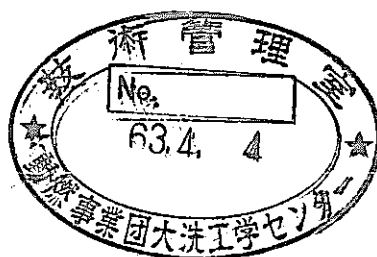


「常陽」MK-II 炉心燃料 (PFD105) の照射後試験

燃料要素の組織観察及び機器分析



1988年2月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター
燃料材料開発部

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 炉心燃料 (PFD105) の照射後試験

燃料要素の組織観察及び機器分析

実施責任者	榎戸 裕二*	
報告者	吽野 一郎*	鶴飼 重治*
	熊倉 忠夫*	榎田 尚也*
	柴原 格*	

要 旨

炉心燃料集合体 (Fab. No. PFD105) は、第1次取替燃料集合体として、「常陽」MK-II 炉心「1D1」の位置で、100MW第3サイクルから第8サイクルまで照射されたものである。集合体平均燃焼度は約48,300MWD/MTMである。本試験では、燃料要素の照射挙動を把握するため、燃料ペレットの組織観察と機器分析を実施し、以下の結果が得られた。

- (1) 燃料カラム軸方向中心部では、中心空孔と柱状晶が形成され、残留ギャップ幅は製造時の85 μm から13 μm に減少していた。画像解析より、ペレット体積は製造時よりもむしろ減少していることが確認されたことから、このようなギャップ幅の減少はペレットのリロケーションに支配されていることが示唆された。
- (2) 被覆管の内面腐食は、内面温度が600℃以上の上部インシュレータとの境界部で認められ、最大32 μm であった。
- (3) 組織変化している領域のペレットからのXe放出率はピーク燃焼度が60,000MWD/MTMで90%に達している。一方、ペレット周辺部の不変領域では、ガス気泡の集積に伴い約50,000MWD/MTMあたりからXeの放出が開始し、60,000MWD/MTMでは27%の放出が認められた。
- (4) ペレット内に保持されているCs, Iの径方向分布は、Xeの分布と極めて良く類似しており、温度、燃焼度に対する放出しきい値はXeと同様と考えられる。
- (5) 中心空孔を有する燃料ペレットでは、Pu濃度は中心空孔に近づくにしたがい製造時の27wt%から32wt%に増加していた。ペレット径方向の燃焼度分布はPuの再分布の影響を受けている。

*大洗工学センター，燃料材料開発部，燃料材料技術開発室

目 次

1. まえがき	1
2. 供 試 体	2
2.1 燃料ピンの仕様	2
2.2 被覆管の仕様	2
2.3 燃料の仕様	3
3. 照射履歴	4
4. 試験方法	5
4.1 試料調製	5
4.2 光学顕微鏡による観察	5
4.3 走査型電子顕微鏡による観察	5
4.4 X線マイクロアナライザーによる元素分析	6
4.5 イオンマイクロアナライザーによる質量分析	6
5. 試験結果	7
5.1 光学顕微鏡による燃料組織観察結果	7
5.1.1 燃料組織観察結果	7
5.1.2 画像解析システムによる解析結果	8
5.2 走査型電子顕微鏡による燃料組織観察結果	8
5.3 X線マイクロアナライザーによる元素分析結果	9
5.3.1 径方向Xe, Cs, I濃度分布	9
5.3.2 ウラン, プルトニウムの再分布	9
5.3.3 被覆管内面腐食部の元素分布	9
5.4 イオンマイクロアナライザーによる質量分析結果	10
5.4.1 径方向FPガス同位体分布	10
5.4.2 径方向燃焼度分布	10
6. 考 察	11
6.1 FPガス放出挙動と燃料組織変化の関係	11
6.2 燃料-被覆管残留ギャップ幅の変化	11
6.3 被覆管内面腐食	12
7. 謝 辞	13
8. 参考文献	14

List of Tables

Table 1	Irradiation Condition of PFD105 Subassembly During 3 to 8 Cycle of "JOYO" MK-II	15
Table 2	Irradiation Condition of Each Sample	16
Table 3	Summary of Data from Image Analysis	17
Table 4	Volume Change of Each Sample Estimated from Image Analysis	17
Table 5	Xe Gas Release Rate Compared with Theoretical Value in Specimen No.A06022,A06042,A06062	18
Table 6	Quantitative Analysis of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No.A06063) .	19
Table 7	Summary of Residual Radial Gap Size of "JOYO" MK-II Driver Fuel Element	20

List of Figures

Fig. 1 Specification of MK-II Driver Fuel Pin 21

Fig. 2 Location of the Driver Fuel Subassembly
(Fab. No. PFD105) in "JOYO" MK-II 22

Fig. 3 Location of the Fuel Pin (Pin No.A060) in the
Driver Fuel Subassembly 23

Fig. 4 Axial Profile of Fluence and Cladding Temper-
ature (Pin No.A060) 24

Fig. 5 Axial Profile of Burnup (Pin No.A060) 25

Fig. 6 Axial Profile of Linear Heat Rate (Pin No.A060). 26

Fig. 7 Cutting Position of Specimen from the Core Fuel
Pin 27

Fig. 8 Results of Image Analysis of Specimen No.A06022. 28

Fig. 9 Results of Image Analysis of Specimen No.A06042. 29

Fig. 10 Results of Image Analysis of Specimen No.A06062. 30

Fig. 11 Axial Profile of the Gap Width and Fuel
Restructuring 31

Fig. 12 Radial Profile of Retained Xe Gas in Specimen
No.A06022,A06042,A06062 32

Fig. 13 Relative Radial Profile of Retained Xe, Cs, I
Concentration (Specimen No.A06022) 33

Fig. 14 Relative Radial Profile of Retained Xe, Cs, I
Concentration (Specimen No.A06042) 34

Fig. 15 Relative Radial Profile of Retained Xe, Cs, I
Concentration (Specimen No.A06062) 35

Fig. 16 Radial Distribution of Uranium and Plutonium
Concentration (Specimen No.A06022) 36

Fig. 17 Radial Distribution of Uranium and Plutonium
Concentration (Specimen No.A06042) 37

Fig. 18 Radial Distribution of Xe and Kr Isotopes
(Specimen No.A06022) 38

Fig. 19	Radial Distribution of Xe and Kr Isotopes (Specimen No.A06042)	39
Fig. 20	Radial Distribution of Xe and Kr Isotopes (Specimen No.A06062)	40
Fig. 21	Axial Distribution of Measured Burnup (Pin No.A060)	41
Fig. 22	Radial Distribution of Measured Burnup (Specimen No.A06042)	42
Fig. 23	Fission Gas Release Rate of Unrestructured Region and Restructured Region	43
Fig. 24	Residual Radial Gap Width of "JOYO" MK-II Fuel as a Function of Burnup	44
Fig. 25	Summary of Depth of Cladding Inner Corrosion ..	45

List of Photographs

Photo. 1	Optical Macrographs of the Metallographic Specimen Cutted from the Core Fuel Pin (Pin No.A060)	46
Photo. 2	Optical Micrograph of the Transverse Section of the Core Fuel Pin (Specimen No.A06022) As-Polished	47
Photo. 3	Optical Microstructure of the Core Fuel (Specimen No.A06022) As-Polished	48
Photo. 4	Optical Micrograph of the Transverse Section of the Core Fuel Pin (Specimen No.A06042) As-Polished	49
Photo. 5	Optical Microstructure of the Core Fuel (Specimen No.A06042) As-Polished	50
Photo. 6	Optical Micrograph of the Transverse Section of the Core Fuel Pin (Specimen No.A06062) As-Polished	51
Photo. 7	Optical Microstructure of the Core Fuel (Specimen No.A06062) As-Polished	52
Photo. 8	Optical Microstructure of the Core Fuel (Specimen No.A06062) As-Polished	53
Photo. 9	Optical Micrograph of the Longitudinal Section of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No.A06063) As-Polished	54
Photo. 10	Optical Micrograph of the Longitudinal Section of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No.A06063) As-Etched	55
Photo. 11	Optical Microstructure of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No.A06063) As-Polished	56

Photo. 12	Optical Microstructure of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No.A06063) As-Etched	57
Photo. 13	Secondary Electron Microstructure of the Core Fuel (Specimen No.A06042) As-Polished	58
Photo. 14	Secondary Electron Microstructure of the Core Fuel (Specimen No.A06062) As-Polished	59
Photo. 15	Various X-ray Images of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No.A06063)	60
Photo. 16	Various X-ray Images of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No.A06063)	61
Photo. 17	Various X-ray Images of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No. A06063)	62

1. ま え が き

炉心燃料集合体 (Fab. No. PFD105) は、1次取替燃料集合体として「常陽」MK-II炉心「1D1」の位置において、100MW第3サイクルより第8サイクルの間照射され、集合体平均燃焼度は約48,300MWD/MTMの照射履歴を有するものである。照射燃料集合体試験施設 (FMF) において各種非破壊検査が実施された後、集合体内の1本のピンから4個の金相試験用試料を採取した。

本試験では、「常陽」MK-II炉心で100MW、第3サイクルより第8サイクルまで照射された集合体内の燃料、被覆管の健全性並びに照射挙動を把握するため、光学顕微鏡観察、走査型電子顕微鏡観察、X線マイクロアナライザーによる元素分析並びにイオンマイクロアナライザーによる質量分析を実施した。本報告書は、ADS金相セルにおいて実施した上記試験結果の内容を述べたものである。

2. 供 試 体

2.1 燃料ピンの仕様

燃料ピンの仕様は以下のとおりであり、その概略図をFig. 1に示す。

項 目	仕 様
全 長 (mm)	1533±2
ペレットスタック長 (mm)	550±5
被 覆 管 外 径 (mm)	5.500±0.030
被 覆 管 内 径 (mm)	4.800±0.025
被 覆 管 肉 厚 (mm)	0.35±0.030
ギ ャ ッ プ 幅 (μm)	170
ワイヤー巻付ピッチ (mm)	209±15

2.2 被覆管の仕様

被覆管はS材であり、その仕様は以下に示すとおりである。

項 目	仕 様	
ロット No.	S 5 5 6	
冷間加工度 (%)	2 0	
化学成分 (wt %)	C	0.035~0.064
	Si	≦0.75
	Mn	0.5~2.00
	P	0.015~0.035
	S	≦0.01
	Ni	13~14
	Cr	16~18
	Mo	2~3
	Co	≦0.1
	B	0.0005~0.003
	N	≦0.01
	Cu	≦0.2
	Ti	≦0.1
	V	≦0.2
Nb+Ta	≦0.05	
As	≦0.03	
Al	≦0.05	

2.3 燃料の仕様

炉心ペレットの仕様は以下のとおりである。

項 目		仕 様	
Pu 富化率 PuO ₂ / (PuO ₂ +UO ₂) (wt%)		29 ± 1	
Pu 同位体組成 (²³⁹ Pu+ ²⁴¹ Pu)/Pu (wt%)		77.8 ± 1	
²³⁵ U 濃縮度 (wt%)		12 ± 0.3	
O/M 比		1.97 ^{+0.02} _{-0.03}	
蒸発性不純物 (水分以外) (μℓ/g MO)		≦100	
水 分 (ppm)		≦30	
不 純 物 (ppm)	Al	≦500	
	B	≦20	
	C	≦150	
	Ca	≦80	
	Cb	≦20	
	Cl	≦25	
	Cr	≦500	
	F	≦25	
	Mg	≦25	
	N	≦200	
	Fe	≦800	
	Ni	≦500	
	V	≦500	
	Cu	}	≦700
	Zn		
	Si		
Ag			
Mn	}	≦200	
Mo			
Pb			
Sn			
Total		≦3000	
Pu スポット (μm)		≦100	
密 度 (% T.D)		93 ± 2	
寸 法 (mm)	外 径	4.63 ± 0.05	
	高 さ	9 ± 1	
	スタック長	550 ± 5	

3. 照 射 履 歴

炉心燃料集合体 (Fab. No. PFD105) は, 「常陽」MK-II 炉心内「1D1」において, 100 MW第3サイクルより第8サイクルの間照射され, 集合体平均燃焼度は約 48,300 MWD/MTM (ポイント最大 59,900 MWD/MTM) である。集合体の炉内装荷位置を Fig. 2 に示す。

本集合体は, 炉内貯蔵ラック「R-5」に70日間 (S. 61年2月4日～4月15日) 冷却保管された後炉外に取り出され, 同年5月15日にキャスクでFMFに搬入された。

金相試験に供した燃料ピンは, A060ピン (S材) である。本燃料ピンの集合体内位置を Fig. 3 に示す。また, 本集合体の照射条件を Table 1 に, 試験に供した A060 ピンの中性子束と被覆管温度, 燃焼度及び線出力 (Max.) の軸方向分布をそれぞれ Fig. 4, Fig. 5, Fig. 6 に示す。なお, これらの値は, 「常陽」炉心要素評価システム (ESPRIT-J Code) による。

4. 試験方法

4.1 試料調製

炉心燃料ピン (Pin No. A060) は、照射燃料集合体試験施設 (FMF) において各種非破壊試験を終了した後、試験セル内のピン切断機により切断され、金相試験片が金相セルに移送された。

金相セルでは、さらに各試験片について金相断面試料作製のため、ダイヤモンドホイールカッターを用いて、Fig. 7 に示すとおり炉心燃料下端より 25.9 mm, 255.6 mm, 537.5 mm, 551.1 mm の位置からそれぞれ 4 ケの試料を切断採取した。切断時の潤滑剤にはケロシンを用い、前処理として真空容器内でエポキシ樹脂を注入し、ペレット内のギャップやクラック内に樹脂を十分浸透させ燃料を固定した後切断した。切断採取した試料は、さらにエポキシ樹脂によりステンレス製埋め込みリング (外径 21 mm ϕ \times 10 mm H) に埋め込んだ後、ステンレス製ホルダー (外径 32 mm ϕ \times 20 mm H) 内にネジ止めた。

研磨は、自動回転研磨機を使用し、ケロシンを滴下しながら耐水研磨紙による粗研磨後、仕上げとしてラッピングオイルを潤滑剤としたダイヤモンドペーストによる研磨を行った。研磨の完了した試料は、キシレンにより超音波洗浄した後十分乾燥させ、As-Polished 状態による観察並びに分析を行った。なお、X線微小分析及び質量分析を行うための試料表面導電処理は、イオン腐食装置を用いて C 及び Au コーティングにより行った。

4.2 光学顕微鏡による観察

組織観察は、低倍率光学顕微鏡 (ROM) を用いて 12.5 倍の As-Polished 状態のマクロ観察を行った。その後高倍率光学顕微鏡 (FAROM) を用いて、As-Polished 状態における 65 倍全体コンポーズ写真撮影、130 倍帯状コンポーズ写真撮影、さらに径方向 8 ケ所の 520 倍コンポーズ及び帯状コンポーズ写真撮影を行った。

燃料横断面写真は、タブレットデジタイザーを用いた「燃料ピン輪切写真解析コード」(PINATED) により以下の項目について画像解析を実施した。

- (1) 燃料ペレットの直径、面積
- (2) 被覆管の内径、外径、肉厚
- (3) ペレット内クラックの数、面積、パターン
- (4) 中心空孔の直径、面積、中心位置
- (5) 柱状晶、FP ガスバブル、高密度化等各領域の内・外径及び面積

4.3 走査型電子顕微鏡による観察

燃料ペレットの半径方向について、ポアの形態と分布を調べるため日本電子株製の遮蔽型走査

電子顕微鏡 (JSM-50A) によりマイクロ組織の観察を行った。観察条件は下記のとおりである。

- 加速電圧 : 25 KV
- プローブ電流: $1 \times 10^{-9} \sim 2 \times 10^{-10}$ A
- 観察像 : 二次電子線像 (SEI)
- 写真倍率 : $\times 80 \sim \times 2,400$

4.4 X線マイクロアナライザーによる元素分析

燃料ペレットの半径方向について、ウラン、プルトニウム、FP (Xe, I, Cs) の分布、及び燃料-被覆管境界部 (FCCI部) の面分析、定量分析を実施した。分析装置は仏国 CAMECA 社製の遮蔽型 X線マイクロアナライザー (CAMEBAX-R) であり、分析条件は下記に示すとおりである。

- 加速電圧 : 25 KV
- ビーム電流: 50 ~ 1000 nA
- ビーム径 : $1 \mu\text{m}\phi$ 以下 (FP分析時 $50 \mu\text{m}\phi$)
- カウンター: ガスフロー比例計数管
- 分光結晶 : LiF, PET, ODPb

4.5 イオンマイクロアナライザーによる質量分析

燃料ペレットの半径方向について、燃焼度の分布、FP (Xe, Kr) の分布を(株)日立製作所製遮蔽型イオンマイクロアナライザー (IMA-2RI) により測定した。測定条件は下記のとおりである。

- 一次イオン加速電圧 : 15 KV
- 一次イオン種 : O^+
- 一次イオンビーム径 : $200 \sim 400 \mu\text{m}\phi$
- 二次イオン加速電圧 : 3 KV
- 測定質量範囲 (M/e) : 1 ~ 300

5. 試験結果

5.1 光学顕微鏡による燃料組織観察結果

5.1.1 燃料組織観察結果

Photo. 1にA060ピンから切断採取した金相試料のマクロ写真を示す。

各試料の軸方向位置に相当する線出力、燃焼度、被覆管内面温度はTable2に示すとおりである。

(1) 試料No.A06022 (輪切り, D.F.C.B: 25.9 mm)

本試料は炉心下端部の輪切り試料である。Photo. 2, Photo. 3にAs-Polished状態における光顕写真を示す。燃料組織は中心部から、ガスバブル領域、高密度化領域、不変領域より成る。径方向ギャップ幅の平均値は $27\mu\text{m}$ であり、ギャップ内にはFPとその反応生成物が僅かに観察されるが、被覆管内面腐食は認められない。

(2) 試料No.A06042 (輪切り, D.F.C.B: 255.6 mm)

本試料は炉心中央部の輪切り試料である。Photo. 4, Photo. 5にAs-Polished状態における光顕写真を示す。燃料組織は中心部から、中心空孔、柱状晶領域、ガスバブル領域、高密度化領域及び不変領域より成る。中心空孔の大きさは、約 $0.74\text{mm}\phi$ 、柱状晶領域は直径約 2.2mm の範囲である。等軸晶領域(ガスバブル領域と高密度化領域)から中心空孔にかけて、 $2\sim 3\mu\text{m}$ の白色状の金属析出物が数多く観察される。径方向ギャップ幅の平均値は、製造時の $85\mu\text{m}$ から $13\mu\text{m}$ に減少しており、ギャップ内には局所的にFP等が観察されるが、被覆管内面腐食は認められない。ペレット外周部に観察されるクサビ状のクラックは、ペレット中央部でのガススエリングと外周部の焼きしまりによる体積変化により生じたものと考えられる。

(3) 試料No.A06062 (輪切り, D.F.C.B: 537.5 mm)

本試料は炉心上端部の輪切り試料である。Photo. 6, Photo. 7, Photo. 8にAs-Polished状態における光顕写真を示す。燃料組織は試料No.A06022(炉心下端部)と同様である。径方向ギャップ幅の平均値は $47\mu\text{m}$ であり、ギャップ内にはFPとその反応生成物が観察される。被覆管内面には全面腐食が認められ、腐食量は平均で $16\mu\text{m}$ 、最大で $25\mu\text{m}$ である。

(4) 試料No.A06063 (縦割り, D.F.C.B: 537.5 ~ 551.1 mm)

本試料は炉心上端部と上部インシュレータ境界部の縦割り試料である。

Photo. 9, Photo. 10, Photo. 11, Photo. 12にAs-Polished, As-Etched状態における光顕写真を示す。炉心燃料にはガスバブルが形成されているが、インシュレータペレット内には全くクラックが無く、製造時の組織を保持している。被覆管内面腐食は炉心燃料とインシュレータの境界部で最も著しく最大 $32\mu\text{m}$ の腐食量が観察されている。炉心燃料ではほぼ均一に全面腐食が生じているが、インシュレータ部では腐食は発生していない。

5.1.2 画像解析システムによる解析結果

タブレット・デジタイザーを用いて、輪切り試料No A06022, A06042, A06062の各領域径、クラック面積、ペレット面積を解析した結果をそれぞれFig. 8, Fig. 9, Fig. 10に示す。Table 3にはこれら各領域径の周方向平均値をまとめて示す。このうち燃料-被覆管残留ギャップ幅(半径)及び被覆管内面腐食量は、520倍光顕写真の周方向8ヶ所におけるノギスを用いた測定値を平均した値である。Fig. 11に、各組織変化領域径と残留ギャップ幅の燃料カラム軸方向分布を示す。軸方向中央部では中心空孔、柱状晶が観察され、ガスバブル領域、高密度化領域もペレット外側に広がっていることから、燃料温度が高かったことがうかがわれる。一方、残留ギャップ幅は軸方向全域で製造時の85 μm から大幅に減少しており、特に軸方向中央部では13 μm にまで減少している。

各試料につき、クラックを除くペレットの実効面積とペレットの体積変化率を算出した結果をTable 4に示す。ここでペレットの照射による体積変化率は、製造時のペレット面積から照射後のペレット実効面積への変化割合に3/2を乗じて得たものである。燃料カラムの下端では(試料No A06022)0.32%の密度の減少(体積増加)、上端では(試料No A06062)1.36%の密度の増加(体積減少)が生じている。このようなペレット全体としての密度の増減は、ペレット周辺部の焼しまりによる密度増加と中央部のガススエリングによる密度減少の差引きにより決まるものである。一方、炉心中央部でも(試料No A06042)0.32%の密度増加(体積減少)が認められ、これはペレット周辺部の焼しまりによる密度増加と中央部の柱状晶の形成による密度増加が重畳したためと考えられる。したがって前述のカラム中央部でのギャップ幅の減少(85 μm から13 μm)は、ペレットじたいのスエリングによるものではなく、ペレットのリロケーションに起因していることがわかる。すなわち、ギャップ空間はペレットのクラッキングとその後のリロケーションにより、いったんクラック内に吸収された後、このようなクラック空間が、柱状晶の形成に伴いレンズ状ポアとして中心部に集積する過程をとおして、ギャップ空間が中心空孔に吸収されたものと考えられる。

5.2 走査型電子顕微鏡による燃料組織観察結果

試料No A06042, A06062について観察した燃料内の微細組織をPhoto. 13, Photo. 14に示す。試料No A06042では、中心空孔が形成され、その回りに柱状晶が発達している。柱状晶領域では、10 μm 長程度の細長いポアが結晶粒界に沿って連なって存在している。ペレット外周部の不変領域では微細なポアが均一に存在しているが、高密度化領域になると多くのポアが消失し1 μm 以下の微細なポアのみが粒界に存在し、ところどころ5 μm 程度の大きなポアが粒界の三重点に点在するようになる。試料No A06062では、中央部にガスバブル領域が形成されている。この領域では丸く粒状に成長した結晶粒がF Pガスの集積によって形成されたバブルで覆われている

ことがわかる。高密度化領域では、数 μm のポアが粒界に点存するだけで、粒内にはポアは認められない。

5.3 X線マイクロアナライザーによる元素分析結果

5.3.1 径方向Xe, Cs, I濃度分布

燃料組織変化に対応した燃料ペレット径方向の保持Xe濃度分布測定結果をFig. 12に示す。測定した試料(Na A06022, A06042, A06062)はいずれも不変領域でXe濃度が高く、高密度化領域で濃度が急激に減少した後、ガスバブル領域、柱状晶領域ではほとんどのXeが放出していることがわかる。このような結果はすでに報告した分析結果⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾と同様の傾向である。Xe生成濃度(理論値)を用い、本測定により得られた保持Xe濃度測定値から算出した不変領域とペレット中心部の組織変化領域におけるXe放出率をTable 5に示す。また各試料につき、Xe濃度とCs, Iのペレット径方向分布を測定した結果をFig. 13, Fig. 14, Fig. 15に示す。Cs, Iのペレット内の保持分布は、Xeの分布ときわめて良く一致していることがわかる。

5.3.2 ウラン、プルトニウム再分布

試料Na A06022とA06042について測定したペレット径方向のU, Pu濃度分布測定結果をFig. 16, Fig. 17に示す。試料Na A06022では、ペレット外周部の不変領域でU, Pu濃度のバラツキが著しく、Pu濃度は15 wt%から45 wt%の間で変化している。これは組織変化に伴う濃度の均一化が行っていないため、中心部においてもPuの再分布は認められない。一方、中心空孔を形成している試料Na A06042では、同様に不変領域でのPu濃度のバラツキは大きいですが、柱状晶領域から中心空孔にかけてPu濃度は製造時の27 wt%から32 wt%に増加していることがわかる。

