

「常陽」MK-II 制御棒(MCR005)の照射後試験 (2)

吸収材料及び制御棒部材の破壊試験



1987年2月

技術資料コード	
開示区分	レポートNo.
T	N9410 87-187
この資料は 図書室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です	
動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター技術管理室	

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)

「常陽」MK-II制御棒(MCR005)の照射後試験 (2)

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 黒田幸雄* 平井 功* 伊藤正彦*
鵜飼重治** 谷 賢*

要 旨

「常陽」MK-II炉心で、最高燃焼度 8×10^{21} captures/cm³ (最高積算中性子量 3.8×10^{22} n/cm³)まで使用された制御棒(MCR005)について、B₄Cペレット、Al₂O₃ペレット、被覆管及び端栓の外観検査、寸法測定、密度測定、熱伝導率測定、金相試験及び燃焼度測定を行った。この結果、次のことが明らかとなった。

- (1) 燃焼度が 0.5×10^{21} captures/cm³を超えると、照射及び熱衝撃の相乗効果によって、B₄Cペレットは破壊する。
- (2) B₄Cペレットのスエリング量 $\Delta D/D$ は燃焼度とともに直線的に増加し、燃焼度 8×10^{21} captures/cm³で2.5%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1.2%の外径変化が認められた。
- (3) Al₂O₃ペレットに照射量が 5.2×10^{22} n/cm³ (E>0.1 MeV)で最大3% ($\Delta D/D$)のスエリングが認められたが、Al₂O₃ペレットと被覆管の機械的相互作用(ACMI)は認められなかった。
- (4) 被覆管にはスエリングは認められなかった。これに対し、端栓では0.13% ($\Delta D/D$)のスエリングが認められた。
- (5) B₄Cペレットの室温における熱伝導率は燃焼度が 0.95×10^{21} captures/cm³で0.012 cal/cm・sec・degとなり、未照射材の約1/5に低下した。また、熱伝導率の温度依存性は認められなかった。
- (6) 最高燃焼度に対応するB₄Cペレットと接する被覆管の一部にLiと被覆管成分との反応による吸収材料と被覆管の化学的相互作用(ACCI)が認められた。また、吸収材料と被覆管の機械的相互作用(ACMI)の生じている被覆管に内面から約10 μmの深さまで炭素の侵入が認められた。
- (7) ¹⁰B燃焼度の測定値と計算値は比較的良好一致した。

* 燃料材料開発部 照射材料試験室

** 燃料材料開発部 技術解析室

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 燃焼度測定	5
4. 試験結果	7
4.1 外観検査	7
4.2 寸法測定	7
4.3 密度測定	8
4.4 熱伝導率測定	8
4.5 組織観察	8
4.6 燃焼度測定	9
5. 結果の検討	10
5.1 ペレットの健全性	10
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	11
5.4 端栓溶接部の健全性	12
5.5 熱伝導率の変化	12
5.6 ^{10}B 燃焼度	12
6. まとめ	14
7. 参考文献	15

1. はじめに

高速炉用制御棒の吸収材料としては、炭化硼素（以下 B_4C という）が最も多く使用されている。我が国においても高速実験炉「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されることになっている。

1973年、高速炉制御棒に関する専門家会議⁽¹⁾がソビエト（デミトロフグレード）で開催されて以来、各国で B_4C 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（例えば、密度、結晶粒度、 B/C 比等）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る。このことは国産の B_4C ペレットの照射挙動の評価が「もんじゅ」あるいは大型炉設計に不可欠であることを示唆している。

1983年、再びソビエト（オブニスク）で第2回目の高速炉制御棒に関する専門家会議⁽²⁾が開催された。この結果、各国とも「いかに長く制御棒を使用するか（制御棒の長寿命化）」に関心が集集中しており、そのための研究開発が進められていることがわかった。この会議を通して明らかにされたことは、制御棒寿命に影響する因子として、 B_4C ペレットのスエリング等の照射挙動のみでなく、被覆管やダクトの照射変形の重要性が指摘されたことである。

国産 B_4C ペレットの照射挙動については、英国のDFRを使用した照射試験⁽³⁾及び「常陽」MK-I制御棒のモニタリングによって、燃焼度 5×10^{21} captures/cm³までのデータを得ることができた⁽⁴⁾⁽⁵⁾。さらに、高燃焼度にわたる B_4C ペレット及び制御棒部材に関する照射挙動を調べ、制御棒に関する照射挙動データの蓄積拡充を図るためにMK-II制御棒の照射後試験が計画された。

ここでは、この計画の一環として、最高燃焼度約 8×10^{21} captures/cm³まで使用した制御棒（MCR005）について、 B_4C ペレットの外観検査、寸法測定、熱伝導率測定、金相試験（EPMA観察を含む）及び燃焼度測定、インシュレータとして使用されている焼結アルミナ（ Al_2O_3 ）ペレットの寸法測定、被覆管及び端栓部の寸法測定、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

「常陽」MK-II制御棒は炉心第3列に配置されている。制御棒の使用実績をFig.1に示す。本試験に供した制御棒はMCR005で、MK-II初装荷制御棒の中で、最大燃焼度を有するものである。この使用期間は100MW(0)サイクルから100MW(6)サイクルまでの実効全出力運転期間にして約300日(300EFPD)であった。この間に受けた積算中性子照射量はB₄Cスタック下端部で $3.8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ (E>0.1MeV)であり、同位置における¹⁰B燃焼度は $8 \times 10^{21} \text{ captures/cm}^2$ であった。

Fig.2及びFig.3に制御棒挙動解析コード(CORAL)によって求めた燃焼度及びB₄Cペレット中心温度の軸方向分布を示す。また、B₄Cペレット中心温度の履歴をFig.4に示す。MK-I制御棒ではB₄Cスタック下端より上方に向かって燃焼度は減少するが、下端より20~30cmの位置で増加し、それより上方では再び徐々に減少する傾向を示したが、MK-II制御棒の場合は下端から上方に向かって減少し、MK-I制御棒に現われた燃焼度のピーク⁽⁵⁾は存在しない。これは、ブランケット燃料集合体の有無によるものと考えられる。

B₄Cペレットの中心温度はスタック下端では約800℃と最も高く、上端では約400℃と冷却材温度に近くなっている(照射末期)。これは上端の中性子束密度が低く、中性子の捕獲反応が低いため発熱が少ないことによる。B₄Cスタック下端温度はMK-Iで照射されたB₄Cペレットに比べて、200℃ほど高い。これはMK-IIの場合、中性子束密度が大きいため発熱量が多くなっていることと、MK-I B₄Cペレットの密度が98%T.D.であるのに対して、MK-II B₄Cペレットの密度が90%T.D.と低く、熱伝導率が低くなっているためである。B₄Cペレットの中心温度は各サイクル初期で高く、サイクル終了時で低くなっている。また、B₄Cペレットの中心温度の最高値は第2サイクル初期に現われ、1023℃であった。この温度履歴は制御棒の引き抜き量に関係している。

2.2 供試材

MK-II制御棒の仕様をTable 1に示す。また、制御棒の概略構造をFig.5に示す。制御棒はTable 1及びFig.5に示すように、ダイビングベル型のベント機構⁽¹⁾を有する7本のベント型吸収ピンより構成されている。ダクト、ダッシュラム、被覆管等の制御棒部材はSUS316ステンレス鋼製である。ダクト及び被覆管は20%冷間加工材であり、ダッシュラム及び端栓は溶体化処理材である。被覆管の寸法は外径18.1mm、内径16.5mm、肉厚0.8mmであり、MK-I制御棒被覆管に比べて薄肉となっている。これはMK-II制御棒吸収ピンがベント機構を有しているためである。被覆管及び端栓の化学成分をそれぞれTable 2及びTable 3に示す。

吸収材料はB₄Cであり、直径16.3mm、高さ25mmのホップレス成形体である。B₄Cペレット

の密度は 2.14 g/cm^3 ($\sim 90\%$ T.D.) で、MK-I B₄Cペレットの 2.35 g/cm^3 ($\sim 98\%$ T.D.) に比べて低い。¹⁰B濃度は 91.1 a/o で、MK-I B₄Cの 92.5 a/o に比べてわずかに低い。また、B/C比は約 4.1 でMK-I B₄Cペレットとはほぼ同じである。Table 4 にB₄Cペレットの化学成分を示す。

被覆管には 26 個のB₄Cペレットが挿入され、1本の吸収ピンを構成している。従って、B₄Cスタック長は 650 mm で、炉心高さ 550 mm に比べて長くなっている。

最下端B₄Cペレットと下部端栓の間には熱遮蔽材として、Al₂O₃ペレットが装荷されている。このAl₂O₃ペレットは常圧成型後、 1690°C で 51 時間かけて焼結されたもので、その密度は 2.75 g/cm^3 (75% T.D.) である。その純度は 99.88% 以上で、不純物としてSiO₂ ($0.07 \sim 0.08 \text{ w/o}$)、Fe₂O₃ (0.02 w/o)、Na₂O (0.02 w/o) 等が含まれている。Al₂O₃ペレットは 15.6 mm、高さ 20 mm で、B₄Cペレットに比べて、被覆管との間隙は広がっている。

3. 試験要領

3.1 外観検査

B₄Cペレット、Al₂O₃ペレット及び下部端栓について、ペリスコープを使用して目視観察し、写真撮影を行った。

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0～25mm，精度1/100mm）で、また、肉厚についてはブレードマイクロメータ（測定範囲0～25mm，精度1/100mm）で測定した。

(2) B₄Cペレット及びAl₂O₃ペレット

被覆管より取り出すことのできたB₄Cペレットは、被覆管外径と同じ方法で寸法を測定した。取り出すことのでき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ペレットの外径を求めた。ただし、この場合、被覆管とB₄Cペレットの間にギャップのないことをP型ペリスコープによって確認した。Al₂O₃ペレットの外径はB₄Cペレットと同じ方法で測定した。

3.3 密度測定

被覆管及び端栓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、浸漬液として蒸留水に0.2%の界面活性剤（エマルゲン40）を加えたものを使用した。

3.4 熱伝導率測定

亀裂の見られないペレットをダイヤモンドカッターにより、約2mm厚に切断し、これを熱伝導率測定試料とした。

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。熱伝導率測定試料の燃焼度は比較的low、密度に対する照射の影響は小さいので、B₄Cの密度として未照射材の値を使用した。試料の厚さはマイクロメータによって5点測定し、その平均値とした。

比熱及び熱拡散率はレーザーフラッシュ法によるB₄C熱伝導率測定装置によって行った。比熱測定の場合、試料温度の上昇はPR熱電対によって測定し、熱拡散率測定の場合はInSb半導体検出器によって、試料の温度履歴を記録した。

測定温度範囲は室温から700℃までで、100℃間隔で行った。

3.5 組織観察

(1) 被覆管及び端栓

試料を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し、鏡面仕上げした。研磨後、10%過硫酸アンモニウム溶液中で電解エッチングした。観察にはライヘルト光学顕微鏡を使用した。端栓については、研磨状態で溶接部の確認を行った後エッチングし、観察を行った。

(2) B₄Cペレット

試料をエポキシ樹脂に埋込んだ後、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ペレットの組織は、研磨面の観察のみ行った。

(3) EPMA及びIMAによる化学的相互作用(ACCI)の観察

鏡面研磨した試料について、被覆管へのB₄C構成元素の侵入の状況を調べるため、遮蔽型X線マイクロアナライザ(SXMA)及びイオンマイクロアナライザ(IMA)による分析を行った。

3.6 燃焼度測定

燃焼度の測定は固体質量分析計(表面電離型)及びイオンマイクロアナライザの両方法によって行った。

(1) 固体質量分析計

① 試料調製

B₄Cペレットをメノウ乳鉢で粉碎し、粉末とする。このB₄C粉末0.2gと混合融剤(Na₂CO₃+K₂CO₃)10gをニッケルルツボに秤り取り、加熱融解する。これを冷却し、NaNO₃0.3gを加えて、再度加熱融解する。冷却後、テフロンビーカーに入れ、水を加え、溶解する。この水溶液にH₂SO₄50mlを加え、加熱蒸発する。これを石英製蒸留フラスコに入れ、再び加熱処理する。放冷後、蒸留器をセットし、メタノール50mlを加え、80~90℃の水浴上で蒸留を行う。溜出液は、あらかじめNaOH溶液(10%溶液)20mlを入れてあるテフロンビーカーに受ける。これを蒸発乾固したものを質量分析用試料とする。

② Bの同位体分析

同位体分析は表面電離型質量分析計によって行った。なお、同位体比測定用標準試料としてはNBS-951を用いた。

(2) イオンマイクロアナライザ

① 試料調整

試料をエポキシ樹脂に埋込んだ後、ダイヤモンドディスクによって粗研磨し、さらにダイヤモンドペーストにて仕上げ研磨を行う。これをイオンマイクロアナライザ用試料とす

る。

② B同位体分析

B₄Cペレット径方向に10ヶ所、酸素イオンによってスパッタリングし、スパッタリングによって生成した2次イオンを質量分析計に導き、同位体分析を行う。ここで¹⁰B燃焼度は測定点10ヶ所の平均とする。

4. 試験結果

4.1 外観検査

吸収ピンには1本当たり26個のペレットが挿入されているが、押し出し治具により被覆管から取り出すことのできたペレットは、外側ピンの場合、上部より10個、中心ピンの場合、上部より14個であり、外側ピンの方が取り出しにくい。取り出された B_4C ペレットのペリスコープによる観察では、亀裂の見られた B_4C ペレットは外側ピンでは上部から8番目より下部に位置し、中心ピンでは上部から11番目より下部に位置するものであった。上部より2番目のペレット及び14番目のペレット(端面)の外観をFig.6及びFig.7に示す。2番目のペレットは白色の汚れはあるもののペレットに亀裂は認められない。14番目のペレットでは針状に発達した白色結晶状の付着物が認められるとともに径方向亀裂も認められる。白色の付着物は炎色反応の結果、炎が真紅を呈することからLi化合物であるとみなされる(Naの炎色反応は黄色である)。この亀裂は吸収ピンの下部にいくほど著しく、被覆管より取り出すことができれば、いくつかの破片に分破壊するものと推定される。

Fig.8に Al_2O_3 ペレットの状態を示す。外側ピンの Al_2O_3 ペレットは取扱い中に破壊したが、中心ピンに挿入されていた Al_2O_3 ペレットでは亀裂がみられるものの破壊には至っていない。また、 B_4C ペレットと接触した Al_2O_3 ペレットの端面の中心側はFig.8に示されるように黒色に変色していた。

下部端栓溶接部の状態をFig.9に示すが、照射による異常は認められない。

4.2 寸法測定

被覆管の寸法測定結果をFig.10及びFig.11に示す。外側ピンでは下端より200mmの範囲に、中心ピンでは下端より100mmの範囲に渡って被覆管外径の変化が認められる。外径変化率は外側ピン及び中心ピンでそれぞれ1.02%及び1.24%で、MK-I調整棒TTJC07の吸収ピン(最大燃焼度 5×10^{21} captures/cm²)に見られた変化率⁽⁶⁾とほぼ等しい。

