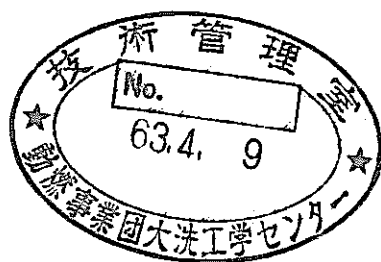


制御棒材料照射リグ (AMIR-1) の照射後試験



1988年1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)

制御棒材料照射リグ (AMIR-1) の照射後試験

実施責任者	柚原俊一*		*
報告者	黒田幸雄*	平井功*	
	伊藤正彦*	新谷聖法**	

要 旨

「もんじゅ」1サイクル照射程度の燃焼度を目途として、「常陽」MK-II 炉心において、 B_4C ペレット最高燃焼度 4.7×10^{21} captures / cm^3 (最高積算照射量 1.34×10^{22} n / cm^2 , $E > 0.1 MeV$) まで照射された制御棒材料照射リグ AMIR-1 (PRA 010) について照射後試験を行った。この結果、下記のこと明らかとなった。

- (1) 集合体及びコンパートメントに外径変化、腐食等の異常は認められなかった。
- (2) He ガス放出率は、全てのキャプセルにおいて 10% 以下であった。また、放出ガスは He が 100% であり 3H の存在は認められなかった。
- (3) B_4C ペレットには、照射温度が高くなるほど細かく割れる傾向がある。
- (4) B_4C の室温における熱伝導率は、 4×10^{21} captures / cm^3 の照射によって、未照射 B_4C の約 15% の値、 $0.009 cal/cm \cdot sec \cdot deg$ に減少した。
- (5) 製造条件の照射挙動に与える影響は、製造メーカーの違いでは認められなかったものの、結晶粒度が大きいほどスエリング量は大きい。

* 大洗工学センター 燃料材料開発部 照射材料試験室 (MMS)

** 大洗工学センター 燃料材料開発部 照射燃料集合体試験室 (FMS)

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	3
3.1 集合体及びコンパートメント試験	3
3.2 ピンパクチャー試験	3
3.3 外観検査	3
3.4 寸法測定	3
3.5 熱伝導率測定	4
3.6 組織観察	4
3.7 燃焼度測定	4
3.8 温度モニター試験	5
3.9 中性子照射量評価	5
4. 試験結果	7
4.1 集合体及びコンパートメント試験	7
4.2 ピンパクチャー試験	7
4.3 外観検査	7
4.4 寸法測定	7
4.5 熱伝導率測定	8
4.6 組織観察	8
4.7 燃焼度測定	8
4.8 温度モニター試験	8
4.9 中性子照射量評価	9
5. 結果の検討	10
5.1 Heガス放出率	10
5.2 B ₄ Cペレットの健全性	10
5.3 B ₄ Cペレットと被覆管の機械的相互作用 (ACMI)	11
5.4 熱伝導率の変化	11
5.5 ¹⁰ B燃焼度	12
5.6 被覆管組織	12
6. まとめ	14

7. 謝 辞	1 5
8. 参考文献	1 6

1. はじめに

高速炉における制御棒の機能は、出力調整・制御、燃焼度補償、緊急停止等多岐にわたっており、しかも高温、高中性子束下で使用されるため、その寿命は燃料集合体よりも短いものとなっている。したがって、信頼性及び経済性に優れたFBRを開発する上において、高性能で長寿命の制御棒を開発することは重要な課題である。制御棒材料照射計画(Absorber Material Irradiation Rig計画：略称AMIR計画)は、高速原型炉「もんじゅ」の確性試験と実証炉以降の制御棒開発に資するとともに B_4C の照射挙動データベースの拡充を目的として立案されたものである。

AMIR-1は、「もんじゅ」出力調整棒1サイクル使用相当燃焼度を目標として、「常陽」MK-II炉心において $500 \sim 1100$ ℃の温度範囲で最高燃焼度 4.7×10^{21} captures/cm³(最高中性子量 1.34×10^{22} n/cm³, $E > 0.1$ MeV)まで照射された。照射後、ピンパンクチャー試験、 B_4C の熱伝導率測定、燃焼度測定等の試験を行い「もんじゅ」1サイクル使用相当燃焼度での B_4C の照射挙動及び B_4C パラメータ(結晶粒度)の照射挙動への影響を調べた。本報告書は、これらの結果を取りまとめたものである。

2. 使用条件及び供試材

2.1 使用条件

制御棒材料照射リグAMIR-1は、「常陽」MK-II炉心の第6列6C6孔で100MW(3)～100MW(7)サイクルに互って500～1100℃の温度範囲で最高燃焼度 4.7×10^{21} captures/cm³(最高中性子量 1.34×10^{22} n/cm³, $E > 0.1$ MeV)まで照射された。

Table 1 にB₄Cペレットの燃焼度及び照射温度を示す。なお、AMIR-1を構成する7本のコンパートメント内の軸心管(コンパートメント7)については、コード計算ができないため隣接するキャプセルより推定した値である。

2.2 供試材

照射リグの概略構造及びコンパートメントと炉心位置との関係をFig. 1及び2に示す。集合体は、7本のコンパートメント及び中性子照射量を測定するために装荷された3本のグラディエントモニター装荷管により構成される。各コンパートメントはB₄Cペレットの装荷されたキャプセル、中性子照射量を測定するためのドシメータ及びスペーサ等により構成されている。AMIR-1 B₄Cキャプセルの仕様をTable 2に示す。

キャプセルの構造をFig. 3及び4に示す。キャプセルは、照射温度及びコンパートメント内の位置により4種類に分けられ、被覆管はSUS316ステンレス鋼である。被覆管の寸法は、外径を15.45 mmとし、内径を12.75, 12.89, 13.03, 13.17, 13.45 mmに変化させ、照射初期温度の設定を被覆管の内面とB₄Cペレット間のギャップ幅で調節した。被覆管の化学成分をTable 3に示す。

B₄Cペレットは、材料パラメーターとして製造メーカー、結晶粒度が選ばれ、その違いによりR, C, G材と名付けられた。R材は「もんじゅ」Reference B₄Cペレットで結晶粒径が平均4 μm, C材は「もんじゅ」Reference B₄Cペレットと同一仕様で製造されたものである。G材は「もんじゅ」Reference B₄CペレットであるR材に比べて結晶粒径の大きい(平均10 μm)ペレットでR材と同一のメーカーにより製造された。B₄Cペレットは、直径12.6 mm, 高さ25 mm, 熱伝導率測定用のB₄Cディスクは、直径12.6 mm, 高さ1.5 mmのホットプレス成形体である。B₄Cペレット及びディスクの密度は、2.479 g/cm³(～95% T.D.)であり、¹⁰B濃度は、34 w/oと「もんじゅ」仕様となっている。Table 4にB₄Cペレットの化学成分を示す。

また、キャプセル内には照射温度を評価するためSiC, テンプラグが温度モニターとして装荷された。

注) R, G材は電気化学株, C材は三菱金属株において製造された。

3. 試験要領

3.1 集合体及びコンパートメント試験

(1) 外観検査

外観形状の変化，表面のキズ，変色の有無を確認するため目視，トランシット，ペリスコープによる観察を行った。

(2) X線ラジオグラフィー

X線ラジオグラフィーにより集合体及びコンパートメント内部への異物 (Na 等) の混入，キャプセルの健全性の確認を行った。

(3) 解体作業

① 集合体解体

集合体解体装置により集合体の解体及びコンパートメントの引抜きを行った。

② コンパートメント解体

ピン切断機によりコンパートメントを切断し，キャプセルの取り出しを行った。また，キャプセルの刻印及び装荷順とキャプセル装荷位置データとが一致していることを確認した。

3.2 ピンパクチャー試験

全キャプセルに対して燃料ピンパクチャー装置を用い $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応により生成するHe放出量を測定した。また，ガスクロマトグラフィー及び質量分析装置により希ガス (Kr, Xe 等) 濃度を測定し，計算により放出ガス量を求めた。さらに，R材 B_4C ペレットの装荷されているキャプセル (各温度で1体) については，ガス組成分析も実施した。

3.3 外観検査

ペリスコープを使用して被覆管及びキャプセルを切断して取出した B_4C ペレットの目視観察を行った。 B_4C ペレットについては，写真撮影も実施した。

3.4 寸法測定

(1) 被覆管

被覆管外径を標準外側マイクロメータ (測定範囲0～25mm，精度1/100mm) で測定した。

(2) B_4C ペレット

被覆管より取り出すことのできた B_4C ペレットで健全なものについて被覆管外径と同じ方法で外径測定を行った。また，被覆管より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 B_4C ペレットの外径を求めた。ただし，この方法が妥当であるかの確認のため，P型ペリスコープにより B_4C ペレットと被覆管

のギャップの有無を確認した。

3.5 熱伝導率測定

キャプセルNo.BL005 (R材)及びFU002 (C材)より取り出された B_4C ディスクについて熱伝導率の測定を行った。熱伝導率は、 B_4C の密度、比熱及び熱拡散率の積として求められる。密度は寸法・重量測定より求めた。寸法は標準外側マイクロメータによって、また重量はメトラ一社製の直示天秤で測定した。熱拡散率測定は、 B_4C 熱伝導率測定装置(レーザーフラッシュ法)によって行い、試料温度はInSb半導体検出器で測定した。比熱については、測定対象試料が得られなかったため実施しなかった。

熱拡散率の測定範囲は、室温から800℃までとした。

3.6 組織観察

(1) 被覆管

R材 B_4C ペレット5試料(キャプセルNo.GU001, FU001, DU001, BU001, AU001)に接する被覆管について組織観察を行った。

試料をエポキシ樹脂に埋め込んだ後、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。

(2) B_4C ペレット

設計照射温度700℃及びG材の B_4C ペレットについて観察した。

試料をエポキシ樹脂に埋め込んだ後、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。

3.7 燃焼度測定

(1) 試料調整

B_4C ペレットをメノウ乳鉢で粉碎し、粉末とする。この B_4C 粉末0.2gと混合融剤($Na_2CO_3 + K_2CO_3$)1.0g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、 $NaNO_3$ 0.3g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 H_2SO_4 5.0ml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、メターノール5.0ml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)2.0ml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

表面電離型質量分析計によってBの同位体分析を行い、 $^{10}B/^{11}B$ 比を求めることより燃焼度

を求めた。なお、同位体比測定用標準試料としてはNBS-951を用いた。

3.8 温度モニター試験

(1) SiC温度モニター

R材B₄Cペレットの装荷された被覆管より取り出したSiC温度モニター(φ3mm×ℓ10mm)について照射温度の推定を行った。

SiC焼結体をメノウ乳鉢で粉碎し粉末とする。このSiC粉末に標準Si粉末を加え、X線回折装置(リガク社製, RAD-ⅢA)を用い、ディフラクトメータ法により格子定数を測定した。格子定数の測定は、室温から順次高温へ焼鈍を行い各焼鈍温度で行った。そして格子定数と焼鈍温度の関係からSiCの回復開始温度を求め、この値を補正式⁽¹⁾で補正し照射温度を求めた。以下に補正式を示す。

$$T_c = 0.988 \times T_{sic} - 13.2$$

(2) テンプラグ温度モニター

被覆管より取り出せたモニター(φ7mm×ℓ5mm)について遠隔操作型微小硬さ計を用い硬さ測定を行った。このときの測定荷重は1kgとした。

低合金の焼入材(SUJ2)は、焼もどしすなわち照射により硬さが低下するがこの関係は次式⁽²⁾で示される。

$$T = \frac{Q}{2.3 \times R \times (\log t + 50 - \lambda)} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、Tは照射温度(°K), Rはガス定数(1.986 cal/mol・deg), tは照射時間(Hr), λは焼もどし状態を示すパラメータ, Qは活性化エネルギー(cal/mol)で

$$Q = 1000 \times \left\{ 114.7 \times \frac{Mn}{5} + \frac{Cr}{10} + 46.6 \right\} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、Mn, Crは重量%である。今回の供試材のMn量は0.49wt%, Cr量は1.49wt%であり、(2)式より活性化エネルギーQは74 kcal/molとなる。従ってSUJ2のλ値は

$$\lambda = \log t - \frac{16,200}{T} + 50 \dots\dots\dots (3)$$

となる。焼もどしパラメータλと硬さの関係をFig. 5に示す。また、回帰分析により次式が与えられる。

$$\lambda = 4.0 \times 10^{-5} \times (Hv)^2 - 4.5 \times 10^{-2} \times (Hv) + 4.33 \quad \dots\dots\dots (4)$$

Hv は硬さ

3.9 中性子照射量評価

(1) ドシメータ

コンパートメントNo.1, 4, 7で炉心軸方向レベル0mmに装荷されたドシメータ (Fe, Cu, Ni, Ti, Ta-Al, Nb, Co-Al, EU, NUの9種類)をキャプセル切断後取り出し、洗浄、シートパック後、ラジオメトリック法により反応率を測定し、スペクトルアンフォールディング (NEUPAC-JLOGコード)により積算中性子照射量を求めた。

(2) グラディエントモニター

ピンよりモニター (Ni, Fe, Cuの3種)を取り出し、約1cmの長さに切断後、洗浄、重量測定、シートパックを行い、ドシメータと同様の方法により中性子照射量の軸方向分布評価を行った。

4. 試験結果

4.1 集合体及びコンパートメント試験

(1) 外観検査

集合体においては、Fig. 6 に示すようにF面上部パット部から中間パット部において縦傷が認められたものの他に異常は認められなかった。また、コンパートメントにおいてもすり傷が観察されたものの外径変化、腐食等の異常は認められなかった。

(2) X線ラジオグラフィ

集合体内部及びコンパートメント内部への異物（Na等）の混入等の異常は認められなかった。

(3) 解体

集合体についてもコンパートメントについても解体は問題なかった。キャプセル刻印及び装荷順も全てキャプセル装荷位置データと一致していることが確認された。

4.2 ピンパンクチャー試験

Heガス放出率及びガス組成分析結果をTable 5に、Heガス放出率の燃焼度依存性をFig. 7に示す。Heガス放出率は全てのキャプセルにおいて10%以下であり、Fig. 7に示される曲線-IIの範囲を越えていないことが確認された。また、ガス組成分析の結果、放出ガスの成分は全てHeであり³Hの存在は認められなかった。

4.3 外観検査

被覆管については、一部にすり傷が認められたものの他に異常は認められなかった。

B₄Cペレット及びディスクは、低温用キャプセル（設計温度700, 800, 900℃）にそれぞれ2個ずつ、高温用キャプセル（設計1000, 1200℃）にはそれぞれ1個ずつが装荷されているが、押し出し治具により被覆管より取り出すことのできたB₄CはTable 6に示すとおりであり、設計照射温度700℃及びG材のB₄Cペレットについては取り出すことができなかった。被覆管より取り出されたB₄Cペレットのペリスコープによる観察では、Fig. 8に示すように照射温度が高くなるほど細かく割れる傾向が認められた。

4.4 寸法測定

被覆管の寸法測定結果をFig. 9～22に示す。これよりキャプセルNo. GL002（G材、設計照射温度700℃）においてB₄Cペレット装荷部の被覆管に明確なふくれが認められた。しかし、他のキャプセルについては、測定値のバラツキが大きくふくれは明確でない。

B₄Cペレットの外径変化率をFig. 23に示す。R材及びC材のB₄Cペレットのスエリングは燃焼

度 $3.3 \sim 3.8 \times 10^{21}$ captures/cm³ において $0.7 \sim 1.5 \Delta D / D\%$ であった。これに対し G 材の B₄C ペレットのスエリングは燃焼度 3.7×10^{21} captures/cm³ で $1.7 \sim 1.9 \Delta D / D\%$ と他の B₄C ペレットに比べて高い値を示した。なお、 3.3×10^{21} captures/cm³ まで照射された B₄C ペレットの外径変化率は亀裂に伴う寸法変化を含んでいる。

4.5 熱伝導率測定

熱伝導率の温度依存性を Fig. 24 に示す。室温における熱伝導率は、未照射材の値に比べて約 15% に減少した。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、MK-II 制御棒 B₄C の場合と同じく温度依存性を示さなくなる。また、R 材と C 材すなわち B₄C 製造メーカーの違いによる影響は認められなかった。なお、ここで使用した比熱は、試料が得られなかったことと、照射の影響が少ないと言われている⁽³⁾ ことより未照射材の値を用いた。

4.6 組織観察

(1) 被覆管

被覆管の光学顕微鏡組織写真を Fig. 25 及び 26 に示す。キャプセル NaGU001 (R 材、設計照射温度 700℃) の B₄C ペレットと接する被覆管内面の一部に内面腐食による結晶粒の脱落が認められた。他の被覆管については、冷間加工 SUS316 ステンレス鋼特有の変形双晶帯が多く認められ、照射による影響はないものと考えられる。

(2) B₄C ペレット

Fig. 27 ~ 30 に設計照射温度 700℃ の B₄C ペレット及び G 材 B₄C ペレットの低倍写真を示す。R 材及び C 材 B₄C ペレットにはペレット内に亀裂が観察されるとともに被覆管との接触が見られた。設計照射温度 700℃ の G 材 B₄C ペレットでは被覆管との接触が認められ、ペレット内の亀裂は低倍観察からは確認されなかった。他の B₄C ペレットについては、ペレットと被覆管の間のギャップは完全に閉塞しておらず、研磨により脱落した B₄C ペレット粉がギャップに侵入していることが観察された。

4.7 燃焼度測定

固体質量分析計による¹⁰B 燃焼度の測定結果を Table 7 に示す。また、MAGI 計算燃焼度との比較を Fig. 31 に示す。燃焼度測定値は、計算値の 63 ~ 85% の値となった。

4.8 温度モニター試験

SiC 温度モニター及びテンプラグ温度モニターによる照射温度推定結果を Table 8 に示す。温度モニターによる推定照射温度は、400 ~ 500℃ であり、冷却材温度よりわずかに高い温度

であった。温度モニター装荷位置は実際B₄Cペレット中心よりはなれた位置にあり、B₄Cペレットの温度勾配（原子炉運転中におけるB₄Cペレットの中心と周辺の温度差は約200℃）により温度モニターによる推定照射温度は冷却材温度に近くなったものと推定される。

4.9 中性子照射量評価

ドシメータ及びグラディエントモニターによる中性子照射量の評価結果は、炉心においてはドシメータで速中性子照射量 $1.27 \sim 1.51 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)、全中性子照射量 $2.54 \sim 2.74 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ (Total)であり、グラディエントモニターで速中性子照射量 $1.08 \sim 1.69 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)、全中性子照射量 $2.07 \sim 2.86 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ (Total)とほぼ一致する結果が得られた。また、B₄Cペレット部においては、速中性子照射量 $1.04 \sim 1.64 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)、全中性子照射量 $1.99 \sim 2.77 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ (Total)であった。これらの解析結果は、「常陽」運転監視コードMAGIによる計算値とも比較的よく一致している。B₄Cペレット部における中性子照射量の評価結果とMAGI計算値との比較をTable 9及び10に示す。

5. 結果の検討

5.1 Heガス放出率

B_4C は $^{10}B(n, \alpha)^7Li$ 反応によって中性子を吸収し、Heを生成する。この反応によって生じたHeは、 B_4C ペレット外に放出されるとピン内圧を増加させ、ペレット内に保持されるとスエリングを生じさせる。

