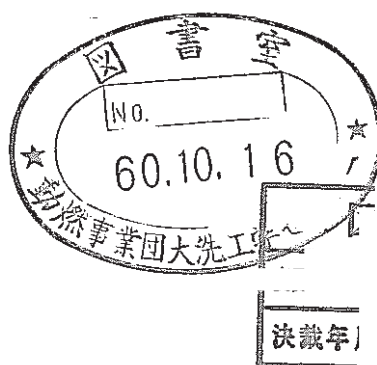


「常陽」MK-II 制御棒(MCROO2)の照射後試験

吸収材料及び制御棒部材の破壊試験



1985年7月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせください。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

1985年 7月

「常陽」MK-II 制御棒(MCROO2)の照射後試験

吸収材料及び制御棒部材の破壊試験

実施責任者 柚原俊一

報告者 伊藤正彦, 山口 勤
谷 賢

要 旨

「常陽」MK-II 炉心で、最高燃焼度 45×10^{20} captures/cm³ (最高積算中性子量 2.67×10^{22} n/cm²) まで使用された制御棒 (MCR 002) について、B₄Cペレット、被覆管、ダッシュラム等の外観検査、寸法測定、熱伝導率測定、組織観察等の照射後試験を行った。この結果、次のことが明らかとなった。

- 1) 燃焼度が 5×10^{20} captures/cm³ を超えた B₄Cペレットは破壊していた。
- 2) B₄Cペレットのスエリングは燃焼度が 42×10^{20} captures/cm³ で 1.1% 4D/D であった。
この B₄Cペレットのスエリングに伴い、被覆管に最大 0.2% の外径変化が認められた。
- 3) インシュレータとして使用されていた Al₂O₃ペレットにも、スエリングが認められた。
- 4) 照射量が 2.67×10^{22} n/cm² のダッシュラムのスエリングによる外径変化は 0.19% であった。
- 5) B₄Cの室温における熱伝導率は、燃焼度が 4.5×10^{20} captures/cm³ で 0.012 cal/cm・sec・deg となり、未照射材の熱伝導率 (0.063 cal/cm・sec・deg) の約 1/5 に減少した。
- 6) B₄Cペレットスタックへの Na の侵入の証拠は得られなかった。

目 次

1. はじめに	1
2. 使用条件及び供試材	2
2.1 使用条件	2
2.2 供試材	2
3. 試験要領	4
3.1 外観検査	4
3.2 寸法測定	4
3.3 密度測定	4
3.4 熱伝導率測定	4
3.5 組織観察	5
3.6 γ 線波高分析	5
4. 試験結果	6
4.1 外観検査	6
4.2 寸法測定	6
4.3 密度測定	6
4.4 熱伝導率測定	7
4.5 組織観察	7
4.6 γ 線波高分析	8
5. 結果の検討	9
5.1 ペレットの健全性	9
5.2 ペレットと被覆管の機械的相互作用 (ACMI)	10
5.3 Al_2O_3 ペレットのスエリング	10
5.4 熱伝導率の変化	10
5.5 ダッシュラムのスエリング	11
5.6 ダッシュラム温度の推定	11
5.7 B_4C スタックへのNaの侵入	11
6. まとめ	12
7. 参考文献	13

List of Tables

Table 1	Chemical Compositions of Boron Carbide
Table 2	Chemical Compositions of Cladding
Table 3	Thermal Properties of Irradiated Boron Carbide
Table 4	Micro Vickers-hardness of Irradiated Absorber Cladding
Table 5	Specific Activity of ^{54}Mn and ^{22}Na in B_4C

List of Figures

- Fig. 1 Burnup of B₄C in MCRO02 Assembly
- Fig. 2 Pellet Centerline Temperature of B₄C in MCRO02 Assembly
- Fig. 3 Sampling of Specimen from Control Rod (MCRO02)
- Fig. 4 B₄C Pellet Irradiated to a Burnup of 2×10^{20} captures/cm³
- Fig. 5 Radial Sectional View of B₄C Pellet Irradiated to a Burnup of 45×10^{20} captures/cm³
- Fig. 6 Edge of B₄C Pellet at the Top of B₄C Stack
- Fig. 7 Radial Sectional View of Irradiated Al₂O₃ Thermal Insulator
- Fig. 8 Dimension of Irradiated Absorber Cladding
- Fig. 9 Dimensional Change of Boron Carbide Pellets
- Fig. 10 Temperature Dependence of Thermal Conductivity of Unirradiated and Irradiated Boron Carbide
- Fig. 11 Optical Micrographs of Irradiated Absorber Cladding
- Fig. 12 Micro Vickers-hardness of Irradiated Absorber Cladding
- Fig. 13 Radial Sectional View of Irradiated B₄C
- Fig. 14 Optical Micrographs of Unirradiated Dash Rum
- Fig. 15 Optical Micrographs of Dash Rum Irradiated to a Fast Neutron Fluence of 2.67×10^{22} n/cm²
- Fig. 16 Radial Distribution of Micro Vickers-hardness
- Fig. 17 Swelling of Al₂O₃ as a Function of Neutron Fluence
- Fig. 18 Relation between Thermal Conductivity and Burnup
- Fig. 19 Diametral Change of Dash Ram
- Fig. 20 Relation between ²²Na and ⁵⁴Mn Activity

1. は じ め に

高速炉制御棒の吸収材料としては、炭化硼素が最も多く使用されている。我が国に於いても高速実験炉「常陽」の吸収材料として使用され、また、高速原型炉「もんじゅ」の吸収材料としても使用する設計となっている。

1973年、IAEAによって高速炉の制御棒に関する第1回専門家会議⁽¹⁾がソビエトのデミトロフグラードで開催されて以来、各国で、炭化硼素に関する研究が精力的に進められ、その照射挙動が明らかにされてきた。中でも、炭化硼素の特性（結晶粒度、 ^{10}B 濃度、 B/C 比、密度等）が照射挙動に大きく影響することが明らかにされたことは重要なことであった。

1983年、IAEAによって高速炉制御棒に関する第2回目の専門家会議⁽²⁾がソビエトのオブニンスクで開催された。各国とも、経済性向上のため長寿命制御棒の開発に力がそそがれ、 B_4C のスエリング挙動、ペレットの割れに対する対策、構造部材の照射による変形対策が重要であることで意見の一致を見た。

このようなことから、国産炭化硼素の照射挙動の評価は、長寿命制御棒の開発にとって重要であり、このため一連の「常陽」MK-I制御棒の照射後試験が実施され、燃焼度 $50 \times 10^{20} \text{ captures/cm}^3$ までのデータが取得された^(3,4)。さらに照射挙動データの拡充を計るため、「常陽」MK-II制御棒の照射後試験計画が立案された。ここでは、この照射後試験計画の一環として、装荷位置 3B3において、MK-II出力上昇試験（0サイクル）から第3サイクルまで使用されたMK-II制御棒（MCR 002：最高燃焼度 $45 \times 10^{20} \text{ captures/cm}^3$ ）について、炭化硼素の外観検査、寸法検査、熱伝導率測定及び金相試験に加えて、被覆管金相試験並びにダッシュラムの寸法・密度測定及び金相試験を実施した。

2. 使用条件及び供試材

2.1 使用条件

制御棒MCR 002は「常陽」MK-II炉心の第3列3B3孔で100 MWt(0)～100 MWt(3)サイクルに渡って使用された。この間に受けた積算中性子量はB₄Cスタック下端部で $2.3 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)であり、同位置における¹⁰B燃焼度は $45 \times 10^{20} \text{ captures/cm}^3$ であった⁽⁵⁾。Fig. 1に燃焼度の軸方向分布を示す。

B₄Cペレットの中心温度の軸方向変化をFig. 2に示す⁽⁶⁾。B₄Cペレットの中心温度はB₄Cスタック下端で最も高くなり、850℃±50℃である。被覆管の温度はB₄Cスタックに沿ってほぼ一定で～400℃である。温度等の照射条件は制御棒解析コード「CORAL」で計算した結果である⁽⁷⁾。

2.2 供試材

制御棒吸収ピン7本のうち1本を試験対象ピンとし、さらにダッシュラムをスエリング測定用供試材とした。

各部材からの試験片採取位置をFig. 3に示す。

以下に試験対象部材の仕様を述べる。

1) B₄C ペレット

B₄Cペレットは直径16.3mm，高さ25mm，密度2.14g/cm³(～90% T.D.)のホットプレス成形体である。このペレットの¹⁰B濃縮度は90.3w/o(91.1a/o)であり，B/C≒4.1である。

Table 1にB₄Cペレットの化学成分を示す。なお，吸収ピン1本当たり26個のB₄Cペレットが挿入されている。

2) 被覆管

被覆管は外径18.1mm，内径16.5mmのP及びBを微量添加した20%冷間加工SUS316ステンレス鋼製である。この被覆管の硬さはHv=257～293である。

被覆管の化学成分をTable 2に示す。

3) インシュレータペレット

インシュレータペレットは下端B₄Cペレットと下部端栓との間に使用されるもので，アルミナ(Al₂O₃)製である。このAl₂O₃は1690℃で51時間かけて焼結されたもので，その密度は2.75g/cm³(70% T.D.)である。純度は99.88%以上で，不純物としてSiO₂(0.07～0.08w/o)，Fe₂O₃(0.02w/o)，Na₂O(0.02w/o)などが含まれている。

Al₂O₃ペレットの直径は15.6mm，高さは20mmで，被覆管とのギャップはB₄Cペレット

に比べて大きくなっている。

4) ダッシュラム

ダッシュラムは溶体化処理（1080℃で60分，水冷）した SUS 316 ステンレス鋼で外径40.3 mm の丸棒である。

3. 試 験 要 領

3.1 外観検査

B₄Cペレット及びインシュレータペレットについて、ペリスコープを使用して、それぞれのペレットを被覆管より取り出す前の状態及び取り出した後の状態を目視により観察した。

3.2 寸法測定

(1) 被 覆 管

被覆管外径についてはマイクロメータ（測定範囲0～25 mm，測定精度1/100 mm）で、また肉厚はブレードマイクロメータ（測定範囲0～25 mm，測定精度1/100 mm）で測定した。測定は4方向とした。

(2) B₄C ペレット

被覆管より取り出すことの出来たものは被覆管外径の場合と同じ方法で測定した（但し、破壊しなかったペレットのみ）。被覆管から取り出すことの出来なかったものについては被覆管の肉厚を測定し、外径から肉厚を差し引くことにより、B₄Cの寸法を求めた。

(3) ダッシュラム

ダッシュラムの径についてはマイクロメータ（測定範囲25～50 mm，測定精度1/100 mm）で測定した。

3.3 密度測定

ダッシュラムのスエリングを評価するため、密度測定を実施した。測定は液浸法により行い、液体は蒸留水に0.2%の界面活性剤（エマルゲル40）を加えたものを使用した。

3.4 熱伝導測定

クラックの見られないペレットをダイヤモンドカッターによって約2 mm厚に切断したものを試料とした。

熱伝導率はB₄Cの密度、比熱及び熱拡散率の積で表わされる。密度は寸法・重量測定から求めた。寸法はマイクロメータによって、また重量測定はメトラー社製の直示天秤で行った。比熱及び熱拡散率はB₄C熱伝導率測定装置（レーザーフラッシュ法）によって行った。比熱測定では試料温度の測定はPR熱電対によって行い、熱拡散率の場合はInSb半導体検出器で測定した。