B_4C ペレットの外径変化率をFig.12に示す。 B_4C ペレットの外径変化率は燃焼度とともに増加し、燃焼度 7.8×10^{21} captures/cm²で、2.5% $\Delta D/D$ となる。この外径変化率は「常陽」MK-Iで照射された B_4C の外径変化率(スエリング) $\Delta D/D = 3.1 \times 10^{-22} [BU](BU : \text{燃焼度 captures/cm}^2)$ の外挿値にほぼ一致する。

Al_2O_3 ペレットの体積変化率をFig.13に示す。 Al_2O_3 ペレットの体積変化率 $\Delta V/V$ は照射量とともに増加し、 5.2×10^{22} n/cm² ($E > 0.1$ MeV)で9%(Al_2O_3 ペレット中央部の寸法変化率3% $\Delta D/D$ に相当)に達する。また、 Al_2O_3 ペレットは軸方向位置によって、寸法変化率が異なり、 Al_2O_3 ペレット上方すなわち B_4C ペレット側の方が照射量が低くなるが、寸法変化率は大きくなる(Fig.14)。

下部端栓の照射前寸法は周辺ピンの場合 18.07 mm, 中心ピンの場合 18.08 mm で, 溶接部は規格上 18.03 mm 以下に抑えられている。照射後の下部端栓寸法は周辺ピンの端栓 18.18 mm, 溶接部 18.31 mm, 中心ピンの端栓 18.14 mm, 溶接部 18.29 mm であった。端栓については寸法の増加が認められ, 周辺ピン及び中心ピンで, それぞれ 0.6 % 及び 0.3 % であった。

4.3 密度測定

未照射被覆管の密度は 7.966 g/cm^3 であり, 照射材の密度は周辺ピン及び中心ピンでそれぞれ 7.968 g/cm^3 及び 7.967 g/cm^3 であった。密度測定精度は $\pm 0.003 \text{ g/cm}^3$ であることから, 被覆管のスエリングは認められない。

溶体化処理材である端栓材の密度は未照射材で 7.948 g/cm^3 , 照射材の周辺ピン及び中心ピンでそれぞれ 7.916 g/cm^3 及び 7.922 g/cm^3 であった。これをスエリング量に換算すると周辺ピンで 0.40 % (寸法変化率 0.13 % に相当), 中心ピンで 0.33 % (寸法変化率 0.11 % に相当) となる。

4.4 熱伝導率測定

B_4C 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 5 に示す。比熱への照射の影響は認められない。これに対し熱拡散率は, 燃焼度 $0.95 \times 10^{21} \text{ captures/cm}^2$ で, 未照射材の約 20 % に減少した。この熱拡散率の減少によって熱伝導率の減少もたらされる。減少率は燃焼度の高いほど大きい。Fig. 15 に熱伝導率の温度依存性を示す。未照射材の熱伝導率はフォノン伝導特有の現象すなわち温度上昇とともに減少する傾向を示す。これに対し, 照射材では温度依存性を示さなくなる。

4.5 組織観察

(1) 被覆管及び端栓

被覆管及び端栓溶接部の組織を Fig. 16 及び Fig. 17 に示す。被覆管については未照射材, 照射材とも, 冷間加工特有の変形双晶帯が多く認められる。未照射材と照射材の間に有意な差は認められず, 照射の影響はないものと考えられる。最高燃焼度に相当する B_4C ペレットに接触する被覆管内面の一部に反応したと推定される箇所が観察されたが, 大部分は Fig. 16 に示されるように化学的相互作用 (ACCI) は認められない。反応層の各元素による面分析の結果を Fig. 18 (SXMA) 及び Fig. 19 (IMA) に示す。反応層の厚さは約 $20 \mu\text{m}$ である。この反応層内には, 炭化硼素の主成分であるホウ素や炭素は認められず, Li と被覆管構成元素が認められた。このことから $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応で生成した Li と被覆管とが反応したものであると推定される。一方, ACCI の認められない部分の線分析結果によれば, ホウ素の被覆管への侵入はないが炭素が約 $10 \mu\text{m}$ 程度の深さまで拡散侵入していることが明らか

となった。

(2) B₄Cペレット

Fig. 20に最下端，下端より5番目及び6番目（外側ピン）並びに最下端及び6番目（中心ピン）のB₄Cペレットの低倍写真を示す。亀裂の状態は下方B₄Cペレットほど著しい。いずれのB₄Cペレットも被覆管との間の間隙は閉じている。下端より6番目のB₄Cペレットの亀裂は間隙が残っており，従って，被覆管を押し広げるACMIは生じていないと推定される。事実，被覆管の寸法測定によれば，径変化はない。

4.6 燃焼度測定

固体質量分析計及びイオンマイクロアナライザによる¹⁰B燃焼度の測定結果をそれぞれTable 6とTable 7に示す。また，軸方向分布をFig. 21に示す。燃焼度は周辺ピン（ピン01）の方が中心ピン（ピン07）よりも高い。固体質量分析計による方法とイオンマイクロアナライザによる方法ともその燃焼度分析結果は比較的一致する。また，実測値と制御棒挙動解析コード（CORAL）による計算値とも比較的良好一致している。

5. 結果の検討

5.1 ペレットの健全性

燃焼度が 0.5×10^{21} captures/cm³ を超えると、B₄Cペレットは亀裂の進展によって破壊していくことが明らかとなった。破壊したB₄Cペレットの位置は周辺ピンの場合、上部より8番目のペレットであるが、中心ピンでは11番目であった。B₄Cペレットのように吸収断面積が大きな物質の場合、自己遮蔽効果があるため、ペレット表面と中心では燃焼度が異なり、中心で小さくなる。MK-I B₄Cペレットの評価⁽⁷⁾によれば、燃焼度の中心と表面での比率は0.9で、中心では1割小さい。このような現象は制御棒吸収ピン配列中でも起こると考えられ、周辺ピンのB₄Cによる中性子の吸収によって、中心部で中性子束密度の減少が生じ、そのため、中心ピンの燃焼度が低くなるものと考えられる。事実、燃焼度測定結果によれば周辺ピンの方が中心ピンより燃焼度が大きい。このため、中心ピンのB₄Cペレットの方が、周辺ピンよりも下方のペレットまで健全で割れなかったものと考えられる。

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)両者の相乗効果による場合を上げることができる。(1)の場合、ペレット中心と表面の温度差が120℃を超えると亀裂が入り、破壊することが知られている⁽⁸⁾。(2)の場合、ペレットの中心と表面で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。中心と周辺のスエリング差は、温度及び径方向の中性子束密度の違いによって起きる⁽⁹⁾。

B₄Cの結晶構造は六方晶系であり、照射によって、a軸方向に膨張し、c軸方向に収縮する⁽¹⁰⁾。このため、結晶粒によって、膨張、収縮の方向が異なり、結晶粒界に応力が発生し、微小亀裂の原因となる。実際に、このような微小亀裂の発生はHollenbergら⁽⁹⁾及び鈴木ら⁽¹¹⁾によって報告されている。この微小亀裂の発生はB₄Cペレットの密度の低下すなわち気孔率を増加させるとともに、破壊強度を低下させる原因となると推定される。事実、佐藤⁽¹²⁾は気孔率の異なるB₄Cペレットの破壊強度を調べ、気孔率の増加は破壊強度を低下させることを明らかにしている。

照射後のB₄Cの熱伝導率はTable 4に示すように、照射によって未照射材の1/4～1/6に低下する。この熱伝導率の低下は、ペレット中心と表面の温度差を大きくし、その結果として熱応力を増大させる。このように、照射による破壊強度の減少及び熱応力の増大によって、B₄Cペレットが破壊に至ったものと考えられる。

5.2 ペレットと被覆管の機械的相互作用 (ACMI)

B₄Cは¹⁰B(n, α)⁷Li反応によって中性子を吸収し、Heを生成する。このHeがB₄C中に保持されるとB₄Cペレットにスエリングを誘起する。

寸法測定によれば、燃焼度 7.5×10^{21} captures/cm³ のB₄Cペレットに接する被覆管の外径変化率は最大で1.2%であった。この外径変化の認められた部分は、B₄Cスタック下端より、

周辺ピンの場合約200mm, 中心ピンの場合約150mm上方までであった。周辺ピンの方が上部までACMIが生じている。これは、周辺ピンの方が中心ピンよりも燃焼度が高いためであると考えらる。周辺ピン(8501)では最下端ペレット部より、下端より2番目のペレット部の方が被覆管外径増加が大きい。これは、最下端ペレット部での被覆管-B₄Cペレット間ギャップ(以下「ギャップ」という)が0.28mm, 下端より2番目のペレット部のギャップが0.17mmと初期ギャップの差によるものである。

寸法変化の認められた部分の断面観察結果によれば、ギャップが閉塞していることが認められ、さらに、被覆管の密度測定結果によれば、被覆管にスエリングが発生していないことが確かめられた。このことから、被覆管の寸法変化はB₄Cのスエリングに伴うものと考えられる。

B₄CペレットのスエリングはMK-I B₄Cペレットの場合、外径変化率 $\Delta D/D = 3.1 \times 10^{-22}$ [BU] で表わされる。ここで[BU]は燃焼度(captures/cm³)である。Fig.10及びFig.11から明らかなように、MK-II B₄Cペレットのスエリングもほぼこの式で表わすことができる。MK-I B₄Cペレットの密度は約98%T.D., これに対して、MK-II B₄Cペレットの密度は約90%T.D.と密度が異なる。しかし、スエリングには相違は認められず、スエリングに対するこの範囲での密度の影響はないものと推定される。また、MK-I B₄Cペレットのスエリング式に基づき、被覆管の外径変化率を制御棒挙動解析コード(CORAL)によって予測すると、B₄Cスタック下端部で約1.2%となる。なお、この予測において、ギャップは0.2mmとしている。従ってこれよりギャップが小さな場合はACMIによる被覆管歪が大きくなり、ギャップが大きな場合は被覆管歪が小さくなる。実際にギャップの大きな周辺ピン(Na8501)の場合、被覆管歪は約0.9%とCORALコードの予測に比べて小さくなっている。このようなことからCORALコードによる予測値は実測値とよく一致しているといえる。

5.3 Al₂O₃ペレットのスエリング

Clinardら⁽¹³⁾は単結晶(S)及び多結晶(P)のAl₂O₃を高速中性子照射し、そのスエリング挙動について調べた。その結果、Fig.13に示すように、 2.3×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV)まで照射された多結晶では、照射温度が約650℃では3.6% $\Delta V/V$, 約830℃では6.5% $\Delta V/V$ の体積スエリングとなる。本結果では 5.2×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV)の照射で $3(\Delta D/D) \approx 9\%$ となり、Clinardら⁽¹³⁾の外挿値に比べて、はるかに大きくなる。この原因としては、Fig.8に示すように、照射後のAl₂O₃は多くの亀裂を有しているため、外径はボイドの発生に伴うスエリングと亀裂の和として測定され、スエリングとしては過大評価されたためと推定される。Fig.22にAl₂O₃ペレットと被覆管とのギャップの状態を示すが、スエリングによって照射量の増加とともに、ギャップが徐々に閉じていくことがわかる。

5.2×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV)まで照射されたAl₂O₃は非常にもろく、取扱中に破損した(Fig.8参照)。また、Clinardらによれば、多結晶Al₂O₃のスエリングは 2×10^{22} n/cm²

($E > 0.1 \text{ MeV}$)以上の照射で飽和する。このことから、 B_4C ペレットと被覆管間にみられるようなACMIによる被覆管のふくれ現象は多結晶 Al_2O_3 ペレットの場合は生じないものと推定される。

Al_2O_3 の径変化は、上部(B_4C ペレットに近い側)ほど大きい。Clinardらによれば、S- Al_2O_3 、P- Al_2O_3 とも温度が高いほど径変化が大きい。 B_4C ペレットは発熱体であるため、 Al_2O_3 の温度は上部にいくほど高くなると考えられる。従って、この温度の相違により、 Al_2O_3 ペレットのスエリングの軸方向分布が生じたものと推定される。

5.4 端栓溶接部の健全性

被覆管及び端栓部の体積スエリング $\Delta V/V$ はそれぞれ0%及び0.4%であった。このスエリング差により、端栓溶接部に応力が発生する。スエリング差による歪は外径変化率 $\Delta D/D$ で表わすと0.133%となる。「もんじゅ」制御棒集合体の寿命延長検討資料⁽¹⁴⁾によれば、0.133%のスエリング差に伴う塑性歪は約0.26%と評価される。この値は歪制限値2%(暫定値)を下回る。また端栓溶接部長手断面の金相試験結果によれば亀裂等の異常は認められていない。従って、6サイクル照射では端栓溶接部の健全性に問題はないものと考えられる。

5.5 熱伝導率の変化

MK-I B_4C 及びMK-II B_4C の熱伝導率の燃焼度依存性をFig. 23に示す。MK-II B_4C の熱伝導率はMK-I B_4C の熱伝導率に比べて低い。92% T.D.の B_4C についてMahaginら⁽¹⁵⁾が測定した結果よりも低い。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⁽¹⁶⁾、気孔率が大きいほど小さくなる。MK-I B_4C の気孔率は約2%であるのに対して、MK-II B_4C の気孔率は10%とMK-II B_4C の方が大きい。このため、低密度のMK-II B_4C の方が熱伝導率が低くなったものと推定される。

熱伝導率は、照射によって低下するが、低下の程度は燃焼度が $0.3 \sim 0.5 \times 10^{21} \text{ captures/cm}^3$ までが著しく、その後は徐々に減少する。 B_4C ペレットの割れは $0.5 \times 10^{21} \text{ captures/cm}^3$ の燃焼度から著しくなるが、これには熱伝導率の低下が大きく影響しているものと考えられる。

5.6 ^{10}B 燃焼度

^{10}B 燃焼度の実測値と制御棒挙動解析コード(CORAL)による計算値とは比較的よく一致しているが、吸収ピン下部では計算値が大きく、上部では実測値が大きくなっている。この原因としては、計算に使用した中性子束密度の制御棒位置における実際の値との相違、同位体分析から ^{10}B 燃焼度を求める場合の未照射材 B_4C ペレットの $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$ 比のバラツキにあると考えられる。例えば、同一ロットであっても、 ^{10}B 濃度は90.27~90.38%と0.11%と変化する。この0.11%は燃焼度に換算すると1%弱となる。

このことから、質量分析計による ^{10}B 燃焼度測定に当たっては、未照射時の ^{10}B 濃度を厳密に測定しておかねば精度よい測定はできないものと考えられる。

6. ま と め

「常陽」MK-II制御棒として、最高燃焼度 8×10^{21} captures/cm³まで使用されたMCR005制御棒集合体について、B₄Cペレット、Al₂O₃ペレット、被覆管及び端栓溶接部の外観検査、寸法測定、密度測定、熱伝導率測定、金相試験及び燃焼度測定を行った結果、下記のことが明らかとなった。