5.3.3 被覆管内面腐食部の元素分布

炉心燃料と上部インシュレータ境界部の被覆管内面において、最大32 μm の内面腐食が認められた。このような燃料-被覆管化学的相互作用(FCCI)が生じている部位における各元素の面分析結果をPhoto.15, Photo.16, Photo.17に示す。境界部ギャップ内へのFe, Cr, Ni, Moの溶出が認められ、このような位置で酸素の濃度が高く酸化反応が生じていることがわかる。Cs, Te, I等のFPは多くは存在していない。

これらの境界部反応層内について、被覆管構成元素及びU, Cs, Te, Oの定量分析を実施した結果をTable 6に示す。反応層は5 wt%~10 wt%の酸素を含む酸化物相であることがわかる。

5.4 イオンマイクロアナライザーによる質量分析結果

5.4.1 径方向FPガス同位体分布

各試料につき、ペレット径方向のFPガス同位体分布を測定した結果をFig. 18, Fig. 19, Fig. 20に示す。同位体のうち、検出された核種は核分裂収率の大きい ^{134}Xe , ^{136}Xe , であり、それらの径方向各位置の強度を ^{145}Nd の強度で規格化した。 ^{134}Xe と ^{136}Xe の径方向分布はX線マイクロアナライザーで求めたと同様、不変領域で保持され高密度化領域で中心部に向かって急激に強度が低下していることがわかる。 ^{134}Xe と ^{136}Xe ではその分布にほとんど差は認められない。

5.4.2 径方向燃焼度分布

燃料ピン軸方向の燃焼度分布を測定した結果をFig. 21に示す。本測定結果と計算コード(ESPRIT-J)による計算値を比較すると、測定値は軸方向に対して計算値に比べ、より平坦な分布となっている。なお、ここで1at%は9,100MWD/MTMとして換算した。

中心空孔の観察された試料(No. A06042)について、ペレット径方向の燃焼度分布を測定した結果をFig. 22に示す。柱状晶領域内で、中心空孔に近づくに従い、若干の燃焼度の増加が認められ、これはPu濃度の増加に対応しているものと考えられる。なお、ここで求めた測定値の誤差は、偶発誤差で±3.48%、系統誤差で0.56～2.45%である。

6. 考 察

6.1 F P ガス放出挙動と燃料組織変化の関係

X線マイクロアナライザとイオンマイクロアナライザによる測定から、ペレット内のXeの保持分布と燃料組織変化には明瞭な対応があることが確認された。Table 5 に示すXe放出率の測定結果に基づき、ペレット周辺部の不変領域と中央部の組織変化領域におけるXe放出率を燃焼度に対してプロットした関係をFig.23に示す。図中の破線と実線は、海外照射燃料の分析結果に基づきフィッティングした実験式⁽¹⁾である。今回PFD105燃料で得られた測定値は実験式の予測とよく一致した結果となっている。すなわち、燃焼度が60,000MWD/MTMでは、組織変化領域のガス放出率は約90%となり、一方、不変領域からもガス放出が生じており27%まで増加している。特に不変領域のF P ガス放出挙動に着目すると、燃焼度が50,000MWD/MTMあたりにガス放出のしきい値が存在し、これ以上の燃焼度でガス放出が生じることがわかる。そこで燃焼度が60,000MWD/MTMの試料No.A06042と燃焼度が34,000MWD/MTMの試料No.A06062における不変領域の組織を比較すると、以下のような相違があることがわかる。すなわちF P ガス放出が生じている試料(Photo.7, Photo.14)の不変領域の組織は、放出していない試料(Photo.5, Photo.13)のそれに比べ数 μm 径程度のガス気泡が多く存在している特徴がある。このようなガス気泡は粒内に固溶しているF P ガスが互いに合体して成長したもので、これに伴いF P ガスがペレット外に放出された可能性が考えられる。

さらに詳細なF P ガス放出挙動と組織変化の関連並びにガススエリング量の評価については、現在MK-II及びPhenix照射燃料の分析結果を総合評価している段階にあり、あらためて報告する予定である。

6.2 燃料-被覆管残留ギャップ幅の変化

今回試験を実施したPFD105燃料要素を含め、これまでに得られている「常陽」MK-IIドライバ燃料要素のギャップ幅測定値をTable 7に示す。またFig.24に、50W/cm幅の各線出力レベルに対する残留ギャップ幅の燃焼度依存性を示す。残留ギャップ幅は、燃焼度の増加に伴い単調に減少し、今回得られた60,000MWD/MTMでは13 μm にまで減少していた。

Table 4に示した画像解析結果によるとペレットじたいの体積は減少しているため、このようなギャップ幅の減少はペレットのリロケーションに大きく支配されているものと考えられる。従ってピーク燃焼度が60,000MWD/MTMまで照射されたPFD105燃料要素の軸方向カラム中央部では、照射中にペレットと被覆管の機械的相互作用(PCMI)が局所的に生じていたものと推察される。

6.3 被覆管内面腐食

「常陽」MK-IIドライバー燃料要素の被覆管内面腐食量は、今回PFD105で観察された32 μm が最大であり、全般に小さな値になっている。Fig.25は、これまでに海外照射燃料で得られている内面腐食量測定データに、MK-IIドライバー燃料で観察された腐食量をオーバープロットしたものである。MK-II燃料要素では、被覆管の腐食は内面温度が約600℃以上の燃料カラム軸方向上端部でのみ生じており、この位置の燃焼度は25,000MWD/MTMから35,000MWD/MTMの範囲にある。腐食形態は、全面腐食と粒界腐食の混合型であり、その部位で酸素の濃度が高いことから、Cs、Te等のFPにより促進された酸化反応であると考えられる。

7. 謝 辞

燃料集合体からの試料の採取などの準備作業にあたり、照射燃料集合体試験室（FMS）の田地室長をはじめとする関係室員に御支援いただいた。また、試験遂行に際しては、原子力技術㈱の大里行弘、額賀貞芳の両氏及び日本放射線エンジニアリング㈱の鈴木康明氏に御支援いただいたことを付記し、これらの方々に感謝の意を表わします。

8. 参 考 文 献

- (1) 鶴飼, 他: 照射燃料中の保持Xe濃度の測定とFPガス放出挙動の評価; PNC SN941
85-141
- (2) 榊田, 他: 「常陽」MK-II炉心燃料(PFD001)の照射後試験(2); PNC I9410
87-004 Vol.1, Vol.2
- (3) 鶴飼, 他: 「常陽」MK-II炉心燃料(PFD029)の照射後試験; PNC I9410 87
-008 Vol.1, Vol.2

Table 1 Irradiation Condition of PFD105 Subassembly During 3 to 8 Cycle of "JOYO" MK-II

計 算 コ ー ド			MAGI	
装 荷 位 置			1D1	
燃 焼 度	ポ イ ン ト 最 大		MWD/T	59900
	集 合 体 平 均		MWD/T	48300
積 算 中 性 子 照 射 量	En ≥ 0.1 MeV	ポ イ ン ト 最 大	× 10 ²⁰ n/cm ²	803
		集 合 体 平 均	× 10 ²⁰ n/cm ²	630
	Total	ポ イ ン ト 最 大	× 10 ²⁰ n/cm ²	1130
		集 合 体 平 均	× 10 ²⁰ n/cm ²	898
線 出 力	BOL	ポ イ ン ト 最 大	W/cm	372
		集 合 体 平 均	W/cm	297
	EOL	ポ イ ン ト 最 大	W/cm	319
		集 合 体 平 均	W/cm	263
被 覆 管 最 高 温 度	BOL		℃	609
	EOL		℃	588
燃 料 最 高 温 度	BOL		℃	2180
	EOL		℃	1946
集 合 体 出 口 温 度	BOL		℃	551
	EOL		℃	535
ピーキング係数	BOL	径 方 向	—	1.048
		軸 方 向	—	1.195
	EOL	径 方 向	—	1.046
		軸 方 向	—	1.161
冷 却 材 流 量	BOL		kg/sec	9.1
	EOL		kg/sec	8.96
備 考				
BOL : 第3サイクルBOCの値使用				
EOL : 第8サイクルEOCの値使用				

Table 2 Irradiation Condition of Each Sample

Specimen No.	Distance from Core Bottom (mm)	Linear Heat Rate (W/cm)	Burnup (MWD/MTM)	Cladding Inner Temperature (°C)
A06022	25.9	250	41,400	419
A06042	255.6	371	60,000	533
A06062	537.5	208	34,000	611
A06063	537.5~551.5	194	32,100	611

Table 3 Summary of Data from Image Analysis

Specimen No	Distance from Core Bottom (mm)	Clad Dia. (mm)		Fuel Outer Dia. (mm)	Restructured Region Dia. (mm)				Residual Radial Gap Size (μm)	Cladding Inner Corrosion (μm)	
		Outer	Inner		Central Void	Columnar Region	Gas Babble Region	Densified Region		Average	Max.*
A06022	25.9	5.493	4.801	4.729	0	0	2.478	3.348	27	0	0
A06042	255.6	5.504	4.806	4.768	0.736	2.200	3.047	3.727	13	0	0
A06062	537.5	5.494	4.816	4.694	0	0	2.358	3.485	47	16	25

* A06063

Cladding Inner Corrosion

Max. $32\mu\text{m}$

Table 4 Volume Change of Each Sample Estimated from Image Analysis

Specimen No	Pellet Area ¹⁾ (mm^2)	$\Delta V/V$ (%) ²⁾
A06022	16.742	+0.32
A06042	16.670	-0.32
A06062	16.555	-1.36

1) Total Pellet Area - Crack Area

2) Pellet Area before Irradiation : 16.706mm^2

$$\Delta V/V = 3/2 \cdot (\Delta S/S)$$

Table 5 Xe Gas Release Rate Compared with Theoretical Value in Specimen
No. A06022, A06042, A06062

試料 No.	Xe 生成濃度 理論値 (モル/cc)	ペレット外周部測定値 (SXMA)		ペレット中心部測定値 (SXMA)	
		保持濃度 (モル/cc)	放出率 (%)	保持濃度 (モル/cc)	放出率 (%)
A06022	3.931×10^{-4}	4.446×10^{-4}	-13.1	5.016×10^{-5}	87.2
A06042	5.618×10^{-4}	4.1075×10^{-4}	26.9	5.408×10^{-5}	90.4
A06062	3.412×10^{-4}	3.2978×10^{-4}	3.3	5.924×10^{-5}	82.6

Table 6 Quantitative Analysis of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No A06063)

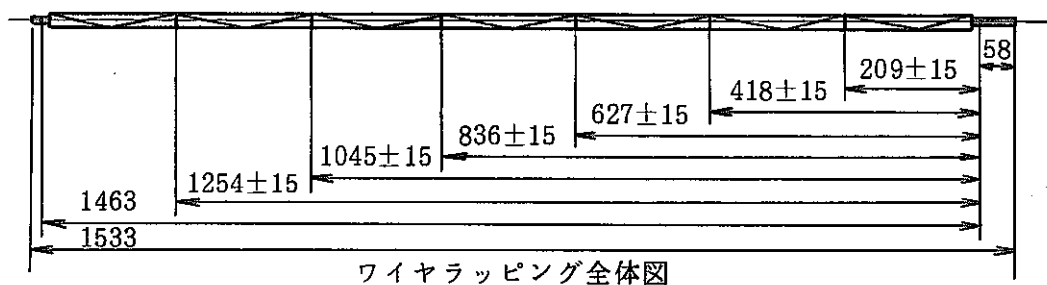
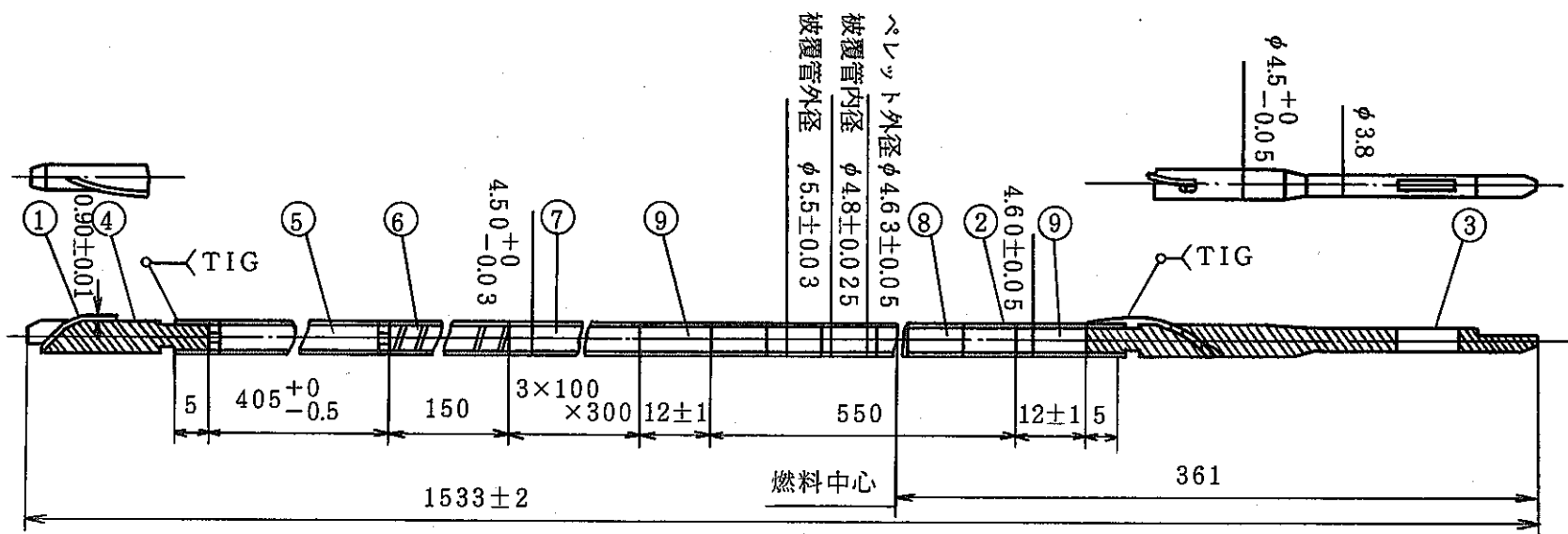
分析位置 A-1	試料No. A06063 濃度 (wt%)								
測定点 元素	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Fe	70.29	73.87	43.00	75.25	57.43	63.93	56.79	62.47	42.11
Cr	12.31	7.71	13.36	6.53	13.53	10.70	16.49	9.75	17.40
Ni	5.86	4.62	24.99	6.41	15.21	13.47	13.93	19.75	12.69
Mn	1.19	1.51	2.13	1.08	0.90	1.34	0.28	0.12	2.56
Mo	0	0	0	0.42	0.05	0	0.22	0	0.61
Si	0.15	0.18	0.23	0.16	0.14	0.15	0.09	0.07	0.22
U	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Pu	1.22	1.54	2.52	1.16	1.68	1.91	1.53	1.38	9.72
Te	0.71	0.79	0.82	0.42	0.40	0.48	0.36	0.45	1.03
Cs	2.50	3.75	3.48	4.14	3.38	3.42	3.19	1.99	8.15
O	5.77	6.02	9.43	4.32	7.27	4.59	7.09	4.01	5.51

分析位置 A-2	試料No. A06063 濃度 (wt%)						
測定点 元素	1	2	3	4	5	6	7
Fe	72.25	75.68	75.33	0.26	3.53	8.24	8.76
Cr	2.73	3.65	2.82	3.51	3.55	3.32	3.22
Ni	19.28	16.29	17.06	0.11	0.36	1.23	2.02
Mn	0.15	0.12	0.72	0.74	0.44	0.52	0.50
Mo	0.42	0.41	0.23	0	0	0	0.05
Si	0.07	0.11	0.13	0.07	0.10	0.17	0.13
U	0	0	0	55.60	52.79	51.11	50.76
Pu	3.79	2.95	1.70	24.73	24.27	20.23	19.93
Te	0.12	0.17	0.20	0.85	0.99	0.90	0.98
Cs	0.58	0.35	0.87	1.87	2.47	3.00	3.03
O	0.61	0.29	0.95	12.28	11.51	11.27	10.63

分析位置 A-3	試料No. A06063 濃度 (wt%)									
測定点 元素	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Fe	65.11	65.92	54.41	40.78	67.85	65.09	66.13	70.10	89.36	84.95
Cr	14.92	15.35	16.68	19.95	4.53	5.74	5.26	5.22	1.41	1.66
Ni	4.34	4.38	10.75	17.30	23.37	22.16	23.12	21.21	6.60	11.26
Mn	3.19	3.22	4.37	5.96	0.64	1.39	1.44	0.42	0.09	0
Mo	2.11	0.40	0.19	0.23	0.12	0	0.03	0.76	0.18	0.19
Si	0.17	0.16	0.13	0.11	0.07	0.10	0.09	0.05	0.05	0.09
U	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Pu	1.47	1.17	0.72	0.95	0.98	1.12	0.88	1.58	1.77	1.62
Te	0.46	0.30	0.44	0.25	0.17	0.32	0.27	0	0.04	0.12
Cs	2.74	2.57	5.02	3.25	0.86	1.99	1.49	0.12	0.29	0.10
O	5.49	6.55	7.29	11.22	1.41	2.08	1.28	0.54	0.22	0

Table 7 Summary of Residual Radial Gap Size of "JOYO" MK-II Driver Fuel Element

	Pin No.	Specimen No.	Burnup (MWD/MTM)	Linear Heat Rate (w/cm)	Residual Radial Gap (μm)
PFD010	6364	636425	3830	228	93
		636444	4880	286	56
		6364752	5696	317	52
		6364A14	4916	258	71
		6364C12	3830	190	86
		6364C13	3541	175	84
PFD003	70A6	70A625	10673	250	41
		70A644	16346	363	38
		70A662	13750	281	31
		70A682	9903	190	53
PFD001	8152	815226	25403	262	38
		815244	37903	379	28
		815262	33194	303	36
		815282	24355	214	54
PFD029	9160	916025	34460	225	32
		916044	48077	306	23
		916063	41850	229	22
		916083	29230	147	45
PFD105	A060	A06022	41400	250	27
		A06042	60000	371	13
		A06062	34000	208	47



9	インシュレータペレット	劣化 UO_2	2	
8	炉心ペレット	PuO_2UO_2		
7	上部反射体	SUS316 相当	3	
6	プレナムスプリング	SUS304WPB	1	
5	押え板付プレナムスリーブ	SUS304WPB	1	
4	上部端栓	SUS316	1	
3	下部端栓	SUS316	1	
2	被覆管	SUS316 相当	1	
1	ラッピングワイヤ	SUS316 相当	1	
品番	品名	材質	個数	備考
名称	炉心燃料集合体燃料要素			