3.5 組織観察

(1) 被覆管及びダッシュラム

被覆管についてはエポキシ樹脂に埋込んだ後エメリー紙 (SiC) 及びアルミナペーストにより研磨を行った。研磨後の試料は10%過硫酸アンモニウム溶液中で電解腐食した。観察にはライヘルト光学顕微鏡を使用した。ダッシュラムについては、被覆管と同様の方法で試料を作製した後、微小硬計により硬さ測定を実施した。このときの測定荷重は 500 g で、荷重保持時間は15秒とした。

(2) B₄Cペレット

エポキシ樹脂埋込後ダイヤモンドディスクによって研磨し、ダイヤモンドペーストにて仕上げ研磨した。B₄C組織の観察は、研磨面の観察のみにとどめた。

3.6 γ 線波高分析

Ge (Li) 波高分析器によって、B₄Cペレットの γ 線エネルギーを測定し、核種の同定及び定量分析を行った。B₄Cペレットを破碎し、10~80mg の破片を試料とした。なお、測定時間は 300msec とした。

4. 試 験 結 果

4.1 外観検査

B₄Cスタック上端より14個のペレットは被覆管より取り出すことができた。14個のうち10個はFig. 4に示すように、照射によるカケ、き裂等は見られない。残り4個はMK-II制御棒MCR 006 B₄C（最高燃焼度 36×10^{20} captures/cm³）に見られたように⁽⁶⁾、いくつかの塊に割れていた。最下端ペレットの切断面をFig. 5に示す。数多くのき裂が見られ、いくつかの塊に割れていることが予想される。Fig. 6に最上端ペレットの端面を示す。周辺～1 mmのリング状の部分及び中心部（直径約3 mm）に変色が見られない部分があるが、それ以外の部分は変色している。変色部のうち外側のリング状の部分はステンレス鋼製スペーサとの接触によるものと推定されるが、内側の変色の原因は明確でない。

Fig. 7にAl₂O₃ペレットの切断面の状態を示す。いくつかのき裂が認められる。被覆管とAl₂O₃ペレットの間には、間隙が認められたが、その巾はMCR 006の場合に比べて小さい。

4.2 寸法測定

被覆管の寸法測定結果をFig. 8に示す。B₄Cスタック下端より約100 mmの範囲に被覆管の外径変化が認められる。外径変化率は最大約0.2% $\Delta D/D$ で、MK-I制御棒TTJCO 8⁽⁷⁾の吸収ピン（最大燃焼度 20×10^{20} captures/cm³）に見られた変化率とほぼ等しい。

B₄Cペレットの外径変化率をFig. 9に示す。B₄Cペレットの外径変化率は燃焼度とともに増加し、燃焼度 42×10^{20} captures/cm³で1.1% $\Delta D/D$ となる。この外径変化率は「常陽」MK-Iで照射されたB₄Cの外径変化率（スエリング） $\Delta D/D = 3.1 \times 10^{-22}$ [BU] (BU: 燃焼度 captures/cm³) とほぼ一致する。

Al₂O₃ペレットの外径は15.89～15.90 mmであった。照射前の外径は15.60 mmであるので、外径変化率は最大で1.9%となる。

ダッシュラムの外径は40.340～40.358 mmであった。製造時の外径は40.28 mmであるので、外径変化率は最大で0.19%となる。

4.3 密度測定

ダッシュラムの密度は未照射材で7.967 g/cm³、照射材で7.932 g/cm³であった。密度変化率は0.44%で、これを寸法変化に換算した値は、 $1/3 \Delta \rho / \rho \approx 0.15\%$ となり、外径変化率とほぼ一致する。

4.4 熱伝導率測定

B₄C ペレットの室温における熱定数（比熱，熱拡散率，熱伝導率）を Table 3 に示す。比熱は照射によって変化しない。これに対して，熱伝導率は，燃焼度 5×10^{20} captures/cm³ で，未照射材の約22%に減少した。減少率は燃焼度の高いほうがわずかに大きい。Fig. 10に熱伝導率の温度依存性を示す。照射材の熱伝導率は温度とともにわずかに減少する。この傾向はMK-Iで 4×10^{20} captures/cm³ まで照射された B₄C ペレットの場合と同じである。また，照射材の熱伝導率の温度依存性は未照射材に比べて小さい。

4.5 組織観察

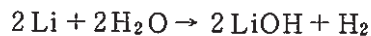
1) 被覆管

被覆管の組織を Fig. 11に示す。未照射材，照射材とも，冷間加工材特有の変形双晶帯が発達している。両者の間に有意な差は認められない。光学顕微鏡観察からは炭化物の析出はないものと推定される。

被覆管の硬さを Table 4 に示す。未照射材の硬さは，Hv = 257～293であり，いずれの試料にも照射効果が認められる。Fig. 12に照射量と硬さの関係を示す。照射量の増加とともに硬さは増加する。

2) B₄C ペレット

Fig. 13に最下端ペレット，下端より5番目及び13番目のペレットの低倍写真を示す。き裂の状態は下方のペレットほど著しい。最下端ペレット及び下端より5番目のペレットと被覆管との間の間隙は閉じており，13番目のペレットと被覆管との間には間隙が見られる。最下端ペレットのき裂部には白い付着物が見られるが，他のペレットではほとんど見られない。この白い付着物は $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応によって生成した Li と水（湿式で切断するため）とが次式の反応式に従って反応した反応生成物と推定される。



3) ダッシュラム

ダッシュラム材の照射前組織を Fig. 14に示す。周辺部と中心部での組織の相違は認められない。照射後の組織を Fig. 15に示す。周辺部の組織は未照射材の組織と同じであるが，外面より～3 cm 内側では炭化物の析出が認められる。この炭化物の析出状態は中心ほど顕著になる。

ダッシュラムの照射前の硬さは135～150 Hvであるのに対し，照射後の硬さは223～315 Hv で，被覆管の場合と同様照射硬化が認められる。径方向硬さ分布を Fig. 16に示すが，中心になるほど硬度は小さくなる。

4.6 γ 線波高分析

^{22}Na と ^{54}Mn の測定結果を Table 5 に示す。測定は1984年11月下旬に実施した。

^{54}Mn の生成量の多いほど ^{22}Na の生成量も多い。 ^{22}Na は ^{23}Na の (n, 2n) 反応で生成され、 ^{54}Mn は ^{54}Fe の (n, p) 反応で生成されたものである。

5. 結果の検討

5.1 ペレットの健全性

燃焼度が 5×10^{20} captures/cm³ を超えると、B₄Cペレットは、き裂の進行によって壊れていくことが明らかとなった。壊れたB₄Cペレットの軸方向位置はMCR 006 吸収ピンの場合とほぼ同じであった。

B₄Cペレットの破壊の原因として、1)熱応力に起因する場合、2)スエリングに起因する場合、3)両者の相乗による場合を上げることができる。

1)の場合、ペレット中心部と外周部の温度差が120℃を超えるととき裂がはいり破壊することが知られている⁽⁹⁾。2)の場合、ペレットの中心部と周辺部のスエリング差によって、スエリング誘起応力が生じ、破壊に至る。中心部と周辺部のスエリング差は、温度及び径方向の中性子束密度の違いによって起きる⁽¹⁰⁾。

B₄Cの結晶構造は六方晶系であり、照射によってa軸方向に膨脹し、c軸方向に収縮する⁽¹¹⁾。このため、結晶粒によって、膨脹、収縮方向が異なり、結晶粒界に応力が発生し、微小き裂の原因となる。実際に、このような微小き裂の発生はHollenbergら⁽¹²⁾や鈴木ら⁽¹³⁾によって報告されている。この微小き裂の発生は、破壊強度を低下させる原因となると推定される。

破壊強度Sは

$$S = \left(\frac{2E \cdot G}{\pi(1-\nu)^2} \right)^{1/2} \left[\frac{1}{2} \left(PS + \frac{1}{2} GS \right) \right]^{1/2} \exp(c \cdot p)$$

で表わされる⁽¹⁴⁾。ここで、E, G, ν , PS, GS, Pはそれぞれヤング率、表面エネルギー、ポアソン比、気孔の大きさ、粒径及び気孔率であり、cは定数（負の値）である。

鈴木ら⁽¹³⁾は高速炉照射したB₄Cペレット（燃焼度 10×10^{20} captures/cm³）のヤング率は照射によって未照射材に対して約50%減少し、ポアソン比は変化しないと報告している。またChristensenら⁽¹⁵⁾は気孔の形態及び粒径の検討を行い、気孔の大きさPS及び粒径は照射によって変化しないと報告している。ここで、表面エネルギーGは物質固有の定数なので、照射によって変化しないものとすれば、破壊強度Sは照射によって減少することになる。

燃焼度が $(5 \sim 10) \times 10^{20}$ captures/cm³ の範囲のB₄Cペレットの周辺と中心との温度差 ΔT はCORALコードによる解析では100℃以下であり、未照射B₄Cペレットでは熱応力によって破壊することはない⁽¹⁰⁾。実際には、照射後B₄Cペレットでは中心-周辺温度差が100℃以下のB₄Cペレットの場合も破壊が認められた。これは、照射による破壊強度が低下し、破壊に至ったものと推定される。

5.2 ペレットと被覆管の機械的相互作用 (ACMI)

B₄Cは $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応によって中性子を吸収し、Heを生成する。MK-II制御棒の照射条件では70%以上のHeがペレット内に保持される。このHeはB₄Cペレットのスエリングの原因となる。

寸法測定結果によれば、燃焼度 42×10^{20} captures/cm³のB₄Cペレットに接する被覆管の外径変化率は0.2%であった。この部分の断面観察によれば、B₄Cペレットと被覆管の間隙はないことが確かめられた。さらに、この部分の中性子照射量は 2.2×10^{22} n/cm² (E > 0.1 MeV)であり、20%冷間加工SUS 316 ステンレス鋼のスエリングは潜伏期にある⁽¹⁶⁾。従って、被覆管の歪の原因はB₄Cペレットのスエリングであると考えられる。

B₄CのスエリングはMK-I照射B₄Cの場合 $\Delta D/D = 3.1 \times 10^{-22}$ [BU]で表わされる。ここで[BU]は燃焼度(captures/cm³)である。MK-II B₄Cのスエリングもほぼこの式で表わすことができる(Fig. 9 参照)。MK-I B₄Cの密度は~98% T.D.、これに対してMK-II B₄Cは~90% T.D.と密度が異なる。しかし、スエリングには大きな相違はなく、スエリングに対する密度の影響は小さいものと推定される。

MK-I B₄Cスエリング式に基づき、被覆管の外径変化率をCORALコードによって予測すると、約 45×10^{20} captures/cm³の燃焼度(B₄Cスタック下端部)の部分では~0.2%となる。実測値は~0.2%であり、予測値とよく一致する。

