試料で燃料 - 被覆管の固着が観察された。低いガス放出率を示した燃料棒 (すなわち, JBY-142 および JBY-157) から採取された金相試料では固着はほとんど観察されなかった。

第 2 ホット・セルキャンペーンにおいても, 燃料 - 被覆管の固着が高いガス放出率を示した燃料棒でしばしば観察された。例えば, Fig. 4-57 は横断面の金相試料における典型的な固着領域を示している。Fig. 4-58 は, ペレット境界またはその近くにおける固着の例を示している縦断面試料の詳細である。

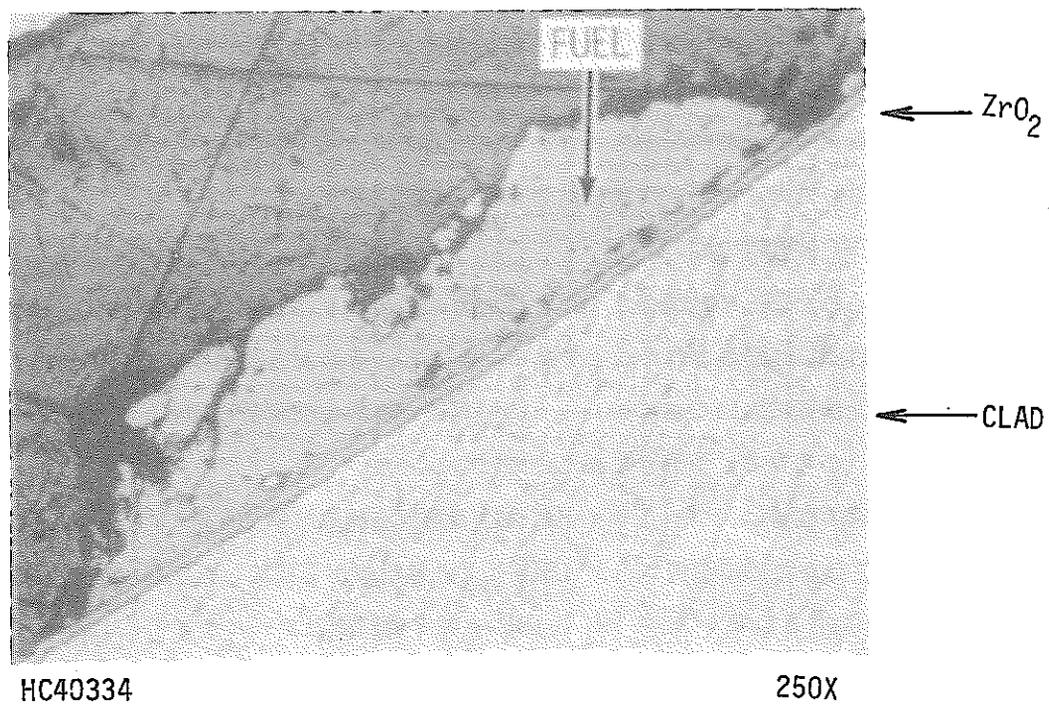


Fig. 4-53 JBP-027の下部から59-1/8インチの位置における燃料/被覆管ボンディング(研磨のまま)

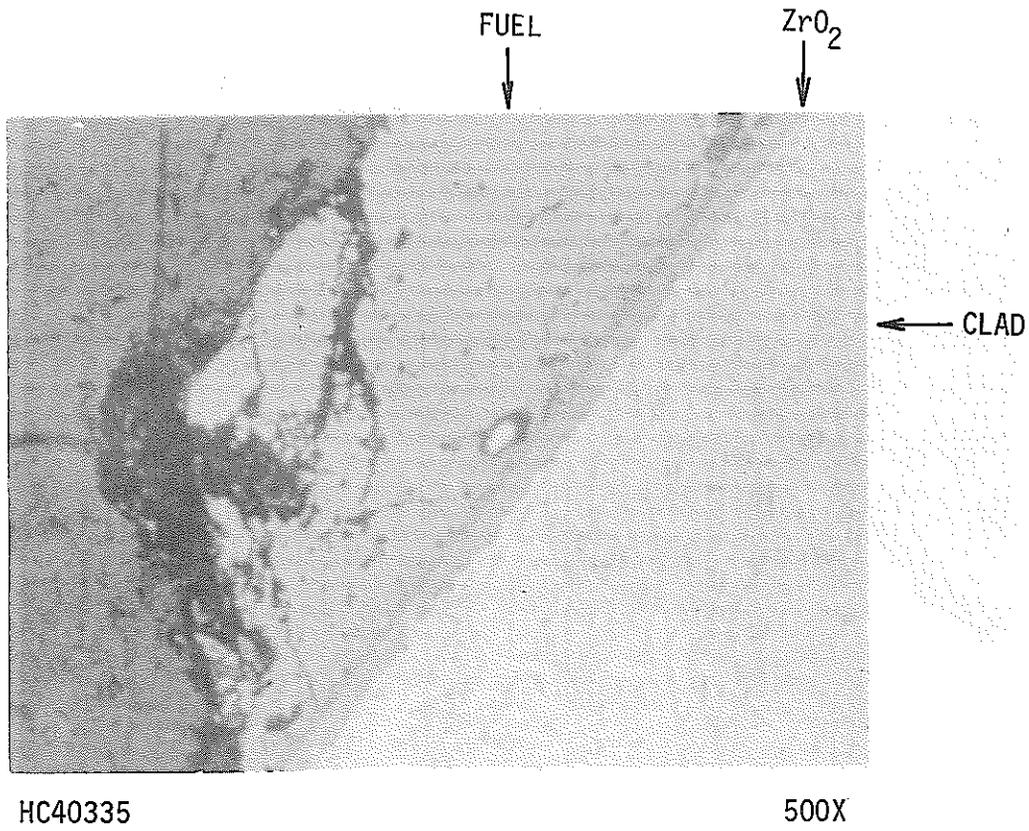


Fig. 4-54 Fig. 4-53 に示されている JBP-027 の燃料/被覆管ボンディングの詳細

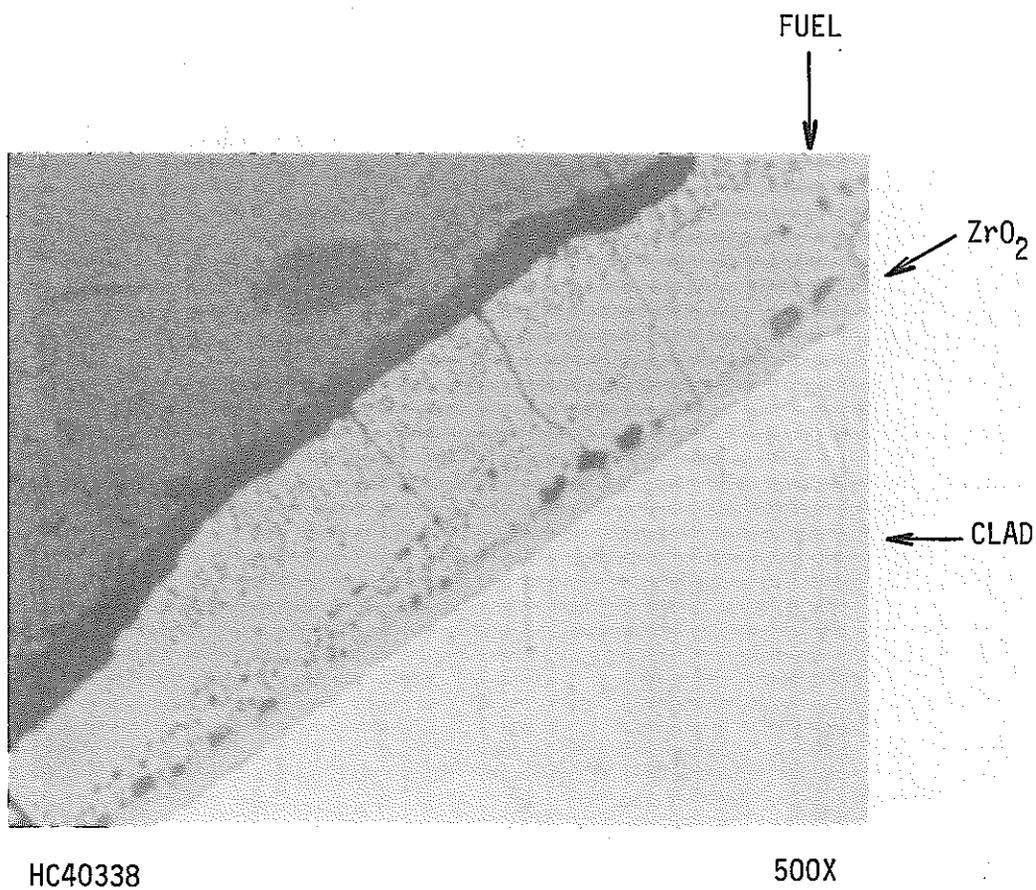


Fig. 4-55 JBP-027の下部から59-1/8インチの位置における燃料/被覆管ボンディングのその他の領域
(研磨のまま)

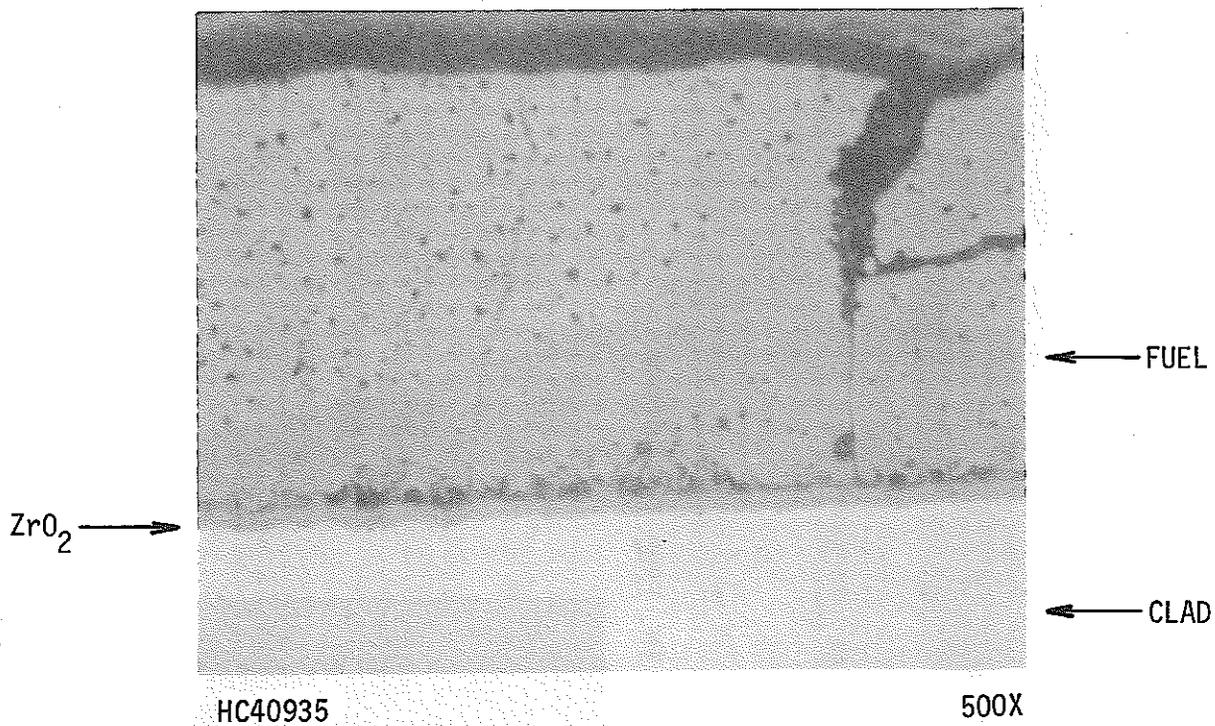


Fig. 4-56 Fig. 4-23 に示されている JCN-182 の下部から
78-5/16 インチ付近の渦電流信号に関係してい
る、マウント No. X-330 の燃料/被覆管ボンディ
ング (研磨のまま)

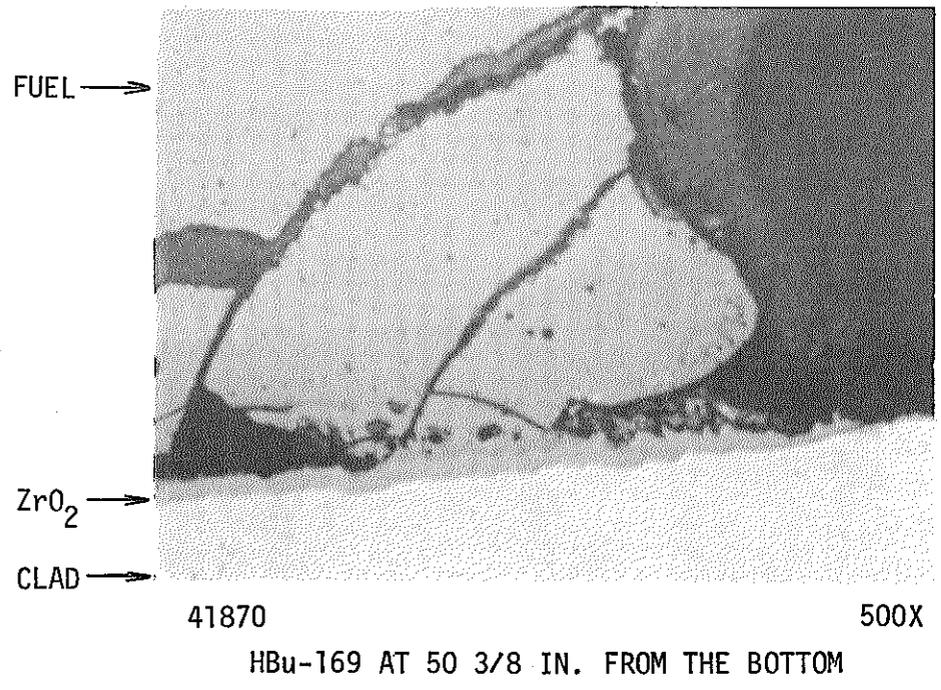
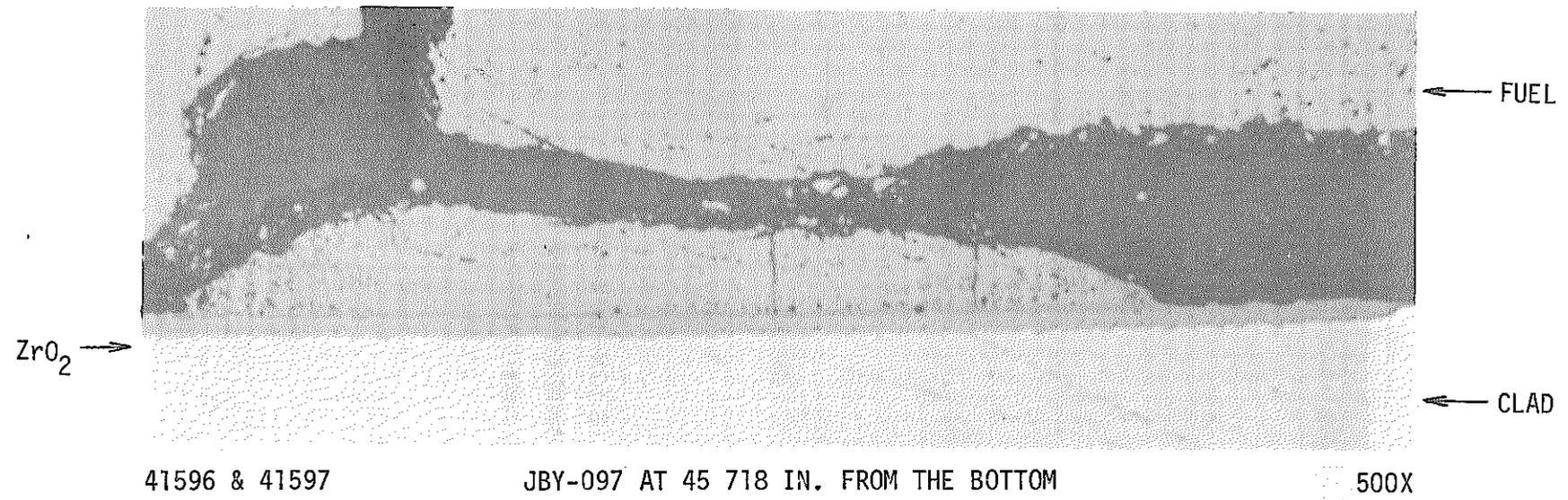


Fig. 4 - 5 7

第2キャンペーンにおいて、高ガス放出率燃料棒で観察された燃料/被覆管ボンディングの典型的な例 (研磨のまま)

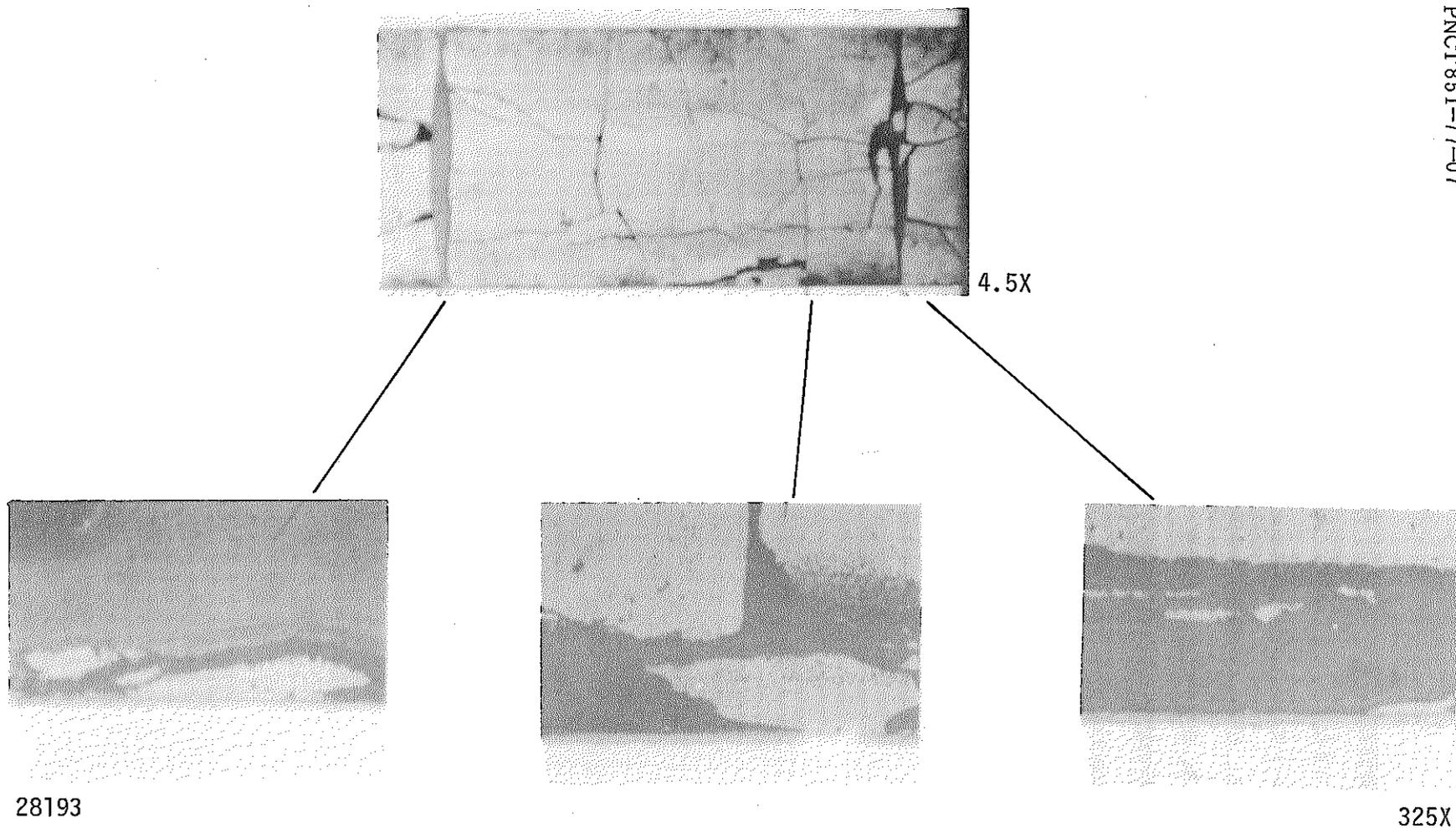


Fig. 4-58 JBY-097の下部から36インチの位置における燃料/被覆管ボンディングを示している縦断面試料
(研磨のまま)

燃料 — 被覆管固着部の金相の外観は、灰色の UO_2 とははっきりと異なり、しかも厚さが変動している1つまたはそれ以上の黒灰色の燃料層に密着している比較的厚い局所的な ZrO_2 層（約5ミクロン）によって特性化されるということに注目しなければならない。前の第4.7節に記されている、切開した被覆管上に固着している物質のSEM観察、および後の第4.10節に記されている、典型的な固着燃料領域のエレクトロン・マイクロプローブ（electron microprobe）解析の結果は、 ZrO_2 に接している層がウラン、セシウムおよびジルコニウムを含む反応領域（reaction zone）から構成されていることを示している。

4.8.3.2 初期の被覆管破損

A. 第1キャンペーン

第1キャンペーンにおいては、2つの試料だけが被覆管の欠陥 (defect) を示した。このうちの1つは、Fig. 4-59および4-60に示されているように、低いガス放出率を示した燃料棒である JBY-142 から採取したマウント NaX-332 で見つけられた小さなクラック領域である。クラックの深さは肉厚の約5%であった。それは被覆管製造中の傷のようであり、照射前にすでに被覆管中に存在していたものと考えられる。

2つの被覆管内面クラックから成っているその他の欠陥が、Fig. 4-25のトレースにおいて燃料棒の下部から94-3/16インチの位置に示されている ECI を含んでいる JBP-005 燃料棒から採取されたマウント NaX-342 で観察された。(これは高いガス放出率を示した燃料棒の比較的高い燃焼度の位置であることに注意せよ。) 2つのクラックのうちの1つは、Fig. 4-61および4-62に示されているように、ペレットとペレットの境界における最初の試験面ですぐに観察された。クラックを特性化し、その軸方向の長さを求めるために表面を少しずつ研磨しながら連続的に金相試験が行なわれた。4ミルだけけずり込んだ第2番目の面で、第1のクラックに隣接した第2のクラックが見つかった。両方のクラックは61ミルの長さにわたって以後の5つの面でも観察された。クラックの典型的な外観は、第6番目の面の写真である Fig. 4-63 から 4-66 に示されている。最初の面から全体で93ミルけずり込んだ後で両方のクラックが消えた。Fig. 4-67 に示されている2つのクラックの“マップ”から、第1のクラックの最大深さは肉厚の65%であり、第2のクラックのそれは肉厚の45%であることが分かる。深い方のクラックの軸方向の長さは1/8~3/16インチの間であり、もう一方のクラックの長さは約1/16インチである。クラックの幅は狭く、研磨したままの状態では検出するのが困難だったので、その外観を特性化するためばかりではなくそれが見えるようにするためにもエッチングをする必要があったということに注意しなければならない。

試験計画のこの時点において、クラックがペレットの境界で発生していること、および光学顕微鏡によるクラックの特性(幅が狭くて枝分かれている)を考えるだけで、クラックはペレットと被覆管の相互作用によって助長された応力腐食によって引き起こされたということが示唆された。この推測は、この調査で得られた写真と他の研究者によって報告されている写真とを比較することによって強められた。例えば、Bainら(4)は Fig. 4-68 に示されているような応力腐食に関連した被覆管クラック(そのうちのいくつかはヨウ素によって引き起こされた)の顕微鏡写真を発表している。Fig. 4-68 に示されている JBP-005 の被覆管クラックと比較して見ても外観の類似性ははっきりと分かる。

3つの燃料棒切断試料 (section) が、JBP-005 における上記のクラックのホット・セル試験による渦電流信号と同じ信号を有していることが分かった。1つは JBP-005

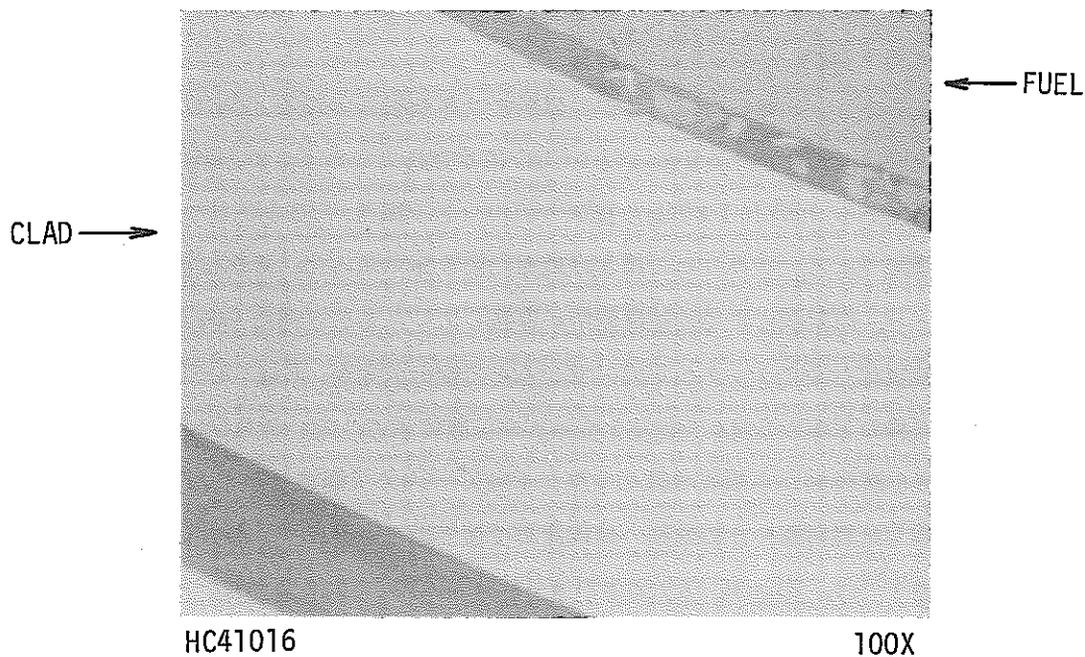


Fig. 4-59 JBY-142の下部から90-11/32インチの位置における被覆管内表面の欠陥（研磨のまま）

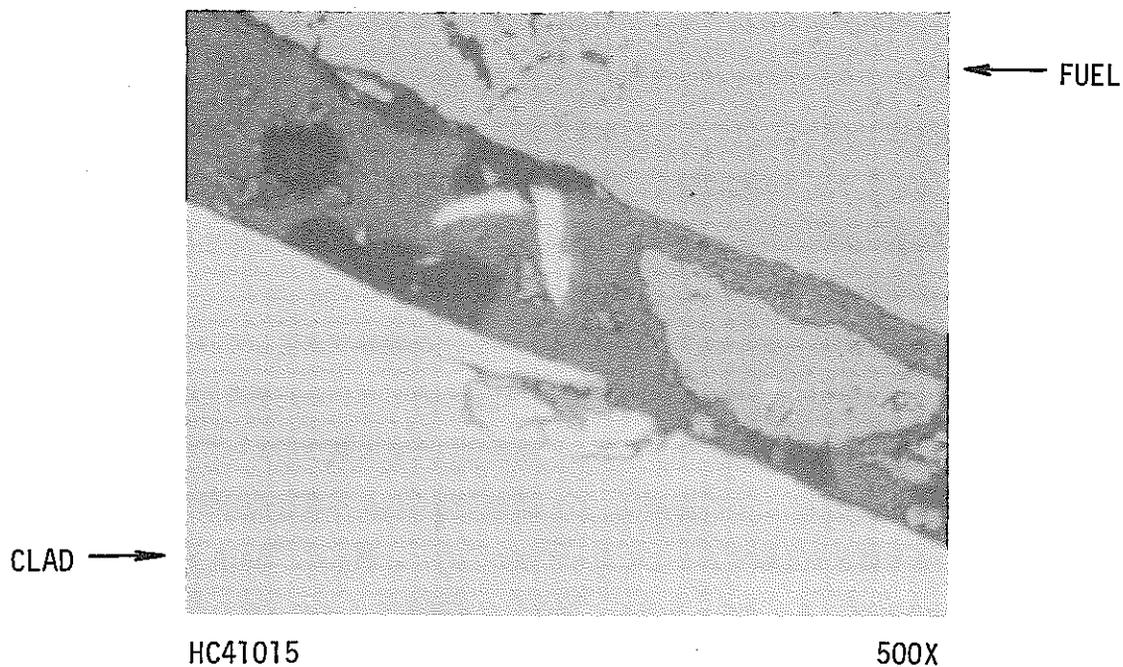
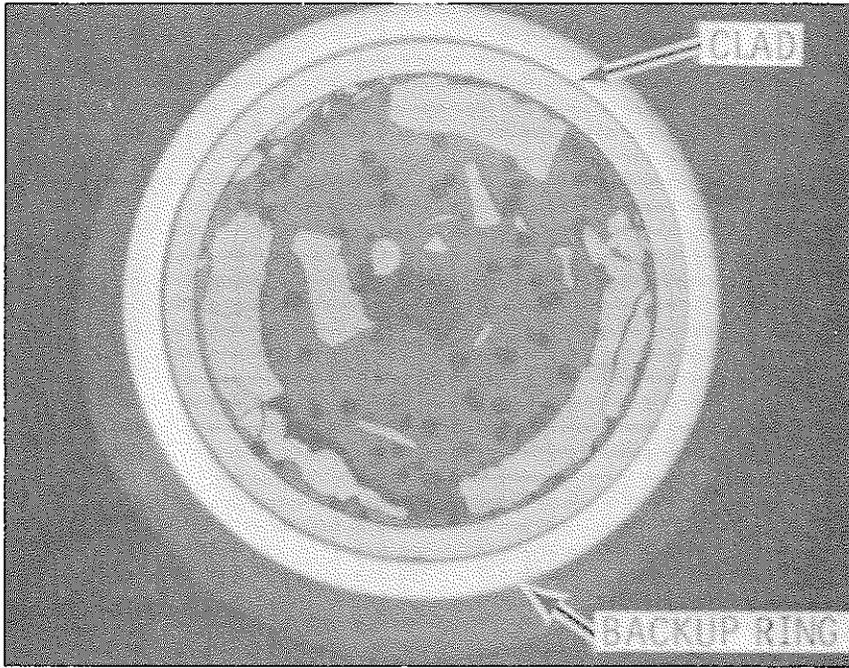


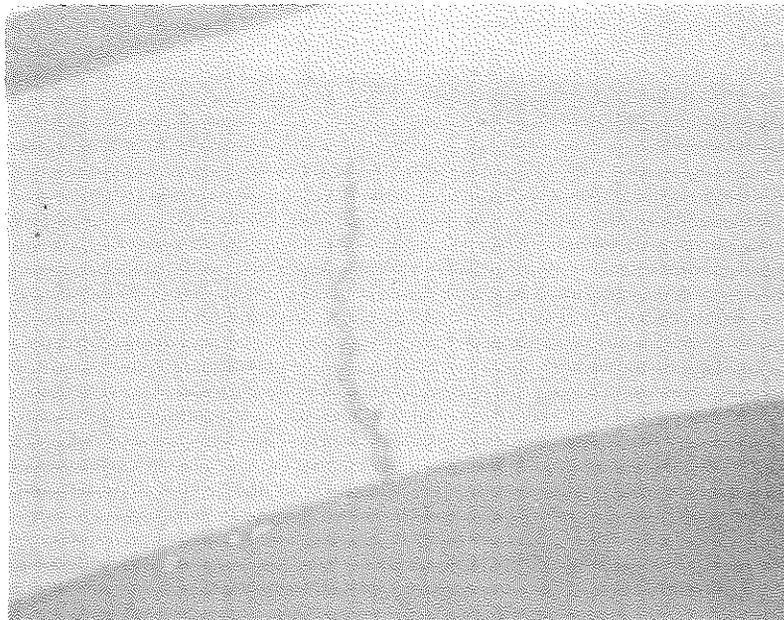
Fig. 4-60 Fig. 4-59に示されているJBY-142の被覆管欠陥の詳細（研磨のまま）



HC41254

6.5X

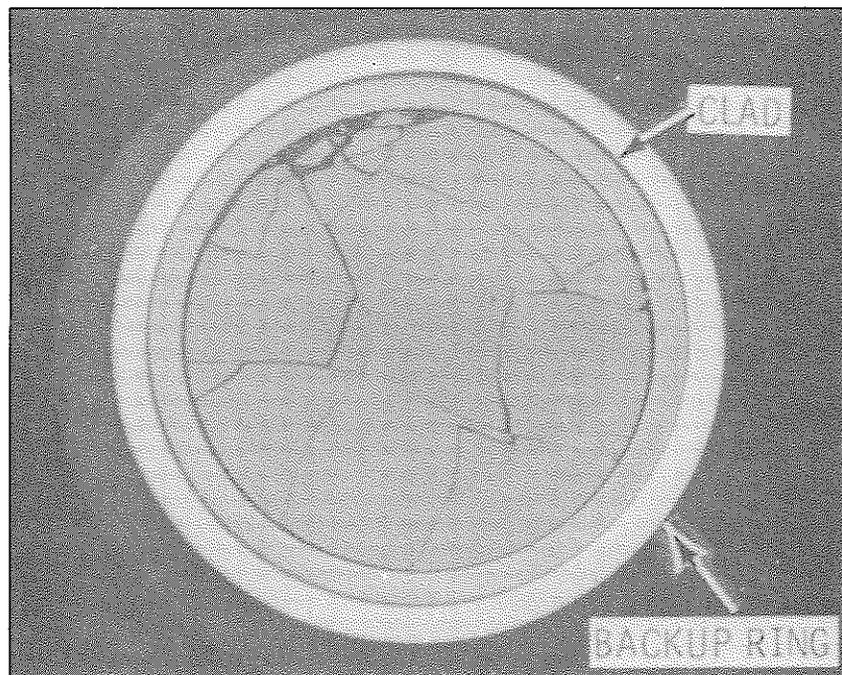
Fig. 4-61 JBP-005から採取したマウントX-342のペレット境界におけるクラックのマクロ写真（ペレット端面のディッシュのため燃料が存在しない）



HC41239

100X

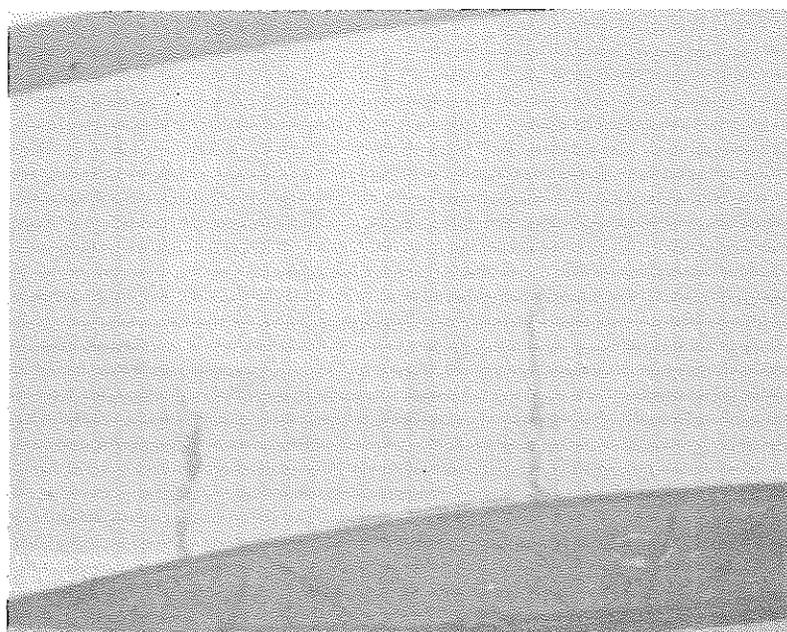
Fig. 4-62 JBP-005から採取したマウントX-342のペレット境界の1番目の表面の75度の位置にあるクラック（エッチング）



HC41420

6.5X

Fig. 4-63 JBP-005から採取されたマウントX-342の6番目の表面のマクロ写真(エッチング)



HC41415

100X

Fig. 4-64 JBP-005から採取したマウントX-342の6番目の表面の75度および80度の位置にあるクラック(エッチング)

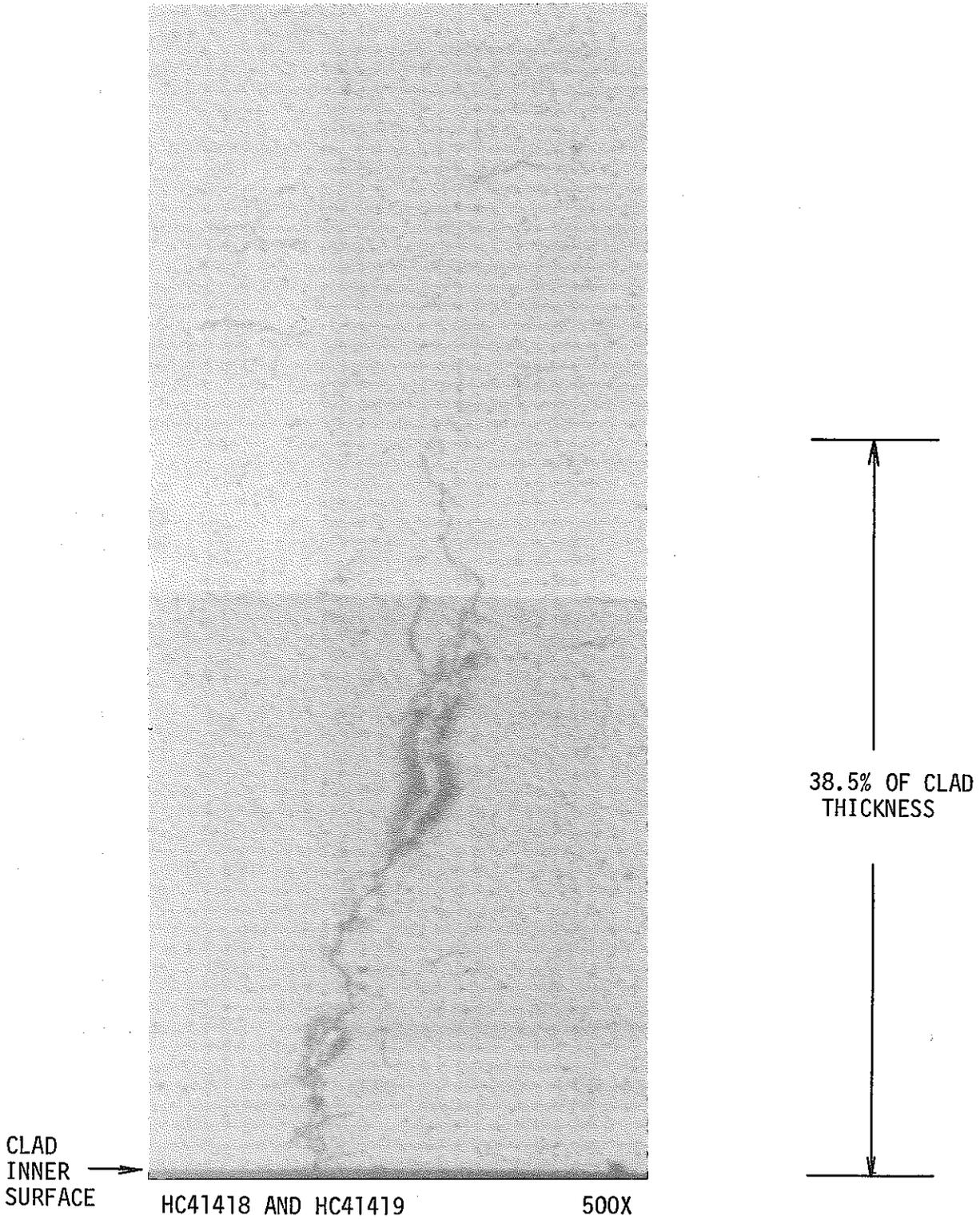


Fig. 4-65 JBP-005から採取したマウントNo.X-342の6番目の表面の75度の位置にあるクラック(エッチング)

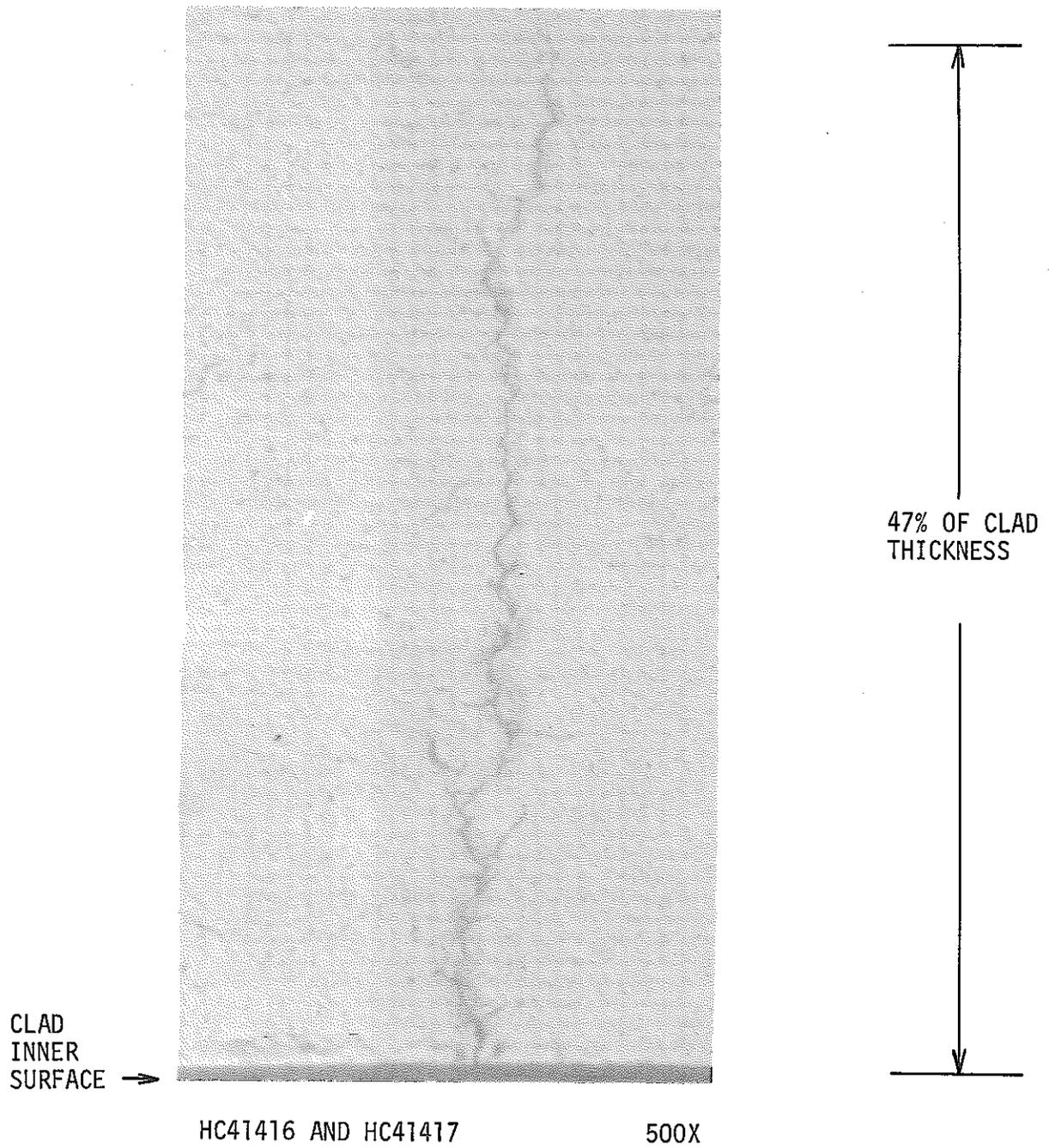


Fig. 4-66 JBP-0-05 から採取したマウント No.X-342 の 6 番目の表面の 80 度の位置にあるクラック (エッチング)