Fig.1 Specification of MK-II Driver Fuel Pin

炉内照射位置

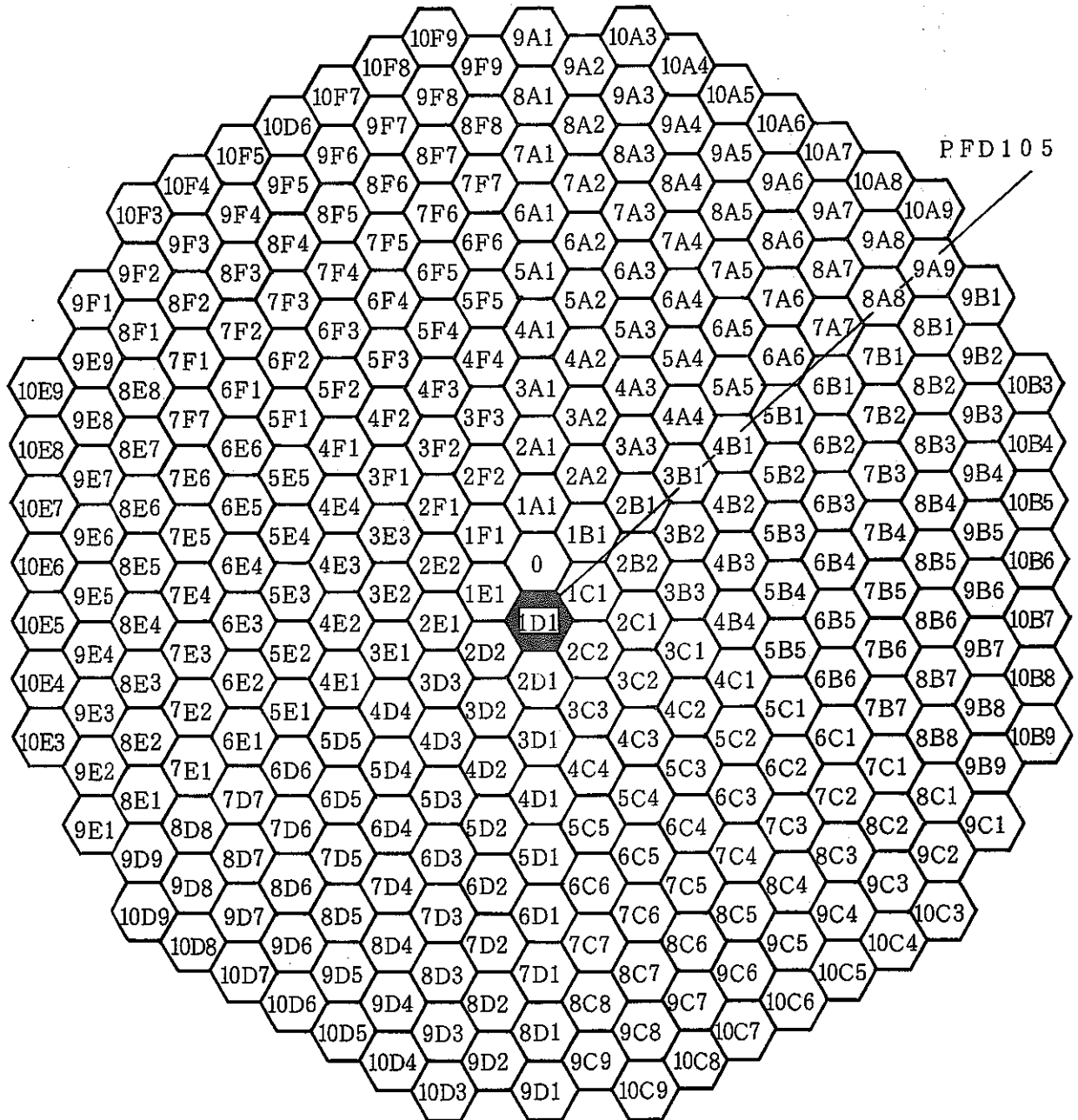


Fig. 2 Location of the Driver Fuel Subassembly
(Fab.No PFD105) in "JOYO" MK-II

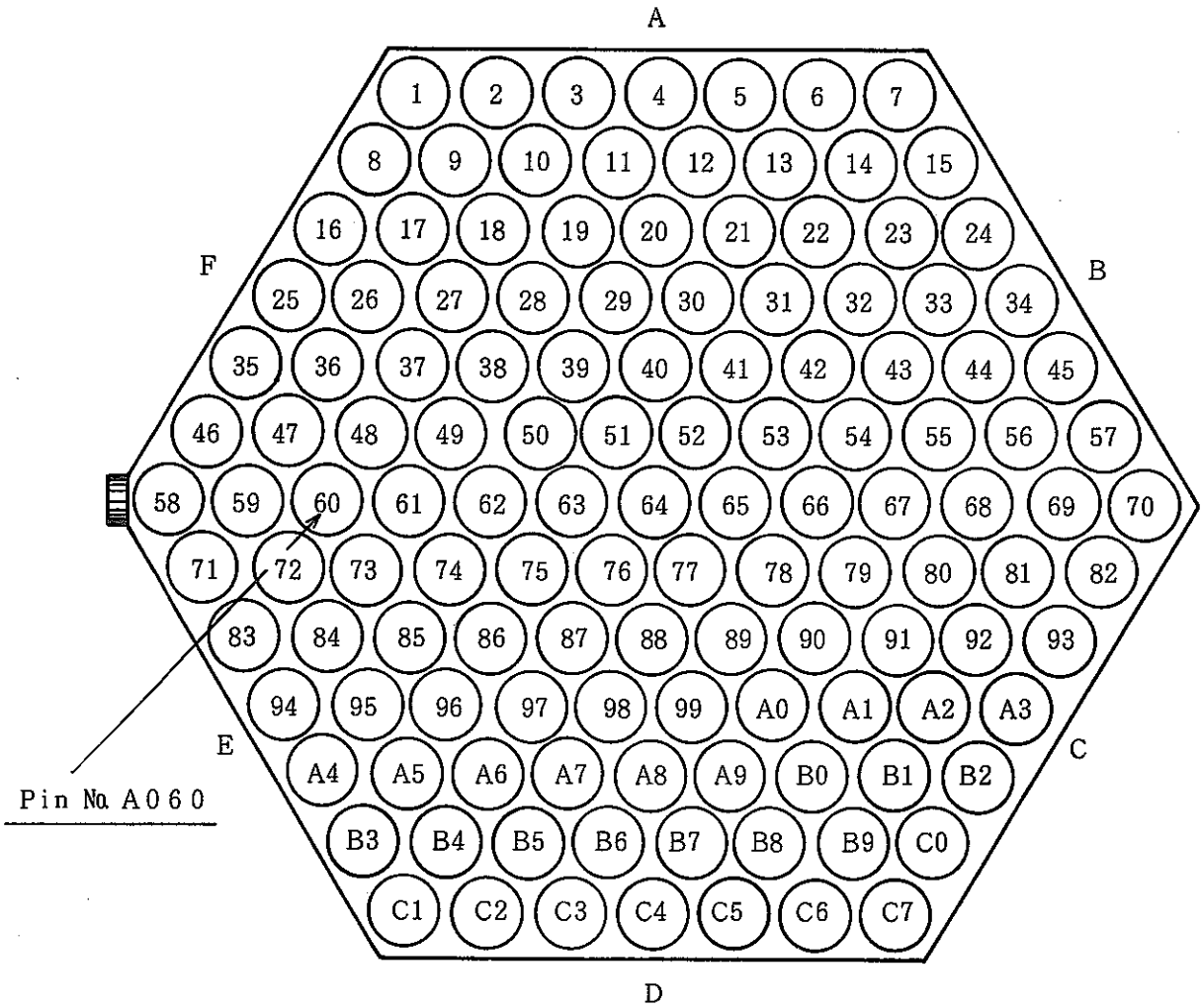


Fig. 3 Location of the Fuel Pin (Pin No A060) in the Driver Fuel Subassembly

S/A Fab. No : PFD105 PIN No : 60

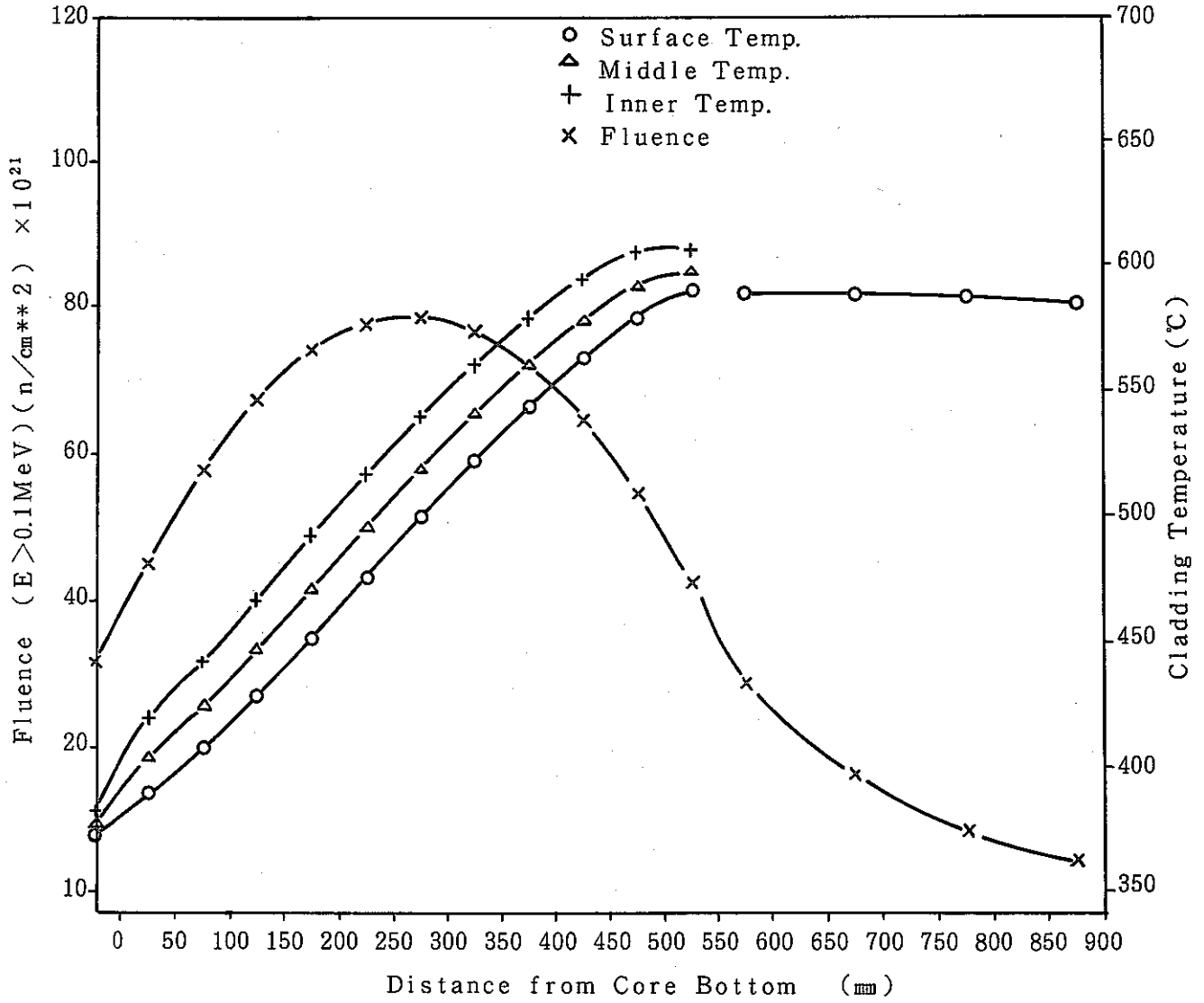


Fig. 4 Axial Profile of Fluence and Cladding Temperature
(Pin No A060)

S/A Fab. No : PFD105 PIN No : 60

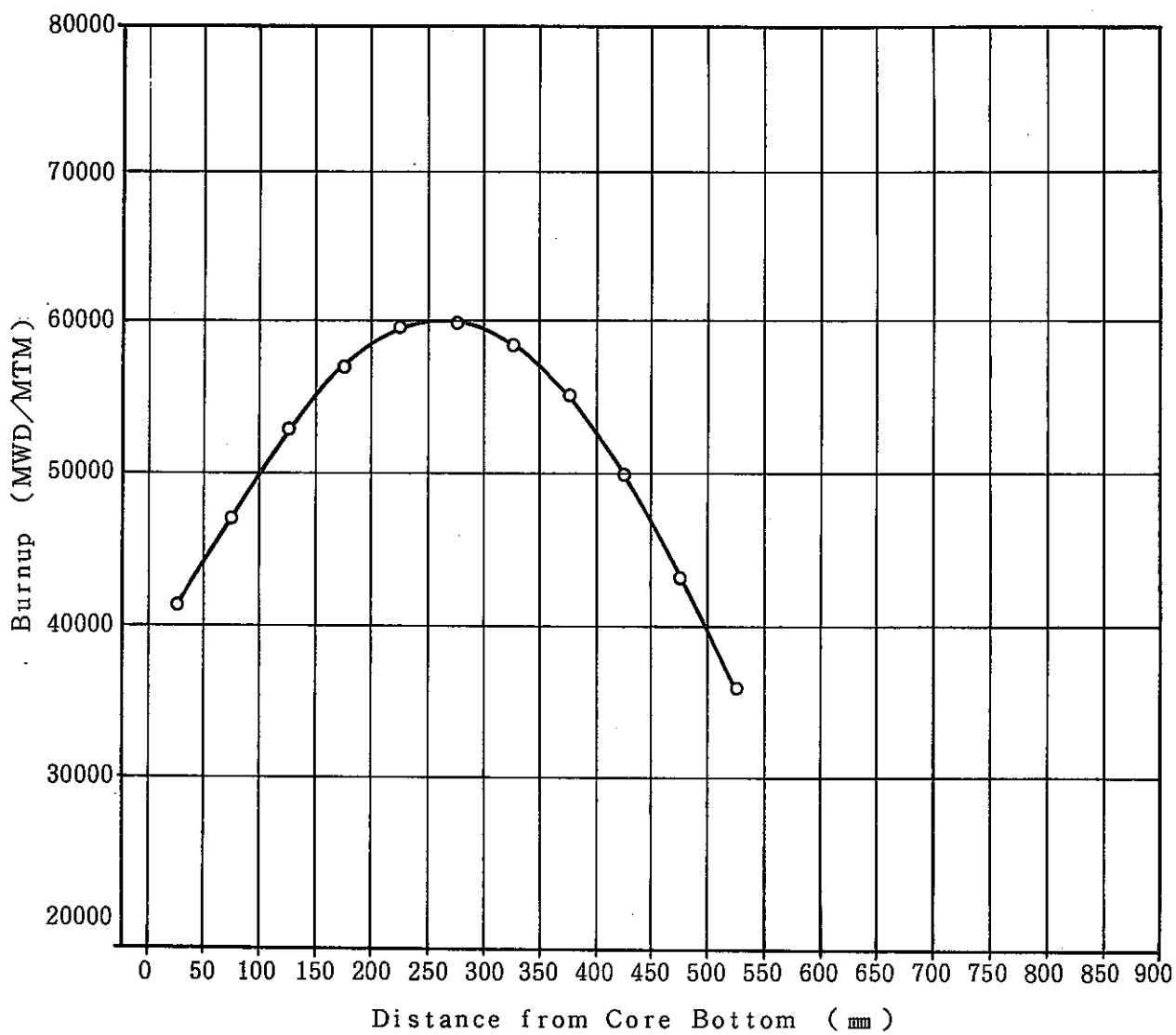


Fig. 5 Axial Profile of Burnup (Pin No A060)

S/A Fab. No : PFD105 PIN No : 60 MAX : °

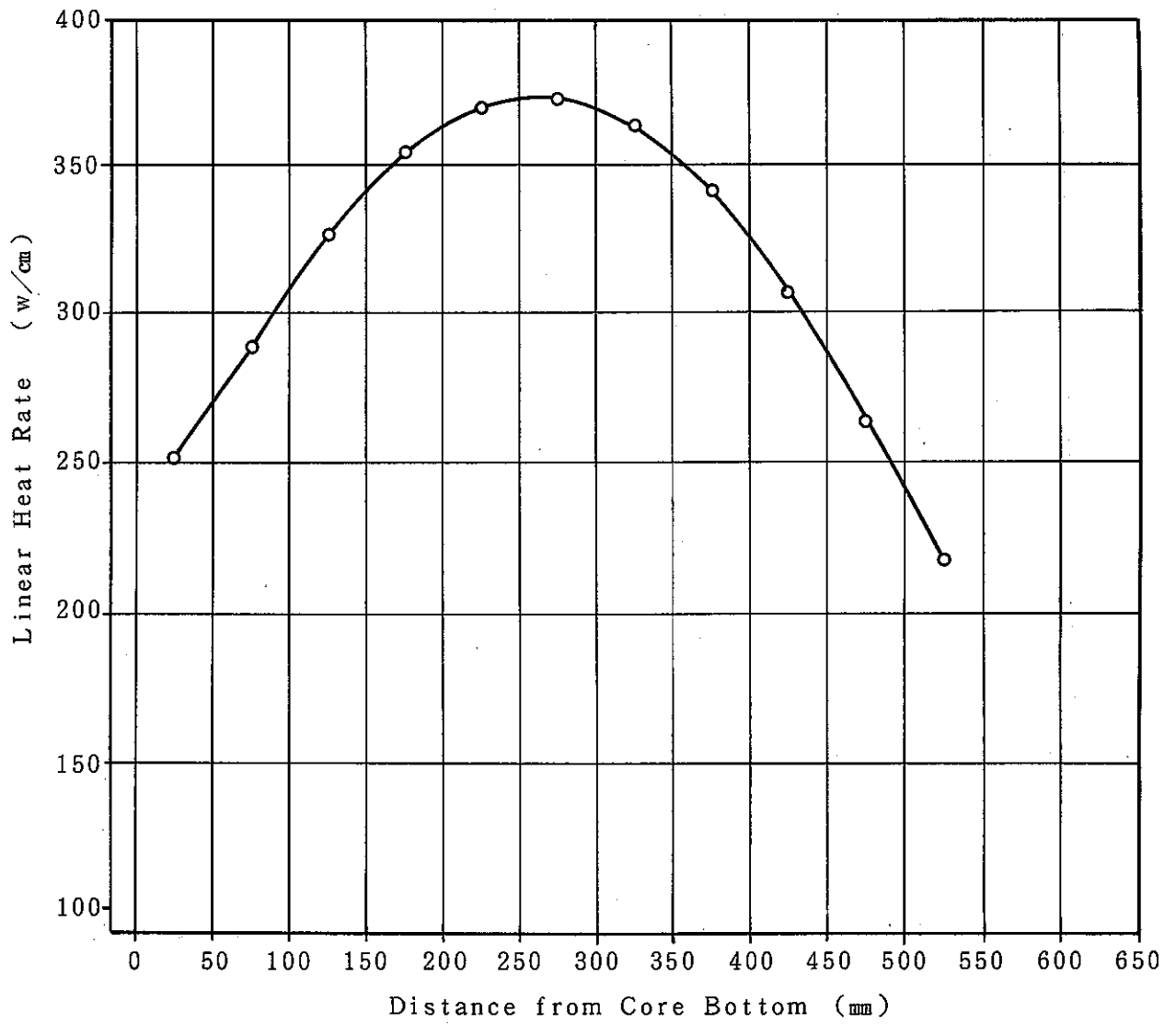


Fig.6 Axial Profile of Linear Heat Rate (Pin No A060)

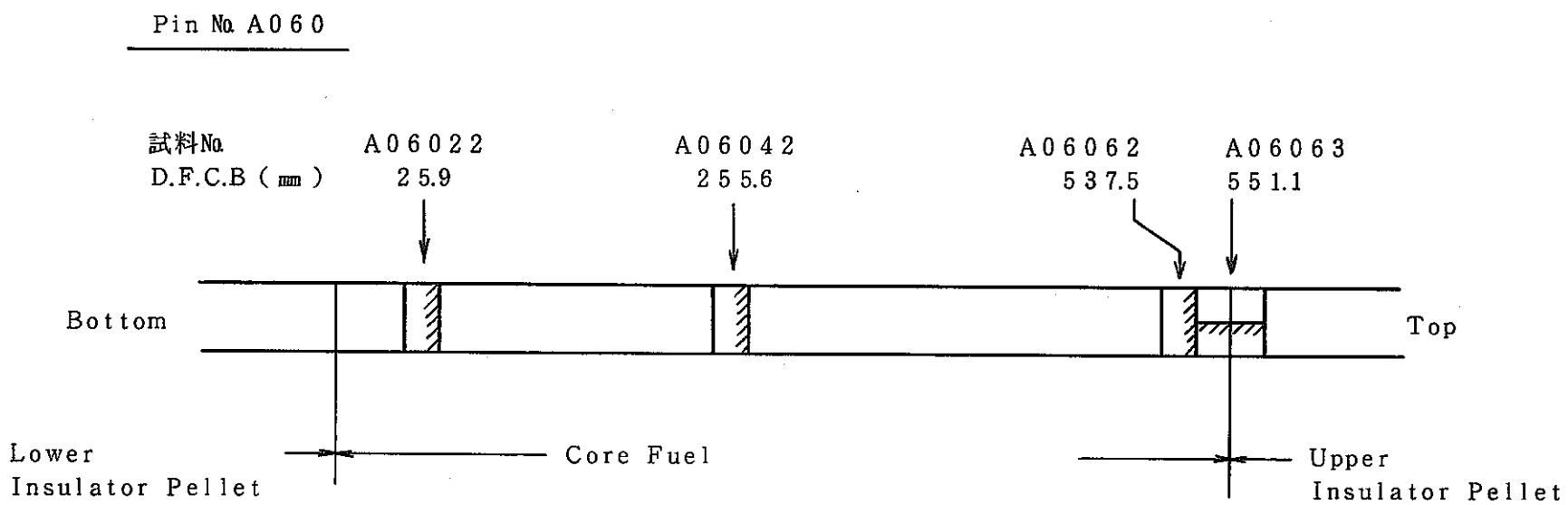


Fig. 7 Cutting Position of Specimen from the Core Fuel Pin

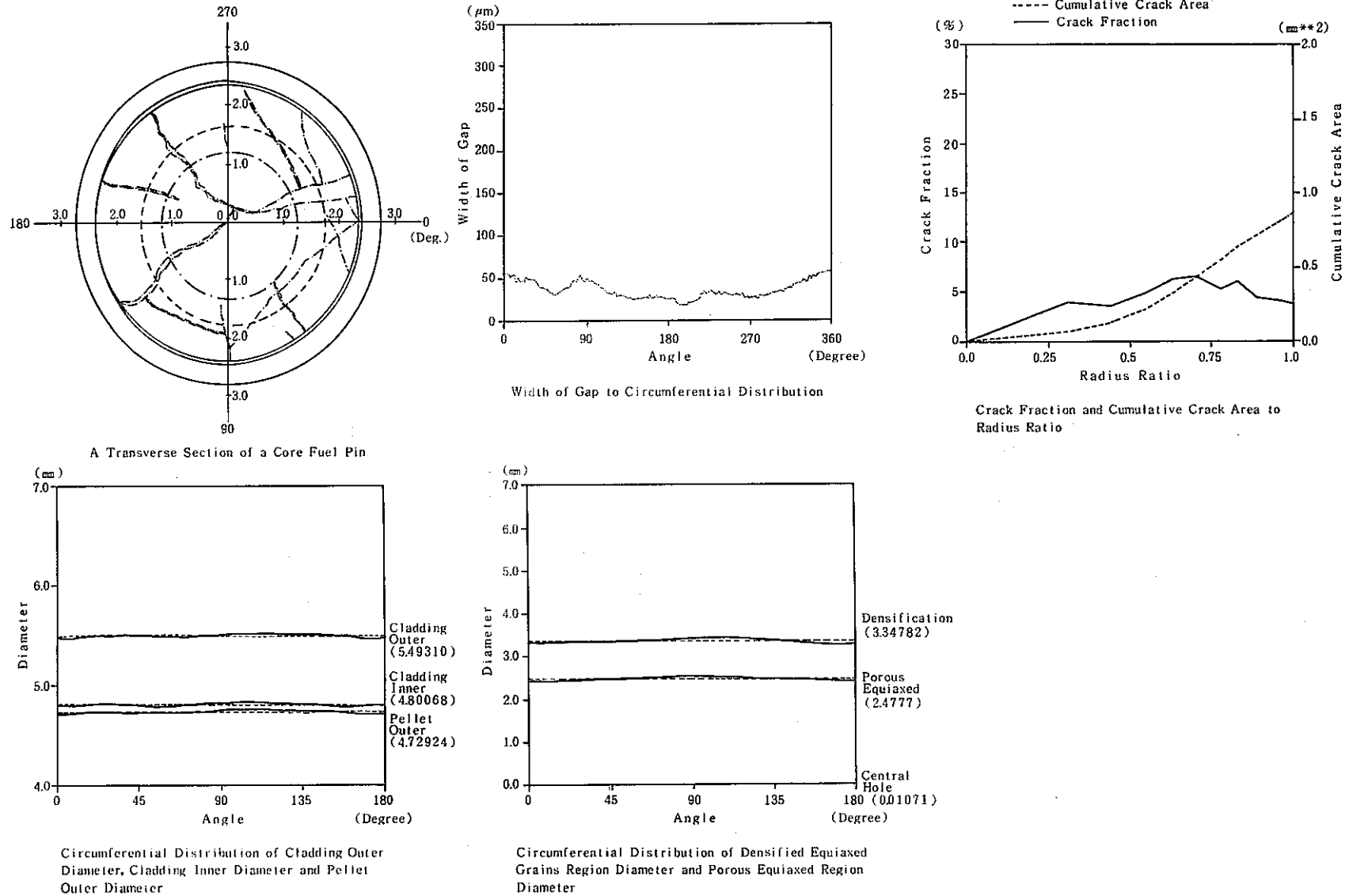


Fig. 8 Result of Image Analysis of Specimen No. A06022

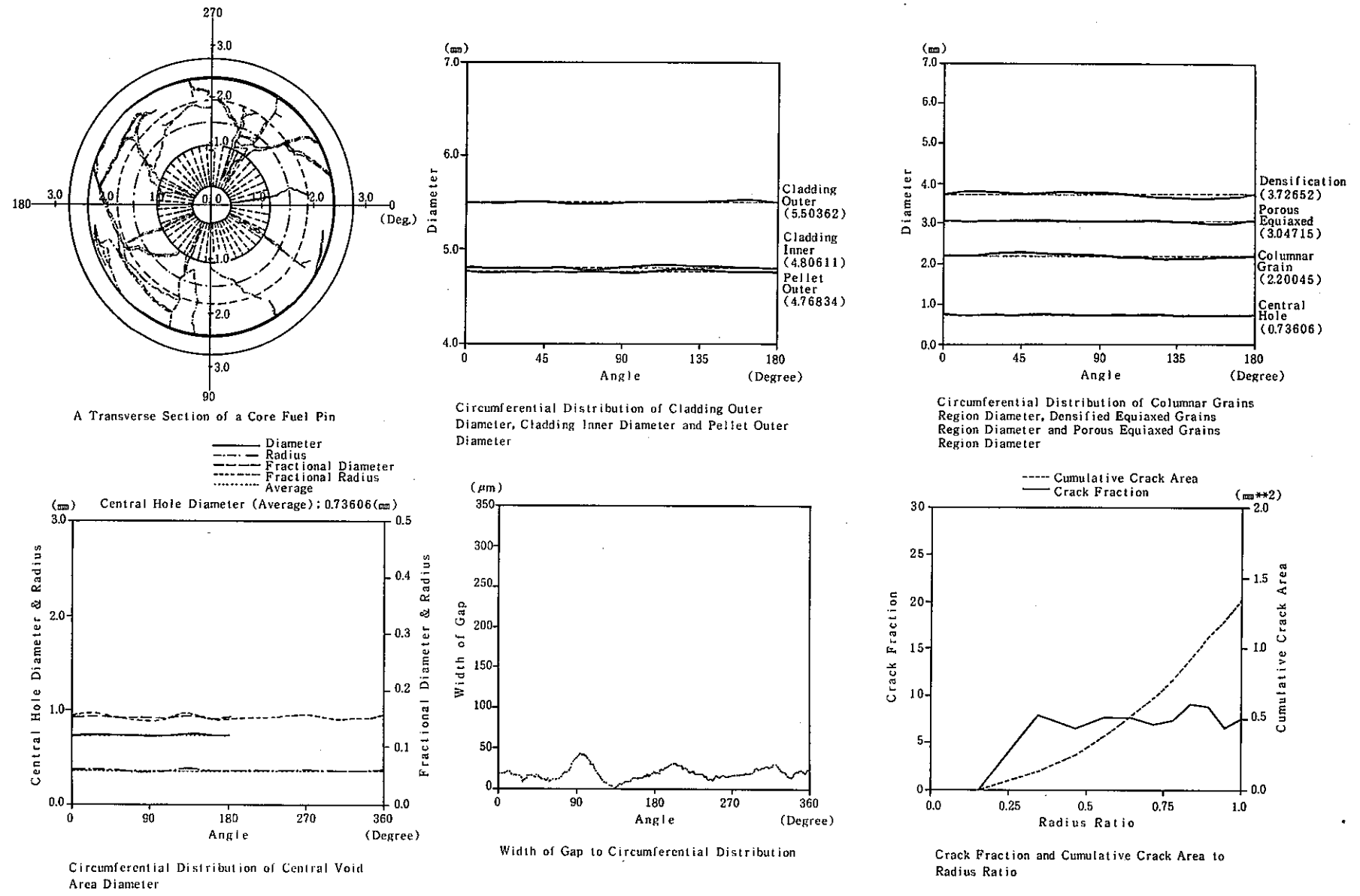
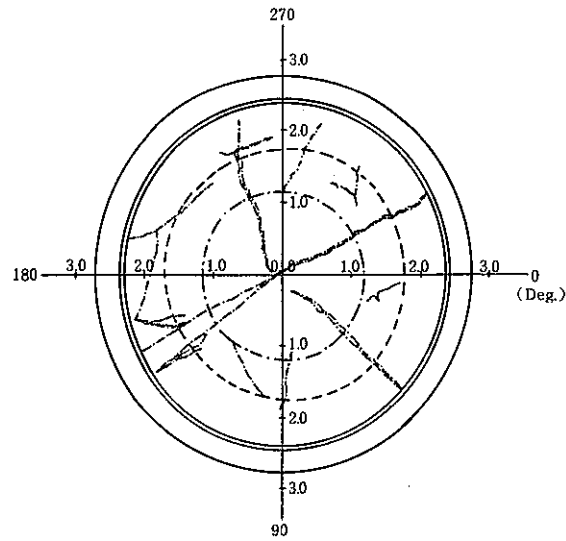
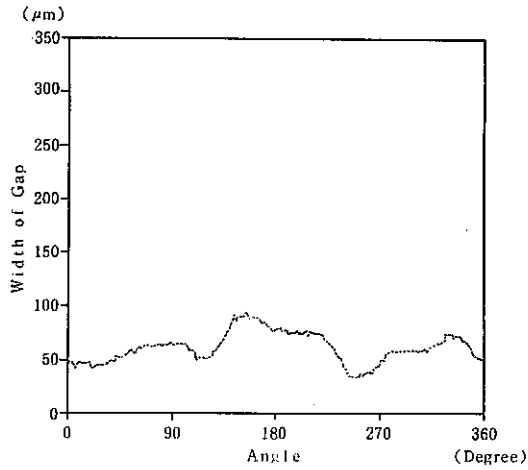