5.3 Al₂O₃ ペレットのスエリング

Clinard ら⁽¹⁷⁾は単結晶及び多結晶Al₂O₃を高速中性子照射し、そのスエリングを調べた。この結果をFig. 17に示す。 2×10^{22} n/cm²まで照射された多結晶体では、照射温度が~650℃の場合4% $\Delta V/V$ 、~830℃では6.5% $\Delta V/V$ の体積スエリングとなる。本結果では 2.4×10^{22} n/cm²の照射で $3(\Delta D/D) \approx 5.6\%$ (体積スエリング換算)となり、650℃照射と830℃照射の中間値を示した。

Al₂O₃ペレットのスエリングは 2.4×10^{22} n/cm²で $\Delta D/D \approx 1.9\%$ で、隣接するB₄Cペレットのスエリング~1.1%に比べて大きい。

5.4 熱伝導率の変化

MK-I B₄Cの熱伝導率の燃焼度依存性をFig. 18に示す。MK-II B₄Cの熱伝導率はMK-I B₄Cに比べて低く、また、Mahagin らの結果⁽¹⁸⁾よりも低い。一般に、多孔質物質の熱伝導率は気孔率の関数で表わされ⁽¹⁹⁾、気孔率が高いほど小さくなる。MK-I B₄Cの気孔率は約2%、Mahagin らの測定したB₄Cの場合は~8%に対し、MK-II B₄Cは10%と比較的気孔率が高いものである。このためMK-I B₄Cに比べて低密度のMK-II B₄Cの方が、熱伝導率が低くなったものと推定される。

5.5 ダッシュラムのスエリング

MK-Iのラッピングワイヤの $\sim 400^{\circ}\text{C}$ におけるスエリングをFig.19に示す。この図から明らかなように、ダッシュラムのスエリングはラッピングワイヤの $\sim 400^{\circ}\text{C}$ でのスエリング挙動⁽²⁰⁾と一致する。

ダッシュラムとMK-Iのラッピングワイヤは製造履歴は異なるが、いずれも溶体化処理した316ステンレス鋼である。比較的低い照射温度では、スエリングは化学組成、製造履歴等に比較的鈍感であるといわれている⁽²¹⁾。ダッシュラムの照射温度は、この鈍感な領域である。このため、ダッシュラムのスエリングは図中の予測値にそって増加するものと考えられる。ダッシュラムとダッシュポットの間隙はノミナル値で0.38%であり、そのため、使用期間が5サイクルを超えると干渉が生じるものと予想される。

5.6 ダッシュラム温度の推定

制御棒の冷却材入口温度は 370°C である。組織観察によれば、周辺部は未照射材の組織と変わらないが、中心部になるに従って粒界への炭化物析出が著しくなる。溶体化処理した316ステンレス鋼製ラッピングワイヤの組織観察及び硬さ測定結果⁽²²⁾を基にダッシュラムの温度を推定すると照射温度は 500°C 又は 500°C を超えたものと考えられる。

炉内での γ 発熱を 29 W/cc ⁽²³⁾として計算すると、ダッシュラム中心部の温度は約 550°C となる。これは金相試験（硬さ測定を含む）結果より推定した温度とほぼ一致する。

5.7 B_4C スタックへのNaの侵入

B_4C スタック頂部ペレットの端面の外観観察及びNaの比放射能の測定によってNaの侵入の有無を調べた。 B_4C 端面に変色はみられたが、これがNa侵入によるものとは確証しがたい。Fig.20に ^{54}Mn と ^{22}Na の比放射能の関係を示す。MK-II制御棒MCR 006, MCR 002とも似た傾向を示している。密封型制御棒(MK-I)であるTTJCO 7の ^{54}Mn と ^{22}Na の関係は、MK-II制御棒の場合と同じ傾向を示しており、測定された ^{22}Na は B_4C ペレット中の不純物として存在する ^{23}Na の放射化によるものと考えられる。

しかしながら、最上部 B_4C の端面には変色が認められており、本結果からはNa侵入の有無を議論することは難しい。また、 B_4C ペレット端面の変色の原因は明確でない。

6. ま と め

「常陽」MK-II制御棒として最高燃焼度 45×10^{20} captures/cm³まで使用したMCR 002 集合体について、B₄C、Al₂O₃、被覆管及びダッシュラムの外観検査、寸法測定、熱伝導率測定、組織観察等を行った結果、下記のことことが明らかとなった。

- 1) 燃焼度が 5×10^{20} captures/cm³ を超えたB₄Cペレットは破壊していた。
- 2) B₄Cペレットのスエリングは燃焼度が 42×10^{20} captures/cm³ で1.1% $\Delta D/D$ であった。
このB₄Cペレットのスエリングに伴い、被覆管とのACMIが生じ、その結果、被覆管の径が最大0.2%増加した。
- 3) Al₂O₃にスエリングが認められた。スエリング量は照射量が 2.4×10^{22} n/cm² ($E > 0.1$ MeV)で、約1.9% $\Delta D/D$ であった。
- 4) ダッシュラムのスエリングは0.19% $\Delta D/D$ であり、「常陽」MK-Iのラッピングワイヤ(溶体化処理材)の400℃におけるスエリング量と一致した。
- 5) B₄Cの室温での熱伝導率は照射によって減少し、燃焼度が 4.5×10^{20} captures/cm³ で0.012 cal/cm・sec・degとなる。これは未照射材の熱伝導率(0.063 cal/cm・sec・deg)の約1/5である。
また、照射済B₄Cの熱伝導率の温度依存性は未照射材に比べて小さい。
- 6) B₄Cペレットの外観検査及び γ 線波高分析からはNa侵入の証拠は得られなかった。

7. 参 考 文 献

- (1) IAEA IWGFR Specialists Meeting, Dimitrovgrad, USSR (1973)
- (2) IAEA IWGFR Specialist Meeting, Obninsk, USSR, (1983)
- (3) 伊藤, 渡部, 小野, 一海: PNC SN 941 83-73 (1983)
- (4) 井滝: PNC 941 83-111 (1983)
- (5) 実験炉部: PNC SN 936 84-02 (1984)
- (6) 鹿倉: AESテクニカルメモ, 84(AES) 11 (1984)
- (7) 鹿倉: PNC SN 952 84-07 (1984)
- (8) 柚原, 伊藤, 山口, 谷: PNC I 941 85-06 (1985)
- (9) 井藤, 渡部, 小野, 一海: PNC SN 941 82-247 (1982)
- (10) G.W. Hollenberg and J.A. Basmajian; J. Amer. Cera. Soc. Vol.65 No.4 (1982) 179
- (11) G.L. Coopland, R.G. Donnelly and W.R. Martin; Nacl. Tech. Vol.16 (1972) 226
- (12) G.W. Hollenberg, J.L. Jackson and J.A. Basmajian; HEDL-TME 78-103 (1979)
- (13) H. Suzuki, T. Maruyama and T. Wakasa; J. Nucl. Sci. Tech. Vol.16 No.8 (1979) 588
- (14) M. Oguma; J. Nucl. Mater 127 (1985) 67
- (15) J.A. Christensen, W.A. Ross, and J.A. Basmajian; HEDL-TME-73-90 (1973)
- (16) 野村ら: PNC SN 941 83-78 (1983)
- (17) F.W. Clinard J.r, G.W. Hurley and L.W. Hobbs; J. Nucl. Mater, 108 & 109 (1982) 655
- (18) D.E. Mahagin, J.L. Bates and D.E. Baker; HEDL-TME 73-78 (1973)
- (19) 例えば, G. Ondracek and B. Schulz; J. Nucl. Mater 46 (1973) 253
- (20) 柴原ら ; PNC SN941 84-33 (1984)
- (21) H.R. Brager, F.A. Garner and M.L. Hamiltor; HEDL-SA-3175 (1984)
- (22) 渡辺: PNC ZN 941 81-198 (1981)
- (23) 有井ら: PNC I 945 85-02 (1985)

Table 1 Chemical Compositions of Boron Carbide

(Wt%)										
Item	T.B.*	T.B. + T.C.**	B ₂ O ₃	Fe	Ti	Cl + F	Co	Cu	Mn	Na
Specifacation	77.0 ± 1.0	≥99.0	≤0.1	≤0.8	≤0.1	≤0.01	<0.005	≤0.01	≤0.01	≤0.01
Analtsis	76.96	99.45	0.01	0.05	<0.01	ND***	ND***	0.0042	0.0008	0.0026

* Total Boron

** Total Carbon

*** ND Cl <50 ppm

F <5 ppm

Co <2.5 ppm

Table 2 Chemical Compositions of Cladding

(Wt%)													
Item		C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Co	B	Fe
Specification		0.035 ~0.064	<0.75	1.50 ~2.00	0.015 ~0.035	<0.01	<0.2	13.00 ~14.00	16.00 ~18.00	2.00 ~3.00	<0.10	0.0005 ~0.003	Bal.
Heat No. L2232	1	0.043	0.46	1.85	0.026	0.007	0.02	13.87	16.68	2.22	0.04	0.0016	Bal.
	2	0.047	0.45	1.80	0.028	0.007	0.02	13.89	16.70	2.26	0.03	0.0018	Bal.

Table 3 Thermal Properties of Irradiated Boron Carbide

Specimen	Irradiation Condition		Thermal Diffusivity (cm ² /sec)	Specific Heat (cal/g·deg)	Thermal Conductivity (cal/sec·cm·deg)
	Burnup (cap/cm ³)	Temperature (°C)			
Unirradiated	—	—	0.13	0.23	0.063
Irradiated	2×10 ²⁰	400 ~ 430	0.037	0.23	0.018
Irradiated	4.5×10 ²⁰	410 ~ 460	0.032	0.22	0.015

Table 4 Micro Vickers-hardness of Irradiated Absorber Cladding

Specimen No.	Irradiation Condition		Micro Vickers hardness (Hv)
	Fluence (n/cm ²)	Temperature (°C)	
79031A-1	1.2×10 ²²	390	333-352 (av. 343)
-2			312-330 (av. 322)
79031E-1	2.4×10 ²²	390	333-356 (av. 349)
-2			346-371 (av. 357)
79032A-1	0.3×10 ²²	390	291-312 (av. 302)
-2			287-312 (av. 298)

Table 5 Specific Activity of ⁵⁴Mn and ²²Na in B₄C

Specimen No.	Irradiation Condition		Specific Activity (μCi/g)	
	Fluence (n/cm ²)	Temperature (°C)	⁵⁴ Mn	²² Na
790346	0.03×10 ²²	400 - 430	0.27	0.19
79031B-1	0.35×10 ²²	440 - 520	10.1	0.33
-2			27.2	1.10
-3			23.8	0.51
-4			17.3	0.61
79032-1	1.2 ×10 ²²	560 - 760	22.2	1.67
-2			19.1	0.88