「もんじゅ」2サイクル寿命制御棒の設計では、Table 11に示す設計式が使用されている。これに対し、本試験の結果では B_4C ペレットの燃焼度 $\leq 4.7 \times 10^{21}$ captures/cm³、照射温度 ≤ 1080 ℃におけるHeガス放出率はいずれも10%以下である。また、MK-I制御棒データ及びMK-Iタイプ B_4C のDFR照射データにおいても全て10%以下である。この結果はいずれもFig. 7の曲線-IIを上限とするデータの範囲⁽⁴⁾を越えていないことがわかった。

なお、「もんじゅ」微調整棒、粗調整棒(最大燃焼度 11.0×10^{21} captures/cm³)に対するHe放出率については、高燃焼度及び高温照射リグAMIR-2、AMIR-4-1の照射後試験結果を含めて検討するものとする。

5.2 B_4C ペレットの健全性

B_4C ペレットの健全性を見てみると、初期照射温度が高くなるほど細かく割れる傾向にあることが明らかとなった。

B_4C ペレットの破壊の原因としては、(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挙げることができる。(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⁽⁵⁾。(2)の場合、ペレットの中心部と表面部でのスエリング量の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量の差は、温度及び径方向の中性子束密度の違いによって起きる⁽⁶⁾。本試験に使用した B_4C ペレットの計算によれば、原子炉運転中におけるペレットの中心と周辺の温度差は200℃程度と推定されており、この温度差に伴う熱応力によって初期破壊したものと推定される。一方、スエリングに伴う破壊については、本試験に使用した B_4C の ^{10}B 濃度が34w/oと低いため、ペレット中心と周辺の燃焼度勾配は比較的小さいものと考えられる。燃焼度の低い初期においてはスエリングは小さく、そのためスエリング誘起応力も小さい。このことから破壊への影響はないものと考えられる。ペレットの破壊の程度は、初期ギャップ(B_4C と被覆管間)との影響も認められ、初期ギャップの大きいほど割れ方が激しい。したがって、スエリングの制約をのがれるためにギャップを大きくし、吸収ピン寿命を延長する場合は、 B_4C ペレットの破壊に伴う B_4C ペレット片のリロケーションを考慮する必要がある。

5.3 B₄C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。

キャプセル切断により被覆管から取り出せなかったのは、全てのG材B₄Cペレット及びキャプセルNo.GU001, GL001に装荷されたR材, C材のB₄Cペレットであった。これらのキャプセルの照射前の各部寸法及びMK-I, MK-II B₄Cペレットのスエリング($4D/D = 3.1 \times 10^{-22}$ [B.U]), [B.U]は燃焼度 captures/cm³)から推定したスエリングでACMIにより被覆管ふくれを生じさせる可能性をTable 12に示した。これにより、キャプセルNo.GU001, GL001, GL002すなわち設計照射温度700℃のB₄Cペレットでは、ペレットと被覆管内面とのギャップ幅が埋まりACMIが生じる可能性が示された。これらの断面観察の結果、キャプセルNo.GL002のB₄Cペレットには亀裂は観察されず、また、ペレットと被覆管のギャップが閉塞していることが確かめられた。寸法測定によっても被覆管に明確な「ふくれ」が見られたことからACMIが生じていると考えられる。一方、キャプセルNo.GU001, GL001, に装荷されたR材, C材B₄Cペレットにはペレットと被覆管に接触は見られるものの、ペレット内に数十μmの中を有す亀裂が観察された。ペレット内の亀裂がペレットの径変化に及ぼす効果を想定するとFig. 32のように模式的に表わされる。すなわち、亀裂の効果は⁽⁷⁾、B₄Cペレットが被覆管に接触した後は燃焼度が大きくなり亀裂が閉塞するまでB₄Cペレットの径はほぼ一定値を保つ。亀裂の閉塞後、径変化はFig. 23の結果によると3.1(%) / 10²² (captures/cm³)の割合で増加する。このことより、間隙を持つ亀裂を有しているB₄Cペレットの外径変化は、見掛け上大きなスエリング値を示す。

ACMIにより被覆管ふくれを生じさせる可能性を示したTable 12からキャプセルNo.GL002を除くG材B₄CペレットにはACMIによる被覆管のふくれは起こらないと考えられる。一方、これらのキャプセルの断面観察によれば、ペレットと被覆管のギャップが完全に閉塞しておらず、研磨により脱落したB₄Cペレット粉がギャップに入りこんでいることが観察された。以上のことよりACMIが生じていないものと推定される。

5.4 熱伝導率の変化

MK-I, MK-II B₄C及びAMIR-1 B₄Cの熱伝導率の燃焼度依存性をFig. 33に示す。MK-II B₄Cの熱伝導率は、MK-I B₄Cの熱伝導率に比べて低い。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⁽⁸⁾、気孔率が大きくなるほど小さくなる。MK-I B₄Cの気孔率は約2%であるのに対して、MK-II B₄Cの気孔率は約10%とMK-IIの方が大きい。このため、低密度のMK-II B₄Cの熱伝導率が低くなったものと考えられる。これより、気孔率が5%であるAMIR-1 B₄Cの熱伝導率は、MK-I, MK-II B₄Cの熱伝導率結果より外挿した値の間であると推定される。

熱伝導率の温度依存性は、未照射材で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のに対し照射材では温度依存性を示さないことがMK-II B₄Cで報告⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾されているが、今回の測定結果もこれらと同じ温度依存性を示した。また、この結果はFig. 34に示すようにMahaginら⁽¹²⁾による測定結果の傾向と一致していることがわかった。

5.5. ¹⁰B 燃焼度

AMIR-1及びAMIR-2は「もんじゅ」制御棒の確性試験として、それぞれ「もんじゅ」1サイクル使用及び2サイクル使用に相当する燃焼度(5×10^{21} captures/cm³ 及び 10×10^{21} captures/cm³)まで照射し、「もんじゅ」条件におけるB₄Cペレットの照射挙動データ取得が目的とされていたが、今回の照射終了時における燃焼度はMAGI計算燃焼度で $3.3 \sim 4.7 \times 10^{21}$ captures/cm³ であり目標燃焼度 5×10^{21} captures/cm³ に比べて低いことが明らかとなった。したがって同一仕様のB₄Cペレットを装荷し、照射期間のみAMIR-1の2倍としたAMIR-2についても到達燃焼度が目標燃焼度をかなり下回ることが予想される。このことにより「もんじゅ」制御棒が工認段階で使用寿命を1年(「もんじゅ」2サイクル相当)に変更されたため、後備炉停止棒(最大燃焼度 $\sim 3.4 \times 10^{21}$ captures/cm³)の寿命評価に関してはAMIR-1の結果が反映可能であるものの、微調整棒(最大燃焼度 11×10^{21} captures/cm³)及び粗調整棒(最大燃焼度 11×10^{21} captures/cm³)については、 8×10^{21} captures/cm³ までしか寿命評価に必要なB₄Cスエリング及びHe放出率のデータがなく、これを越える燃焼度におけるデータ取得が必要となった。このため「もんじゅ」制御棒2サイクル使用における照射挙動データを取得できるようAMIR-2の照射延長が検討され、現在照射継続中である。

質量分析により測定した燃焼度は、MAGI計算燃焼度に対し63～85%の値であり、両者の差が認められた。したがって、MAGI計算燃焼度と質量分析により測定した燃焼度の相違については今後さらに検討していくことが必要である。

5.6 被覆管組織

設計照射温度700℃のR材B₄Cペレットと接する被覆管内面の一部に腐食による結晶粒の脱落が認められたが、この原因として、次のことが考えられる。MK-II制御棒被覆管の仕様に対し本試験に使用した被覆管の仕様は、一般市販品である。標準SUS316ステンレス鋼の場合粒界拡散は数10μmに達することがある⁽¹³⁾。粒内へB₄Cの侵入した場合、硬化し研磨中に結晶粒の脱落が考えられる。事実、Al₂O₃ペレット等硬いものについては研磨あるいはエッチングによって脱落が認められている⁽¹⁰⁾。燃料被覆管にも使用された改良SUS316ステンレス鋼の炉外試験^{(14), (15)}によれば被覆管温度が600℃を超えないとB₄Cとの反応はしない。また、燃焼度が本試験の2倍を超える(8.0×10^{21} captures/cm³)の制御棒の照射後試験⁽¹¹⁾によっても、化学的な反応は認められていない。したがって、実機の改良SUS316ステンレス鋼の場合のACCI

は問題ないものと推定されるが、詳細は改良SUS316ステンレス鋼を使用しての確認が必要と考えられる。

6. ま と め

「もんじゅ」1サイクル照射程度の燃焼度を目途として、「常陽」MK-II炉心において、 B_4C ペレット最高燃焼度 4.7×10^{21} captures/cm³ (最高積算照射量 1.34×10^{22} n/cm², $E > 0.1$ MeV) まで照射された制御棒材料照射リグ AMIR-1 (PRA010) について照射後試験を行った。この結果、下記のこと明らかとなった。

- (1) 集合体及びコンパートメントに外径変化、腐食等の異常は認められなかった。
- (2) Heガス放出率は、すべてのキャプセルにおいて10%以下であった。また、放出ガスは100%Heであり³Hの存在は認められなかった。
- (3) B_4C ペレットには、照射温度が高くなるほど細かく割れる傾向が認められた。
- (4) B_4C の室温における熱伝導率は、 4×10^{21} captures/cm³の照射によって、未照射 B_4C の約15%、 0.009 cal/cm \cdot sec \cdot degに減少した。
- (5) 製造条件の照射挙動に与える影響は、製造メーカーの違いでは認められなかったものの、結晶粒度が大きいほどスエリング量が大きいことが明らかとなった。

7. 謝 辞

本試験を実施するにあたり，中性子照射量の評価を実施した実験炉部照射課を始め，関連各部において御協力・御指導頂いた方々に厚く感謝いたします。

8. 参考文献

- (1) R.M. Sharpe ; British Nuclear Energy Society (1980) 71
- (2) 井上 ; 鉄と鋼, 66(1980) 74
- (3) 柚原, 伊藤, 黒田, 山口 ; PNC SN9410 87-151(1987)
- (4) Ph. Dunner, R. Habel, M. Horle and H. Zimmermann ; PNC N951 83-01
(1983) 96
- (5) 伊藤, 渡辺, 小野, 一海 ; PNC SN941 82-247(1982)
- (6) G.W. Hollenberg and J.A. Basmajian ; J. Amer. Cera. Soc. Vol. 65 No4
(1982) 179
- (7) 鹿倉, 宮崎, 柴原, 甲野 ; PNC SN952 84-07(1984)
- (8) 例えば, G. Ondracek and B. Schulz ; J Nucl. Mater 46(1973) 253
- (9) 柚原, 伊藤, 山口, 谷 ; PNC I941 85-06(1985)
- (10) 柚原, 伊藤, 山口, 谷 ; PNC I941 85-14(1985)
- (11) 柚原, 伊藤, 黒田, 平井, 谷, 鶴飼 ; PNC I9410 87-002(1987)
- (12) W.V. Cummings and D.E. Mahagin ; Trans. Ans, 17(1973) 187
- (13) M. Erler, A. Lafon, P. Marmonier and E. Rousseau, IAEA, IWGFR
Specialist Meeting, Dimitrovgrad, USSR(1973)
- (14) 三浦, 大森, 伊藤 ; PNC SN841-78-46 (1978)
- (15) 鈴木, 伊藤, 浅賀 ; PNC SN941-78-86 (1978)

Table 1 Irradiation Condition of Boron Carbide Capsule

Compartment No	Capsule No	B ₄ C ****	Burnup ($\times 10^{21}$ cap/cm ²)*	Irradiation ** Temperature(°C)	Capsule No	B ₄ C	Burnup ($\times 10^{21}$ cap/cm ²)	Irradiation Temperature(°C)
1	AU001	R	4.34	1039	BL001	G	4.72	923
2	BU001	R	4.25	865	AL003	R	4.60	1080
3	DU001	R	3.71	732	BL005	R	4.02	837
4	FU001	R	3.33	634	GL001	C	3.61	591
5	GU001	R	3.40	576	GL002	G	3.70	597
6	DU002	C	3.88	747	DL001	G	4.21	784
7	FU002***	C	3.80	723	FL001***	G	4.11	782

* MAGI Code

** VOLTEX Code

*** Inference from neighbor Capsule

**** R : [Monju] Reference B₄C Pellet

(Denki Kagaku Kogyo, Average Grain Size~4 μm)

C : [Monju] Reference B₄C Pellet

(Mitsubishi Kinzoku, Average Grain Size~4 μm)

G : Large Grain Size B₄C Pellet

(Denki Kagaku Kogyo, Average Grain Size~10 μm)

Table 2 Specification of Absorber and Capsule for AMIR-1

Items		Nominal Value
Absorber		
Material		B ₄ C
¹⁰ B Enrichment	(w/o)	34
Pellet		
Outer Diameter	(cm)	1.26
Density	(%T.D)	95±1
Number of Capsule		14
Cladding		
Material		SUS316
Outer Diameter	(cm)	1.545
Inner Diameter (700°C*)	(cm)	1.275
(800°C*)	(cm)	1.289
(900°C*)	(cm)	1.303
(1000°C*)	(cm)	1.317
(1200°C*)	(cm)	1.345

* Designed Initial Pellet Centerline Temperature

Table 3 Chemical Composition of Cladding

Item	(wt%)							
	C	Si	Mn	P	S	Mo	Ni	Cr
Specification	<0.08	< 1	< 2	<0.04	<0.03	2.00 ~3.00	10.00 ~14.00	16.00 ~18.00
Check Analysis	0.06	0.50	1.70	0.028	0.014	2.10	12.16	16.63

Table 4 Chemical Composition of Boron Carbide

(wt%)

Item	TB*	TC**	B/C	¹⁰ B	Fe	Ti	Cl+F	Co	Cu	Mn	Na	Soluble ^{***} B	Soluble ^{***} C	Al ^{***}	Si ^{***}	Ni ^{***}	
Specification	≥75	≤23	4.0±0.2	34.1 ₀	≤0.8	≤0.1	≤0.01	≤0.005	≤0.01	≤0.01	≤0.01	≤0.2	—	≤0.2	≤0.15	—	
Check Analysis	R	76.67	22.40	3.85	34.95	0.08	0.006	<0.005	<0.0025	0.0012	0.0024	0.0002	0.08	144	0.09	0.19	0.011
		76.70	22.47	3.85	34.99	0.08	0.005	<0.005	<0.0025	0.0006	0.0023	0.0002	0.08	158	0.09	0.20	0.0035
	C	77.88	20.98	4.19	35.75	0.21	<0.02	<0.005	<0.0025	<0.0025	<0.0025	<0.005	0.0043	0.54	0.01	0.03	<0.01
G	77.25	22.05	3.95	35.23	0.07	0.004	<0.005	<0.0025	0.0005	0.0008	0.0004	0.06	1.16	0.04	0.19	0.002	

* Total Boron

** Total Carbon

*** Reference Specification

Table5 He Gas Release Rate from B₄C Pellet and Result of Gas Analysis

Capsule No	Material	Burnup ($\times 10^{21}$ cap/cm ³)	Pellet Center line Temperature (°C)	Gas analysis (He%)	He release rate (%)
GU001	R	3.40	576	100	3.4
FU001	R	3.33	634	100	3.6
DU001	R	3.71	732	100	3.6
BU001	R	4.25	865	100	3.7
BL005	R	4.02	837	—	3.7
AU001	R	4.34	1039	100	8.1
AL003	R	4.60	1080	—	5.4
GL001	C	3.61	591	—	3.4
FU002	C	3.80	723	—	1.3
DU002	C	3.88	747	—	4.1
GL002	G	3.70	597	—	1.6
FL001	G	4.11	782	—	1.7
DL001	G	4.21	784	—	3.4
BL001	G	4.72	923	—	5.5

Table 6 Extrusion of B₄C Pellet from Capsule

Capsule No	Material	B ₄ C Pellet1	B ₄ C Pellet2	B ₄ C Disk1	B ₄ C Disk2	Templug	S i C
GU001	R	×	×	×	×	○	○
FU001	R	○	○	○	○	○	○
DU001	R	○	○	○	○	○	○
BU001	R	○	—	○	—	○	○
BL005	R	○	—	○	—	○	○
AU001	R	○	—	○	—	○	○
AL003	R	○	—	○	—	○	○
GL001	C	×	×	×	×	×	○
FU002	C	○	○	○	○	○	○
DU002	C	○	×	○	×	○	○
GL002	G	×	×	×	×	×	○
FL001	G	×	×	×	×	×	○
DL001	G	×	×	×	×	×	○
BL001	G	×	—	×	—	○	○

○ : Extruded

× : Not Extruded

Table 7 ^{10}B Burnup Measured by Mass Spectrometer

	Material	Irradiation Temperature (°C)	^{10}B Enrichment (atm%)	Burnup		
				(%)	Measured (captures/cm ³)	Calculated (captures/cm ³)
AU001	R	1039	35.73	7.027	2.7×10^{21}	4.34×10^{21}
BU001	R	865	35.59	7.529	3.0×10^{21}	4.25×10^{21}
FU001	R	634	36.41	4.245	1.7×10^{21}	3.80×10^{21}
BL001	G	923	35.12	9.474	3.7×10^{21}	4.72×10^{21}
FL001	G	782	35.24	8.996	3.5×10^{21}	4.11×10^{21}
FU002	C	723	36.10	7.196	2.8×10^{21}	3.80×10^{21}
Unirradiated	R	—	37.42	—	—	—
	G	—	37.84	—	—	—
	C	—	37.42	—	—	—

Table 8 Irradiation Temperature Measured by Temperature Monitors

Capsule No	Irradiation Temperature (Design) (°C)	Calculated (°C)	SiC Monitor (°C)	Templug (°C)
GU001	700	576	400	67
FU001	800	634	—	82
FU002	800	723	—	9
DU001	900	732	417	4
BU001	1000	865	408	502
BL001	1000	923	—	47
BL005	1000	837	—	46
AU001	1200	1039	392	8
AL003	1200	1080	401	44

Table 9 Comparison between Calculated Value by MAGI Code and Measured Value by Gradient Monitors (7.375cm from Core Center)

Compartment No.	ϕ Total [n/cm^2]		$\phi >1.0MeV$ [n/cm^2]		$\phi >0.1MeV$ [n/cm^2]	
	MAGI	Analysis	MAGI	Analysis	MAGI	Analysis
1	2.665×10^{22}	2.743×10^{22}	1.214×10^{21}	2.475×10^{21}	1.289×10^{22}	1.624×10^{22}
2	2.601×10^{22}	2.669×10^{22}	1.185×10^{21}	2.332×10^{21}	1.258×10^{22}	1.566×10^{22}
3	2.253×10^{22}	2.273×10^{22}	1.027×10^{21}	1.636×10^{21}	1.090×10^{22}	1.253×10^{22}
4	2.011×10^{22}	1.990×10^{22}	9.162×10^{20}	1.251×10^{21}	9.724×10^{20}	1.040×10^{22}
5	2.056×10^{22}	2.036×10^{22}	9.368×10^{20}	1.305×10^{21}	9.943×10^{20}	1.074×10^{22}
6	2.362×10^{22}	2.391×10^{22}	1.076×10^{21}	1.830×10^{21}	1.142×10^{22}	1.346×10^{22}
7	2.307×10^{22}	2.331×10^{22}	1.051×10^{21}	1.730×10^{21}	1.116×10^{22}	1.299×10^{22}