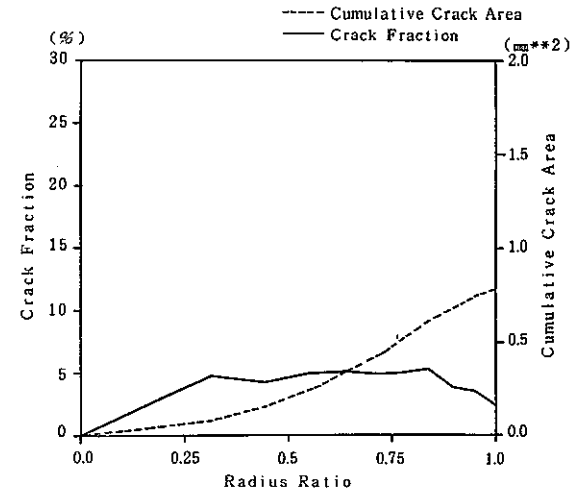
Fig. 9 Results of Image Analysis of Specimen No A06042



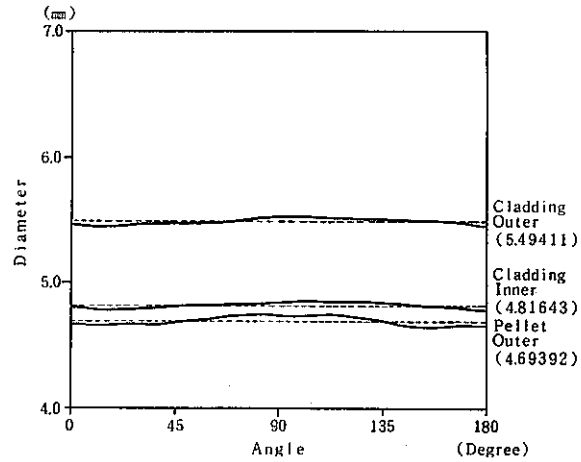
A Transverse Section of a Core Fuel Pin



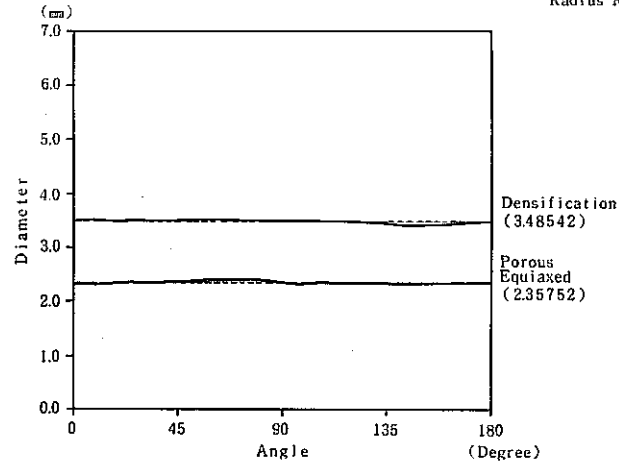
Width of Gap to Circumferential Distribution



Crack Fraction and Cumulative Crack Area to Radius Ratio



Circumferential Distribution of Cladding Outer Diameter, Cladding Inner Diameter and Pellet Outer Diameter



Circumferential Distribution of Densified Equiaxed Grains Region Diameter and Porous Equiaxed Region Diameter

Fig. 10 Results of Image Analysis of Specimen No.A06062

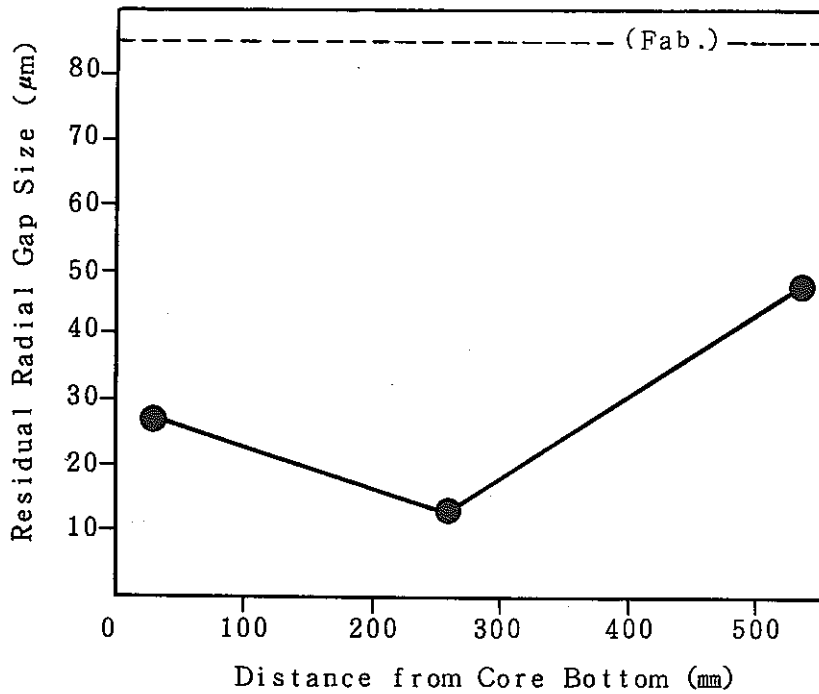
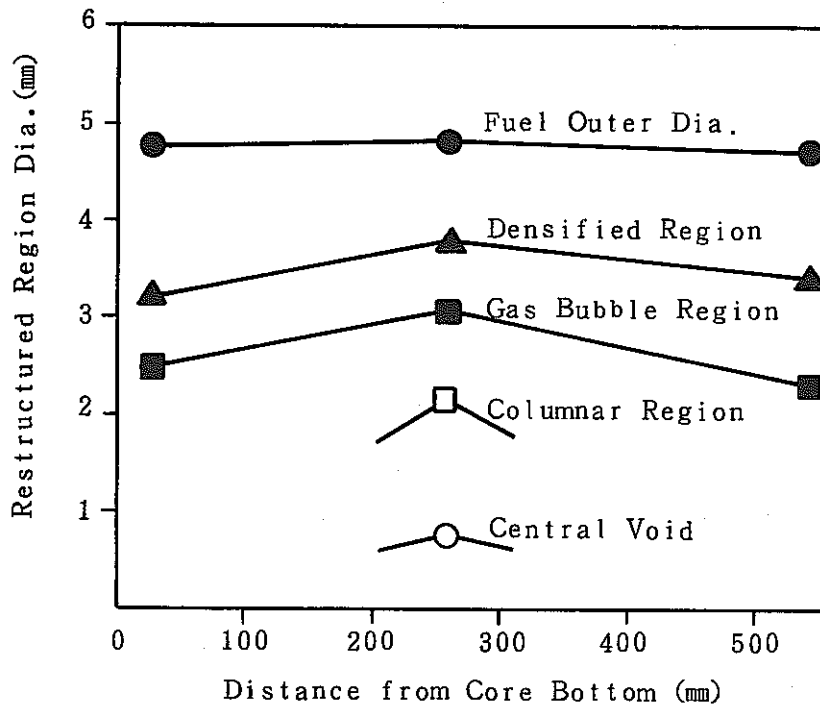


Fig.11 Axial Profile of the Gap Width and Fuel Restructuring

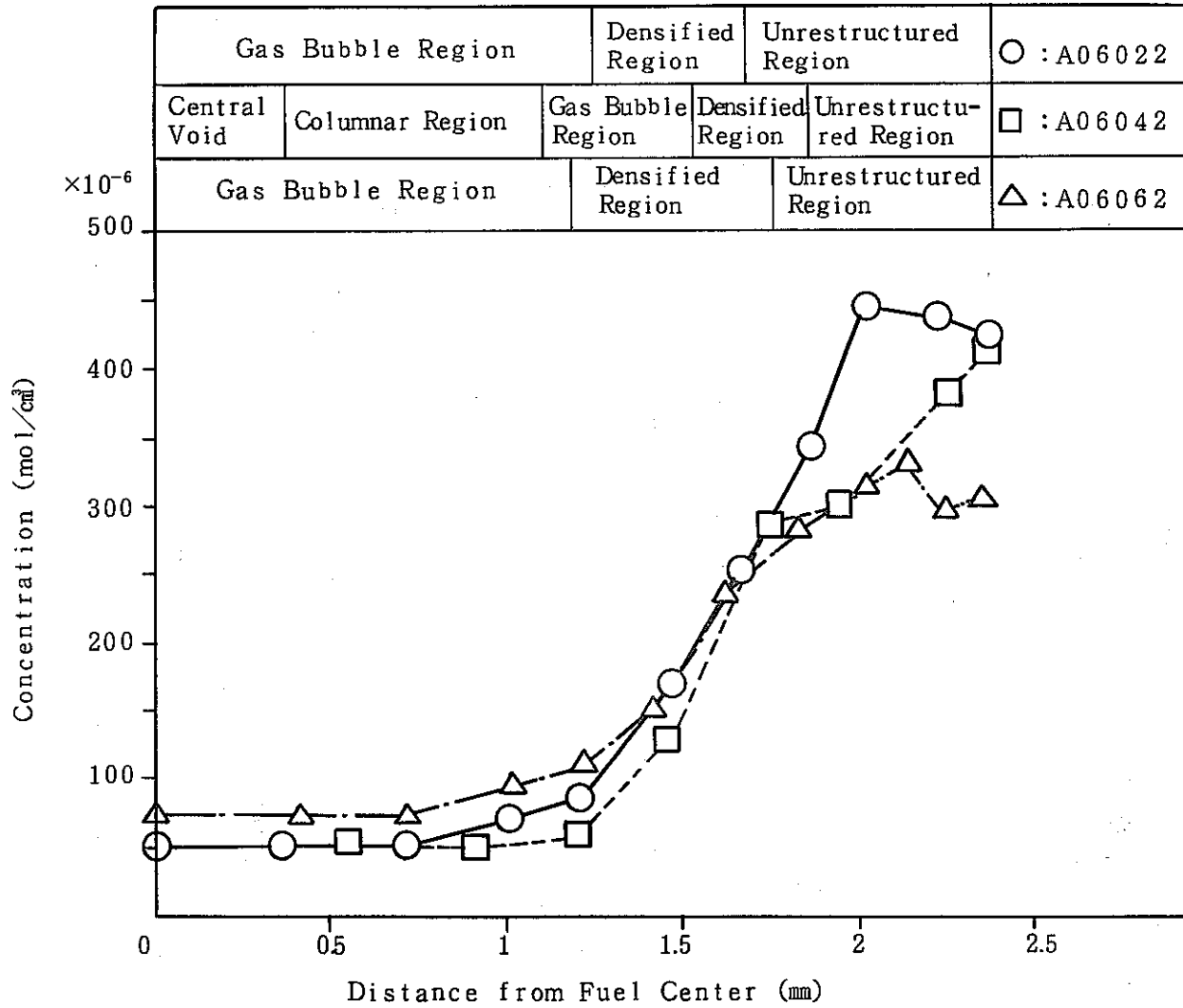


Fig.12 Radial Profile of Retained Xe Gas in Specimen No A06022, A06042, A06062

No. A06022

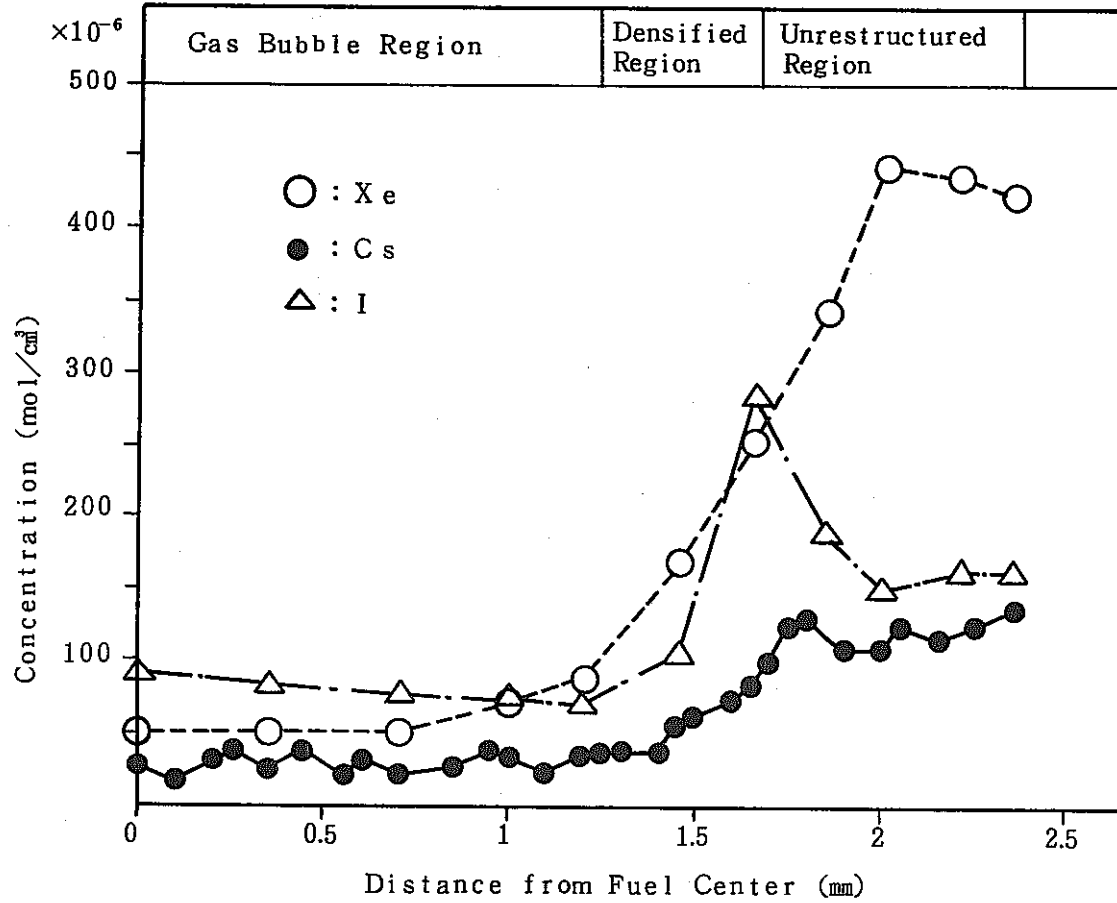


Fig.13 Relative Radial Profile of Retained Xe , Cs , I Concentration (Specimen No.A06022)
Cs , I: Arbitrary Unit

No. A06042

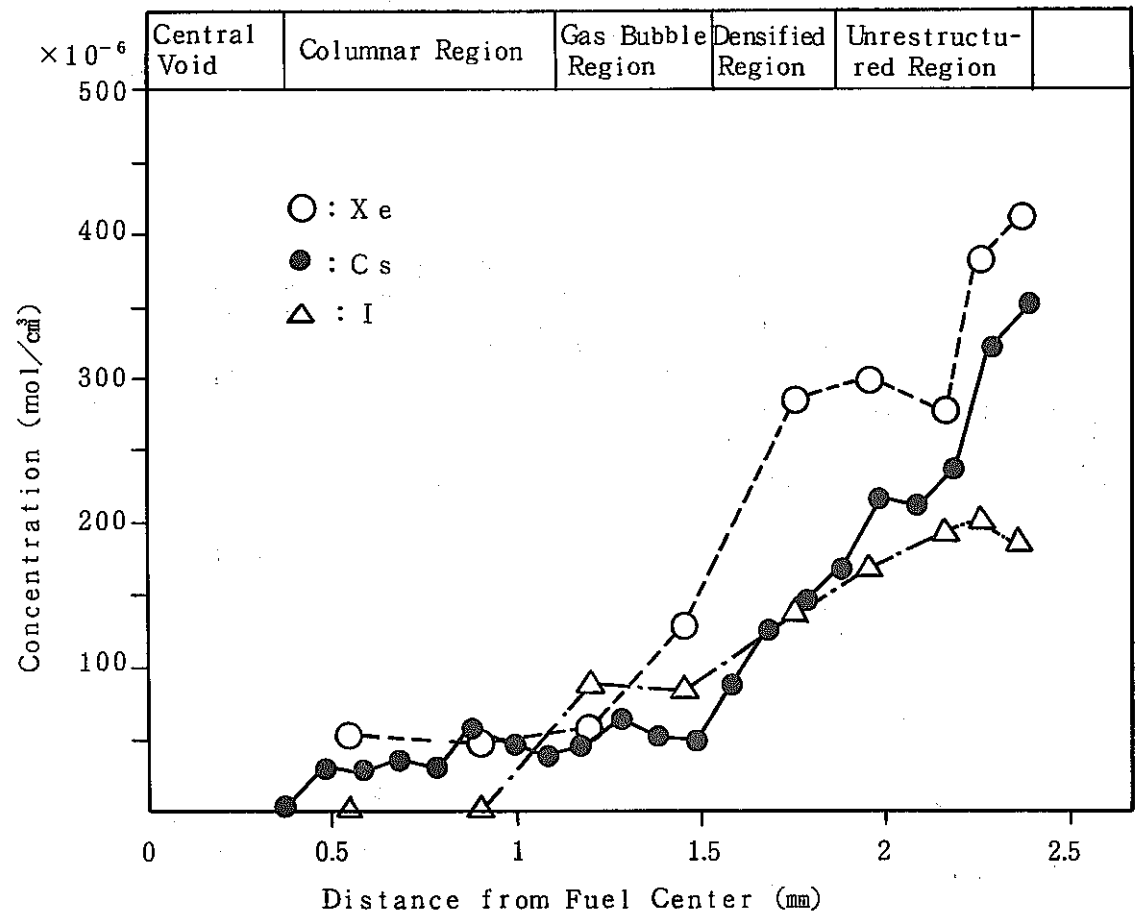


Fig.14 Relative Radial Profile of Retained Xe , Cs , I Concentration (Specimen No A06042) Cs, I : Arbitrary Unit

No. A06062

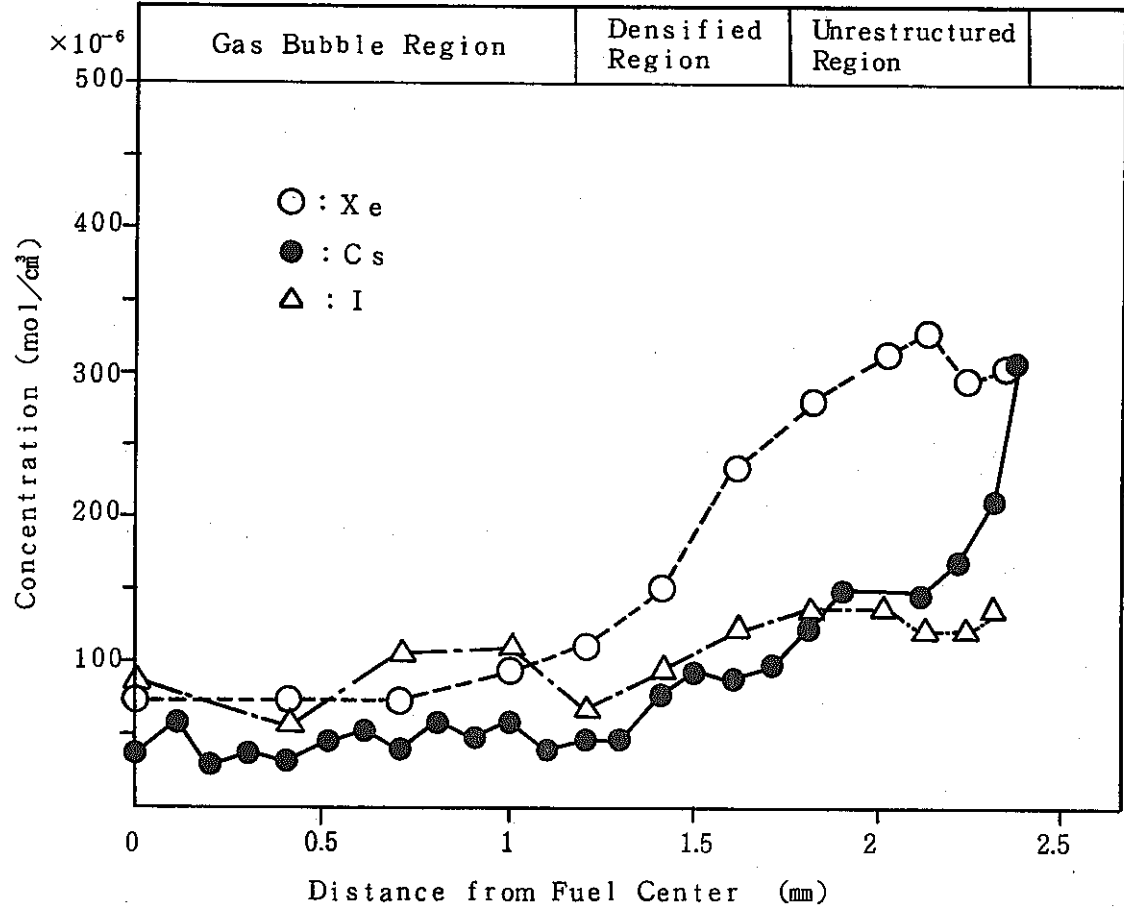


Fig.15 Relative Radial Profile of Retained Xe , Cs , I Concentration (Specimen No A06062) Cs, I:Arbitrary Unit