3-EOC

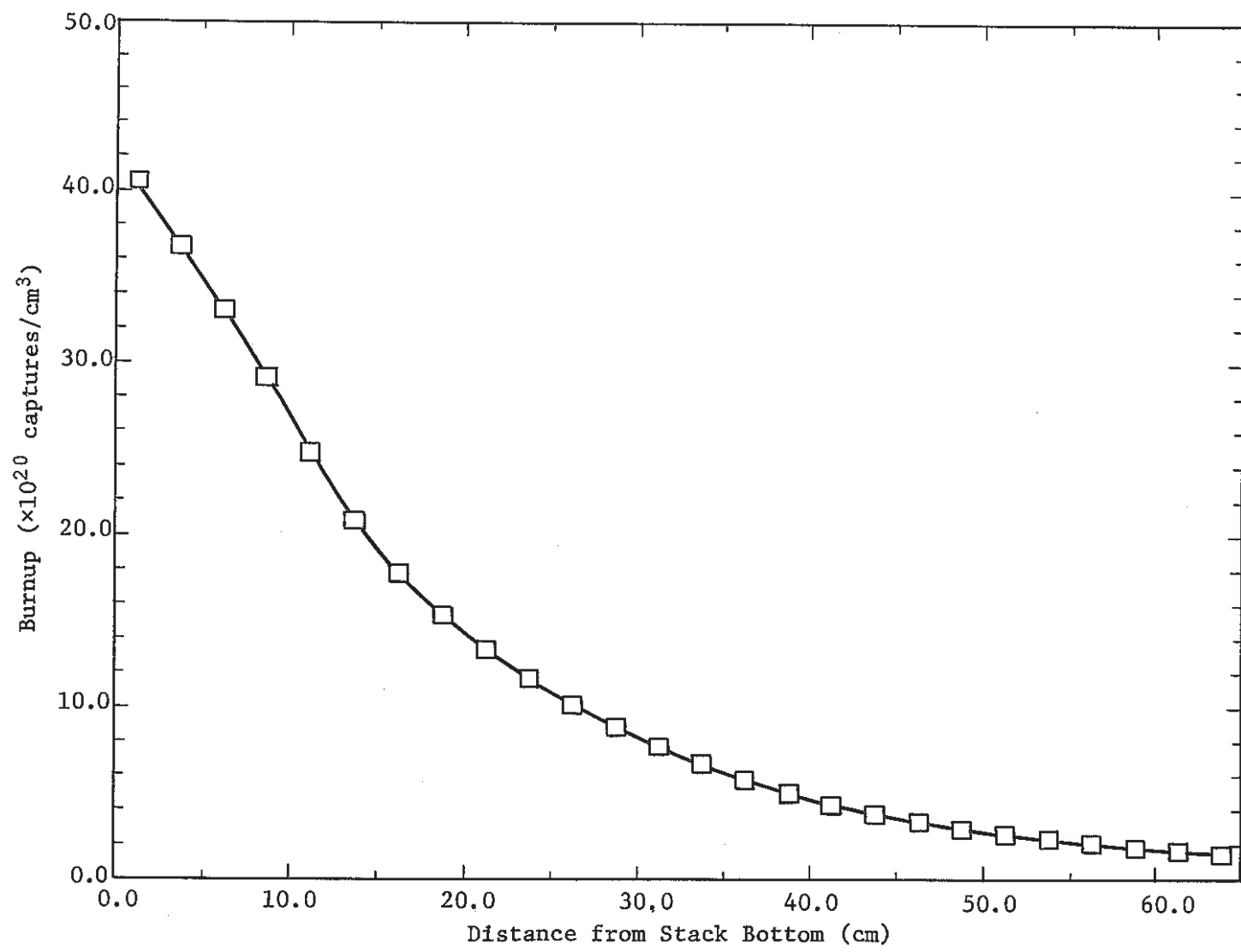
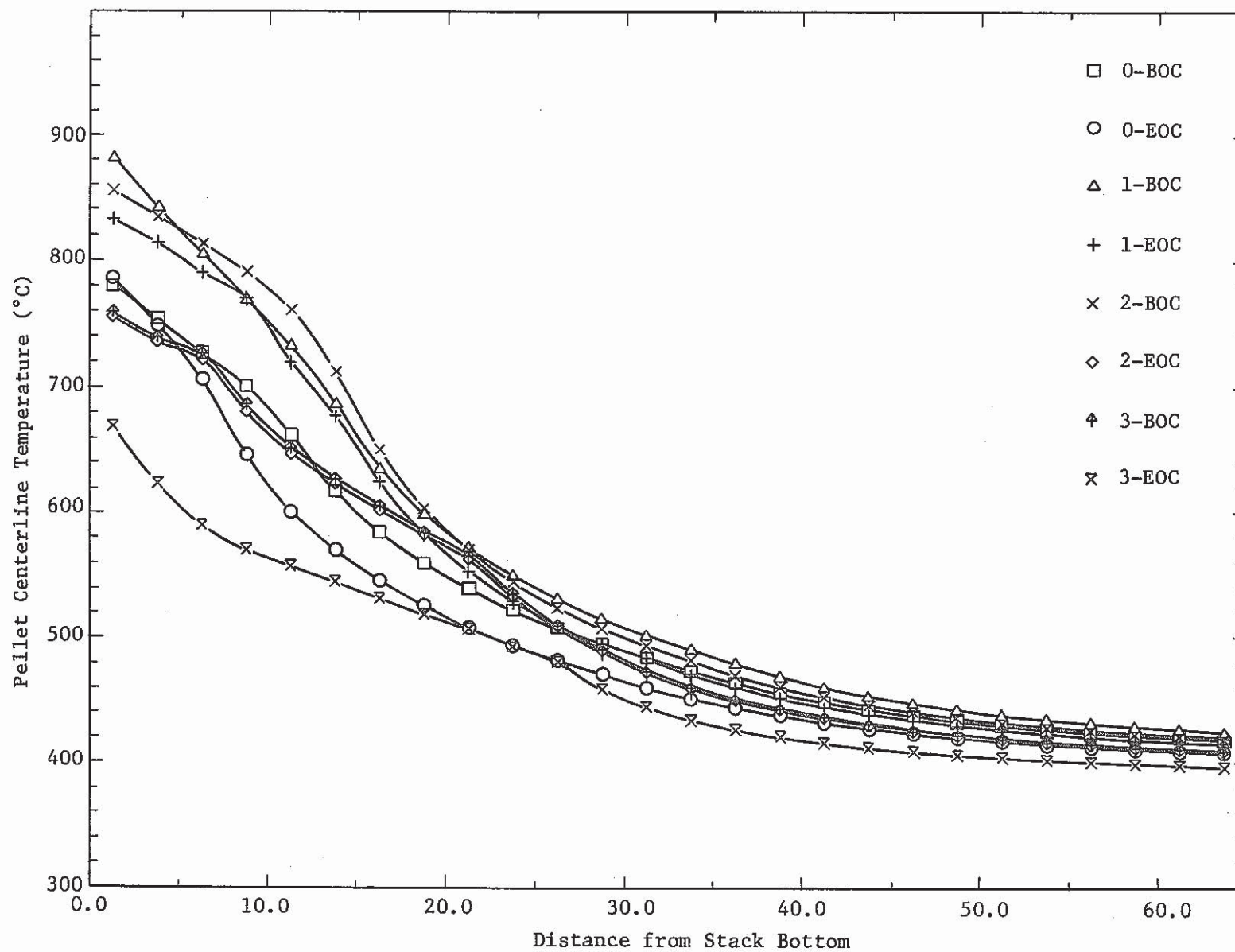


Fig. 1 Burnup of B₄C in MCR002 Assembly

Fig. 2 Pellet Centerline Temperature of B_4C in MCR002 Assembly

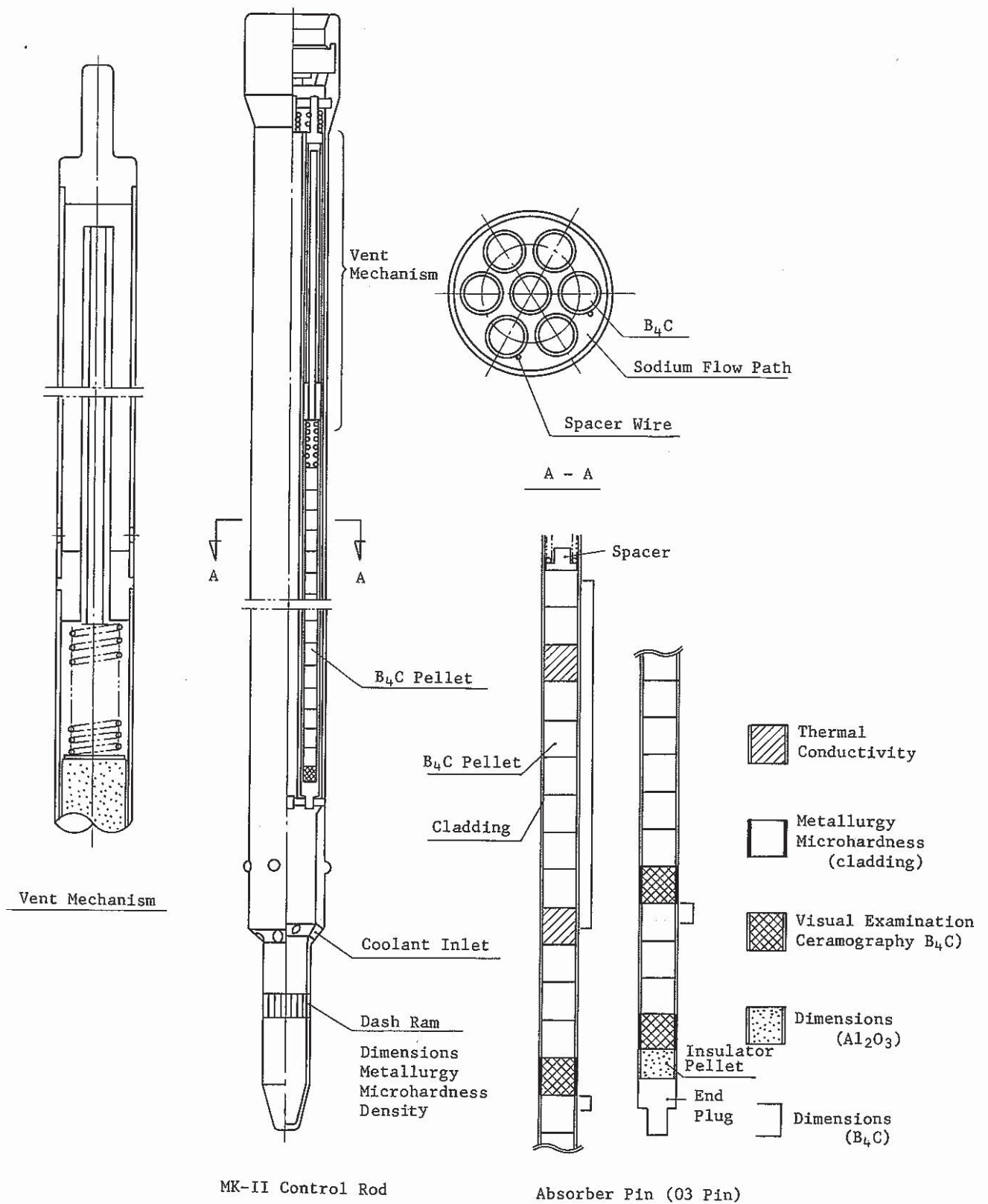


Fig. 3 Sampling of Specimen from Control Rod (MCR002)