Table 10 Comparison between Calculated Value by MAGI Code and Measured Value by Gradient Monitors (-7.375cm from Core Center)

Compartment No.	ϕ Total [n/cm^2]		$\phi >0.1MeV$ [n/cm^2]		$\phi >0.1MeV$ [n/cm^2]	
	MAGI	Analysis	MAGI	Analysis	MAGI	Analysis
1	2.767×10^{22}	2.772×10^{22}	1.263×10^{21}	2.501×10^{21}	1.337×10^{22}	1.641×10^{22}
2	2.701×10^{22}	2.697×10^{22}	1.233×10^{21}	2.357×10^{21}	1.305×10^{22}	1.582×10^{22}
3	2.339×10^{22}	2.297×10^{22}	1.068×10^{21}	1.653×10^{21}	1.130×10^{22}	1.266×10^{22}
4	2.088×10^{22}	2.011×10^{22}	9.528×10^{20}	1.264×10^{21}	1.009×10^{22}	1.051×10^{22}
5	2.135×10^{22}	2.057×10^{22}	9.742×10^{20}	1.319×10^{21}	1.031×10^{22}	1.086×10^{22}
6	2.453×10^{22}	2.417×10^{22}	1.119×10^{21}	1.850×10^{21}	1.185×10^{22}	1.360×10^{22}
7	2.396×10^{22}	2.356×10^{22}	1.093×10^{21}	1.748×10^{21}	1.157×10^{22}	1.313×10^{22}

Table 11 Design Equation of He Gas Release from B₄C

Irradiated Temperature (°C)	Burnup ($\times 10^{20}$ cap/cm ³)	Design Equation (STP cm ³ /cm ³ B ₄ C)	Notice
T < 600	< 1.5	14.33 × BU*	curve-II in Fig. 7
	≥ 1.5	1.78 × BU + 18.83	
600 ≤ T ≤ 1600	< 1.68	24.70 × B.U	curve-I in Fig. 7
	≥ 1.68	2.12 × B.U + 37.94	
T > 1600	—	37.19 × B.U	100% release

* B.U = Burnup ($\times 10^{21}$ cap/cm³)

Table 12 Possibility of ACMI

No	Capsule			B ₄ C Pellet Diameter D ₂ (mm)	$\frac{D_1 - D_2}{D_2} \times 100$ (%)	Possibility of ACMI
	Burnup ($\times 10^{21}$ cap/cm ³)	Irradiation Temperature(°C)	Inner Diameter D ₁ (mm)			
GU001	3.40	576	1275	1263	0.95	YES
				1252	1.84	NO
GL001	3.61	591	1274	1261	1.03	YES
				1260	1.11	YES
GL002	3.7	597	1275	1262	1.03	YES
				1262	1.03	YES
FL001	4.11	782	1289	1262	2.14	NO
				1262	2.14	NO
DL001	4.21	784	1303	1262	3.25	NO
				1262	3.25	NO
BL001	4.72	923	1317	1262	4.61	NO

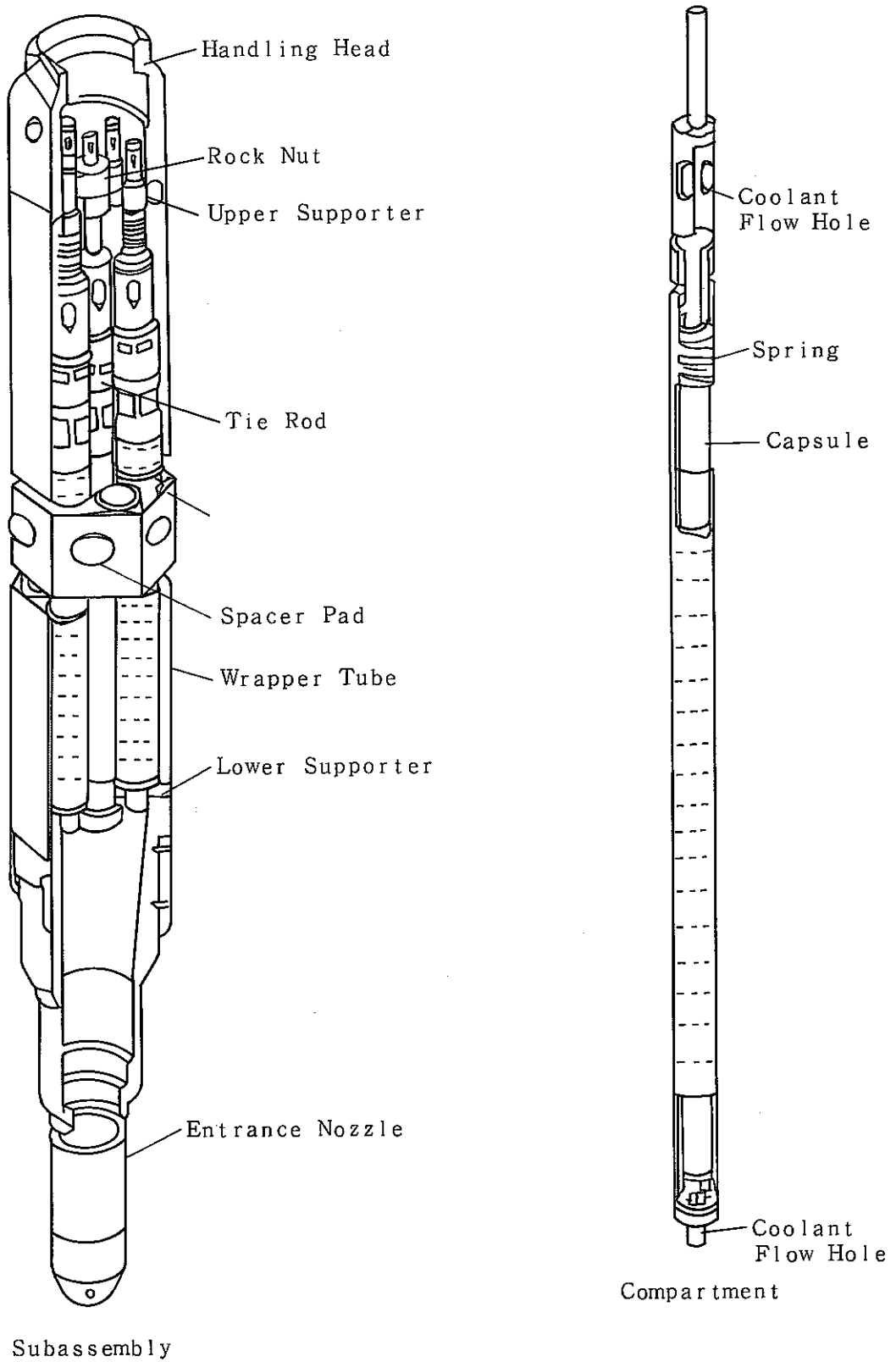


Fig.1 Absorber Materials Irradiation Rig

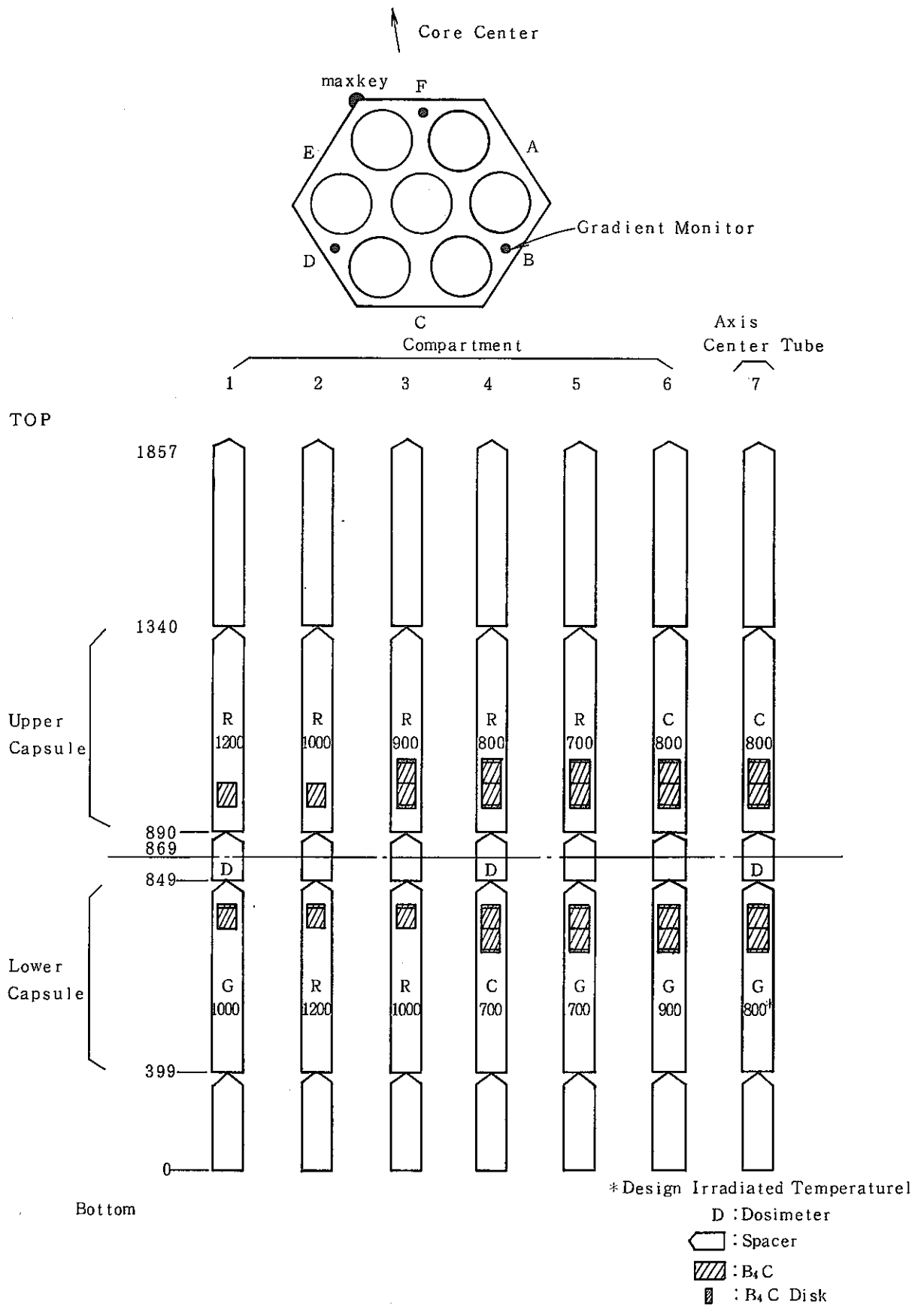


Fig.2 Arrangement to Compartment in Irradiation Rig AMIR-1

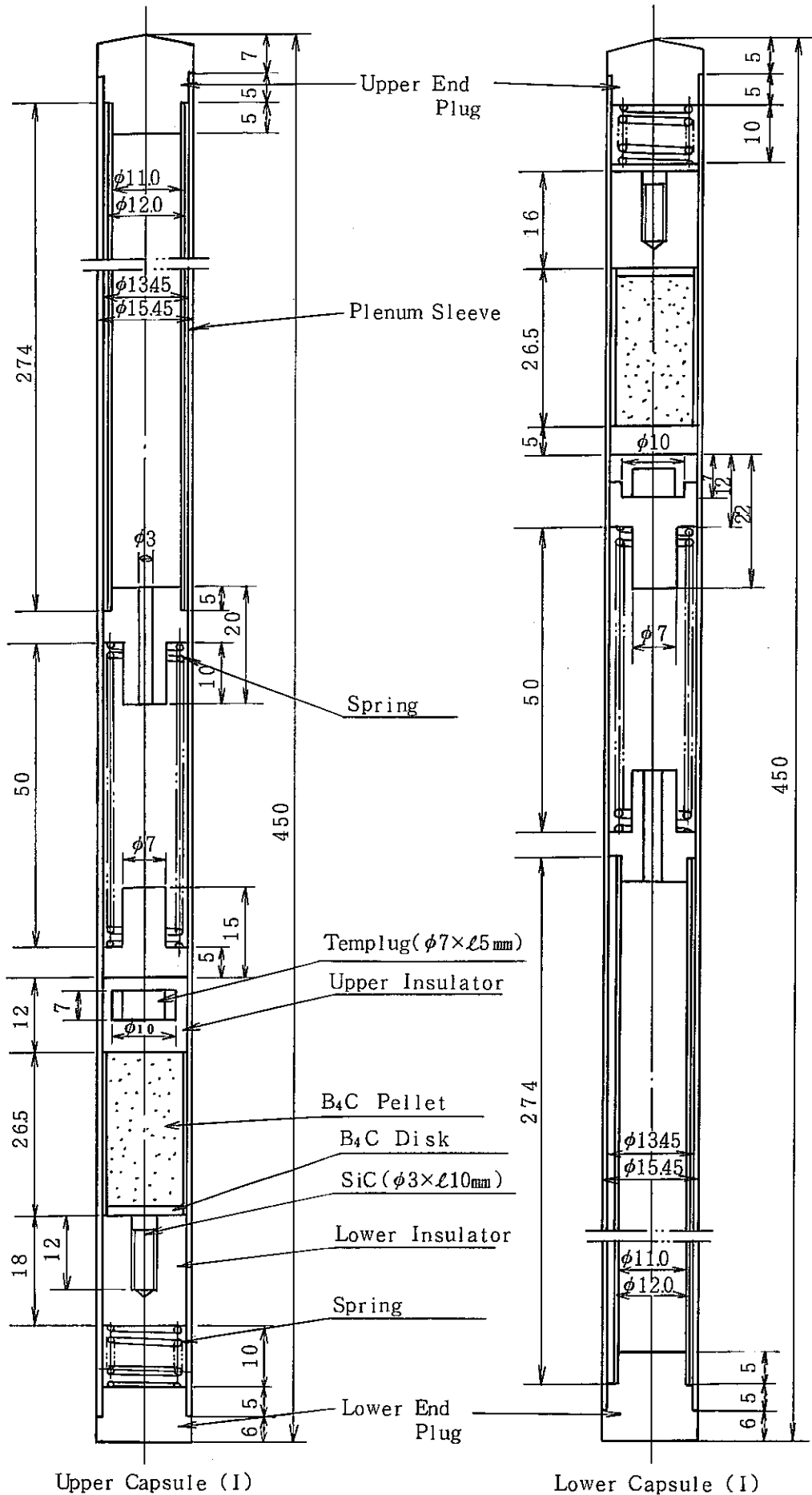


Fig.3 Schematic Drawing to Capsule (Desined Temperature: $\geq 1000^\circ\text{C}$)

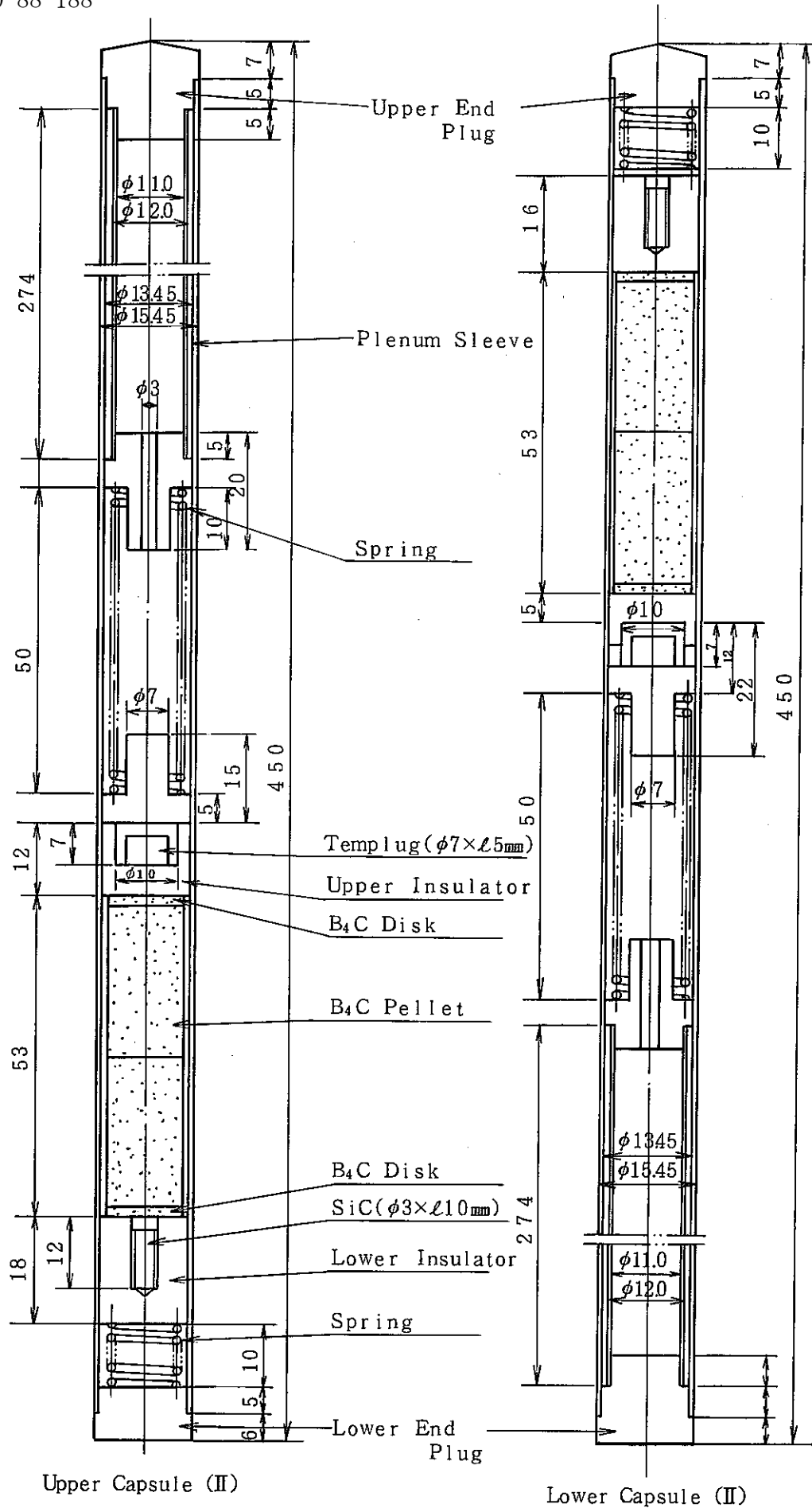


Fig.4 Schematic Drawing of Capsule (Designed Temperature: <math>< 1000^{\circ}\text{C}</math>)