No. A06022

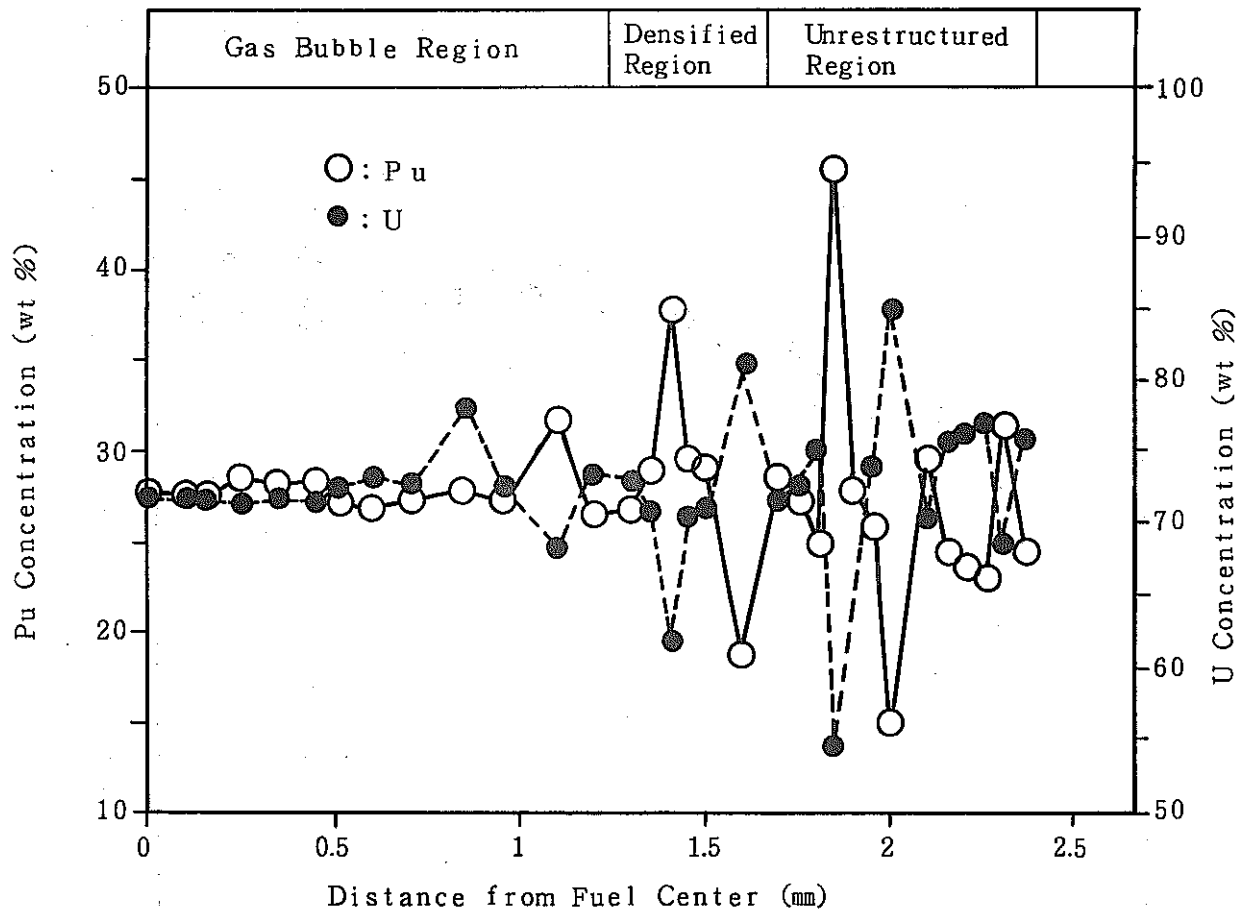


Fig.16 Radial Distribution of Uranium and Plutonium Concentration (Specimen No. A06022)

No. A06042

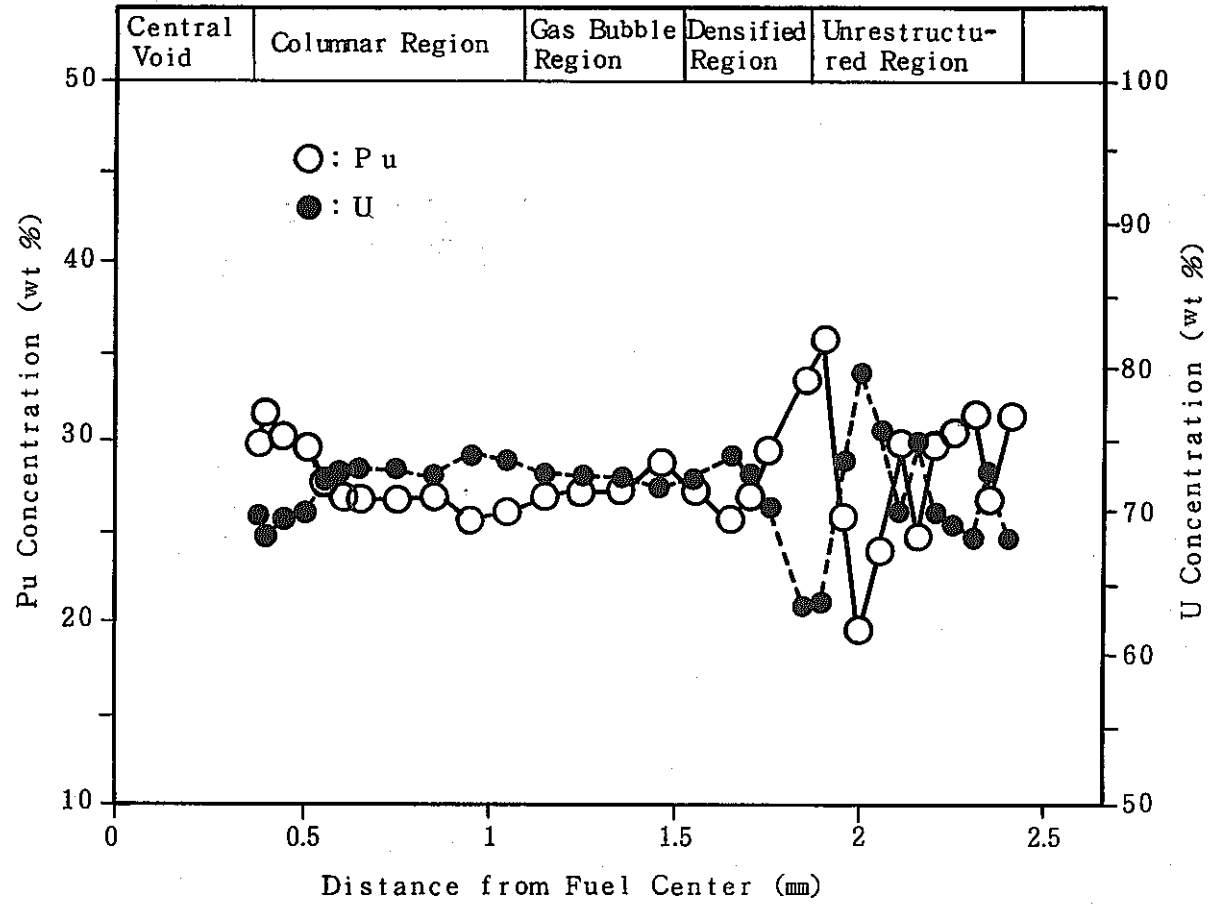


Fig.17 Radial Distribution of Uranium and Plutonium Concentration (Specimen No. A06042)

No. A06022

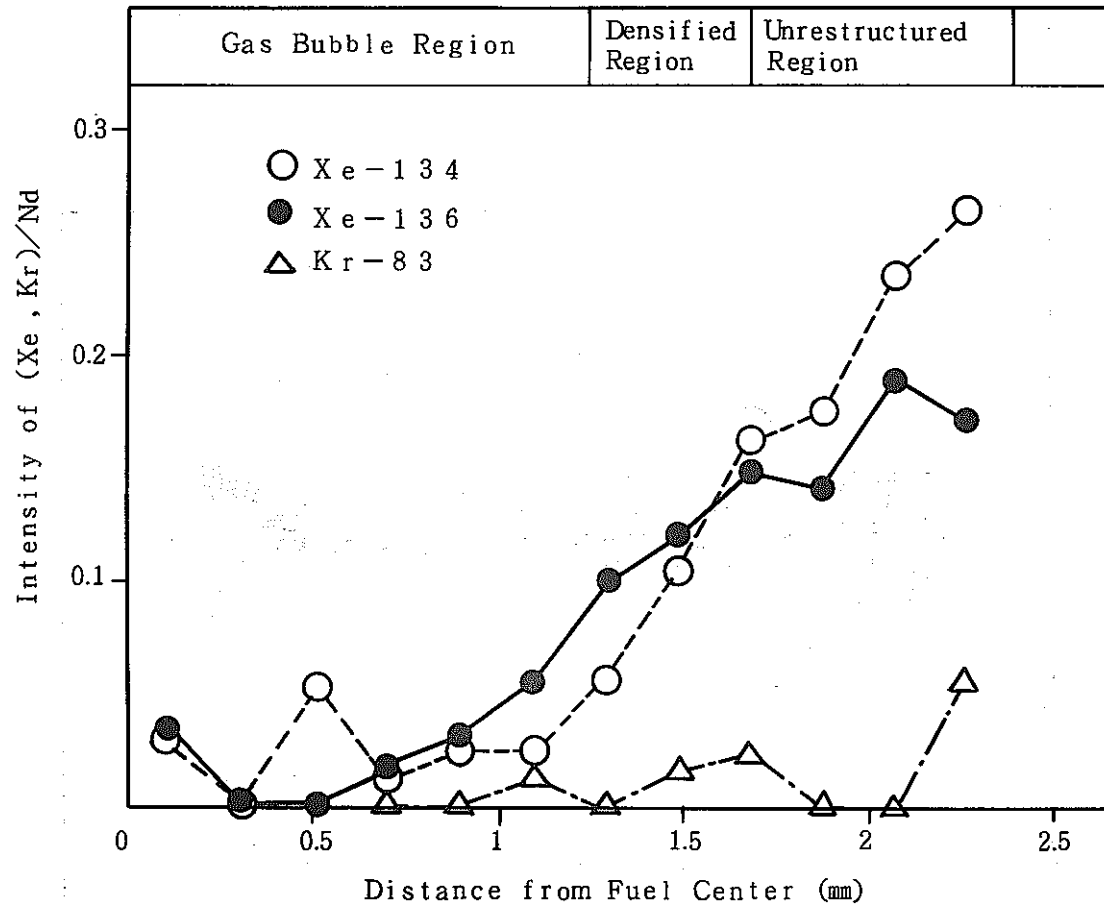


Fig.18 Radial Distribution of Xe and Kr Isotopes (Specimen No. A06022)

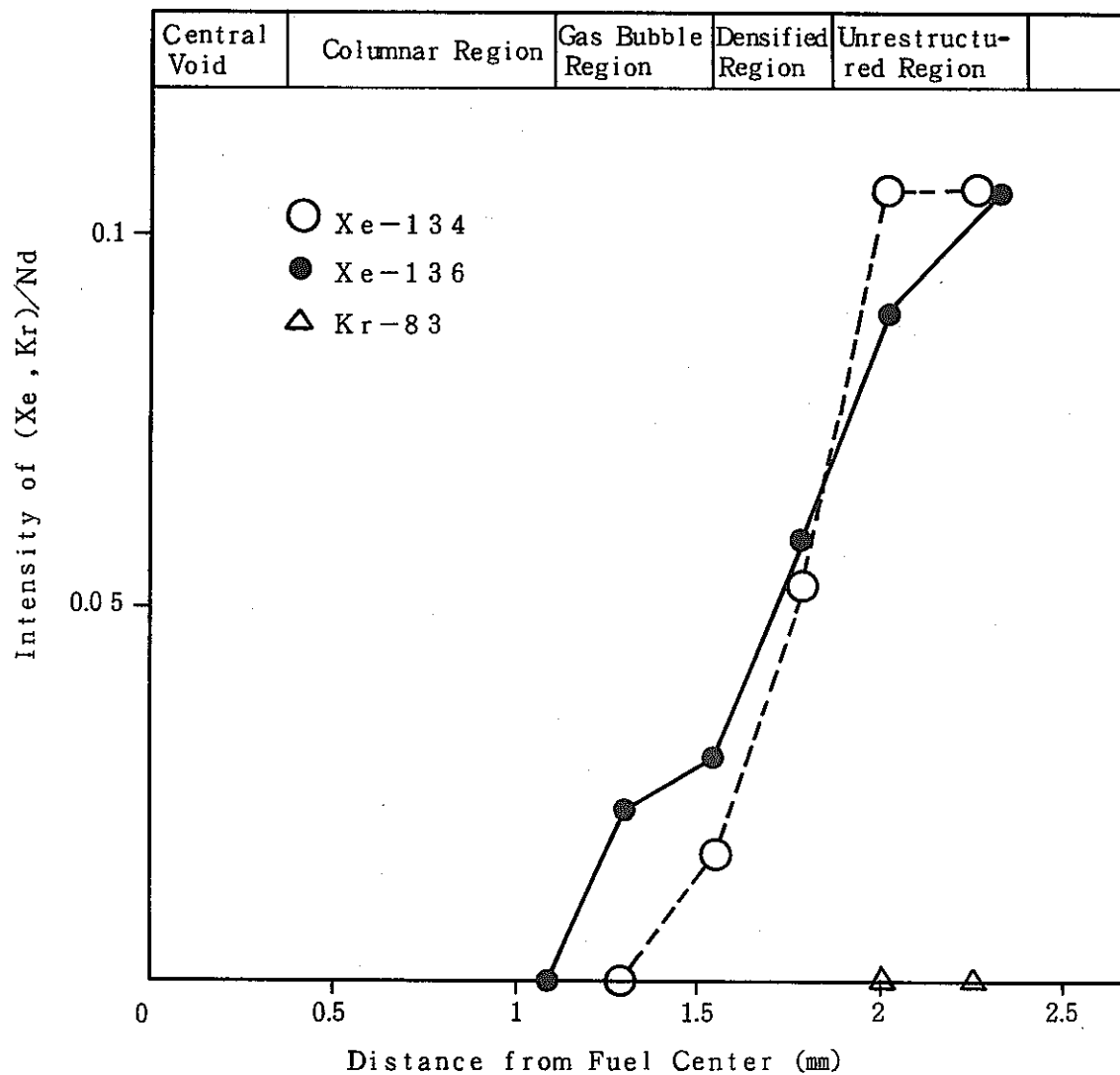


Fig.19 Radial Distribution of Xe and Kr Isotopes (Specimen No A06042)

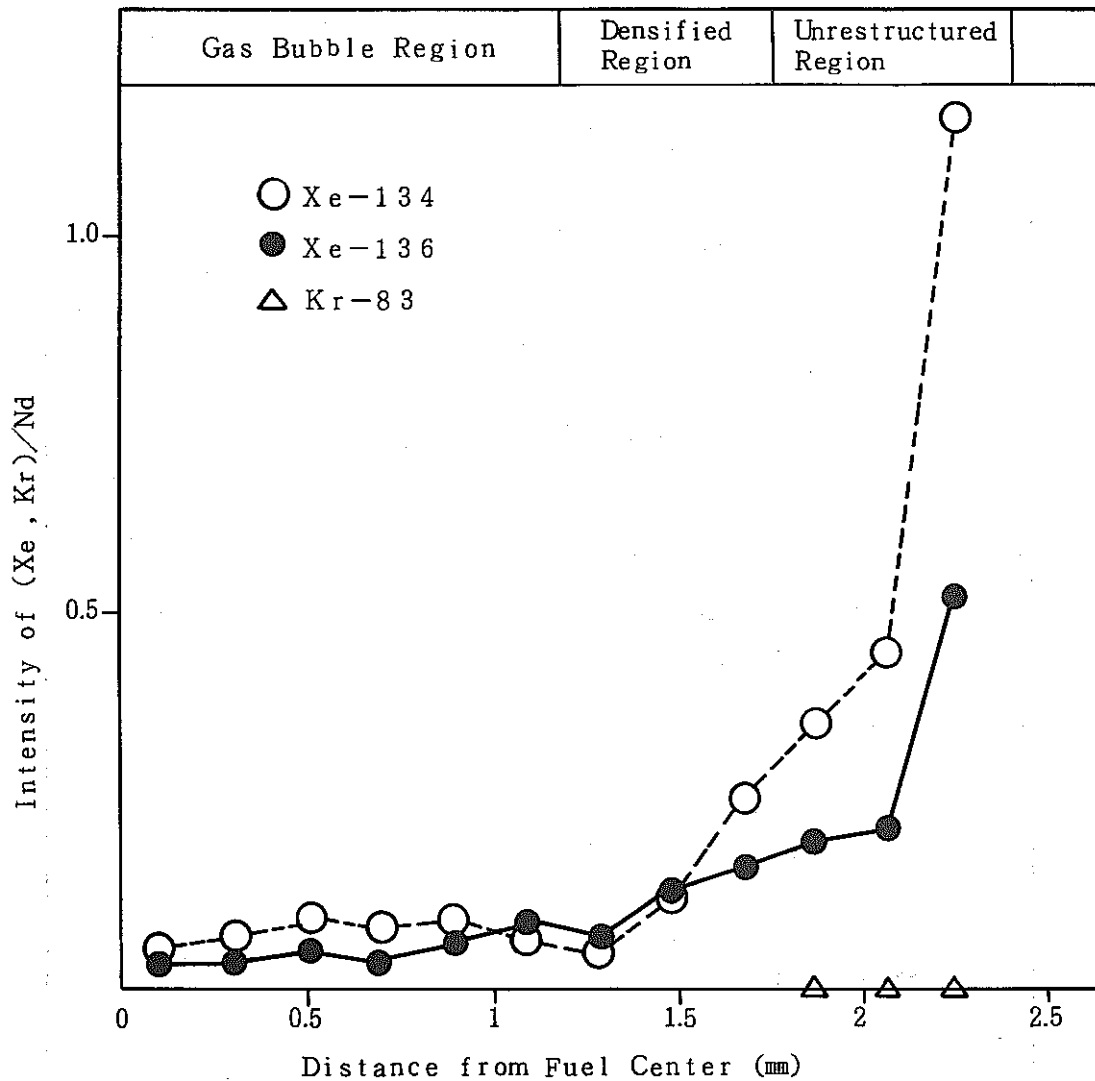


Fig. 20 Radial Distribution of Xe and Kr Isotopes
(Specimen No. A06062)

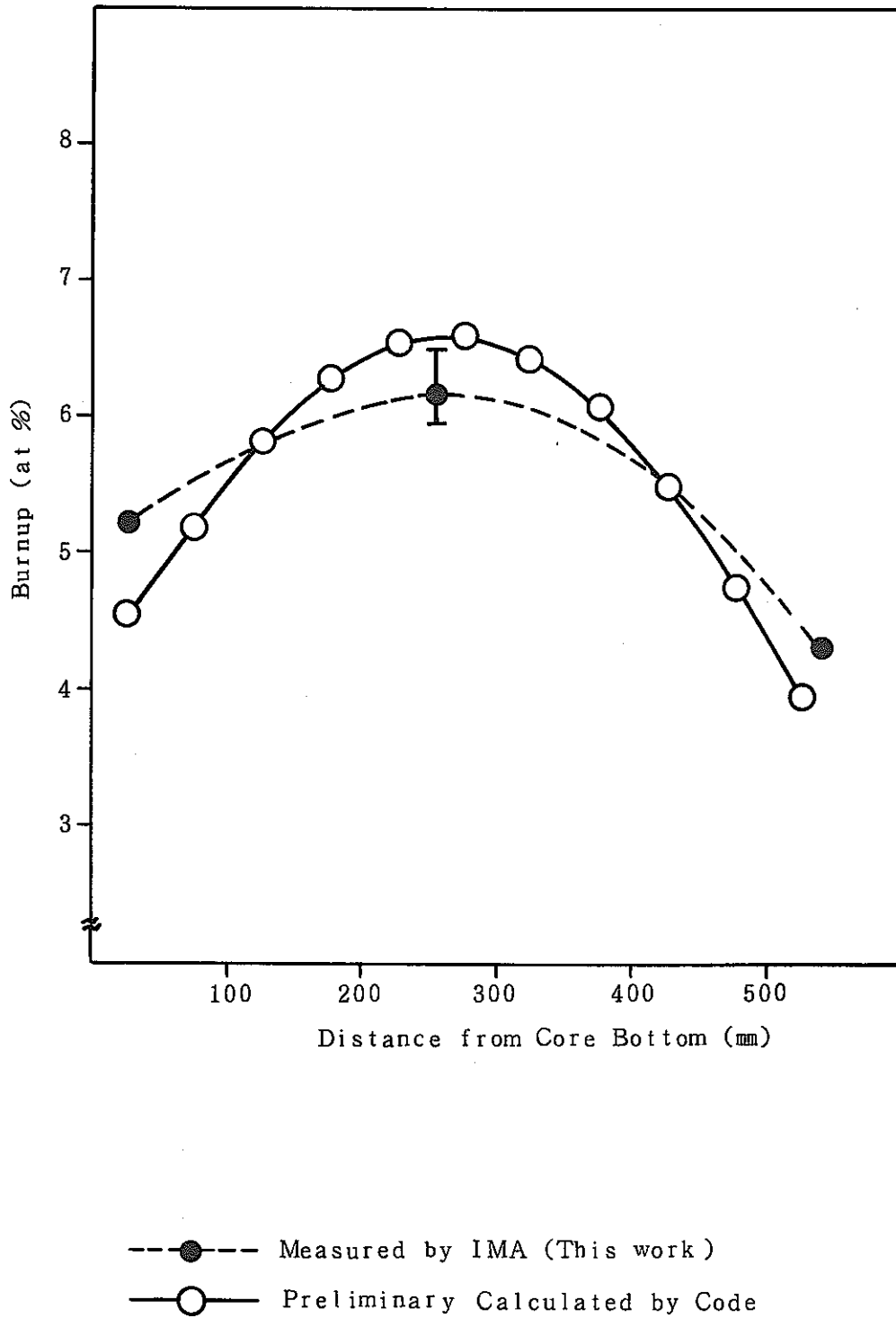


Fig.21 Axial Distribution of Measured Burnup (Pin No. A060)

No. A06042

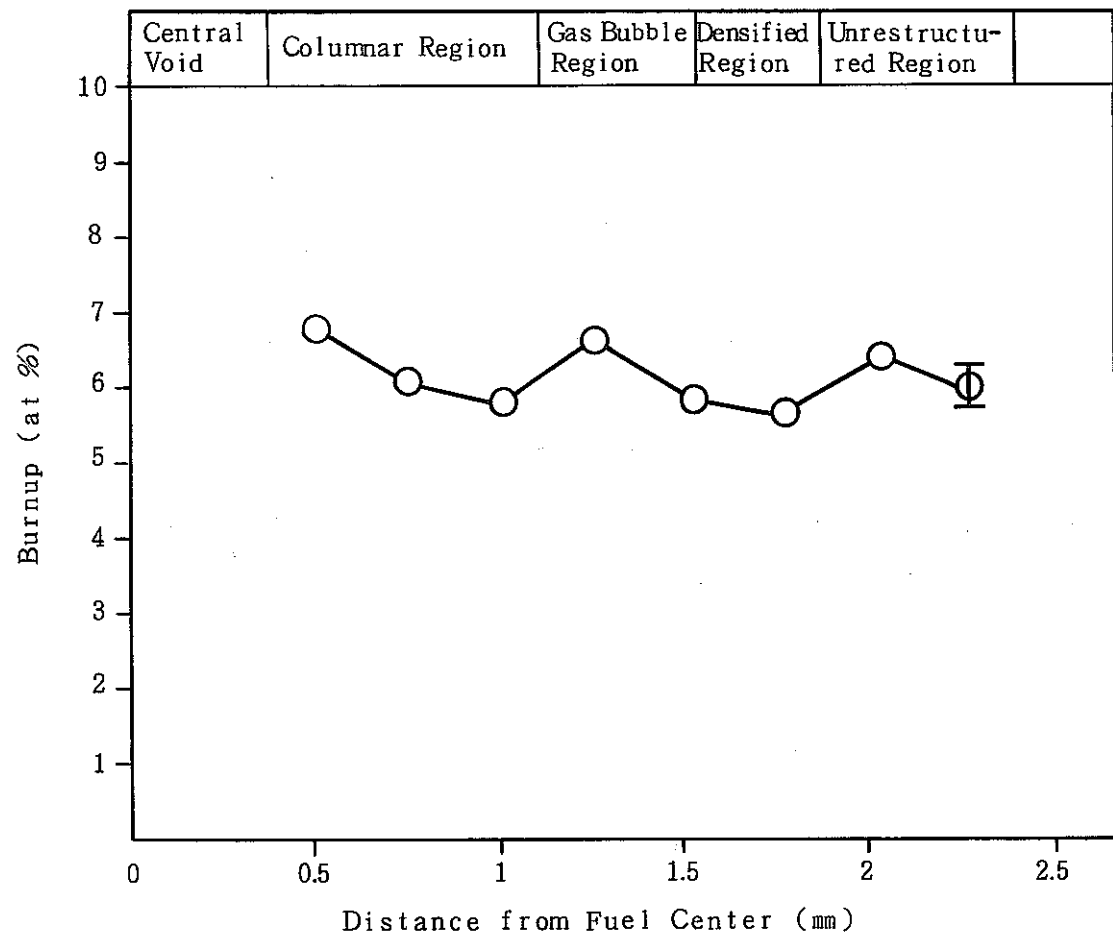


Fig. 22 Radial Distribution of Measured Burnup (Specimen No. A06042)