- (1) 燃焼度が 0.5×10^{21} 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 $\Delta D/D$ は燃焼度とともに直線的に増加し、燃焼度約 8×10^{21} captures/cm³で2.5%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1.2%の寸法変化 ($\Delta D/D$)が発生した。
- (3) Al₂O₃ペレットに、照射量が 5.2×10^{22} n/cm² ($E > 0.1$ MeV)で、最大3%のスエリング $\Delta D/D$ が認められたがAl₂O₃ペレットと被覆管の機械的相互作用 (ACMI)は認められなかった。
- (4) 被覆管と端栓とのスエリング差を比較した場合、 $\Delta D/D$ 表示で0.13%であった。
- (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 0.95×10^{21} captures/cm³で 0.012 cal/cm \cdot sec \cdot degとなり、未照射材の約1/5に低下した。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少ない。
- (6) 最高燃焼度に対応するB₄Cペレットと接する被覆管の一部にACCI (B₄Cペレットと被覆管間の化学的相互作用)が認められた。このACCIには $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応によって生成するLiが関与していることが明らかとなった。また、ACMIの生じている被覆管に内面から約10 μm の深さまで炭素の侵入が認められた。
- (7) ^{10}B 燃焼度の測定値と計算値は比較的よく一致した。

7. 参 考 文 献

- (1) IAEA IWGFR Specialists Meeting, Dimitrovgrad, USSR(1973)
- (2) IAEA IWGFR Specialists Meeting, Obninsk, USSR(1973)
- (3) 鈴木, 伊藤, 浅賀, 関, 小野瀬; PNC N941 78-34(1978)
- (4) 渡辺; PNC ZN941 81-148(1981)
- (5) 井滝; PNC SN941 83-111(1983)
- (6) 伊藤, 渡部, 小野, 一海; PNC SN941 83-73(1983)
- (7) 池上; 技術課メモ, 技-58-23(1984)
- (8) G.W.Hollenberg and J.A.Basmajian; J.Amer.Cera.Soc.vol.65
No.4(1982)179
- (9) G.W.Hollenberg, J.L.Jackson and J.A.Basmajian; HEDL-TME
78-103(1979)
- (10) G.L.Coopland, R.G.Donnelly and W.R.Martin; Nucl.Tech.vol.16
(1972)226
- (11) H.Suzuki, T.Maruyama and T.Wakasa; J.Nucl.Sci.Tech.vol.16
No.8(1979)588
- (12) 佐藤; PNC SJ268 84-02(1984)
- (13) F.W.Clinard Jr., G.W.Hurley and L.W.Hobbs; J.Nucl.Mater,
108&109(1982)655
- (14) 鈴木威男: 「もんじゅ」微調整棒集合体の寿命延長設計検討書(1984)
- (15) D.E.Mahagin, J.L.Bates and D.E.Baker; HEDL-TME 73-78
(1973)
- (16) 例えば, G.Ondracek and B.Schulz; J.Nucl.Mater.46(1973)253

Table 1 Specifications of MK-II Control Rod

Items	Nominal Value
Absorber	
Material	B ₄ C
¹⁰ B Enrichment (w/o)	90.4
Pellet	
Outer Diameter (cm)	1.63
Density (%T.D)	90
Effective Length (cm)	65
Number of Elements per Control Rod	7
Absorber Pin Type	Vented Type
Cladding	
Material	SUS316

Table 2 Chemical Compositions of Cladding

		(wt%)											
Item		C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Co	B	Fe
Specification		0.035	<0.75	1.50	0.015	<0.01	<0.2	13.00	16.00	2.00	<0.10	0.0005	Bal.
		~0.064		~2.00	~0.035			~14.00	~18.00	~3.00		~0.003	
Check	1	0.043	0.46	1.85	0.026	0.007	0.02	13.87	16.68	2.22	0.04	0.0016	Bal.
Analysis	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 Chemical Compositions of End Plug

		(wt%)										
Item		C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Co	Fe	
Specification		<0.08	<1.00	<2.00	<0.040	<0.030	10.00	16.00	2.00	<0.25	Bal.	
							~14.00	~18.00	~3.00			
Check	1	0.06	0.57	1.79	0.024	0.012	12.29	16.62	2.28	0.04	Bal.	
Analysis	2	0.06	0.58	1.79	0.023	0.013	12.27	16.59	2.25	0.04	Bal.	

Table 4 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
Specification		77.0±1.0	≥99.0	≤0.1	≤0.8	≤0.1	≤0.01	<0.005	≤0.01	≤0.01	≤0.01
Check		76.87	99.19	0.01	0.03	<0.01	0.0006	<0.0025	0.0025	0.0006	0.0016

* Total Boron

** Total Carbon

Table 5 Thermal Properties of Irradiated Boron Carbide

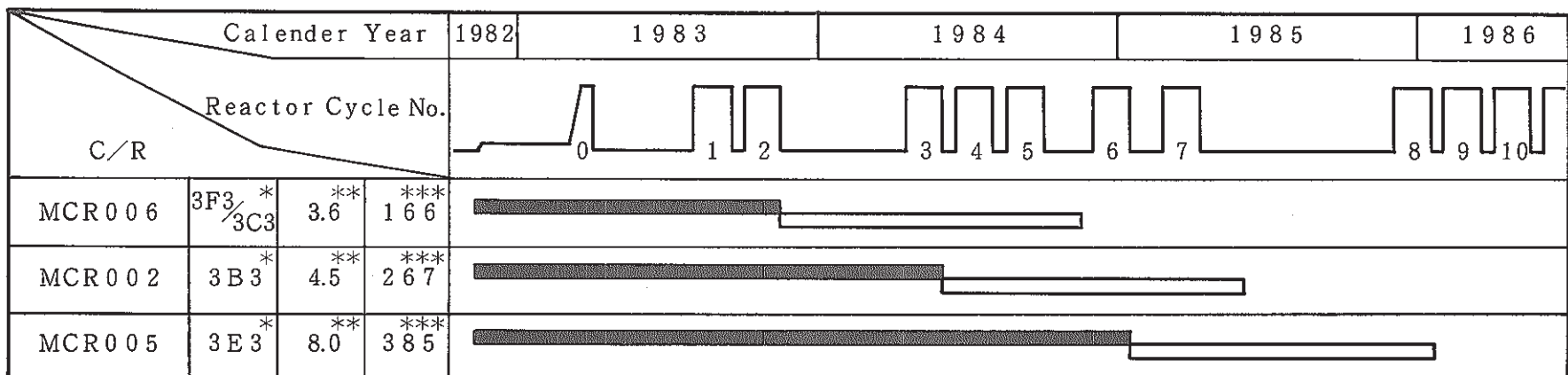
Specimen	Irradiation Condition		Thermal Diffusivity (cm^2/sec)	Specific Heat ($\text{cal}/\text{g}\cdot\text{deg}$)	Thermal Conductivity ($\text{cal}/\text{cm}\cdot\text{sec}\cdot\text{deg}$)
	Burnup(cap/cm^3)	Temperature($^{\circ}\text{C}$)			
Unirradiated	—	—	0.13	0.23	0.063
Irradiated	0.30×10^{21}	410~470	0.039	0.21	0.017
Irradiated	0.55×10^{21}	410~470	0.033	0.24	0.016
Irradiated	0.95×10^{21}	410~470	0.027	0.22	0.013

Table 6 ^{10}B Burnup Measured by Mass Spectrometer

Specimen Number	unirradiated	85011E1	85012A1	85012D1	850141B	850146B	85071C1	85072D1
^{10}B (atm %)	90.540	89.898	90.147	90.369	90.447	90.460	89.986	90.438
Burnup(%)	—	7.02	4.41	1.96	1.08	0.927	6.11	1.18

Table 7 ^{10}B Burnup Measured by Ion Microanalyzer

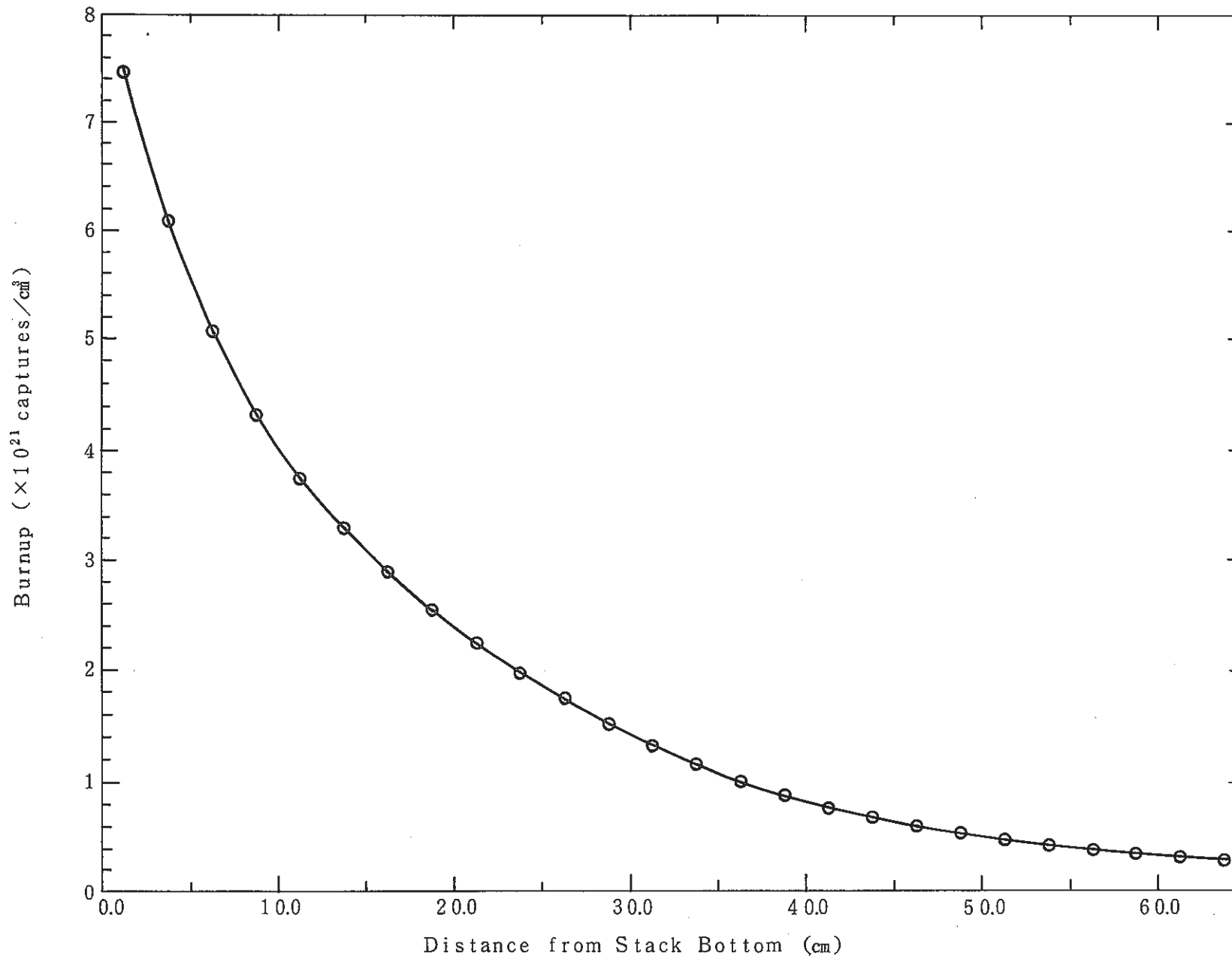
Specimen Number	unirradiated	85011D	85011G
^{10}B (atm %)	90.87	89.63	89.91
Burnup(%)	—	7.24	5.71



* Irradiation Position
 ** Maximum Burnup ($\times 10^{21}$ captures/cm²)
 *** Maximum Fluence ($\times 10^{20}$ n/cm², $E \geq 0.1$ MeV)

Irradiation
 Post Irradiation Examination

Fig.1 Irradiation History of MK-II Control Rod

Fig.2 Burnup of B₄C in MCR005 Assembly

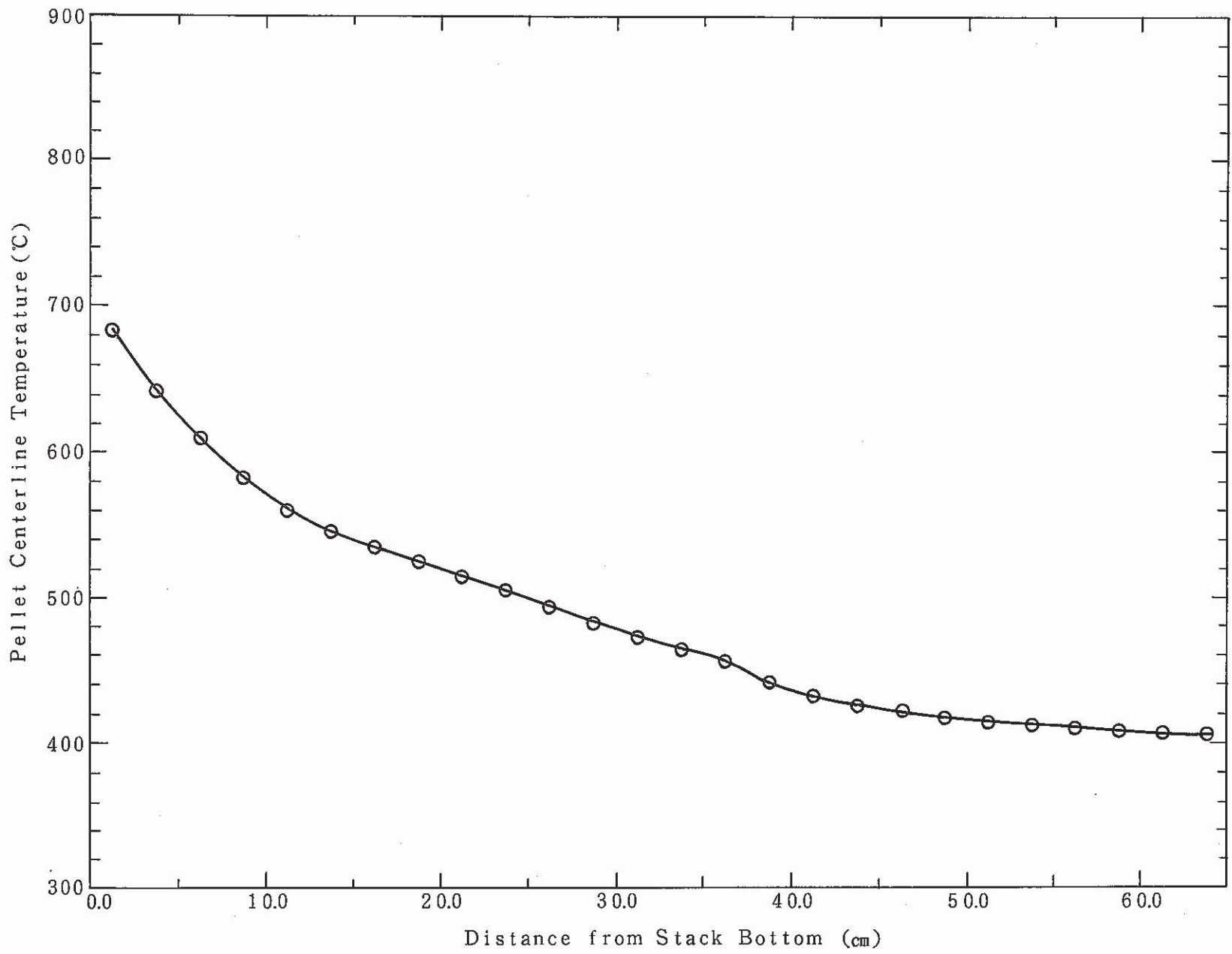


Fig.3 Pellet Centerline Temperature of B₄C in MCR005 Assembly (EOL)