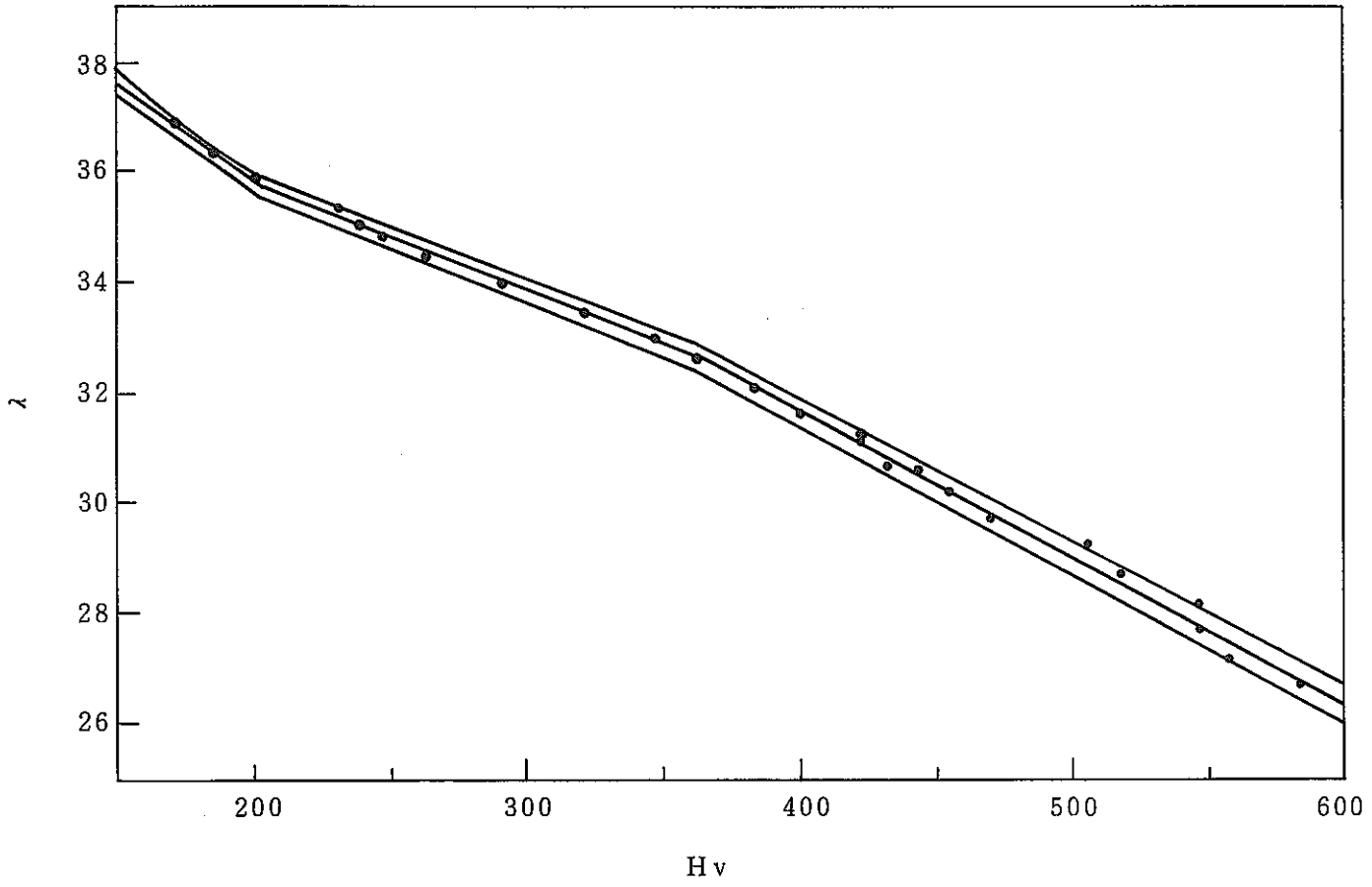


Fig.5 Confidence Interval for λ -value⁽²⁾

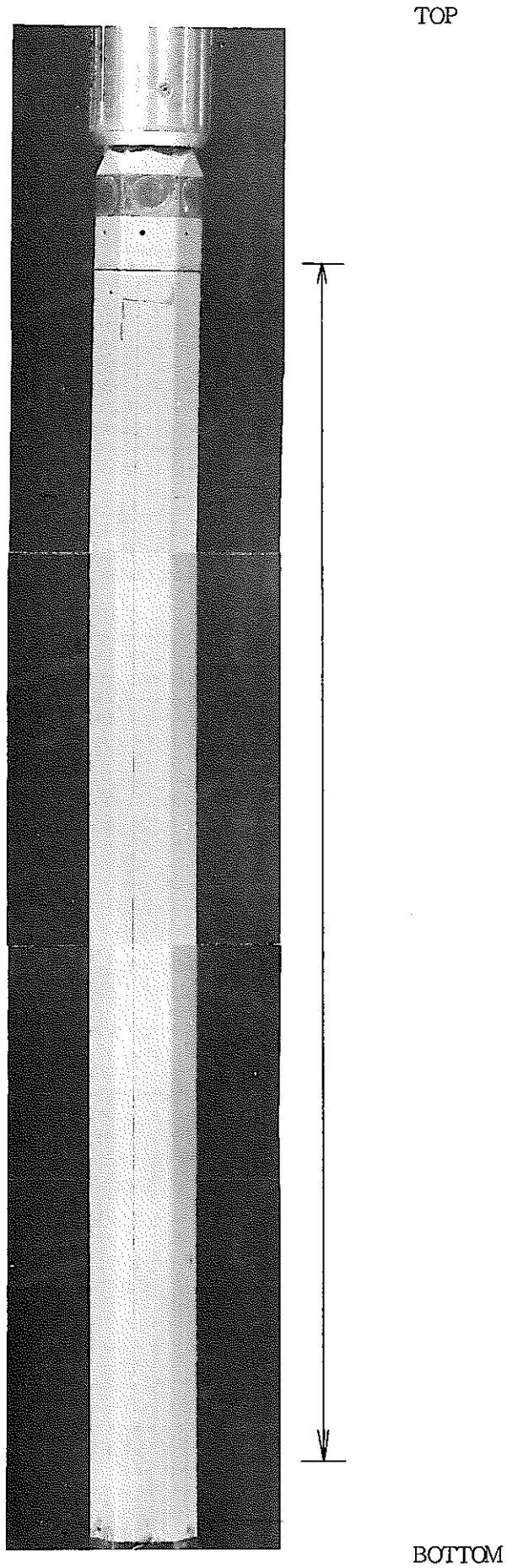


Fig.6 View of Wrapper Tube

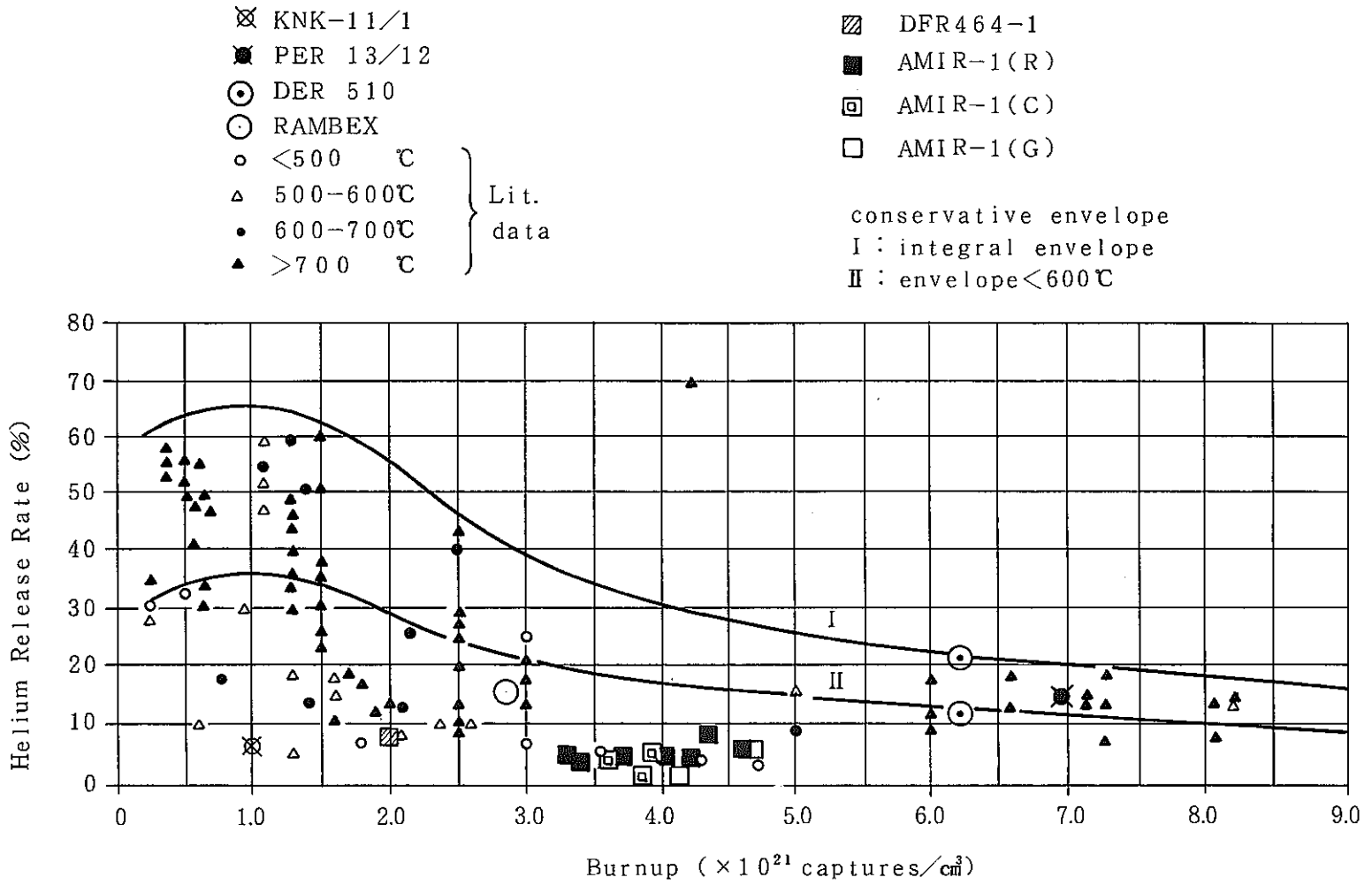
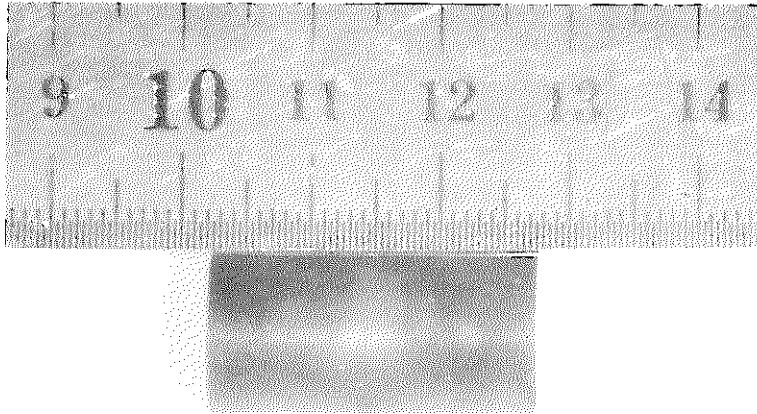


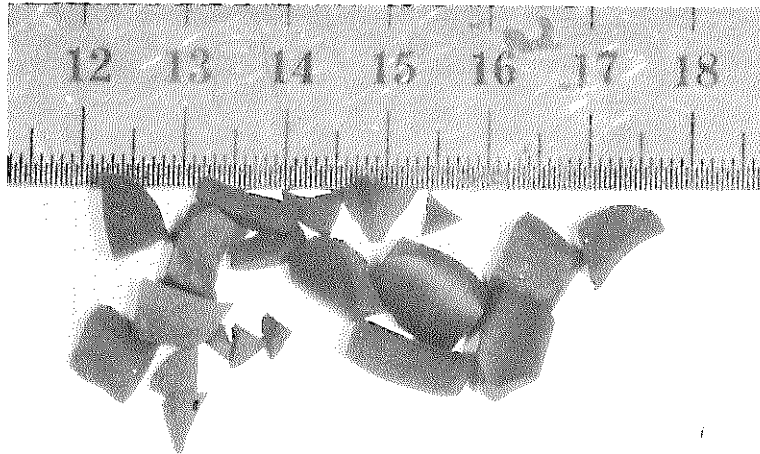
Fig.7 Burnup Dependence of He Release Rate from B₄C



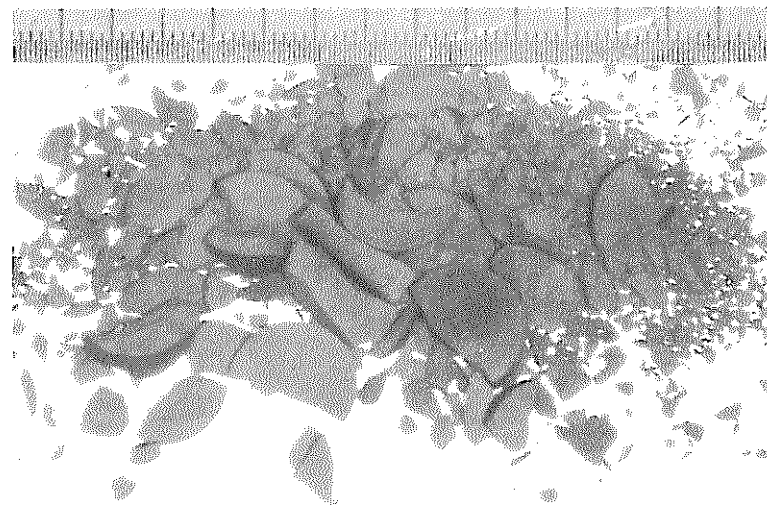
(a) Burnup= 3.33×10^{21} captures/cm³,
Irradiation Temperature=634°C



(b) Burnup= 3.71×10^{21} captures/cm³,
Irradiation Temperature=732°C



(c) Burnup= 4.02×10^{21} captures/cm³,
Irradiation Temperature=837°C



(d) Burnup= 4.34×10^{21} captures/cm³,
Irradiation Temperature=1039°C

Fig.8 View of B₄C Pellet

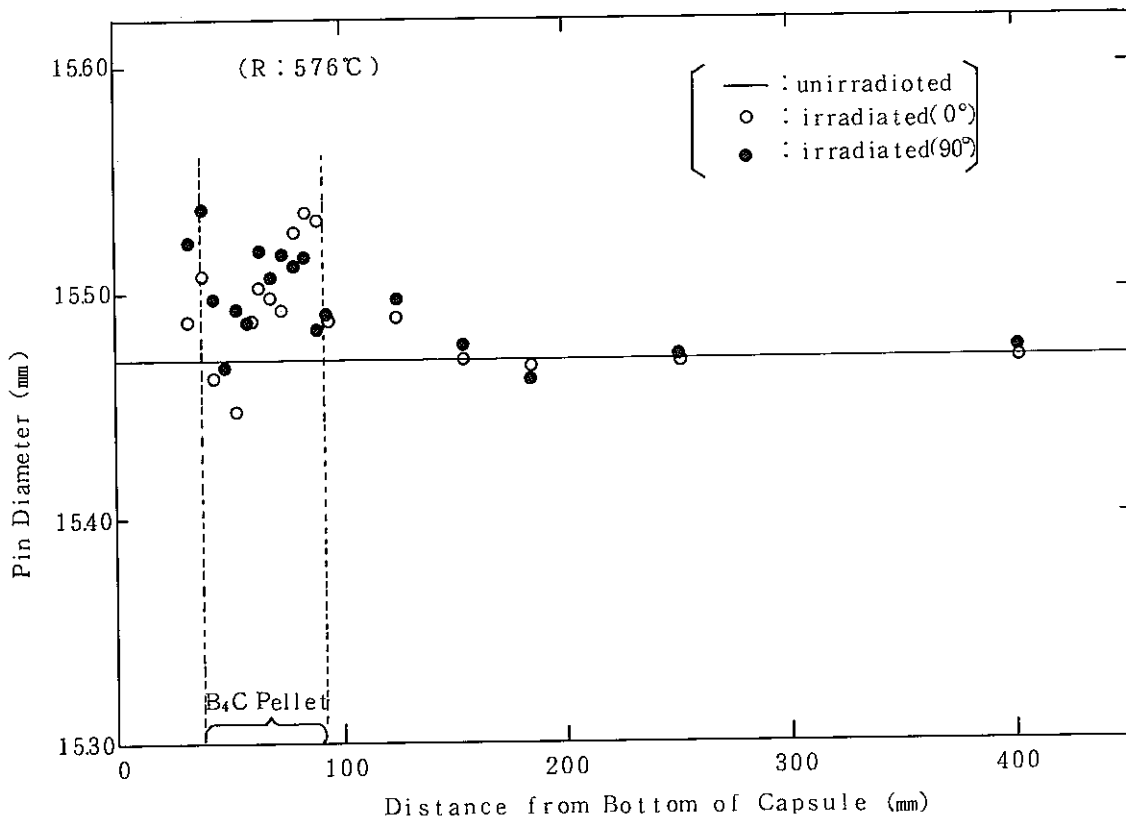


Fig.9 Dimension of Irradiated Capsule (GU001)

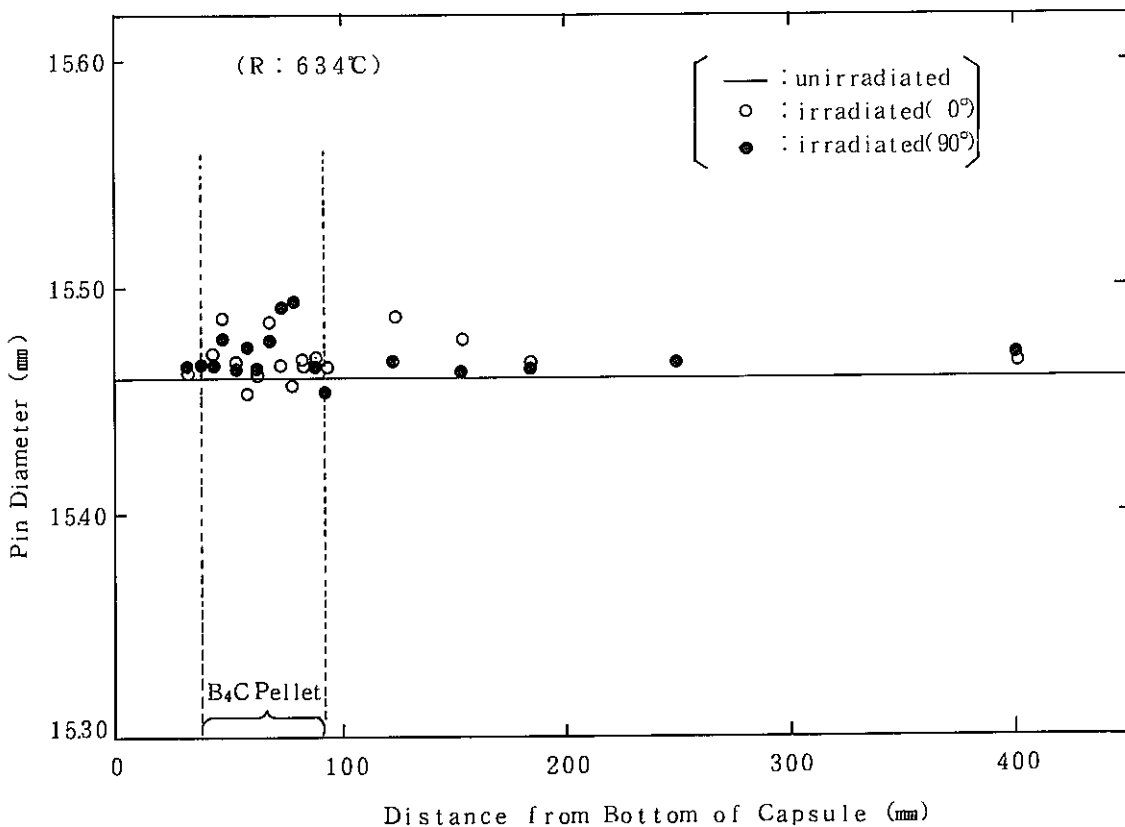


Fig.10 Dimension of Irradiated Capsule (FU001)