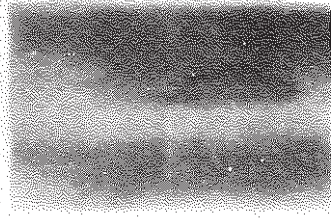


Fig. 4 B_4C Pellet Irradiated to a Burnup of 2×10^{20} captures/cm³

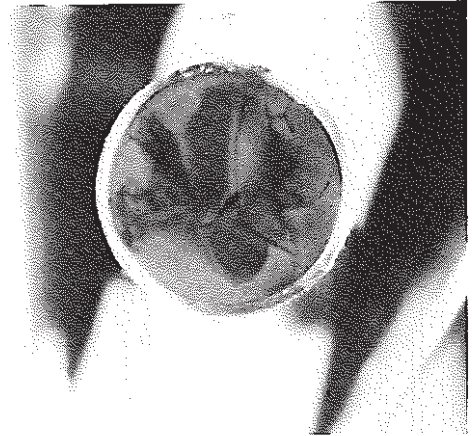


Fig. 5 Radial Sectional View of B_4C Pellet Irradiated to a Burnup of 45×10^{20} captures/cm³

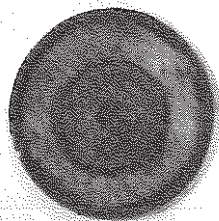


Fig. 6 Edge of B_4C Pellet at the Top of B_4C Stack

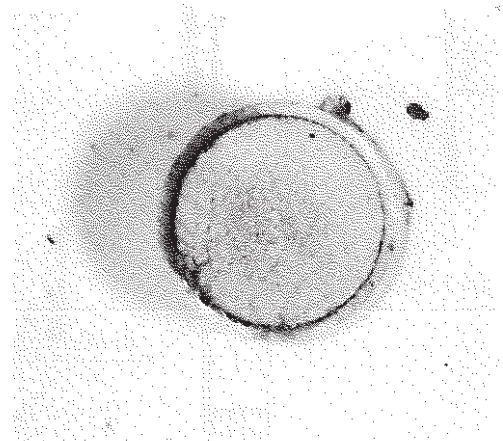


Fig. 7 Radial Sectional View of Irradiated Al_2O_3 Thermal Insulator

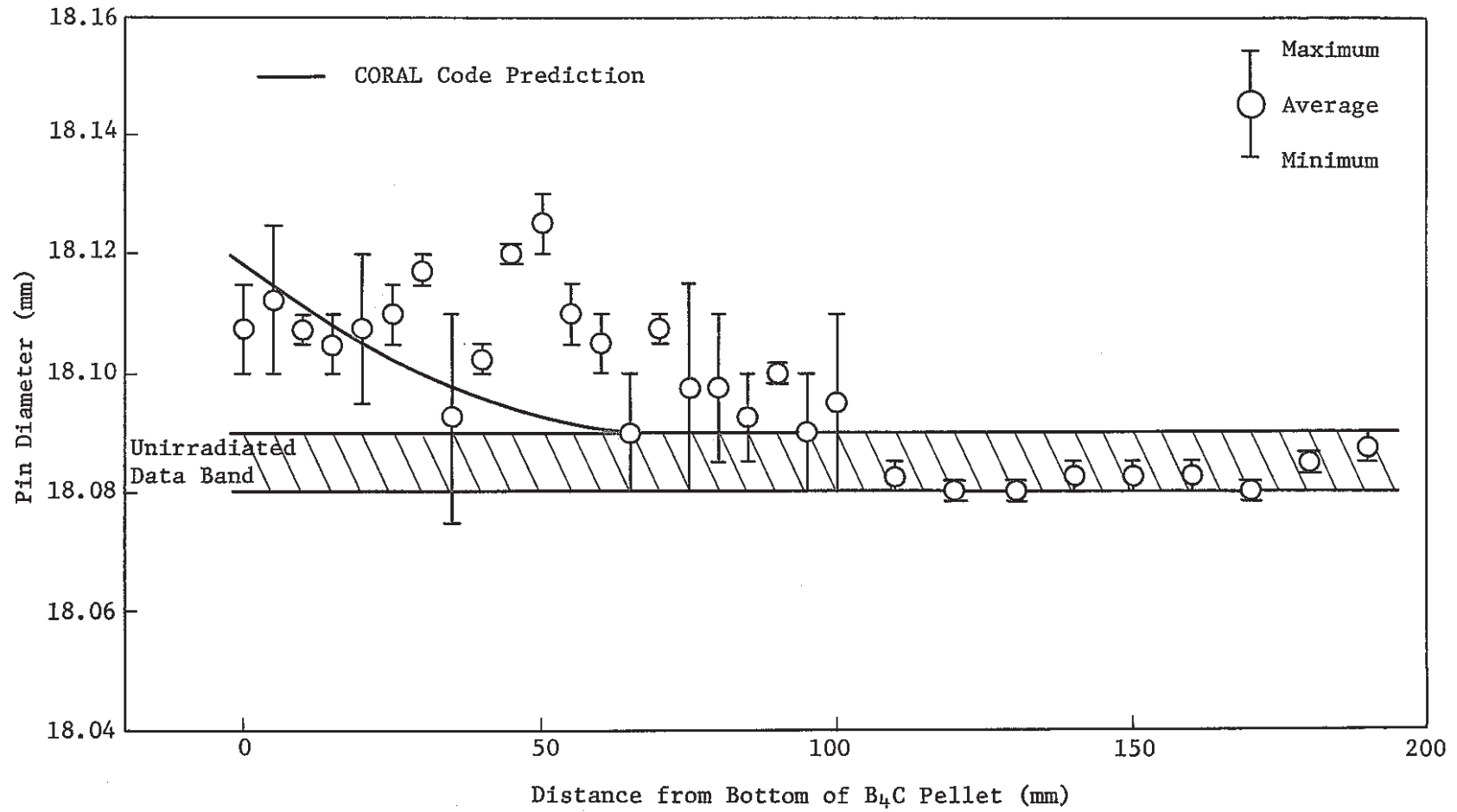


Fig. 8 Dimension of Irradiated Absorber Cladding

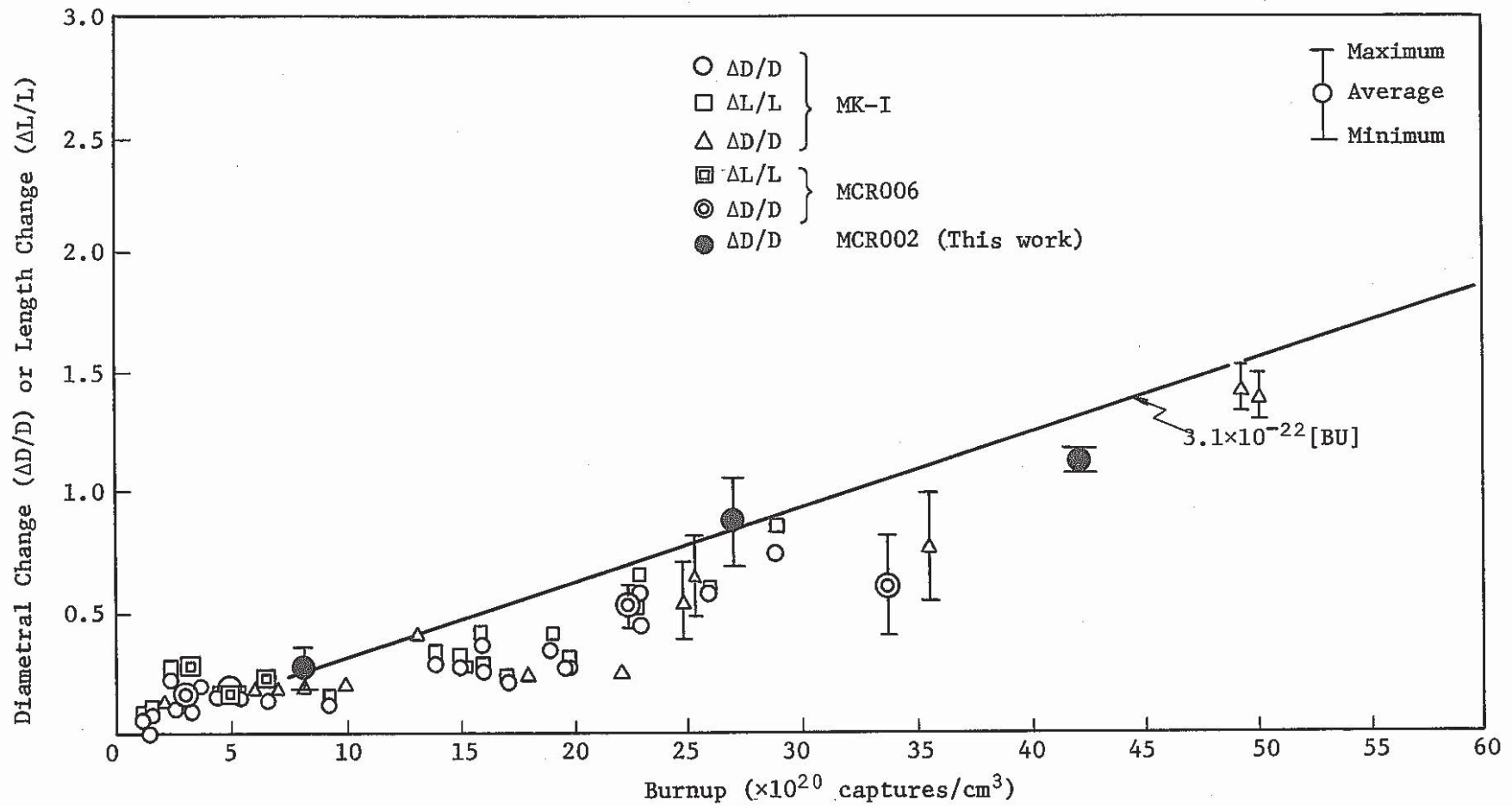