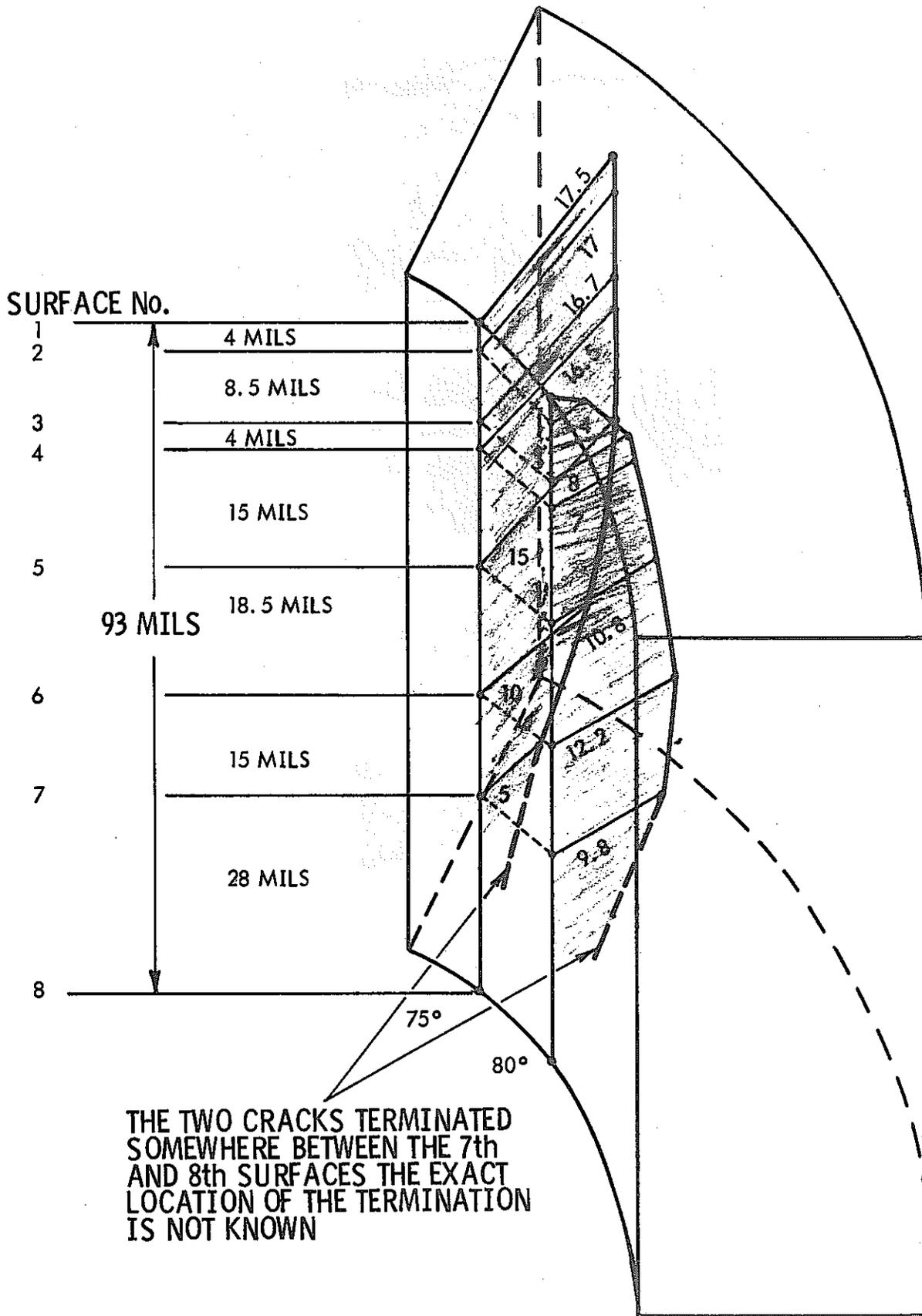


Fig. 4-67 JBP-005の下部から94-3/16インチの位置から採取されたマウントX-342における2つのクラックのマップ

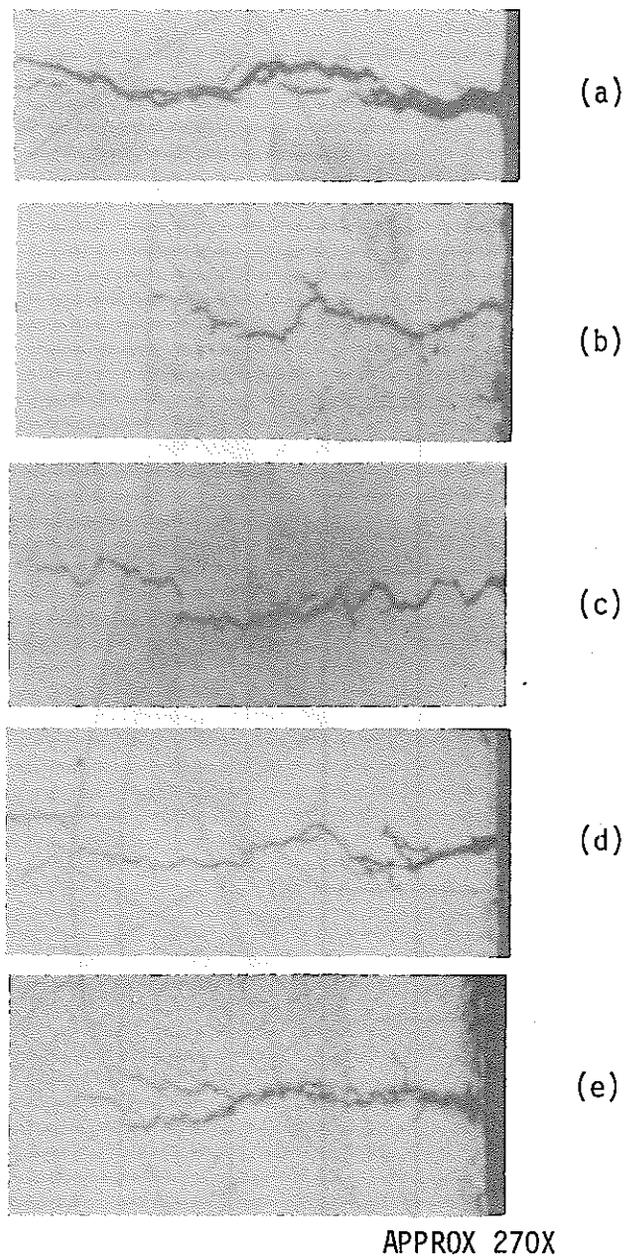


Fig. 4-68 参考文献4から引用したジルカロイ被覆管中のクラック (a-d)とMaine Yankeeの被覆管クラック(e)の比較

- a. 300℃のヨウ素蒸気中における未照射材のクラック
- b. 300℃のヨウ素蒸気中における照射材 (7×10^{24} n/m², E>1MeV)のクラック
- c. 実験炉において出力上昇後に破損した燃料要素の被覆管
- d. 動力炉において出力上昇後に破損した集合体から採取した健全な燃料要素の被覆管
- e. JBP-005から採取したマウントX-342の7番目の表面の80度の位置にあるクラック (エッチング)

の別の位置からのもの（マウントNo X-357）であり、残りの2つは高いガス放出率を示した別の燃料棒、JCN-182からのもの（マウントNo X-355およびX-356）であった。多数の面のけずり込みと研磨を含めた徹底的な金相試験によってもクラックの形跡は見い出せなかった。初期クラックの発見には、渦電流信号による正確な位置決めのために偶然の要素が含まれていると結論づけられた。

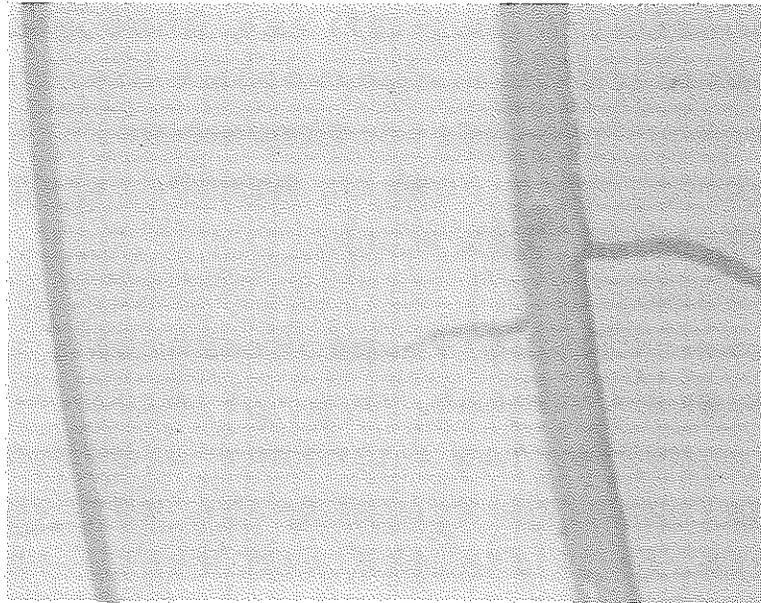
B. 第2キャンペーン

第2キャンペーンにおける初期クラック調査のための試料の選択は、主に渦電流試験以外の非破壊試験に基づいて行なわれた。プロフィロメトリおよびガンマ・スキャンのデータから得られた試料の特性がTable 4-12に示されている。核分裂生成物の放出と初期の被覆管破損との間の因果関係に関する証拠を調べるため、被覆管の金相のために選ばれた健全な燃料棒はすべて高いガス放出率を示したもの、すなわちバッチBの燃料棒であるJCN-196, JBY-097およびJBP-122, ならびにバッチAの燃料棒であるHBU-169からであった。

初期破損の形跡を調べるために10個の試料について金相試験が行なわれ、そのうちの2つはJBP-005における被覆管クラックに類似したクラックを有していることが分った。クラックの1つは、Fig. 4-69および4-70に示されているように、JBY-097（マウントNo X-421）で見い出された。また、Fig. 4-71から4-74に示されているようにJBP-122（マウントNo X-431）でも一組のクラックが見い出された。JBP-005の場合と同様にクラックはペレット・クラックの近くのペレット境界で見い出された。それらも幅が狭く、一般に研磨したままの状態では観察されなかった。

JBP-122およびJBP-005はB-042集合体の同じ象限のもので、両方の燃料棒の同じ位置（下部から約9.5インチ）で被覆管クラックが発見されたということは注目して値する。JBY-097はB-069集合体から選ばれたもので、そのクラックも比較的高出力部である下部から約8.8インチの位置で見い出された。最初に見い出されたJBY-097のクラックは、その後走査型電子顕微鏡によって特性化された（第4.9節参照）。JBP-122燃料棒のクラックは調査手法を実証するための2次的な試験の一部として後で見つかったものなので、光学顕微鏡以上の特性化は行なわれなかった。両方の場合において、クラックを含んでいる被覆管表面は偏光による金相試験によって特性化された。この目的のために、試料を簡単に再研磨し、反応の遅いエッチング液でエッチングし、次に電解研磨した。偏光および/または淡い照明の下で観察したところ、すべてのクラックには双晶（twin）やすべり（slip）の形跡がなく粒内を貫通していることが分ったが、これは塑性変形が起こらなかったことを示している。この形態はクラックが枝分かれしていることと共に応力腐食割れと一致している。

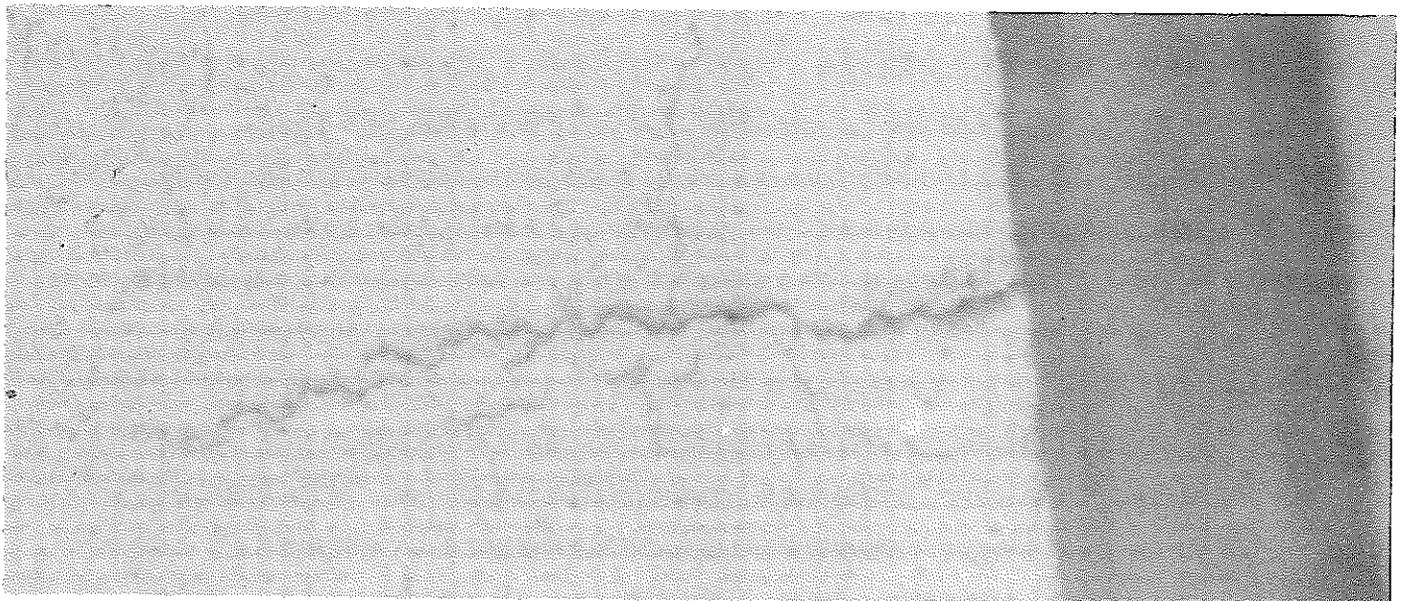
観察されたすべてのクラックは半径方向のものであり、これらは素管（被覆管）の検査



41854

100X

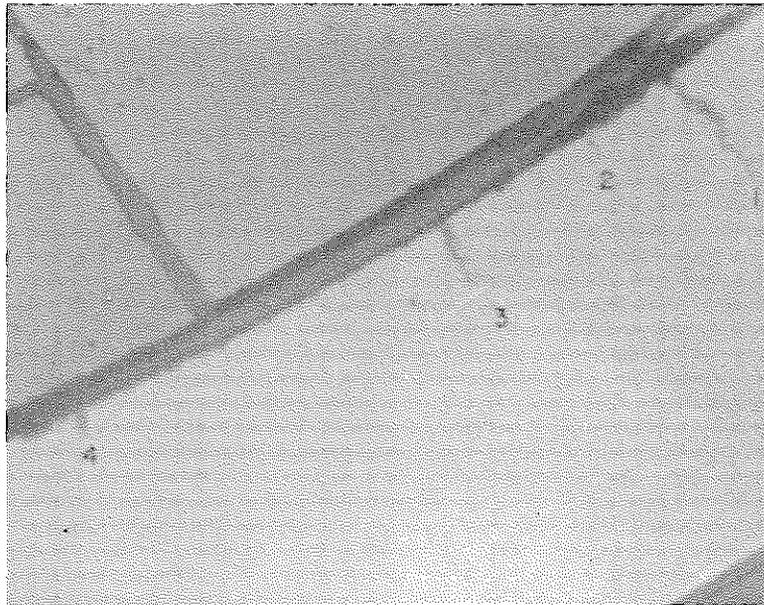
Fig. 4-69 JBY-097の下部から88-3/8インチの位置における初期被覆管クラックのマイクロ写真(エッチング)



41857 & 41858

550X

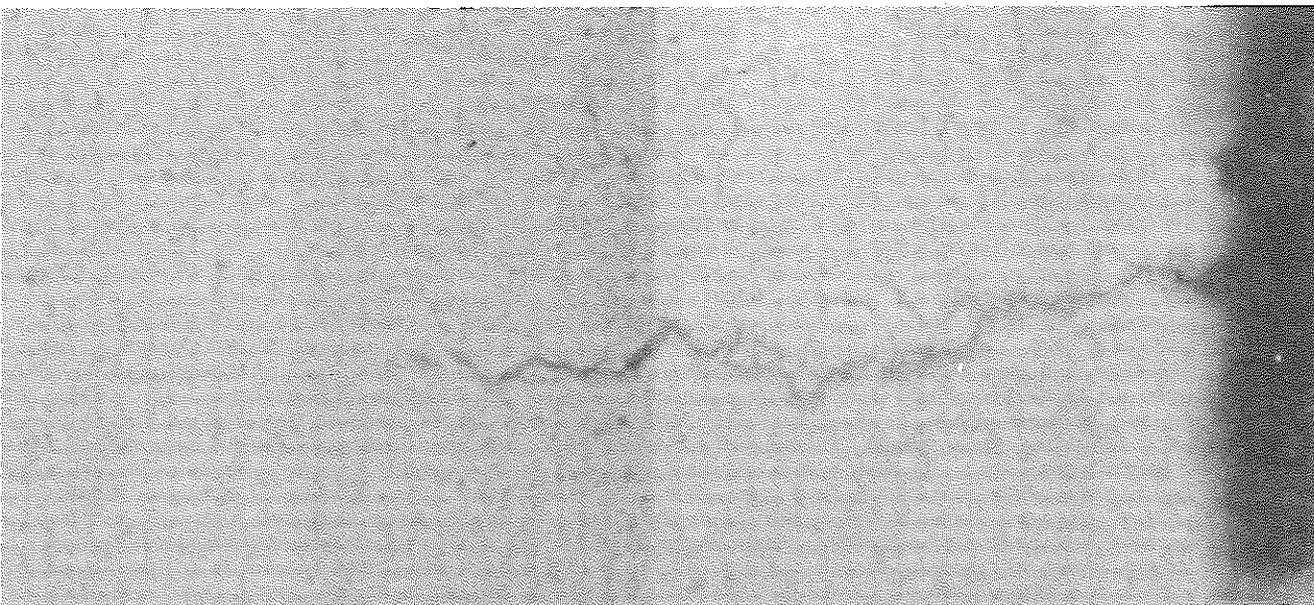
Fig. 4-70 Fig. 4-69に示されているJBY-097の初期被覆管クラックの詳細(エッチング)



42078

100X

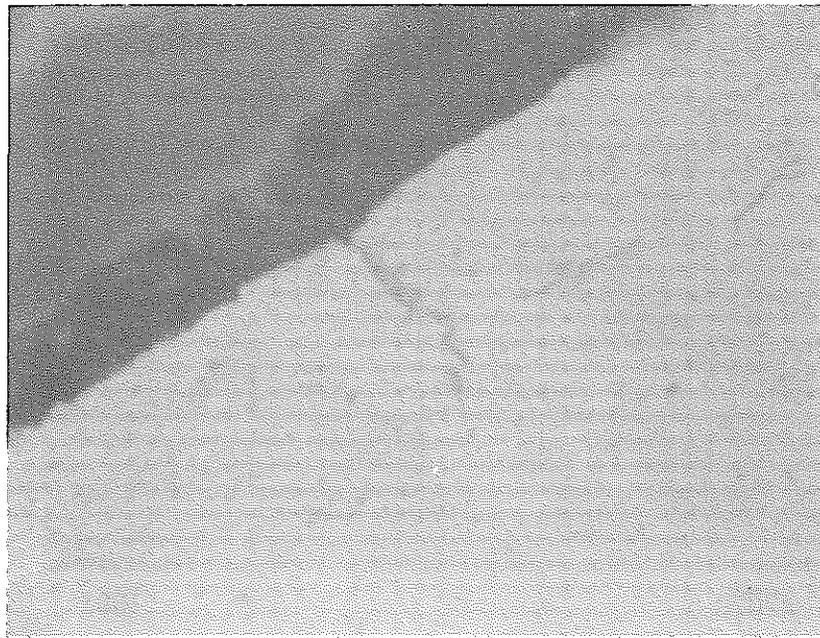
Fig. 4-71 JBP-122の下部から95インチの位置における初期被覆管クラックのマイクロ写真(エッチング)



42189 & 42190

550X

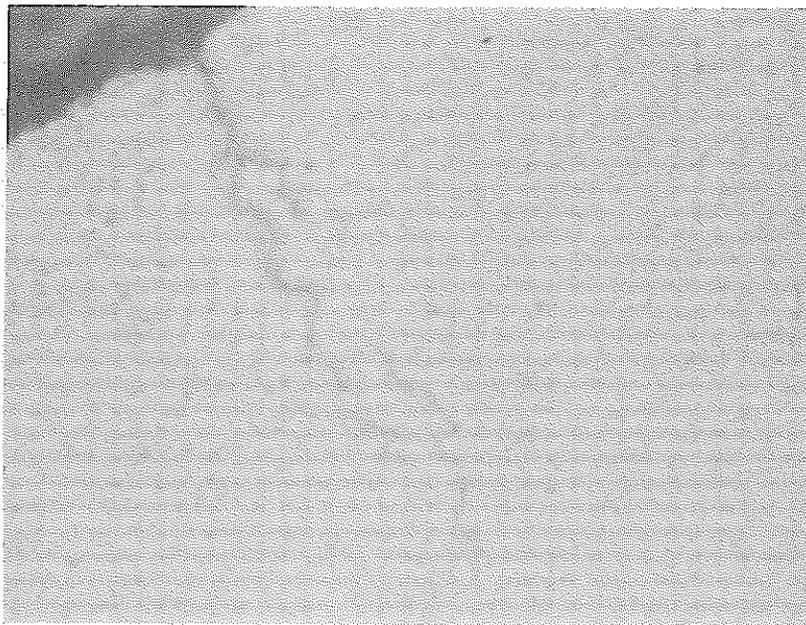
Fig. 4-72 Fig. 4-71に示されているJBP-122の初期被覆管クラックNo.1の詳細(エッチング)



42082

550X

Fig. 4-73 Fig. 4-71に示されているJBP-122の初期被覆管クラックNo.2の詳細(エッチング)



42081

550X

Fig. 4-74 Fig. 4-71に示されているJBP-122の初期被覆管クラックNo.3の詳細(エッチング)

に使われている超音波技術によって容易に検出されるので、これらの初期クラックが製造中に存在していたとは考えにくい。製造中の欠陥は半径方向に対してある角度を有している傾向にある。最も重要なことは、これらのクラックはすべてペレット境界で生じており、もしそれらが製造中に存在していたのであればあまりにも位置が一致し過ぎている。

4.8.3.3 UO₂ 微細組織の特性化

被覆管内表面上の欠陥を調査するために切断された横断面金相試料のほとんどは、UO₂ の微細組織を特性化するための試験も行なわれた。追加の試料がこの目的のために特に選ばれた。切断位置および燃料棒に関するその他のデータが Table 4-13 に示されている。この表に示されているように、高いガス放出率を示したすべての燃料棒では等軸晶の成長および結晶粒界の核分裂ガス気泡 (bubble) が観察された。これらの組織は、燃料が比較的高い温度で運転されたことを示している。低いガス放出率を示した燃料棒 (JBY-142 および JBY-157) から採取された試料は、それらの出力履歴が高いガス放出率を示した燃料から採取された試料と類似していたにもかかわらず有意な結晶成長を示していなかった。外観上のこの差異は、Fig. 4-75 に示されている JBP-005 の最高燃焼度領域の微細組織の合成写真を Fig. 4-76 に示されている JBY-157 のそれと比較することによって表わされている。

破損した燃料棒 (例えば、JBP-003) から採取した試料も等軸晶の成長を示していた。これは高いガス放出率を示した燃料棒と一致しているが、結晶成長は水が侵入した後で燃料がより高い温度で運転されたことに起因しているのかも知れない。

高いガス放出率を示した燃料には等軸晶の成長が伴うことがはっきりしたので、等軸晶成長領域の軸方向の範囲を決定するために試料が採取された。これらには JBP-005 および JBY-097 の下部から 6 インチおよび 128 インチの位置で採取された試料が含まれていた。

JBY-097 から採取された 2 つの試料は、ある程度の等軸晶成長を示していた。JBP-005 においては、下部から約 10 インチのところではそのような結晶成長を示していたが、下部から 6 インチのところでは結晶成長は観察されなかった。しかし、下部から 128 インチのところでは結晶成長が観察された。後の 2 つの切断面の合成写真が、それぞれ Fig. 4-77 および 4-78 に示されている。Table 4-13 に載っているほとんどの試料の等軸晶成長半径が測定*され、Fig. 4-79 に軸方向位置の関数としてプロットされている。この図から、高いガス放出率を示した典型的な燃料棒においては、等軸晶の成長は燃料スタック長さの約 90% および燃料体積の 25% 以上にわたっていると見積られる。

* 等軸晶成長の境界を定めるための規準は、第 6.4 節に示されていると共にそこで考察もされる。

Table 4-13 UO₂微細組織の特性化結果

マウント 番号	燃料棒 番号	ガス 放出率	燃料棒平均燃 焼度の計算値 MWD/MTU	軸方向 位置*	備 考
<u>第1キャンペーン</u>					
X-339	JCN-199	高	12,842	92-7/16	等軸晶成長**
X-341				49-3/32	
X-340				87-3/4	
X-342	JBP-005	高	13,231	94-7/16	等軸晶成長
X-343				37-11/16	
X-358				24-1/8	
X-359				16-1/4	
X-360				10-7/8	
X-330	JCN-182	高	12,635	78-1/2	等軸晶成長
-	JBP-027	高	12,826	59-1/4	等軸晶成長
X-345	JBY-157	低	12,935	96	等軸晶成長なし
X-332	JBY-142	低	12,321	89-13/16	等軸晶成長なし
X-344	KCA-109	(破損)	9,661	89	等軸晶成長
<u>第2キャンペーン</u>					
X-411	HBU-169	高	12,410	50-1/8	等軸晶成長
X-413	JBP-005	高	13,231	6	等軸晶成長なし
X-414	JBP-005	高	13,231	128	等軸晶成長
X-422	JBY-097	高	13,349	6	等軸晶成長
X-426	JBY-097	高	13,349	128	等軸晶成長
X-419	JCN-196	高	12,904	75-5/8	等軸晶成長
X-415	JBP-003	(破損)	13,629	84-1/16	等軸晶成長
X-416	JBP-003	(破損)	13,629	18-1/4	等軸晶成長

* 燃料棒下部からインチで表わしたもの

** 結晶成長領域の中心部に結晶粒界核分裂ガス・バブルが存在するということで定義された。

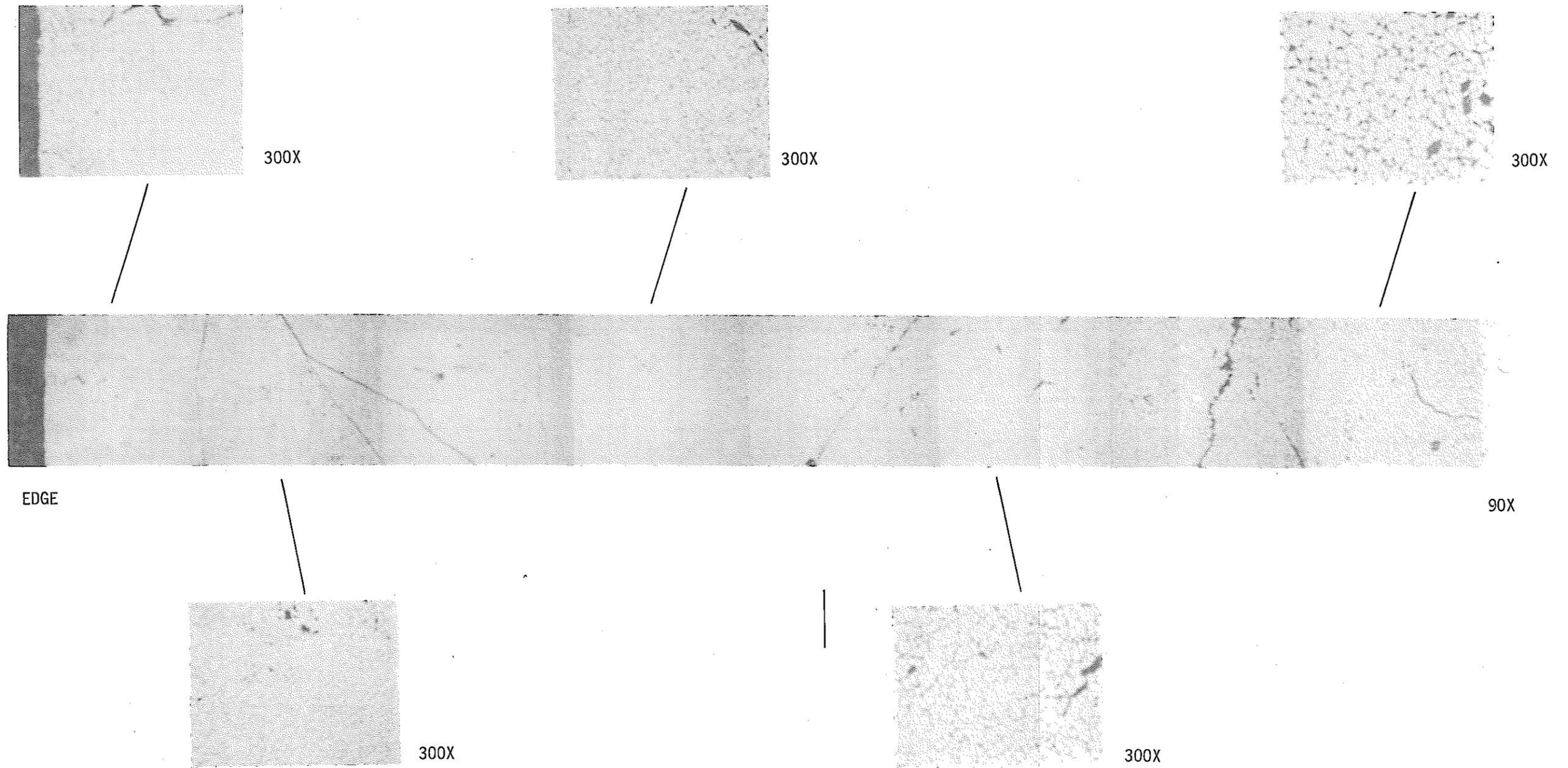


Fig. 4-75 等軸晶成長を示している, JBP-005の下部から94-7/16
 インチの位置における UO_2 の微細組織

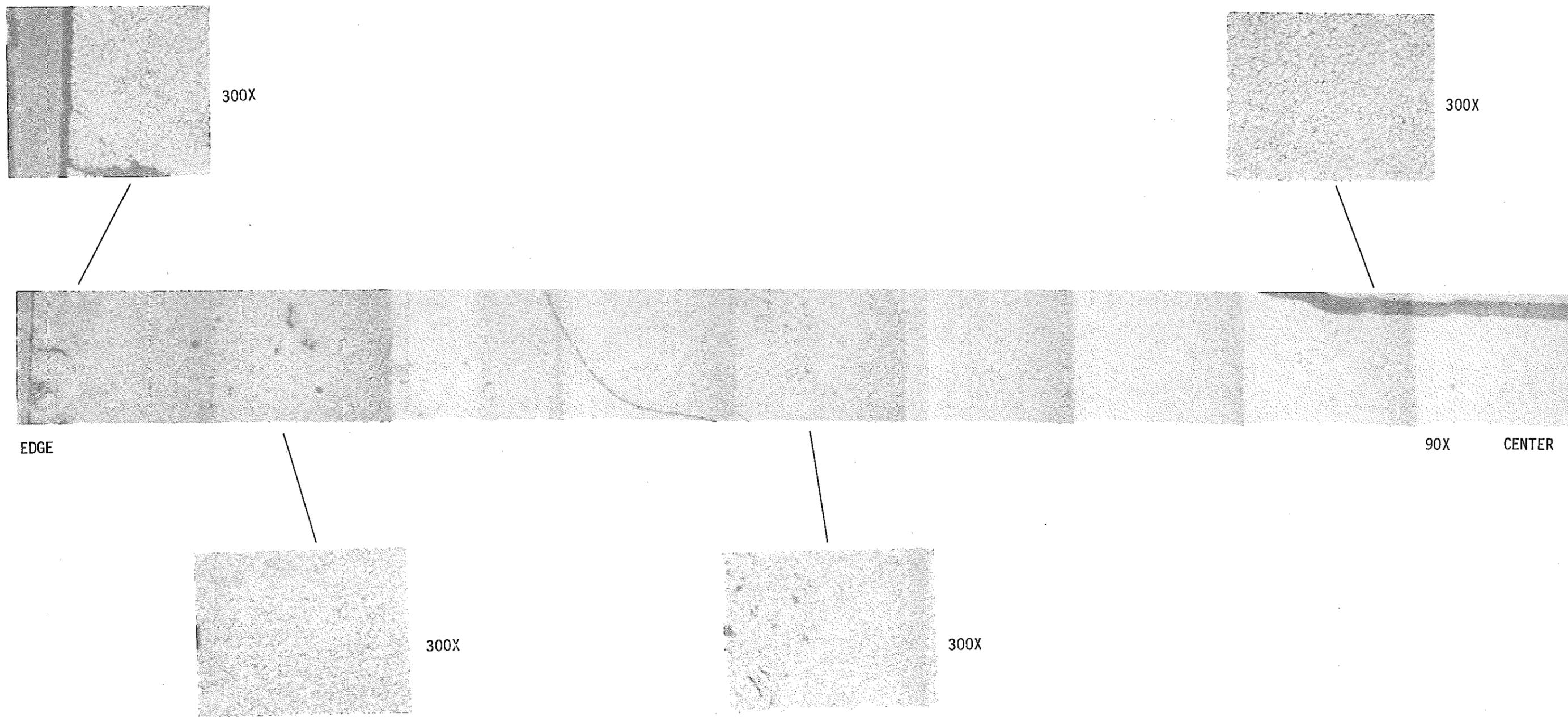


Fig. 4-76 組織変化を示していない, JBY-157の下部から96インチの位置における UO_2 の微細組織

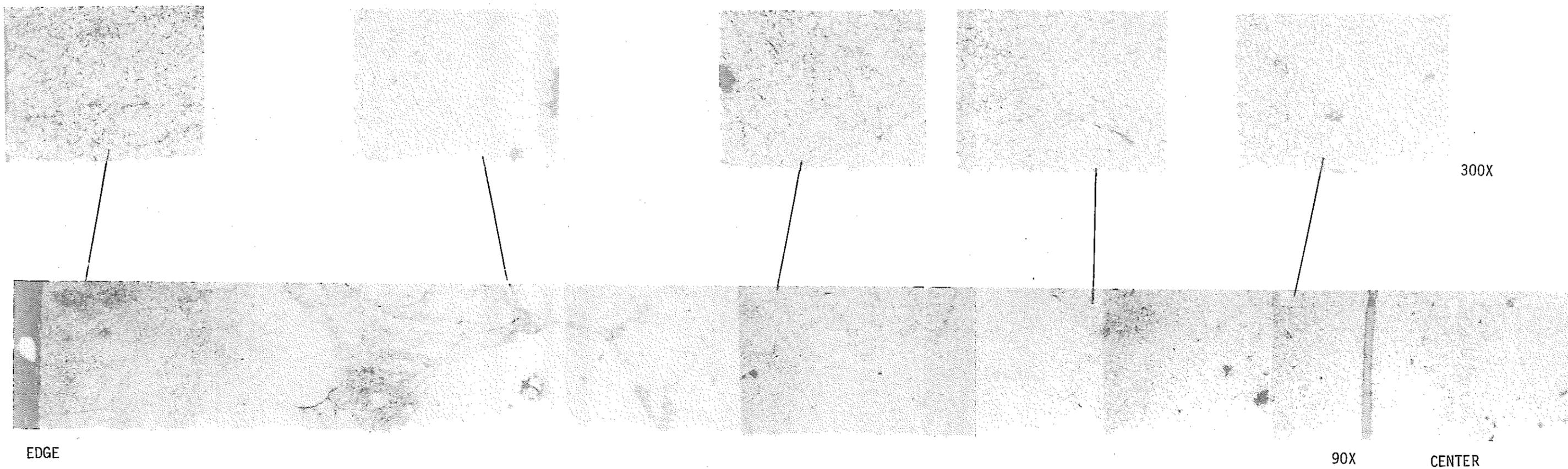


Fig. 4-77 等軸晶成長を示していない, JBP-005の下部から6インチの位置におけるUO₂の微細組織

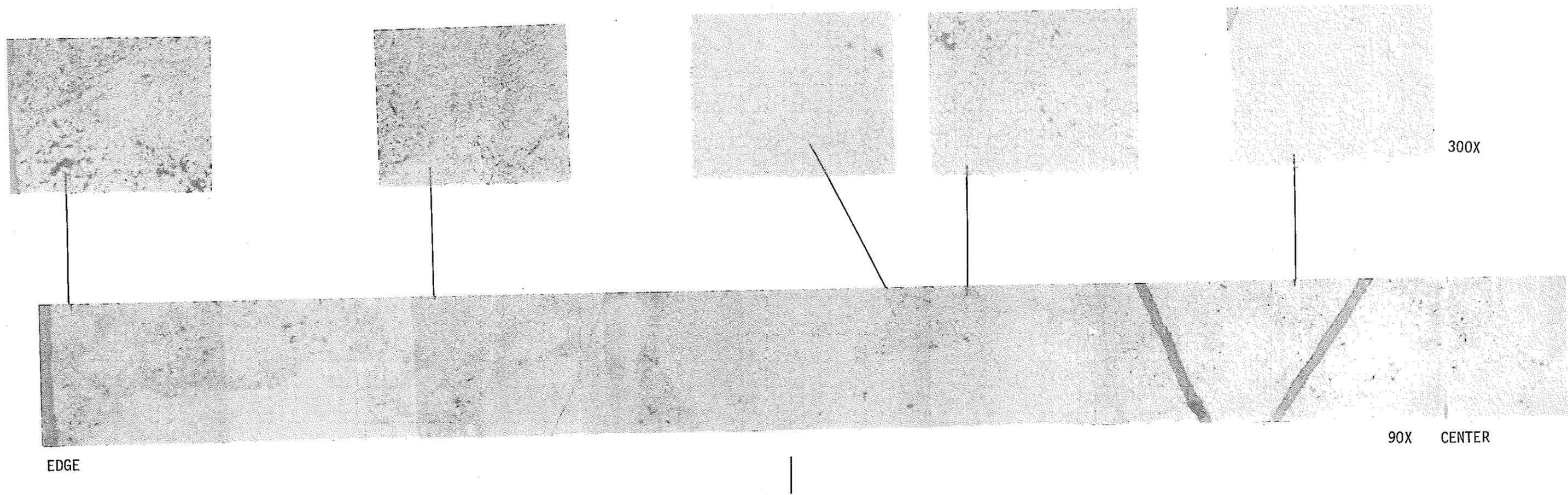


Fig. 4-78 等軸晶成長を示している, JBP-005の下部から128インチの位置における UO_2 の微細組織

RADIUS OF EQUIAXED GRAIN GROWTH, INCHES

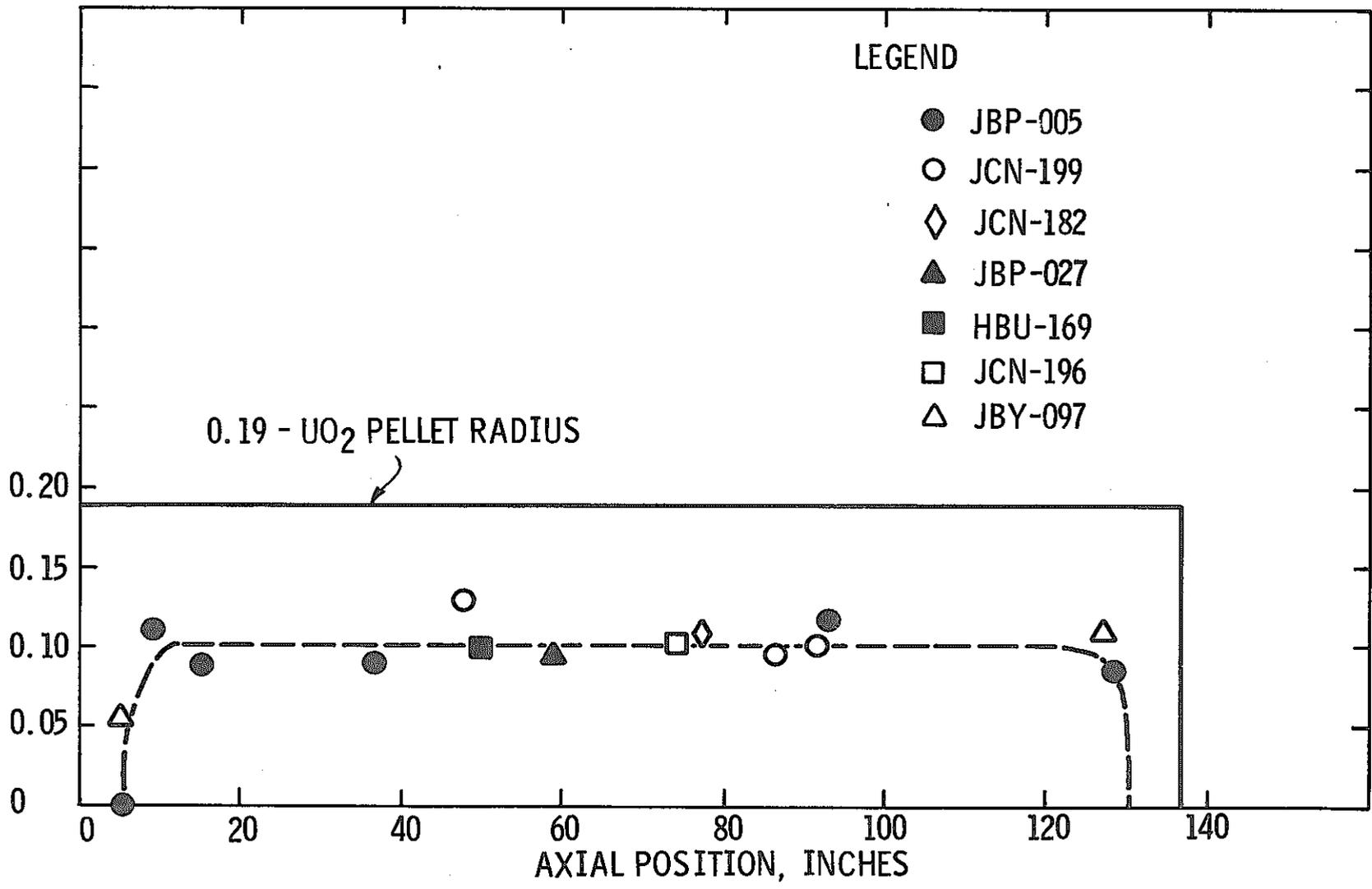


Fig. 4-79 高ガス放出率燃料棒における等軸晶成長の範囲

8.4.3.4 被覆管の特性化

A. 酸化ジルコニウム皮膜の厚さ測定

高燃焼度燃料棒から採取した試料のいくつかについて、酸化ジルコニウム皮膜の厚さの測定値が被覆管の内外表面断面の500倍の写真を用いて得られた。Fig. 4-80は被覆管の外表面上の酸化皮膜の典型的な外観を示している。外表面上の酸化皮膜に対して得られた測定値は0.08から0.22ミル(2から5.6マイクロン)の範囲であったが、大部分の値は0.1ミル(2.5マイクロン)であった。これらの値は、被覆管外表面の平均温度が600°F(315.6°C)であると仮定すると、PWR中(炉外は勿論)のジルカロイ-4に関して報告(5)されている典型的な長期腐食速度と良く一致している。