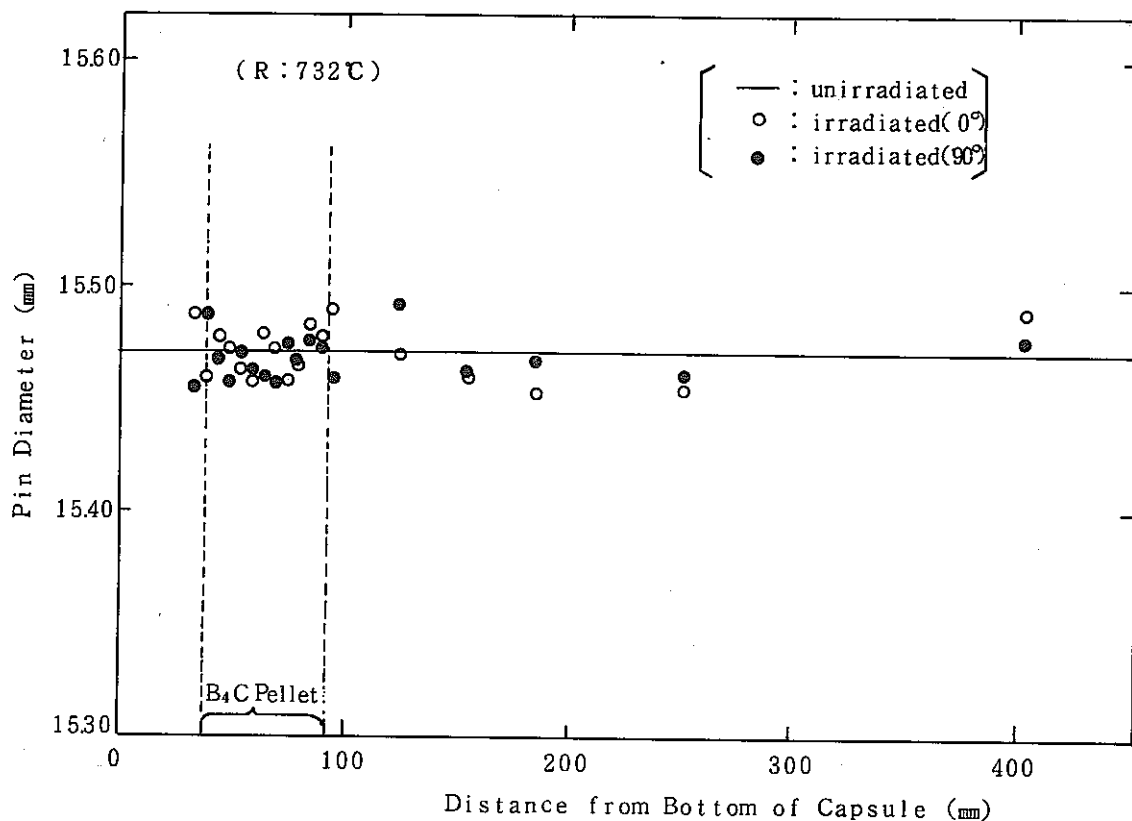


Fig.11 Dimension of Irradiated Capsule (DU001)

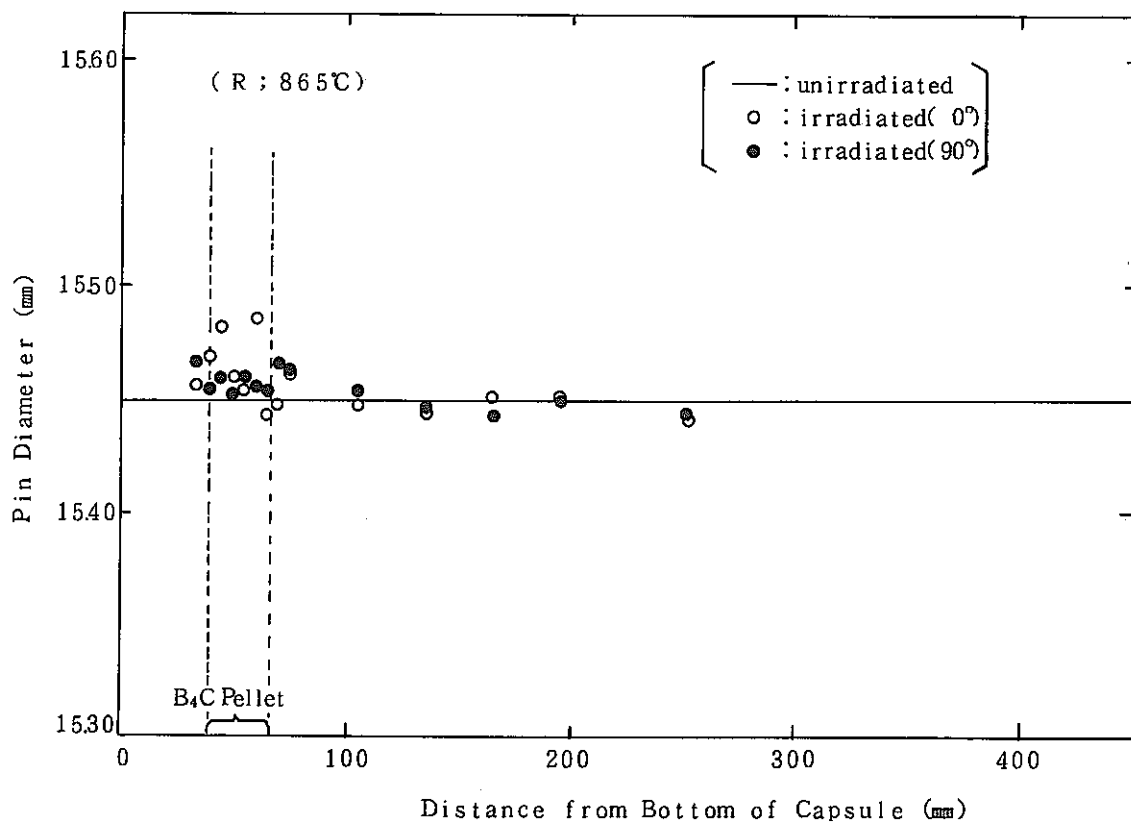


Fig.12 Dimension of Irradiated Capsule (BU001)

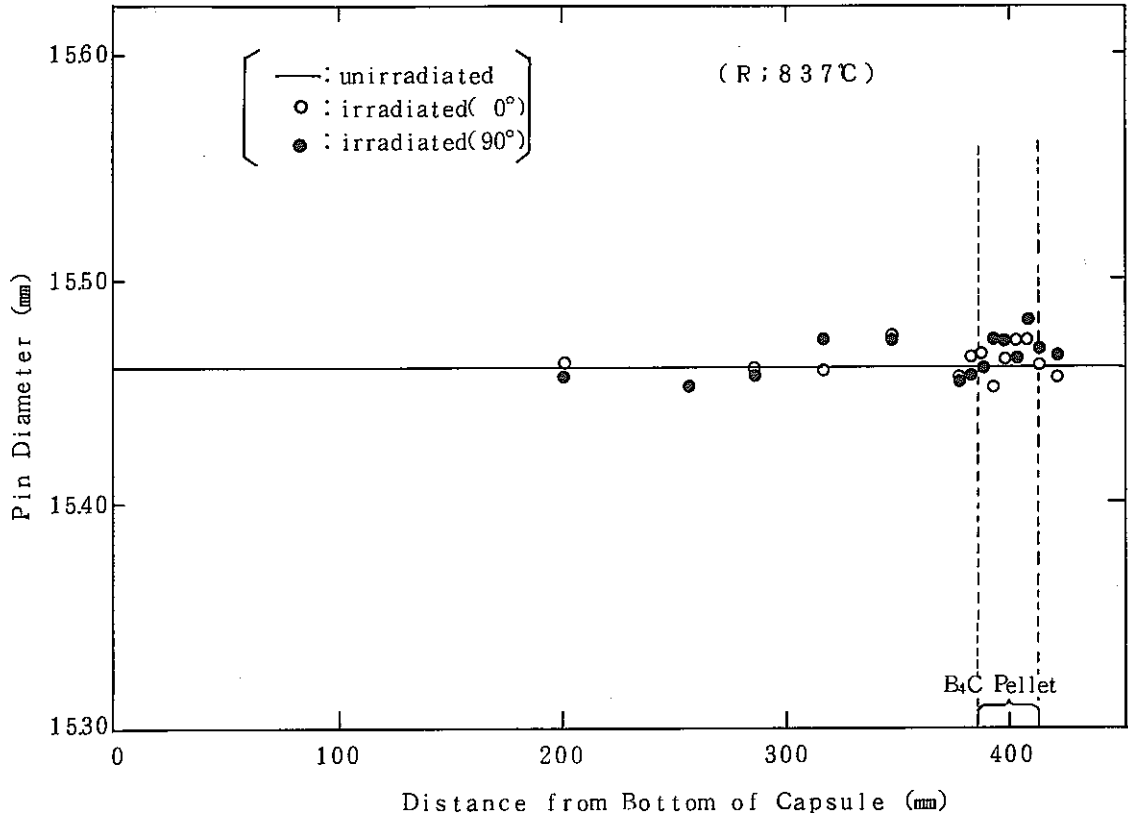


Fig.13 Dimension of Irradiated Capsule (BL005)

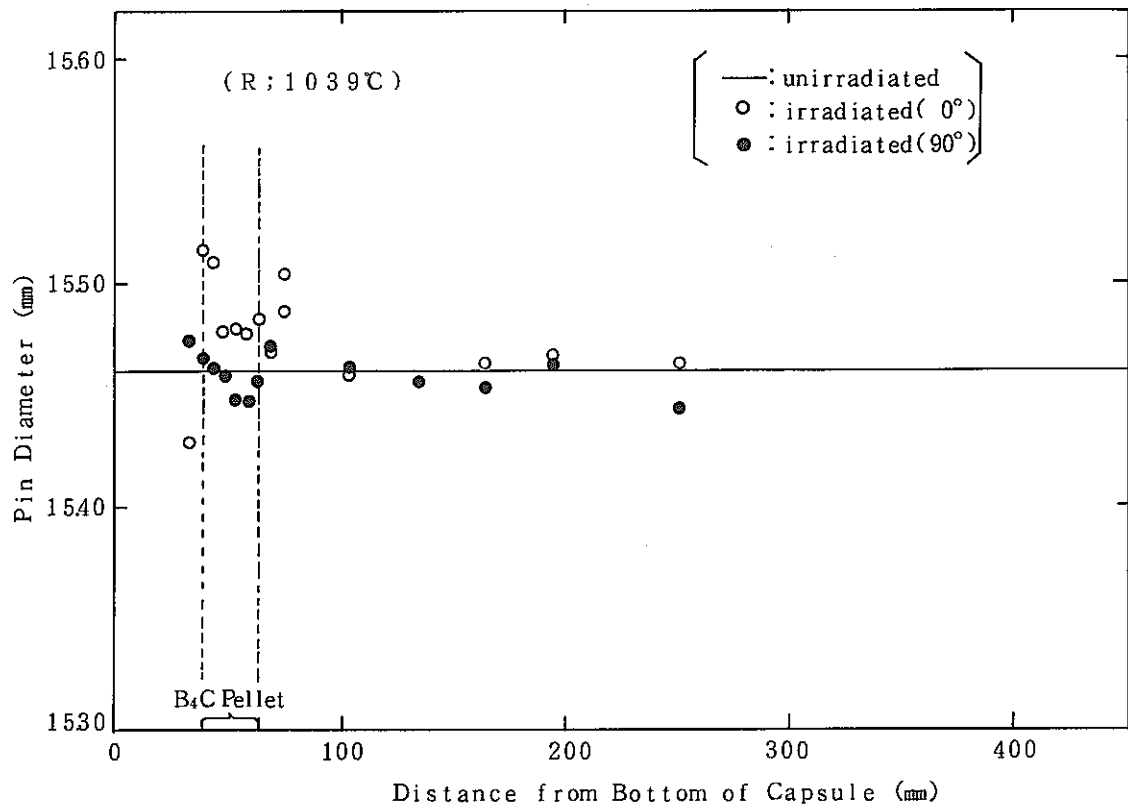


Fig.14 Dimension of Irradiated Capsule (AU001)

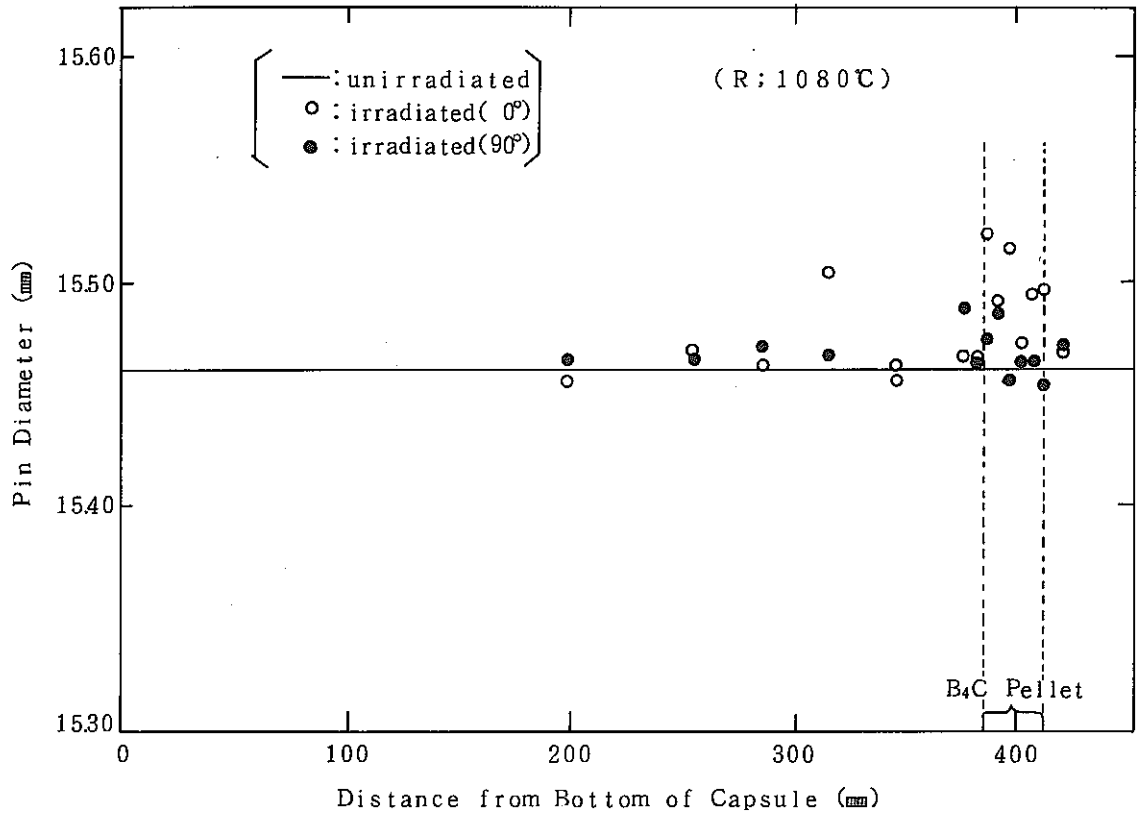


Fig.15 Dimension of Irradiated Capsule (AL003)

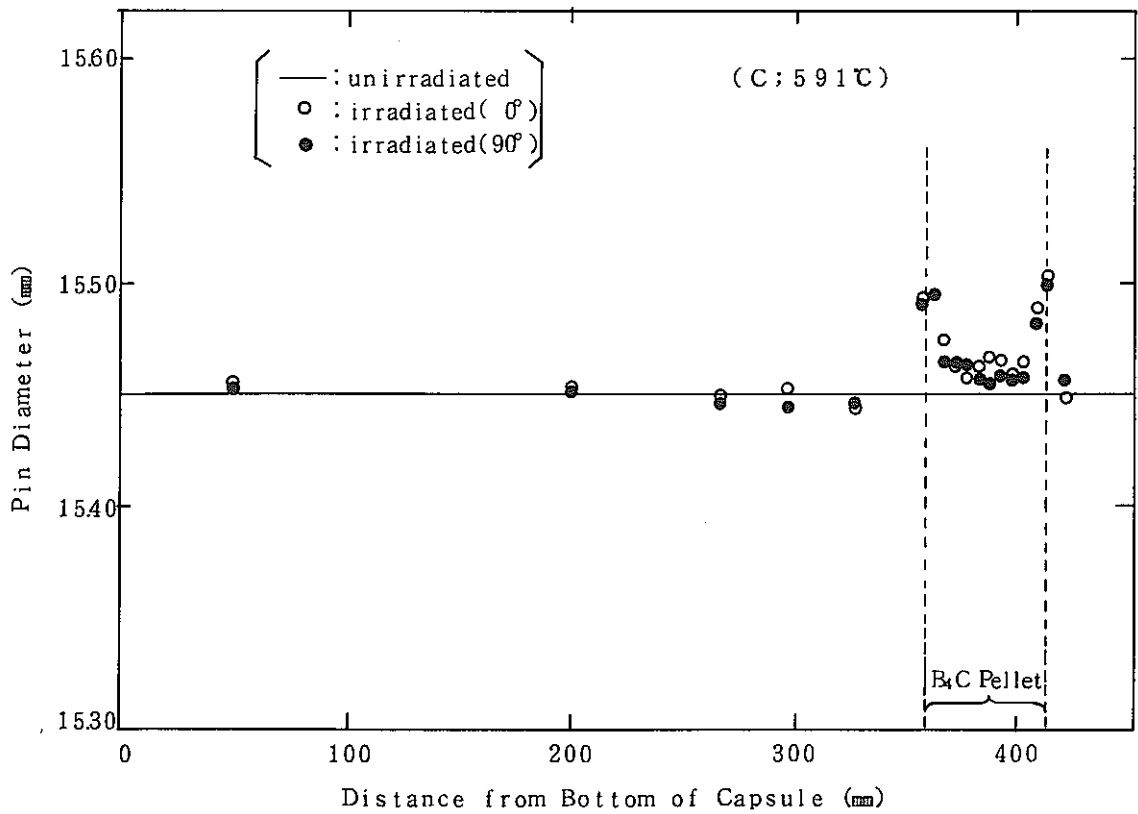


Fig.16 Dimension of Irradiated Capsule (GL001)