Fig. 9 Dimensional Change of Boron Carbide Pellets

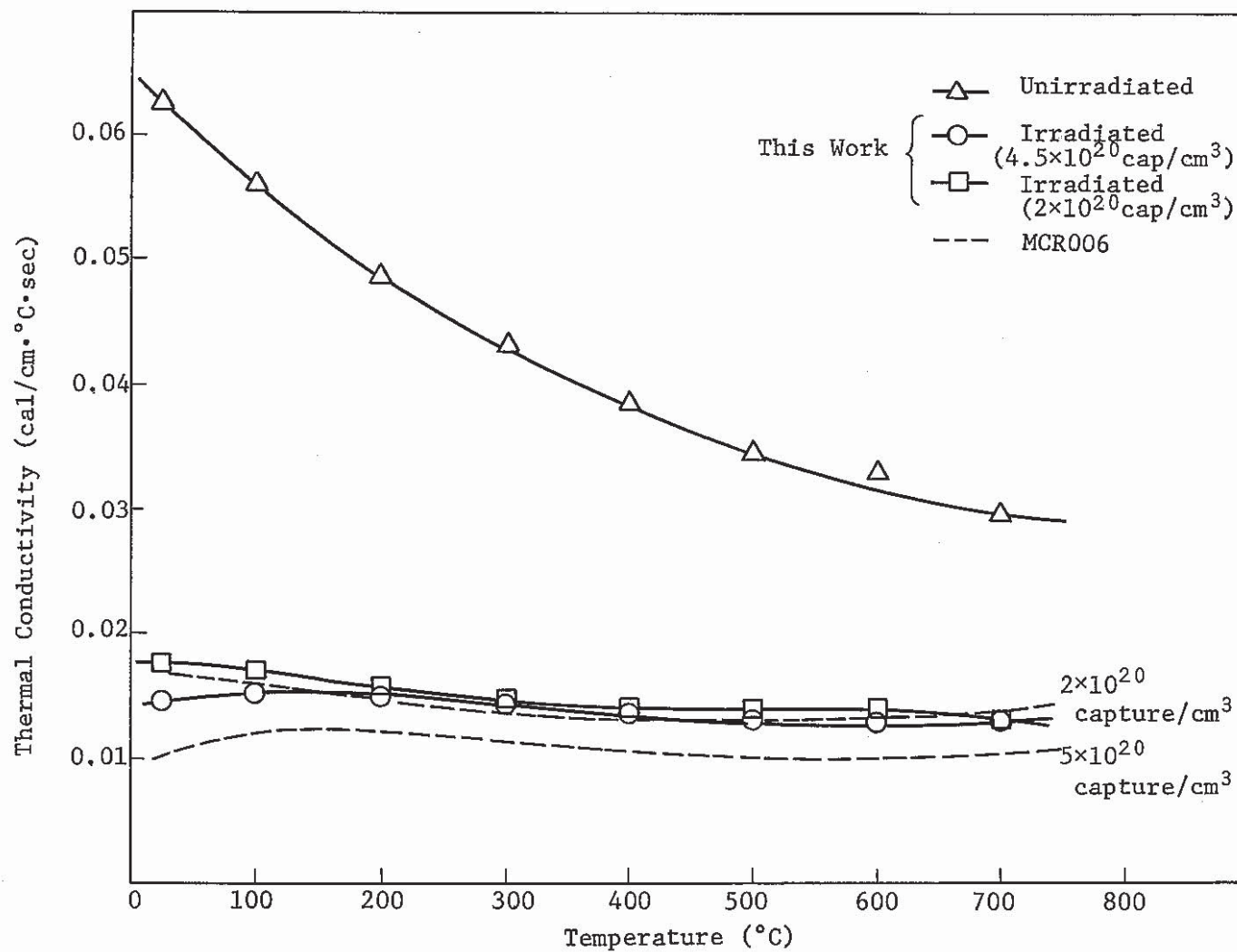
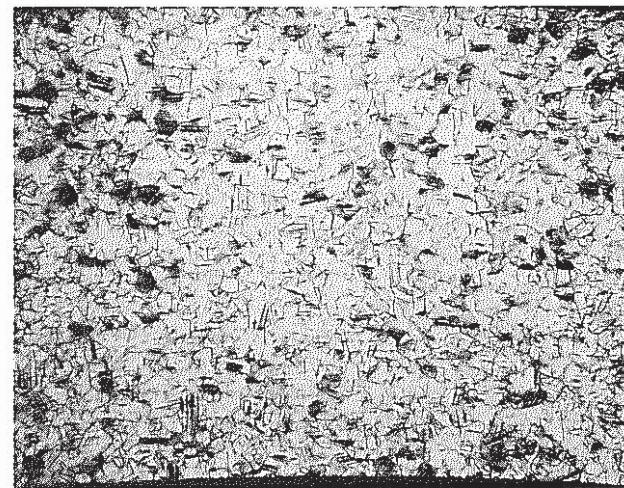


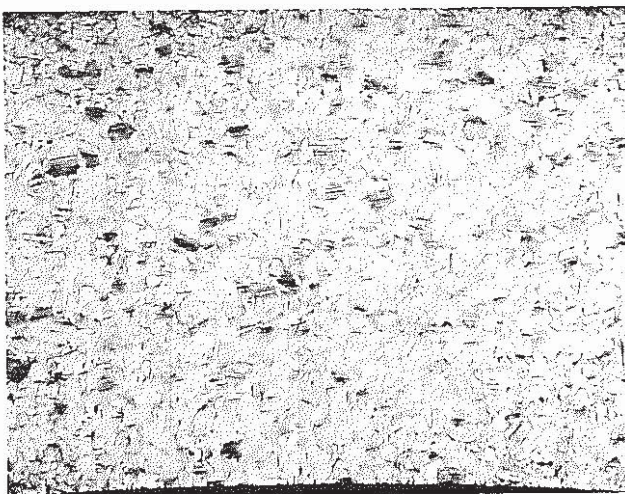
Fig. 10 Temperature Dependence of Thermal Conductivity of Unirradiated and Irradiated Boron Carbide



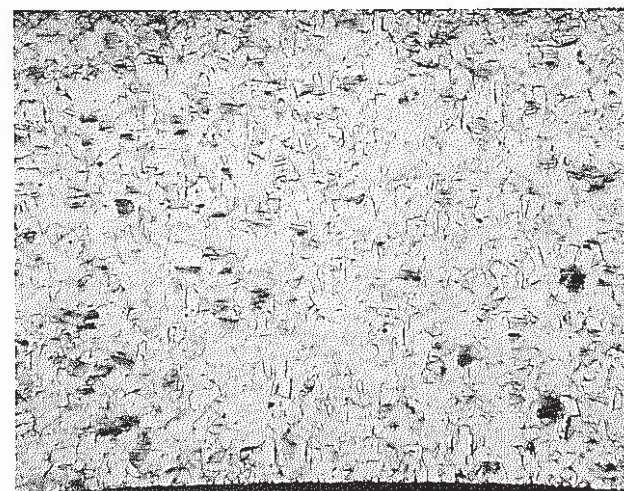
a) Unirradiated



b) $2.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$



c) $1.3 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$



d) $2.2 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

Fig. 11 Optical Micrographs of Irradiated Absorber Cladding (MCR002)