被覆管の内表面については、Fig. 4-81に示されているように、燃料と被覆管の接触が明らかであるところだけで測定可能な酸化皮膜が見られた。他の部分では、500倍に拡大しても酸化皮膜は検出されなかった。燃料の固着が生じている部分の酸化皮膜の厚さは0.16から0.24ミル(4から6マイクロン)の範囲であった。これはYankee Roweの第V炉心の燃料棒(ここでは、仕様限界以上のペレットが存在したため燃料と被覆管の接触が起った)で観察された酸化皮膜の厚さ(6)と同程度である。

B. 被覆管中の水素濃度

多くの金相試料に対してエッチングした状態で観察を行ない、被覆管中の水素濃度を評価した。観察の結果、水素化物は一般にランダムに分布しており、濃度も低いということが分った。Fig. 4-82は被覆管中に観察される水素化物の典型的な外見を示している。被覆管中の水素の量は、すでに報告されている金相写真(7,8)との比較に基づいて、顕微鏡写真から60-70ppmであると見積られた。冷却材からの水素吸収量(約50ppm)は、その時間と温度においてジルカロイ-4被覆燃料棒に対して予想される値(5)と一致している。

JBP-027燃料棒から採取された試料の1つでは、Fig. 4-83に示されているように被覆管の内表面で水素化物が半径方向に配向しているのが分った。全体的な水素化物の濃度はFig. 4-82に示されているものと同程度である。水素化物が半径方向に配向しているのは、被覆管中に局所的な配向応力(directional stress)が生じた結果であるかも知れない。

4.8.3.5 破損した燃料棒の金相試験

初期被覆管破損(initial clad perforation)の原因と結果をはっきりと区別することが難しかったので、第1キャンペーンにおける破損燃料棒の金相試験は、破損したバッチCの燃料棒で(加圧試験の後に)検出された唯一の被覆管割れ(cladding breach)の近くの燃料-被覆管領域の調査に限定された。Fig. 4-84および4-85に示されている破損部の写真は、水素化アタックの終りの段階の特徴を示している。すなわち、被覆管の外表面の近く

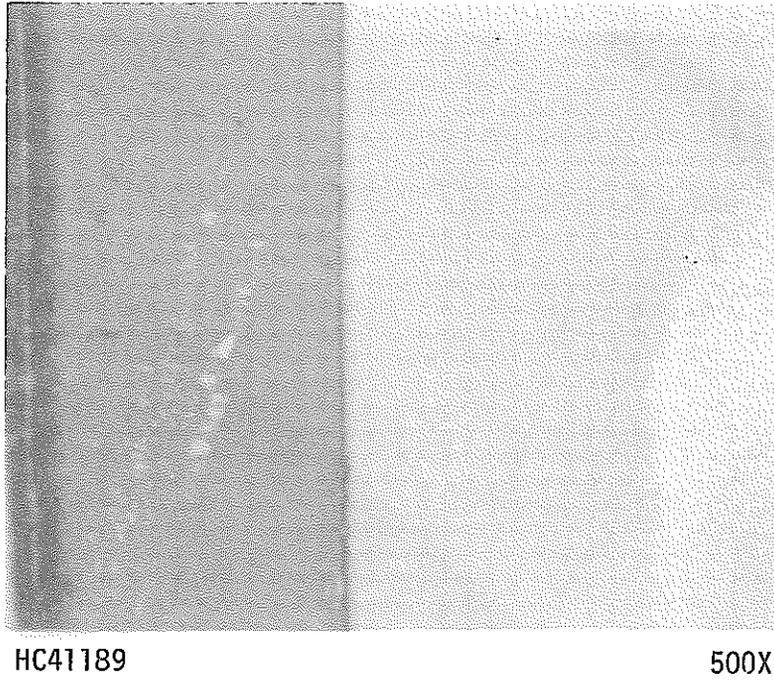


Fig. 4-80 マウントNo.X-330の被覆管外表面上にあるZrO₂層の外観（研摩のまま）

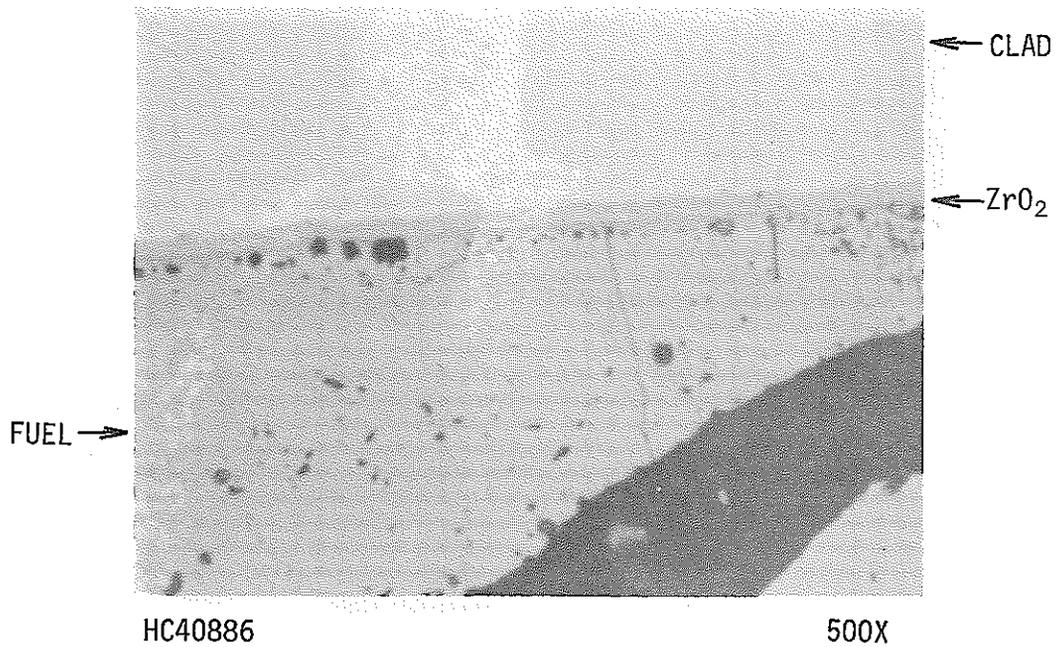


Fig. 4-81 燃料 - 被覆管ボンディング位置から採取したマウント X-331の被覆管内表面上にあるZrO₂層の外観（研摩のまま）

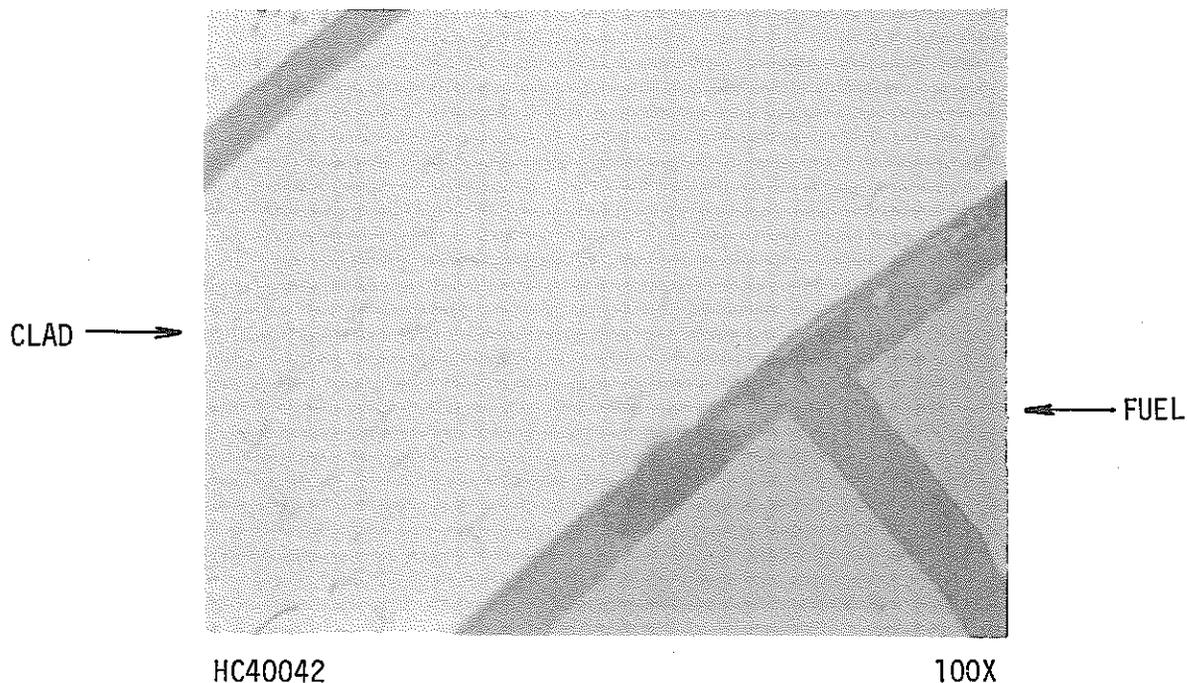


Fig. 4-82 JBP-027 から採取した試料中の水素化物の典型的な外観 (エッチング)

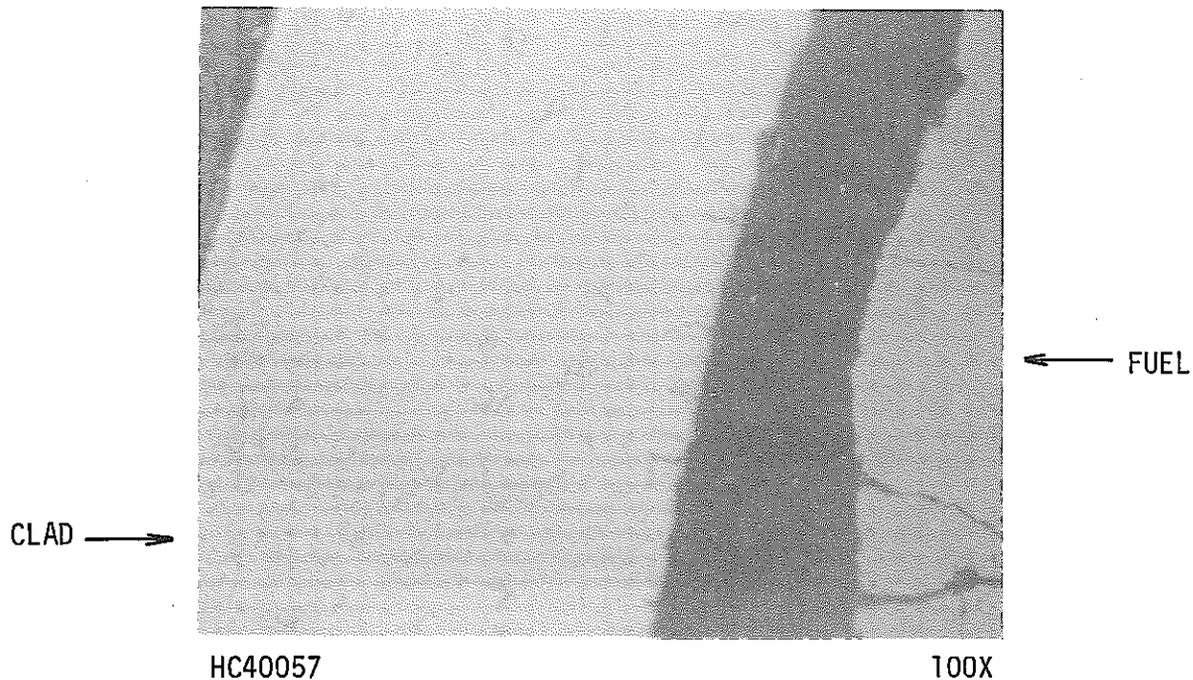


Fig. 4-83 JBP-027 から採取した試料中の被覆管内表面の半径方向水素化物の外観 (エッチング)

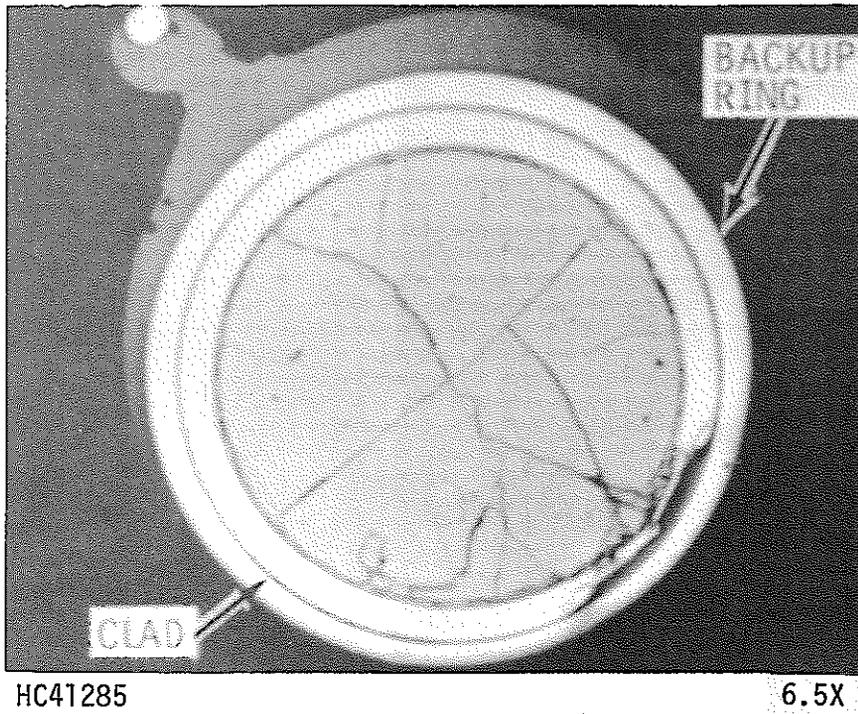
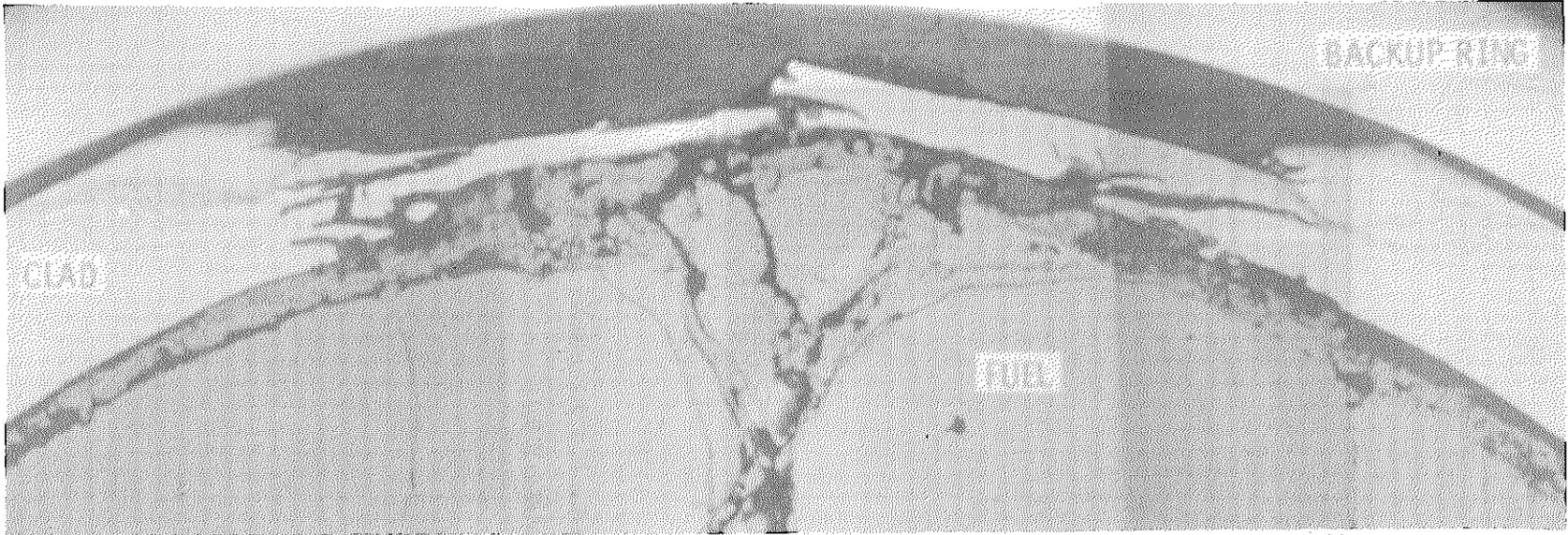


Fig. 4-84 KCA-109から採取したマウントNo X-344における破損部のマクロ写真（研磨のまま）



HC41282, HC41283 AND HC41284

100X

Fig. 4-85 KCA-109から採取したマウントNo.X-344における破損部の詳細

にある末広がり（divergent）形をした固体状水素化物（solid hydride）は、それが最初の内表面に集中していたということを示唆している。これが唯一の被覆管割れ（cladding breach）であり、被覆管のクリープダウンもわずかししか観察されなかった（Table 4-2のKCA-109を参照）ので、燃料棒は一次水素化（primary hydriding）（すなわち、燃料棒の内部にあった水素に起因する局所的なアタック）のために寿命の初期に生じたものと思われる。

第2キャンペーンにおいては、初期クラック（incipient crack）を調べるためにJBP-003燃料棒から採取された2つの試料に対して試験が行なわれた。2つとも初期クラックは見い出せなかった。破損部から7インチ離れた位置で採取した第1の試料は、被覆管の内表面にはげしい水蒸気アタックを示していた。すなわち、被覆管の外表面に水素化物のヘリ（rim）があり、別の位置には2次水素化によるサンバースト（sunburst）の形跡があった。破損部から遠く離れた位置で採取された健全な試料の被覆管は、外表面にある水素化物のヘリを除いて、健全な燃料棒のものと類似していた。

4.9 SEMによる被覆管クラックの特性化

JBY-097燃料棒の下部から88インチの位置にあった被覆管クラックの金相試験の後で試料をマウントから取り出し、SEMによる破面観察試験（fractographic examination）を行なうためにクラックを開いた。Woodらによる研究(9)によって、ジルカロイの破壊パターンを特性化することによって応力腐食の場合は特に破壊の原因の証拠が明らかになるということが示された。

4.9.1 手順

試料調整は次の手順で行なわれた。

1. 固定用エポキシ樹脂を氷酢酸に溶かすことによって燃料-被覆管試料をマウントから取り除いた。
2. 取り出した被覆管の試料を湿式の切断機で3/8インチの長さに切断した。
3. 次に被覆管を90-270度の面で宝石用ノコ（jeweler's saw）を使って切断し、軸方向に切開した。切断後、内表面を目視で観察したが、クラックは肉眼ではほとんど見ることができなかった。
4. SEMの方に移すため、試料の表面を洗浄剤を入れた水溶液中で繰返し超音波洗浄し、最後にアルコール中で超音波洗浄することによって汚染を取り除いた。
5. 次に3点支持荷重をかけることによってクラックを開いた。この時点で、クラックは十分に開き2つの小片が薄い帯でつながっているだけだった。この薄い部分をプライヤーで切断した。
6. その2つに分割された試片を細工用粘土に固定し、導電性の面を形成するために“Dag”

(アルコール中にグラファイトを混入した懸濁液)をその粘土に塗布することによって、別々の SEM 用試料ホルダーにマウントした。次に試料の破断面を SEM で観察した。

4.9.2 SEM 観察の結果

破断面の全体像が Fig. 4-86 の SEM 写真に示されているが、その中に詳しい調査に供された部分が 1 点鎖線で示されている。破断面の低倍率試験の結果、4 つの分離されたゾーンのあることが示された。被覆管の内表面から外表面に向かって、ゾーンの状態は以下の各項に記述されるとともに Fig. 4-87 に示されている。

1. 被覆管内表面に隣接しているクラック面は、炉内環境あるいは金相試験の一部として使われた酸化性のエッチング液のどちらかから来た酸化剤との接触に帰着させられる表面の特徴を示している。
2. 次のゾーンは被覆管中に最初からあった (original) クラックである。この破断面は酸化を受けていないように見え、Wood ら(9)によって観察された平らな劈開面を示しており、炉外試験に基づくジルカロイのヨウ素による応力腐食に帰着させられる。
3. 3 番目のゾーンは最初からあったクラック面とははっきりと違った破断面を有している。これは最初のクラックを機械的に押し開いたことによって生じた破断ゾーンであり、そのような割れの (cracking) プロセスに関連した延性ディンプリング (dimpling) によって特徴づけられる。
4. 最後のゾーンは、クラックを分離するために最終的にプライヤーで切断した領域に該当するこすられた表面である。

観察の結果、最初からあったクラックは被覆管内厚の約 50 % に達しており、軸方向の長さも約 3/16 インチであることが分った。

破断面の全般的な観察の後で観察の焦点は第 2 のゾーン、すなわち最初のクラックの酸化された部分からクラック先端までの領域に当てられた。Fig. 4-88 から 4-91 に示されているように、この部分はリバー・パターン (river pattern) といくつかの縦みぞ (fluting) を有する粒内劈開を示している。Fig. 4-92 から 4-94 に示されている顕微鏡写真のステレオペア (stereo-pair) によって、粒内劈開および延性ディンプリングの完全な存在が実証されている。これは、ヨウ素による応力腐食割れ (SCC) によって炉外で引き起こされた破断面と類似の形状を有している炉内での被覆管クラックの特徴として Wood ら(9)および Garlick(10)によって報告された破断と同じタイプである。この点について、ジルカロイの SCC に関する Cox および Wood のレビュー(11)を引用することは価値のあることである。

“ジルカロイに発生した SCC の独特の示標である唯一の特徴は平らな劈開面である。その他の条件 (例えば、低温における破断、照射後の低延性引張破断) ではジルカロイに劈開は生じない。機械的に引き起こされた破断面は常に延性の特徴を示している。”



23X

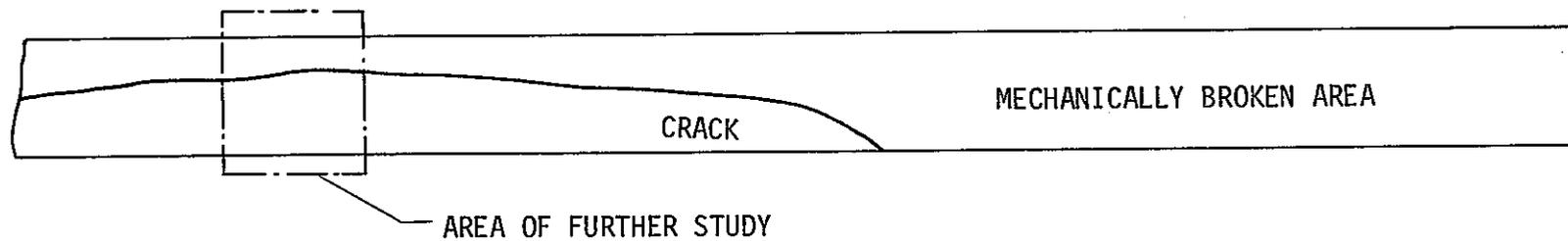


Fig. 4-86 JBY-097の下部から88インチの位置から採取した破断部のSEM写真

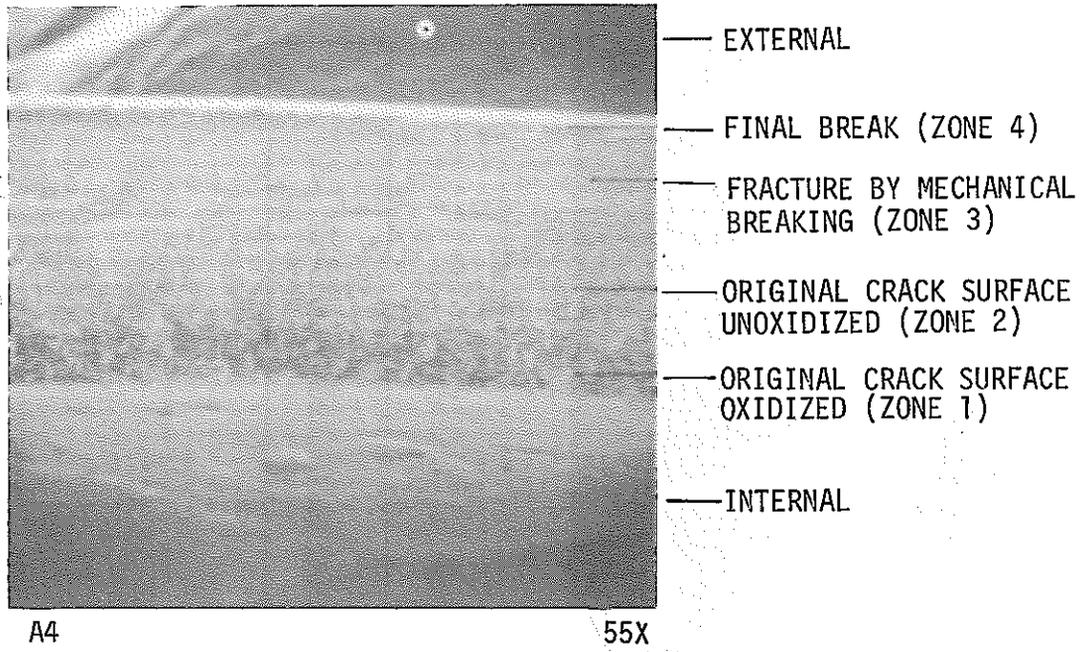


Fig. 4-87 破断部の低倍率SEM写真

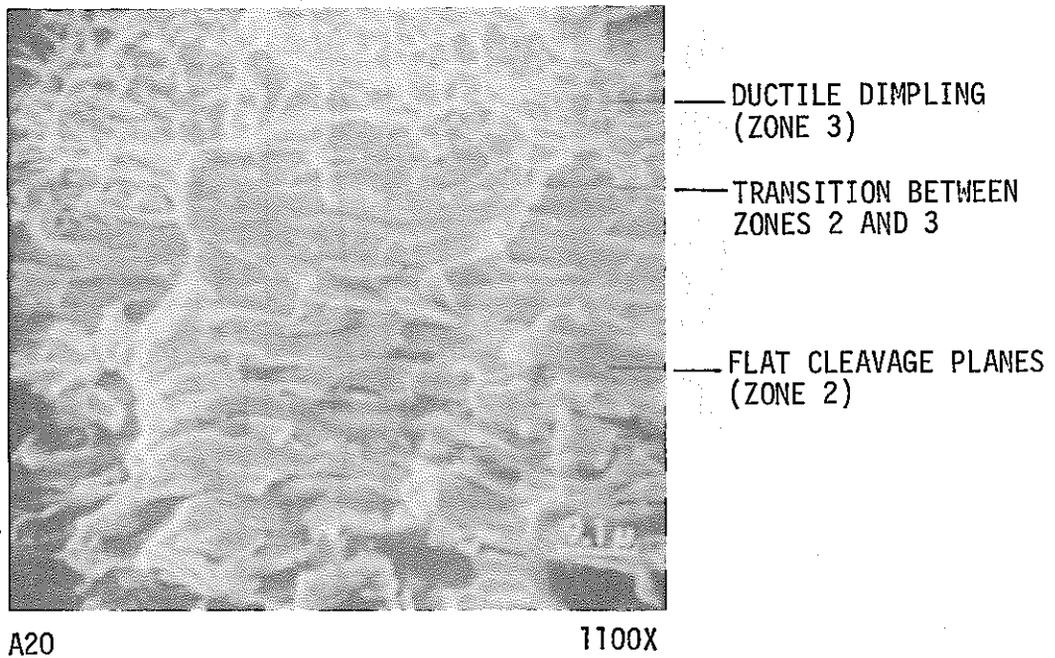
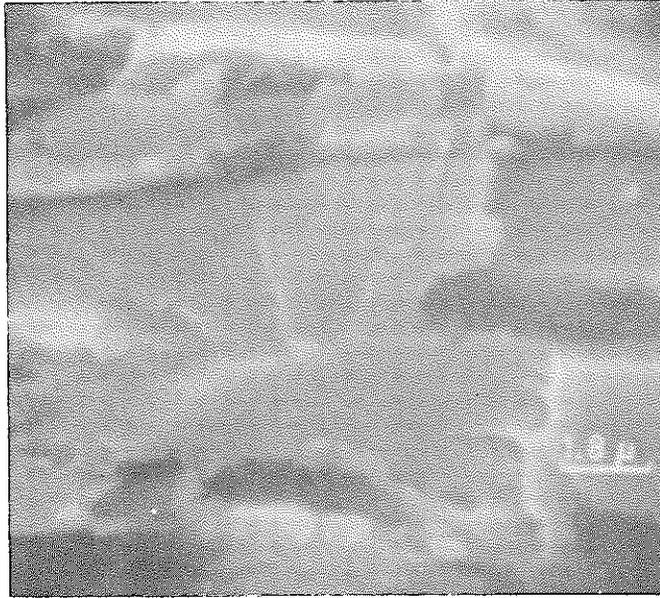


Fig. 4-88 クラック先端における破断面



A21

5500X

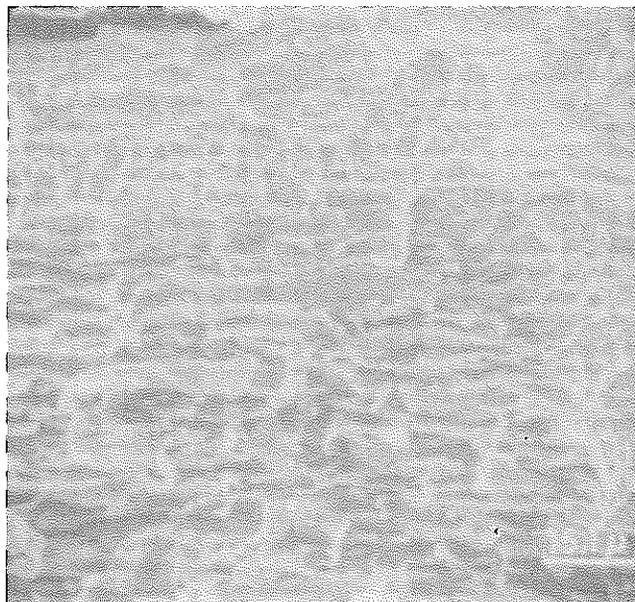
Fig. 4-89 Fig. 4-88の中心部の拡大写真



A18

2200X

Fig. 4-90 第2および第3領域の間の遷移部の拡大写真



B9

650X

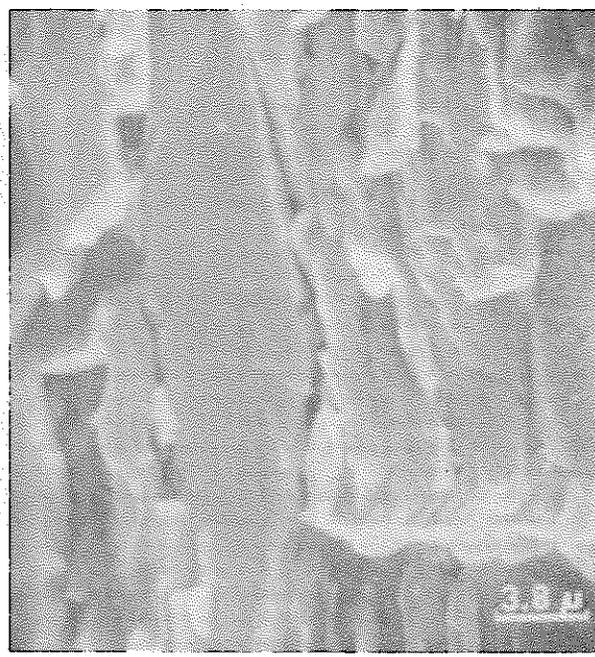
Fig. 4-91 クラック先端における破断面



B11

LEFT

2600X



B10

RIGHT

2600X

Fig. 4-92 Fig. 4-90を90度回転した中心部の高倍率ステレオ・ペアー

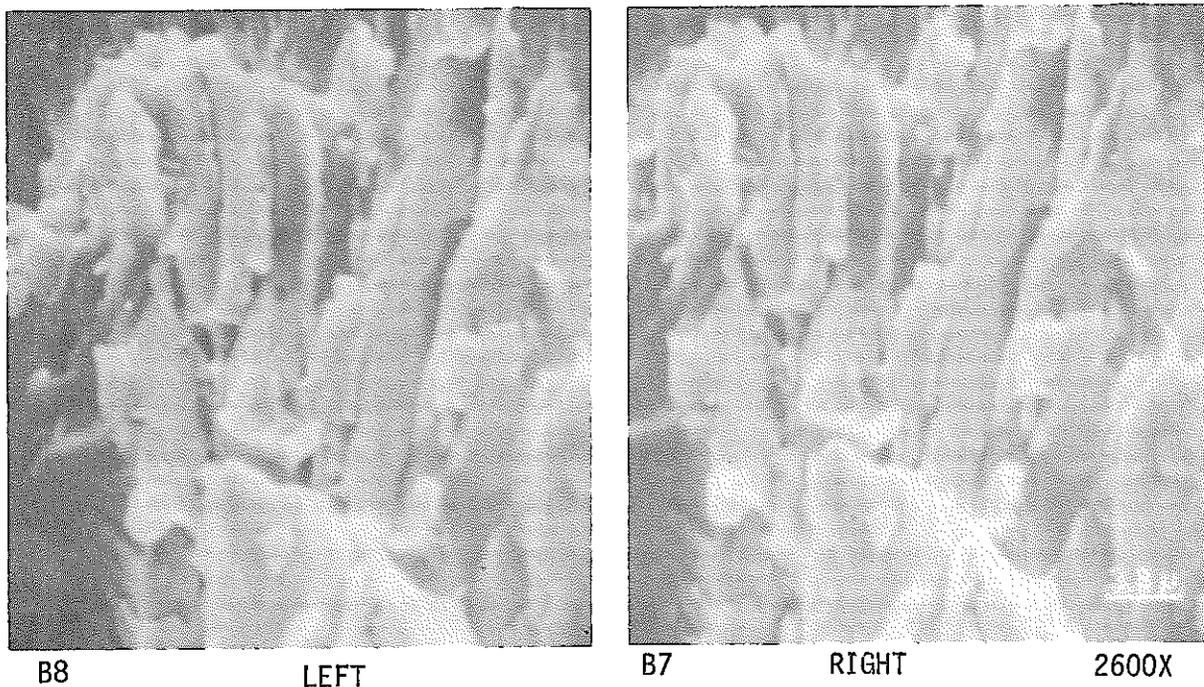


Fig. 4-93 劈開を示している第2領域のステレオ・ペアー

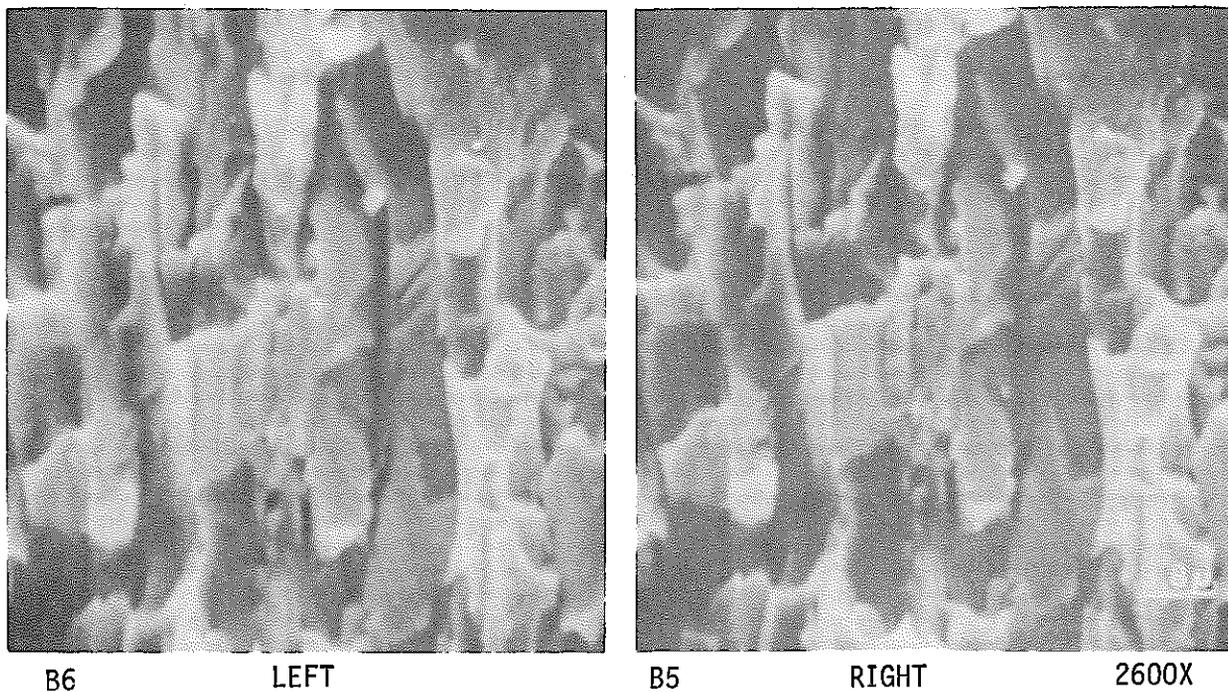


Fig. 4-94 リバー・パターンおよび劈開を示している第2領域のステレオ・ペアー

したがって、これらのSEMによる観察結果は、SCCがJBY-097の下部から約88インチの位置で見出された被覆管クラックの原因であるという強い証拠を構成している。

Table 4-14に、Maine YankeeのバッチBの健全で高いガス放出率を示した3本の燃料棒で見出されたすべての被覆管内面クラックの特徴をまとめて示す。すべての場合に、被覆管クラックはペレット境界またはその近傍で観察された。さらに、すべての被覆管クラックはペレットのクラック部またはその近傍にあった。最も重要なことは、すべてのクラックは外見上類似しており、このことは同一の原因を示唆している。SEMによる観察ならびに双晶(twinning)やすべり(slip)のない粒内割れを示している光学顕微鏡による観察結果に基づいて、応力腐食によって助長されたペレット-被覆管相互作用がこれらの初期クラックのすべてを引き起こしたのだと思われる。他の研究者達(9, 10, 11)による研究はSCCの機構に関与している化学種としてヨウ素を指摘しているが、ヨウ素の役割はまだ決定的に立証されていない。この計画において被覆管の内表面にセシウムおよびテルルの再分布が観察されたことによって、その他の活性な(aggressive)化学種がSCCの機構に関与している可能性が出て来た。

4.10 燃料-被覆管反応領域のエレクトロン・マイクロプローブ分析

4.10.1 範囲

第4.8節で述べられたように、高いガス放出率を示した燃料棒から採取した試料の金相試験中に燃料-被覆管のボンディングがしばしば観察された。ボンディング部は異なった灰色(すべてが UO_2 、燃料よりも暗い)によって特性づけられる種々の相(phase)を示していた。ANLにおいて、切開した被覆管の内表面に対する特定同位元素のガンマ・スキャンおよびこれらの表面に付着している物質のX線スペクトロメトリが行なわれた結果、わずかのヨウ素およびテルルの他にセシウム、ウランおよびジルコニウムが主な元素であることが分った。金相試験で観察された燃料-被覆管のボンディングにこの物質の一部が含まれていることは明らかである。典型的な燃料-被覆管反応領域の化学組成をより完全に特性化するために、3つの試料に対してエレクトロン・マイクロプローブ分析が行なわれた。第1キャンペーンでは、JCN-199から採取した試料の定性分析が行なわれた。第2キャンペーンでは、JCN-196およびJBY-097から採取した各々の試料に対してもっと定量的な分析が行なわれた。