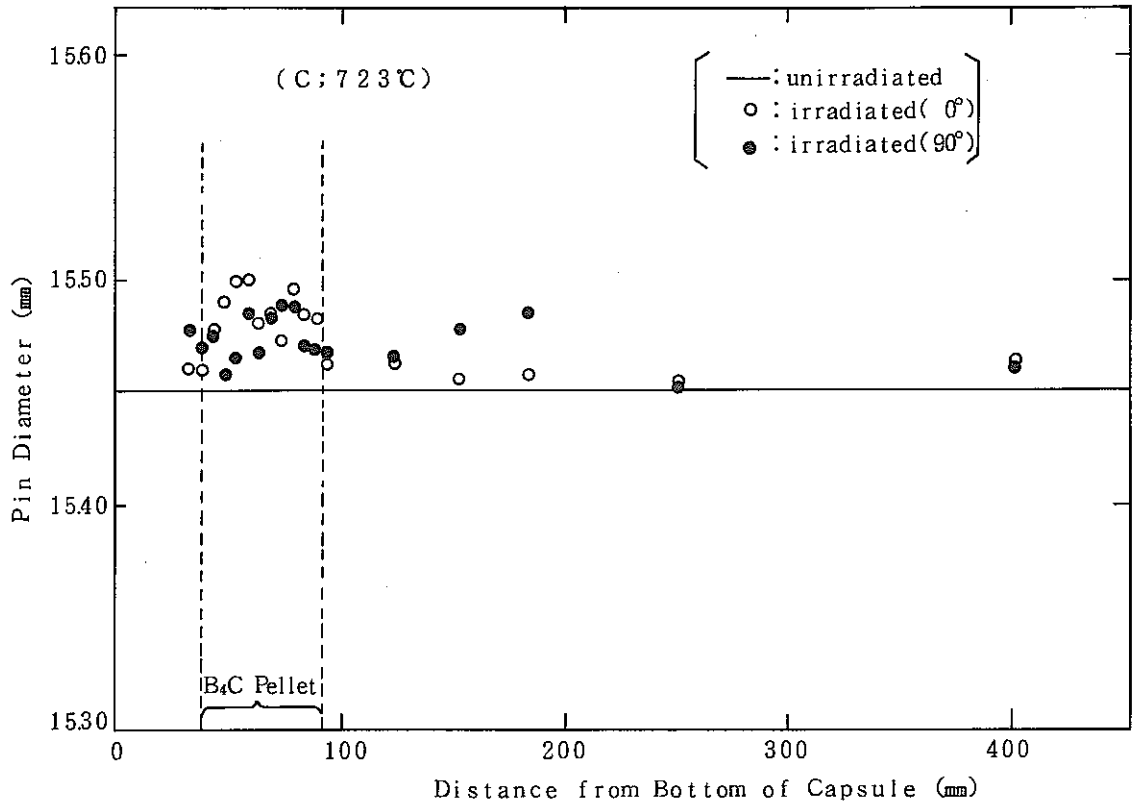


Fig.17 Dimension of Irradiated Capsule (FU002)

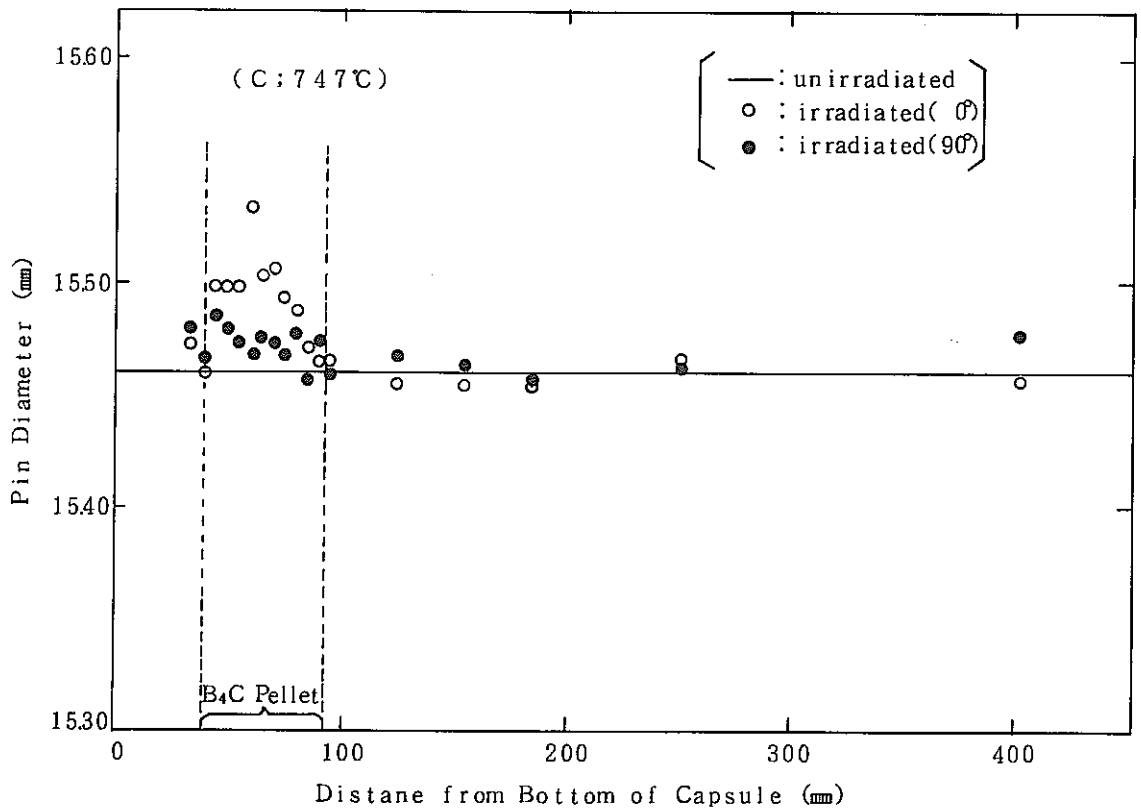


Fig.18 Dimension of Irradiated Capsule (DU002)

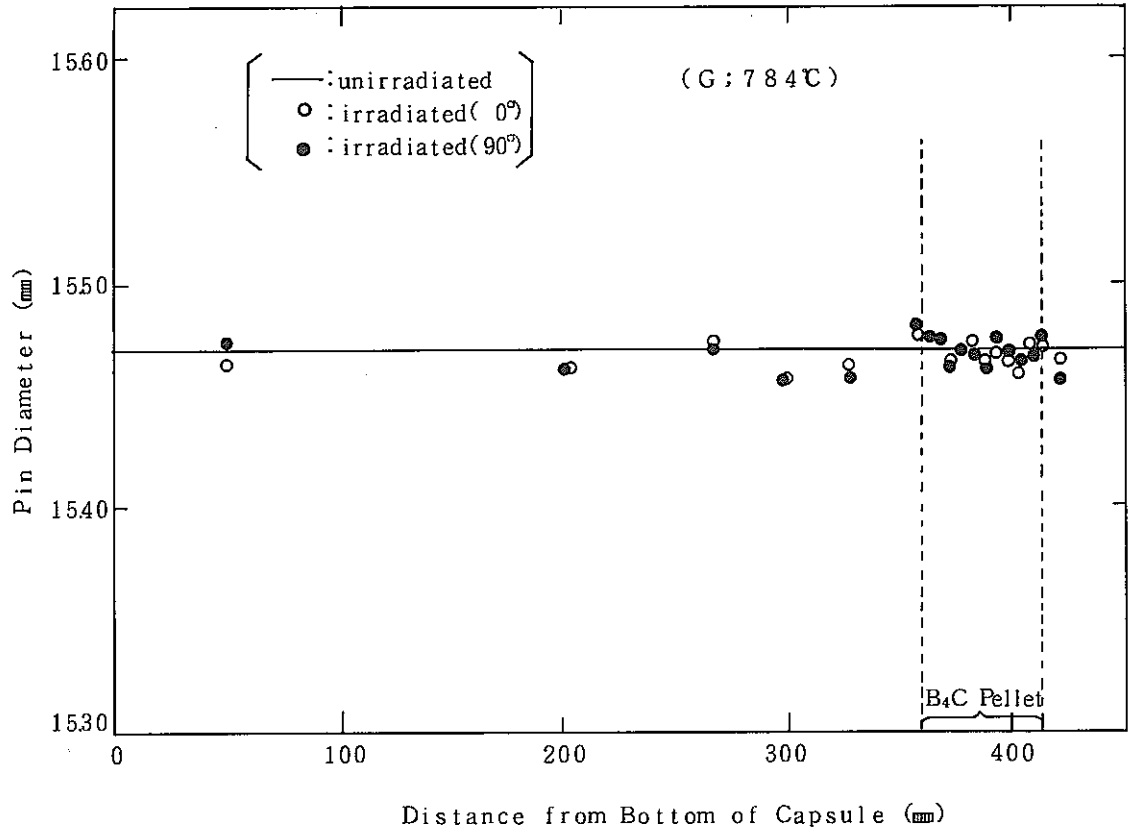


Fig.21 Dimension of Irradiated Capsule (DL001)

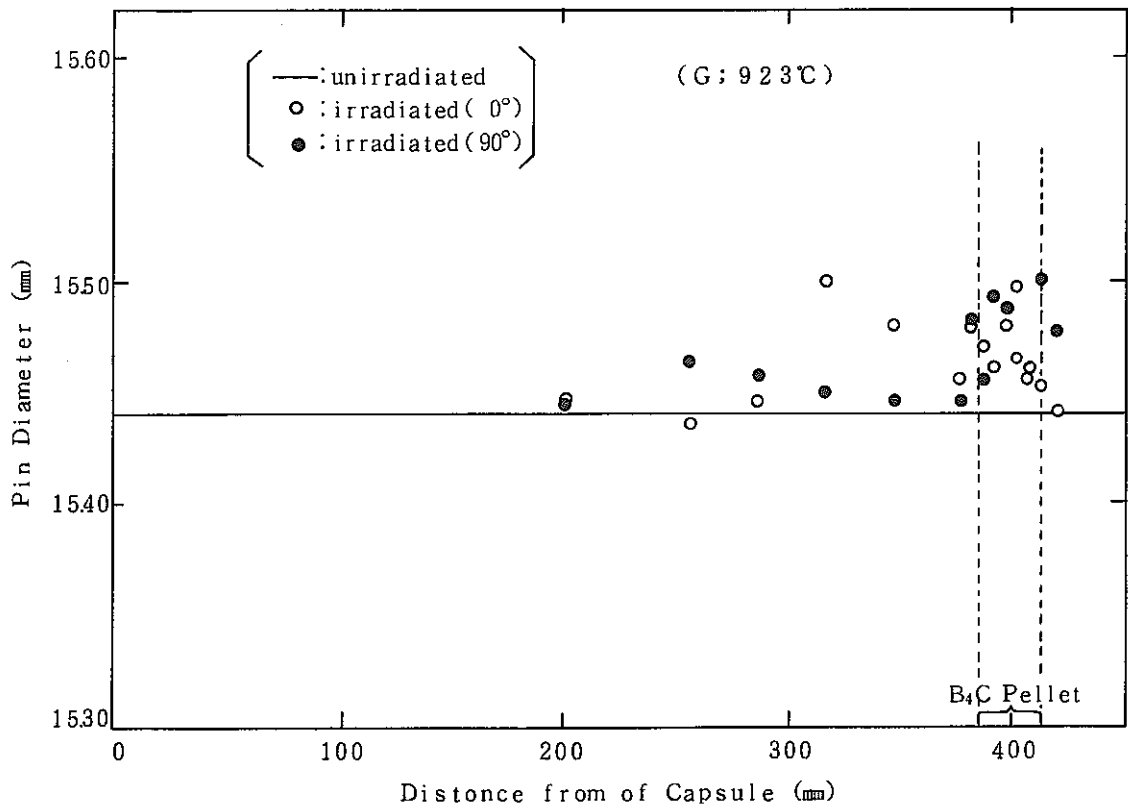


Fig.22 Dimension of Irradiated Capsule (BL001)

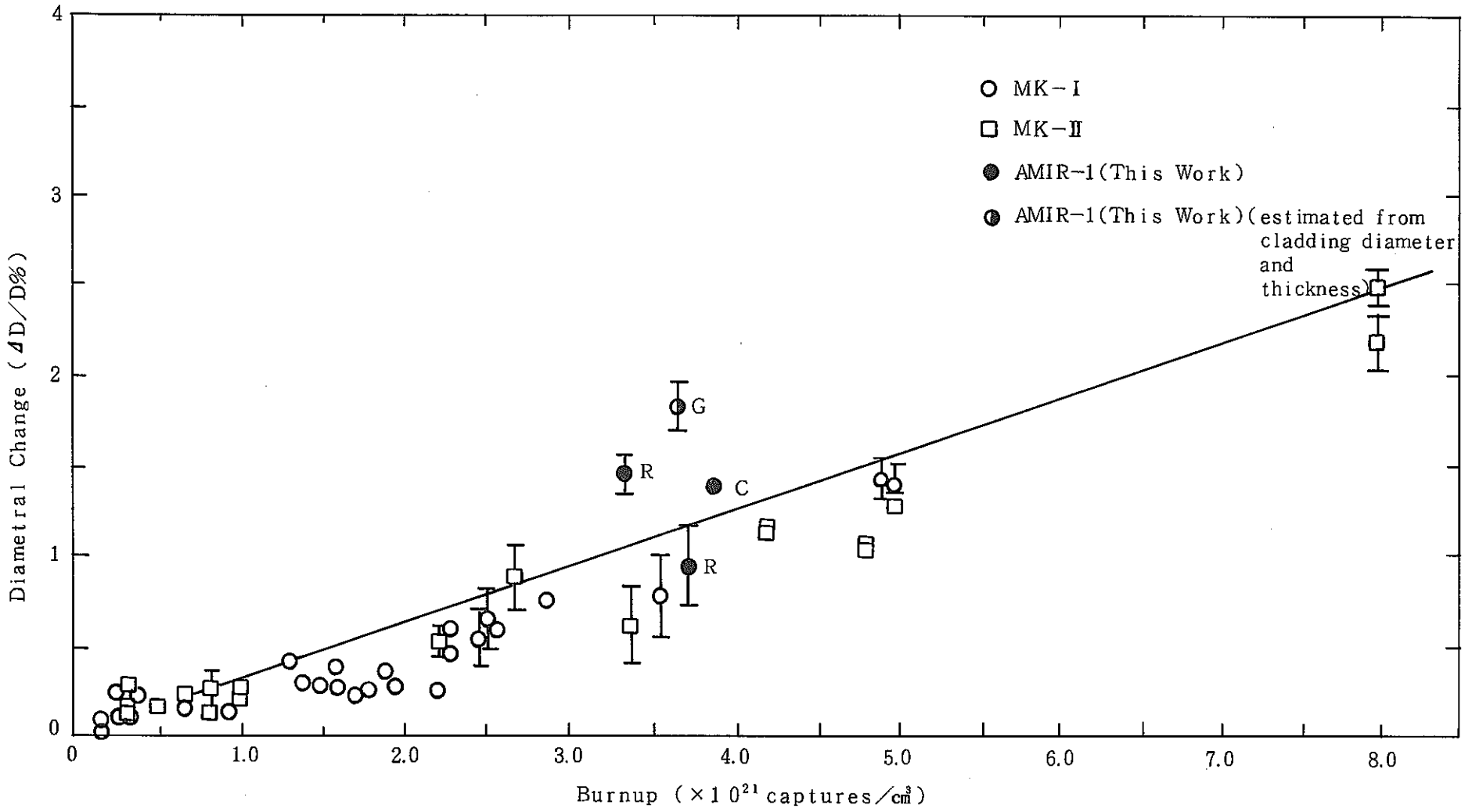


Fig.23 Dimensional Change of Boron Carbide Pellets

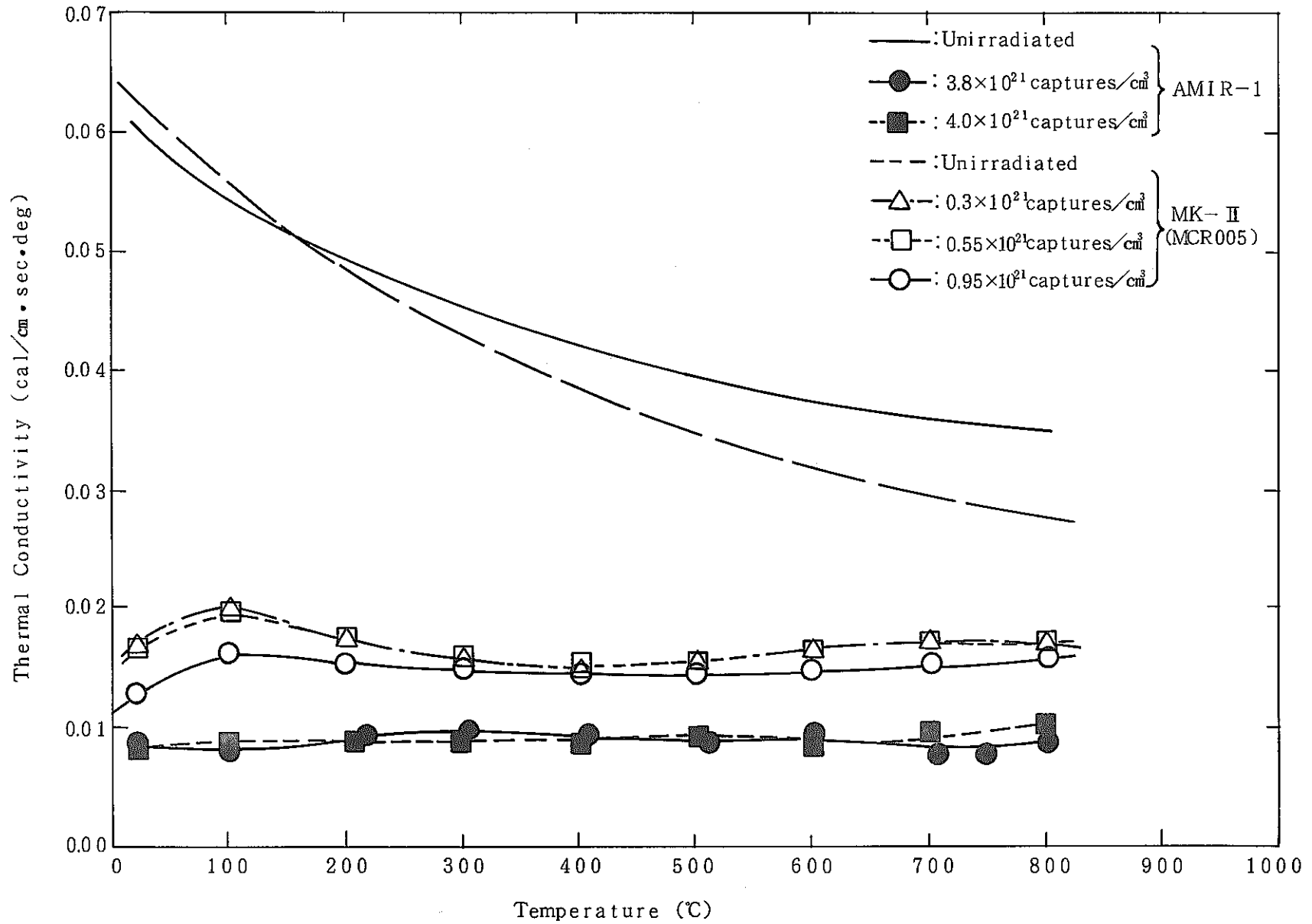
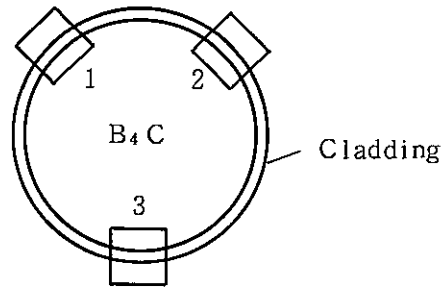
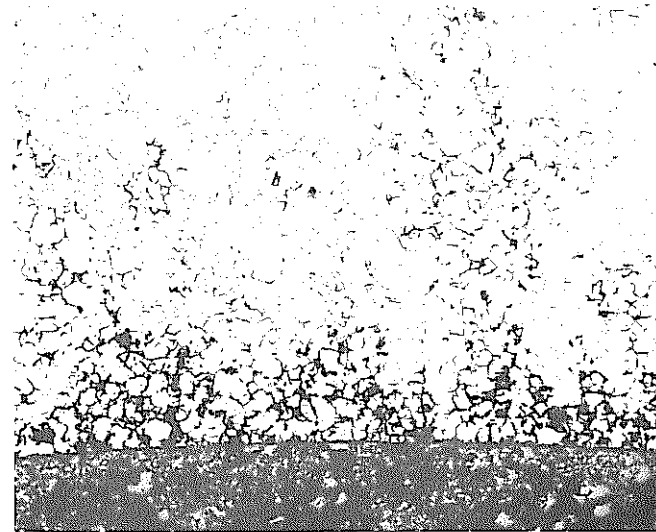