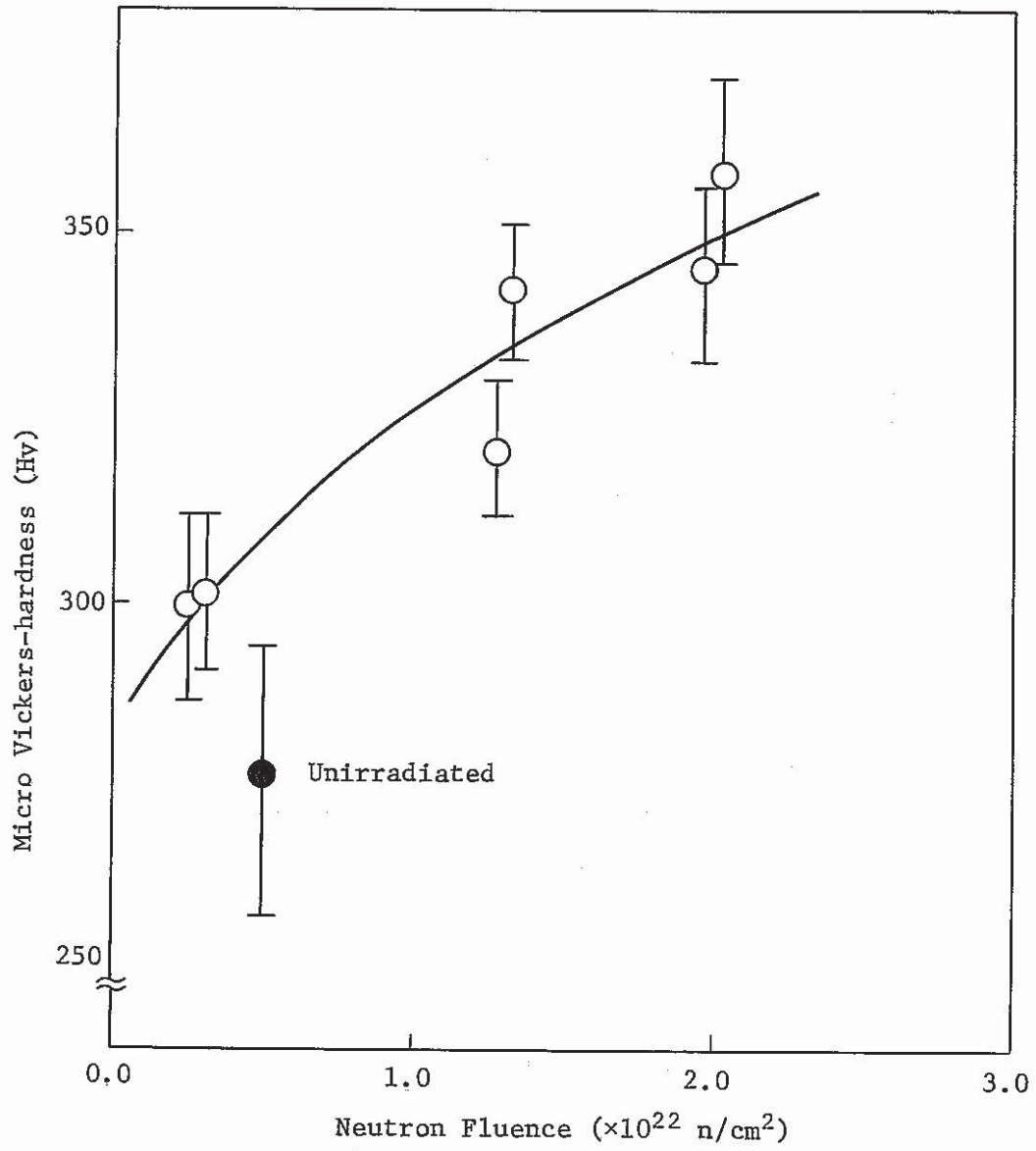


Fig. 12 Micro Vickers-hardness of Irradiated Absorber Cladding

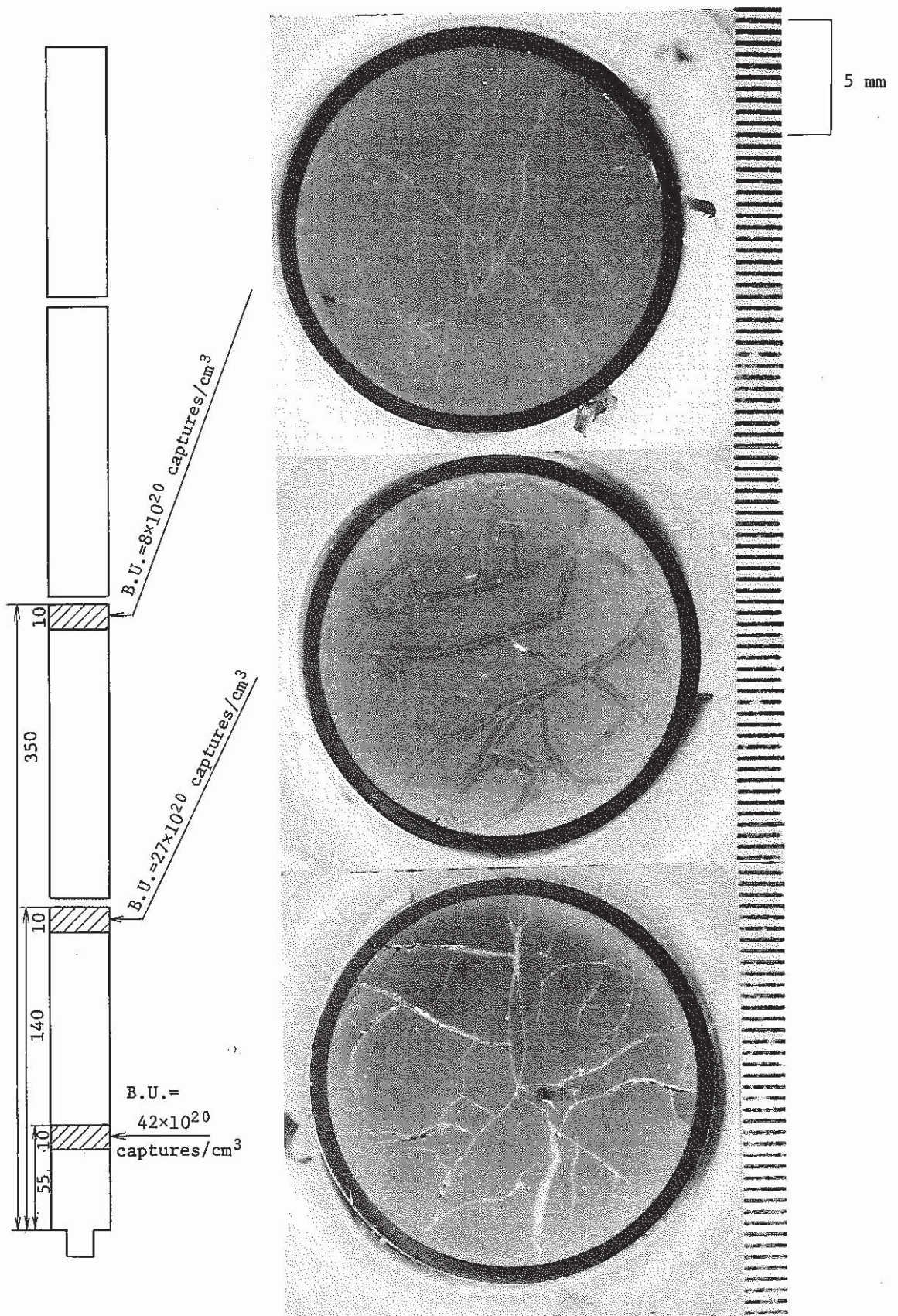
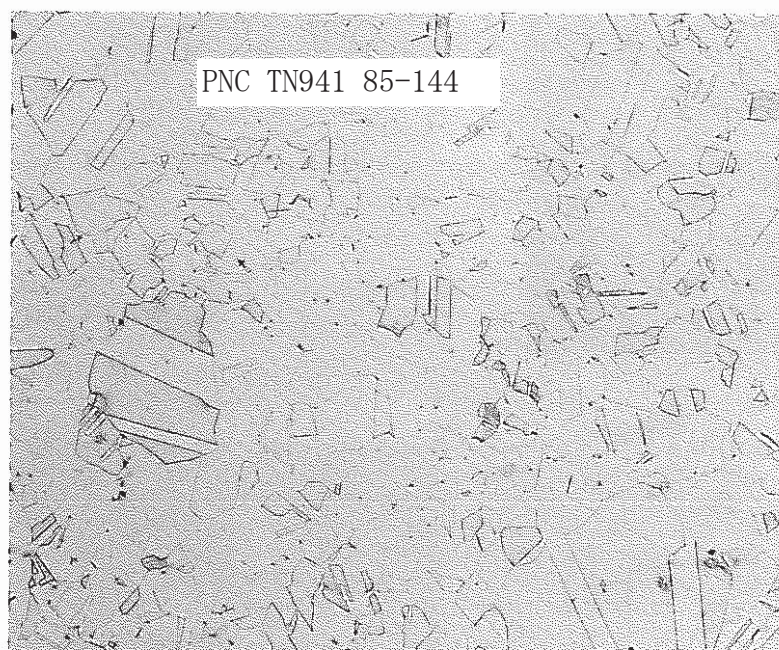


Fig. 13 Radial Sectional View of Irradiated B_4C



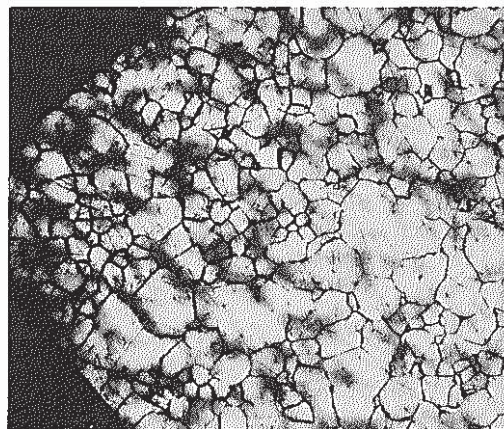
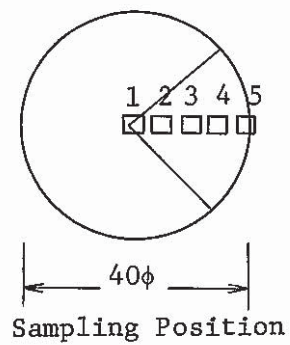
Circumferential Region



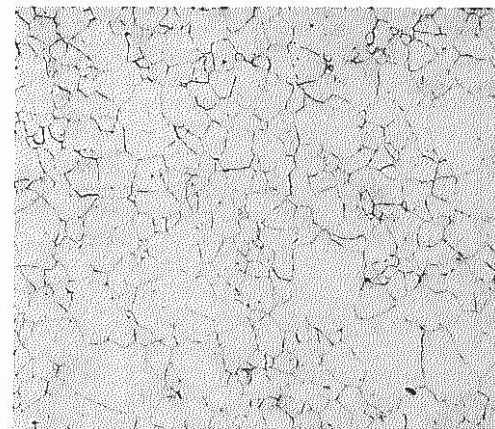
Center Region

0.1 μm

Fig. 14 Optical Micrographs of Unirradiator Dash Rum



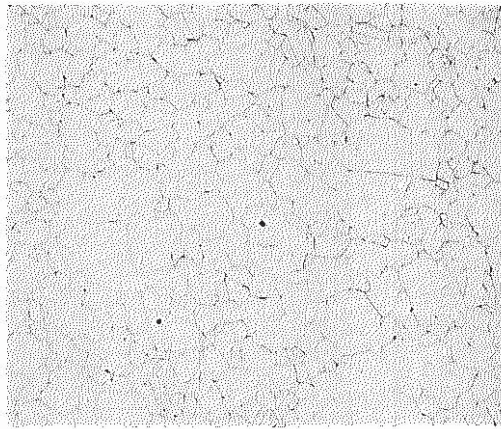
1



2



3



4



5

0.1 mm

Fig. 15 Optical Micrographs of Dash Ram Irradiated to a Fast Neutron Fluence of 2.67×10^{22} n/cm²