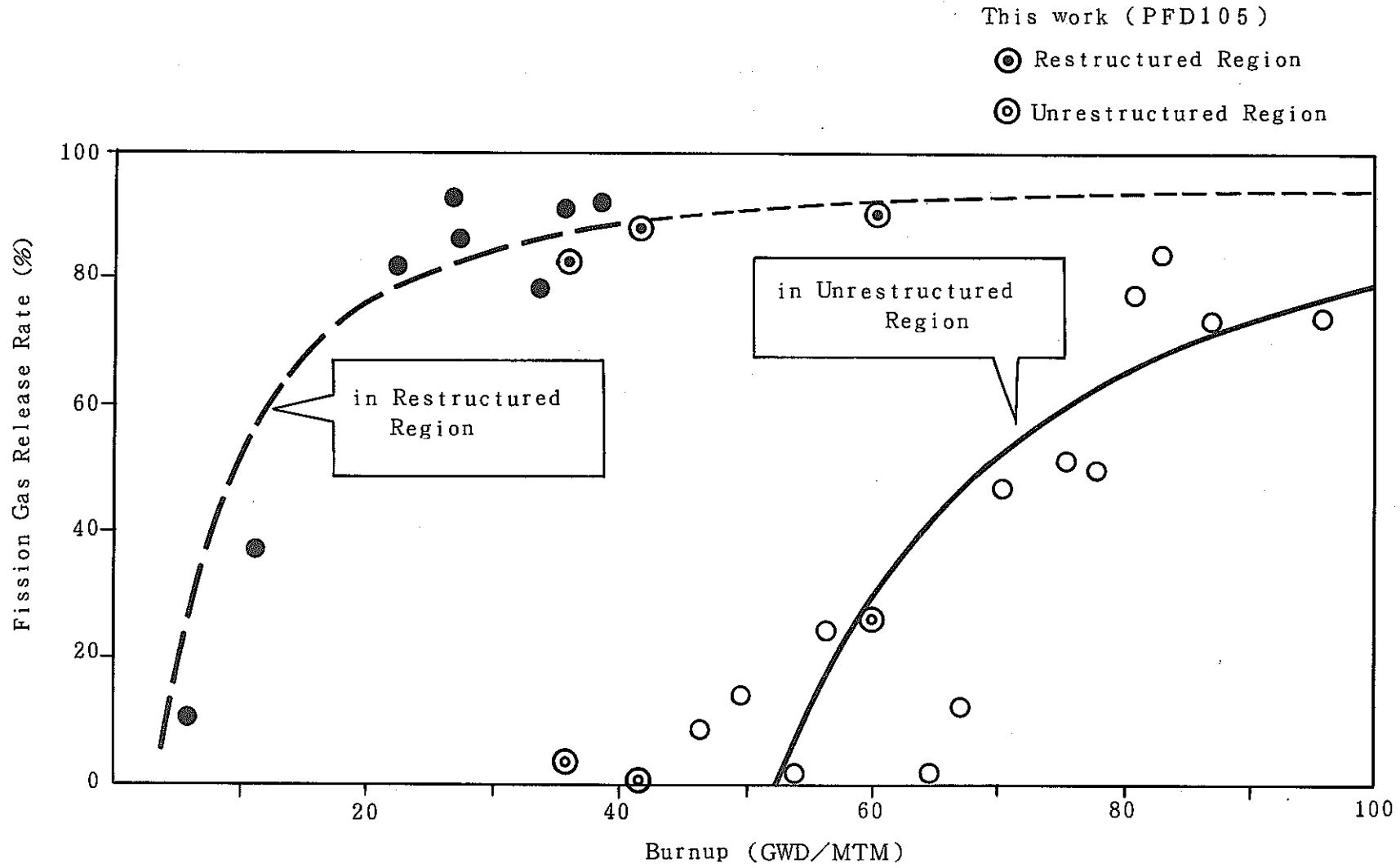


Fig.23 Fission Gas Release Rate of Unrestructured Region and Restructured Region

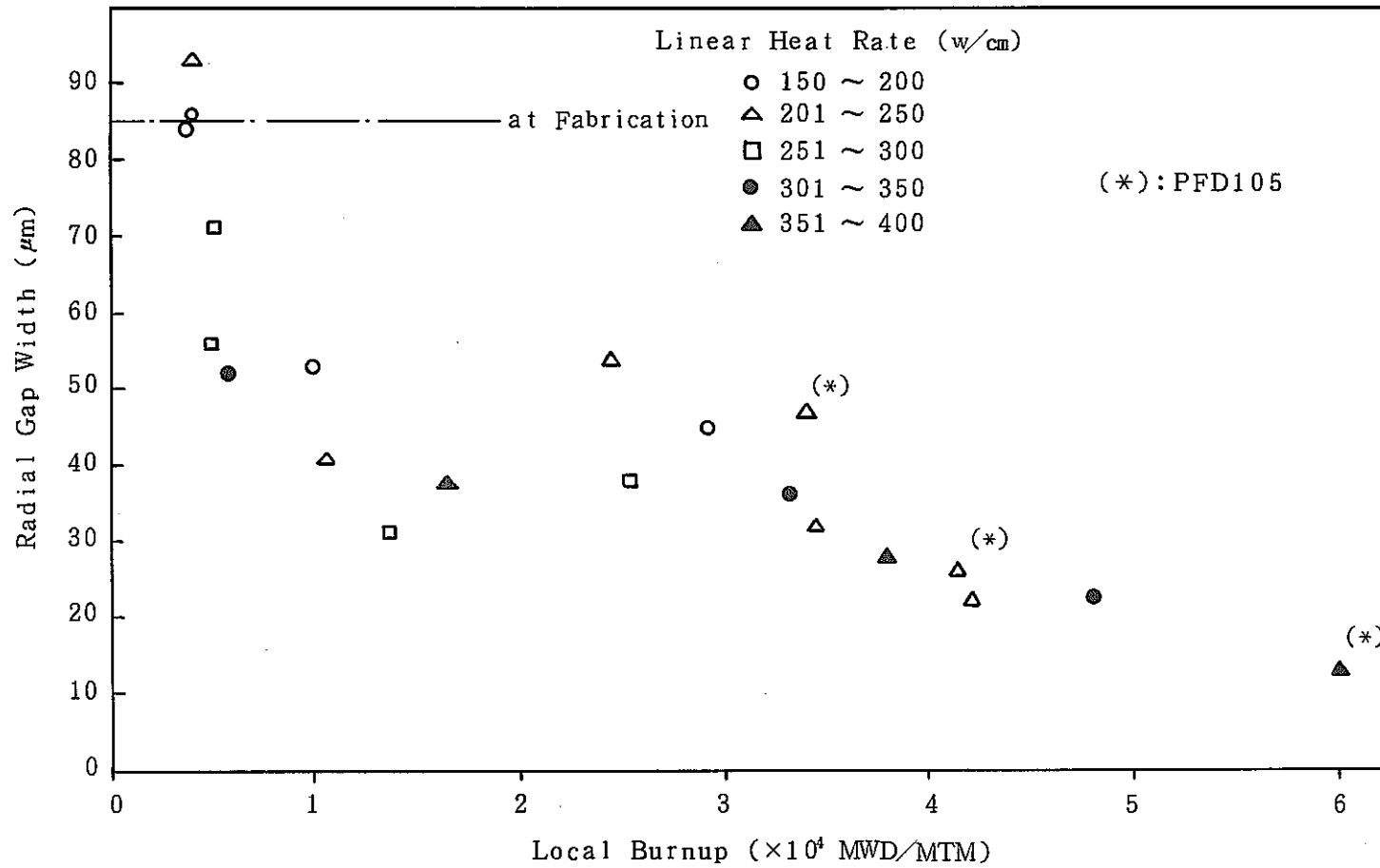


Fig.24 Residual Radial Gap Width of "JOYO" MK-II Fuel as a Function of Burnup

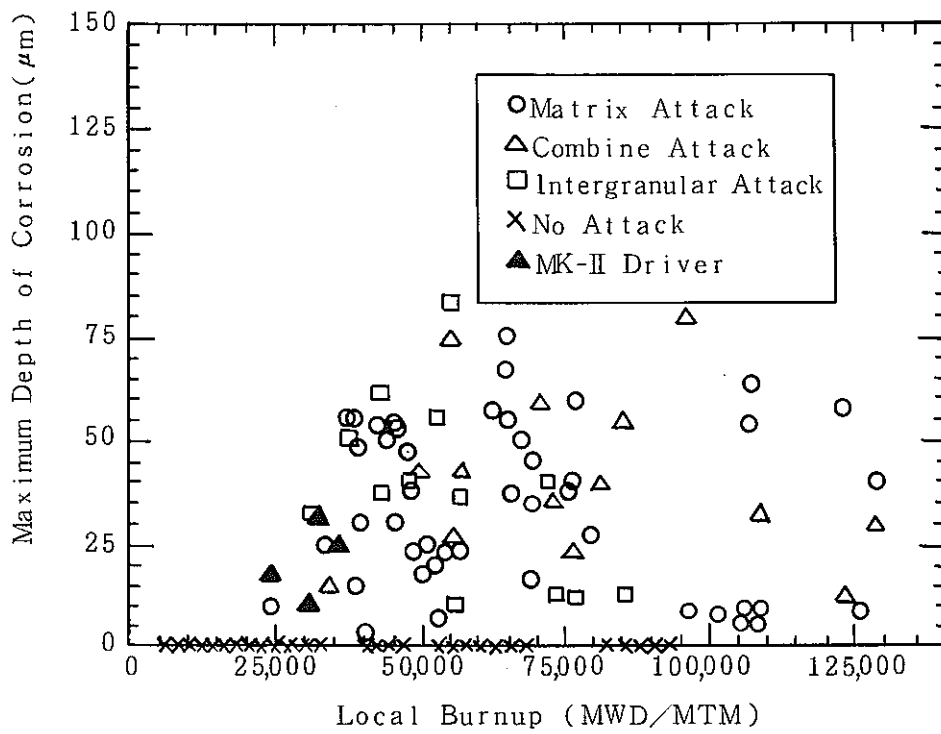
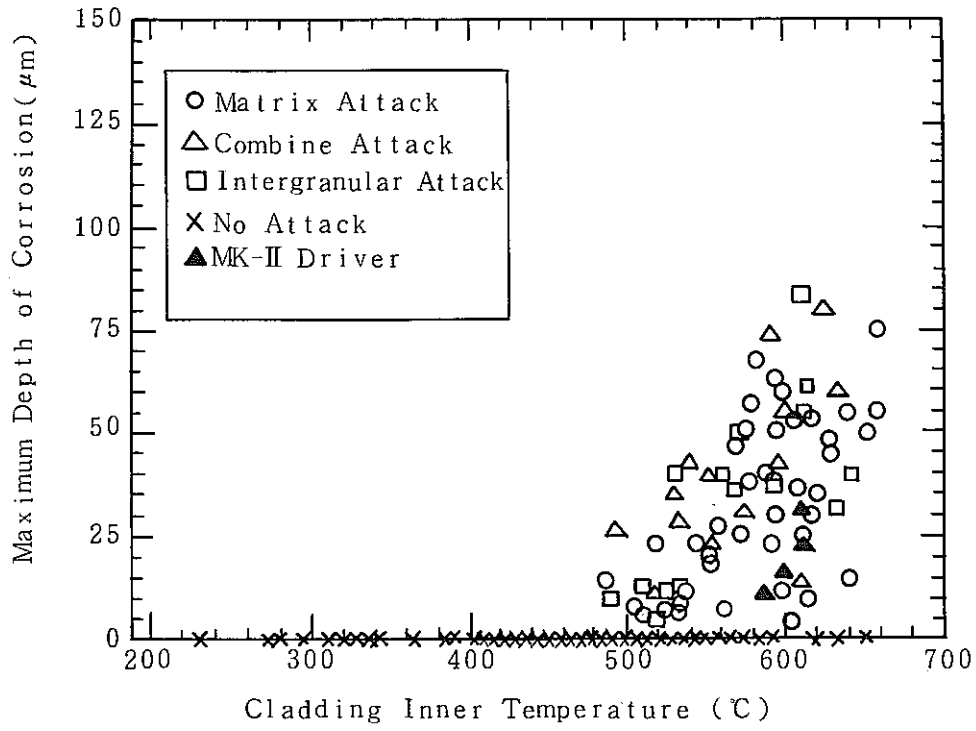
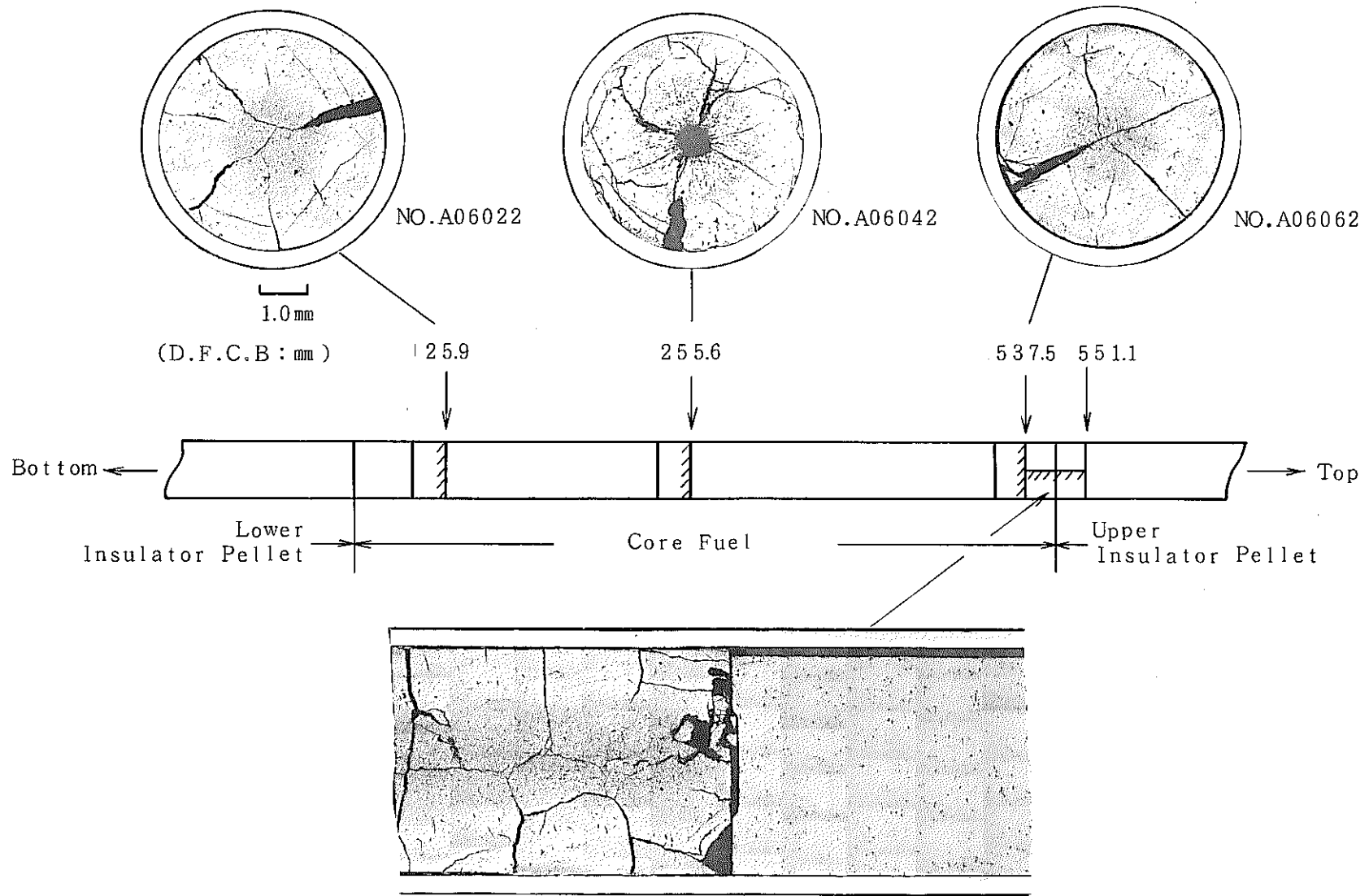


Fig.25 Summary of Depth of Cladding Inner Corrosion

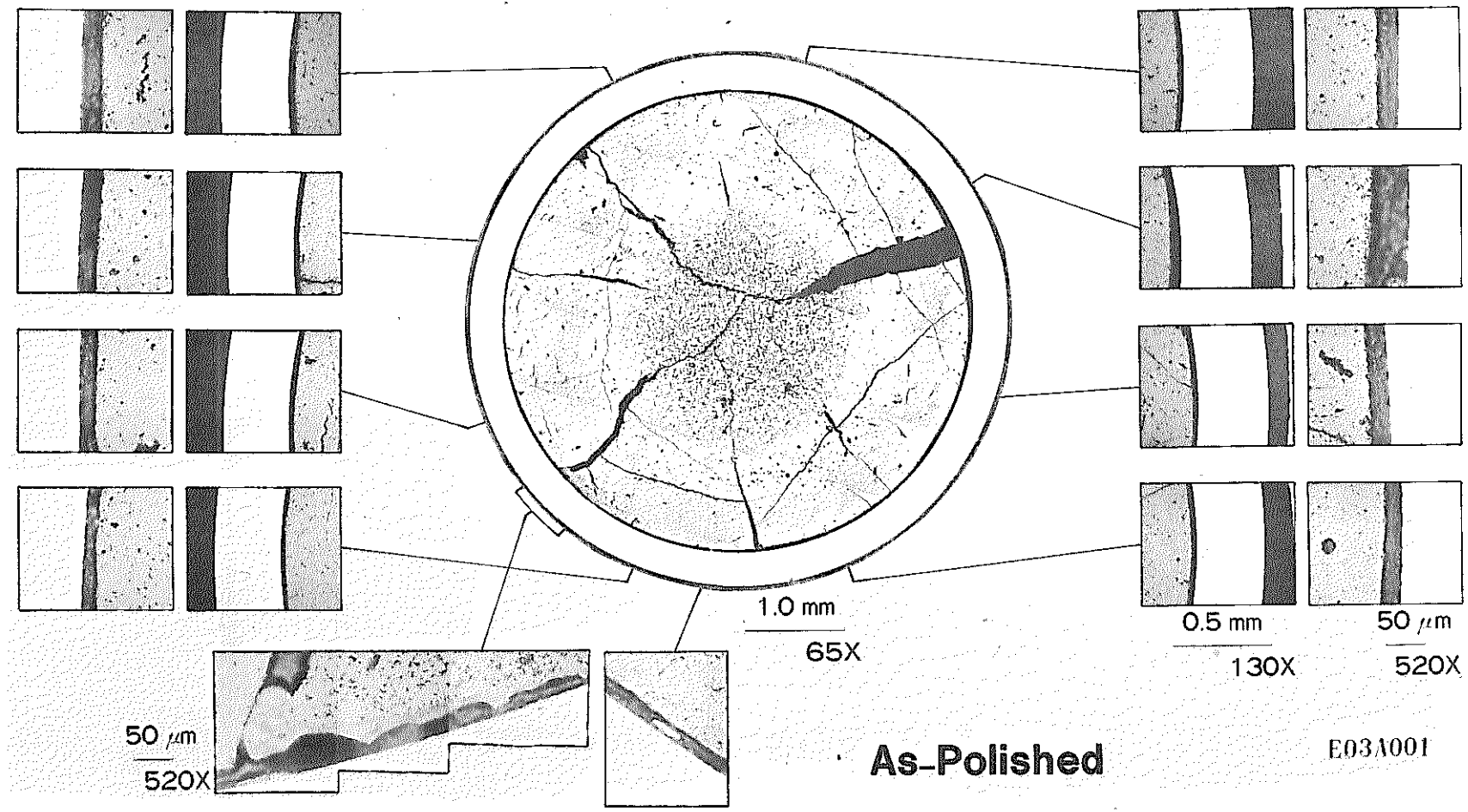


NO. A06063

Photo.1 Optical Macrographs of the Metallographic Specimen Cutted from the Core Fuel Pin (Pin No. A060)

"JOYO" MK-II PFD105

Specimen NO. A06022

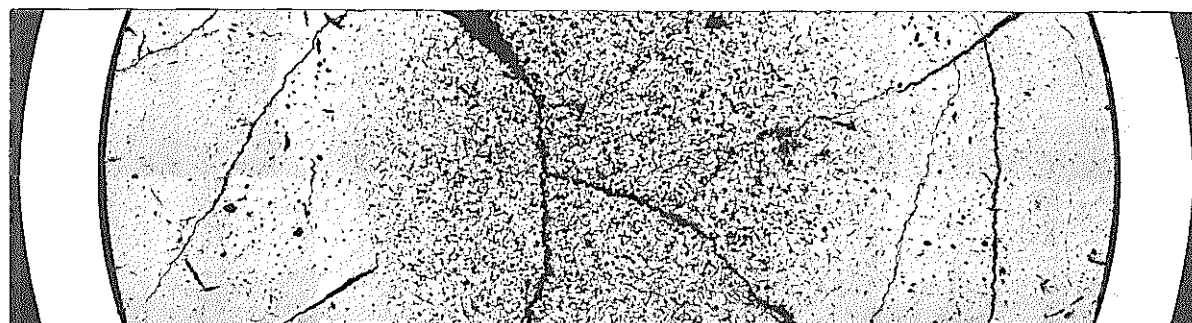


- 47 -

Photo.2 Optical Micrograph of the Transverse Section of the Core Fuel Pin
(Specimen No. A06022) As-Polished

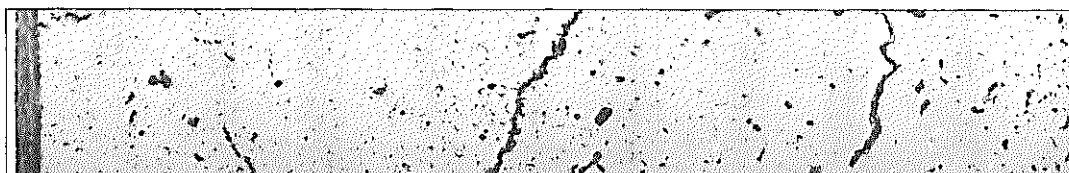
"JOYO" MK-II PFD105

Specimen NO. A06022



0.5 mm

130X



50 μ m

520X

As-Polished

E03A002

Photo.3 Optical Microstructure of the Core Fuel
(Specimen No. A06022) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105
Specimen NO. A06042