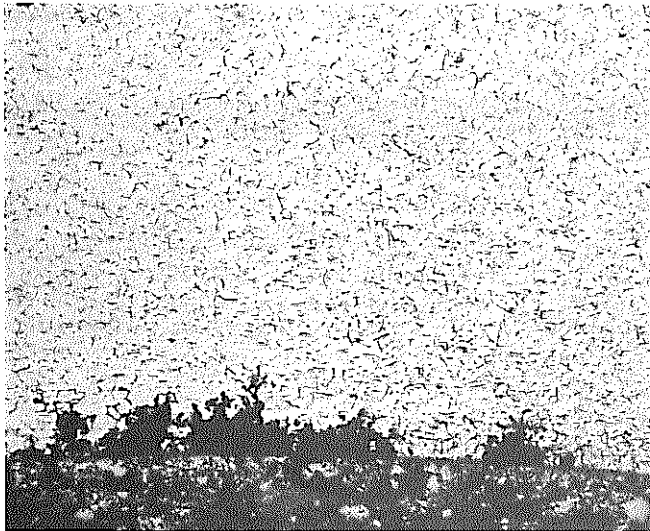
Fig.24 Temperature Dependence of Thermal Conductivity of Unirradiated and Irradiated Boron Carbide Pellets



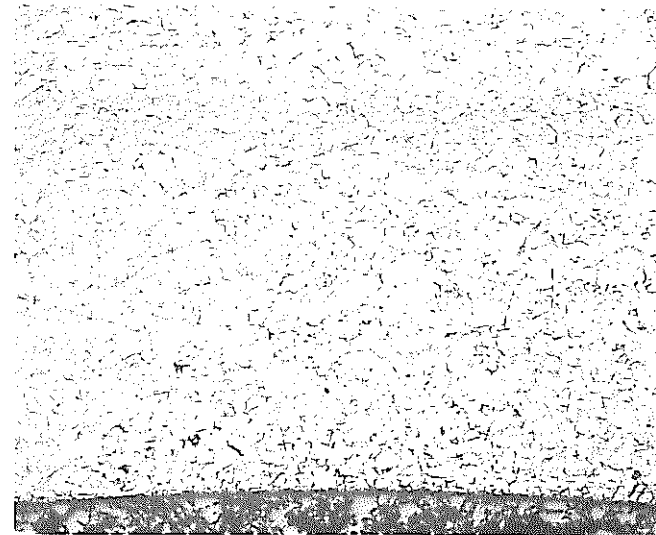
Sampling Position



1

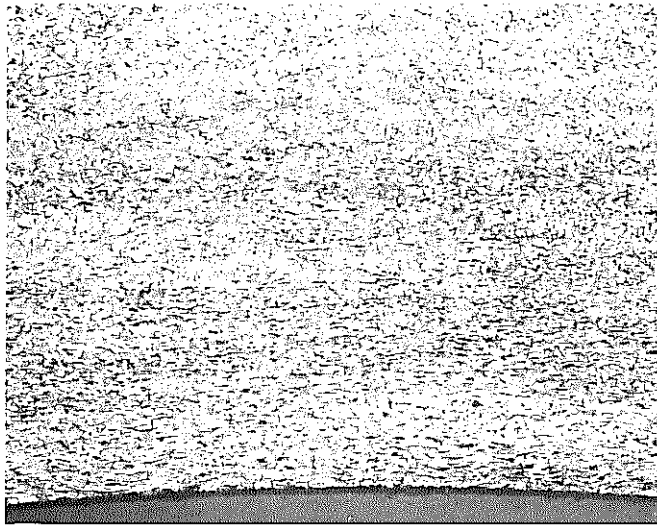


2



3

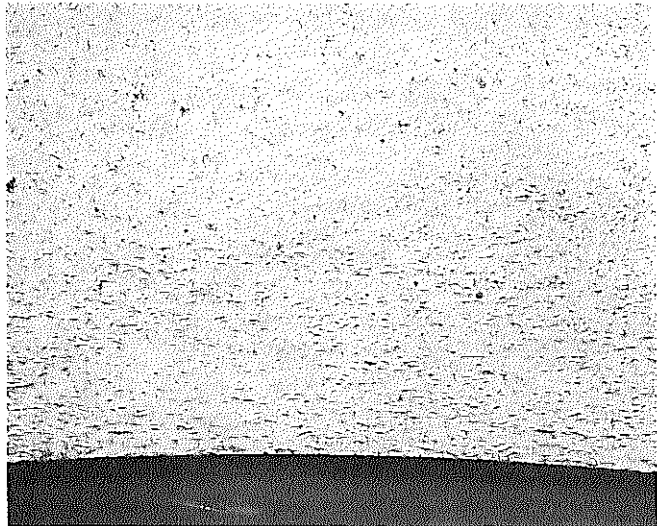
Fig.25 Optical Micrographs of Irradiated Cladding
($2.07 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$), $391 \text{ }^\circ\text{C}$)



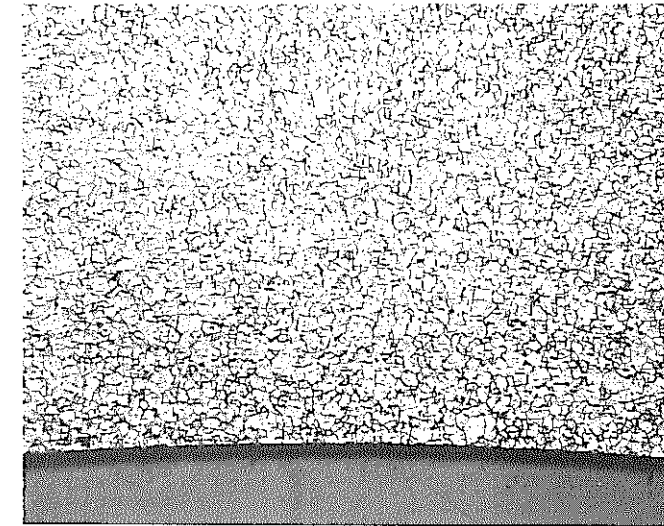
(a) 2.02×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV), 400 °C



(b) 2.26×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV), 388 °C



(c) 2.67×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV), 388 °C



(d) 2.73×10^{22} n/cm² (E>0.1MeV), 387 °C

Fig. 26 Optical Micrographs of Irradiated Absorber Cladding

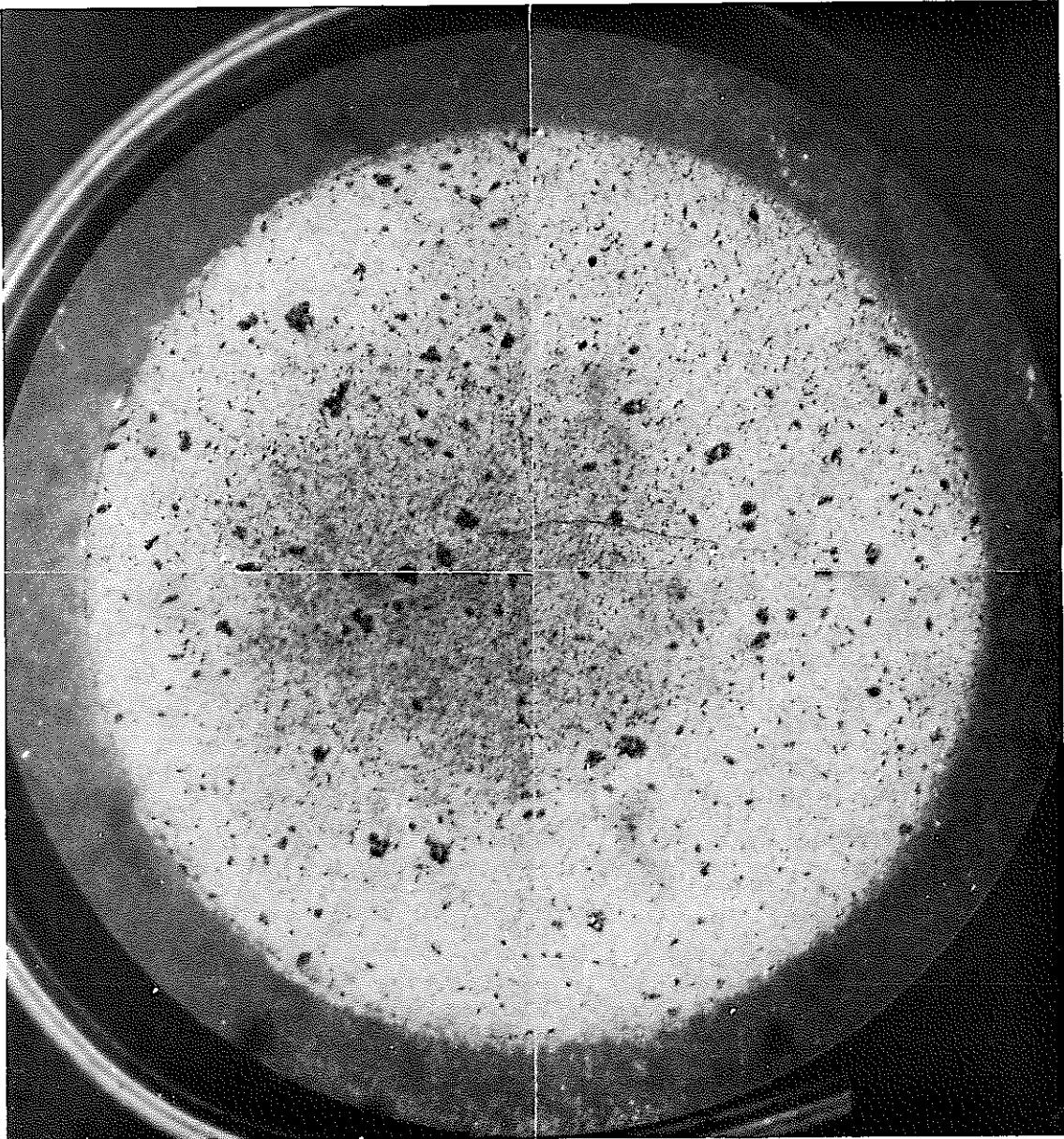


Fig.27 Transverse Section of B_4C Irradiated to a Burnup of 3.4×10^{21} captures/cm² at 576°C (R- B_4C)

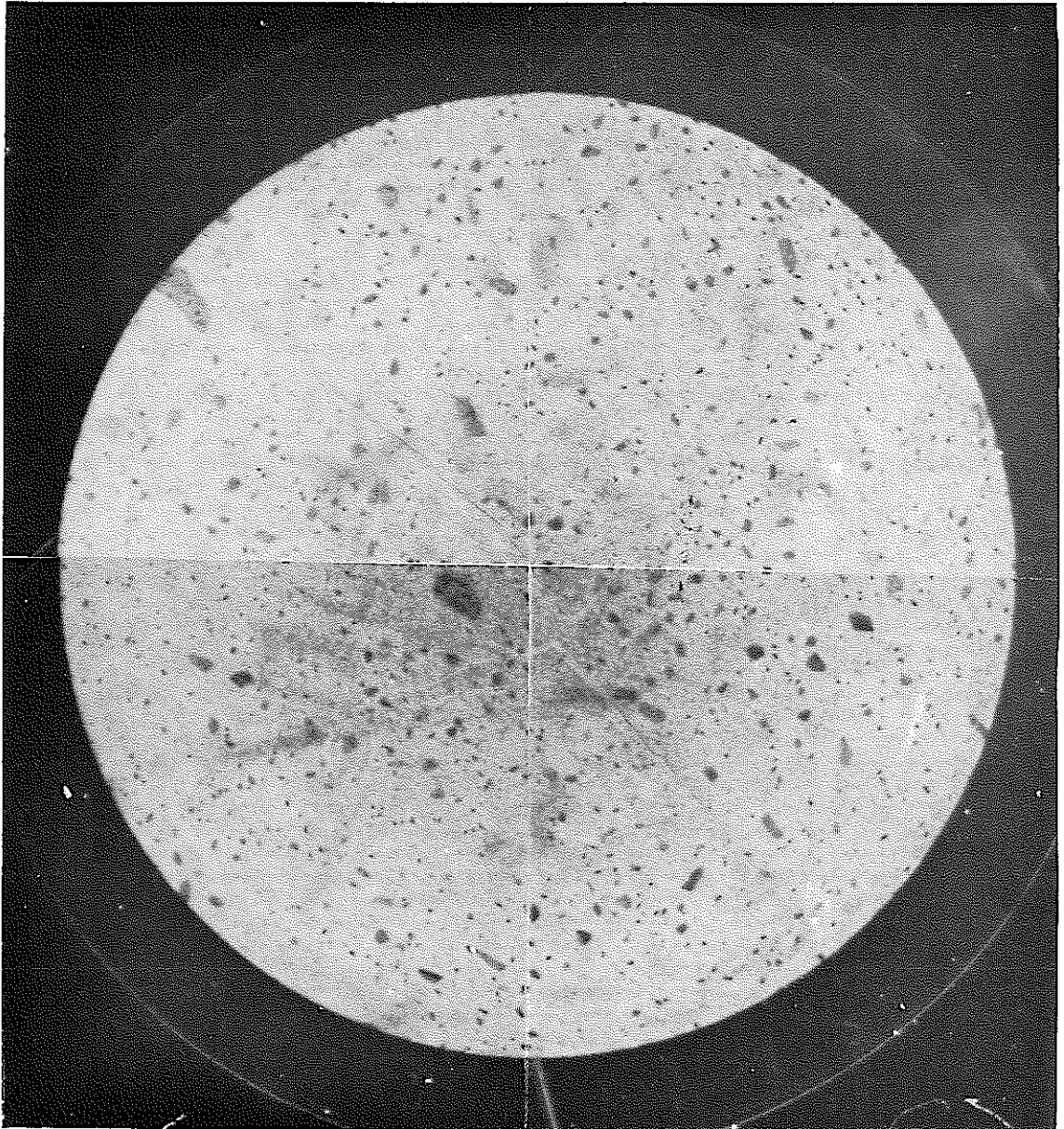


Fig:28 Transverse Section of B₄C Irradiated to a Burnup of 3.61×10^{21} captures/cm² at 591°C (C-B₄C)

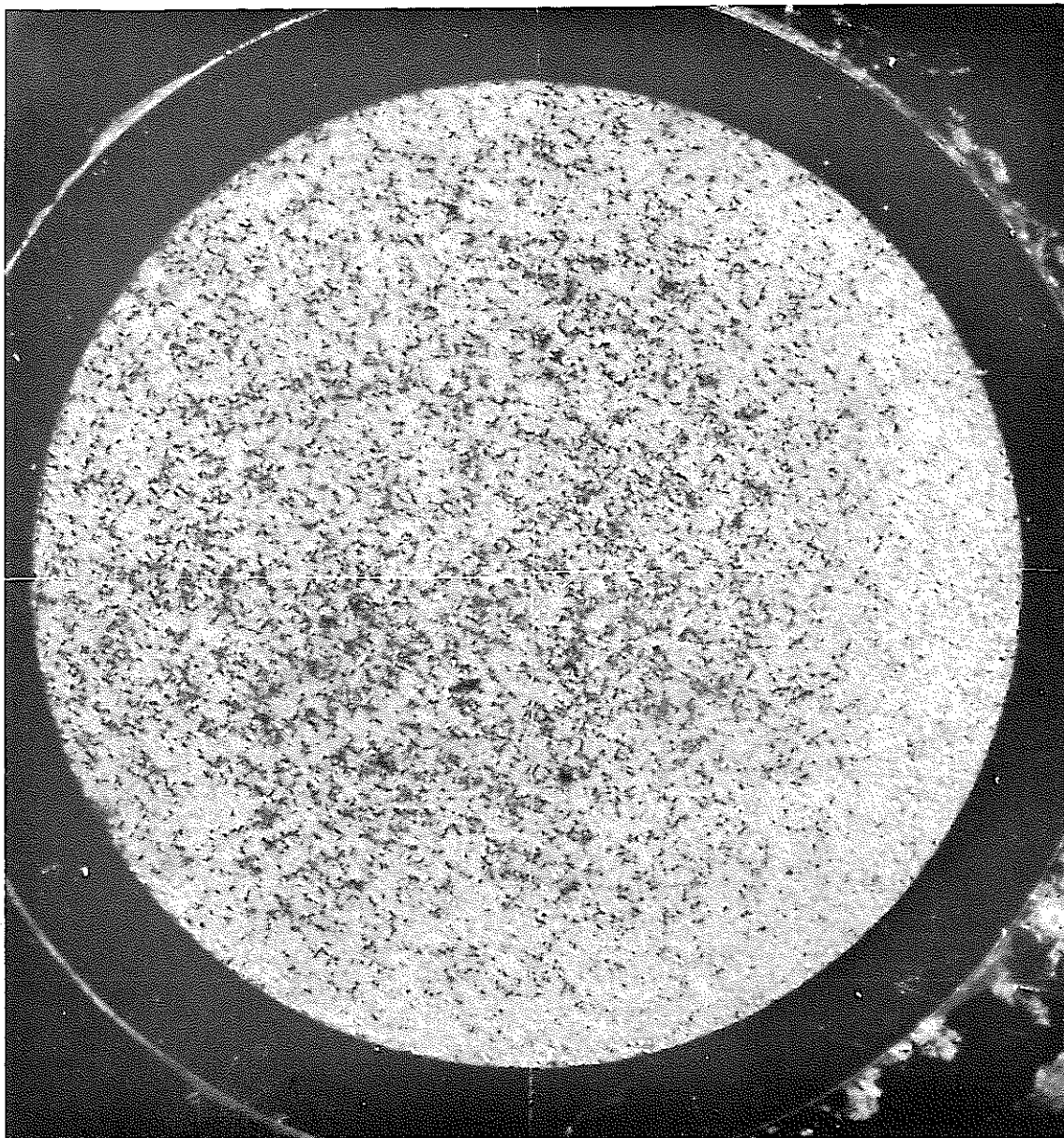
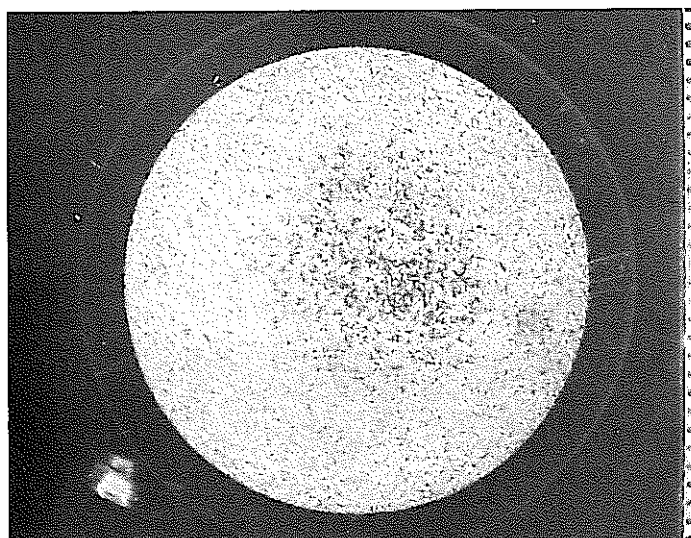
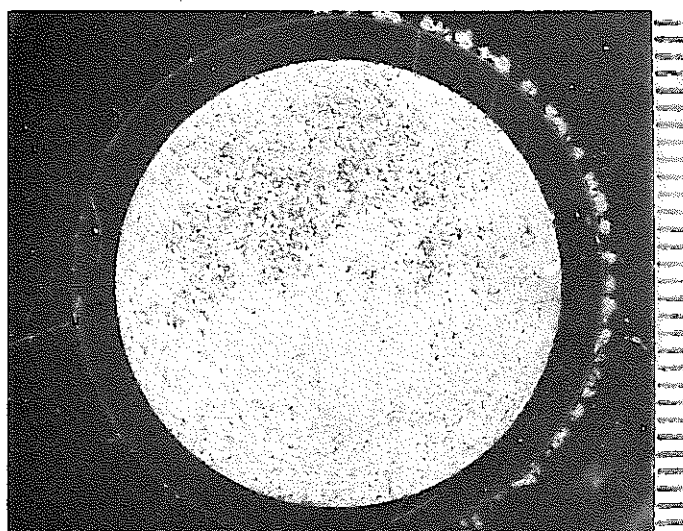