4.10.2 手順

横断面金相試料に最初に炭素の薄い層をコーティングし、それらを導電性にした。次いでそれらの試料を以下の手順の組合せで試験した。

1. 関心のある領域の選ばれた点に存在する元素を同定するための 2θ スキャン。(原子番号が31から35の元素(Ga, Ge, As, Se およびBr)を除いて、原子番号が14(Si)から

Table 4-14 Maine Yankee の健全なバッチ B 燃料棒における被覆管内表面
クラックの特徴のまとめ

	燃 料 棒 番 号		
	JBP-005	JBY-097	JBP-122
集合体/燃料棒位置	B042/E11	B069/C13	B042/C13
核分裂ガス放出率, %	12.7	13.4	11.3
クラックの軸方向位置*	94.21-94.30	88.035	94.895
その位置における燃焼度 MWD/MTU	14,850 (測定値)	15,800 (計算値)	15,800 (計算値)
その位置における最大定常 状態出力, kw/ft	約8.35	約8.7	約8.7
<u>コメント:</u>	<ol style="list-style-type: none"> お互いに隣接した2つのクラックが観察された。 ペレット境界に大きなクラック(肉厚の約65%)が観察された。 この位置におけるオーバーリティは小さかった(約4.5ミル)。 燃料中に等軸晶成長が観察された。 ペレット・チップの反対側にクラック(燃料は脱落)。 クラックの近傍にわずかの燃料-被覆管ボンディング。 順次研磨を行なうことによってクラックの長さは1/8~3/16インチであると見積られた。 光学顕微鏡観察による特徴は応力腐食割れと一致していた。 	<ol style="list-style-type: none"> ペレット境界に1つのクラックが観察された。 貫通の程度は約50%であった。 最大オーバーリティ領域(約13ミル), オーバーリティの長軸方向の近傍にクラックが観察された。 燃料中に等軸晶成長が観察された。 ペレット・クラックの反対側にクラック。 クラックの近傍で燃料が被覆管に固着。 フラクトグラフィ試験によってクラックの長さは約3/16インチであることが分った。 光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡観察による特徴は応力腐食割れと一致していた。 	<ol style="list-style-type: none"> お互いに隣接した4つのクラックがペレット境界のすぐ近く(1/16インチ以内)に観察された。 貫通の程度は金相面において約25%であった。 大きなオーバーリティ領域(約10ミル), オーバーリティの短軸方向の近傍にクラックが観察された。 燃料中に等軸晶成長が観察された。 ペレット・クラックのすぐ近くにクラック。 クラックの長さは不明。 クラックの近傍において燃料と被覆管の固着はなし。 光学顕微鏡観察による特徴は応力腐食割れと一致していた。
<u>コメント:</u>			

* 燃料棒下部からのインチ

- 94 (Pu) の元素を検出することが可能である。)
2. その領域に存在する元素の相対的な分布を図示するための X線像の作成。
 3. 被覆管から燃料-被覆管ボンディング領域を通過してペレット中心部までの相の組成を決定するための点計数法による定量分析。

4.10.3 結果

4.10.3.1 第1キャンペーン-JCN-199の92-9/16インチの位置から採取した試料

この試料の分析には 2θ スキャンおよび関心のある領域で検出された元素の X線像の作成が含まれていた。 2θ スキャンではウラン、ジルコニウムおよびセシウムだけが検出された。調査した領域の顕微鏡写真およびその領域に存在している3つの元素に対する X線像を Fig. 4-95に示す。

その X線像から、セシウムの濃度は燃料中では低く、明るい灰色をしている反応領域では中位で、ジルコニウムの酸化膜に隣接している暗い灰色の層では高いということが分かる。 2θ スキャンの相対的なセシウム強度から、3つの領域におけるセシウムの量はそれぞれ約1, 2および5重量パーセントであると見積られた。これらの結果に基づいて、被覆管への燃料のボンディングは、高いガス放出率を示した燃料棒の燃料-被覆管境界に再分布したセシウムの存在によって促進させられたということが結論づけられた。

4.10.3.2 第2キャンペーン

A. JCN-196の75-5/8インチの位置から採取した試料

この試料はボンディングを起こした燃料領域の組成を決定するための定量分析を含めて広範な試験が行なわれた。その領域内の1点の 2θ スキャンによってウラン、セシウムおよびジルコニウムの存在が示された。その上、テルルの存在も検出された。第1キャンペーンで行なわれたマイクロプローブ分析から得られた 2θ スキャンの結果に基づくと、テルルの検出は予想されなかった。続いて行なわれたボンディング領域の X線像によって、テルルはただ1箇所の孤立した小さな領域(それは 2θ 分析に供された位置に一致している)だけに集中していることが分った。調査した領域の顕微鏡写真ならびにウラン、セシウム、ジルコニウムおよびテルルの X線像による相対的な濃度を Fig. 4-96に示す。テルルのようにモリブデンも一部分に集中している場所があるかどうかを調べる試みも行なわれた。しかし、全領域にわたってモリブデンの濃度が低すぎ、満足のいく X線像を得ることはできなかった。X線像によって一般に、セシウムは酸化ジルコニウム層に隣接した暗灰色の領域に集中しており、またその他の灰色の領域にもランダムに分布していることが示された。これらの観察結果は、第1キャンペーンで得られたものと類似している。

ウラン、ジルコニウムおよびセシウムの濃度に関する定量的なデータは、試料の断面について点計数を行なうことによって得られた。分析の道筋は被覆管内表面の1点から出発して燃料ペレットの中心に向かって行なわれた。燃料と被覆管の境界領域では、分析された

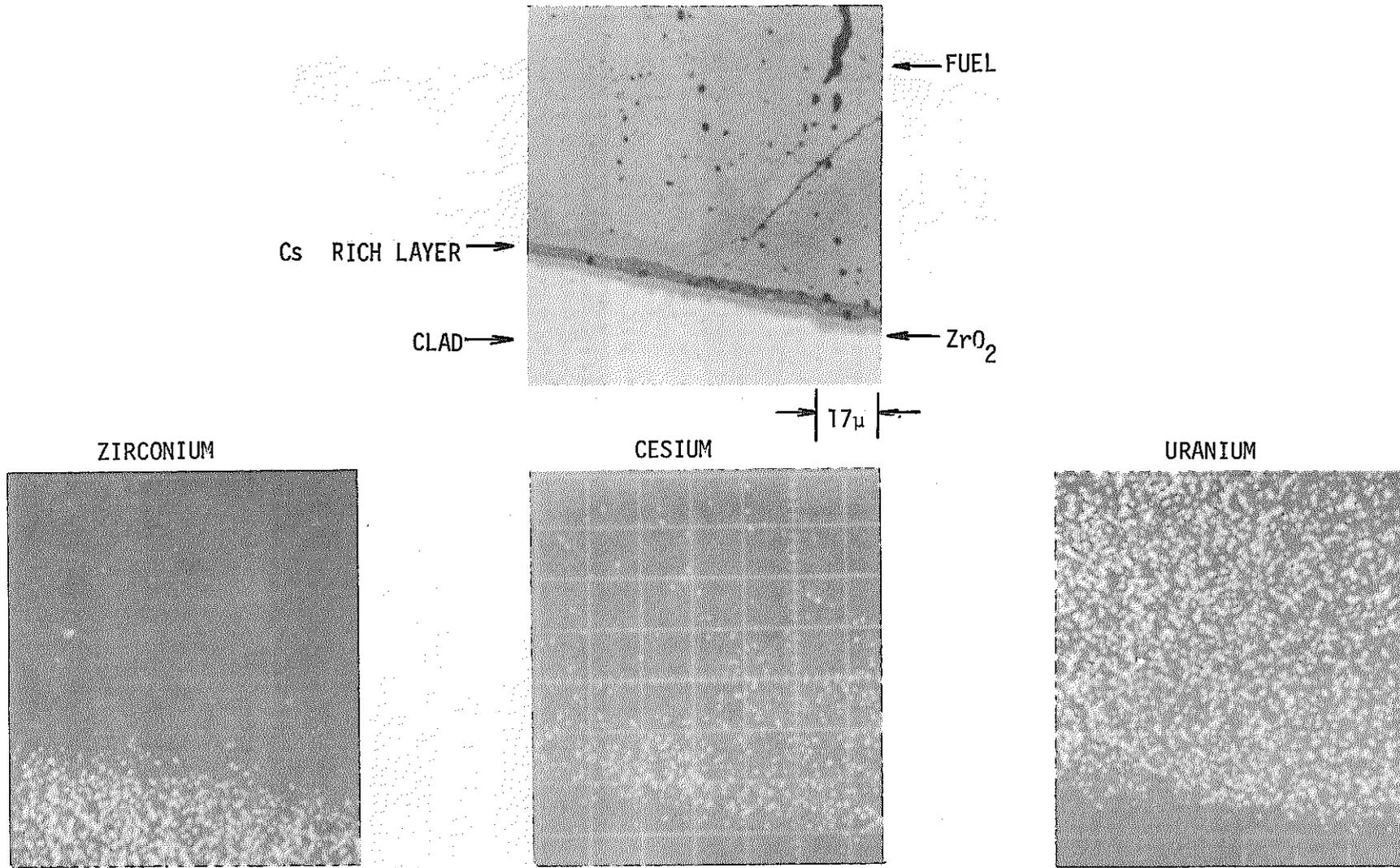


Fig. 4-95 Fig. 4-24 に示されている JCN-199 の下部から 92- 5/16 インチ付近の渦電流信号に関連し、マイクロプローブ分析のために選択されたマウント NaX-339 における燃料-被覆管ボンディング領域。X線像が下の写真に示されている。

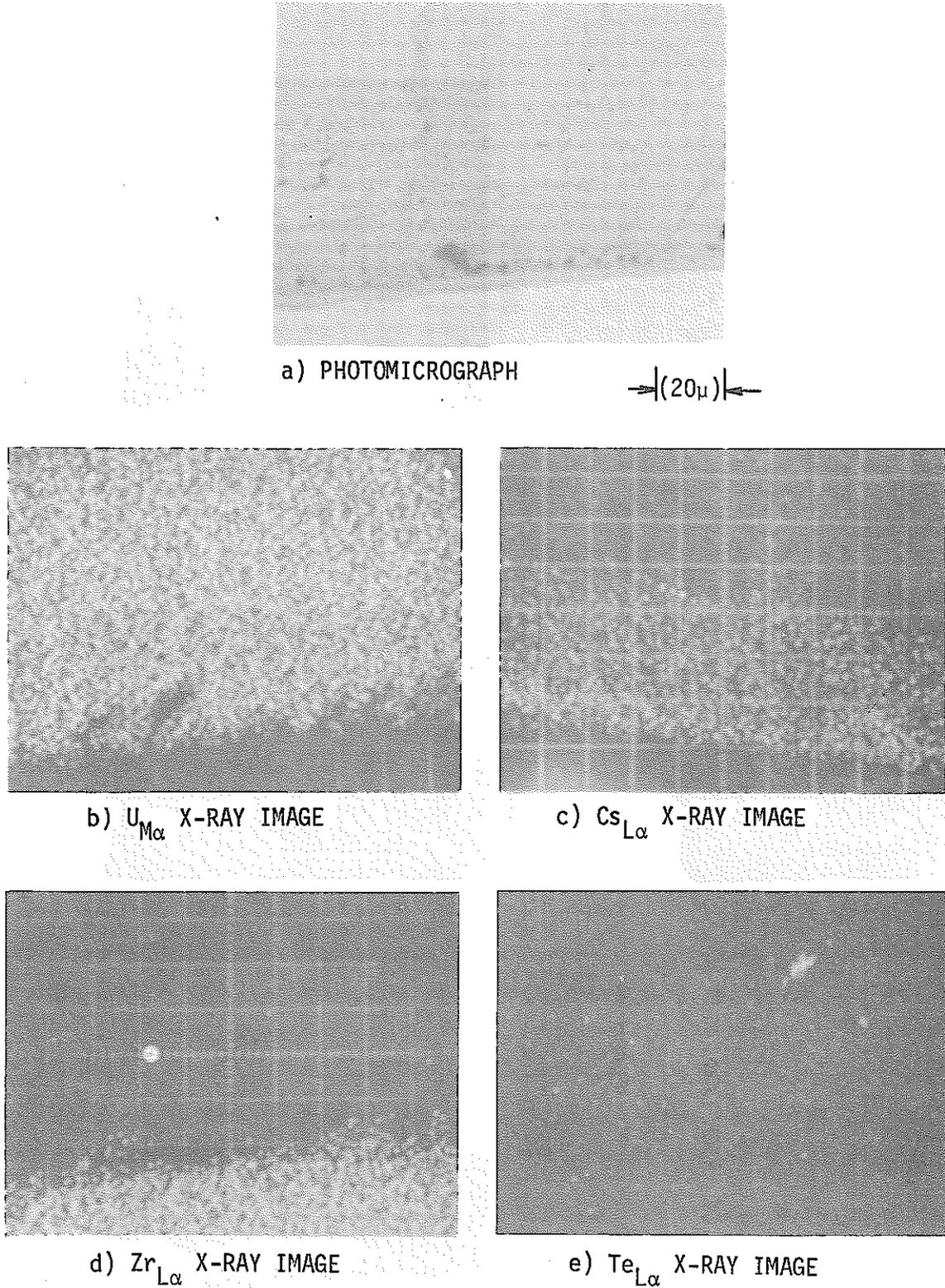


Fig. 4-96 JCN-196の下部から75-5/8インチの位置における燃
燃 - 被覆管ボンディング部のマイクロプローブ分析。その
部分のマイクロ写真およびX線像が示されている。

点は約2ミクロン間隔であった。最も興味のあるこの領域を越えた後では、ステップを10ミクロンに増加し最終的には50ミクロンにした。すべての点における計数時間は10秒であった。

点計数のデータは、MAGICコード（これは試料から得られた計数率を標準試料から得られたものと比較し、マトリックスのX線吸収特性に対して修正する）を使って絶対的な重量率に換算した。ウラン、ジルコニウムおよびセシウムの重量率の合計は常に100%以下であった。差引きの残りは酸素であると仮定された。Fig. 4-97は、燃料-被覆管反応領域における3つの元素の濃度分布を示している。燃料-被覆管反応領域を越えた部分ではジルコニウムおよびセシウムの濃度は無視できる程度であることが分かる。Fig. 4-98は、ペレットの断面における燃料中心までのセシウム濃度の分布を示している。燃料と被覆管の境界の近傍を除いて、セシウム濃度の変化は検出されていない。

B. JBY-097の44-1/8インチの位置から採取した試料

JBY-097の44-1/8インチの位置から採取した試料に対して行なった試験は、2θスキャンを行なわなかったという点を除いて、JCN-196の75-5/8インチの位置から採取した試料に対して行なった試験と同様であった。この場合には、X線像の撮影および被覆管からペレットへかけての点計数に加えて、被覆管に隣接した暗灰色の相の上を円周方向に沿ってわずかに（約55ミクロン）点計数することが行なわれた。点計数分析の道筋をFig. 4-99に示す。

他の試料と同様に、種々の灰色の相においてセシウム、ジルコニウムおよびウランは基本的に同じ相対的な分布であることをX線像は示していたが、テルルは観察されなかった。円周方向に沿っての点計数によって、セシウムおよびウランの濃度はその道筋においてほとんど一定であることが示された。しかし、ジルコニウムの濃度は大きく変動しており、大きなボイドに隣接した部分の右端で最低値を示していた。ペレット断面の半径方向に対して行なった点計数分析は、ウラン、セシウムおよびジルコニウムの濃度分布がJCN-196の75-5/8インチの位置から採取した試料のもと同様であるということを示していた。

4.10.4 結果の考察

上に述べられたマイクロプローブ分析の結果は、燃料と被覆管のボンディングは高いガス放出率を示した燃料棒における核分裂生成物セシウムの再分布によって生じるセシウムに富んだ層と関連しているということを示している。

これまでセシウムの移動（migration）は高い運転温度で高燃焼度まで達した場合に観察されてきた。Neimarkら(12)は、EBR-IIにおける混合酸化物燃料ピンの照射中に核分裂生成物のセシウムが UO_2 ブランケット・ペレットの方に移動したことを観察した。その燃料ピンは

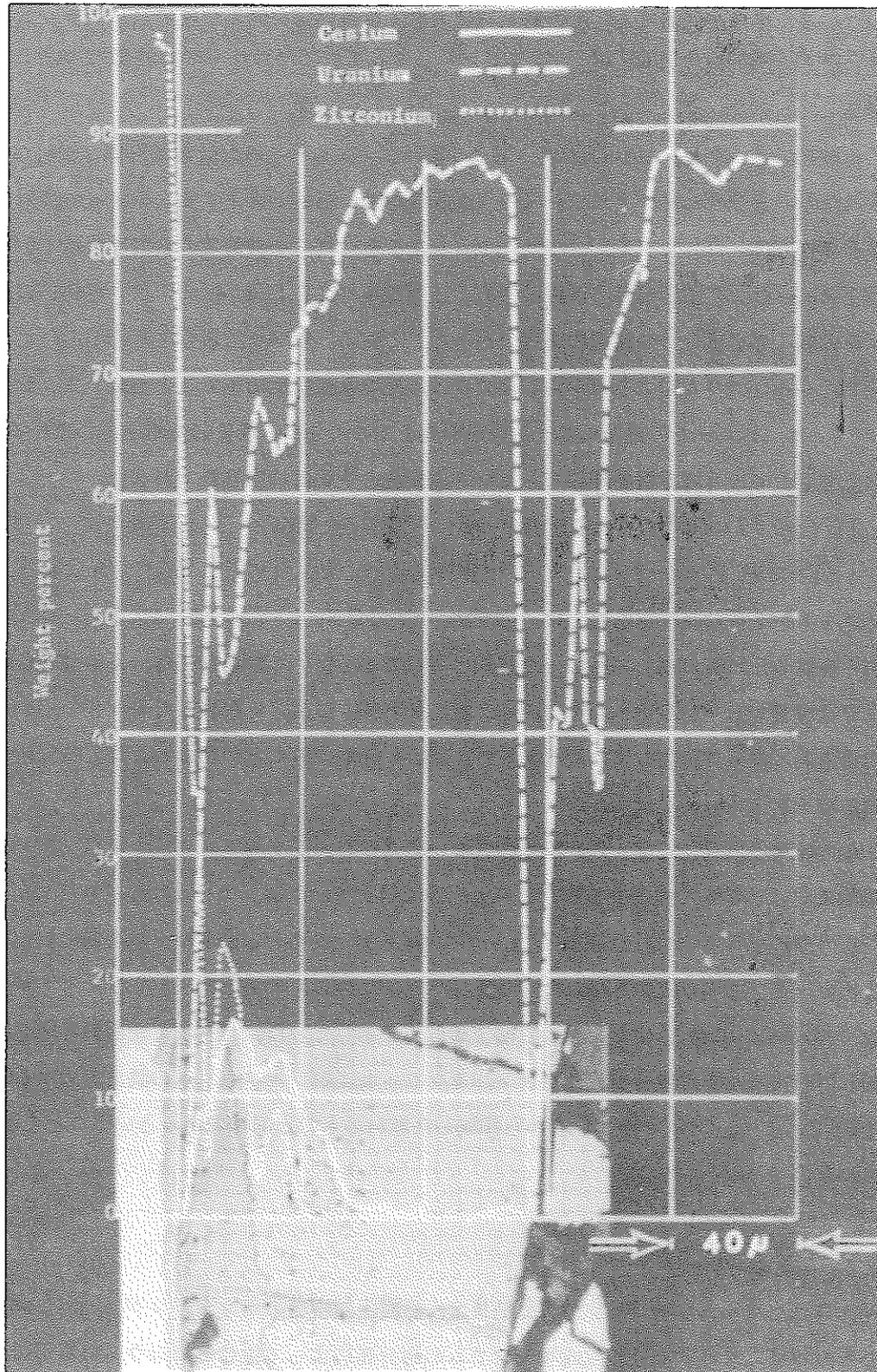


Fig. 4-97 JCN-196の下部から75-5/8インチの位置における燃料-被覆管ボンディング領域のウラン、セシウムおよびジルコニウム濃度のプロファイル。分析の道筋は写真の横軸の位置に対応している。

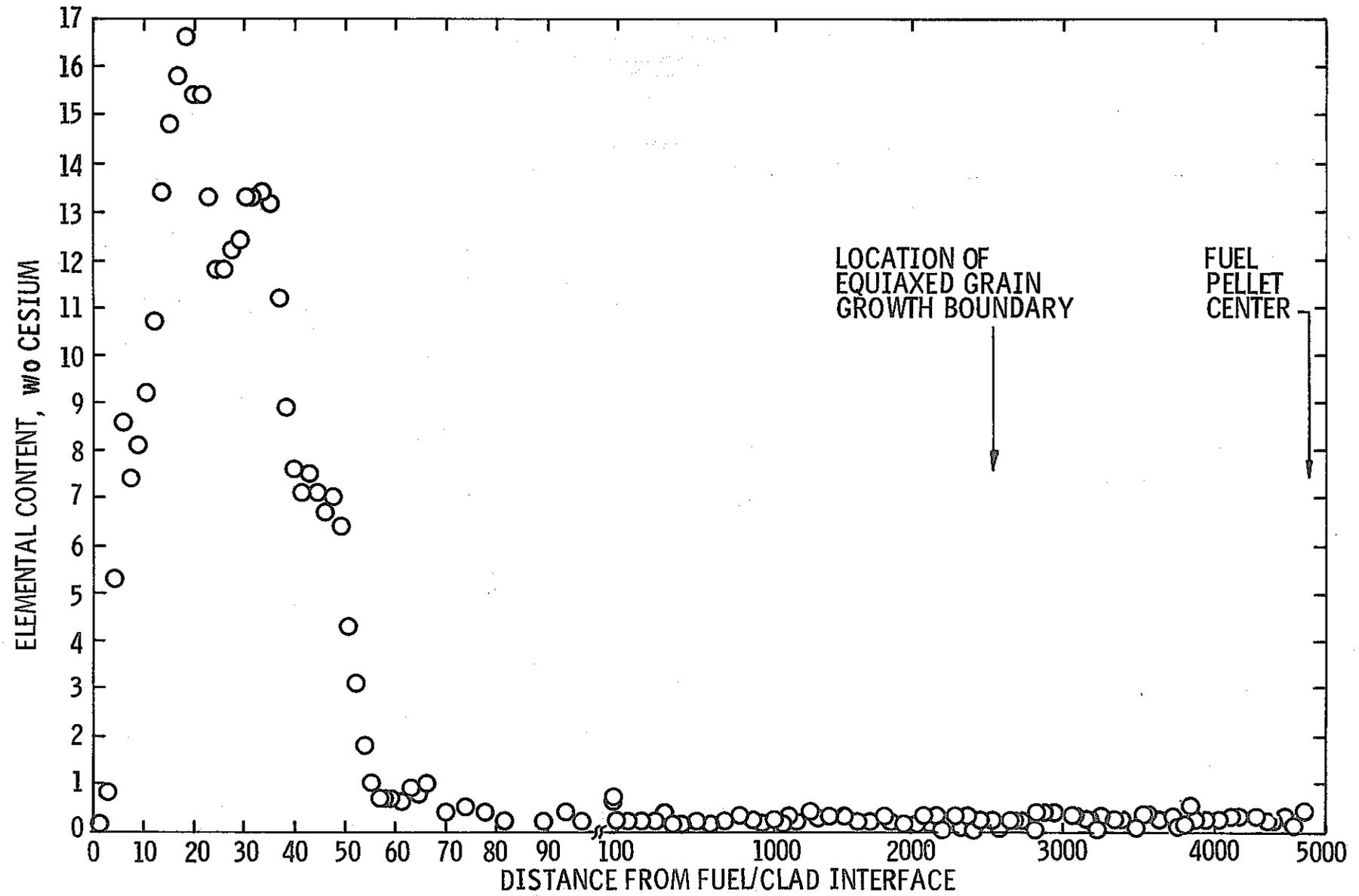
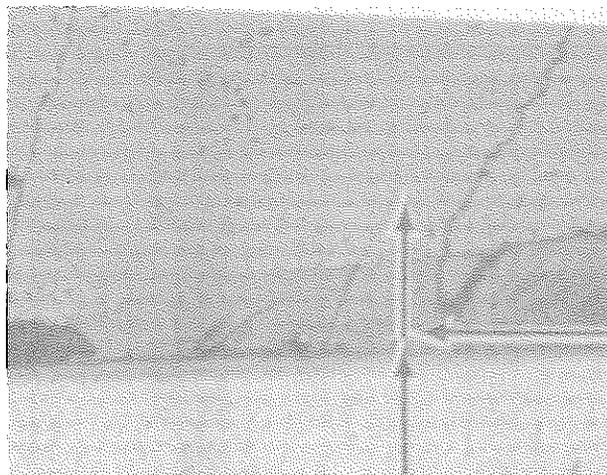
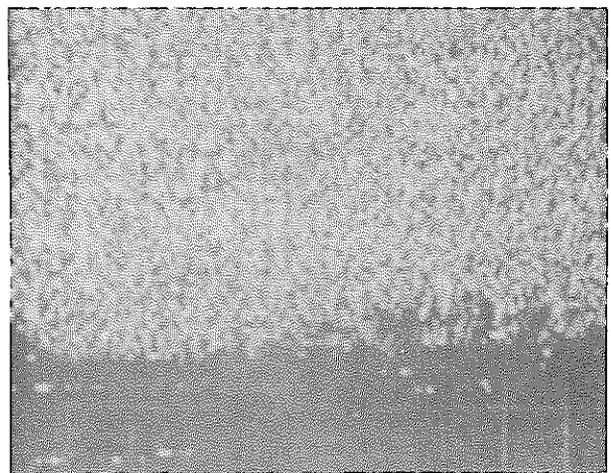


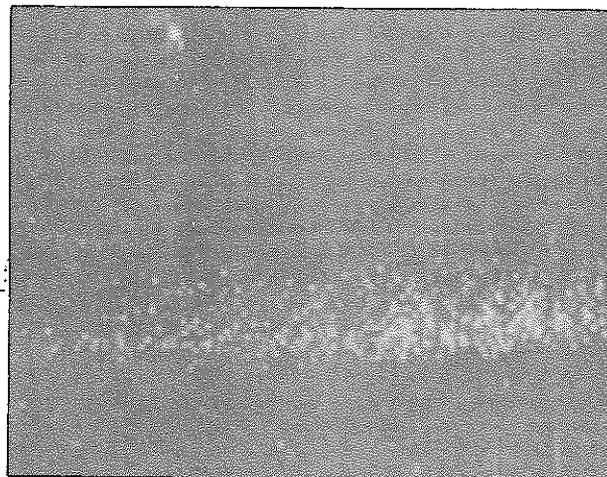
Fig. 4-98 JCN-196の下部から75-5/8インチの位置における、
燃料-被覆管境界からペレット中心部までのセシウム濃度
のプロファイル (横軸のスケールが変化していることに注意)



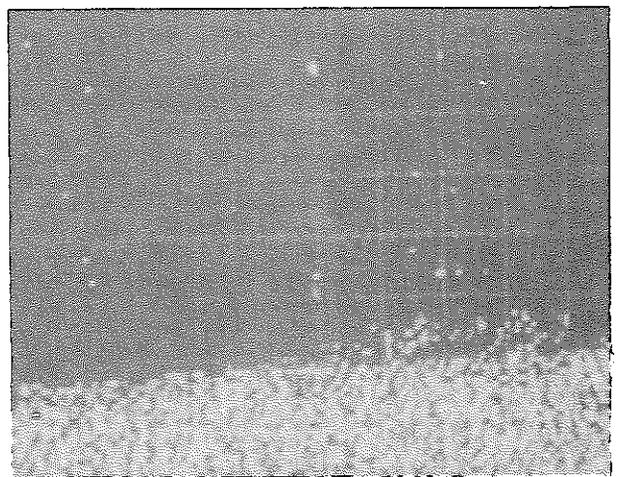
a) PHOTOMICROGRAPH (20 μ)



b) U_{M α} X-RAY IMAGE



c) Cs_{L α} X-RAY IMAGE



d) Zr_{L α} X-RAY IMAGE

Fig. 4-99 JBY-097の下部から44-1/8インチの位置における燃料-被覆管ボンディングのマイクロプローブ分析。写真は分析の道筋を示している。その部分のX線像も示されている。

12 kw/ft 以上の出力で約 100,000 MWD/MTU まで照射された。ブランケットの UO_2 ペレットがセシウムと反応していたことが分った。同じような観察が Karnesky (13) および Langer ら(14) によってなされた。上述のすべてのケースにおいて燃料が $\text{UO}_2 - \text{PuO}_2$ であったということは注目に値する。セシウムと UO_2 燃料との反応の唯一の報告が Bazin ら (15) によって行なわれた。それには、高出力レベル (平均が 18 kw/ft) で広範囲の燃焼度まで照射されたペレットを含んだジルカロイ被覆燃料棒に関することが記載されている。照射後試験によって、燃料と被覆管に隣接した酸化ジルコニウム層との間にセシウムに富んだ反応層のあることが分った。10,000 MWD/MTU 以下の燃焼度では燃料のボンディングの発生は非常にまれであり、極端に偏在していることも分った。燃料のボンディング部分の定量分析によって、組成が Maine Yankee 炉の燃料棒で観察されたものと類似していることが示された。ウラン、セシウム、ジルコニウムおよび酸素以外の元素は反応領域では検出されなかったと思われる。

上に述べたデータは、セシウムの移動または再分布 (redistribution) は燃料温度が高い場合にだけ生じるということを示唆しているが、一方、酸化物燃料とセシウムとの反応は相当低い温度 (500~1000 °C) で起こると思われる。セシウムは超化学量論組成の酸化物の存在下においては 725 °C でたやすくウラン酸セシウム (Cs_2UO_4) を形成することが見いだされた (16)。

ブランケット・ペレット上への Cs_2UO_4 の形成が EBR-II 実験の C シリーズにおけるいくつかの燃料棒破損の原因として示唆された (17)。 Cs_2UO_4 の密度は比較的小さいので、この化合物が形成されると局部的に大きな体積変化が生じその結果被覆管の破損に至る。Maine Yankee 炉の燃料棒の場合には、燃料-被覆管反応領域の形成が間接的に燃料棒破損の原因-燃料と被覆管の反応によって燃料のボンディングが生じ、その結果出力上昇時に局部的な応力集中が発生した一になったかも知れない。

Cs_2UO_4 の形成に加えて、セシウムはモリブデンおよびヨウ素と化合物を形成することも分った。Adamson と Aitken によって行なわれた炉外試験 (18) の結果、セシウムの移動挙動 (migration behavior) は O/M 比に敏感であることが分った。亜化学量論組成の燃料では、セシウムは主に、燃料棒中で最も温度の低い位置に急速に移動する単体の元素として挙動することが予想される。超化学量論組成の燃料では、セシウムは燃料と反応してウラン化合物を形成し比較的移動しにくい。化学量論組成に近い酸化物燃料では、蒸発性で移動しやすい化合物である Cs_2UO_6 が形成されるかも知れない。

Adamson と Aitken (18) は、ヨウ素の存在下ではセシウムと燃料の化合物が形成されてももっと安定な (しかも蒸発性の) ヨウ化セシウムの形成が妨げられたり制限されたりすることはなく、またヨウ化物として結合したセシウムは燃料と反応する傾向を示さないということも報告した。

化学量論組成であった Maine Yankee 燃料の場合には、セシウムの移動は単体元素またはウランとの酸化物、およびヨウ化物として起ったと思われる。しかし、セシウムの軸方向への全体的な再分布が観察されなかったので、セシウムは単体元素として被覆管内表面に達したのではな

いと思われる。

テルルの存在下でのセシウムの挙動は、セシウム、テルルおよび燃料の会合 (association) が同時に生じるのもっと複雑であると報告された (18)。セシウムとモリブデンの化合物、例えばモリブデン酸セシウム (Cs_2MoO_4) は O/M 比が 2 以下の燃料で形成されることが分った。ガス状の Cs_2MoO_4 は高温においても十分安定であり、酸化物燃料中のセシウムに対する別の移動モードであるかも知れないと信じられている。しかし、Maine Yankee の燃料棒においては、燃料のボンディング領域でモリブデンが観察されなかったため、この化合物によるセシウムの移動はそれほど重要ではないと思われる。

上で述べた燃料の複雑な化学は炉外での研究に基礎を置いており、それが燃料棒の照射環境によってどのような影響を受けるかについてはほとんど分っていないということが強調されるべきである。それにもかかわらず、これらの観察結果は、それが縦割りした被覆管の内表面の SEM 試験で得られた結果 (第 4.7 節参照) と一致しているため重要である。被覆管に密着した粒子は、セシウム、テルル、ウランまたはジルコニウム (たぶん酸素と結合しているであろう)、あるいはセシウムとヨウ素の化合物のいずれかの混合物であることが分った。

燃料ボンディング領域のマイクロプロブ分析の結果および文献に報告されたデータの検討結果をまとめると、以下のような結論に至る。

1. 高いガス放出率を示した Maine Yankee 燃料棒は照射中に高い燃料温度 (しかし、等軸晶の成長しか観察されていないので、柱状晶が成長する温度以下である) を経験したにちがいない。そうすればセシウムが燃料と被覆管の境界へ再分布していたという観察結果が説明できる。高温状態での運転の持続は、燃料-被覆管境界における反応において最も重要な因子であるとは思われない。というのは、セシウムと燃料の化合物は比較的低い温度 (500~1000°C) で形成されることが分っているからである。
2. セシウムの移動挙動は燃料の化学量論性に敏感である。Maine Yankee 燃料の場合には化学量論組成であり、セシウムは単体元素またはウランとの酸化物、あるいはヨウ化物として移動したかも知れない。ヨウ素を含んでいない燃料ボンディングが存在し、また被覆管表面上にヨウ化セシウムが存在することから両方の移動形態が支持される傾向にある。
3. Maine Yankee 燃料棒においては、反応領域でモリブデンの集中が観察されなかったため、モリブデン化合物としてのセシウムの移動は生じなかったと思われる。
4. ウラン酸セシウムは亜化学量論組成の UO_2 では容易に形成されることが報告された。Maine Yankee 燃料の観察に基づくと、セシウム、ウランおよびジルコニウムの複雑な酸化物の形成も化学量論組成の UO_2 では可能であると思われる。
5. ウラン酸セシウムやそれと類似した化合物の形成は、ペレット境界におけるボンディング領域において局所的な応力集中を生じさせることによって Maine Yankee 燃料棒の被覆管破損の原因になったかも知れない。また、ウラン酸セシウムは密度が UO_2 よりも低いので、ウ

ラン化合物の形成によって局所的な体積増加が生じ、その結果燃料-被覆管ギャップが減少して被覆管の局所的な応力集中の原因になる可能性もある。

4.11 照射された燃料の密度測定

燃料の焼きしまりとスエリングの程度を決定するために、15個の燃料ペレットの密度をホット・セルにおいて測定した。燃料サンプルは高いガス放出率を示した燃料棒と低いガス放出率を示した燃料棒のいろいろな軸方向の位置から採取された。燃料の焼きしまりをスエリングならば温度や核分裂率のような他の変数から区別することができるように試料の選択を行なった。

密度測定は、水銀だめ、試料室および排気系から構成されているBMIのセル内用水銀ピクノメータを使って行なわれた。測定手順は以下のステップから成っている。

1. 水銀だめを水銀で満たし、重量を正確に測定する。
2. 試料室と水銀だめをクランプで結合し、試料室を排気した後水銀だめからの水銀で満たす。次に水銀だめの重量を再び測定する。前後の重量差から、試料室を満たすために使われた水銀の量および試料室の体積を計算する。
3. 次に重量の分っている燃料試料を試料室に入れ、ステップ(1)および(2)を繰り返す。得られたデータから、燃料試料の体積および密度を計算する。装置および方法は、標準試料の密度を定期的に測定することによって精度のチェックを行なった。

燃料試料は所要の軸方向位置において燃料棒から1/2インチの長さに切断した部分から得られた。次にすべての燃料は切断部分から取り除かれた。密度測定に先立って小さな粒子を取り除くために燃料の粒子はふるいに掛けられた。サンプルに対して得られた密度のデータをTable 4-15に示す。照射前の燃料棒平均の燃料密度およびCs-137のガンマ・スキャンのデータに基づいて計算したサンプルの燃焼度も示されている。燃料の初期密度は、各々の燃料棒において照射前に測定した燃料のスタック重量から見積られた。Table 4-15に示されているデータは、燃料密度の照射中の増加が理論密度の2.4~5.55%の範囲であったことを示している。データの解析は第6節に記載されている。

4.12 燃焼度解析

第1キャンペーンにおいて、健全な燃料棒であるJBP-005の被覆管の初期クラックに隣接した部分から採取した2つの燃料サンプルの分析によって、Nd-148法による燃焼度の測定値が得られた。第2キャンペーンにおいては、他の2本の健全な燃料、JCN-196およびHBU-169から採取した3つの燃料サンプル(長さは1/2インチ)を、ガンマ・スキャンの結果から得られた燃焼度の値の精度を決定する目的で分析した。全部で5個の燃料サンプルから得られた結果を次に示す。

Table 4-15 Maine Yankee 第I炉心燃料の焼きしまり/スエリング

燃料棒 S/N	試料位置 (燃料棒下部から, インチ)	燃焼度 (計算値) MWD/MTU	水銀浸漬密度, % TD		
			初期*	最終**	$\Delta\rho$
HBU-169	133-1/2-134	5,340	91.95	97.4	5.45
	93-1/2-94	14,410		96.3	4.35
	2-1/2-3	5,590		97.5	5.55
	125-1/2-126	9,050		96.3	4.35
JCN-196	133-1/2-134	5,680	92.5	97.1	4.6
	76-5/8-77-1/8	15,225		96.5	4.0
	125-1/2-126	9,700		96.1	3.6
JBY-097	2-1/2-3	5,680	92.8	97.2	4.4
	88-3/8-88-7/8	14,900		96.6	3.8
JBP-004	133-1/2-134	5,840	93.3	96.3	3.0
	93-1/2-94	15,320		97.1	3.8
	76-1/2-77	15,610		97.5	4.2
	2-1/2-3	5,710		95.7	2.4
	120-1/2-121	11,260		97.1	3.8
	7-3/4-8-1/4	9,050		96.9	3.6

* 平均の幾何学的密度を求める(燃料の公称寸法を仮定して)ために燃料棒のスタック重量を使用し、幾何学的密度から浸漬密度に補正するために0.5%TDを加えた。

** ホット・セルで測定されたままの値

燃 料 棒	燃料棒平均燃 焼度の計算値	サ ン プ ル 位 置 (燃料棒下部から, インチ)	サンプル燃焼度の 測定値 MWD/MTU ⁽¹⁾
JBP-005	13,231	94-7/16-95-7/16	14,900
		95-7/16-95-7/16	14,800
JCN-196	12,904	94-94-1/2	15,660
		127-127-1/2	8,230
HBU-169	12,410	94-94-1/2	14,240

(1) すべての燃焼度の値はNd-148法に基づいている。

局所的な燃焼度の測定結果を対応する相対的なガンマ放射能強度（グロスのガンマ・スキャンおよび特定の同位元素に対するスキャンの両方から得られたもの）と比較すると、以下のことが示される。

1. ガンマ・スキャンの結果から計算された燃焼度の値は、各々の燃料棒から得られた測定値と良く一致している。（例えば、JBP-005の下部から約95インチの位置に対する計算値は、グロスのガンマ・スキャン結果および炉物理的なデータから計算された燃料棒の平均燃焼度を使うと15,800MWD/MTUであった。）このことは、燃料棒の実際の出力履歴は炉物理的なデータから計算したものと大きな差異はないということを示している。
2. JCN-196から採取された低燃焼度のサンプルに対する結果はCs-137のスキャンとだけ一致している。これは、与えられた位置におけるガンマ放射能は燃焼度に比例するという仮定の下でグロスのガンマ・スキャンおよび特定の同位体に対するガンマ・スキャンの結果から計算された燃焼度の値の比較に基づいている。127インチの位置における燃焼度は、94インチの位置における燃焼度の測定値および94インチの位置におけるガンマ放射能強度に対する127インチの位置におけるその比から計算される。それらの結果を下に示す。

スキャンの種類	94インチの位置におけるガンマ放射能強度に対する127インチの位置におけるその比	127インチの位置における燃焼度の計算値, MWD/MTU
グロス・ガンマ	0.640	10,022
Zr/Nb-95	0.708	11,087
Cs-137	0.543	8,503

Cs-137に対するスキャンの結果から得られた燃焼度の値は、測定値である8,230MWD/MTUと非常に良く一致しているということが分かる。これは、Cs-137に対するスキャンの方がグロスのガンマ・スキャンやZr/Nb-95に対するスキャンよりも軸方向の燃焼度分布をより正確に表わしているという前の結論を実証している。

5.0 燃料棒の照射履歴

5.1 初期クラック位置における出力履歴

全体のホット・セル計画において、3本の健全な燃料棒（JBP-005, JBY-097およびJBP-122）が明らかに初期破損（incipient perforation）の証拠を意味する被覆管のクラックを示していた。3本の燃料棒の照射履歴、特にクラックの位置における局所的な出力が、破損機構における燃料の役割を検討するためかなり詳しく調べられた。この解析に必要な局所的な線出力の値を得るために、異なった燃焼度の時点における炉心出力および燃料棒に対する軸方向の平均出力因子（炉心出力に比例している）が、炉心計算によって確かめられた。これらの値に、炉内計装に基づく軸方向因子の計算によって、各々の集合体に対して得られた近似的な軸方向出力因子を掛けた。Fig. 5-1はその結果得られた3つの初期クラック位置の定常状態の出力履歴を示しており、冷却水中のヨウ素放射能データに基づいて燃料棒破損の大部分が生じた時期である、炉心の平均燃焼度が5,627 MWD/MTUから8,300 MWD/MTUまでの範囲をカバーしている。異なった燃焼度の時点におけるJBP-122およびJBY-097の軸方向の出力分布がFig. 5-2およびFig. 5-3にそれぞれプロットされている。（JBP-005はB-042集合体の中の高出力燃料棒であるので、その出力分布はJBP-122のものと類似している。）

Fig. 5-1には、それぞれ定格出力の88%までの最初の出力上昇および定格出力の95%までの最初の出力上昇に対応する、炉心平均燃焼度が約6,700 MWD/MTUおよび約8,300 MWD/MTUの時点において生じた2つの高出力運転の期間が示されている。これらは、冷却水中のヨウ素放射能が最も大きく増加した時期でもある（Fig. 1-1参照）。驚くべきことではないが、Fig. 5-2および5-3は初期クラックの位置がこれらの期間における燃料棒の軸方向の最大出力位置と一致していることを示している。