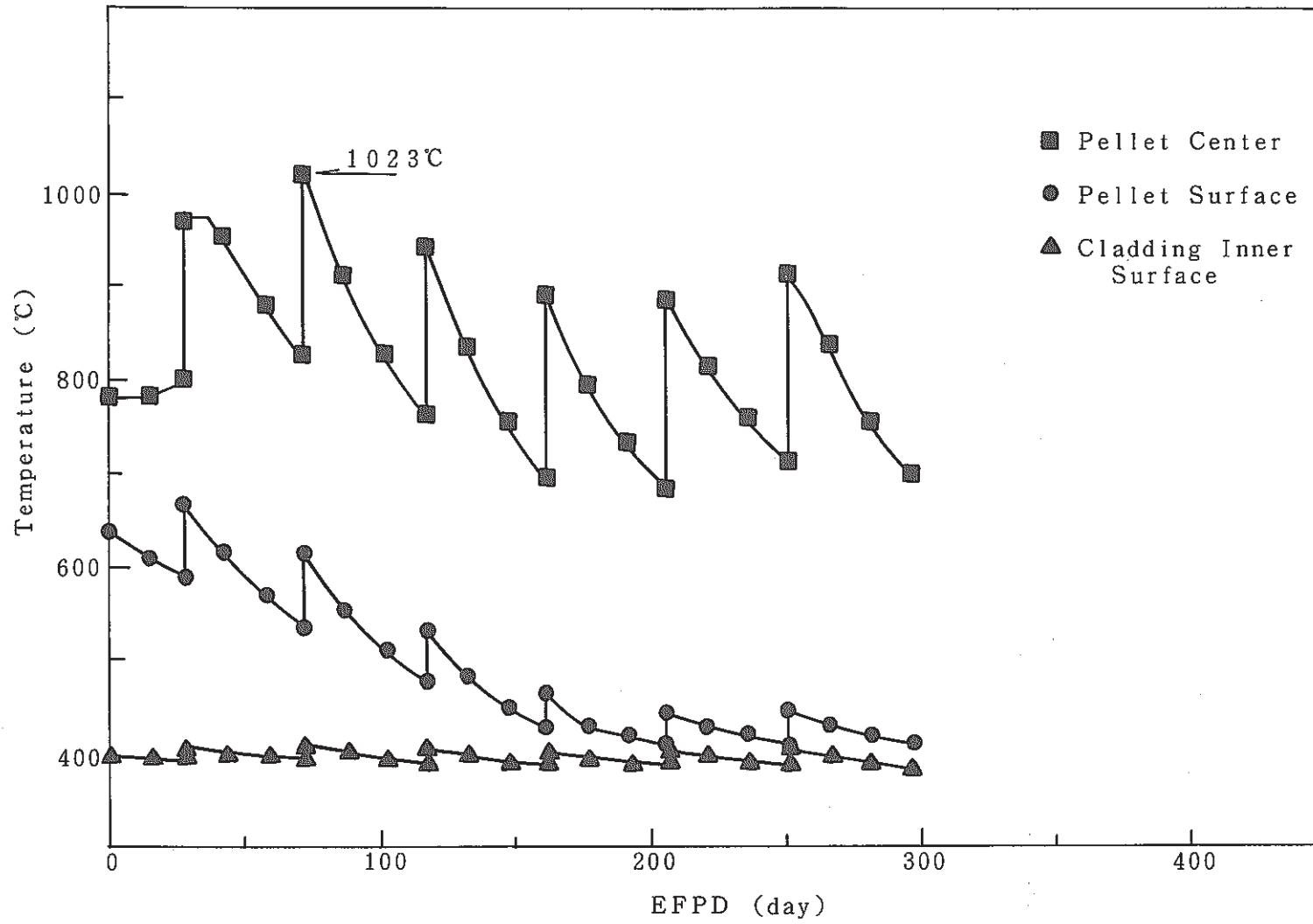


Fig.4 Thermal History for Boron Carbide Pellet and Absorber Cladding

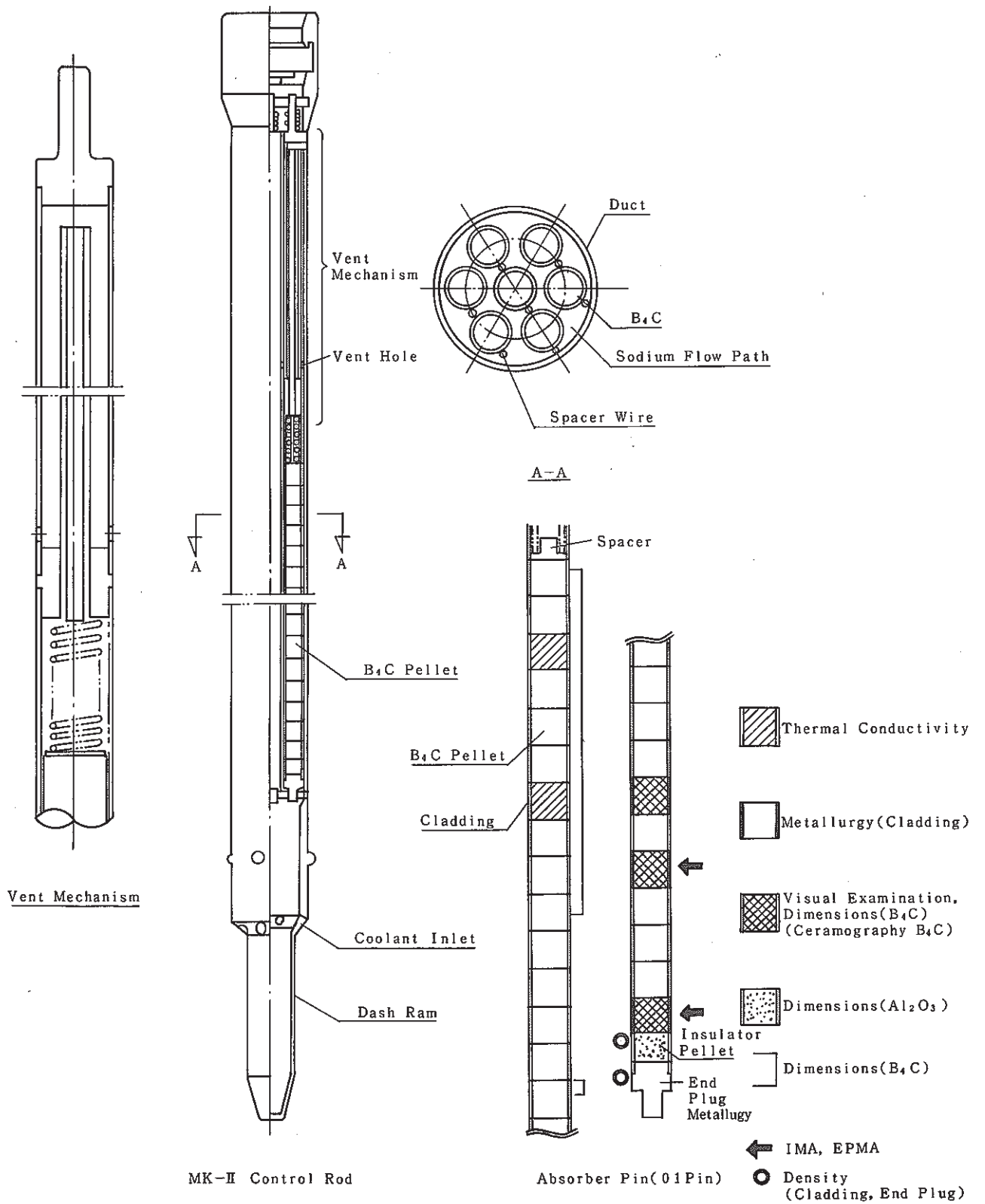


Fig.5 Sampling of Specimen from Control Rod (MCR005)