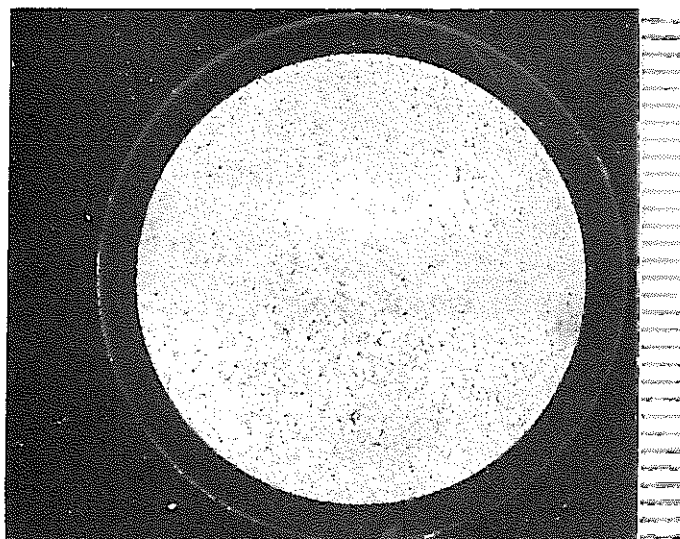
Fig.29 Transverse Section of B_4C Irradiated to a Burnup of 3.7×10^{21} captures/ cm^3 at $597^\circ C$ (G- B_4C)



(a) 4.15×10^{21} captures/cm³, 782°C (material;G)



(b) 4.21×10^{21} captures/cm³, 784°C (material;G)



(c) 4.72×10^{21} captures/cm³, 923°C (material;G)

Fig.30 Radial Sectional View of Irradiated B₄C

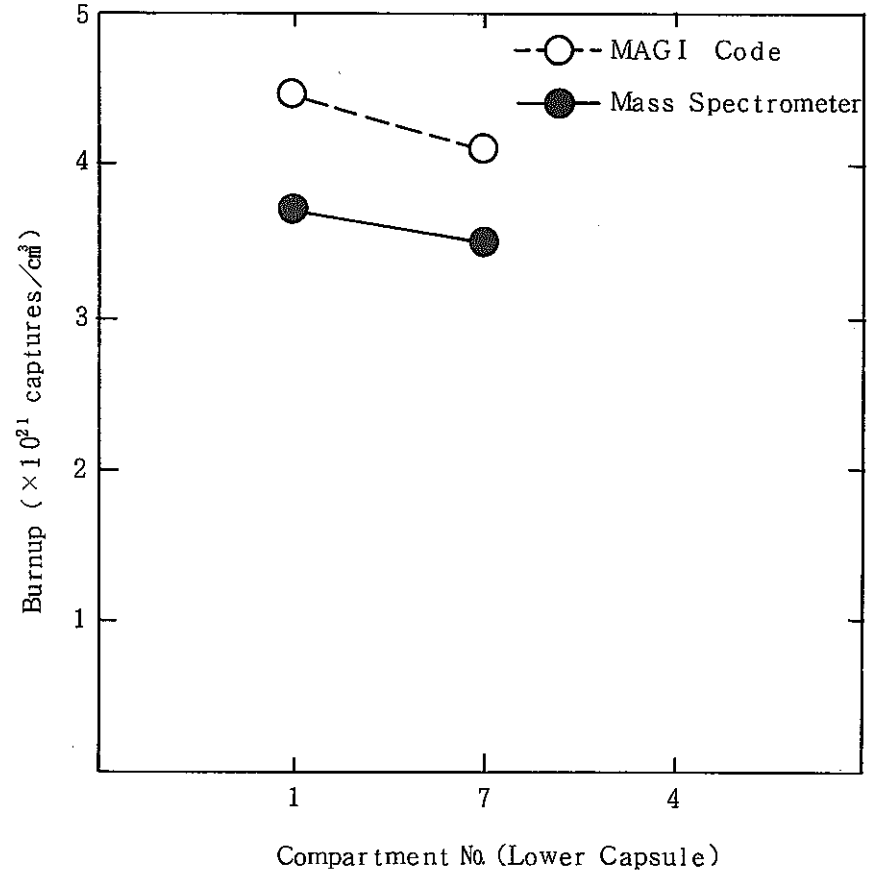
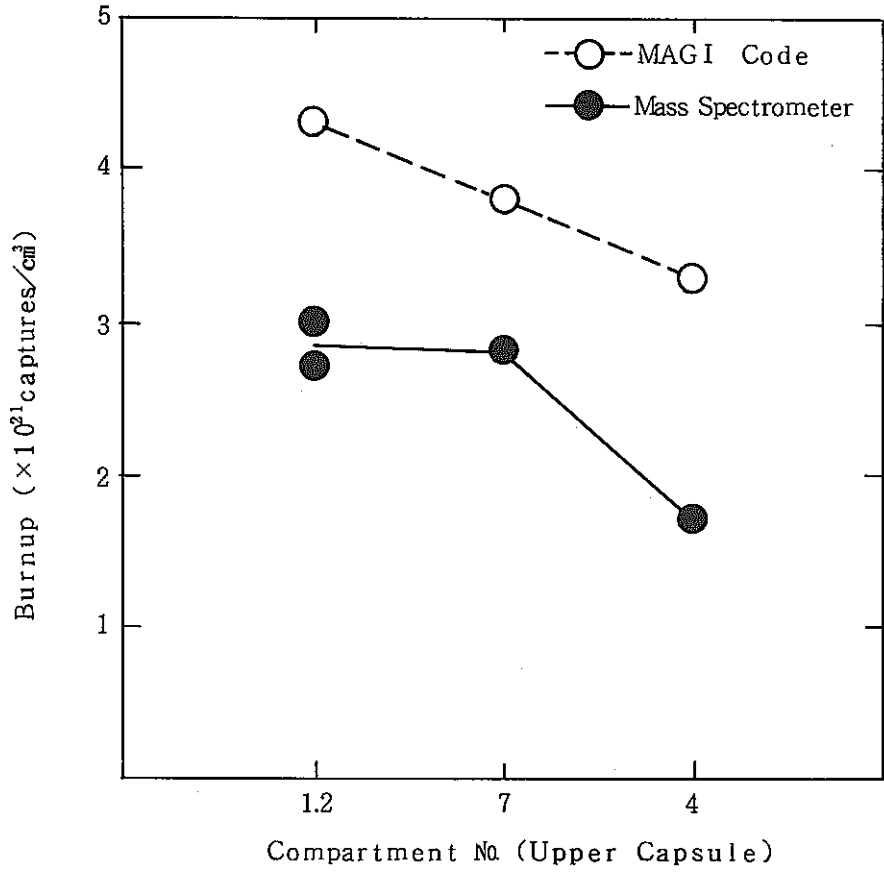


Fig.31 ^{10}B Burnup of Irradiated Boron Carbide

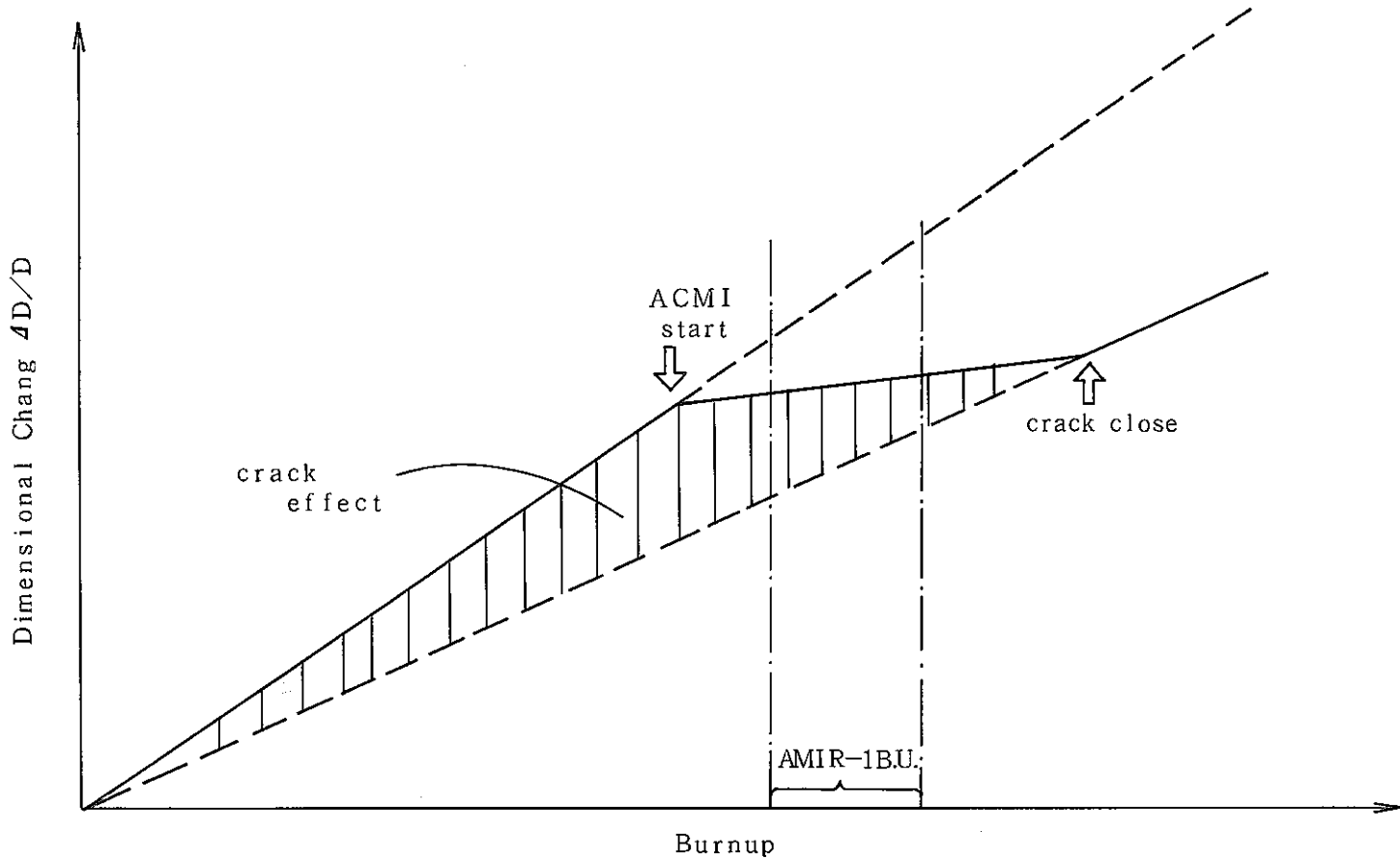


Fig.32 Crack effect on Dimensional change of B₄C Pellet

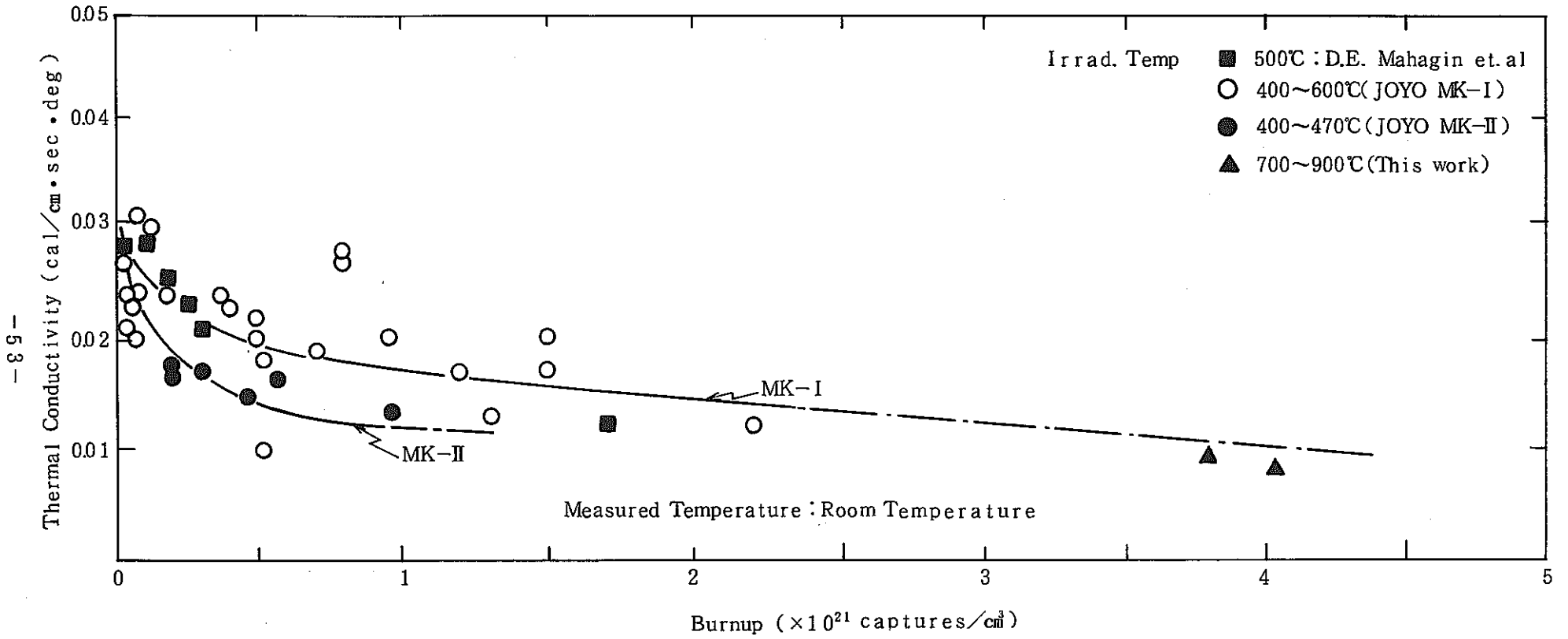


Fig 33 Burnup Dependence of Boron Carbide Thermal Conductivity

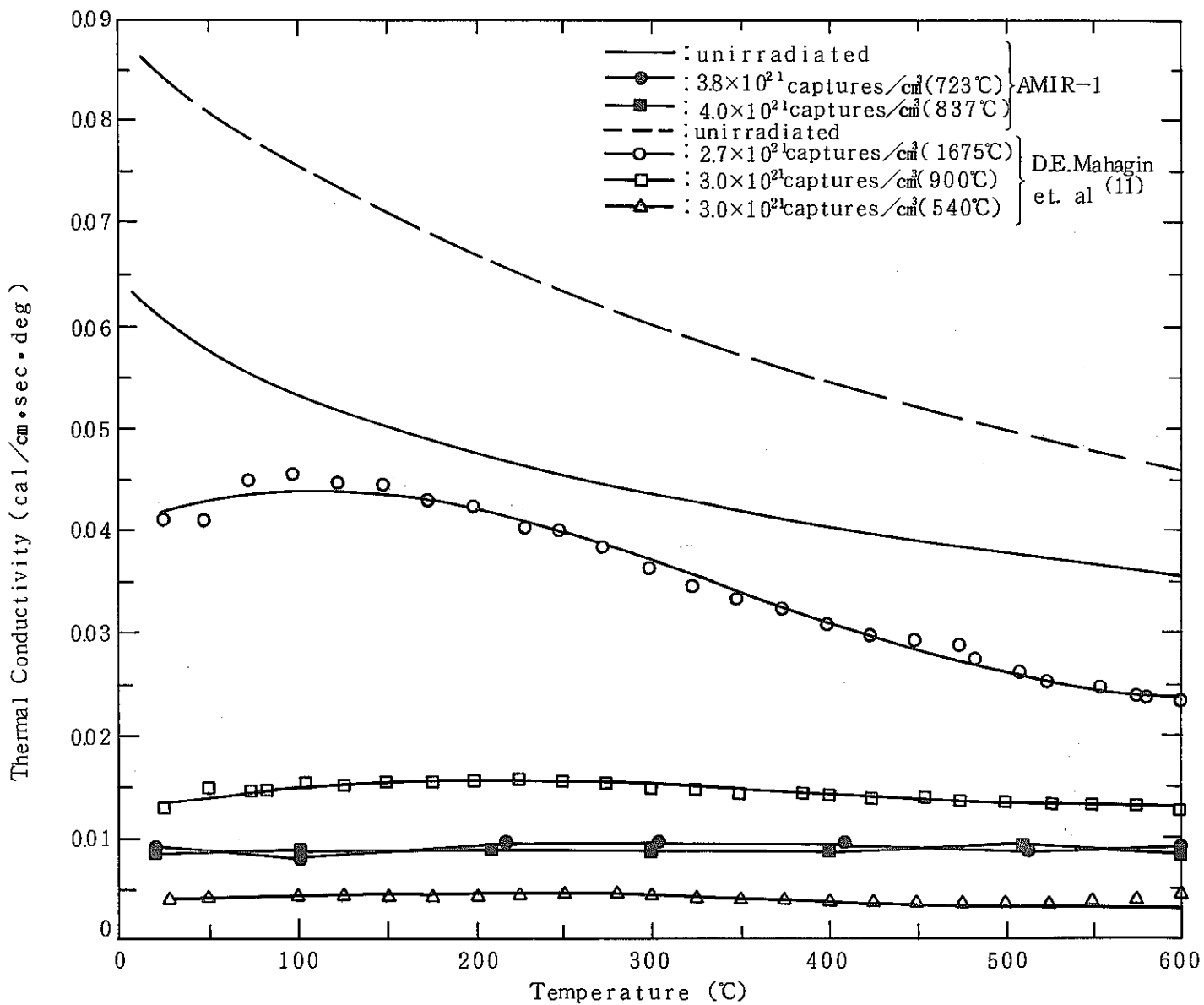


Fig.34 Temperature Dependence of Boron Carbide Thermal Conductivity