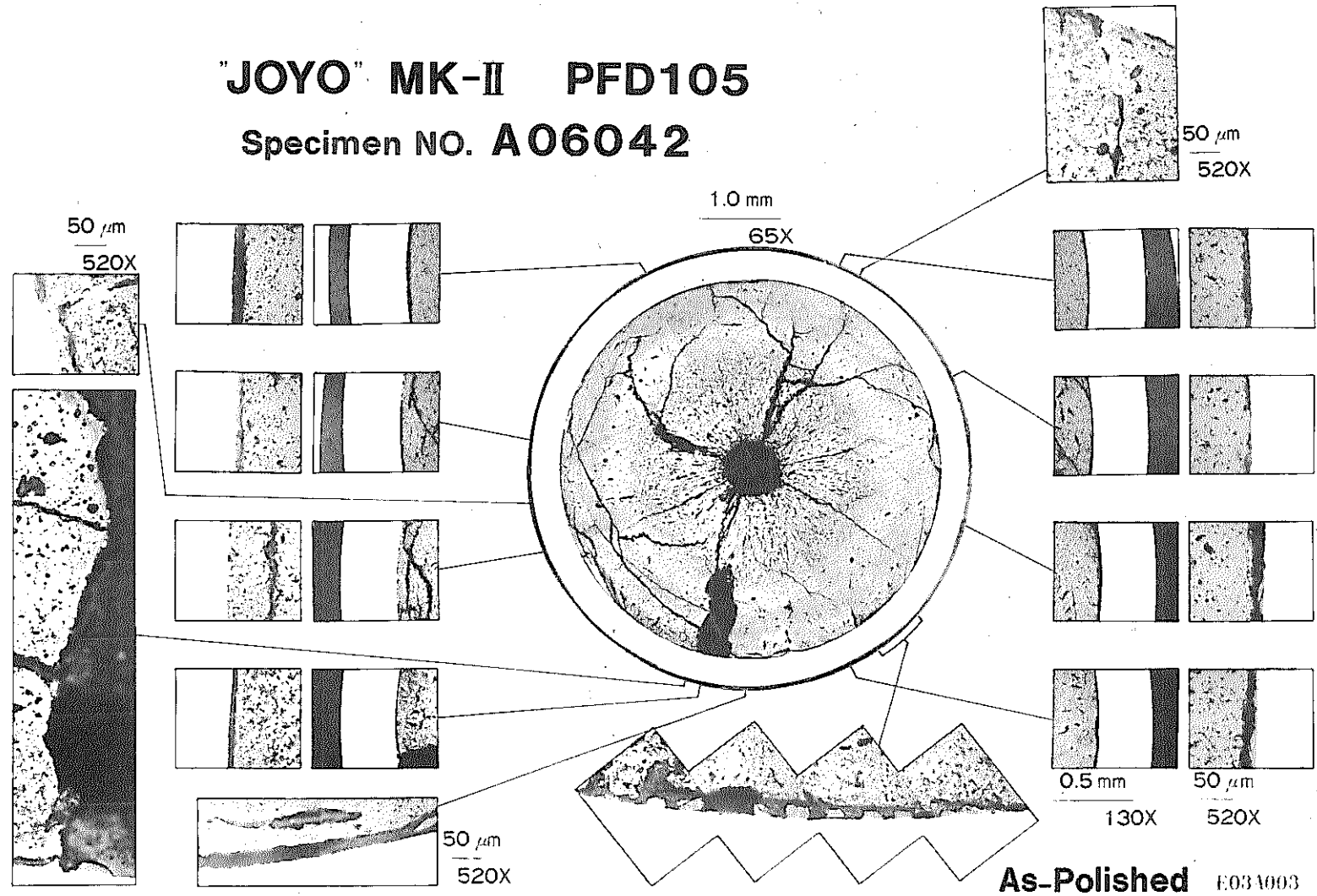
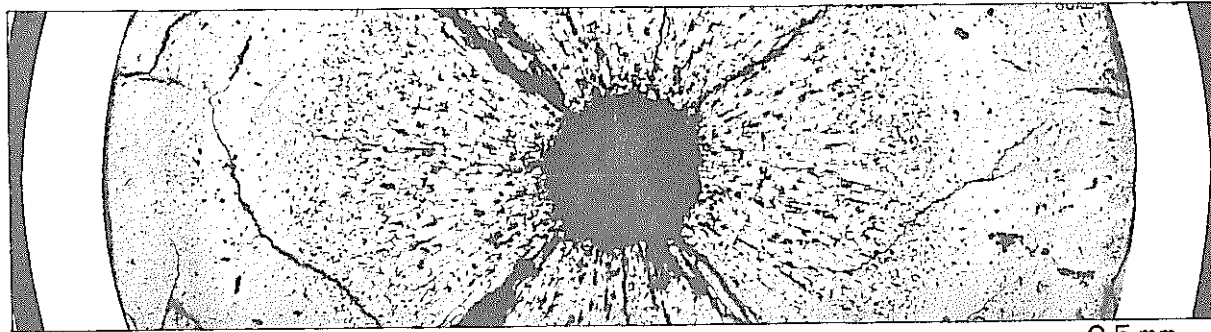


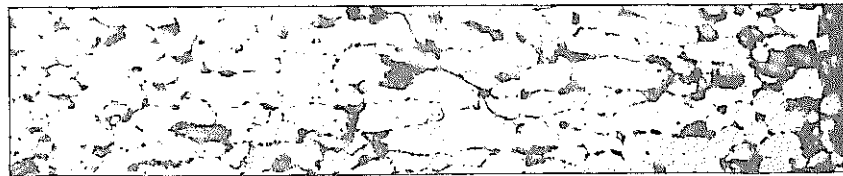
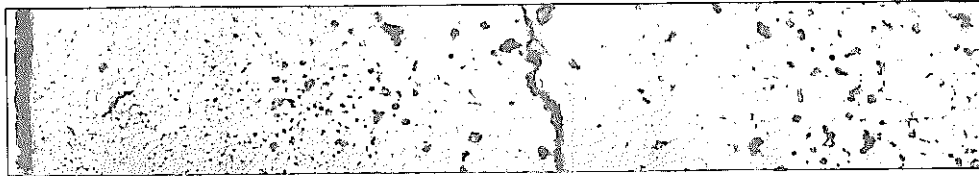
Photo.4 Optical Micrograph of the Transverse Section of the Core Fuel Pin
(Specimen No. A06042) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105
Specimen NO. A06042



0.5 mm

130X



50 μ m

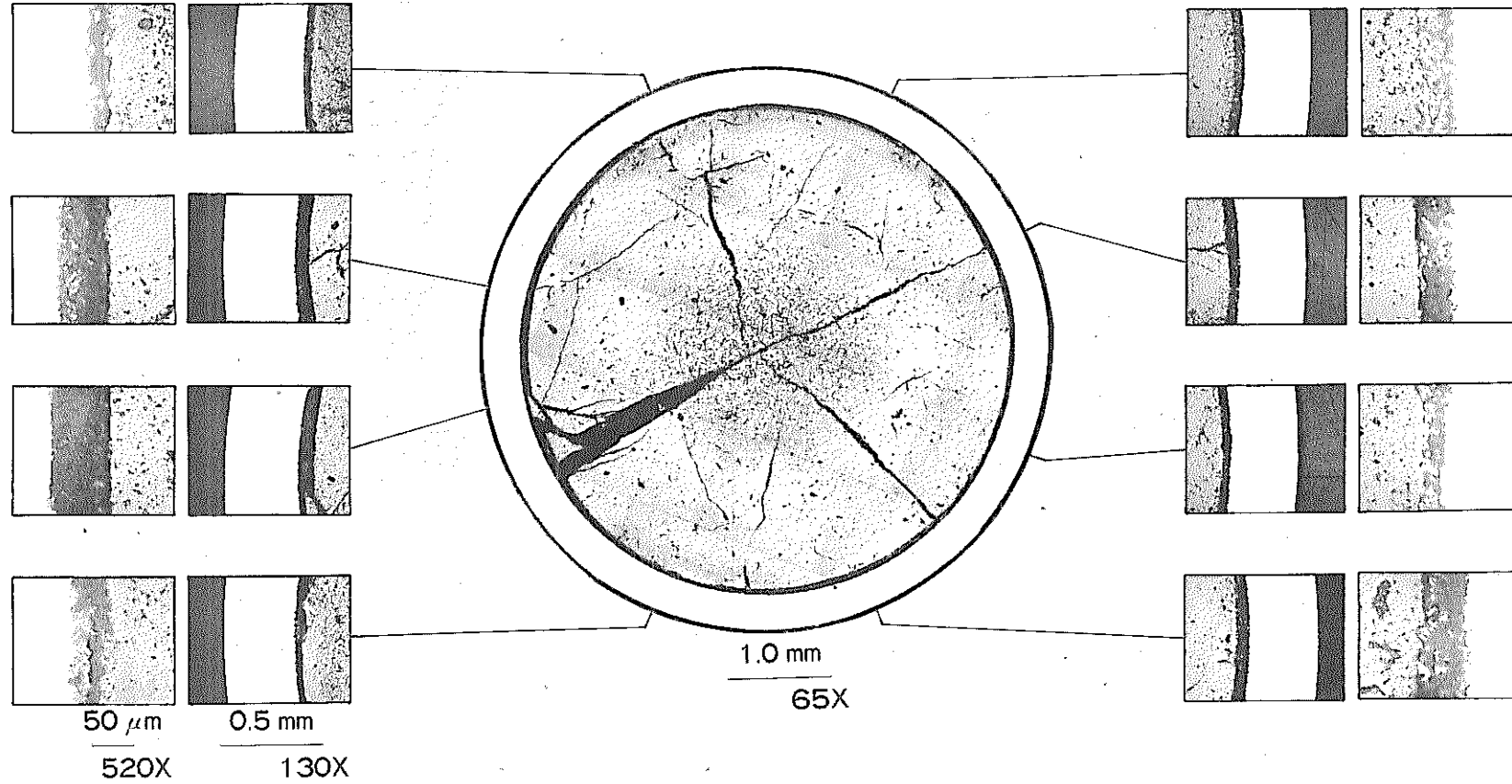
520X

As-Polished

E03A001

Photo.5 Optical Microstructure of the Core Fuel
(Specimen No. A06042) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105 Specimen NO. A06062



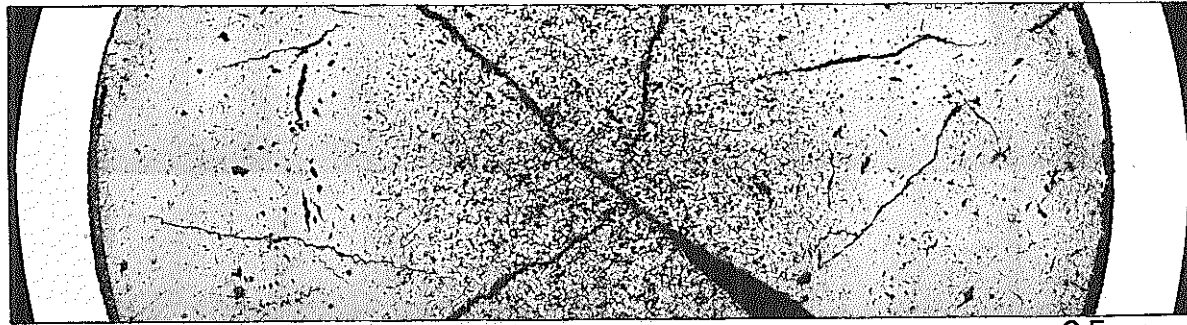
As-Polished

E03A005

Photo.6 Optical Micrograph of the Transverse Section of the Core Fuel Pin
(Specimen No. A06062) As-Polished

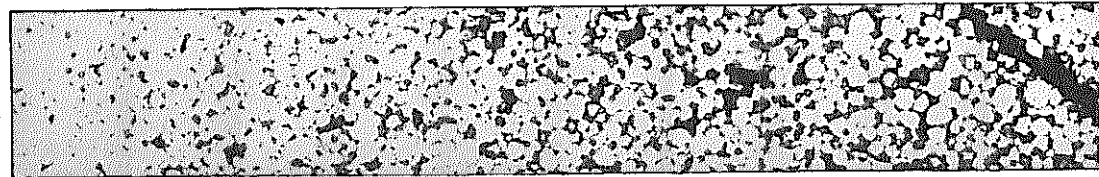
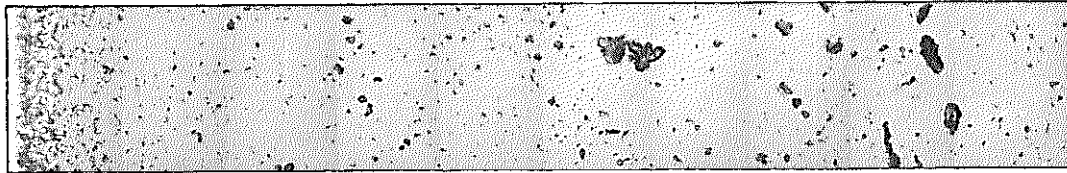
"JOYO" MK-II PFD105

Specimen NO. A06062



0.5 mm

130X



50 μ m

520X

As-Polished

E03A006

Photo.7 Optical Microstructure of the Core Fuel
(Specimen No. A06062) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105

Specimen NO. A06062

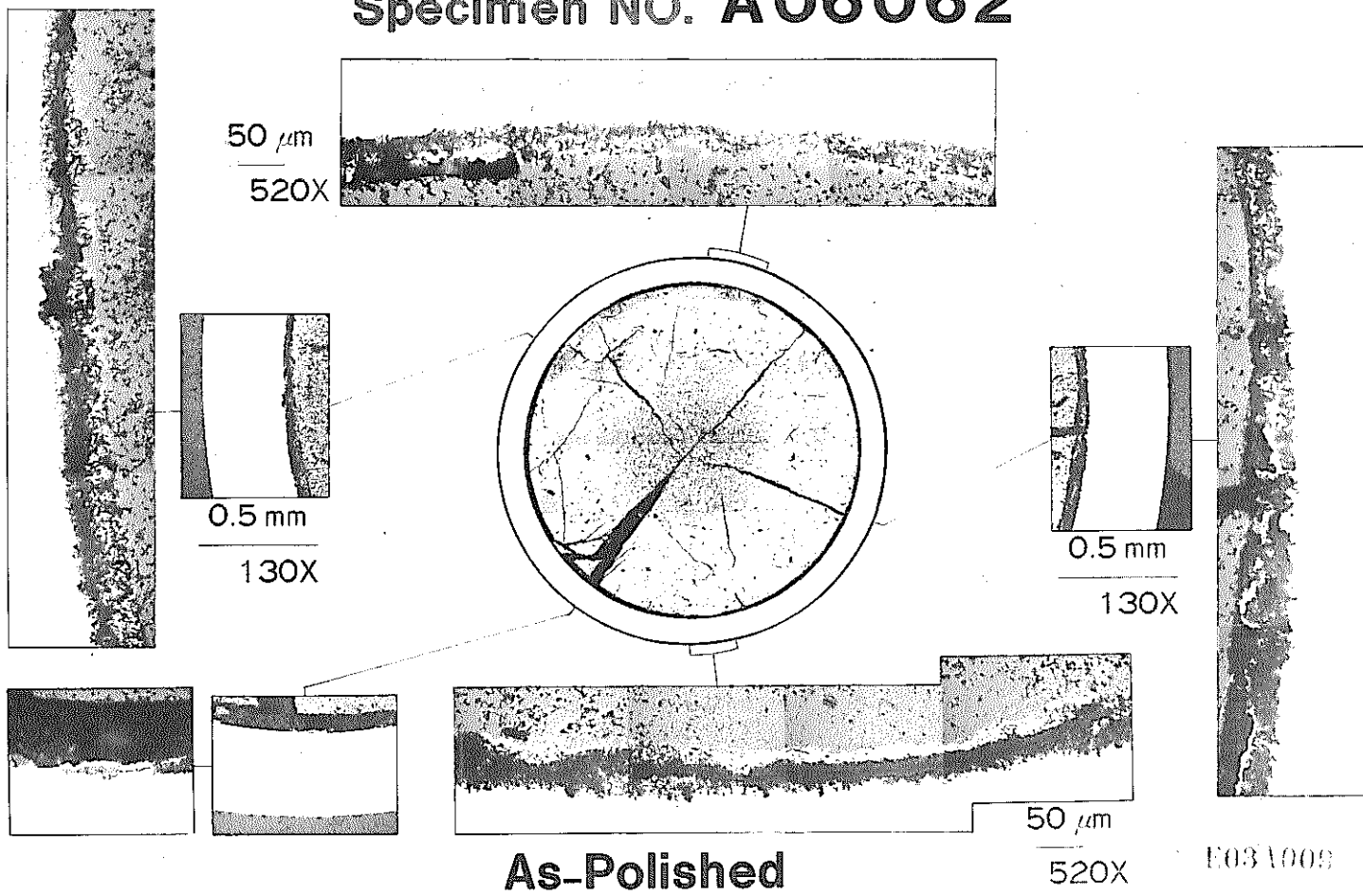


Photo.8 Optical Microstructure of the Core Fuel
(Specimen No. A06062) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105

Specimen No. A06063

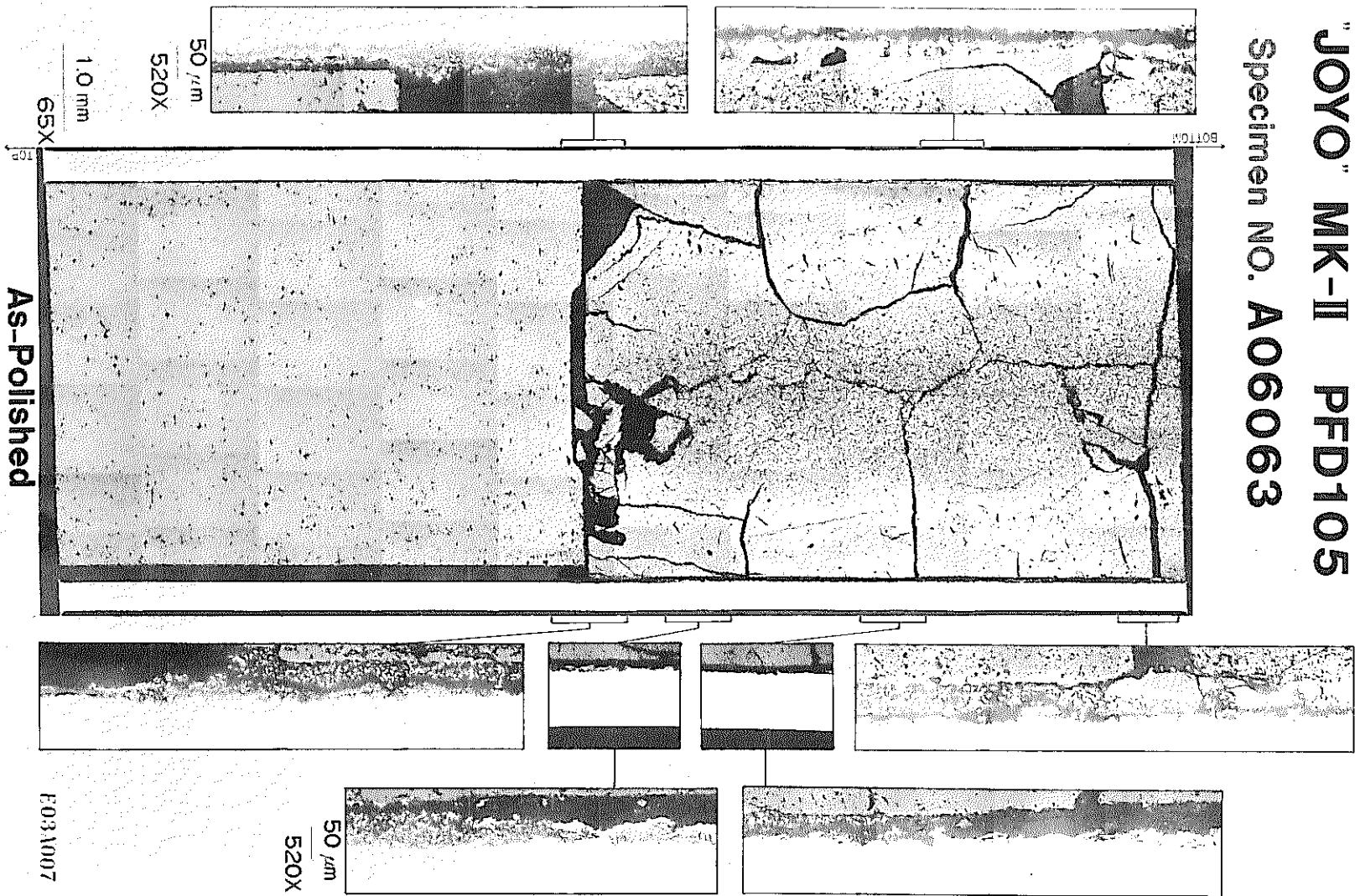
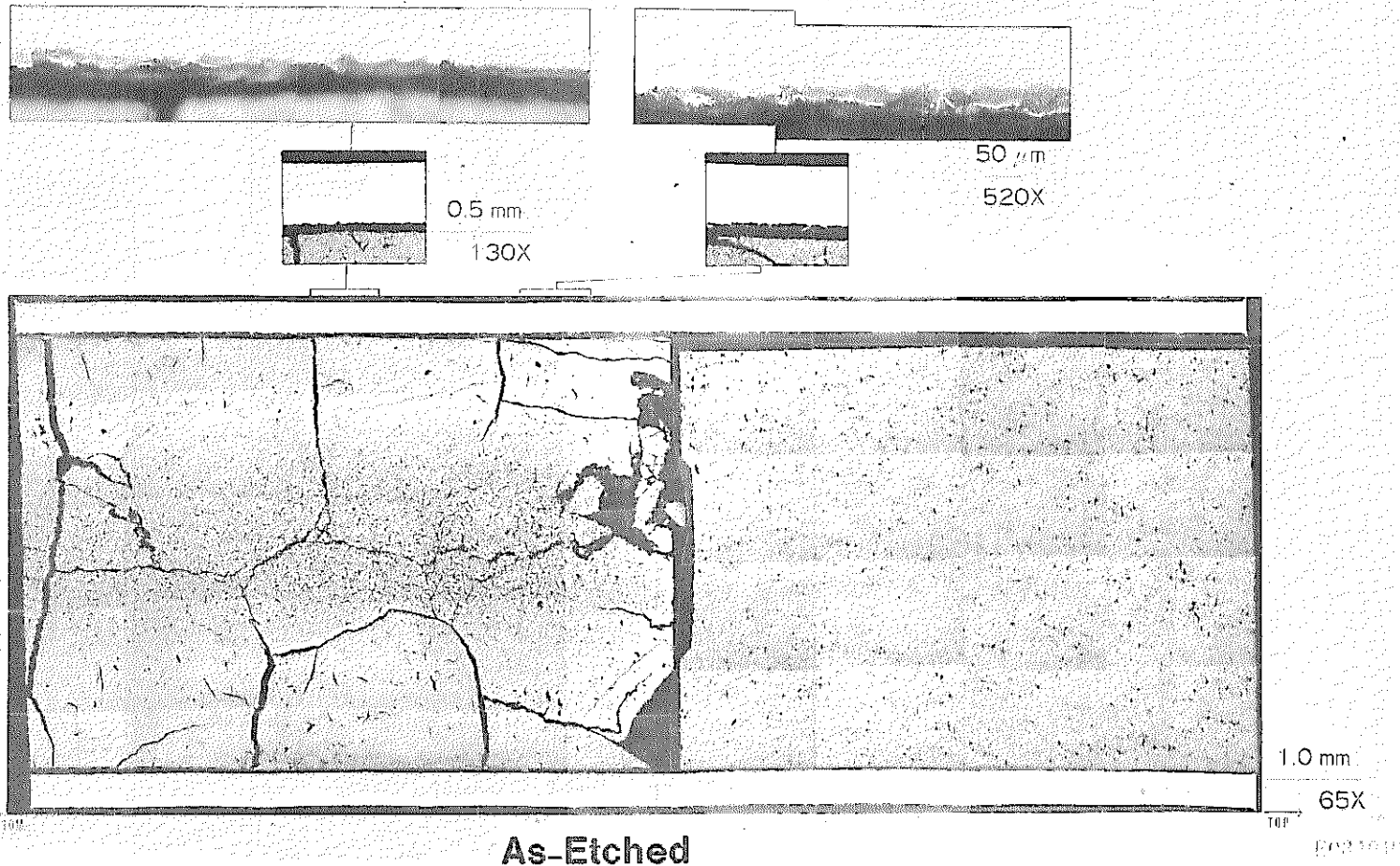


Photo.9 Optical Micrograph of the Longitudinal Section of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No. A06063) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105