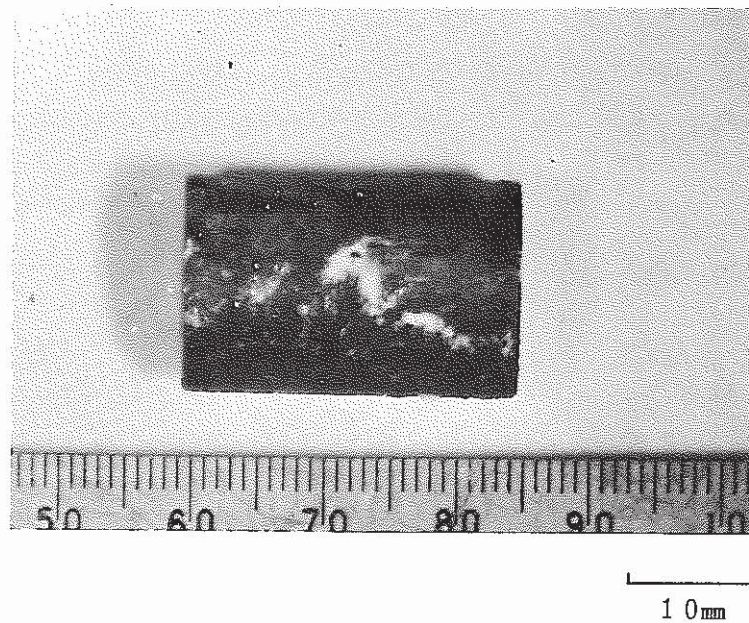


Fig.6 View of B₄C Pellet

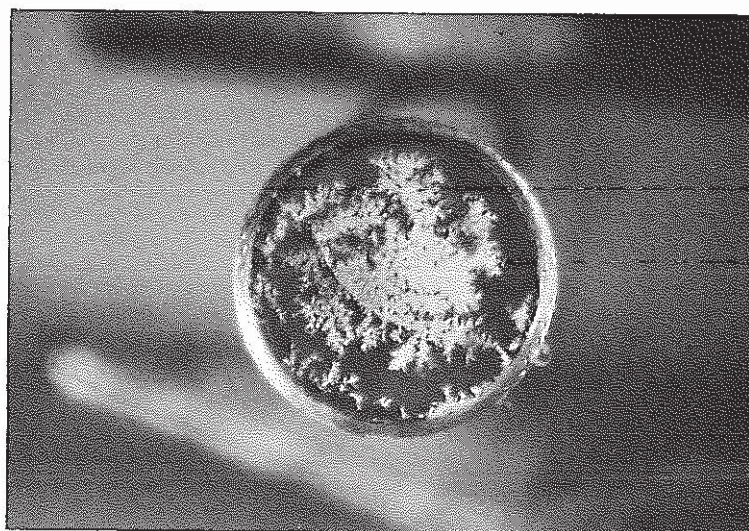


Fig.7 Transverse Section of B₄C Pellet

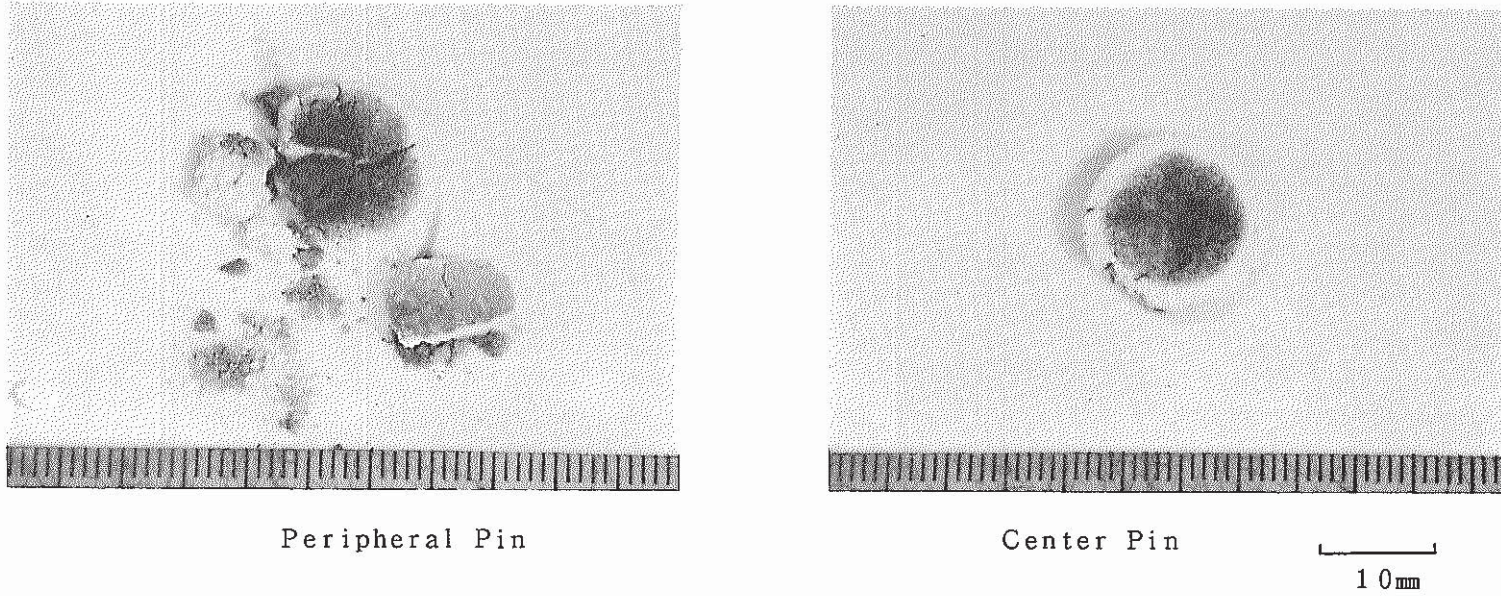


Fig.8 Radial Sectional View of Irradiated Al₂O₃ Thermal Insulator

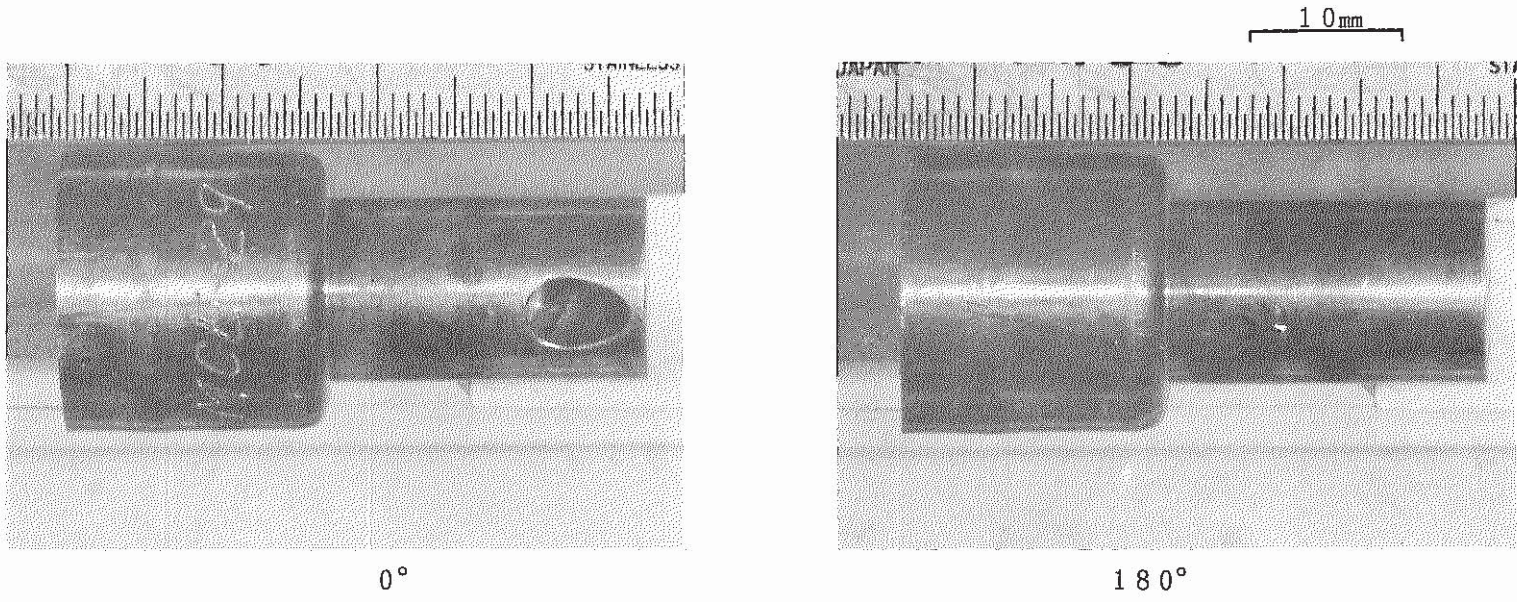


Fig.9 View of Irradiated End Plug(Peripheral Pin)

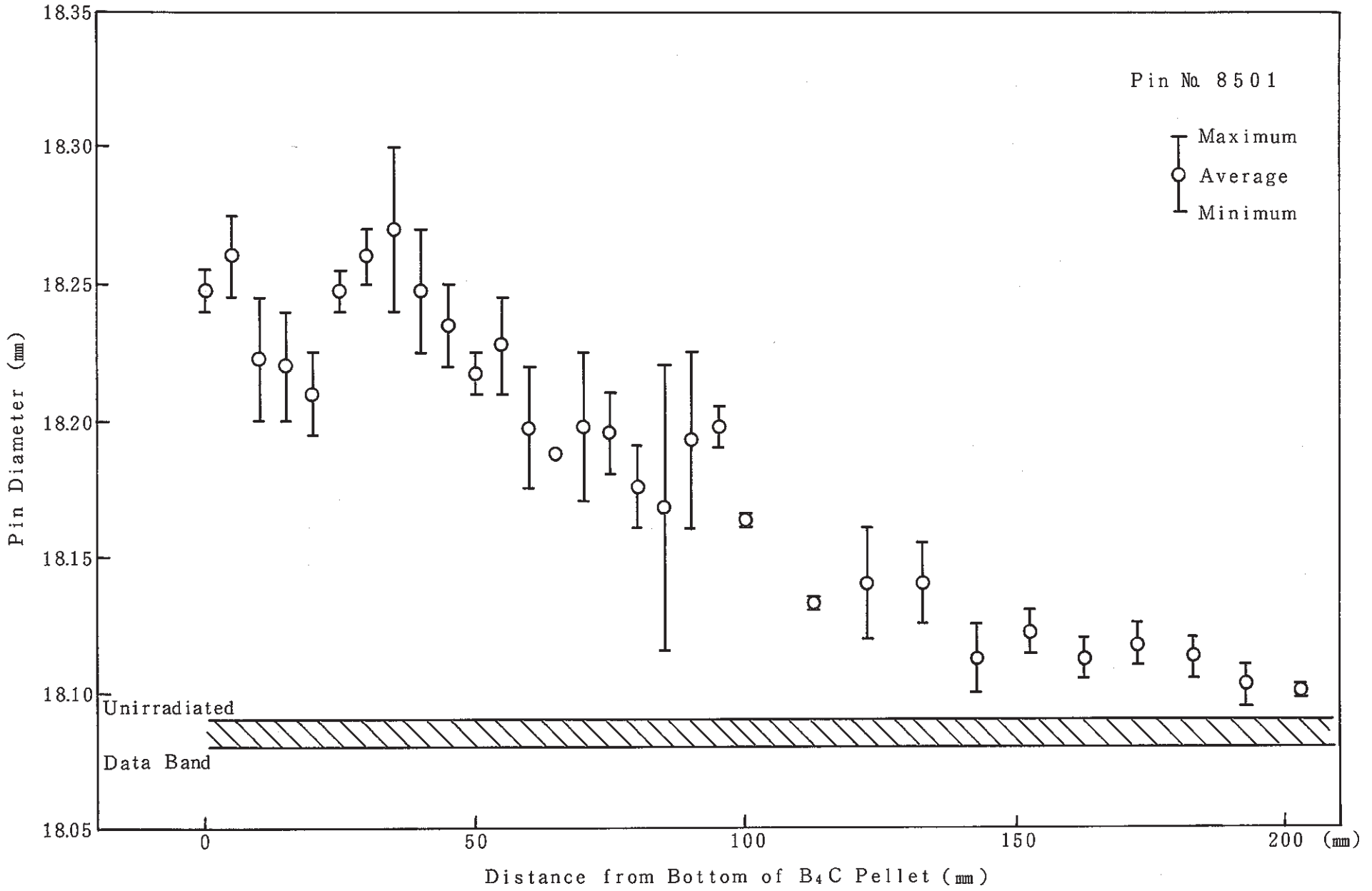


Fig.10 Dimension of Irradiated Absorber Cladding (Peripheral Pin)

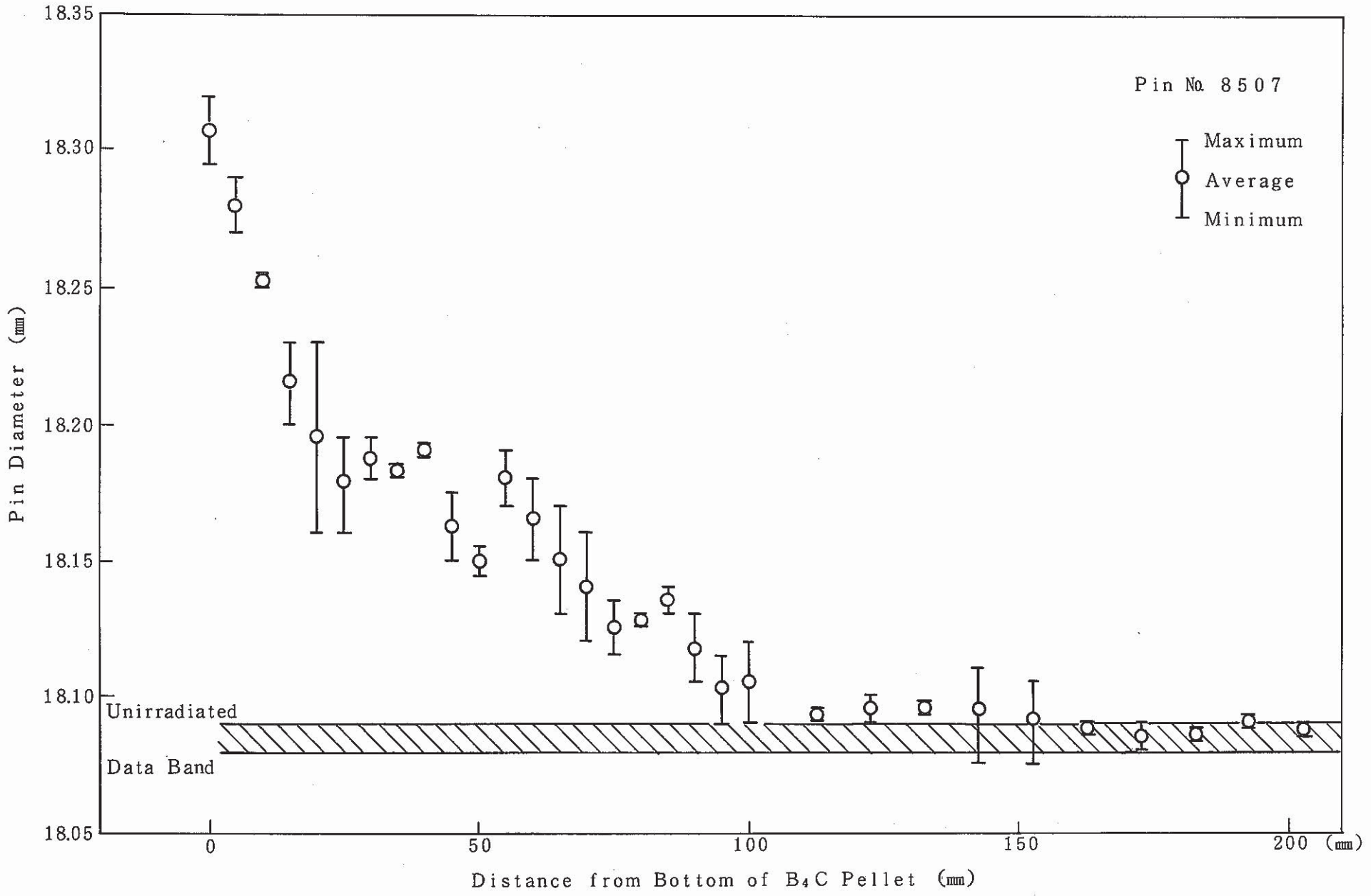


Fig.11 Dimension of Irradiated Absorber Cladding (Center Pin)