ホット・セル試験におけるPCI破損機構の観察結果から見て、Fig. 5-1の出力履歴に関する重要な点は、クラック領域の線出力が88%出力（6,700 MWD/MTU）の時点では7.9から8.3 kw/ftの範囲であり、95%出力（8,300 MWD/MTU）の時点では8.3から8.7 kw/ftの範囲であるということである。また、Maine Yankeeから得られた炉心の出力変化データによって、定格の88%出力への出力上昇の場合には出力が10%/時間を越えない上昇率で20%から85%まで上げられ（この期間に先立って炉心は85%出力で短期間運転された）、また85%から88%までは16時間以上かかって出力が徐々に変化したということが確認された。同様に、定格の95%出力への出力上昇も88%からの上昇は2日間以上もかけてゆっくりと行なわれた。そのように控え目な線出力および小さな出力変化率だけがPCI破損機構と関連しているわけではない。

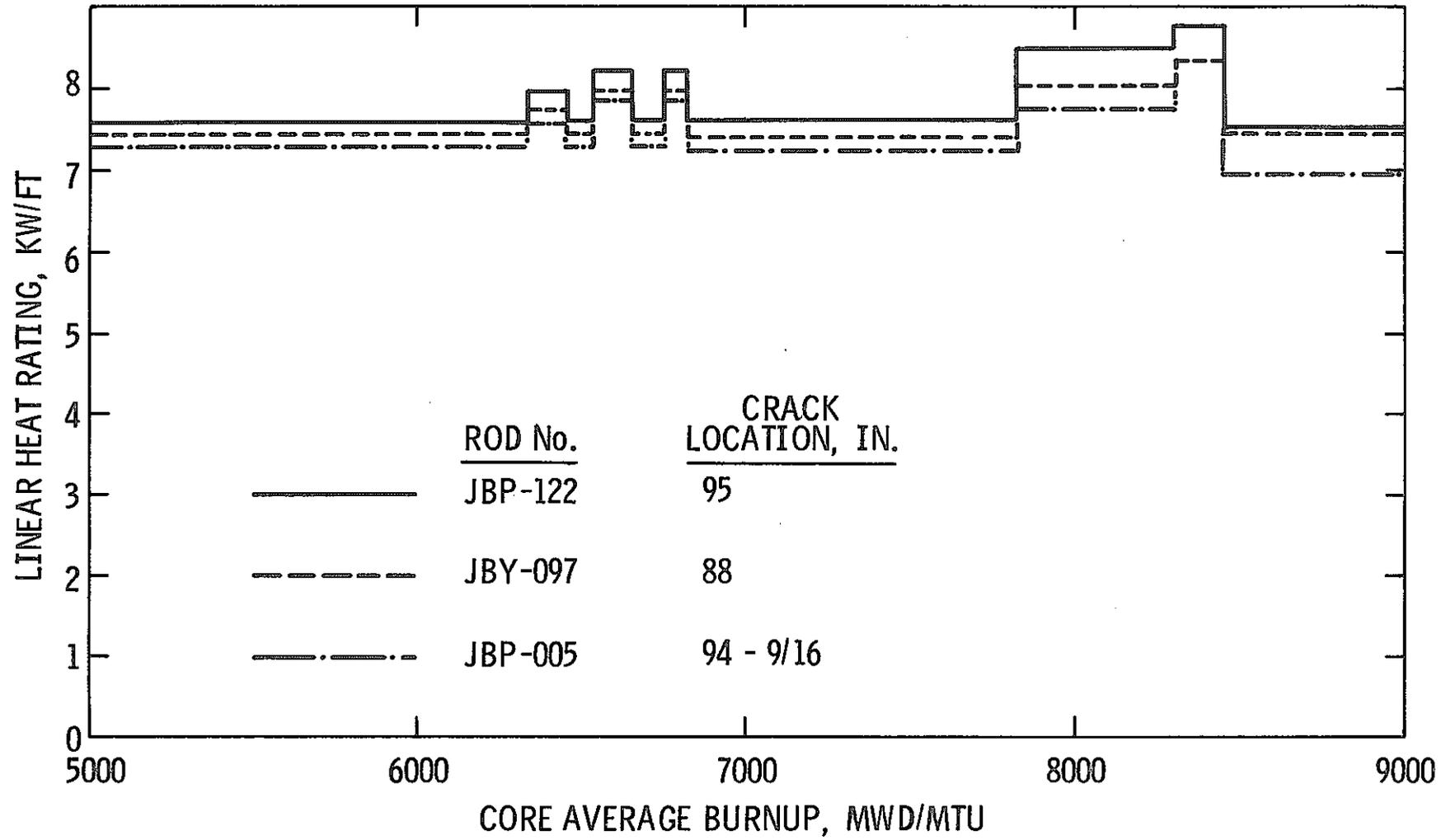


Fig. 5-1 初期クラック位置における定常状態の出力履歴

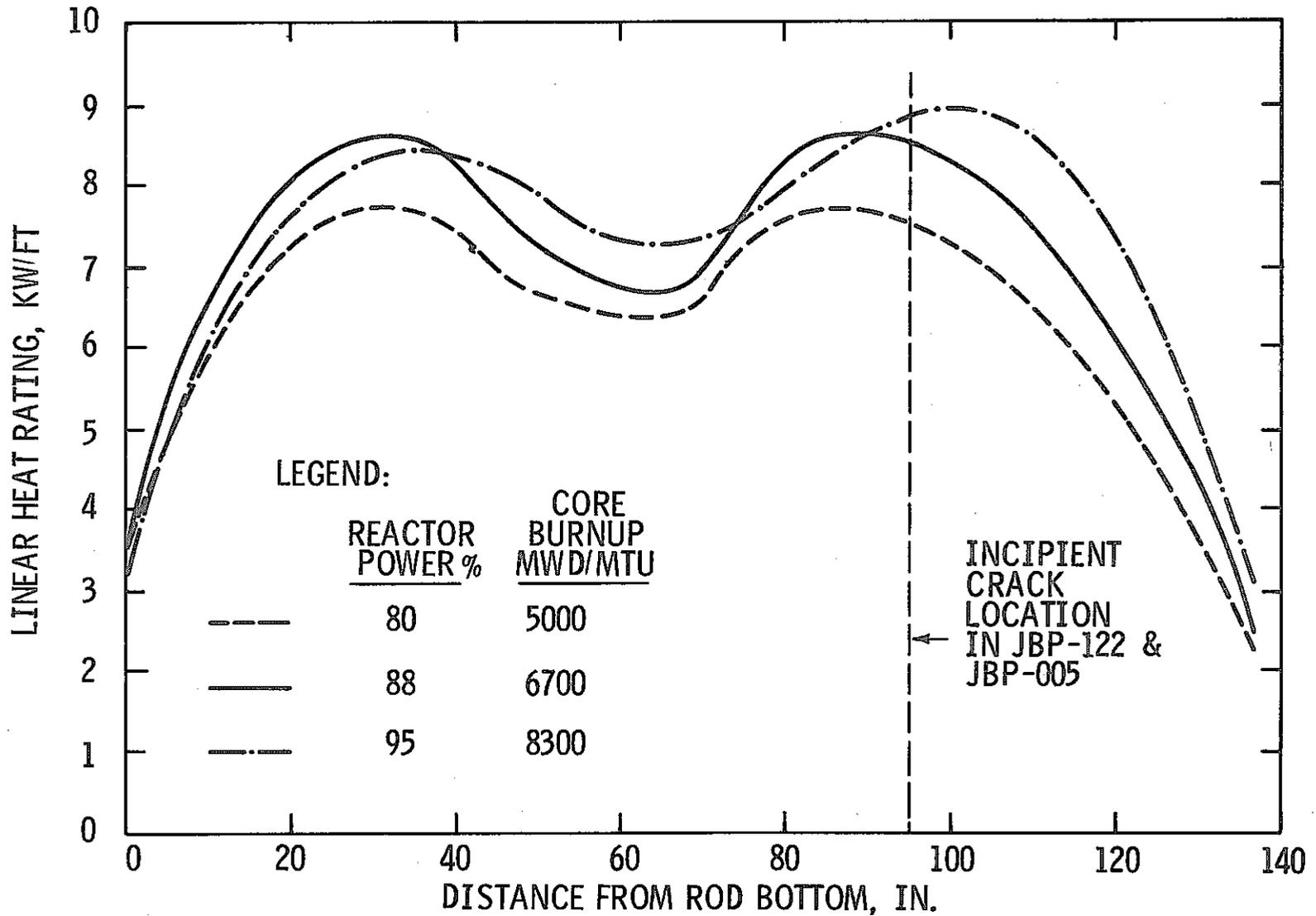


Fig. 5-2 炉心燃焼度が5,000-8,300 MWD/MTUの期間における,
JBP-122の軸方向出力プロファイル

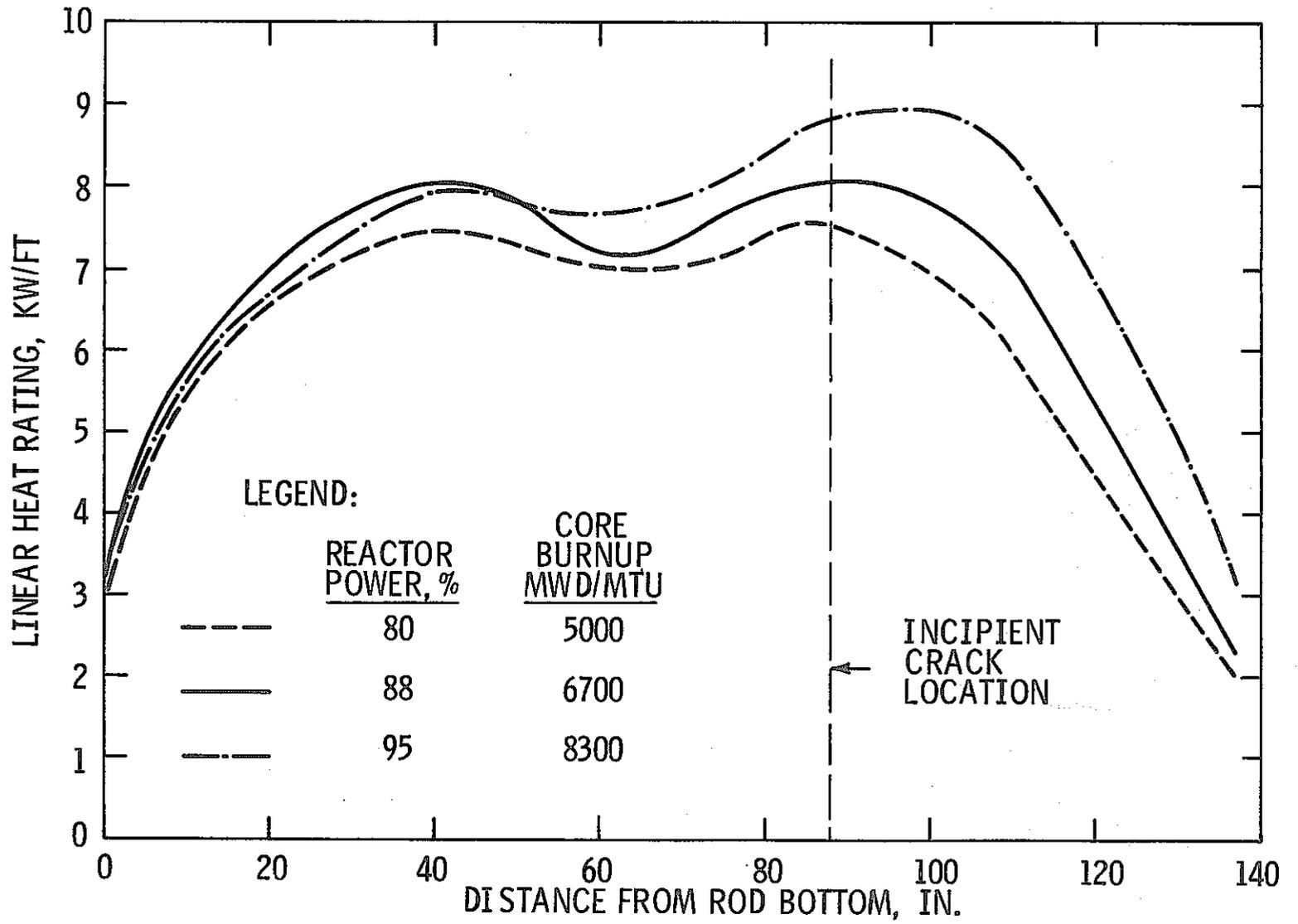


Fig. 5-3 炉心燃焼度が5,000-8,300 MWD/MTUの期間における JBY-097の軸方向出力プロファイル

上で述べた考察は定常状態での出力データの解析だけを取り扱っている。PCI 機構の観点から見れば、出力トランジェント (power transient) がたとえより重要ではないにしても同程度に重要である。Maine Yankee の第 I 炉心の出力履歴の調査によって、炉心の平均燃焼度が約 6,700 MWD/MTU の時点における 88% 出力運転の 4 日後に生じた 1 回の出力トランジェントだけが明らかになった。その時、CEA Bank 4 の制御棒 (Fig. 1-2 の炉心配置図は、これらがバッチ A の燃料集合体の中に置かれていることを示している) が出力レベルを下げるために挿入された。それらの制御棒を最初の位置まで引き抜いた時ゼノン振動が発生し、軸方向の出力分布のピークが炉心の上部の方に移動した。ピーク的位置は、炉心の下部から 94~104 インチの間にあると見積られた。データの解析から、B 047 のような制御棒のない隣接したバッチ B の燃料集合体における局所的な最高線出力の変化は 4 kw/ft 程度であり、最終的な最高線出力は 8.6 kw/ft であるが見積られた。CEA Bank 4 の位置からもっと離れた場所に置かれている B 042 や B 069 のようなバッチ B の燃料集合体では、トランジェントによる影響はもっと小さかったであろう。出力変化率を見積るためにはデータが不十分であるが、そのような線出力の変化や最高レベルだけが PCI による破損機構と関連しているのではない。要するに、初期クラックの位置の局所的な出力履歴だけが PCI による破損機構と一致しているとは思われない。しかし、第 6 節で考察されるように、高い核分裂ガスの放出挙動に関係している他の因子がそのような機構に大いに寄与することもありうる。

5.2 UO_2 の等軸晶成長領域の出力履歴

第 4.8.3.3 節で述べられているように、軸方向における UO_2 の等軸晶成長の様子が高いガス放出率を示した燃料棒の 1 つである JBP-005 について図示された。これは、軸方向の異なった位置から採取された数個のサンプルの金相試験によって行なわれた。Fig. 5-4 は、等軸晶成長を示した部分の各々に対して、炉心平均燃焼度の関数として局所的な出力履歴を示したものである。燃料スタックの上部および下部から約 10 インチの位置にある燃料が達成した最高線出力が、それぞれ 5.5 および 5.8 kw/ft であったということは注目に値する。その両方の位置における燃料がかなりの等軸晶成長を起こしているにもかかわらず、最大線出力が 8~9 kw/ft で運転された燃料棒でも低いガス放出率を示したものでは燃料の組織変化は起こらなかった。この挙動の違いの原因であると考えられる燃料棒の熱伝達特性の減少機構が第 6 節の「データ解析」の項で述べられている。

5.3 Maine Yankee 第 I 炉心の異なったバッチ間の相対燃料棒出力

Maine Yankee 第 I 炉心における燃料棒の破損パターンについての最も著しい初期の観察は、破損した燃料集合体のバッチ間における分布であった (バッチ B からは 41 体、バッチ A および C からは 1 体だけ)。バッチ B の燃料集合体が他の燃料集合体よりも一般的に高い燃焼度を達成

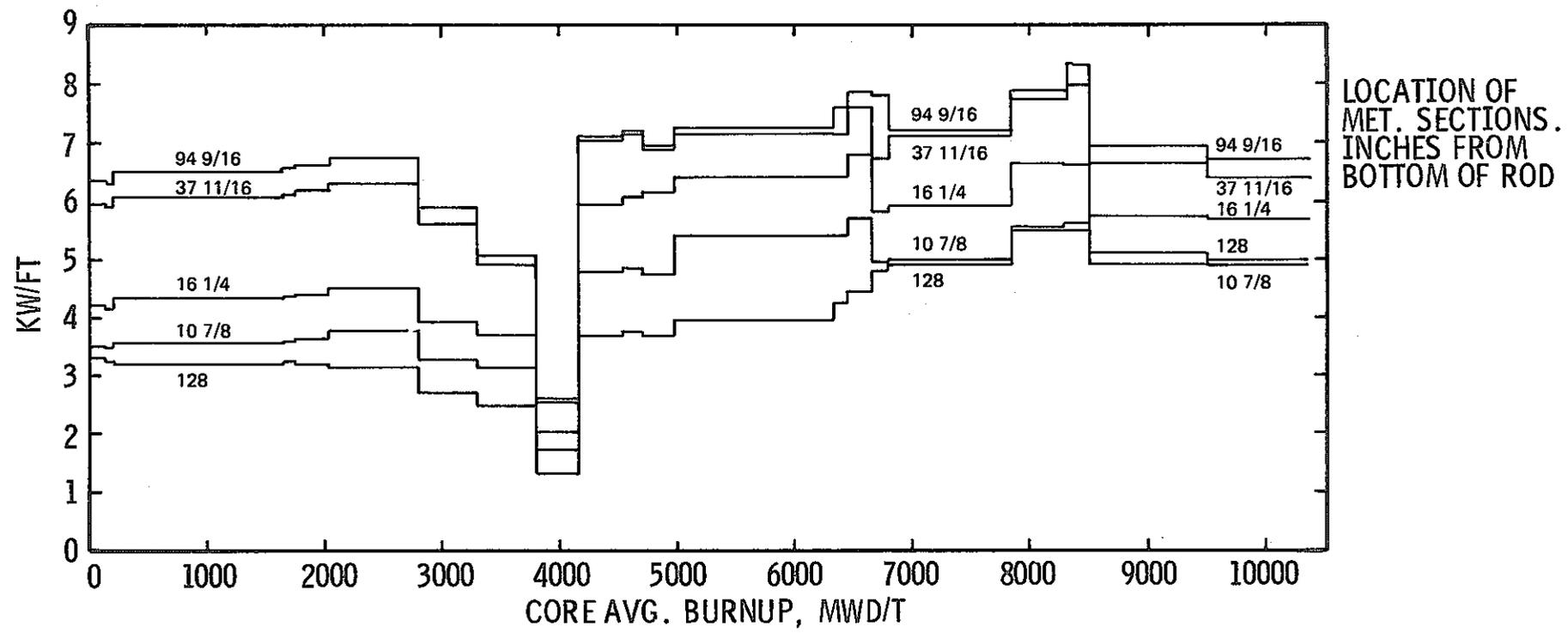


Fig. 5-4 JBP-005から採取した、等軸晶成長を示している金相断面の出力履歴

したという事実によって、燃料棒の破損機構が出力に依存しているということが直ちに示唆された。プールサイドにおけるB-042およびB-069の解体において、破損したすべての燃料棒が比較的高出力位置に置かれていたものであるということが観察されたことによってこのことが確認された。出力と破損の間の関係をさらに調査するため、破損が生じた期間（炉心平均燃焼度が約5,000~8,000 MWD/MTUの期間）における相対的な燃料棒出力履歴について解析が行なわれた。

解析の結果は Table 5-1 および Fig. 5-5 にまとめて示されている。主な点は以下のとおりである。

1. B-042 および B-069 の 2 体のバッチ B 燃料集合体の燃料棒の中で約 38% が、炉心平均燃焼度が 5,000~8,000 MWD/MTU の期間において、これらの燃料集合体の中で破損した燃料棒の最小相対出力以上の出力で運転された。
2. この期間のすべての燃焼度の時点において、これらの破損したバッチ B 燃料棒の最小相対出力と同程度の出力で運転された燃料棒はバッチ A には 1 本もなく、バッチ C でも 1% 以下であった。
3. 破損した燃料棒の最小相対出力以上で運転されたバッチ B の燃料棒のうちの約 12% だけが破損を生じた。この比率をバッチ C の燃料棒に直接適用すると、バッチ C の破損燃料棒を疑いもなく過大評価することになるであろう。というのは、バッチ C の燃料棒の最大相対出力はバッチ B のそれよりもかなり低かったし、破損の確率は相対出力の増加とともに高くなるからである。
4. したがって、バッチ B の燃料棒において作用した機構による破損は、バッチ A および C の燃料棒に対してはほとんど考えられないであろう。

このようにして、破損した燃料棒は実質上すべてバッチ B のものであったという Maine Yankee 燃料のプールサイドにおける観察は、炉心平均燃焼度が 5,000~8,000 MWD/MTU の期間に作用した強い出力依存性の破損機構と一致している。

Table 5-1 炉心平均燃焼度が5,000-8,000 MWD/MTUの期間における
Maine Yankee 第I炉心の相対燃料棒出力履歴*の解析

	指定された燃焼度 (MWD/MTU)における値		
	5,000	6,250	8,000
1. B-042およびB-069における最小破損燃料棒相対出力。	1.255	1.253	1.238
2. B-042およびB-069における最大相対燃料棒出力。	1.365	1.352	1.335
3. 最小破損燃料棒出力あるいはそれ以上の出力で運転された、B-042およびB-069 集合体中の燃料棒総数対その集合体中の燃料棒総数の比。***	0.378	0.384	0.388
4. 破損燃料棒数対最小破損燃料棒出力あるいはそれ以上の出力で運転された、B-042 およびB-069集合体中の燃料棒数の比。	0.124	0.122	0.121
5. バッチBの最大相対燃料棒出力。	1.245	1.216	1.187
6. 最小破損燃料棒相対出力あるいはそれ以上の出力で運転された、バッチAの燃料棒数。	0	0	0
7. バッチCの最大相対燃料棒出力。	1.272	1.278	1.280
8. 最小破損燃料棒相対出力あるいはそれ以上の出力で運転された、バッチCの燃料棒数。	32	56	112
9. 最小破損燃料棒相対出力あるいはそれ以上の出力で運転された、バッチCの燃料棒数 対バッチCの燃料棒総数の比。	0.0028	0.0049	0.0098

* この表中の燃料棒出力は炉心平均出力に対する平均値である。

** バッチB集合体1体当りの燃料棒総数=160

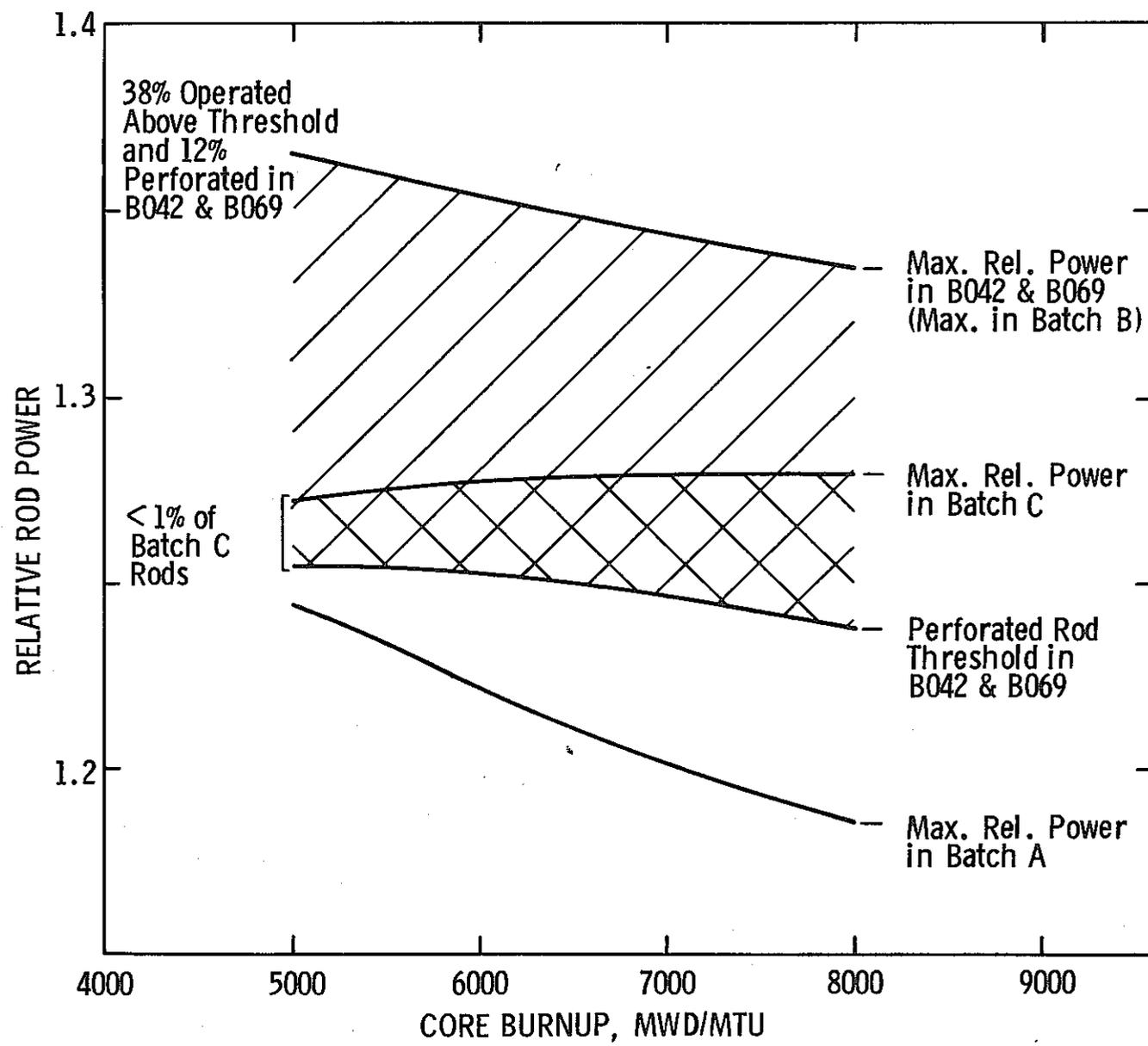


Fig. 5-5 Maine Yankee 第 I 炉心のバッチ間の燃料棒出力履歴の比較

6.0 データ解析

これまでの各節において、照射後試験で得られたデータについて詳細に述べた。この節では、以下の目的でデータ解析を示すことにする。

1. 8～9 kw/ft の最大線出力で、同じような照射条件を経験した燃料棒が、なぜ2つの異なったガス放出率およびそれに付随する燃料温度を示したのかを説明する。
2. それら2種類の燃料棒の間の相違点および類似点を調査する。
3. 主要な燃料破損機構と高いガス放出率を示した燃料棒の挙動との関係を決定する。
4. 燃料棒のモデリングに使用するデータを得るために、Maine Yankee 第I炉心燃料の性能の特性化を行なう。

6.1 ホット・セル試験の結果

データ解析の基礎となった重要なホット・セル試験結果を Table 6-1 に示す。その他、バッチB燃料棒のホット・セル試験で得られた関連する情報が、Fig. 6-1 および 6-2 に示されている B-042 および B-069 燃料集合体の燃料棒配置図に示されている。これらには観察された核分裂ガス放出率、プロフィロメトリから得られた最大の被覆管オーバーリティおよびクリープダウン、ガンマ・スキヤニングから得られた燃料スタック長の減少および炉物理計算から得られた相対的な平均燃料棒出力（寿命中平均および寿命末期における値）が含まれている。

6.2 燃料棒熱伝達特性の減少

6.2.1 核分裂ガス放出に影響を及ぼすパラメータ

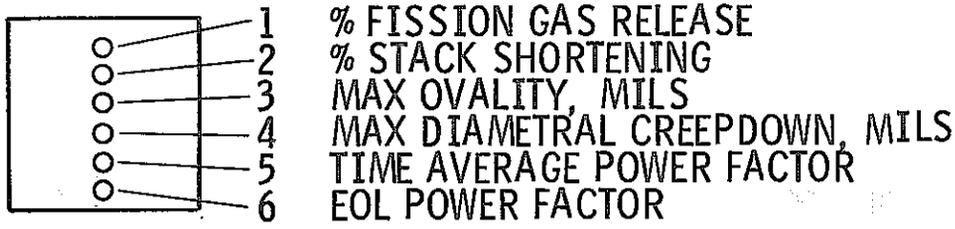
前の節で言及したように、燃料棒熱伝達特性の減少過程が高いガス放出率の原因であると思われる。このメカニズムを記述する前に、核分裂ガスの放出に影響を及ぼすパラメータに関する考察を整理して置く。核分裂ガスの放出は主に燃料温度の関数であるので、放出率は燃料温度に影響を及ぼすパラメータ、すなわち出力、ガスの熱伝達率およびペレット-被覆管ギャップに依存している。同じような出力履歴を有する燃料棒は、少なくともそれらの間にガス放出の差が生じる以前では同程度のスエリング、リロケーション (relocation)、被覆管のクリープダウンおよびガス熱伝達率を有していると予想される。したがって、燃料の焼きしまりと製造時のペレット-被覆管ギャップの大きさが、燃料棒間の温度およびガス放出の差の原因となりそうな2つのパラメータである。

初期のペレット-被覆管ギャップの変動は、主に製造時の被覆管外径の変動に起因している。Maine Yankee のものと同じような微細組織を有した燃料は、低い初期密度の状態で大きな焼

Table 6-1 ホット・セル試験結果の主なハイライト

試 験	結 果
外 観 検 査	<ol style="list-style-type: none"> 健全な燃料棒には異常はなかった。燃料棒にはわずかにクラッド (crud) が付着していた。 破損燃料棒はブリストア (blister) およびバルジ (bulge) を含んでいた。 破損燃料棒ではブリストアの部分を除いてクラックや割れ (split) は観察されなかった。
プロフィロメトリ (スパイラルおよび直線)	<ol style="list-style-type: none"> データは0.3ミル(直径)までの被覆管クリープダウンを示している。 大きなオーバーリティ(16ミルまで)がランダムな位置にあった。 被覆管リッジング(最大0.4ミル)が大部分の燃料棒の高出力位置に観察された。 2種類のクリープダウンおよびオーバーリティが高燃焼度(12,321 MWD/MTU以上)燃料棒の間に観察された。高いガス放出率を示した4本のバッチB燃料棒は1.5~2.4ミル(直径)の範囲のクリープダウンを示し、最大オーバーリティは4~6.4ミルの範囲であった。その他の高燃焼度燃料棒は2.2ミル以上のクリープダウンおよび7.2ミル以上の最大オーバーリティを示していた。
核分裂ガス収集	<ol style="list-style-type: none"> ガス放出データは2つのグループに分けられ、14本の燃料棒(6,750~13,200 MWD/MTU)が1%以下、8本の燃料棒(12,410~13,650 MWD/MTU)が11.3~15.3%であった。 高いガス放出率を示した8本の燃料棒のうち、7本がバッチBからのものであり、1本がバッチAからのものであった。バッチAの燃料棒は、燃料スタック重量に基づく初期の平均燃料密度が低かった。
ガンマ・スキヤン (グロスおよび特定の同位元素)	<ol style="list-style-type: none"> すべてのガンマ・スキヤンが小さなギャップの分布を示していた。 燃料スタックの減少は観察された焼きしまりと一致している。 Cs-137のスキヤンは高いガス放出率を示した燃料棒のペレット境界においてピークを示していた。低いガス放出率を示した燃料棒ではピークは観察されなかった。 Csピークの領域は燃料棒下部から5~128インチの範囲であった。 破損燃料棒はCsピークを示していた。
燃料-被覆管金相試験	<ol style="list-style-type: none"> 初期被覆管クラックが、3本の高いガス放出率を示した燃料棒から採取された3つの試料に観察された。 すべてのクラックは半径方向であり、ジルカロイのヨウ素による応力腐食割れと類似しているように見えた。 クラックのSEMによるフラクトグラフィの結果、クラックがヨウ素による応力腐食割れと同じタイプであることが確認された。 燃料と被覆管のボンディングが高いガス放出率を示した燃料棒のペレット境界に観察された。低いガス放出率を示した燃料棒ではボンディングは観察されなかった。 等軸晶成長は高いガス放出率を示した燃料棒だけに観察された。
切開した被覆管の内面観察	<ol style="list-style-type: none"> 高いガス放出率を示した燃料棒のペレット境界に燃料-被覆管ボンディングが観察された。 切開した被覆管のCs-137ガンマ・スキヤンは全体の燃料棒スキヤンと類似していた。 被覆管内表面上の粒子のX線分析の結果、Cs-I化合物およびCs-Te-U-Zr化合物であることが示された。
電子顕微鏡解析	<ol style="list-style-type: none"> ボンディングした燃料の反応層において、ジルコニウム酸化層に隣接した部分がCsに富んでいることが示された。 反応層ではヨウ素は検出されなかった。
密度測定	<ol style="list-style-type: none"> 燃料が97.5%TDまで焼きしまったことが示された。 低出力位置においては、EOLの燃料密度は低いガス放出率を示した燃料棒のものよりも高いガス放出率を示した燃料棒のものの方が高かった。高出力位置においては、その反対のことが観察された。
燃焼度解析	<ol style="list-style-type: none"> データは計算値と良い一致を示した。 Cs-137のガンマ・スキヤンが軸方向の燃焼度プロファイルを正確に表わしていることが示された。

LEGEND:



POISON ROD



PERFORATED ROD



HIGH GAS RELEASE



ROD SHIPPED TO HOT CELLS

NORTH

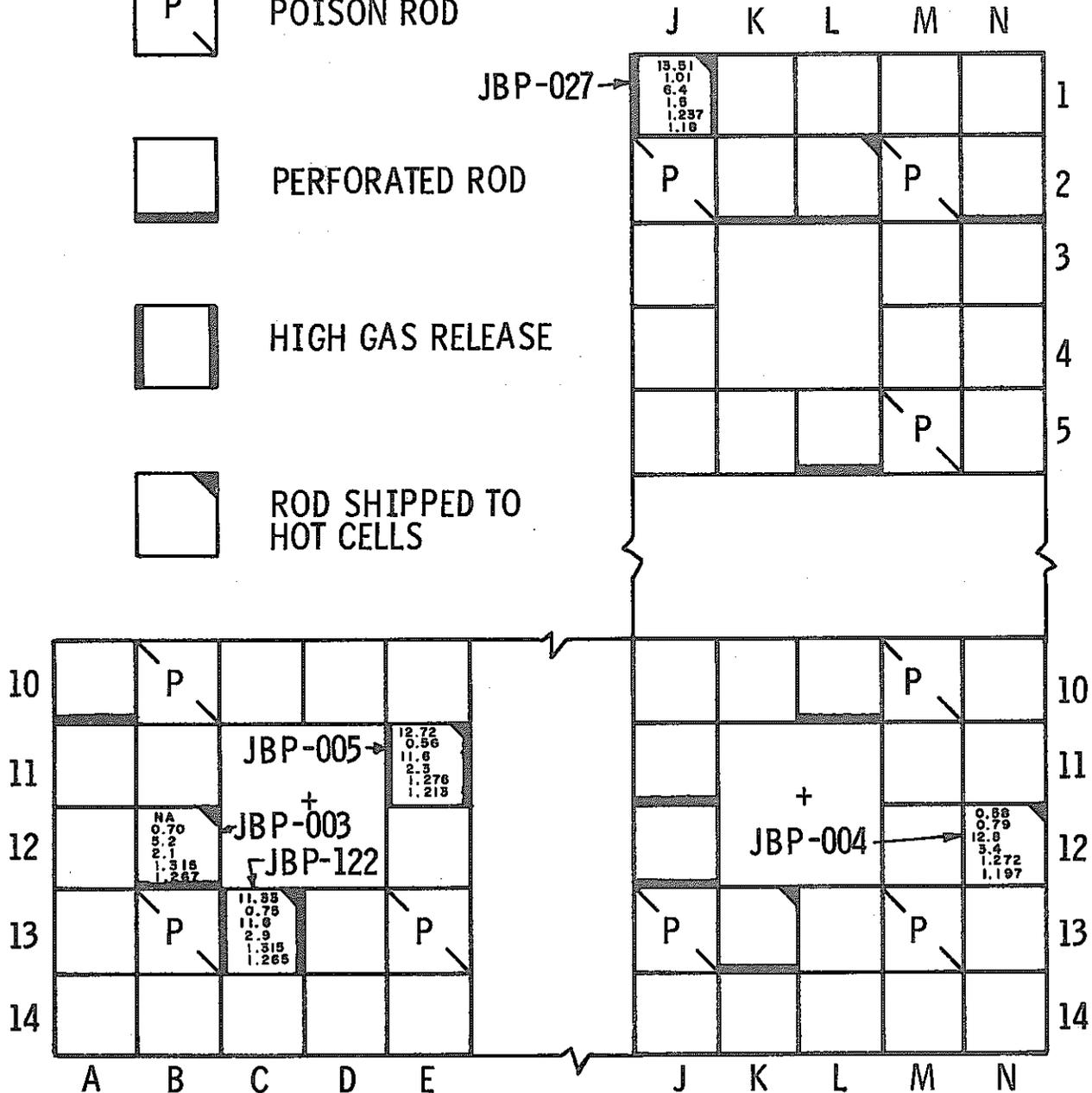


Fig. 6-1 B-042集合体中の燃料棒に関するホット・セル試験の結果

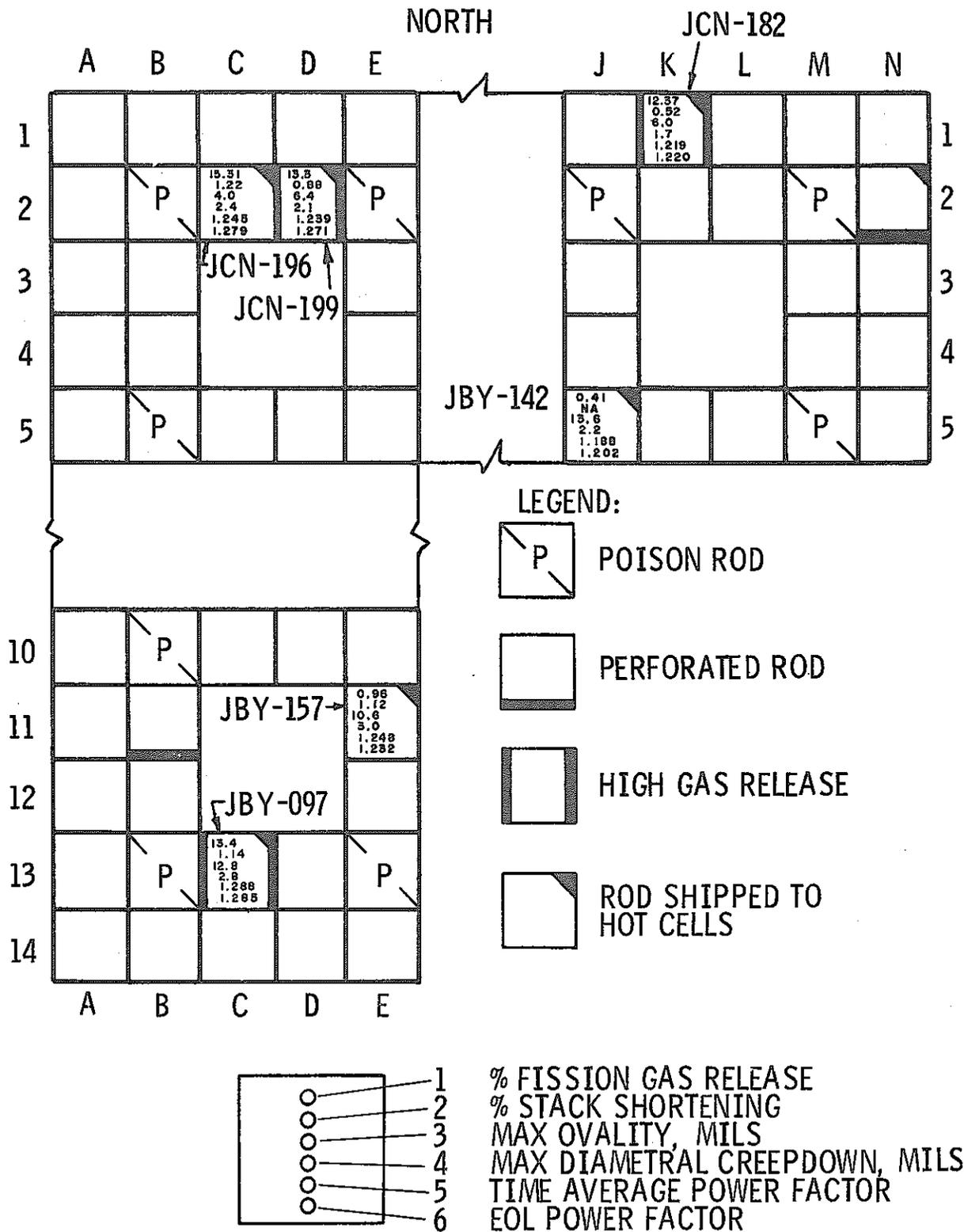


Fig. 6-2 B-069 集合体中の燃料棒に関するホット・セル試験の結果

きしまりを示す (16)。このように、製造時の被覆管外径および初期密度の変動で、同じような燃焼度の燃料棒間のギャップ・コンダクタンスの変動を説明することができる。したがって、Fig. 6-3 においては、製造時の被覆管外径および平均の初期燃料密度の異なった組合せを有する燃料棒グループにおける相対的な寿命中平均出力に対してガス放出率をプロットしている。(直径のデータはホット・セルにおけるプレナム部のプロフィロメトリの結果から得られたものであり、平均燃料密度は燃料スタック重量から計算したものである。)

Fig. 6-3は、0.3～1%および11.3%～15.3%という2つの異なったガス放出率を示している。高いガス放出率に関する寿命中平均の相対燃料棒出力のしきい値は、製造時に公称値を有する燃料棒に対しては約1.26であるということが分かる。(1.26という燃料棒出力係数は、9 kw/ft の最高線出力にほぼ対応している。)公称値以上の被覆管外径または公称値以下の燃料密度を有する燃料棒に対しては、より大きなホット・ギャップになることが予想され、燃料棒出力のしきい値は1.20まで下がっている。この関係は、ガス放出が初期のペレット-被覆管ギャップ、燃料の焼きしまり性質および燃料棒出力、したがって、燃料温度に依存しているということと一致している。さらに、ガス放出率が2つの異なった値を有していることは、ギャップ・サイズや燃料の焼きしまりの変動によって初期に生じた温度差が運転中に増大したことを示している。