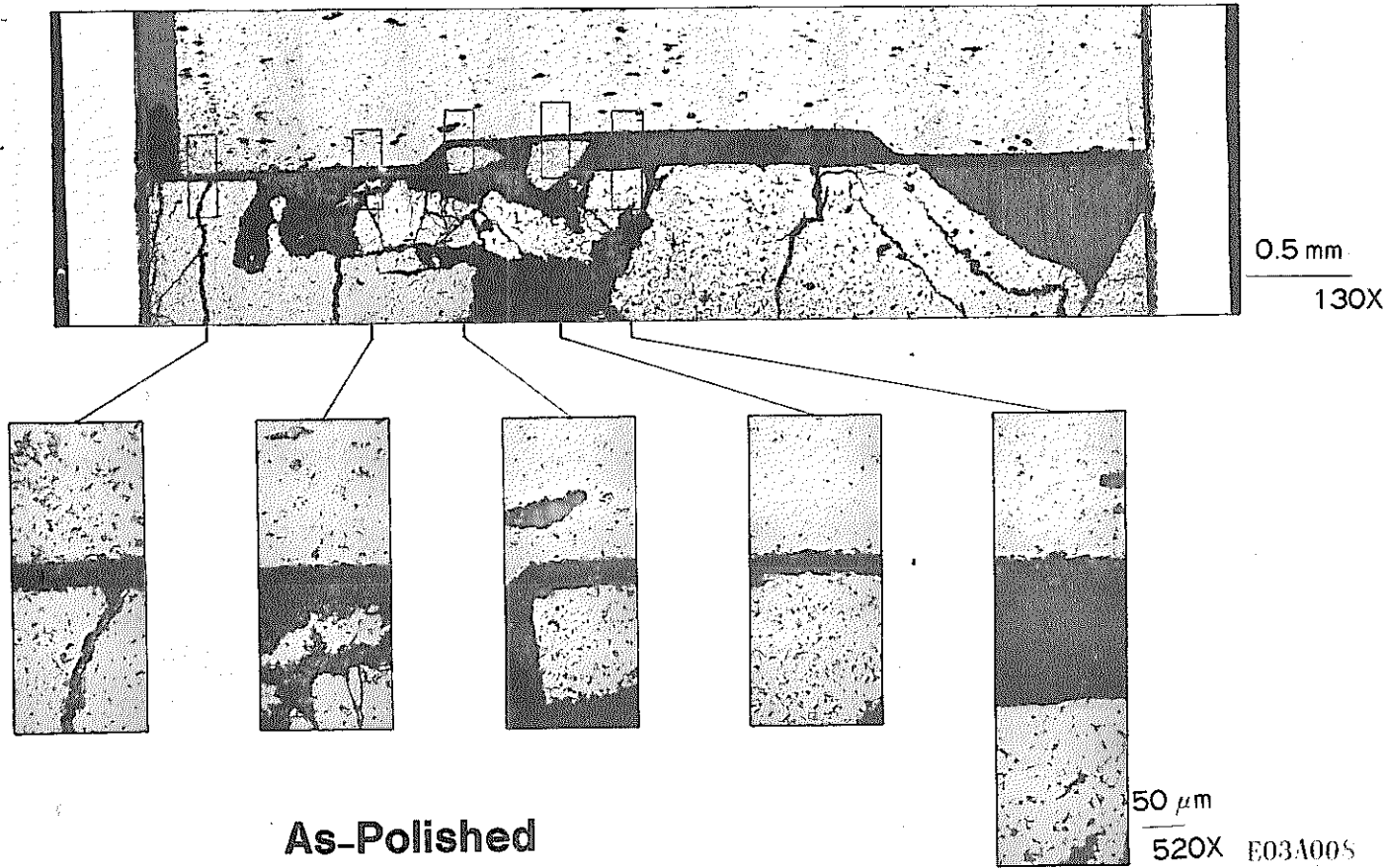
Specimen NO. A06063



- 55 -

Photo.10 Optical Micrograph of the Longitudinal Section of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No.A06063) As-Etched

"JOYO" MK-II PFD105
Specimen NO. A06063



- 56 -

Photo.11 Optical Microstructure of the Core Fuel and Insulator Pellet
(Specimen No. A06063) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105

Specimen NO. A06063

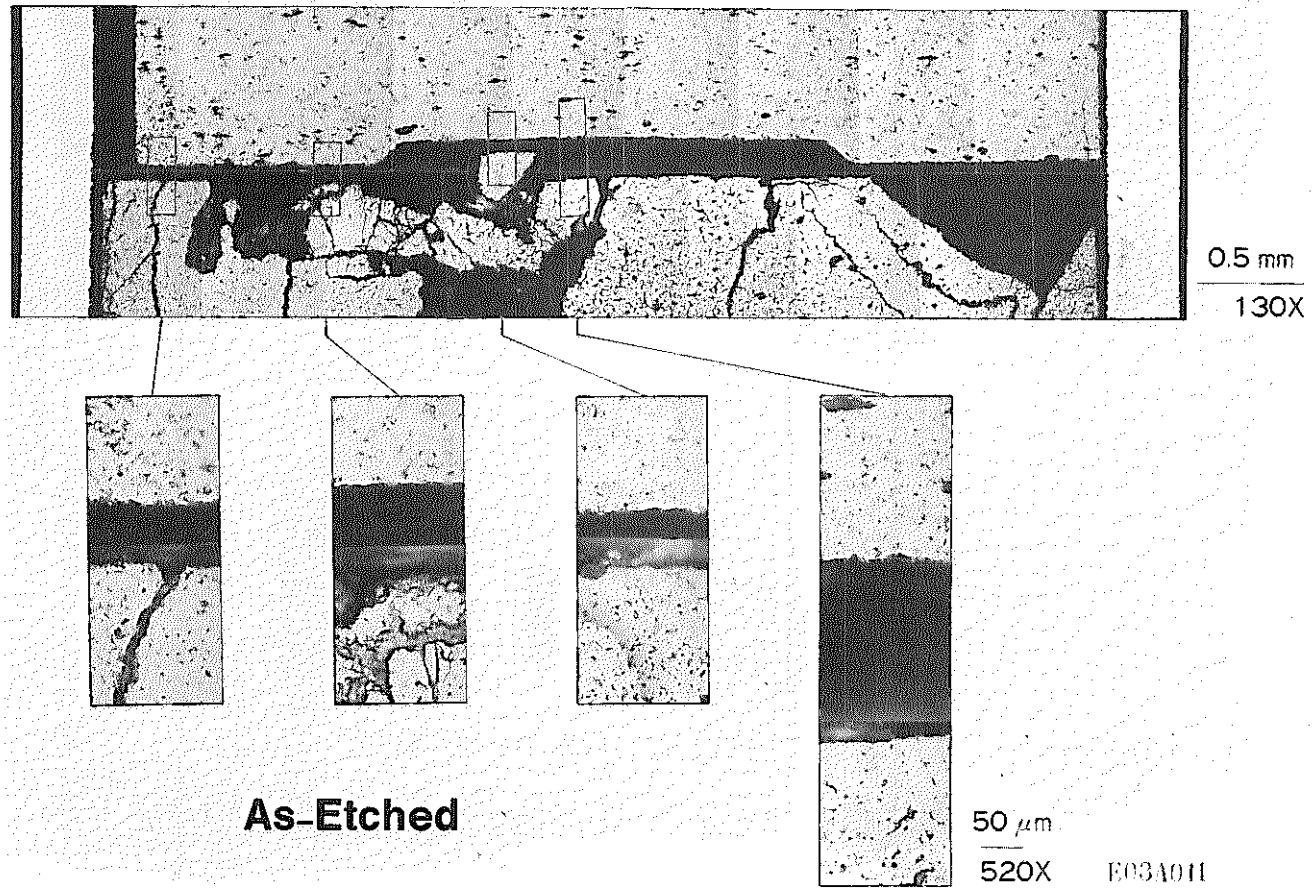


Photo.12 Optical Microstructure of the Core Fuel and Insulator Pellet (Specimen No.A06063) As-Etched

"JOYO" MK-II PFD105

Specimen NO. A06042

(SEM)

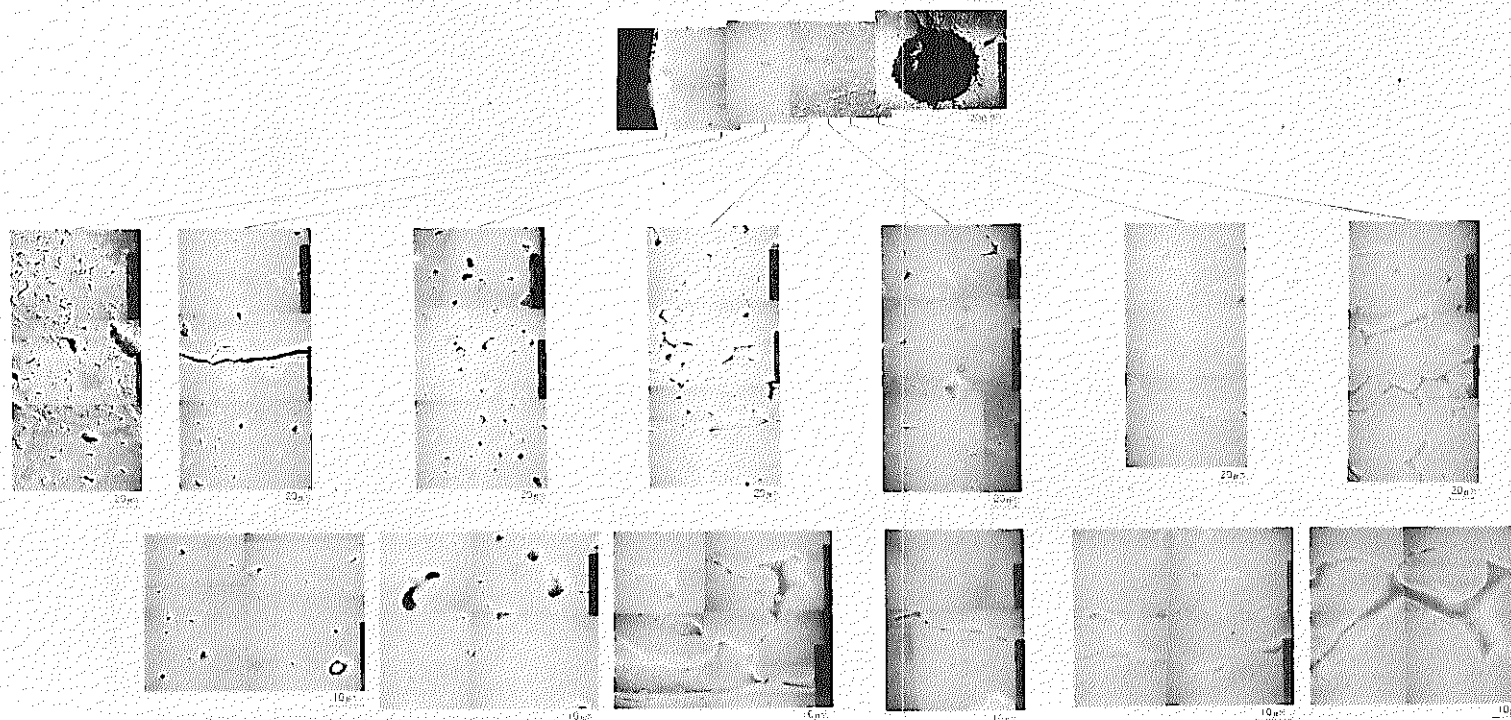


Photo.13 Secondary Electron Microstructure of the Core Fuel
(Specimen No. A06042) As-Polished

"JOYO" MK-II PFD105
Specimen NO. A06062 (SEM)

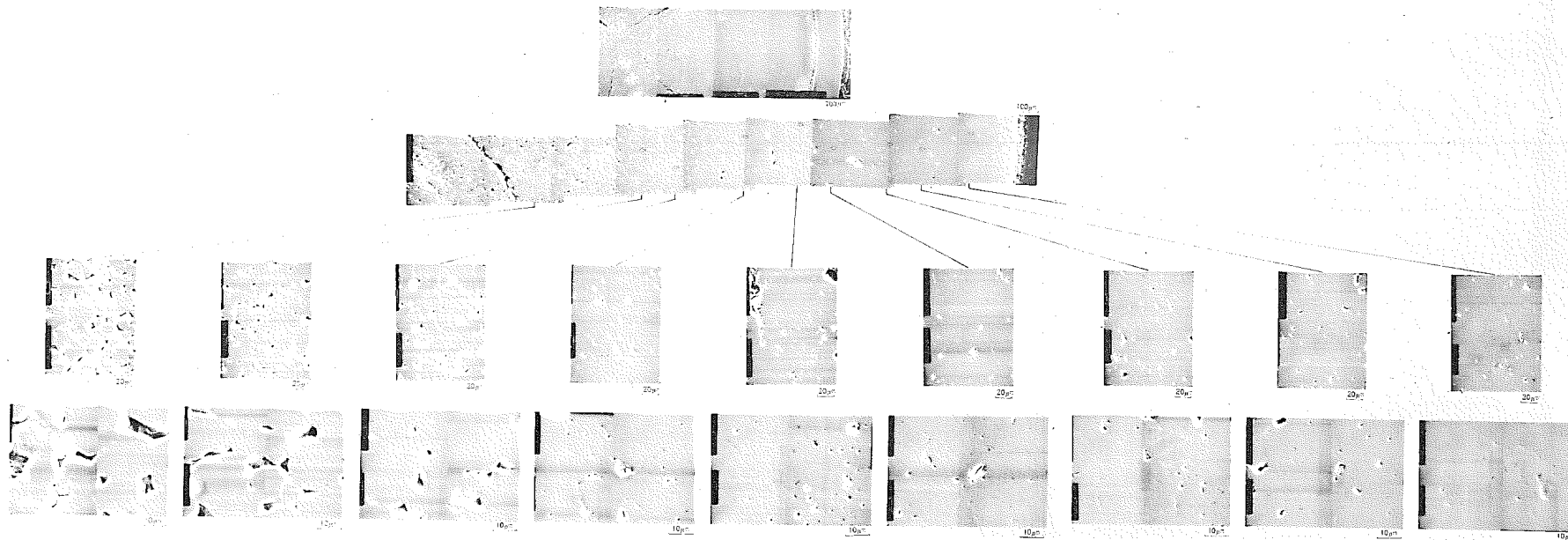


Photo.14 Secondary Electron Microstructure of the Core Fuel
(Specimen No. A06062) As-Polished

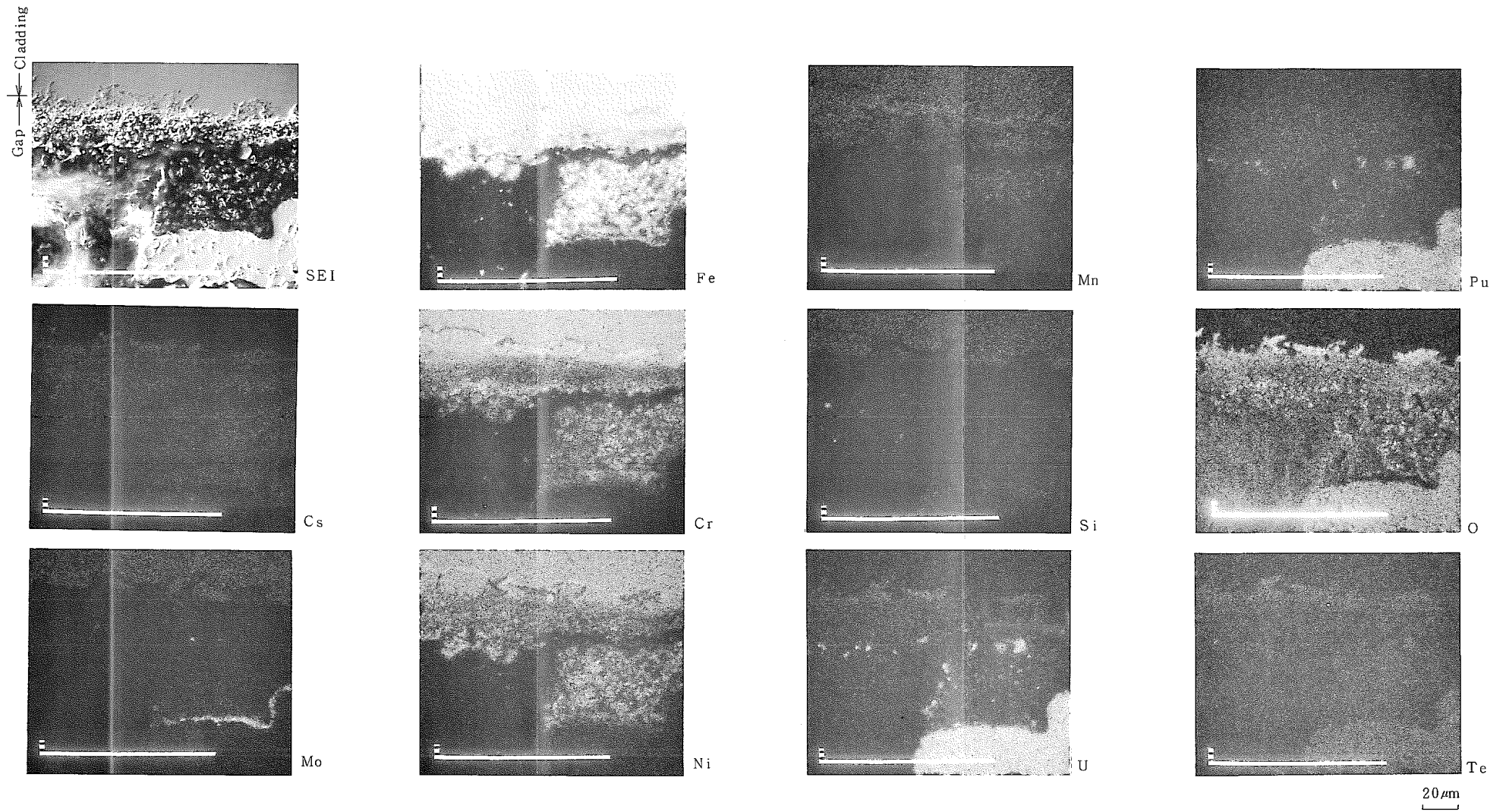


Photo.15 Various X-ray Images of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No. A06063)

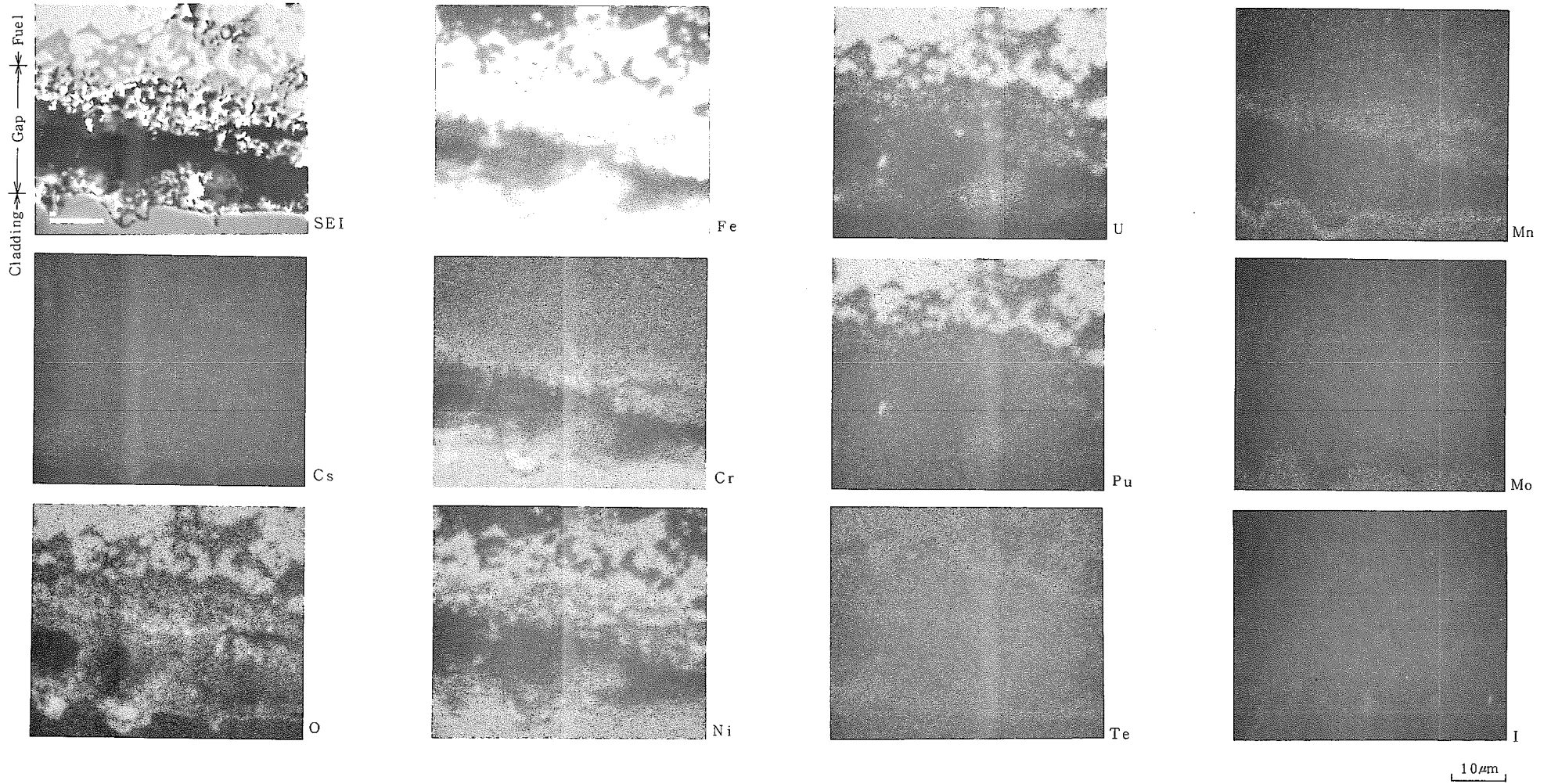


Photo. 16 Various X-ray Images of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No. A06063)

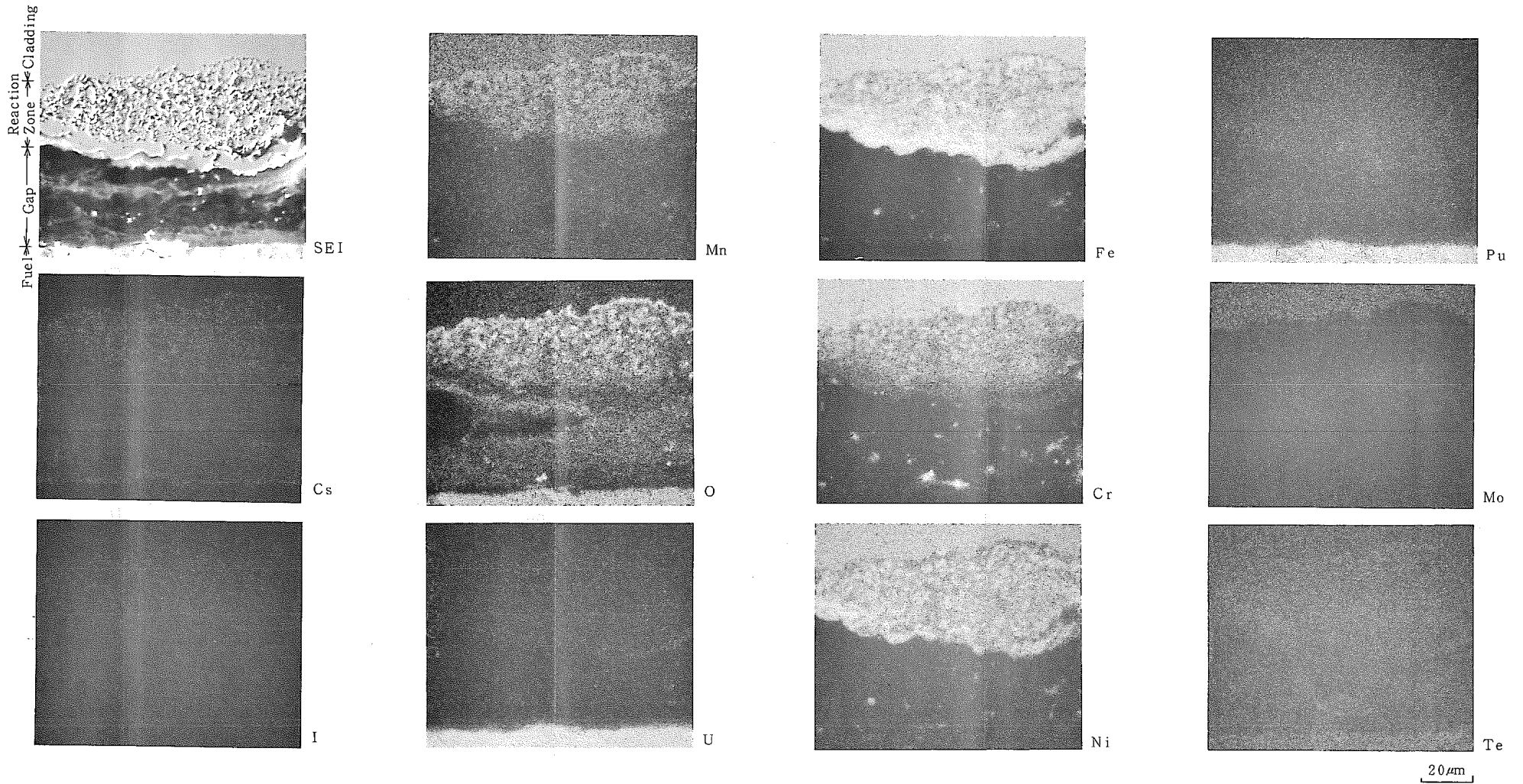


Photo.17 Various X-ray Images of the Gap Part between the Core Fuel and Cladding (Specimen No. A06063)