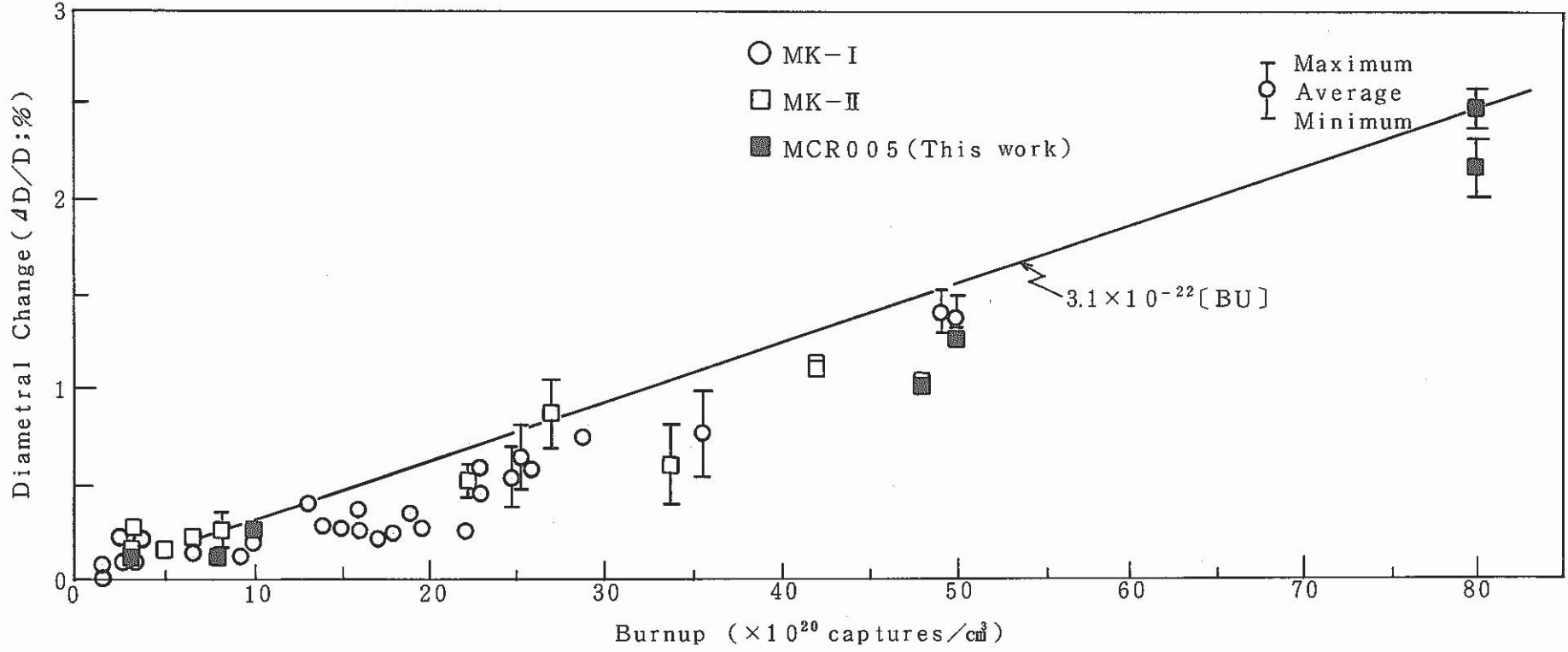


Fig.12 Dimensional Change of Boron Carbide Pellets

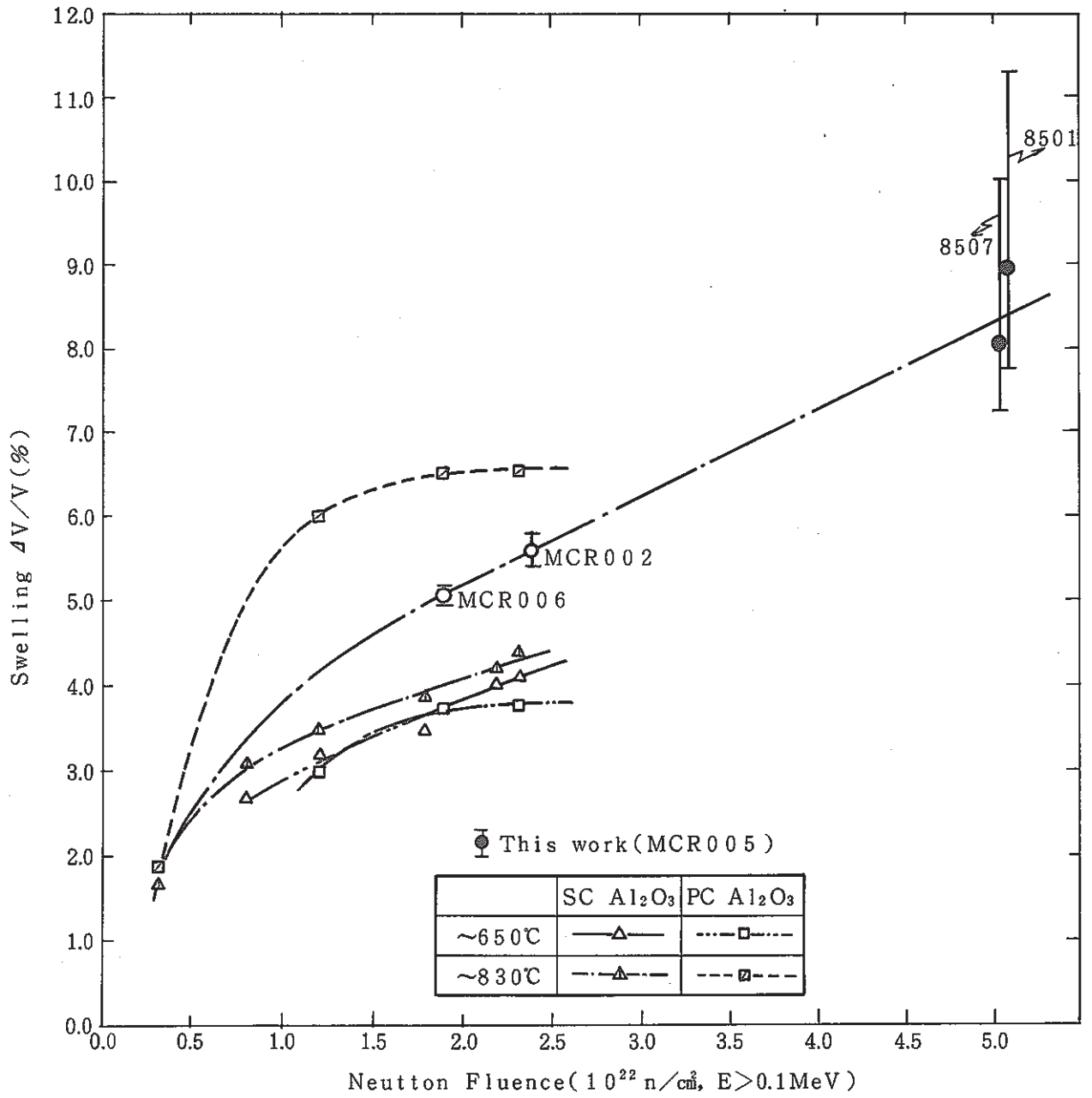


Fig.13 Swelling of Al_2O_3 as a Function of Neutron Fluence (F.W.Clinard et.al⁽¹³⁾)
 (SC; Single Crystal, PC; Polycrystalline)

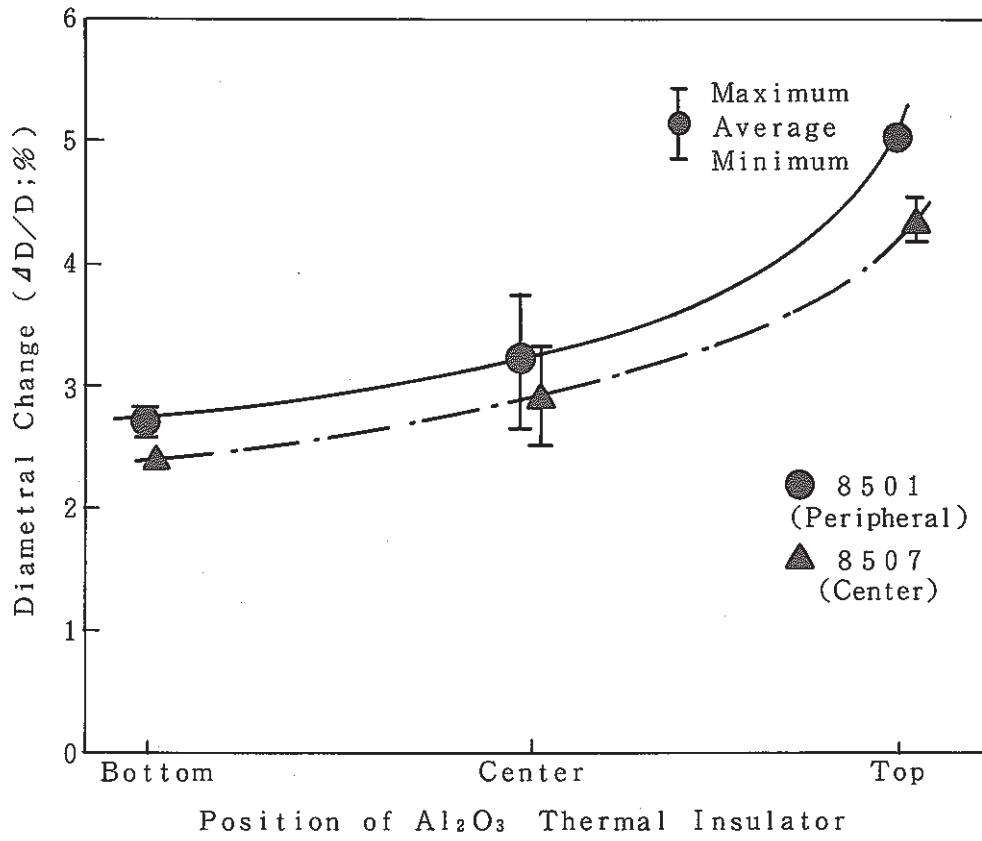


Fig.14 Dimensional Change of Al_2O_3 Thermal Insulator

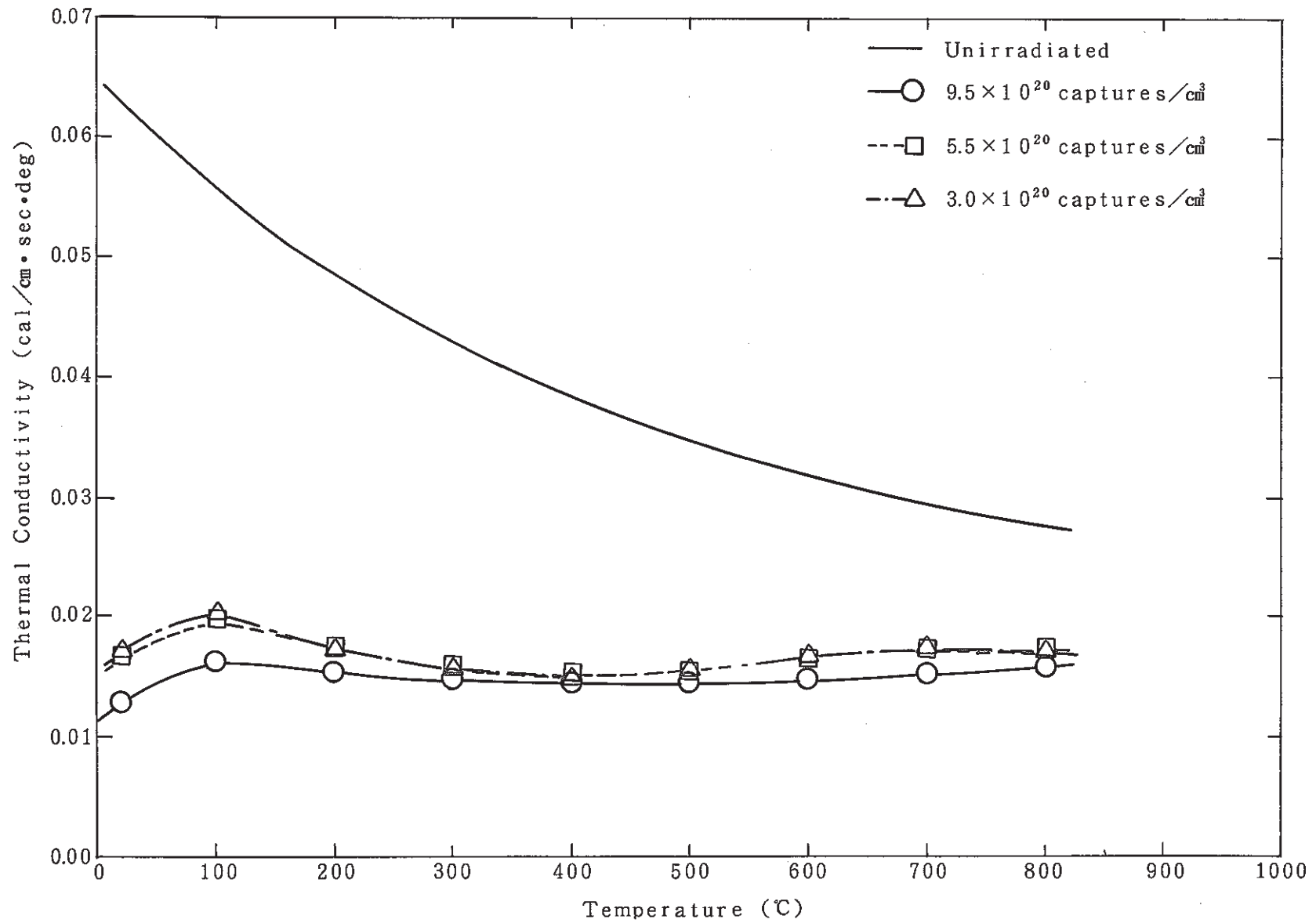
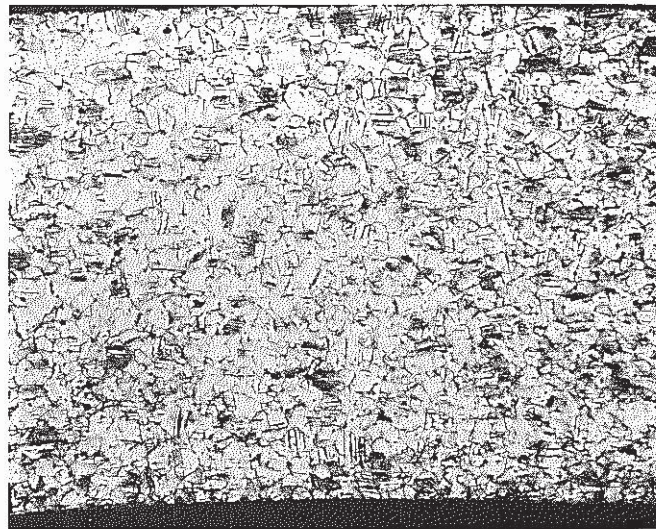
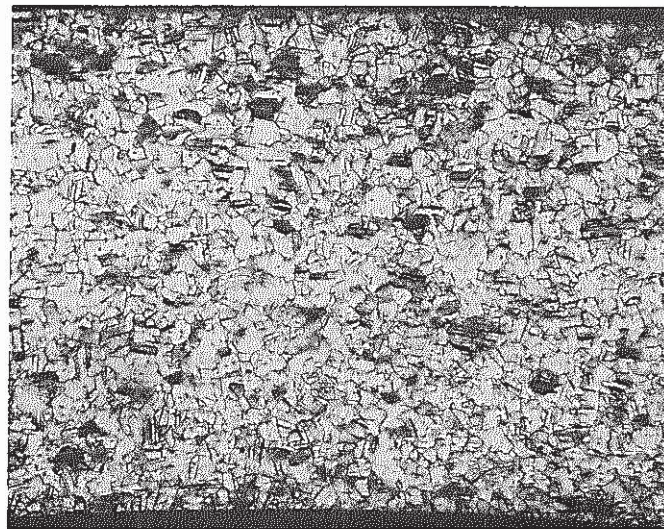
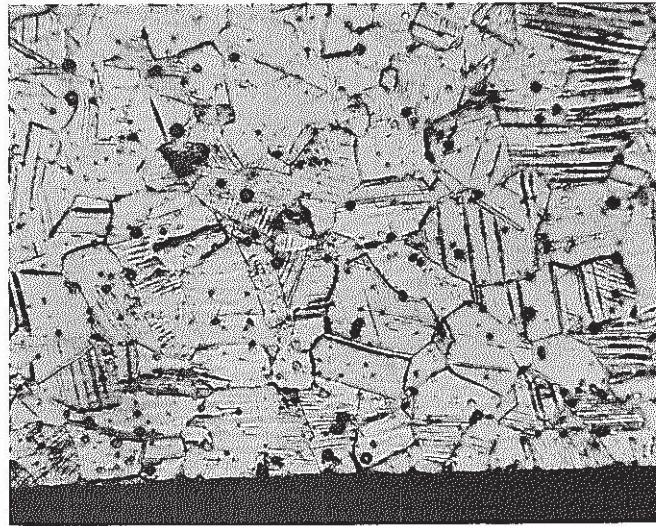
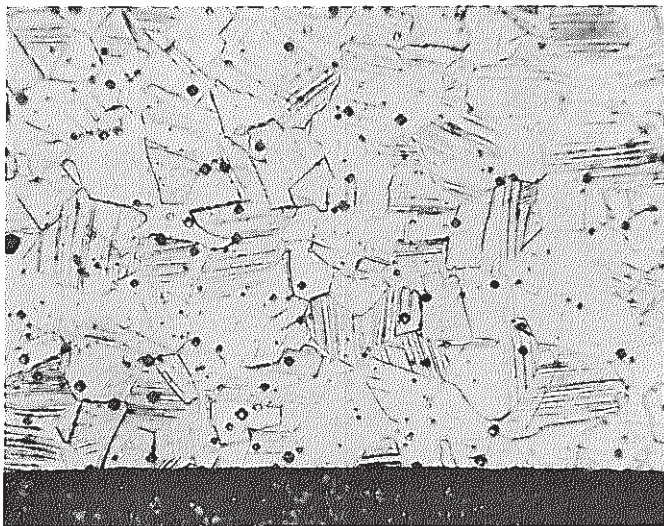


Fig.15 Temperature Dependence of Thermal Conductivity of Unirradiated and Irradiated Boron Carbide Pellets



0.1mm

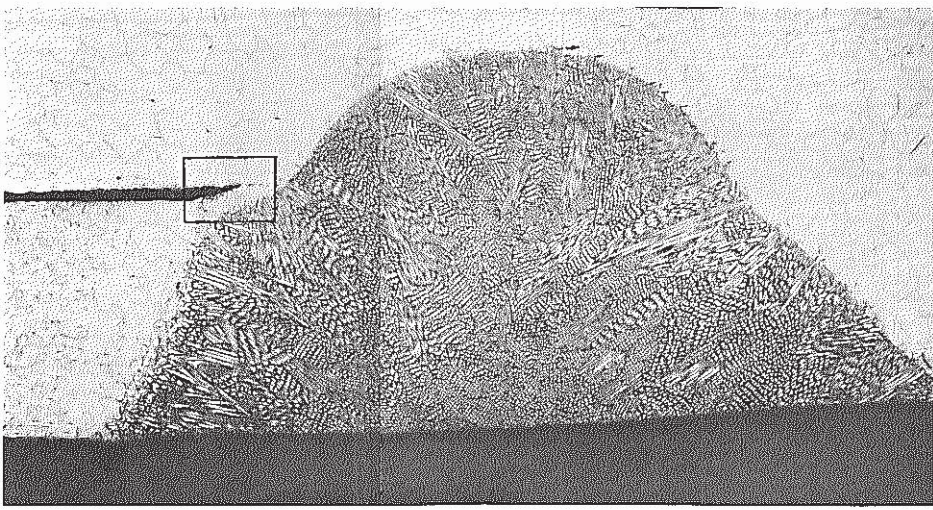


0.05mm

(a) $3.4 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2 (E > 0.1 \text{ MeV}), 400^\circ\text{C}$