ギャップ・サイズの変動の影響を支持する証拠は、ホット・セルでのプロフィロメトリによるプレナム部の被覆管外径測定の結果において見ることができる。これらが製造時の直径を表わし、また燃料棒が公称値の被覆管肉厚およびペレット直径を有しているという仮定の下で、同じような照射履歴(燃焼度が12.321～13.636 MWD/MTUの範囲)を有する12本のバッチAおよびBの燃料棒に対して見かけの初期ギャップ・サイズを推測することができる。これらのギャップ・サイズが、各々の燃料棒に対して測定された核分裂ガス放出率に対してFig. 6-4にプロットされている。高いガス放出率を示した燃料棒の初期ギャップは、低いガス放出率を示した燃料棒のそれよりも常に大きいということが分かる。

6.2.2 熱伝達特性減少のメカニズム

同じような出力履歴を有する燃料棒の間で観察された核分裂ガス放出挙動の差異は、高いガス放出率を示した燃料棒においてだけ作用した熱伝達特性減少のメカニズムによって説明できる。高いガス放出率を示した燃料棒においては、 UO_2 の焼きしまりは生じたが被覆管のクリープダウンがまだ十分に起っていないある時点で、燃料の中心温度は UO_2 が等軸晶成長を起こすしきい値のわずかに下にある。小さな出力増加が生じるか、あるいはギャップ・コンダクタンスがわずかに減少して燃料の温度が上昇すると等軸晶が成長し、その結果結晶成長領域においては核分裂ガスの大部分が放出される。この放出されたガスによってペレットの周囲のヘリウムが薄められ、熱伝達特性が減少してさらに温度が上昇するとともに燃料の結晶成長が生じる。(寿命末期にお

LEGEND

<u>CLAD OD</u>	<u>AVERAGE INITIAL FUEL DENSITY</u>
○ NOMINAL (≤ 0.440 IN.)	NOMINAL ($\geq 93\%$ TD)
⊗ NOMINAL	LESS THAN NOMINAL
□ GREATER THAN NOMINAL	NOMINAL
⊠ GREATER THAN NOMINAL	LESS THAN NOMINAL

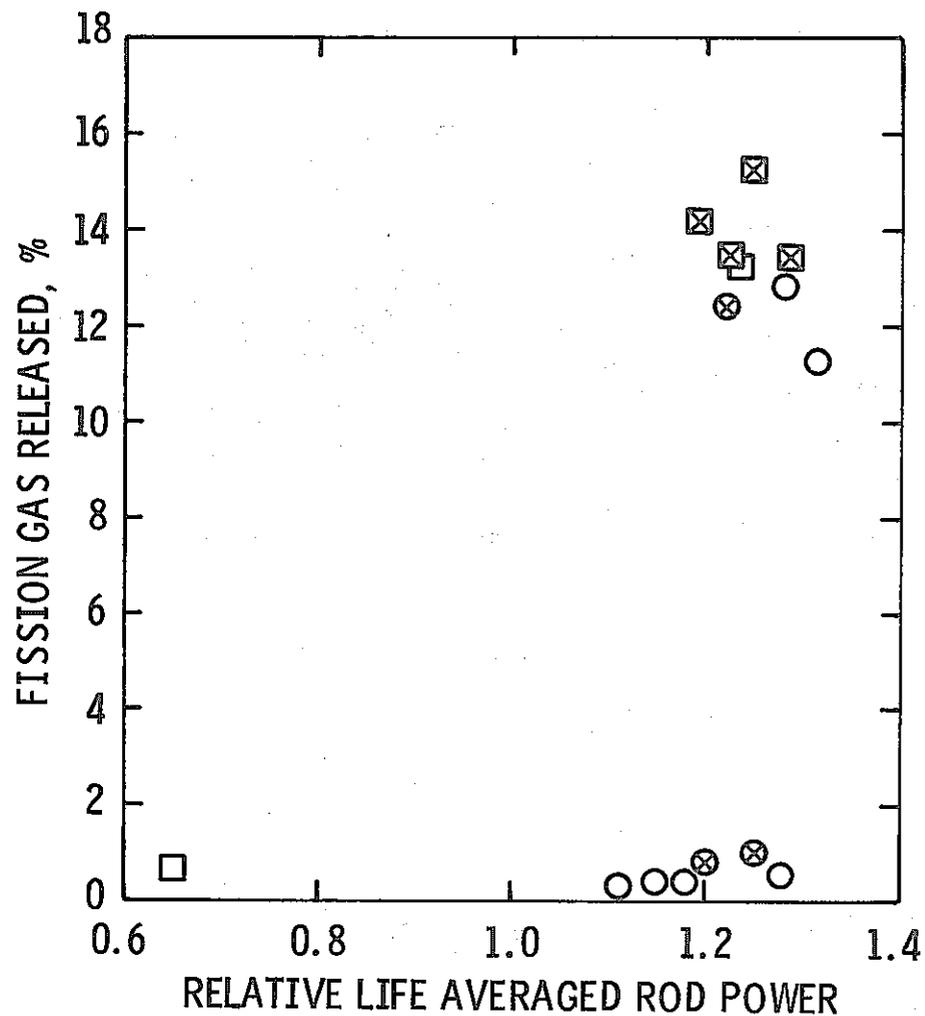


Fig. 6-3 核分裂ガス放出率と寿命中平均の燃料棒出力との関係

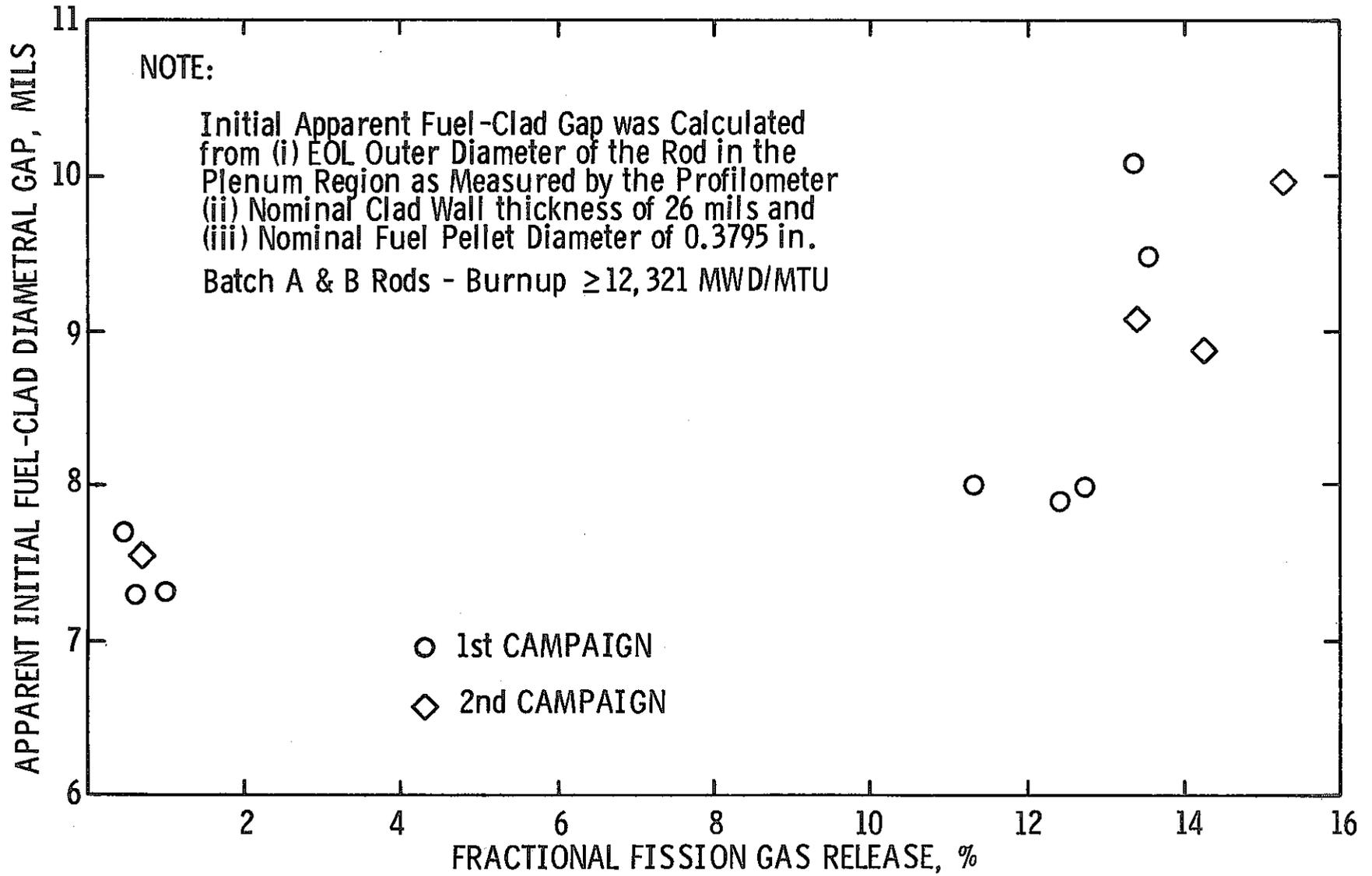


Fig. 6-4 見かけの初期燃料 - 被覆管ギャップ対核分裂ガス放出率

けるガス放出率が11.3～15.3%ということは、He に対する Xe + Kr のモル分率が約4対1であることを意味し、これは充填ガスの熱伝導率がFig. 6-5に示されているように約10分の1に減少することに相当する。) 充填ガスがさらに薄められると隣接ペレットの温度も上昇し結晶成長が始まる。この過程が最終的に燃料棒の軸方向に沿って伝播する。核分裂ガス放出データから、1%以上のガス放出を示した燃料棒はこの過程によって寿命末期の放出率が11～15%に達したということは明らかである。

熱伝達特性減少の過程は、燃料-被覆管ギャップを減少させる燃料の熱膨張、スエリングおよびロケーションによって終了する。ギャップの減少に加えて、ギャップ・コンダクタンスに及ぼす核分裂生成ガスによるヘリウムの希釈の影響が減少することによっても停止させられる。これは充填ガスの熱伝導率がヘリウムのモル分率に依存することを示しているFig. 6-5に見ることができる。

同じような出力レベルで運転されたすべての燃料棒が熱伝達特性の減少を経験しなかったという原因は、燃料間における初期のギャップ・サイズや UO_2 の焼きしまり性の差異に起因する運転中の実際のペレット-被覆管ギャップの変動に求めることができる。初期のギャップ・サイズが大きく、炉内での UO_2 の焼きしまりが大きければ、高いガス放出率を示した燃料棒において等軸晶成長が生じる温度に燃料の温度が達するということが信じられている。低いガス放出率を示した燃料棒ではこれらの性質の組合せがまれにしか起こっていなかったため、低い燃料温度で運転される傾向にあった。このようにして、高いガス放出率を示した燃料棒は燃料温度の上昇につれて等軸晶の成長を経験したが、低いガス放出率を示した燃料棒においては同じような温度上昇があったけれども結晶成長は起こらなかった。

要約すると、それ以上の温度では熱伝達特性の減少過程が活発になるというしきい値として、 UO_2 の等軸晶成長に対する最低温度が上で述べたメカニズムによって明らかになる。いったんこのしきい値に達すると、大きくなった核分裂ガス放出率のため初期のペレット-被覆管ギャップ・サイズ(被覆管の外径で示される)や燃料の焼きしまり性(初期の燃料密度で示される)の変動によって初期に引き起こされた燃料棒間の温度差がさらに大きくなる。Fig. 6-3は、公称値の燃料密度および被覆管外径に対しては、寿命平均の燃料棒出力係数が1.26を越えなければしきい値の温度には一般に達しないことを示している。HBU-169のような公称値以上の被覆管外径で公称値以下の燃料密度を有する燃料棒に対しては、燃料棒出力係数が1.20においてこのしきい値温度に達する。このようにして、Maine Yankee の第I炉心燃料は等軸晶成長が生じるしきい値温度の近傍にいくつかの燃料ペレットの中心温度が達するような照射履歴および燃料パラメータ(特に燃料の焼きしまり性)の組合せを有していた。したがって、公称の初期ペレット-被覆管ギャップおよび焼きしまり性を有して高出力で運転されたペレット、ならびに焼きしまりやすい性質および大きな初期ペレット-被覆管ギャップを有して低出力で運転されたペレットは、自然にあるいは出力変動に伴って核分裂ガス放出率の増加を経験した。この

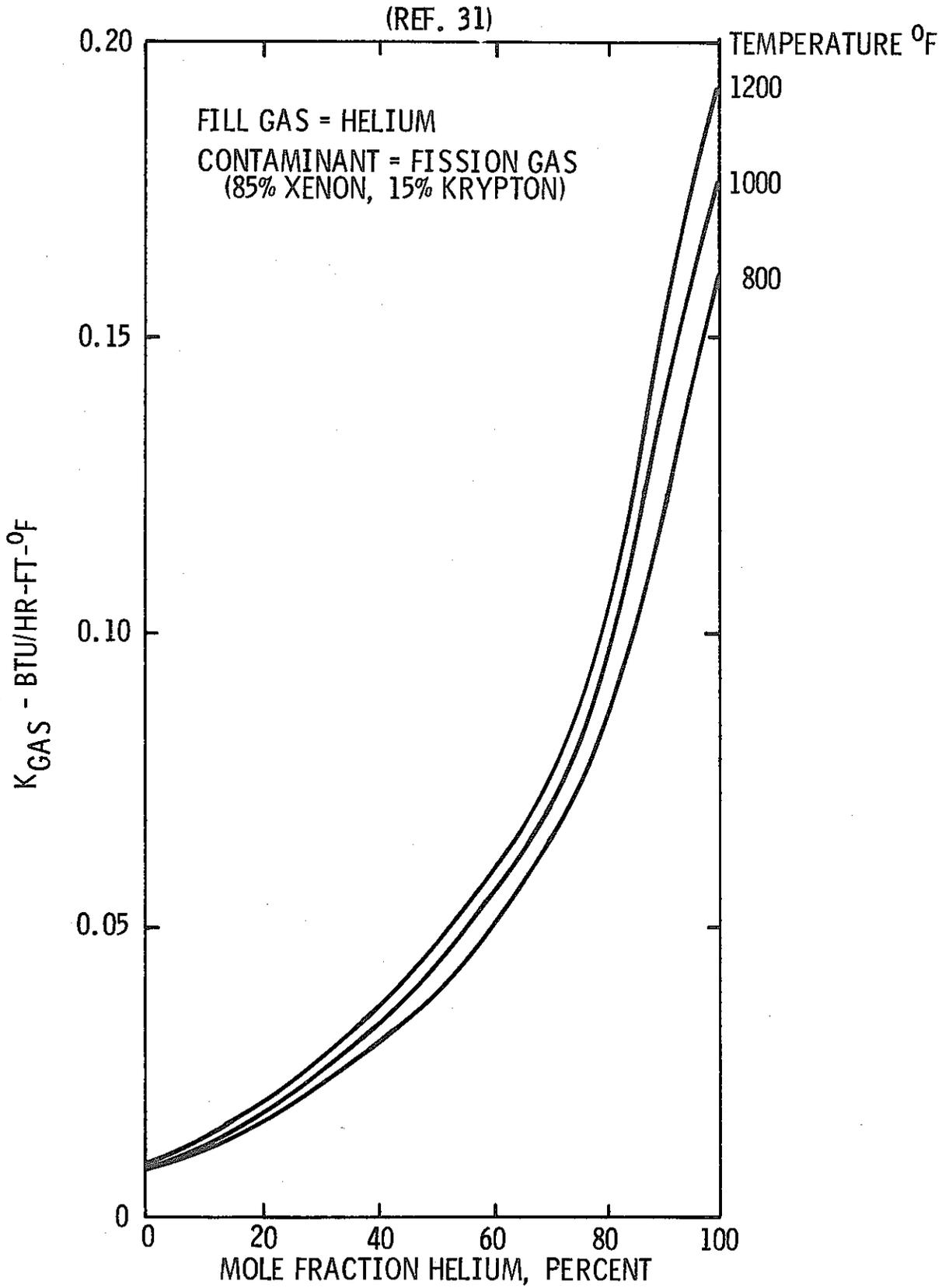


Fig. 6-5 ヘリウム混合ガスの熱伝導度に及ぼす核分裂ガス希釈の影響
(参考文献 31)

ガス放出率の初期増加によって燃料の温度上昇および結晶成長がさらに引き起こされ、局所的な熱伝達特性の影響が燃料棒全体に広がり燃料のかなりの部分が等軸晶成長温度以上で運転された。燃料棒の熱伝達特性の減少は、ギャップ・コンダクタンスに及ぼす核分裂ガス放出や温度上昇に起因するペレット-被覆管ギャップの減少の影響が小さくなることによって停止する。

6.3 燃料の焼きしまりとスエリング挙動

高いガス放出率を示した3本の燃料棒の種々の軸方向位置および低いガス放出率を示した燃料棒の1箇所から採取した燃料ペレットの照射後密度を水銀浸漬法（mercury immersion method）によって測定した（Table 4-15参照）。この節においては、2種類の異なった核分裂ガス放出率を示した燃料棒の燃料焼きしまりおよびスエリング挙動を特性化し、部分的に熱伝達特性の減少過程を説明する。興味あることには、データの解析によって UO_2 の焼きしまりに及ぼす温度と核分裂率の別々の影響を決定するための方法も与えられた。

CEによって行なわれた炉内試験(20)と同様に、EEI/EPRI共同の焼きしまり試験計画(19)において、同じ燃焼度まで照射された燃料ペレットでも焼きしまりの速度および程度が異なっているということが観察された。高い燃料温度は高い核分裂率によって引き起こされたので、その結果によって核分裂率と温度に起因する効果を分離することはできなかった。本試験の場合には、高いガス放出率を示した燃料棒および低いガス放出率を示した燃料棒の同程度の燃焼度位置から採取したペレットは、同じような核分裂率で運転されたが温度は異なっていた。したがって、これらのペレットの焼きしまり挙動を比較することによって2つの効果を分離することができる。

水銀浸漬法で得られた密度データが、Cs-137のガンマ・スキャン結果に基づいて計算された燃焼度の関数としてFig. 6-6にプロットされている。この図に示されている初期密度は、燃料のスタック重量と燃料寸法の公称値を使って計算した燃料棒平均密度に、幾何学的な計算による密度と水銀浸漬法による密度とを調整するために0.5% TDを加えたものである。*

観察された燃料密度増加は2.5~5.5%の範囲である。高いガス放出率を示した燃料棒から採取したペレットの焼きしまり挙動が低いガス放出率を示した燃料棒のものと異なっているということもFig. 6-6から明らかである。EEI/EPRIおよびCEの試験(19, 20)で指摘されているように、非常に小さなポア・サイズを有するペレットはそれらの初期密度が低い場合には焼きしまりを起こしやすい。この場合には、それは燃料棒の低燃焼度位置のものに対してだけ正しい。また、これらの初期の研究によって燃料の密度増加は初期密度の差によって変動するが最終的には大体同じ密度に達するという事も示された。これはこの場合には確かに正しくない。こ

* 燃料寸法の公称値を使うことから生じる不確かさは、スタック長の公差に基づいて $\pm 0.17\%$ TDと見積られている。

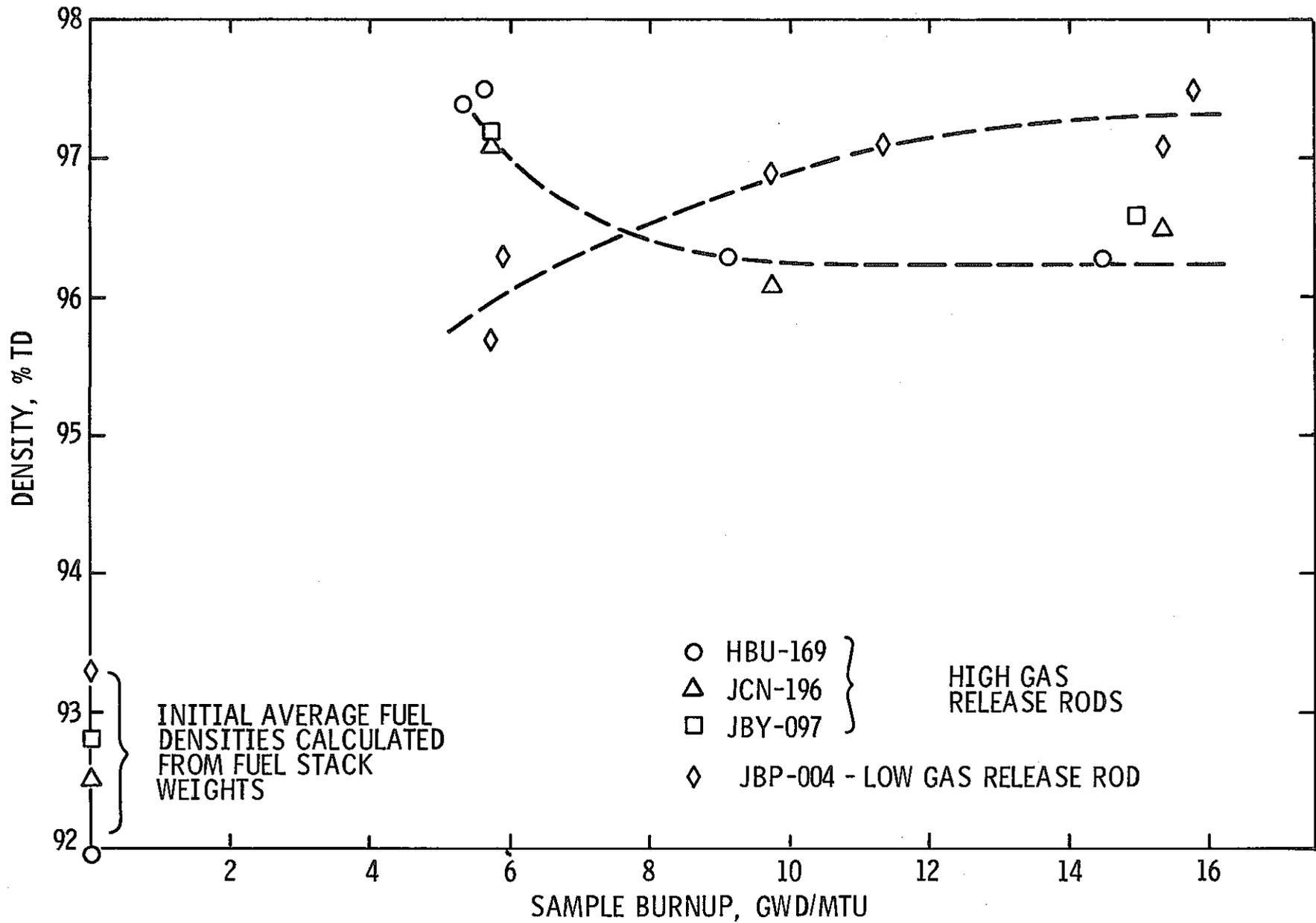


Fig. 6-6 Maine Yankee 燃料棒の種々の軸方向位置から採取された照射燃料試料の浸漬密度

の見かけ上の異常な挙動に対する説明は以下のデータ考察の節に示されている。

Fig. 6-6において、5,300-5,900 MWD/MTUの範囲のデータは、燃料棒の下部から2-1/2~3インチおよび133-1/2~134インチの軸方向位置（ここでは局所的な出力は低かった）に対応している。これらの低出力位置においては、低いガス放出率を示した燃料棒では95.7~96.3%TDまで焼きしまりを起こしたのに比べて高いガス放出率を示した燃料棒では97~97.5%TDまで焼きしまりを起こした。低いガス放出率を示した燃料棒と高いガス放出率を示した燃料棒の出力分布および出力履歴は同じようなものであったので、両方の燃料棒から採取されたペレットは同程度の核分裂率で運転された。したがって、熱伝達特性の減少が始まるまでは両方のグループから採取されたペレットは多分非常に類似した核分裂率および温度で運転され、焼きしまりの程度も同じであったであろう。しかし、高いガス放出率を示した燃料棒において熱伝達特性の減少が始まった後では、これらの燃料棒の燃料温度は上昇した（等軸晶の成長が観察されなかった5,300-5,900 MWD/MTUという低燃焼度においてさえ）。このようにして、高いガス放出率を示した燃料棒における低燃焼度ペレットは、低いガス放出率を示した燃料棒における同じようなペレットの温度よりもかなり高い温度で運転された。したがって、高いガス放出率を示した燃料棒がこのように後になって高い温度で運転されたことが、これらのペレットが大きな焼きしまりを生じた原因であると結論づけられる。この観察結果は、温度がEEI/EPRI計画(19)で観察された一定の燃焼度における焼きしまり挙動の差を生じる主要な変数であるという結論を支持している。

Fig. 6-6は、低いガス放出率を示した燃料棒から採取した燃料ペレットの場合には燃料の焼きしまりは燃焼度が増加するとともに増大しているということも示している。照射時間はすべてのペレットに対して同じであるので、これは寿命中平均の線出力が増大するとともに焼きしまりも大きくなるということと同等である。したがって、この関係は燃料棒の高燃焼度領域から採取された試料が高出力で運転されたということを反映している温度上昇の効果に起因するものである。（この依存性は核分裂スパイク（fission spike）の総フルーエンス（fluence）が増加したことに起因しているかも知れないが、そのような効果は一般に燃焼度が4,000 MWD/MTU以内に完了する（19, 21）。）これに加えて、図にプロットされている燃料密度はスエリングと焼きしまりの両方の影響を反映しているので、高温での運転に起因する大きな焼きしまりはスエリングの成分より大きくなりペレットは燃焼度と共に正味の密度が増加している。

低いガス放出率を示した燃料棒の傾向に反して、高いガス放出率を示した燃料棒から採取したペレットは約9,400 MWD/MTUの燃焼度において約5,600 MWD/MTUの燃焼度におけるよりも低い密度を示している。また、燃焼度が9,400 MWD/MTUから約15,000 MWD/MTUに増加しても密度は本質的に変化していない。高いガス放出率を示した燃料棒から採取したペレットは、たとえそれが低出力位置におけるものであっても、焼きしまりが温度に依存していると考えられている範囲以上の温度で運転された。焼きしまりが完了するのに十分な燃焼度であった

ので、燃焼度が増加しても焼きしまりの変化は期待できない。そこで、高燃焼度において密度が低いのはスエリングが大きいことに起因していると仮定することができる。

金相試験によって、8,000 MWD/MTU 以上の燃焼度のペレットは等軸晶成長が半径の約50%に達するまで組織変化を起こしていることが確かめられた。ガス状の核分裂生成成分の合体および増加に起因する空孔 (porosity) が組織変化によって相当な量結晶粒界に生じた。したがって、5,600 および 9,400 MWD/MTU の燃焼度の間で密度が減少したのは、組織変化を起こした領域のスエリングのためである。組織変化を起こさなかった燃料のスエリング率を $0.4\% \Delta V/V / 10^{20} \text{ fissions/cm}^3$ (22) と仮定し、組織変化を起こした領域と起こさなかった領域の体積比を考慮すると、組織変化を起こした領域の平均スエリング率は $1.6\% \Delta V/V / 10^{20} \text{ fissions/cm}^3$ と計算される。

約 10,000 MWD/MTU 以上の燃焼度では密度減少が観察されていないので、データはスエリングが約 10,000 MWD/MTU 以内の燃焼度で最大値に達することを示している。約 10,000 MWD/MTU という低い燃焼度でスエリングが飽和することに対しては、高いガス放出率を示した燃料棒の高出力位置 (約 15,000 MWD/MTU) においてはスエリングおよび高温運転によってペレット - 破覆管ギャップが減少しその結果機械的な相互作用が発生したからであるという説明をすることができる。このように、最高出力位置において全体的なスエリングが小さいのは、低出力位置 (約 10,000 MWD/MTU) においてはスエリングが拘束されていないのに比較して、燃料のスエリングが拘束された結果であるかも知れない。

要約すると、ペレットは燃料棒の軸方向位置に依存して 2.5~5.5% の焼きしまりを起こしていることを燃料密度データは示している。高いガス放出率を示した燃料棒の低燃焼度におけるペレットは、低いガス放出率を示した燃料棒のものよりも約 1.5% 高い密度を示した。この差異は、焼きしまり過程の温度依存性に起因している。焼きしまりの量は初期密度が減少するにつれて増加するということも密度データによって確かめられた。これは、高いガス放出率を示した燃料棒では熱伝達特性の減少が生じたのに、同じような出力履歴を有する低いガス放出率を示した燃料棒では熱伝達特性の減少が生じていないことを説明するための焼きしまり性の役割を支持している。燃料密度データの解析によって、高いガス放出率を示した燃料棒の高出力領域においては熱伝達特性の減少過程の開始に続いて相当な燃料スエリングが生じるということも示され、したがって、熱伝達特性の減少過程を終らせるためのスエリングの役割を支持している。

6.4 結晶成長データの解析

金相試験のデータによって、高いガス放出率を示した燃料棒のみが相当量の UO_2 等軸晶成長を示したということが分った。この節においては、Maine Yankee の第 I 炉心燃料の結晶成長特性を、等軸晶成長の開始に対する“最良評価 (best estimate)” 温度を求めるために調べた。(これは、メカニズム的な評価 (mechanistic evaluation) および等軸晶成長データの温度

解析を含んでいる。)

6.4.1 結晶粒径測定および等軸晶成長の境界

Fig. 6-7に、結晶粒径の半径方向プロファイル (profile) がJBP-005の3つの軸方向位置から採取された試料に対してプロットされている。結晶粒径は直線インターセプト法 (linear intercept method)によって測定され、報告値は約300個の結晶粒径の平均である。

金相試料から等軸晶成長の外側の境界を定めるために、結晶が成長し、かつ結晶粒界に核分裂ガス・バブル (fission gas bubble) が観察された場合にその位置が等軸晶成長領域として分類された。等軸晶成長領域の外側境界において、結晶は初期の大きさの1.6~2倍に成長していた。(この程度の大きさの結晶成長は、低いガス放出率を示した燃料棒の最大出力領域 - そこでは結晶粒界に核分裂ガス・バブルはなかったが - でも観察された。) このように、等軸晶成長の外側境界においては結晶粒径は約4.8~6 μm の範囲であった。

Fig. 6-7から明らかなようにJBP-005の10-7/8インチおよび94-9/16インチの軸方向位置において、燃料は半径の60%まで組織変化を起こしている。燃料棒の下部から6インチの燃料断面では、燃料の表面から中心に向かって結晶粒径が徐々に増加しているのが観察された。しかし、クライテリアに従ってその結晶粒径増加は等軸晶成長としては分類されなかった。

等軸晶成長領域においては、一般に結晶粒径が燃料の中心に向かって大きくなっているのが観察された。94-9/16インチの燃料断面はこの傾向を示している。

いくつかの例 (例えば、10-7/8インチの断面) では、ペレットの中心における結晶粒径は温度が高いにもかかわらず中心から離れた位置におけるものよりも幾分小さかった。この効果に対する1つの説明は、ペレットの中心においては中心から離れた位置に比較して結晶成長が核分裂生成物によって妨害されるからである。この軸方向位置における燃料ペレットの温度履歴は、結晶成長の開始前に中心の近くの結晶粒界でガス状核分裂生成物の凝集が起こるようなものであったかも知れない。しかし、半径比 (r/r_0) が0.24の位置において、温度は核分裂生成物を留めて置くのに必要な温度よりも低かった。一方、燃料棒の最大出力位置においては、熱伝達特性の減少が起こる以前の中心から離れた位置 ($r/r_0 \approx 0.2 \sim 0.4$) の温度は、結晶粒界に核分裂生成物を留めるのに必要な温度よりも高かったかも知れない。したがって、核分裂生成物の拘束は全断面にわたって等しかったかも知れず、観察された結晶粒径は熱的なプロファイル (thermal profile) だけから予想されたものと同じである。

6.4.2 結晶成長温度のメカニズム的評価

燃料温度の評価は、しばしば等軸晶および柱状晶成長のような燃料中の組織変化の観察結果から行なわれる。等軸晶および柱状晶成長の境界に関連した温度は幾分不明確であり、文献 (23-27) にも温度範囲が提案されて来た。提案された温度範囲の中で最も頻度の高かったのは、等

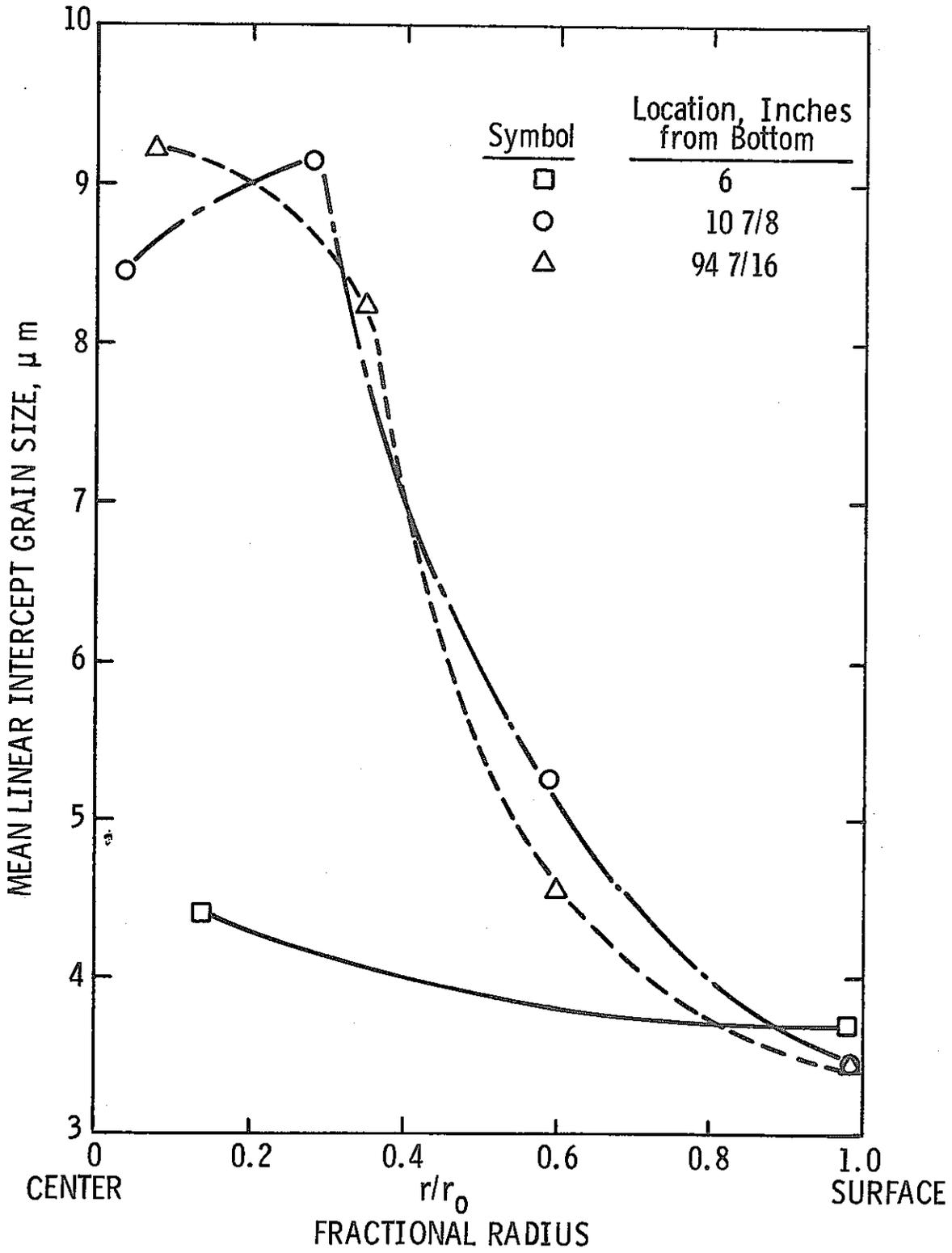


Fig. 6-7 JBP-005の種々の軸方向位置における,ペレット半径方向位置の関数としての結晶粒径

軸晶成長の開始に対しては 1300-1500℃、また柱状晶成長への遷移点に対しては 1600-1800℃であった。Maine Yankee 第 I 炉心燃料の場合にはどの燃料断面でも柱状晶成長は観察されなかったため、以下の考察は等軸晶成長の検討に限定されている。

報告された結晶成長温度の差異の一部は、燃料の製造方法、初期の結晶粒径および空孔特性 (porosity characteristic) の違いに起因している。公開された UO_2 の結晶成長データのレビューに基づいて、Beyer および Hann (28) は等軸晶成長の開始に対する最も矛盾の少ない推奨値は 1400℃と 1500℃の間の温度であると結論づけた。柱状晶成長温度の最良評価 (best estimate) 値および柱状晶成長温度と等軸晶成長温度の差 300℃を考慮して、彼らは等軸晶成長が始まる温度として 1400℃を採用した。

しかし、上の推奨値は燃料の初期結晶粒径と空孔特性の影響を含んでいない。一般に、結晶成長は初期の結晶粒径が小さいほど速い (29)。また、空孔が結晶粒界の移動を妨害するということが知られている。したがって、照射の初期段階で焼結空孔の大部分が除去された焼きしまり燃料 (densifying fuel) は、空孔が長期間存在して結晶成長を妨げている未焼きしまり燃料 (nondensifying fuel) に比較して結晶の成長が速そうである。Maine Yankee 燃料での結晶成長は、燃料が十分に焼きしまりを起こし、また約 3 μm という小さな初期結晶粒径を有していたので、1400℃以下の温度で生じたということがこれらの両方の要因によって示唆される。

最近 Ainscough ら (25) は、 UO_2 の炉内および炉外での結晶成長機構を報告した。彼らの結果は、炉内および炉外における UO_2 の結晶成長は結晶粒径がある限界の大きさに達するまで続くということを示している。限界の結晶粒径は温度の上昇と共に大きくなるが、炉内においては同一温度における限界の結晶粒径は核分裂生成物による結晶粒界拘束 (grain boundary pinning) のため炉外での対応する値よりも小さい。炉内において限界の結晶粒径に達するのに要する時間は、炉外において要する時間よりもかなり短い。核分裂生成物による拘束効果 (fission-product pinning effect) を考慮して、Ainscough ら (25) は 1200, 1300, 1400 および 1500℃の温度に対してそれぞれ 5.4, 7.0, 9.9 および 14.3 μm という限界結晶粒径を予測した。上の予測は 5 μm の初期粒径を有し 8 kw/ft 以下の線出力で運転された UO_2 燃料に対するものである。彼らの予測に従うと、10 μm の初期粒径を有する試料は 1500℃以下では観察できるほどの結晶成長を示しそうにはない。一方、5 μm の初期粒径を有するものは 1300℃でも測定できるほどの結晶成長を示すであろう。彼らの炉外データは、1200℃で 2 年間焼鈍 (annealing) した後でも結晶成長は観察されなかったため、結晶成長の最低温度は 1200℃以上であることを示している。

上で述べた考察に基づいて、Maine Yankee 燃料の結晶成長開始に対する最良評価温度として 1300℃が採用された。しかし、等軸晶成長領域の外側境界を決定するためには粒界に核分裂ガス・バブルも観察されなければならないという規準 (criterion) に基づいて、境界温度は 1350℃であると評価される。最高線出力位置では、ペレットの中心温度の計算値 (最良評価)

は等軸晶領域の外側境界における温度よりも約230℃高く、ペレットの中心温度は1580℃と評価される。これはChristensen (27) によって測定された柱状晶成長の最良評価温度1650℃よりも低く、したがって、ペレットの中心で柱状晶の形成が観察されなかったことと一致している。

6.4.3 等軸晶成長の温度解析

結晶成長境界と関連した燃料温度の別の評価を得るために、等軸晶成長データの温度解析を行った。これには、Maine Yankee 第I炉心の運転期間における燃料-被覆管ギャップおよび燃料温度を評価するために、ホット・セル試験で得られた燃料棒の寸法および核分裂ガス放出のデータを使用した。温度の計算手法の概要は参考文献(30)に記載されており、この“CE Fuel Evaluation Model Topical Report”は、与えられた燃料-被覆管ギャップに対して燃料棒の温度分布を計算するために使われた。その参考文献に示されている混合ガスの熱伝導度曲線、燃料の積分熱伝導度曲線および燃料と被覆管の熱膨張係数も温度計算に使用された。解析に必要なペレット-被覆管ギャップは、照射後試験のペレット-被覆管ギャップデータ (Fig. 6-8) に基づいた燃料棒の寸法に関する情報、燃料の焼きしまりとスエリングのデータ (第6.3節) および被覆管のクリープダウンデータ (第6.6節) から得られた。燃料棒内のガス組成は核分裂ガス放出データによって決められた。これらの燃料棒の線出力は第5節で論じられた出力履歴データから得られた。

今までに概要を述べた温度計算手法で得られた温度分布を結晶成長の外側領域と比較した。この結果、結晶成長境界に対応する最良評価温度は 1350 ± 50 ℃であることが示されたが、これはメカニズム的評価の結果と一致している。

低いガス放出率を示した高燃焼度燃料棒に対しても同様な温度評価が行なわれ、その結果、最大出力領域の燃料中心温度は約1300℃であることが示されたが、これは等軸晶成長に必要な最低温度に非常に近い値である。

Fig. 4-78に示されている等軸晶成長の軸方向プロファイルは、低出力ペレットが高いガス放出率を示した燃料棒の高出力ペレットに近い温度かあるいはそれよりも高い温度で運転されたということを示しているということにこの時点で注目することも価値のあることである。ギャップ減少機構の本質によって、低出力領域におけるペレット-被覆管ギャップは高出力領域のギャップよりも大きいので、ギャップ熱伝達率は小さくなる。これは、ペレット-被覆管ギャップにおける温度差(ΔT)が大きいことに対応している。高いガス放出率を示した燃料棒(小さなガス熱伝達率)においては、大きなペレット-被覆管ギャップに起因する ΔT の増大が低出力ペレットで観察された高い温度を引き起こすのに十分なほど大きかった。

要約すると、結晶成長データの解析によって、Maine Yankee 第I炉心の高燃焼度燃料棒の最大出力領域は熱伝達特性が減少する前に等軸晶成長が始まるのに必要な温度に近い温度で運転されたということが示された。等軸晶成長データのメカニズム的評価と温度解析によって、等軸