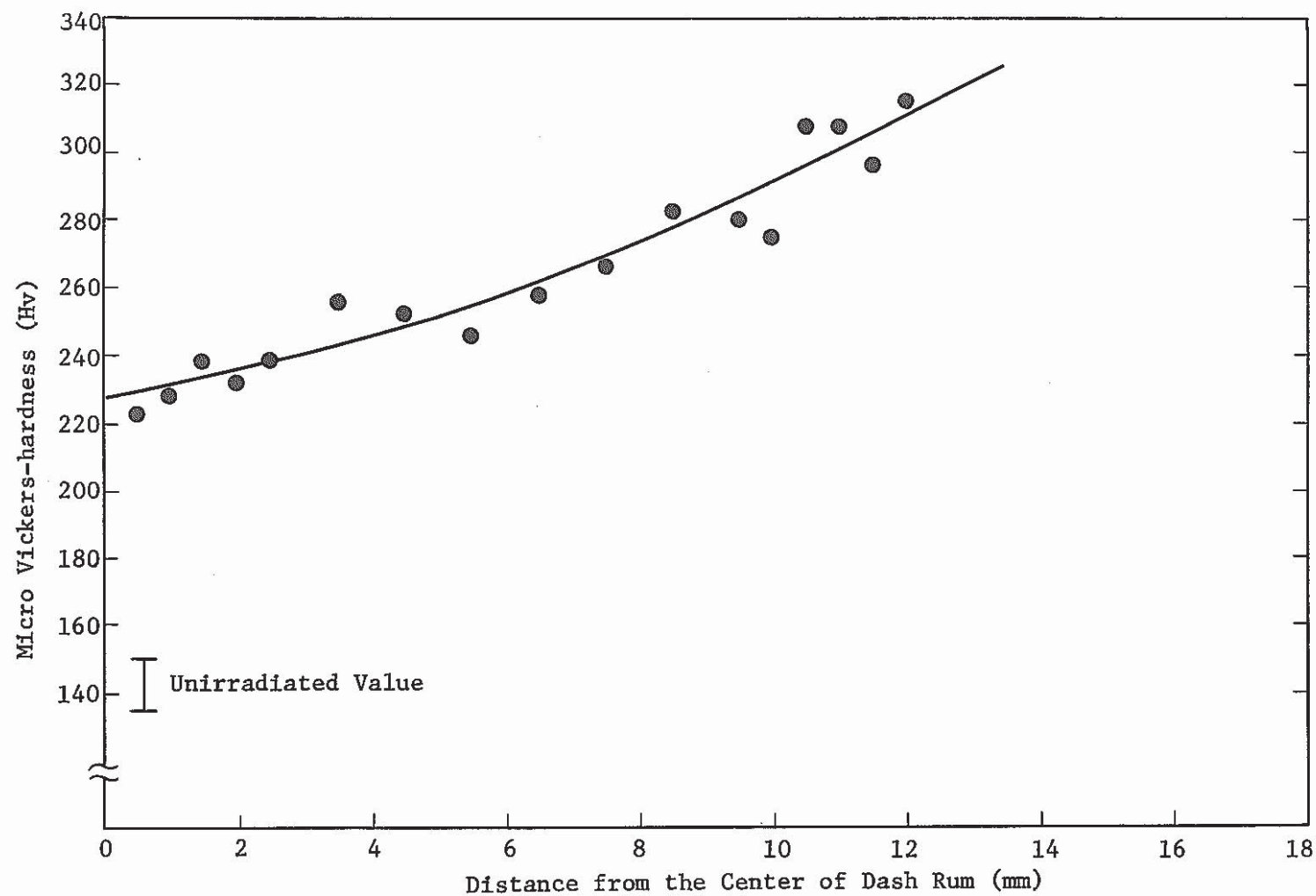


Fig. 16 Radial Distribution of Micro Vickers-hardness

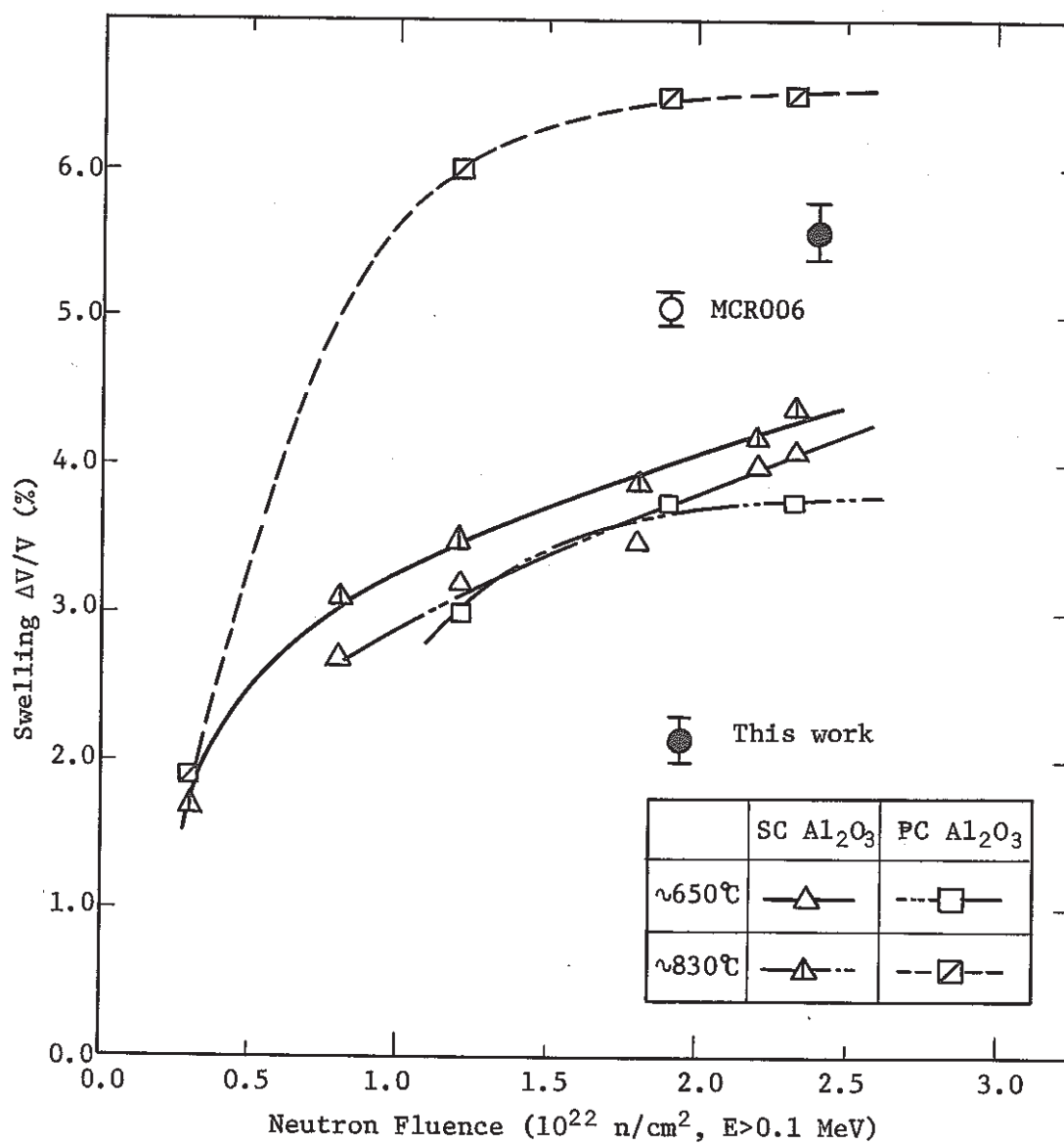
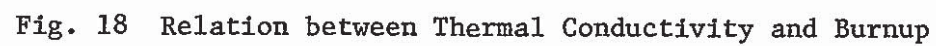


Fig. 17 Swelling of Al₂O₃ as a Function of Neutron Fluence⁽¹⁶⁾
(SC: Single Crystal, PC; Polycrystalline)



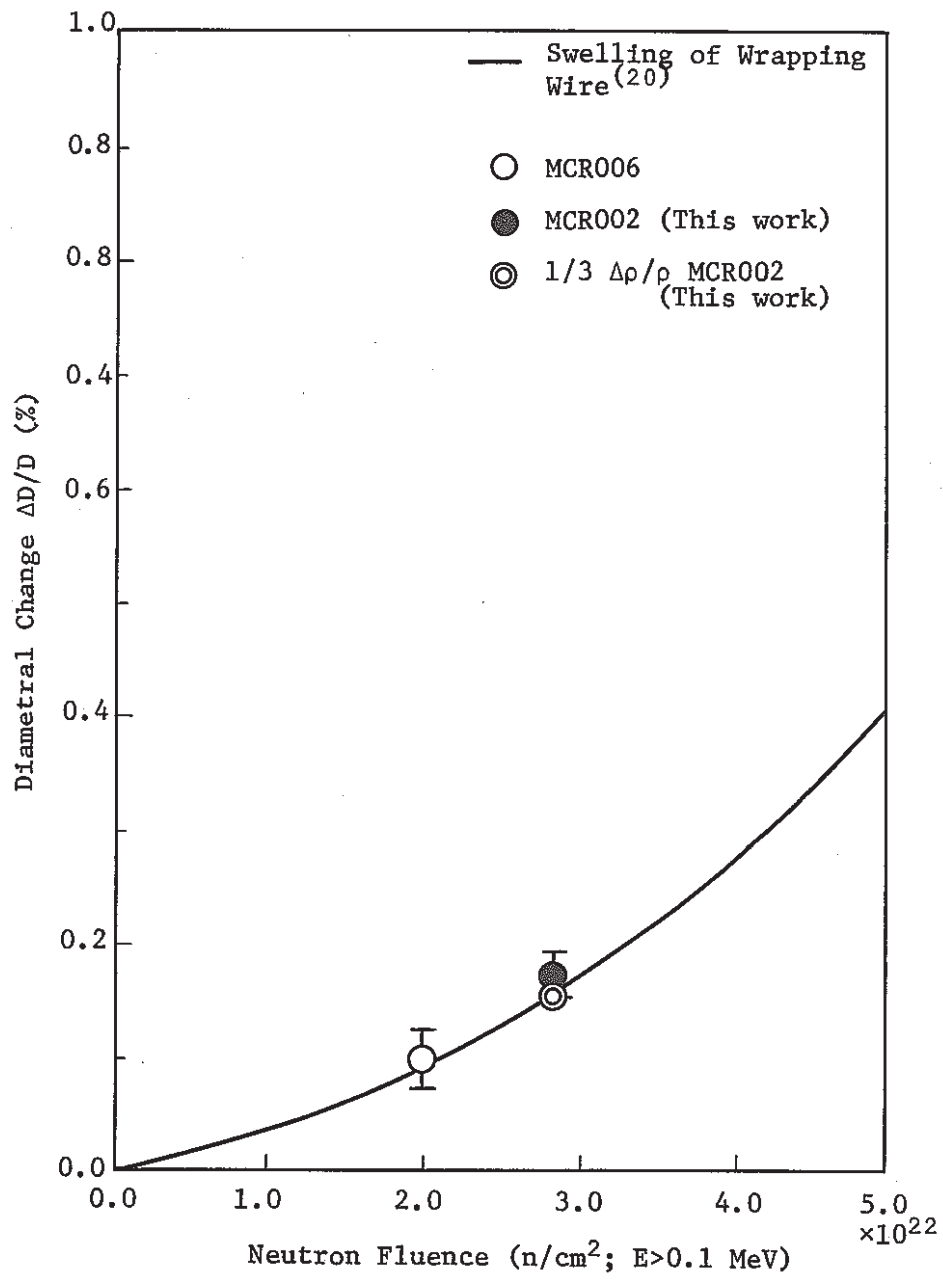


Fig. 19 Diametral Change of Dash Ram

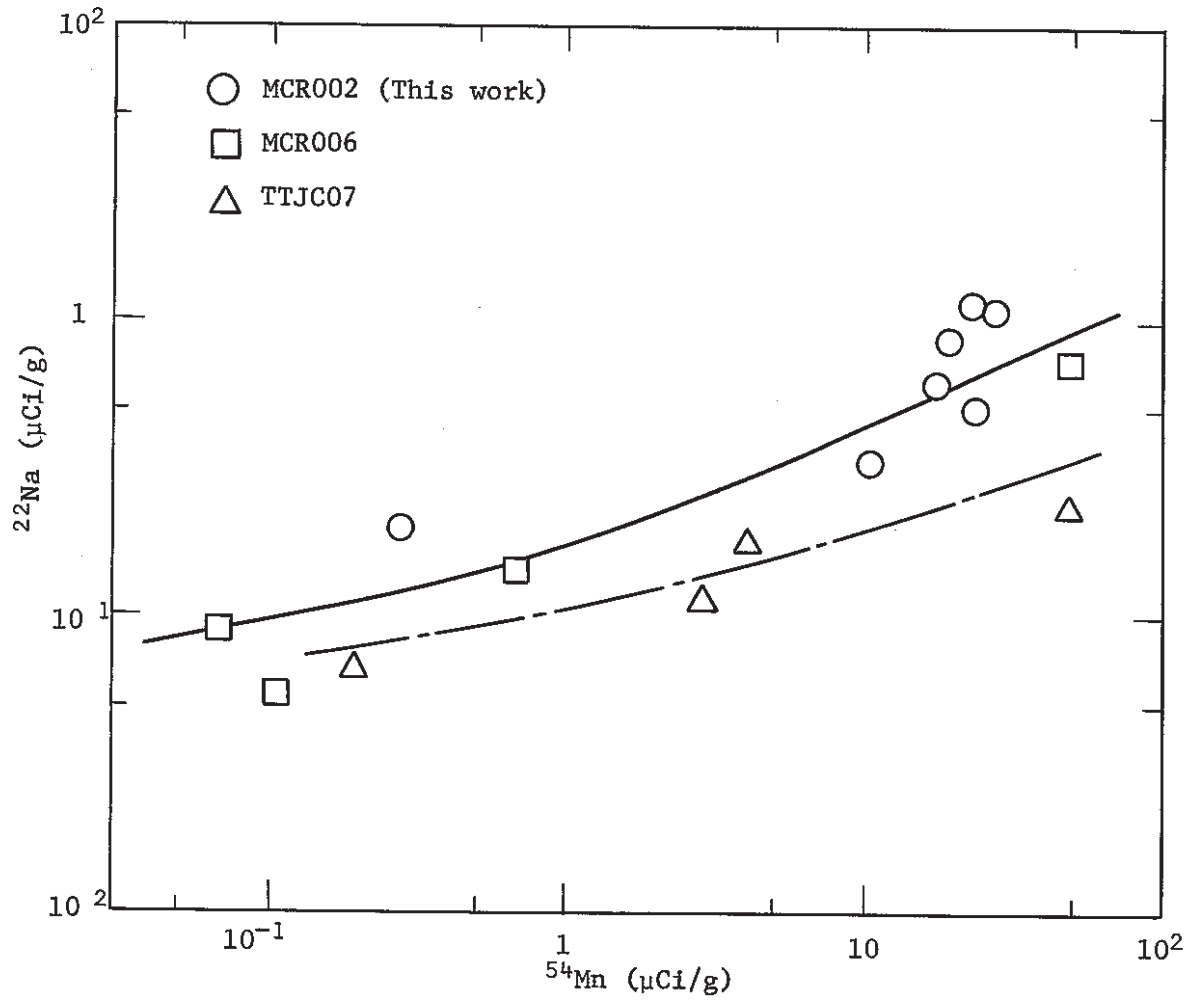


Fig. 20 Relation between ^{22}Na and ^{54}Mn Activity