(b) $1.8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2 (E > 0.1 \text{ MeV}), 400^\circ\text{C}$

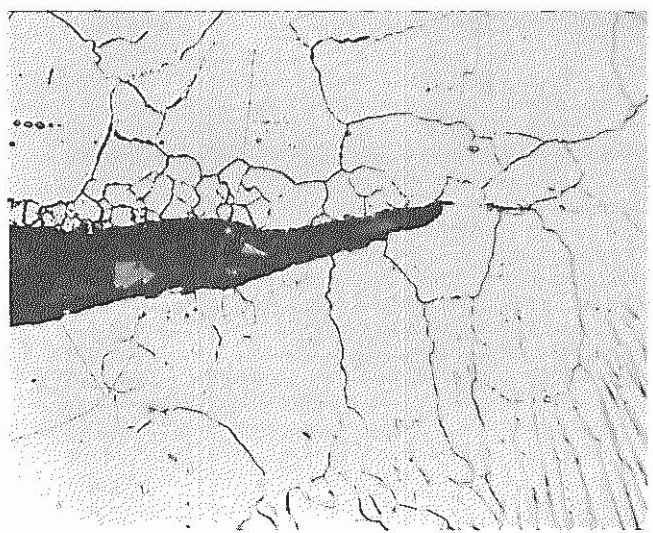
Fig.16 Optical Micrographs of Irradiated Absorber Cladding



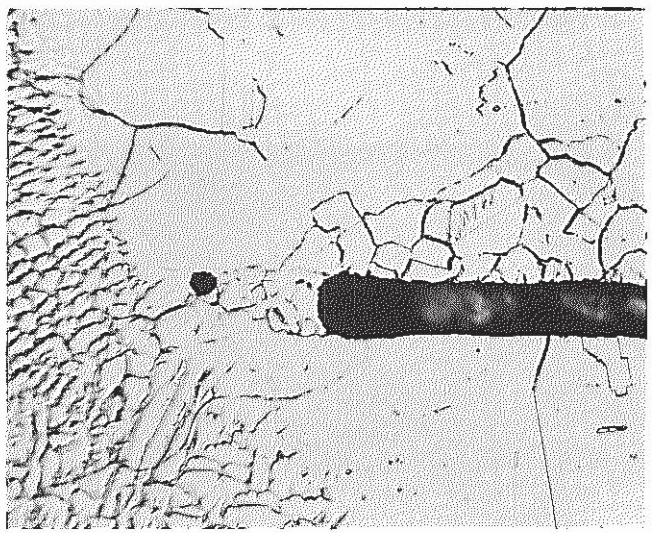
0.1 mm



0.1 mm



0.05 mm



0.05 mm

Peripheral Pin

Center Pin

Fig.17 Optical Micrographs of Loditudinal Crosssection of Irradiated Lower End Plug

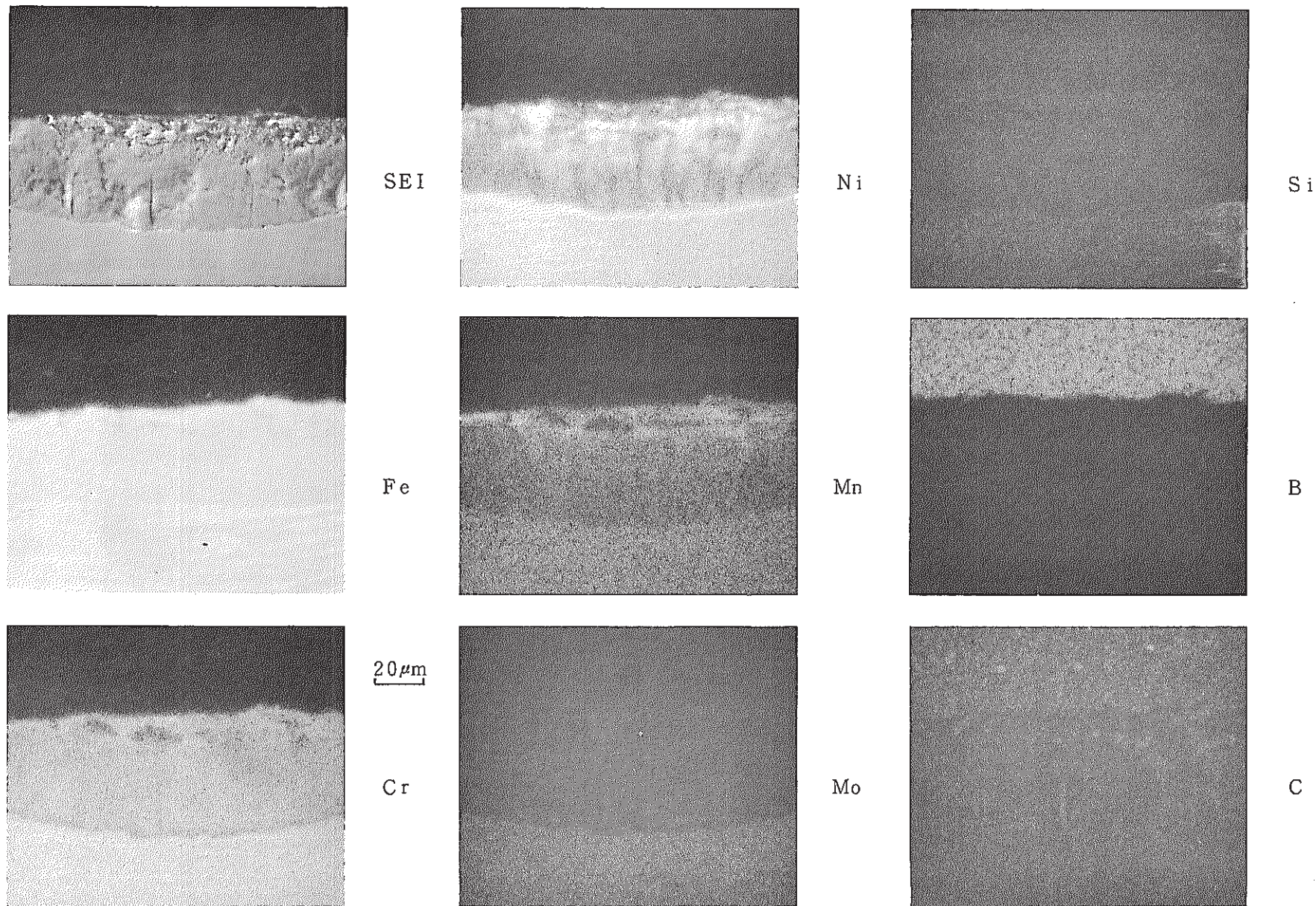


Fig.18 X-ray Microanalysis for Interaction Region of Cladding in Contact with Boron Carbide Pellet

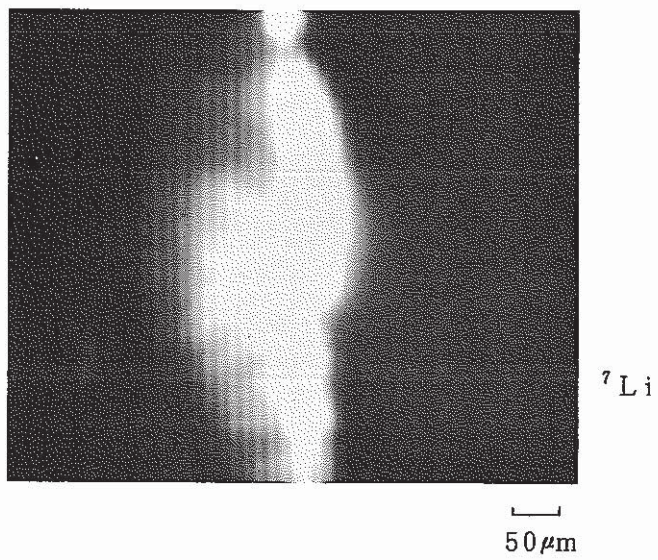
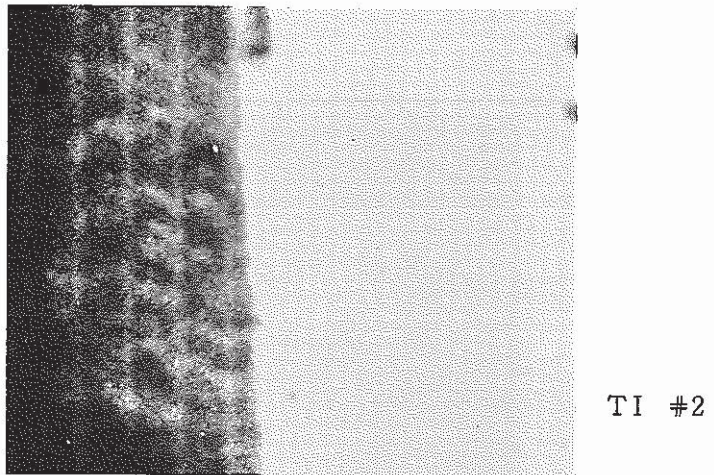
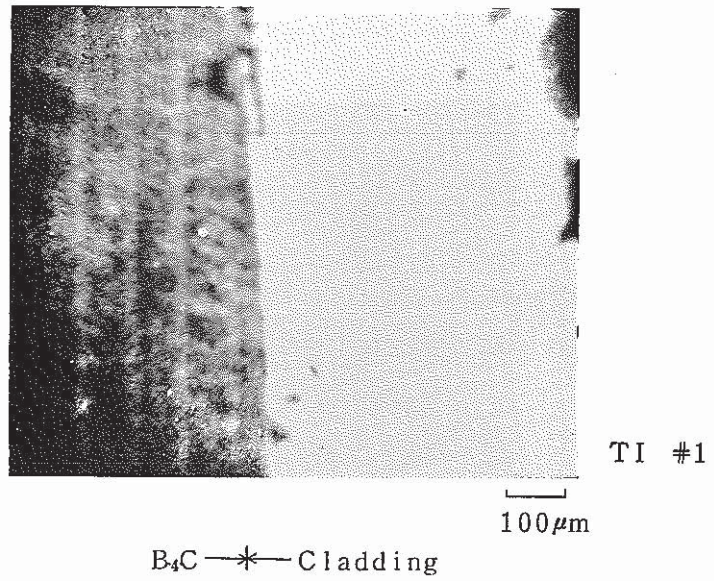
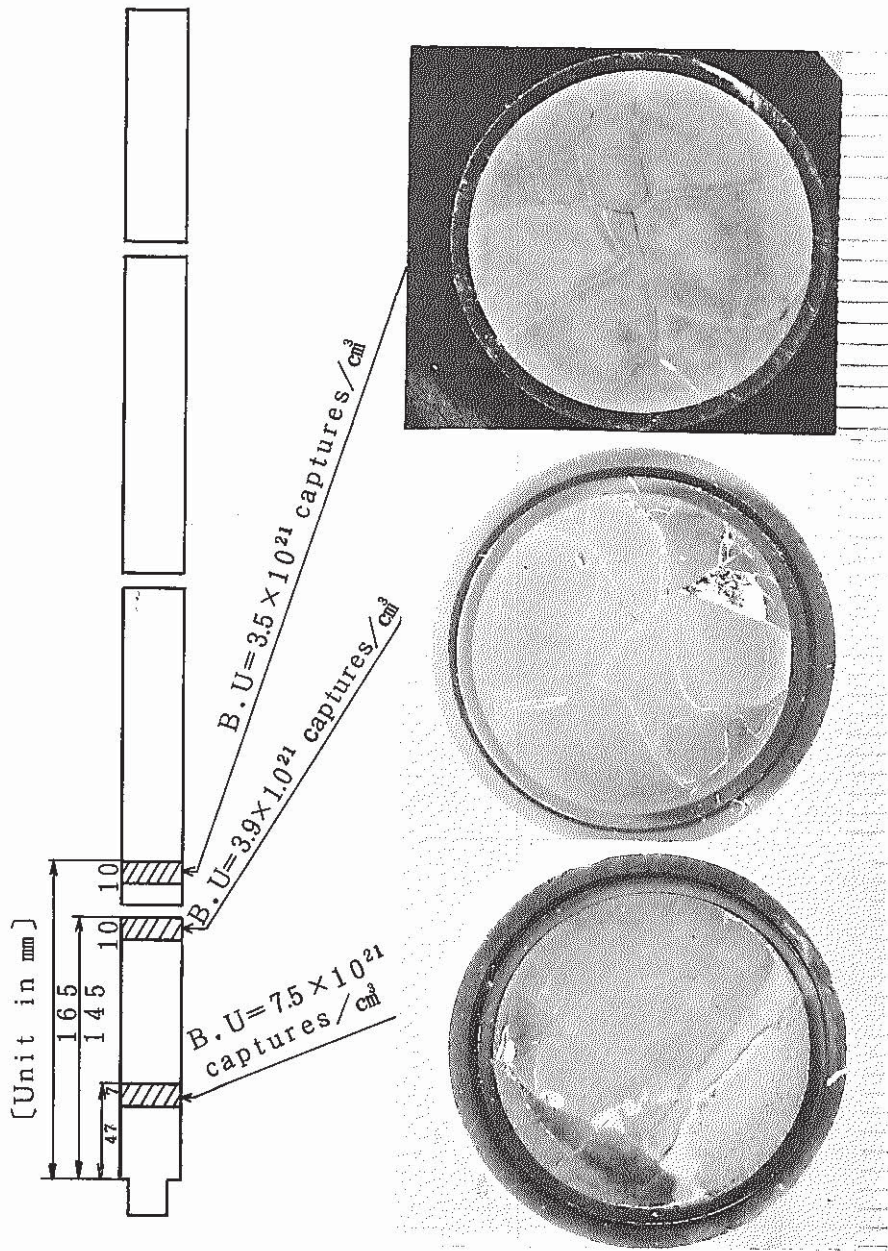
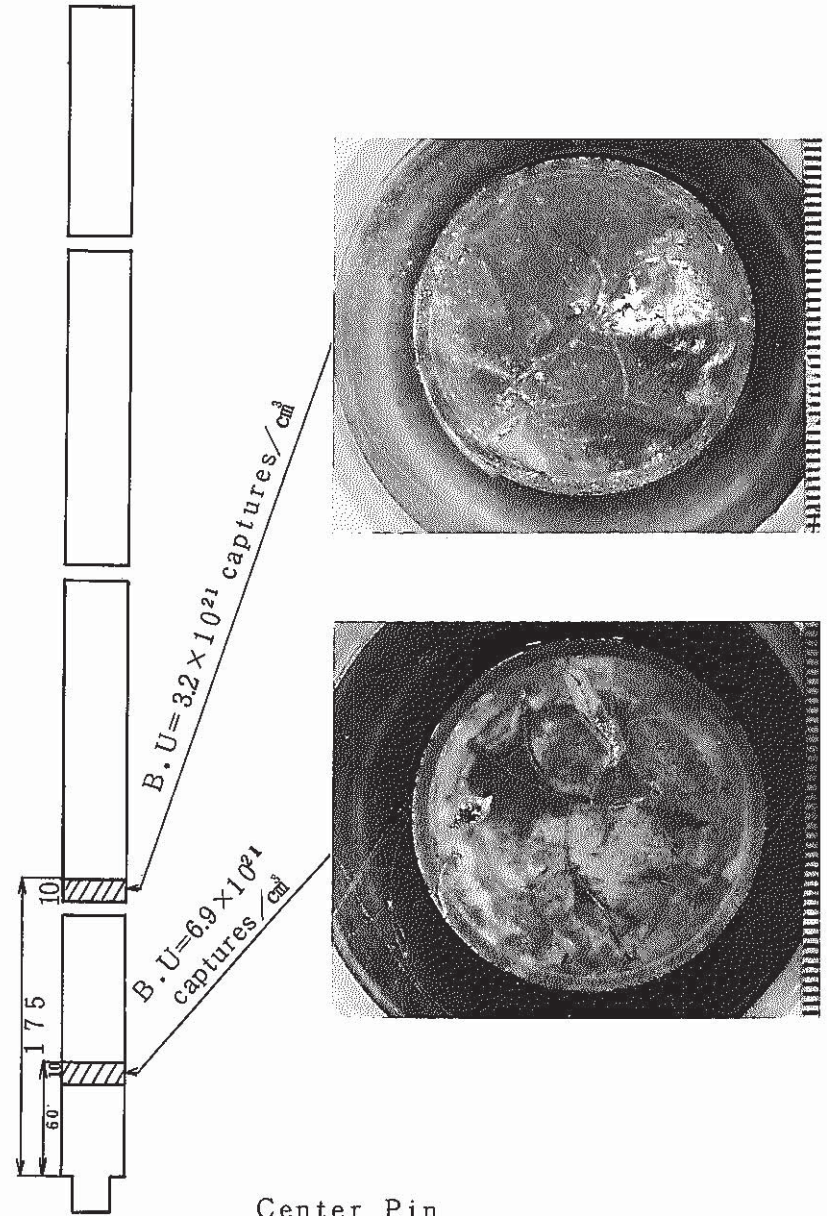