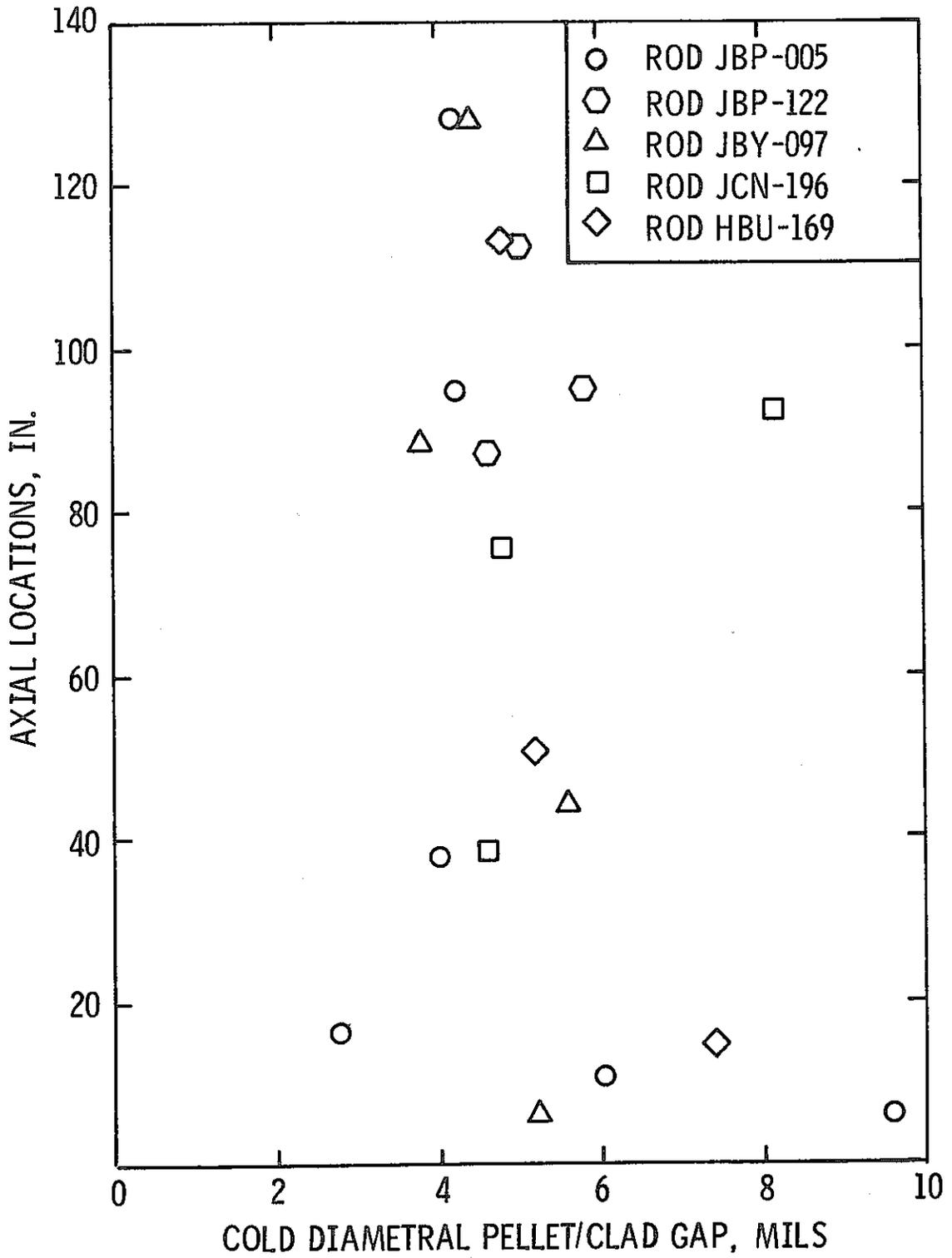


Fig. 6-8 照射後のペレット-被覆管ギャップ(直径)対軸方向位置

晶成長温度の“最良評価値”は1350℃であることが分った。

6.5 結晶成長と核分裂ガス放出の関係

等軸晶成長温度の評価によって、燃料のガス放出と等軸晶成長の間の定量的な関係を、挙動解析コード（performance code）の基準にするために定めることができる。

等軸晶成長を起こさなかったすべての Maine Yankee 第 I 炉心燃料棒は1%以下のガス放出率を有していた。等軸晶成長を経験した燃料は11.3~15.3%のガス放出率を示し、燃料体積の約25%が組織変化を起こした。組織変化が起った後でもガス放出率がまったく同じであると仮定すれば、データは等軸晶成長領域で生成した核分裂ガスの約50%が放出されたということを示すであろう。

Maine Yankee 第 I 炉心燃料における等軸晶成長とガス放出データの観察によって、次のような温度とガス放出の関係が得られる：1350℃以下の温度では生成したガスの1%以下しか放出されず、1350℃以上の温度（ただし、柱状晶成長温度以下）では50%が放出される。このガス放出と温度の関係は結晶成長とガス放出データから説明されるということに注目すべきである。結晶成長温度は製造時の結晶サイズ、不純物レベルおよび空孔（porosity）によって影響を受けるので、それは Maine Yankee 第 I 炉心燃料と異なった結晶成長挙動を示す燃料には適用できないであろう。

6.6 燃料棒の寸法挙動

第4.2節に示されているプロフィロメトリのデータは、著しい例外を除いて高燃焼度を達成した燃料棒は高いガス放出率を示したのも低いガス放出率を示したものも寿命終期において同程度のクリープダウン、オーバリティおよびリッジング・パターンを有していることを示している。データは以下において燃料性能評価の観点から解析されており、例外は燃料棒の熱伝達特性減少過程に照らして説明されている。

6.6.1 被覆管のクリープダウンおよびオーバリティ

高いガス放出率を示した燃料棒（JBP-005）および低いガス放出率を示した燃料棒（JBY-157）に対する代表的な被覆管直径プロファイルを図6-9に示す。クリープダウンの大きさは同程度であり、非加圧型燃料棒および Maine Yankee 第 I 炉心の照射履歴に照らして合理的な値である。EPRI に後援された“軽水炉燃料棒モデリング・コード評価（Light Water Reactor Fuel Rod Modeling Code Evaluation）”に関する第2段階調査（Phase II effort）の一部として研究されたテスト・ケースの1つは、Maine Yankee の高燃焼度を達成した燃料棒に基づいている。推奨されたクリープ式を使うと、Phase II の報告書(31)で予測された被覆管のクリープダウンは測定値とかなり良く一致している。

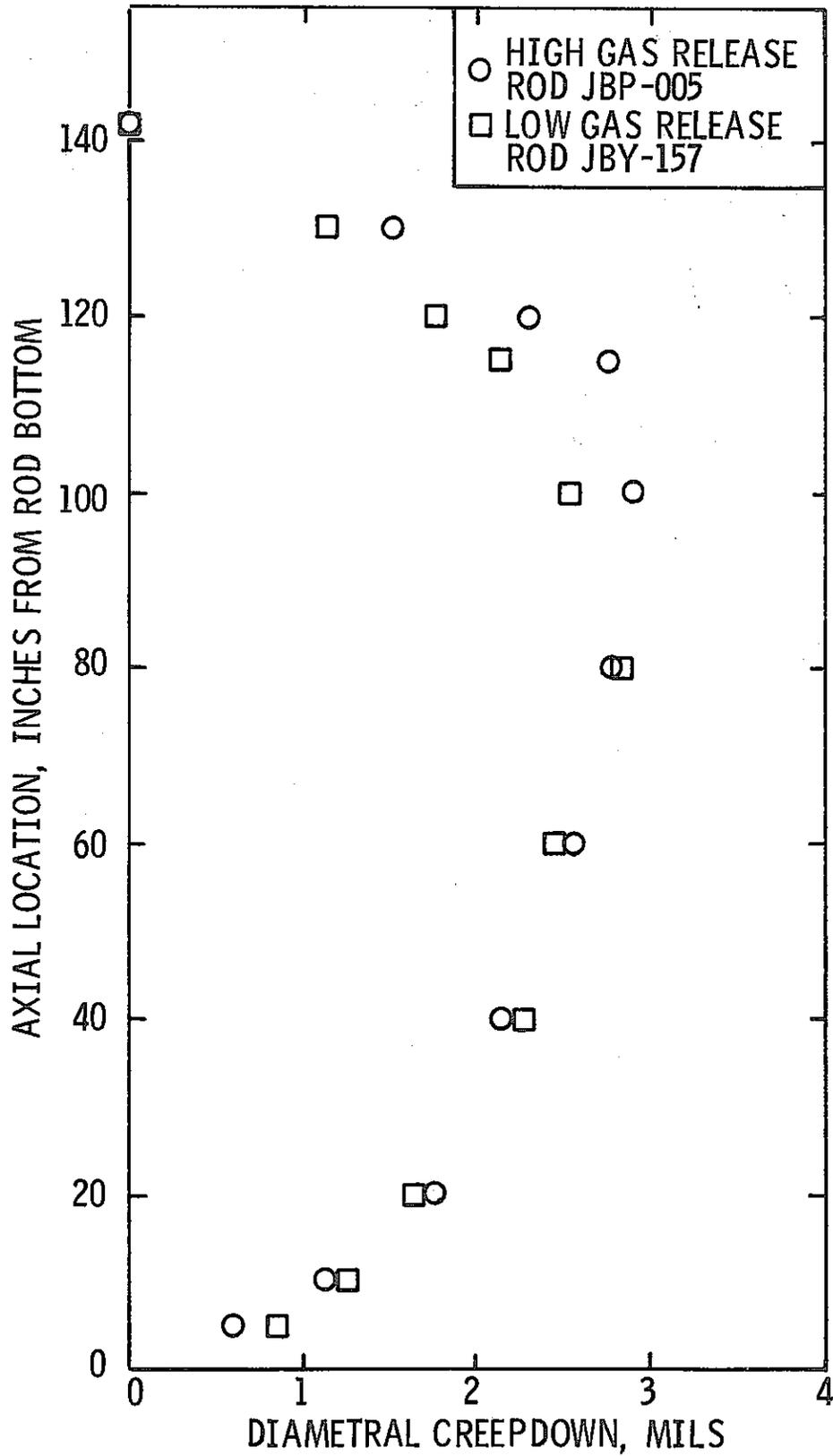


Fig. 6-9 照射後の代表的な被覆管直径のプロファイル

Table 4-2 に示されている各燃料棒に対する最大オーバーリテイの値を対応する最大の被覆管クリープダウンに対してプロットしたのを Fig.6-10 に示す。オーバーリテイはクリープダウンが直径で 1.5 mil を越えた後で急に増加していることが分かるが、この関係は個々の燃料棒のプロフィロメトリ・トレースにも見られる。観察された最大の被覆管オーバーリテイは 16 mil であった。製造時のペレット-被覆管ギャップ寸法、焼きしまりに起因するギャップの増加および燃料の熱膨張とリロケーションに起因するギャップ減少の計算値を考慮すると、この値は運転温度におけるペレットと被覆管の接触によって生じるオーバーリテイに近づく。

第 4.2 節で述べられたように、高いガス放出率を示した燃料棒のうちの 4 本である JCN-182, JCN-199, JBP-027 および JCN-196 は、低いガス放出率を示した燃料棒と同程度のクリープダウンおよびオーバーリテイを有する他の 4 本の高いガス放出率を示した燃料棒よりも小さなクリープダウンおよびかなり小さな最大オーバーリテイを示した。小さなクリープダウンを示したこれら 4 本の燃料棒の軸方向の被覆管クリープダウン・プロファイル、および高燃焼度を達成した燃料棒で低いガス放出率を示したもののクリープダウン・プロファイルを Fig.6-11 に示す。燃料棒の熱伝達特性減少過程およびそれに続く燃料挙動の知見に基づくと、この被覆管クリープダウンの異常は以下の方法で説明することができる

1. 燃料棒がいったん熱伝達特性の減少を経験すれば、ペレット-被覆管ギャップは熱膨張およびスエリングによって減少するであろう。したがって、熱伝達特性が減少した燃料棒のペレット境界においては燃料と被覆管の接触が比較的早く起こるであろう。ペレットと被覆管の接触によって、被覆管のクリープダウンおよびオーバーリテイの進行は停止するかあるいは遅くなるであろう。被覆管クリープダウンの支持 (support) が (熱伝達特性の減少が起った後) 持続する時間の長さはペレット-被覆管ギャップに影響を与えるパラメータ、例えば燃料温度に依存している。

2. Fig.6-11 に示されているプロファイルから、JCN-182 および JBP-027 はたぶん早い時期に熱伝達特性の減少 (および/または被覆管クリープダウンの停止) を経験し、JCN-199 および JCN-196 は後になって経験したのであろうということが結論づけられる。このことは、後者の場合には燃料棒の熱伝達特性減少過程が燃料寿命の比較的遅い時期 (約 8,000 MWD/MTU) に始まったことを示唆している。8,300 MWD/MTU の時点において炉心出力が初めて 95% に上昇したことから見て、これは不合理ではない。

上で述べた説明は、高いガス放出率を示した燃料棒のうちの 4 本の“正常な”ものは次の 2 つの可能性のいずれかであることを示唆している。

- (1) Maine Yankee 第 I 炉心の運転末期に熱伝達特性の減少を経験した。

- (2) 熱伝達特性の減少が生じた後では低い温度で運転されたため、被覆管のクリープダウンが持続するのを許容するような大きなペレット-被覆管ギャップを有していた。

最初の可能性が起こるためには、炉心出力が比較的 low (80%) かつギャップが比較的 small

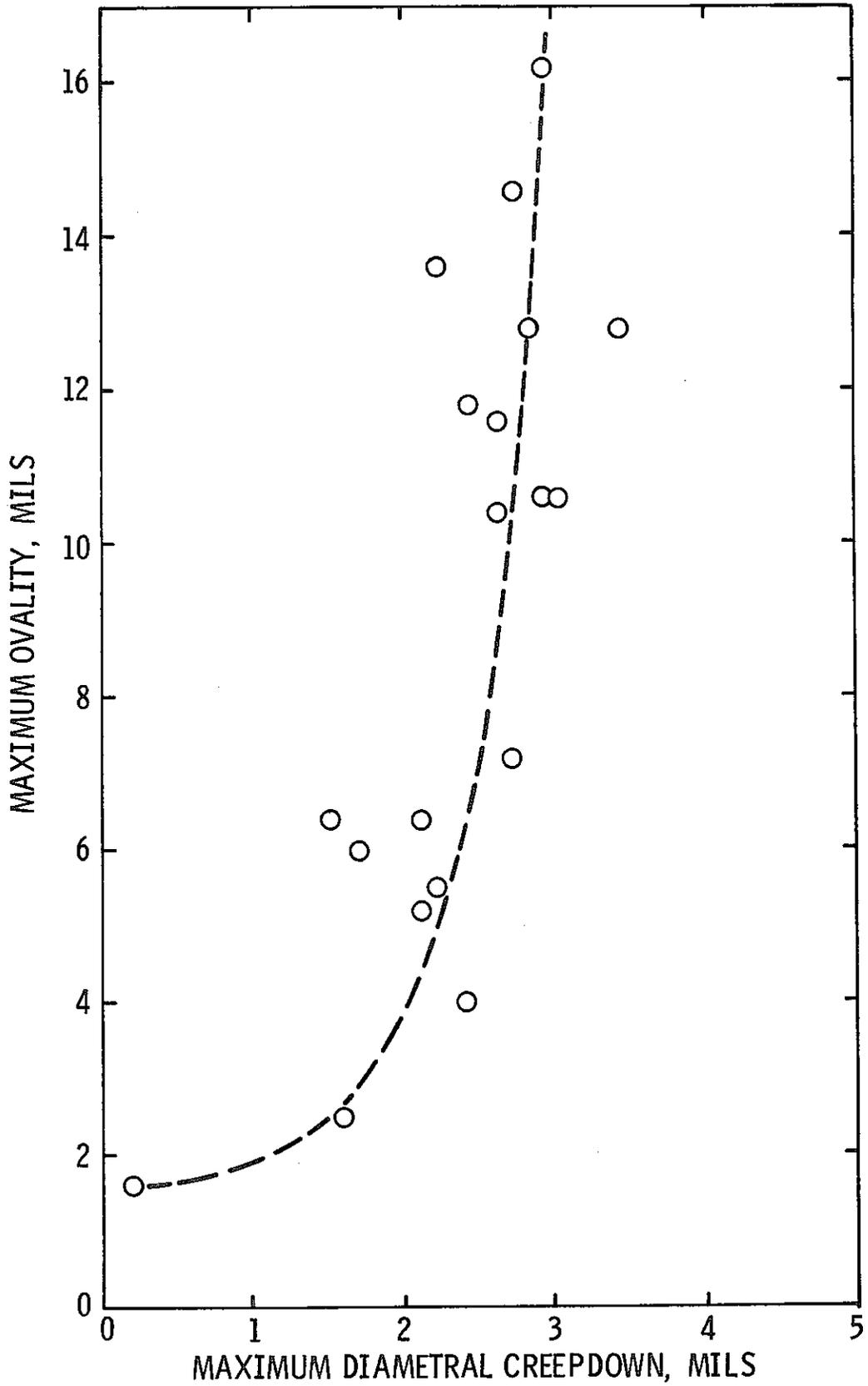


Fig. 6-10 被覆管のクリープダウンとオーバリティとの関係

RELEASE RODS

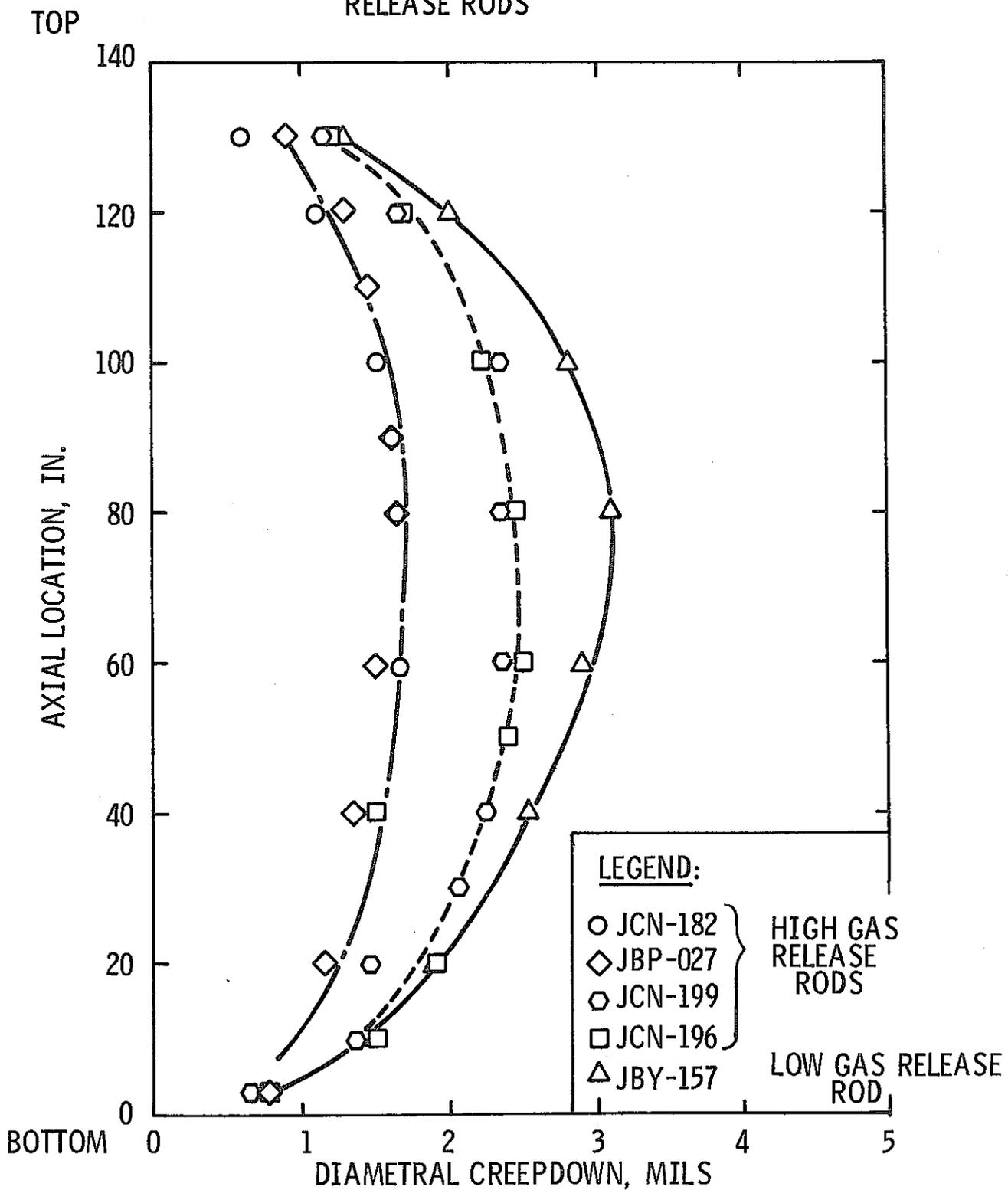


Fig. 6-11 4本の高ガス放出率燃料棒の異常な被覆管クリープダウン

い時に熱伝達特性の減少が生じる必要があるので、これは可能性が小さい。もし小さなクリープダウンを示した4本の燃料棒が高いガス放出率を示した4本の“正常な”燃料棒のペレット-被覆管ギャップよりも小さなギャップ（熱伝達特性の減少が起った後で）を与えるような出力履歴を有していたならば、2番目の可能性が支持されるであろう。興味のあることは、小さなクリープダウンを示したすべての燃料棒（すべてバッチB集合体からのもの）は集合体の北側に位置しており、一方高いガス放出率を示したバッチBの“正常な”燃料棒は南側に位置している（Fig. 6-1 および 6-2 参照）。燃料棒の相対的な出力履歴を調べた結果、小さなクリープダウンを示した燃料棒は一般に燃焼度が進行するのにつれてその相対出力を維持するか、あるいは高いガス放出率を示した燃料棒のうちの“正常な”ものよりも小さな出力減少を経験した。

上述の解析は、高いガス放出率を示した8本の燃料棒のうちの4本の被覆管クリープダウンの測定値が予測値よりも小さいのは燃料棒熱伝達特性の減少に関連づけることができるということを示している。熱伝達特性減少後の温度上昇はしばらくの間維持され、ペレット-被覆管ギャップが著しく減少し被覆管クリープダウンを遅くするかあるいは停止させるペレット-被覆管相互作用が強められる。しかし、高いガス放出率を示した4本の“正常な”燃料棒の場合には、高い燃料温度が維持されず被覆管クリープダウンが停止されなかった。

6.6.2 リッジング

高いガス放出率を示した燃料棒および低いガス放出率を示した燃料棒の両方の高出力領域のスパイラル・プロフィロメトリ・トレースから、0.1 mil のオーダー（最大0.25 mil）の被覆管リッジ高さが観察された。また、高いガス放出率を示した燃料棒のペレット境界における直線プロフィロメトリ・トレースでは0.4 mil までの著しいリッジが観察された。（低いガス放出率を示した燃料棒に対しては直線プロフィロメトリが行なわれなかったため、これらの大きなリッジが高いガス放出率を示した燃料棒だけに限られているのかどうかは分からない。）

高いガス放出率を示した燃料棒に対して得られた直線プロフィロメトリ・トレースは、リッジは一般に局部的に生じており、円周方向に連続的ではないとともにペレット境界においてオーバリティの長短両軸方向（大部分は短軸方向であるけれども）に現われているということを示している。また、これらの領域におけるオーバリティは変化している。このことは、燃料がオーバリティを有する被覆管に適合するように外方向に再配置、膨張する傾向にあり、燃料自身もオーバリティを有していたということを示唆している。燃料断面の金相写真から得られた直径の測定値もこの観察結果と一致している。

Table 4-14 に記載されている被覆管クラックの特徴は、クラックがオーバリティを有する被覆管の長短両軸に観察されたこと、および一般に最大応力点と考えられている燃料の半径方向クラックの近傍のペレット境界に位置していたことを示している。JBY-097 の場合には、被覆管のクラックは0.4 mil の高さのリッジと関係していたが、リッジはオーバリティの短軸方向

にあったのにクラックは長軸方向にあった。リッジの存在は強い燃料 - 被覆管接触の証左であり、同じ横断面に被覆管クラックが観察されたということは驚くに値しない。

6.7 燃料棒熱伝達特性の減少，ペレット - 被覆管相互作用および燃料棒破損

データ解析のこの時点において，燃料棒熱伝達特性の減少と燃料棒の PCI 破損機構との間に因果関係があるかどうかを検討するのは意味のあることである。そのような関係は，燃料棒熱伝達特性の減少に起因する次の2つの効果を考慮することによって調査すべきである。

- (1) 即発効果 (prompt effect)，例えば急激で大きな温度上昇 (温度ランプ) に起因する PCI
- (2) 遅発効果 (delayed effect)，例えば燃料 - 被覆管ボンディングに起因する出力変化時の PCI

6.7.1 燃料棒熱伝達特性の減少と PCI

燃料棒内のペレットは，出力，初期のペレット密度およびギャップ・サイズの多くの組合わせを表わしている。したがって，燃料棒の軸方向に沿ってギャップ・サイズに変動があるのを予想することは合理的である。被覆管のオーバリティおよび運転中のペレットの偏心のような他の要因が熱伝達特性減少過程の開始時における条件の変化を増大させる。温度上昇を開始する領域は大きなギャップ領域であるのにちがいないが，異なったペレット - 被覆管配列を有する別の領域が急激な温度上昇を受け被覆管に高い応力を生じさせる可能性もある。

ホット・セル試験で観察されたように，熱伝達特性の減少によってセシウムおよびヨウ素が燃料 - 被覆管境界に再分布する。時間が経てば，セシウムの存在によって，ペレット境界における燃料 - 被覆管ボンディングおよびセシウムに富んだ反応領域における局所的な燃料体積の増加が引き起こされる。したがって，熱伝達特性減少の結果として，燃料 - 被覆管ボンディングおよび局所的な燃料体積の増加に起因する局所的な被覆管応力によって出力変化に伴う PCI が発生する可能性がある。即発および遅発機構の両方において，ペレット境界に存在するヨウ素（および多分セシウムも）が応力腐食割れに寄与するであろう。

6.7.2 燃料棒熱伝達特性の減少と燃料棒破損

上で述べた解析は，熱伝達特性の減少の結果温度ランプおよび／または核分裂生成物の再分布によって PCI が誘発され，強められた可能性のあることを示している。したがって，それが Maine Yankee 第 I 炉心燃料の主要な破損機構である。このことを調査するために，核分裂ガスの高放出率および燃料棒破損に対する出力のしきい値が比較される。

核分裂ガス放出データおよび熱伝達特性減少過程の解析において，熱伝達特性の減少が始まる出力のしきい値が存在することが分った。第 6.2 節に示されているように，公称の被覆管直径お

よび公称の燃料密度を有する燃料棒に対する寿命平均の相対的な燃料棒出力のしきい値は約 1.27 である。しかし、大きな被覆管直径および低い燃料密度を有する燃料棒（HBU-169）に対してはそれが 1.20 程度に低くなる。したがって、もし熱伝達特性減少過程が大部分の燃料破損に対する真の原因であるならば、熱伝達特性の減少が始まる出力のしきい値が燃料棒破損の出力しきい値に匹敵しているにちがいない。

そのような概念を支持する証拠は、プールサイドにおける集合体の解体によって確認された破損燃料棒の寿命平均出力因子を示している Table 6-2 に見ることができる。バッチ C の燃料棒を除いて、破損燃料棒に対する最小の出力因子は 1.20 であり、燃料棒出力因子の大部分は 1.26 以上であることが分かる。

要約すると、この解析によって、熱伝達特性の減少が始まった後の PCI は次の 2 つの要因によって生じることが示された：(1)温度ランプおよび(2)燃料-被覆管ボンディング。それに付随して起こるヨウ素とセシウム放出も応力腐食割れに寄与している。したがって、熱伝達特性減少過程が Maine Yankee 第 I 炉心の燃料破損に対する因果連鎖（causation chain）の主要な因子であるらしい。この結論は、燃料棒の熱伝達特性の減少と燃料棒破損の出力しきい値が匹敵していることによって支持される。

Table 6-2 Maine Yankee の破損燃料棒出力

集 合 体 番 号	燃 料 棒 連 続 番 号	寿 命 平 均 相 対 出 力*	EOL における燃料棒 平 均 燃 焼 度 MWD/MTU
B-042	JBP-015	1.31	13,559
	JBP-016	1.32	13,667
	JBP-077	1.27	13,155
	JBP-048	1.28	13,293
	JBP-044	1.24	12,896
	JBP-032	1.23	12,786
	JBP-021	1.28	13,271
	JBP-033	1.28	13,229
	JBP-003	1.32	13,629
	JBP-043	1.28	13,270
	JBP-084	1.31	13,526
B-069	JCN-151	1.23	12,744
	JBY-163	1.27	13,152
	JBY-013	1.25	13,005
	JBY-145	1.31	13,535
A-047	HBV-001	1.20	12,453
C-231	KCA-109	0.93	9,661

* 炉心平均出力に対する相対出力（炉心平均燃焼度 - 10,368 MWD/MTU）

6.8 被覆管ブリストアと初期クラックの出力依存性

PCI 機構に基づくと、初期の被覆管破損が発生する位置の出力依存性が予想されるであろう。ヨウ素の放射能強度、出力プロファイル、ブリストア・パターンおよび初期クラックに関するデータがこの目的で調査された。

冷却材中のヨウ素放射能の履歴は燃料棒の破損が発生した時期の示標および破損燃料棒数の相対的な大きさを与える。Maine Yankee のヨウ素放射能履歴 (Fig. 1-1 参照) に基づくと、破損の大部分は燃焼度が 6,700 MWD/MTU および 8,300 MWD/MTU の間で生じた。

破損燃料棒におけるブリストアのパターンが Fig. 6-12 に示されている。いくつかのブリストアは多分 2 次的な水素化によって引き起こされたのであろうが、それでもなおブリストアの位置は初期の被覆管破損が生じた領域の概略を与えている。これは、被覆管を貫通したクラックが 2 次的な水素化によって水素化物ブリストアに変えられるからである。Fig. 6-12 は、大部分のブリストアが下部から 70~110 インチの領域に位置していることを示している。

このようにして、ヨウ素の放射能履歴と破損燃料棒のブリストア・パターンの観察によって、燃焼度が 6,700 MWD/MTU~8,300 MWD/MTU の期間に生じた初期の被覆管破損は 70~110 インチの領域に位置する傾向にあることが示唆された。したがって、もし破損位置に出力依存性があるならば、燃焼度が 6,700 MWD/MTU~8,300 MWD/MTU の期間における最大出力位置はブリストアの位置とびったり一致するはずである。Fig. 6-12 に示されている燃焼度が 6,700~8,300 MWD/MTU の期間に対する代表的な軸方向出力プロファイルから、実にブリストアの位置が最大出力位置と一致する傾向にあるのを見ることができる。

ホット・セル試験において 3 つの初期クラックが観察された。3 つとも高いガス放出率を示した燃料棒で見い出され、第 4.8 節に記載されているようにヨウ素によって引き起こされた応力腐食割れと一致した特徴を示していた。これらの初期クラックの軸方向位置は、88~94 インチの間の領域に位置している。このように、初期クラックは燃焼度が 6,700~8,300 MWD/MTU の期間に存在した最大出力位置に生じている。

要約すると、ブリストアのパターン、破損燃料棒、初期クラックの位置およびヨウ素放射能の履歴は、Maine Yankee 第 I 炉心燃料において初期の被覆管破損を引き起こした出力依存機構と一致している。

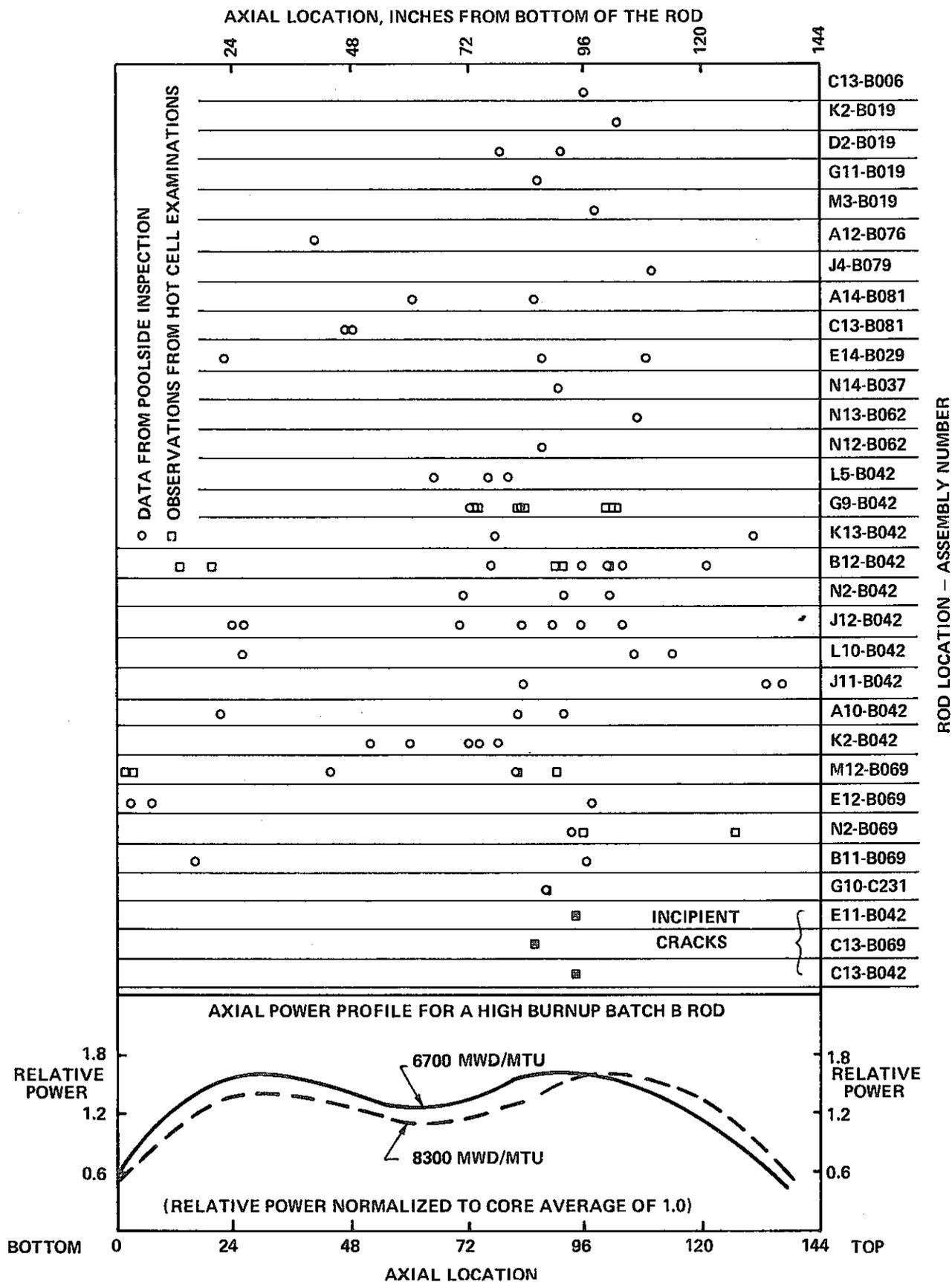


Fig. 6-12 Maine Yankee のプールサイド検査およびホット・セル試験で観察されたすべてのブリスターの軸方向位置

7.0 初期被覆管破損の原因

Maine Yankee 第 I 炉心燃料の試験計画期間において、初期の被覆管破損の原因に対する主要な候補として以下の 3 つが考察された。

1. 核分裂生成物（セシウムおよび/またはヨウ素）による応力腐食を含んだ PCI による被覆管の直接的なクラッキング。
2. UO_2 ペレット中の水分のような水素の内部供給源を含んだ第 1 次水素化。
3. PCI によって引き起こされた応力の結果として破損が生じる局所的な水素化に起因する被覆管の予備損傷。

以下の節においてこれらの機構に関連した典型的な現象および特徴的なパターンを述べるとともに、この計画において収集された関連した証拠がこれらの記述と一致しているかどうかを考察する。

7.1 ペレット－被覆管相互作用（応力腐食）

BWR 燃料の運転経験に関する報告書 (32) に述べられているように、PCI によって引き起こされた被覆管破損は 5.000 MWD/MTU の燃焼度以降に発生するのが特徴である。欠陥 (defect) は軸方向の被覆管クラックまたはブリストアとして現われ、それらは小さなクラックによる破損の後に形成されるのかも知れない。破損した集合体および燃料棒の位置は高出力運転と強い関連があり、被覆管の欠陥は最大出力領域に位置している傾向にある。ジルカロイ被覆 UO_2 燃料の破損機構に関する Robertson のレビュー (33) は、被覆管クラックはペレット境界およびペレットの半径方向クラックによって応力集中が生じる被覆管の内表面から始まっているということを示している。これらの応力は燃料－被覆管境界におけるペレット破片や他の不連続性 (discontinuity) によって強められる。冷却材中への放射能の放出によって示されるように、被覆管破損は通常パワー・ランプ後数時間以内に発生する。

PCI は BWR (32) および CANDU 炉 (33) における初期の被覆管破損の主要な原因として引合いに出されて来た。雰囲気によって助長された応力腐食は BWR の場合には、はっきりとしていなかった：例えば 1970 年の初期までに BWR で発生した PCI による破損は、高温焼鈍熱処理が製造工程に採用される前の被覆管の破壊までの歪が小さいということに原因の一部を求めている。一方、カナダ (33) は炉内および炉外での結果によってパワー・ランプに関連した破損の大部分はヨウ素による応力腐食割れを伴っているということを確認したように見える。

Robertson (33) によって指摘されたように、十分なヨウ素が存在する場合には、応力腐食による被覆管のクラッキングは純粹に機械的な作用によるクラッキングに対して要求される応力より

も小さな応力でも起こりそうである。さらに、純粹に機械的な相互作用に起因する貫通クラック (perforating crack) が発生するためには比較的大きくかつ急激な出力増加が必要である。

Maine Yankee 第 I 炉心においては、照射履歴、破損燃料棒と高出力運転の強い相関性およびホット・セル試験の結果 (特に初期クラックの特徴) は、揮発性核分裂生成物による応力腐食で直接被覆管クラックを引き起こす PCI 破損機構と一致している。1 次的な軸方向の被覆管割れ (split) は破損燃料棒のプールサイド試験やホット・セル試験では観察されなかったけれど、肉厚の 3 分の 2 に達している小さな初期クラックが 3 本の健全な高出力燃料棒のペレット境界に見い出された。前にも指摘されたように、破損燃料棒のプリスターは高出力領域に位置している傾向にあり、また相当大きいので健全な燃料棒で観察されたようなクラックを隠して (mask) しまう。いったん被覆管が割れそこから燃料棒内に水が入ると、半径方向クラックは二次水素化開始の優先的な位置になるという証拠を Garlick (34) が提出した。このように、高出力領域におけるプリスターのいくつかは、最初は完全にあるいは部分的に貫通したクラックのあった位置である可能性がある。

Maine Yankee の出力履歴および冷却材中のヨウ素放射能のデータは、PCI によって引き起こされた被覆管破損の通常のパターンと一致しているが、ヨウ素放射能の大部分が放出されるに至った 2 度の出力上昇は、第 5 節に記されているように長い時間 (2 日) にわたっての比較的小さな出力変化 (1 kW/ft 以下) であり、最終的な出力レベル (9 kW/ft 以下) も比較的控え目であった。そのような条件だけでは正統的な (classical) PCI 破損を引き起こすのに十分であるとは思われない。

被覆管クラックを示した 3 本のすべての燃料棒が熱伝達特性減少後の温度上昇に起因する高いガス放出率をも示したので、これらのクラックおよび Maine Yankee 第 I 炉心の被覆管破損の大部分は PCI 機構によって引き起こされたらしいと考えられている。そのようなすべての燃料棒はセシウムおよびヨウ素の再分布の形跡をも示した。したがって、大きな出力増加よりもむしろ大きな燃料温度上昇によって引き起こされた局所的な被覆管応力と結合した比較的高いヨウ素およびセシウム濃度によって、3 本の燃料棒に PCI 応力腐食割れが発生したと言える。要するに、熱伝達特性減少過程を引き起こした実際の出力変化は小さかったけれども、燃料が経験した温度変化はより大きな出力変化によって通常生じる温度変化に相等する大きさであった。(これらの燃料棒のペレット境界において被覆管に固着した燃料物質も、PCI に起因する局所的な応力集中を大きくする役割を果たしたかも知れない。) 考慮したメカニズムのうちで、これが Maine Yankee 第 I 炉心で観察された初期の被覆管破損の大部分を引き起こした最も可能性の大きいメカニズムであると思われる。

バッチ B の集合体に大部分の燃料棒破損が生じたのは、熱伝達特性減少に対する感受性 (susceptibility) が燃料の焼きしまりが最大に達した時点 (第 I 炉心運転期間のほぼ中間) で最も大きかったという事実によって説明できるかも知れない。同じ時期に、燃料が高出力で運

転され熱伝達特性の減少を引き起こしたのにちがいない。第5節で考察されたように、バッチ A およびバッチ C の両方の燃料はこの期間にバッチ B よりはるかに低い出力で運転された。このように、バッチ B の燃料は破損メカニズムに必要な条件をより満たしやすい状況にあった。

出力履歴データによると、多量のヨウ素放射能の放出が起こった炉心平均燃焼度が 5,000～8,000 MWD/MTU の期間に、B-042 および B-069 集合体におけるバッチ B の破損した燃料棒の最低出力と同程度の大きさの出力で運転されたバッチ A の燃料棒は 1 本もなかった。また、これと同じ期間に破損に対するそのような相対出力のしきい値あるいはそれ以上の出力で運転されたのは、バッチ C の燃料では 1% 以下であったが、2 体のバッチ B 集合体では燃料棒の 38% がこれ以上の出力で運転された。この相対出力分布パターンは、熱伝達特性の減少がこの最も可能性の高い破損機構に含まれているという結論と一致していると同時に、この結論を支持している。