Fig.19 Ion Microanalysis for Interaction Region of Cladding in Contact with Boron Carbide Pellet



Peripheral Pin



Center Pin

Fig.20 Radial Sectional View of Irradiated B₄C

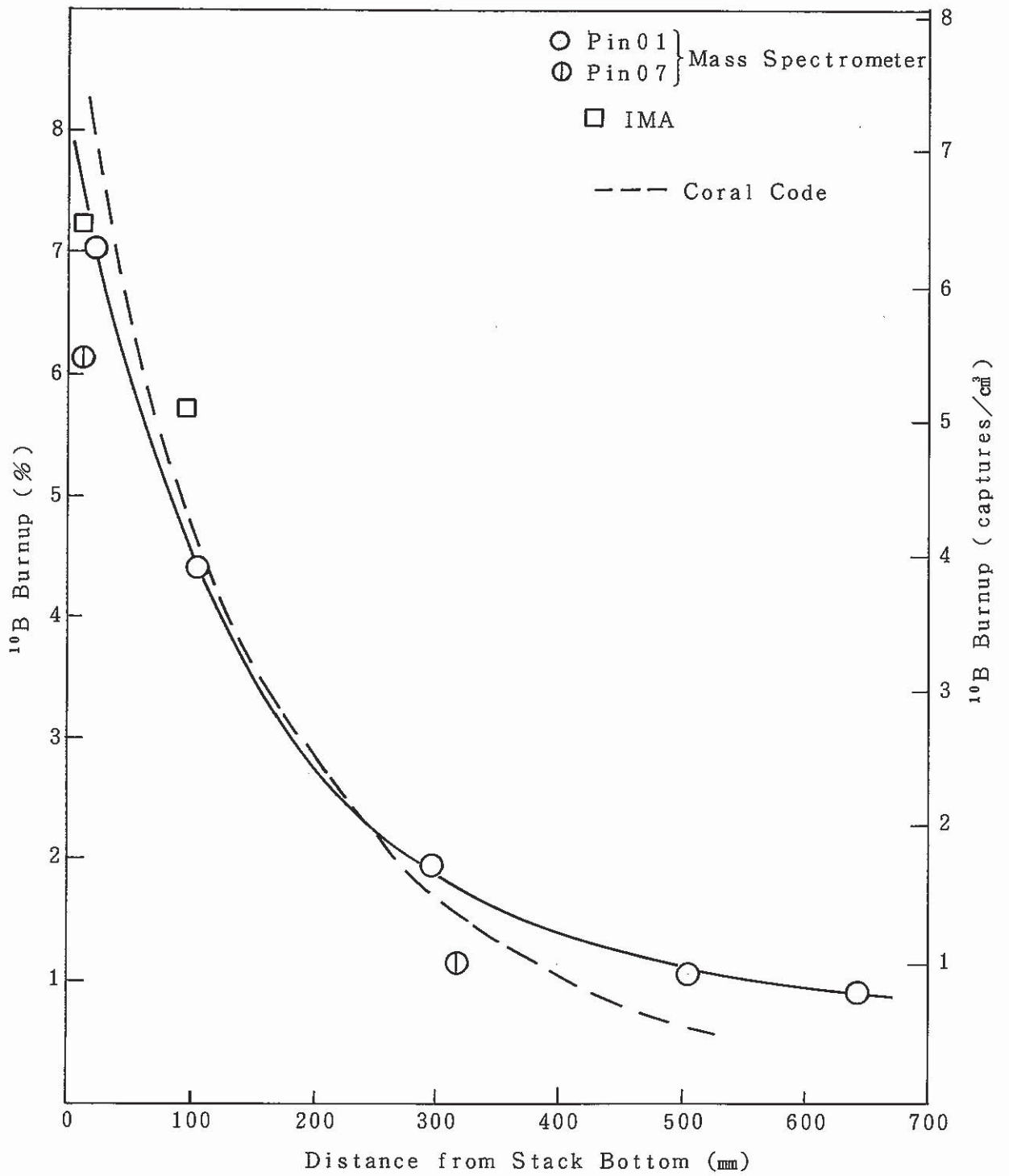
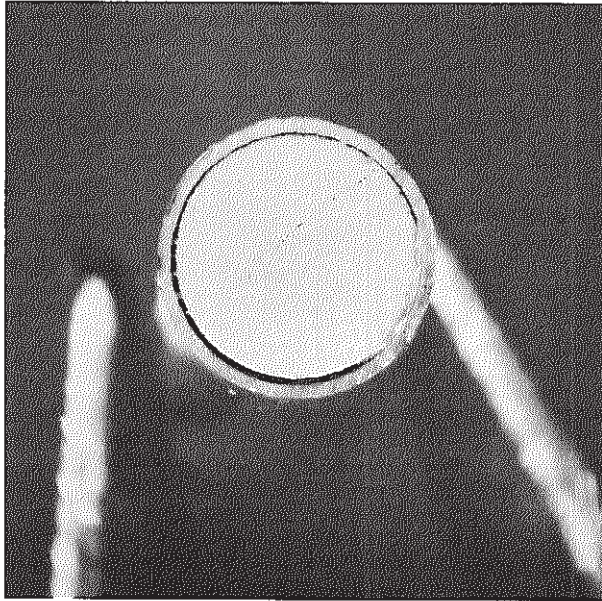
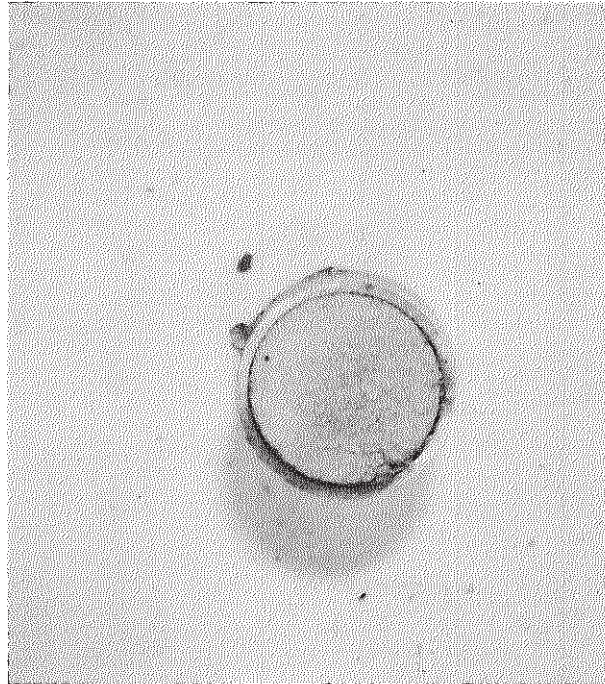


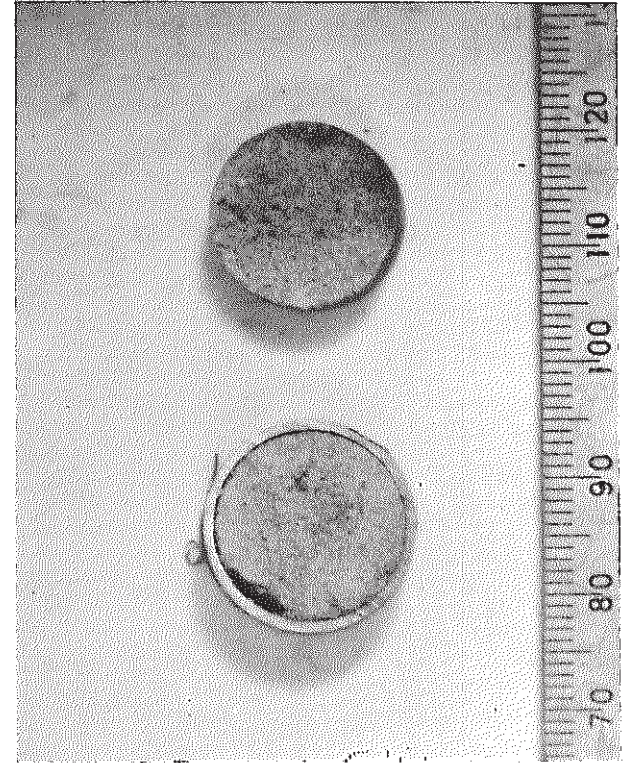
Fig.21 ^{10}B Burnup of Irradiated Boron Carbide



a . MCR006 (1.9×10^{22} n/cm²)



b . MCR002 (2.4×10^{22} n/cm²)



c . MCR005 (5×10^{22} n/cm²)

Fig.22 Radial Crosssection of Irradiated Al₂O₃ Thermal Insulator

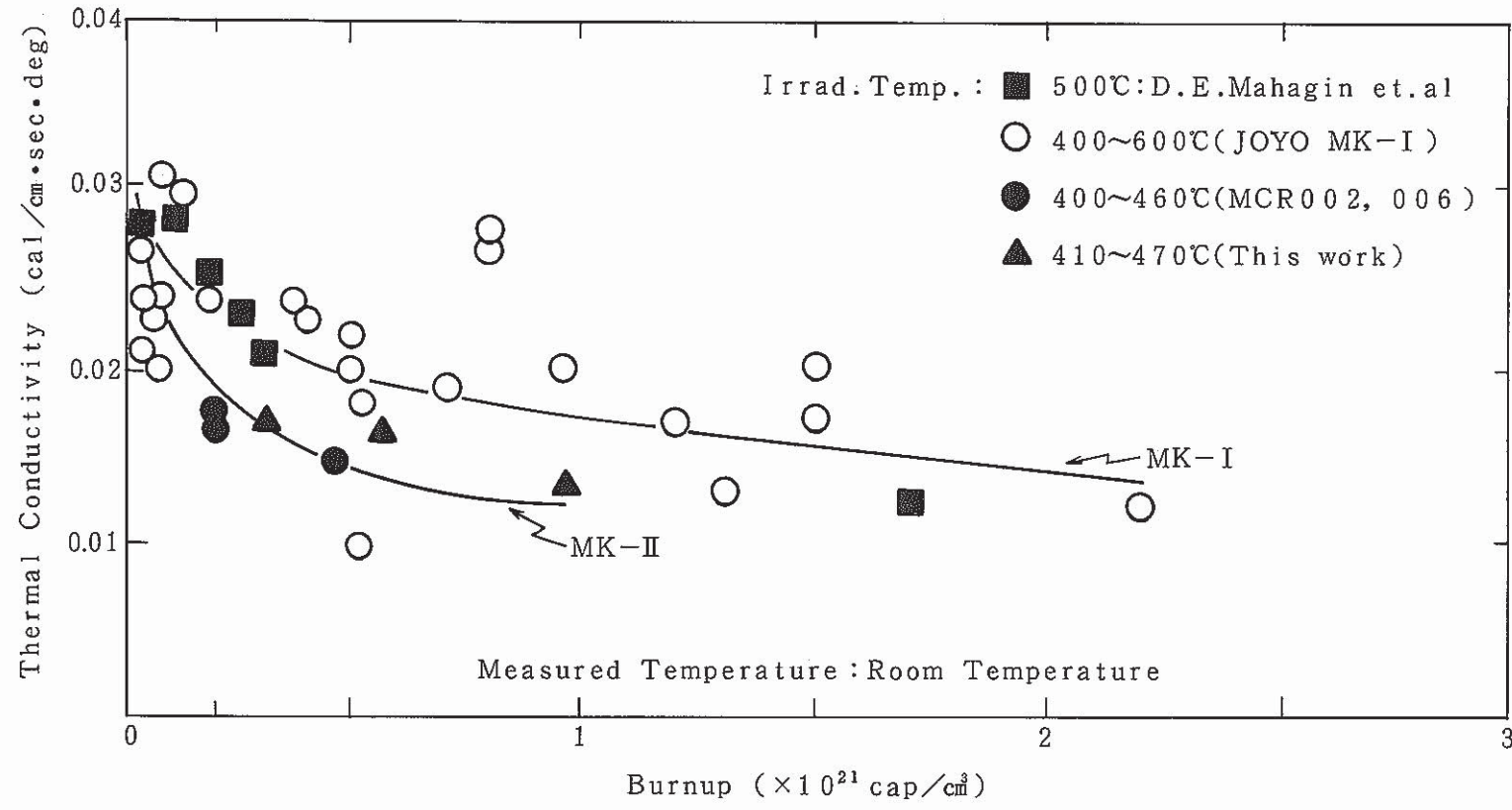


Fig. 23 Burnup Dependence of Boron Carbide Thermal Conductivity