7.2 1次水素化

燃料棒の内部に存在する過度の水素含有不純物 (hydrogeneous impurity) によって引き起こされる被覆管破損は通常低燃焼度の時点、大部分は 5,000 MWD/MTU 以前に発生する。被覆管は局所的な水素化物ノジュール (いわゆる“サンバースト”) か、あるいはクラックまたはクレーターを形成しているブリストーによって内表面から貫通している。水素は温度勾配に沿って外側に拡散し、被覆管の外表面において広がる。BWR での経験 (32, 35) は、水素 (水分) 汚染がある場合には破損した集合体および燃料棒の位置は運転出力と強い相関はなく、ランダムに分布するということを示している。しかし、ブリストーは燃料棒の高出力領域に位置する傾向にはある。破損した燃料棒の中に入った水によって引き起こされる 2 次水素化は、燃料棒の長さ方向に沿ってブリストーのランダムな分布を形成するため、この状況 (picture) は複雑になる。

もし健全な燃料棒において限られた局所的な水素化が発生したならば、水素供給の枯渇および水素の外表面への拡散によって、クラックおよび水素化物をわずかしか含まない薄板の形態で大きな被覆管内表面欠陥として残る。そのような残存物は、渦電流探傷試験や金相試験によって調べなければ検出されないであろう。

Joon (36) は、1 次水素化によって被覆管破損を引き起こすのに必要な燃料中の最低水分レベルは $2 \text{ mg H}_2\text{O}/\text{cm}^3$ コールド・ボイドであるということ、Halden BWR における破損燃料の調査に基づいて報告している。一方、Garzarolli ら (35) によって行われた炉外試験は、 $1 \text{ mg H}_2\text{O}/\text{cm}^3$ 程度の低い水分量でも局所的な水素化 (必ずしも直接破損を引き起こすわけではない) を維持するであろうということを示している。これらのレベルは、Maine Yankee の燃料設計においては、それぞれ 26 ppm および 13 ppm/UO₂ に相当する量である。

このパターンとは対照的に、Maine Yankee の冷却材中のヨウ素放射能 (Fig. 1-1) は、事実上すべての初期被覆管破損が炉心平均燃焼度が 5,000 MWD/MTU に達した後で発生した

ということを示している。ブリストーは破損燃料棒の高出力領域に位置する傾向にあるけれども (Fig. 6-12 参照), 破損した集合体および燃料棒は最大出力運転と強い相関がある。さらに, 製造時の検査および記録調査から燃料中の水分レベルは被覆管破損に対する Joon のしきい値よりかなり低いことが分っている。例えば, 全炉心にわたるペレット水分濃度の平均は 6.8 ppm であり, バッチ B ペレットの平均は 5.2 ppm であった。

ホット・セル試験の結果に基づくと, わずか 1 本の燃料棒だけが 1 次水素化によって破損した可能性があるものとして挙げられる。これはバッチ C の燃料棒でただ 1 本破損した KCA-109 である。その燃料棒のただ 1 つの被覆管割れ (breach) は, 外表面に特徴的な水素化物分布を有している水素化ブリストー (hydride blister) である。この燃料棒において被覆管のクリップダウンが事実上起っていないことも, 破損が寿命の初期に発生したことを示している。

健全な燃料棒に対して, 大きな被覆管内表面欠陥を検出することができる装置によって渦電流探傷試験を行なったけれども, 局所的な水素化に起因する残存クラックはホット・セル試験においても見い出されなかった。

7.3 被覆管予備損傷/ペレット-被覆管相互作用

部分的に貫通した水素化物ブリストーによって被覆管の損傷が大きくなり, PCI で生じた応力の結果として後になって破損に至るかも知れない。このメカニズムは, Proebstle ら(37) および Pickman (38) によって初期被覆管破損の 1 つの可能性のある原因として示唆されているが, その理由は次の 3 つである。

- (1) 燃料中にある程度の水分が存在する (全体としての水分汚染はない)。
- (2) 破損燃料棒は高出力運転と相関がある。
- (3) 破損はパワー・ランプのすぐ後に検出される。

この場合には, 破損は寿命の初期には発生せずに, たとえば 5,000 MWD/MTU 以上の燃焼度で発生するであろう。

Nienoff および Von Jan (39) は, KWL* および KRB* の第 I 炉心で観察された燃料棒破損の原因をそのようなメカニズムに求めた。第 I 炉心およびその後のサイクルにおける燃料破損率はほとんど一定であり, 燃料棒の高出力運転と関係していた。製造方法を変えることによって過度の水分量の混入を防いだ取替燃料においてリークを起こした燃料が基本的になくなったという事実によって, 被覆管破損機構は局所的な水素化物予備損傷現象を含んでいるという強い証拠が現われた。

Maine Yankee 第 I 炉心において表面に現われた破損燃料棒の出力依存性パターンはこの 2 段機構と一致している。しかし, 直接的な 1 次水素化物破損機構に関する上の考察で指摘された

* ドイツの BWR: KWL = Lingen, KRB = Gundremingen

ように、渦電流探傷試験および広範な破壊試験によっても部分的に貫通した局部水素化物に関連した被覆管の内表面欠陥は1つも見い出されなかった。

このように、この調査で集められたすべての事実を、被覆管を直接貫通するかあるいはPCIの結果として後の被覆管割れの原因となる1次水素化と一致させることは困難である。

7.4 被覆管破損に至る現象

全体の計画で得られた事実の評価およびデータ解析の結果をまとめると、以下の現象が Maine Yankee 第I炉心燃料棒の主要な破損パターンに至る筋道であると思われる。これから述べられるいくつかの現象、例えば、燃料棒内部の複雑な化学プロセスおよび観察された核分裂生成物の再分布と関連した化学種は推測的なものとして認識されているが、現象の順序に一貫性を与えるためにそれらも述べられている。

1. 第I炉心運転中のほぼ中間期（炉心平均燃焼度が5,000 MWD/MTUに達した後）までに、バッチBの高出力燃料棒内の大部分の UO_2 ペレットが焼きしまりを完了した。
2. この時点までに生じた小さな被覆管クリープダウンは焼きしまりを補うことができなかった。このため燃料-被覆管ギャップが増加し、ギャップ・コンダクタンスが減少した。こうして、与えられた出力レベルに対して燃料温度が上昇する傾向にあった。
3. バッチBの高出力燃料棒のうちで、焼きしまりを起こしやすい UO_2 および大きな製造時の燃料-被覆管ギャップを有するいくつかのものにおいては、燃料の温度は（必ずしも最大出力位置ではない） UO_2 の等軸晶成長が起こるのに必要な温度（約1350℃）のわずかに下にあった。
4. この期間においては、出力がわずかに増加するかあるいはギャップ・コンダクタンスがわずかに減少すれば、燃料温度が上昇し等軸晶の成長が始まる。この結果として結晶成長領域にあった核分裂ガスの一部が局部的に放出され、ヘリウム充填ガスの熱伝導度が減少した。
5. このようにして、燃料の温度が熱伝達特性の減少によって上昇するとともに結晶成長が半径方向および軸方向に広がり、その結果より多くのガスが放出され燃料棒の熱伝達特性がさらに減少した。
6. 核分裂ガスの放出に伴って、セシウムおよびヨウ素を含む他の蒸発性核分裂生成物がガス状の化学種として結晶成長領域から放出された。ヨウ素は多分セシウムと化学的に結合しており、ヨウ化物として放出されたであろう。ヨウ素との結合に必要な量以外の大部分のセシウムは、燃料温度において蒸発する酸素およびウランとの化合物として放出されたかも知れない。
7. セシウム化合物は凝集し被覆管表面上に小さな沈着物を形成した。その後、これらのセシウムに富んだ沈着物は UO_2 およびジルカロイ被覆管の両方を含んだ複雑な反応を促進させ、その結果沈着部において燃料と被覆管のボンディングが生じた。
8. 被覆管内表面上のヨウ化セシウムは放射線および熱的に分解し、ジルカロイ被覆管の応

力腐食に必要な単体のヨウ素が生じた。

9. 熱伝達特性減少過程の結果、以下のメカニズムの1つあるいは両方によって、バッチBの高出力燃料棒の最大出力位置あるいはその近傍においてPCIが生じた。(2つのメカニズムを区別できるような証拠はない。)

- a. 熱伝達特性の減少はそれぞれ炉心出力の88%および95%への最初の出力上昇によって引き起こされ、燃料-被覆管ボンディングの影響を受けずにPCIによる被覆管破損がすぐに生じた。
- b. 熱伝達特性の減少が早い時期に発生し、被覆管破損に至ったPCIは後になって出力上昇中に生じ、これが燃料-被覆管ボンディングによって強められた。

両方のケースにおいて、熱伝達特性の減少によって引き起こされた燃料温度上昇がPCIの主要な原因であった。また、ヨウ素およびセシウムのような再分布した核分裂生成物が両方のケースにおいてSCC過程に関係した。

10. これらのバッチBの高出力燃料棒のいくつかにおいては、ペレット境界における局所的な応力集中は(燃料-被覆管ボンディングの寄与があるなしにかかわらず)十分に大きいので、被覆管内表面に直角でかつそこから始まっているSCC(多分ヨウ素による)による小さな軸方向クラック(長さが約3/16インチ)が発生した。

11. クラックが被覆管を完全に貫通した燃料棒においては、水が燃料棒の内部に入り、2次水素化機構によって破損燃料棒に観察されたブリスター(blister)およびバルジ(bulge)が形成された。初期のSCCクラックでさえ多分水素化され、1次的な破損機構の証拠が消されたであろう。

12. 何本かの燃料棒においては、初期SCCクラックのみが部分的に被覆管を貫通した(すなわち、クラックは初期状態(incipient)であった)。もしそのようなクラックが95%への最初の出力上昇の前に発生していたならば、PCIによる大きな応力および/またはクラック先端への腐食性(aggressive)核分裂生成物の一層の供給によって、この高出力に達するやそれらのクラックは被覆管中を伝播したであろう。一方、この出力上昇中に形成された初期のSCCクラックは、炉心出力がサイクルの最後まで80%レベルに制限されたので多分第I炉心運転の残りの期間中も存続したであろう。

上述の順序から、燃料棒熱伝達特性の減少が、第I炉心で観察された燃料棒破損パターンに至る現象の全体的な連鎖において基本的なメカニズムであったことは明らかである。熱伝達特性の減少を促進する主な要因は燃料の焼きしまり傾向であった。燃料棒内のヘリウム圧が低かった結果、放出された核分裂ガスがほとんど希釈されなかった。現行のPWR燃料設計では焼きしまりを起こさない燃料が採用され、燃料棒が加圧されていることを考慮すれば、Maine Yankee 第I炉心での燃料経験の再発はとうてい起こりそうにない。

8.0 参 考 文 献

1. N. Fuhrman and V. Pasupathi, "Evaluation of Fuel Rod Performance in Maine Yankee Core I", Report on Work Performed Up to July 1975, CENPD-221, December 1975.
2. M. L. Picklesimer, "Anodizing for Controlled Microstructure Contrast by Color", The Microscope, Vol. 15, Fourth Quarter (October 1967) p.472-479.
3. P. D. Kaufman, Paul Danielson and E. F. Baroch, "Improved Metallography of Zirconium Alloys", Zirconium in Nuclear Applications, ASTM STP 551, ASTM, 1974, pp. 52-62.
4. A. S. Bain, et al., "Fuel Designs to Eliminate Defects on Power Increases", Paper No. 56, British Nuclear Energy Society International Conference on Nuclear Fuel Performance, London, October 1973.
5. S. B. Dalgaard, "Long Term Corrosion and Hydriding of Zircaloy-4 Fuel Clad in Commercial Pressurized Water Reactors With Forced Convective Heat Transfer", Paper presented at the Electrochemical Society Meeting, May 2-7, 1976, Washington, D. C.
6. J. B. Melehan, "Yankee Core Evaluation Program Final Report" MCAP-3017-6094, January 1971.
7. W. W. Kirk, "Appearance of Hydrides in Corrosion Tested Zircaloy-2", WAPD-ZH-20, 1959.
8. L. A. Hartman and R. E. Westerman, "Quantitative Metallography of Hydride Phase in Zircaloy-2 Process Tubes", HW-74949, November 1963.
9. J. C. Wood, B. A. Syrett, I. M. London and J. Baird, "Environmentally Induced Fracture of Zircaloy by Iodine and Cesium" The Effects of Strain Rate, Localized Stresses and Temperature", Journal of Nuclear Materials, Vol. 57 (1975) 155-179.

10. A. Garlick, "Fracture of Zircaloy Cladding Under Simulated Power Ramp Conditions", Journal of Nuclear Materials, Vol. 49 (1973/74) 209-224.
11. B. Cox and J. C. Wood, "Iodine Induced Cracking of Zircaloy Fuel Cladding--A Review", Corrosion Problems in Energy Conversion and Generation - Symposium of Electrochemical Society, October 1974.
12. L. A. Niemark, J. D. B. Lambert, W. F. Murphy and C. W. Renfro, "Performance of Mixed-Oxide Fuel Elements to 11 at % Burnup", Nuclear Technology, Vol.16, October 1972, pp. 75-88.
13. R. A. Karnesky, R. D. Leggett, S. A. Chastain and J. W. Weber, "Cesium Migration in Mixed-Oxide Fuel Pins", ANS Transactions, Vol. 22, 1975 pp. 229-231.
14. S. Langer, N. L. Baldwin, J. R. Lindgrén, R. V. Strain, G. Hayner, R. Bono, L. Neimark, "Volatile Fission Product Migration and Plateout in GCFR Rod Irradiations", ANS Transactions, Vol. 15, 1972, p. 850.
15. J. Bazing, J. Jouan and N. Vignesoult, "Oxide-Cladding Reactions and Their Effect on Water Reactor Fuel Column Behavior", ANS Transactions, Vol. 20, 1975, p. 235.
16. I. Johnson and C. E. Johnson, "Cesium Interaction with Irradiated Oxide Fuel Pins", ANS Transactions, Vol. 17, 1973, p. 194.
17. J. D. B. Lambert, L. A. Neimark, R. V. Strain, "A Failure Mechanism in Mixed-Oxide Fuel Elements", ANS Transactions, Vol. 17, 1973, p. 193.
18. M. G. Adamson and E. A. Aitken, "Chemical State and Thermo-migration Behavior of Fission Product Cesium in Oxide Fuel Systems", ANS Transactions, Vol. 17, 1973, p. 195.

19. D. W. Brite, et al., EEI/EPRI Fuel Densification Project-- Final Report, EPRI-131, March 1975.
20. S. D. Harkness, S. R. Pati, M. G. Andrews and W. P. Chernock, "In-Pile Densification of UO_2 ", Submitted for the Proceedings of the European Nuclear Conference, Paris, April 21-25, 1975.
21. A. Hanevik, P. Arneson and K. D. Knudsen, "In-Reactor Measurement of Fuel Stack Shortening", Paper No. 89, British Nuclear Energy Society, International Conference on Nuclear Fuel Performance October 197.
22. D. A. Collins, R. Hargreaves, "Performance-Limiting Phenomena in Irradiated UO_2 ", "Paper No. 50, British Nuclear Energy Society International Conference on Nuclear Fuel Performance, London, October 1973.
23. J. P. Stora and P. Chenebault, Programme Cyrane-Mesure de l'integrate de conductibile thermique d' UO_2 frita jusqu'a 2300°C-- Evolution des gaz de fission a puissance constante, CEA-R-3618 (1968).
24. Jean-Claude Janner et al., "Irradiation of Uranium Dioxide in a Resistant Cladding-Effects of Initial Diametral Gap on Overall Behavior", CEA-R-3358 (October 1967).
25. J. B. Ainscough, et al., "Isothermal Grain Growth Kinetics in Sintered UO_2 Pellets, Journal of Nuclear Materials, Vol. 49, p. 117-128 (1973/74).
26. R. N. Duncan, "Rabbit Capsule Irradiation of UO_2 " CVNA-142 (June 1962).
27. J. A. Christensen, "Columnar Grain Growth in Oxide Fuels", ANS Transactions, Vol. 15, 1972, p. 214.

28. C. E. Beyer and C. R. Hann, "Prediction of Fission Gas Release from UO_2 Fuel", BNWL-1875 (November 1974).
29. J. E. Burke, Transactions AIME Vol. 180, p. 73 (1949).
30. Combustion Engineering Report, "C-E Fuel Evaluation Model Topical Report", CENPD-139, Rev. 01, July 1, 1974.
31. M. G. Andrews, et al., "Light Water Reactor Fuel Rod Modeling Code Evaluation, Phase II Topical Report", CENPD-218, April 1976.
32. H. E. Williamson and R. A. Proebstle, "Results with BWR Fuel Improvements", Joint ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Fuel Technology Today, Toronto, Canada, April 28-30, 1975.
33. J. A. L. Robertson, "Nuclear Fuel Failures, Their Causes and Remedies", Joint ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel Technology Today, Toronto, Canada, April 28-30, 1975.
34. A. Garlick, "Stress Corrosion Cracking of Zirconium Alloys in Iodine Vapor", Paper #3 in Effects of Environment on Material Properties in Nuclear Systems, Proceedings of the International Conference on Corrosion organized by the British Nuclear Society, July 1-2, 1971, London.
35. F. Garzaroli, et al., "BWR Fuel Experience: 2, Correlation of Fuel Performance to Manufacturing Variables", Paper No. 71, British Nuclear Energy Society, International Conference on Nuclear Fuel Performance, London, October 1973.
36. K. Joon, "Primary Hydride Failure of Zircaloy-Clad Fuel Rods", Reactortagung, Hamburg, April 1972.

37. R. A. Proehstle, et al., "The Mechanism of Defection of Zircaloy-Clad Fuel Rods by Internal Hydriding", Joint ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel Technology Today, Toronto, Canada, April 28-30, 1975.

38. D. O. Pickman, "Internal Cladding Corrosion Effects", Advanced Course on In-Reactor Behavior of Water Reactor Fuels, Netherlands-Norwegian Reactor School (1974).

39. P. Niehoff and R. F. Von Jan, "BWR Fuel Experience 1, Correlation of Fuel Performance to Operational History", Paper No. 74, British Nuclear Energy Society, International Conference on Nuclear Fuel Performance, London, October 1973.

付録A

プールサイドにおける検査結果の詳細

Table A-1 最初のプールサイド検査 - 破損
燃料棒のまとめ

集合体 番号	燃料棒 位置	燃料 ロット	軸方向の平均 燃料棒燃焼度 (計算値) (MWD/MTU)	燃料棒出力 (炉停止時)*
B-081	A14	623	12,244	1.202
	C13	623	12,454	1.259
B-079	J4	618	13,072	1.234
B-076	A12	623	9,944	1.041
B-069	B11	617	13,152	1.275
	N2	622	12,744	1.230
B-062	N12	621	12,137	1.204
	N13	621	12,112	1.207
B-037	N14	612	13,169	1.216
B-029	E14	610	11,952	1.188
B-019	D2	606	13,499	1.264
	G11	606	12,120	1.118
	K2	606	13,509	1.259
	M3	606	13,623	1.266
B-006	C13	603	13,576	1.268
B-042	N2	614	13,155	1.207
	K2	614	13,559	1.255
	A10	614	12,786	1.183

* 炉心平均を1とした場合の相対値

Table A-2 Maine Yankee 集合体解体計画 - 破損燃料棒のまとめ

集合体 番号	燃料棒 位置	燃料棒 連続番号	燃料ロ ット番号	炉停止時	
				相対出力*	燃料棒平均燃焼度 (MWD/MTU)**
B-042	K2	JBP-015	614	1.255	13559
	L2	JBP-016	614	1.264	13667
	N2	JBP-077	614	1.207	13155
	L5	JBP-048	614	1.229	13293
	G9	JBP-044	614	1.223	12896
	A10	JBP-032	614	1.183	12786
	L10	JBP-021	614	1.224	13271
	J11	JBP-033	614	1.206	13229
	B12	JBP-003	614	1.267	13629
	J12	JBP-043	614	1.224	13270
	K13	JBP-084	614	1.245	13526
B-069	N2	JCN-151	622	1.230	12744
	B11	JBY-163	617	1.275	13152
	E12	JBY-013	617	1.252	13005
	M12	JBY-145	617	1.284	13535
A-047	F7	HBV-001	516	1.073	12453
C-231	G10	KCA-109	719	0.969	9661

* 炉心平均に対する燃料棒平均。炉心出力はサイクル期間中に変化しており (Fig. 1-1 参照), 最大出力 (95%) に達した時点において, 炉心平均線出力は 5.6 kw/ft であった。

** 炉心平均燃焼度 - 10,368 MWD/MTU

NORTH

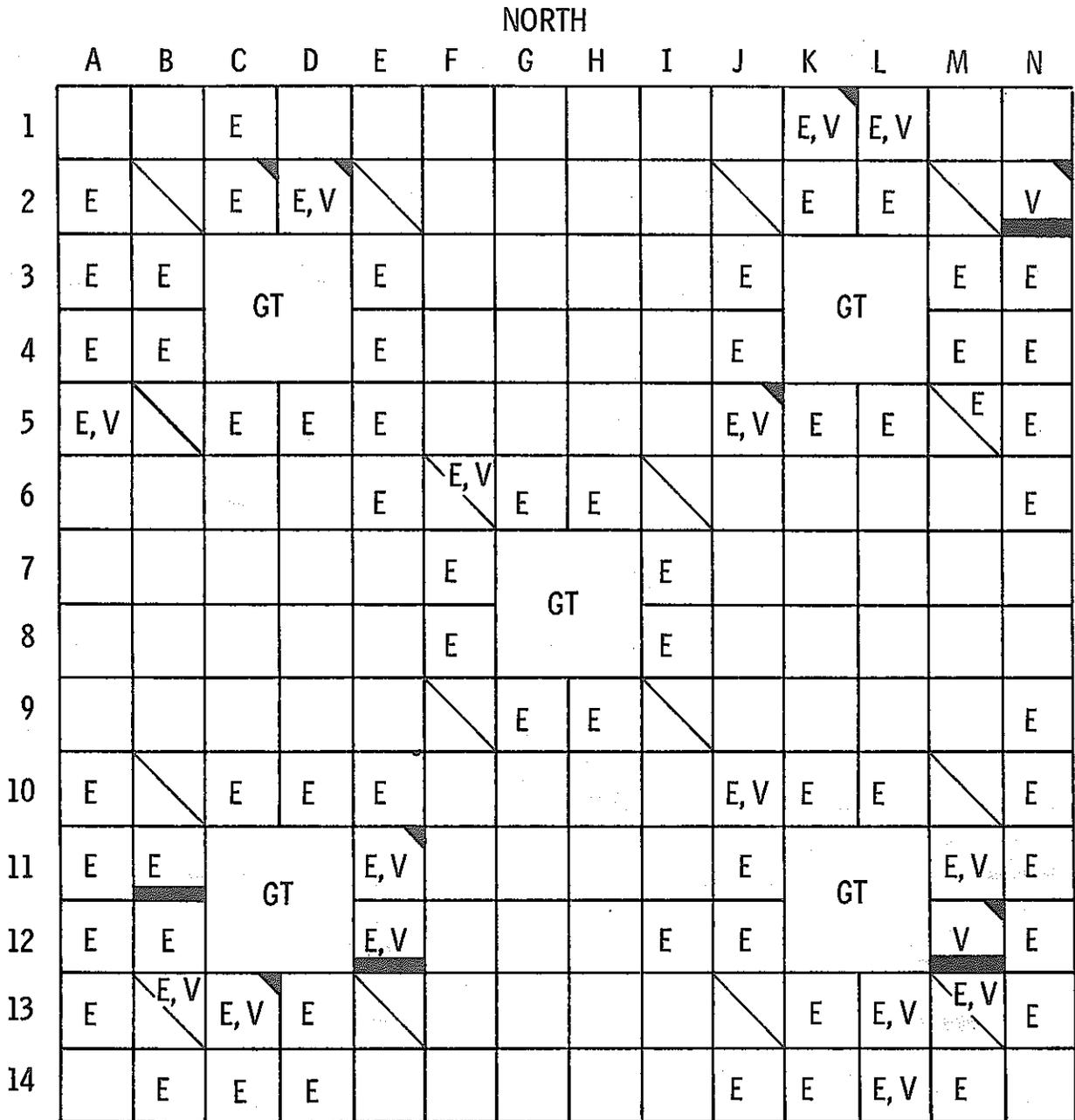
	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1		E,V	E	E						E,V	E	E	E,V	E,V
2			E	E,V				E		E,V	V	V	E,V	E,V
3		E	GT		E					E	GT		E	E,V
4	E	E,V	GT		E	E				E,V	GT		E,V	E
5			E	E						E	E	V,E		E,V
6	E				E		E	E,V		E				
7					E	E	GT		E					E,V
8		E,V				E	GT		E		E		E	
9						E	E,V	E				E		
10	E,V	E,V	E	E,V	E,V				E	E	E	V,E		
11	E	E,V	GT		E,V	E		E		E,V	GT		E,V	E
12	E,V	E,V	GT		E,V					V,E	GT		E	E,V
13			E,V	E,V		E		E			V	E	E,V	E,V
14		E,V	E,V		E,V				E		E	E	E	

LEGEND

- E EDDY CURRENT TESTED
- V VISUALLY EXAMINED
-  PERFORATED ROD
-  POISON ROD
-  ROD NOT REMOVED

-  ROD SHIPPED TO HOT CELLS
- GT GUIDE TUBE LOCATION

Fig. A-1 B 04 2 集合体の試験概要



LEGEND

- E EDDY CURRENT TESTED
- V VISUALLY EXAMINED
- PERFORATED ROD
- POISON ROD
- ROD NOT REMOVED
- ROD SHIPPED TO HOT CELLS
- GT GUIDE TUBE LOCATION

Fig. A-2 B069集合体の試験概要

NORTH

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1		E	E	E							E	E	E	
2		E	E	E	E					E	E	E	E	E
3	E	E	GT		E					E	GT		E	E, V
4	E	E	GT		E, V					E	GT		E	E
5		E	E	E	E					E	E	E	E	
6		E, V				E	E	E	E	E				
7	E, V	E, V				V	GT		E, V	E				
8		E	E			E	GT		E, V					
9						E	E	E	E			E		
10			E	E	E				E		E	E	E, V	
11		E	GT		E					E	GT		E	E
12		E	GT		E		E			E	GT		E	E, V
13		E	E, V	E	E					E, V	E	E	E	E
14			E	E			E				E	E	E	

LEGEND

- E EDDY CURRENT TESTED
- V VISUALLY EXAMINED
- ▤ PERFORATED ROD
- ROD NOT REMOVED
- ▤ ROD SHIPPED TO HOT CELLS
- GT GUIDE TUBE LOCATION

Fig. A-3 A047集合体の試験概要

NORTH

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1	E	E	E	E	E	E	E	E	E,V	E	E	E	E	E
2	E	POISON ROD	E	E	E,V	E	E	E	E	E	E	E,V	POISON ROD	E
3	E	E	GT		E	POISON ROD	E	E	POISON ROD	E	GT		E	E
4	E	E,V	GT		E	E	E	E	E	E	GT		E	E
5	E	E	E,V	E	E	E	E	E	E	E	E	E	E	E
6	E,V	E	POISON ROD	E	E	E	E	E	E	E	E,V	POISON ROD	E	E,V
7	E	E	E	E	E	E	GT		E	E	E	E	E	E
8	E	E	E	E	E,V	E	GT		E	E	E	E	E	E
9	E	E	POISON ROD	PERFORATED ROD	PERFORATED ROD	E	E	E	E	E	E	POISON ROD	E	E
10	PERFORATED ROD	E	E	E	E	E	E,V	E	E	E	E	E	E,V	E
11	E	E	GT		E	E	E	E	E	E	GT		E	E
12	PERFORATED ROD	E	GT		E	POISON ROD	E	E	POISON ROD	E	GT		E	E
13	PERFORATED ROD	E,V	E	E	E	E	E	E,V	E	E,V	E,V	E	POISON ROD	E
14	E,V	E	PERFORATED ROD	PERFORATED ROD	PERFORATED ROD	PERFORATED ROD	E	E	PERFORATED ROD	E	E	E	E	E,V

LEGEND

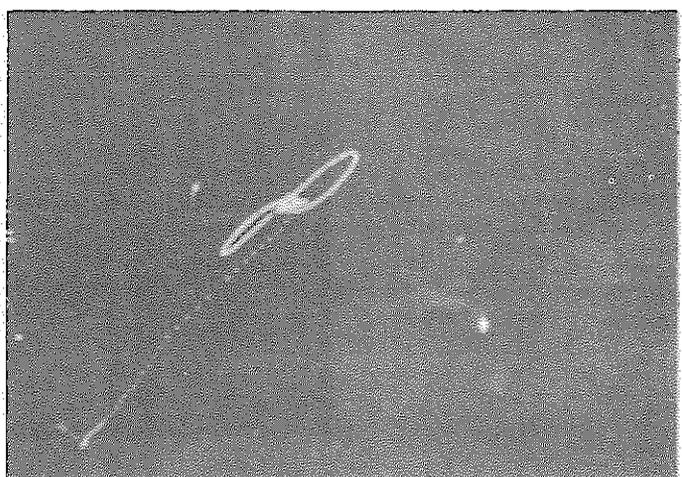
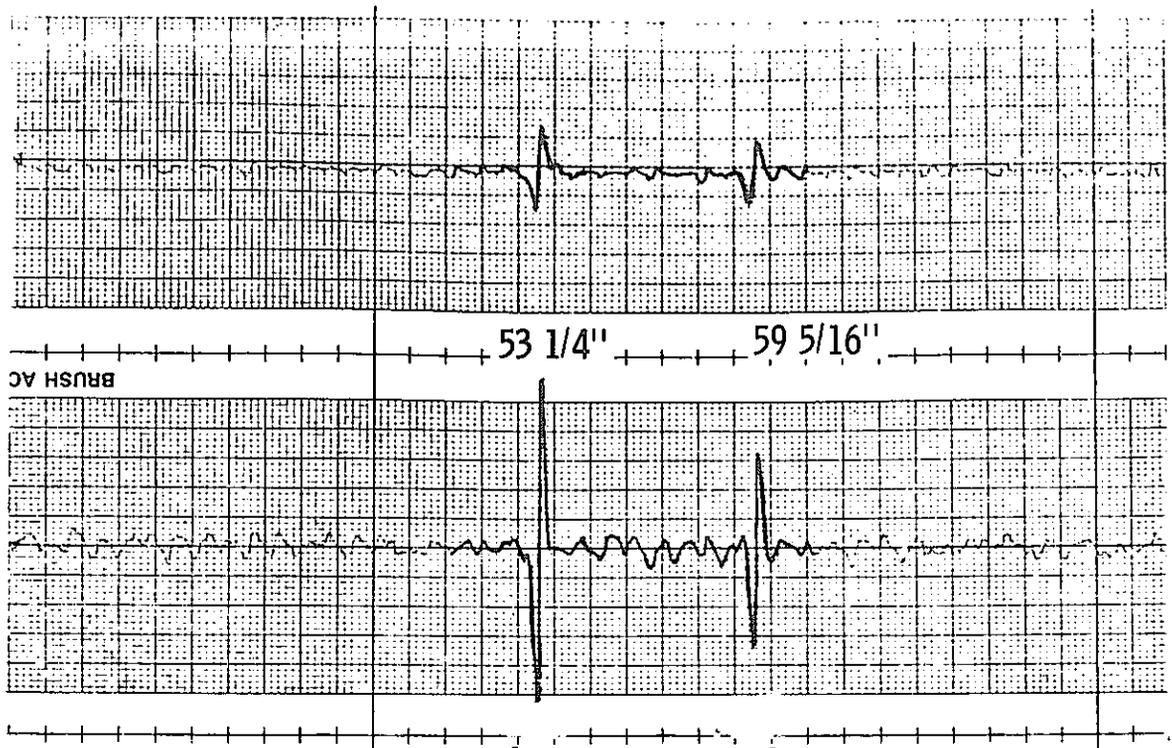
- E EDDY CURRENT TESTED
- V VISUALLY EXAMINED
- POISON ROD
- PERFORATED ROD
- ROD NOT REMOVED

- ROD SHIPPED TO HOT CELLS
- GT GUIDE TUBE LOCATION

Fig. A-4 C 231 集合体の試験概要

付録B

プールサイドにおける渦電流探傷試験
のデータ



1 v/div.

100 KHZ

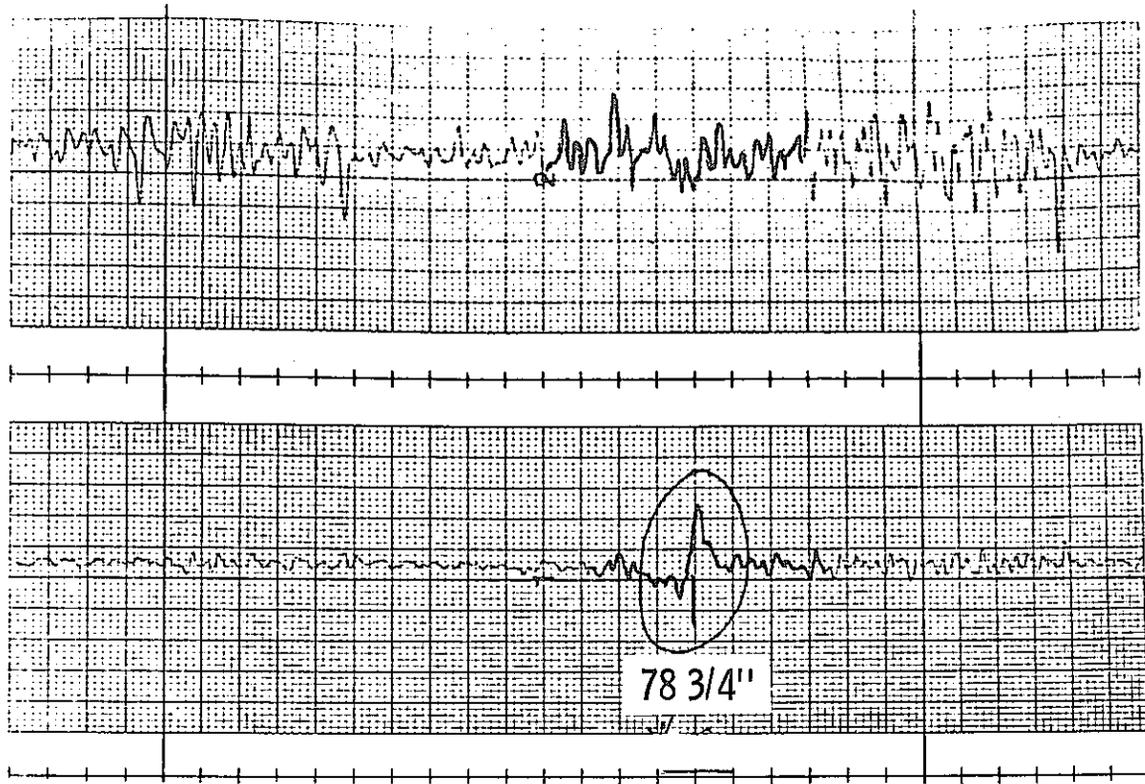
53 1/4"

1 v/div.

100 KHZ

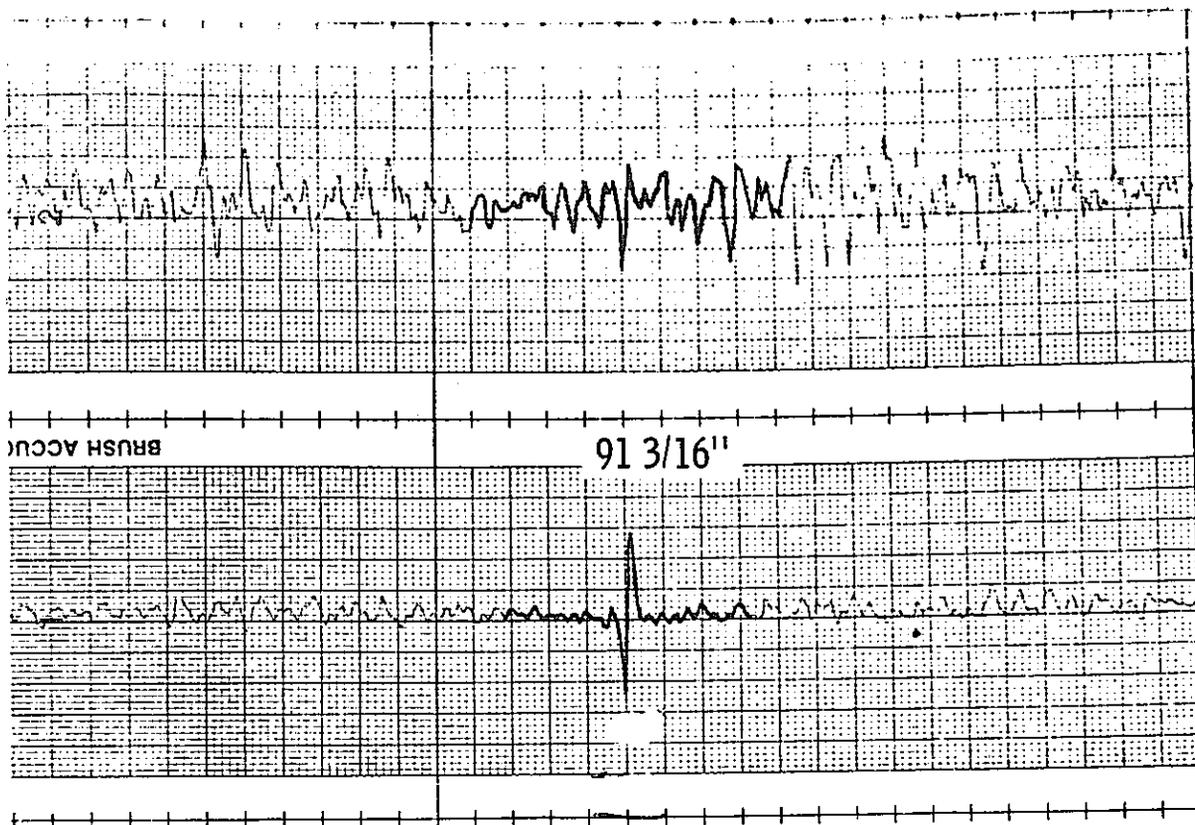
59 5/16"

Fig. B-1 B 0 4 2 集合体中の JBP-027 の下部から 53-1/4 および 59-5/16 インチの位置における信号を示している、プールサイドにおける渦電流データ（上 - 記録計のトレース, 下 - 対応するオシロスコープ信号）



0.5 v/div. 100 KHZ 78 3/4"

Fig. B-2 B 0 6 9 集合体中の JCN-182 の下部から 78-3/4 インチの位置における信号を示している、プールサイドにおける渦電流データ（上 - 記録計のトレース、下 - 対応するオシロスコープ信号）

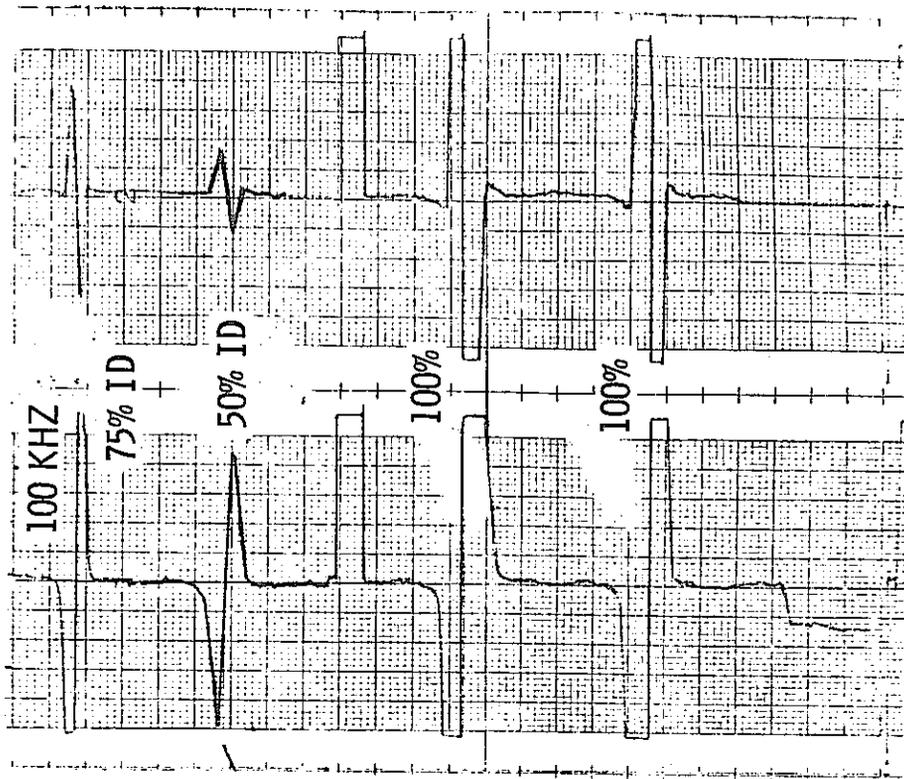


2 v/div.

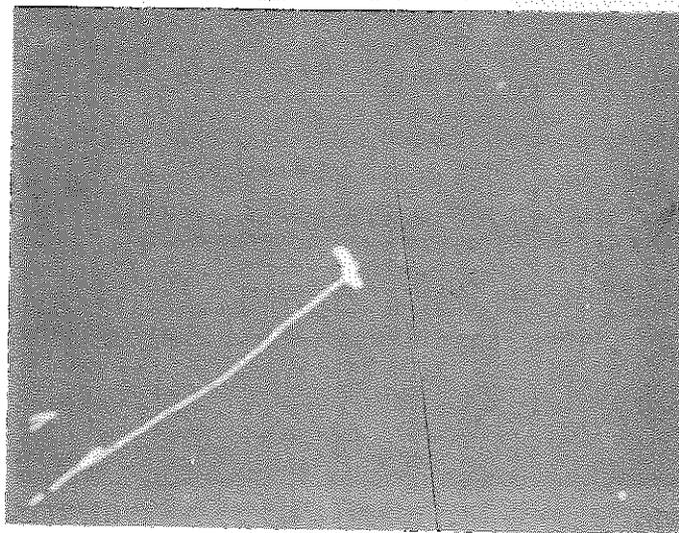
100 KHZ

91 3/16"

Fig. B-3 B069 集合体中の JCN-199 の下部から 91-3/16 インチの位置における信号を示している。プールサイドにおける渦電流データ（上 - 記録計のトレース, 下 - 対応するオシロスコープ信号）



100 KHZ 50% ID TEST PHASE



1 v/div.

1/4" LONG NOTCH

Fig. B-4 内表面の較正用標準ノッチ（肉厚の50%×長さ1/4インチ）に対する、プールサイドにおける渦電流信号（上—記録計のトレース、下—対応するオシロスコープ信号）