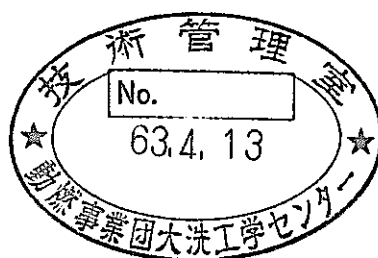


FFDL炉内試験用集合体(F1B, PFB011)

の照射後試験

—燃料要素の破壊試験—



1988年2月

技術資料コード	
開示区分	レポート No.
	PNC TN9410 88-192
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

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)

FFDL炉内試験用集合体(F1B PFB011)の照射後試験

—燃料要素の破壊試験—

実施責任者 谷 賢*
報告者 滑川 卓志* 小部 昭*
大久保忠文* 桑島 幸夫*
三次 岳志** 吉川 勝則*
川澄 清一* 薄井 啓二*
大森 雄* 廣沢 孝志*
立花 利道*

要 旨

「常陽」MK-II B型特殊燃料集合体(PFB011)はFFDL開発のために最大100MWで3日間の短期間で照射された集合体である。照射燃料試験室(AGS)では、人工欠陥ピン及び較正用ピンの2本を対象に照射後試験を実施した。試験項目は、較正用ピンについて金相試験と燃焼率測定試験を実施し、また人工欠陥ピンについてはX線回折測定及び熱拡散率測定を実施した。以下に結果を示す。

- 1) 較正用ピンの軸方向中央最大出力部の燃焼率は0.048 atom% (737 MWd/t)であり、燃料組成は中心空孔及び柱状晶領域の形成には至っていないが、明瞭なレンズ状ボイドや柱状晶が観察された。また燃料ペレットの外径寸法が製造時に比べて1.2~1.8%収縮しており焼きまりを起こしていた。燃料の上端部及び下端部は、ほぼ製造時の組織を示していた。
- 2) 人工欠陥ピンのX線回折測定結果からは、ナトリウム燃料反応生成物は同定されなかった。また、熱拡散率測定を約600~1,600℃、真空雰囲気下で実施してナトリウム-燃料反応の熱拡散率への効果を調べたが、試験中の試料の酸化等の問題により、明瞭な結果が得られなかった。

* 燃料材料開発部 照射燃料試験室

** 現科学技術庁 原子力局 動力炉開発課

目 次

1.	ま え が き	1
2.	燃 料 ピ ン	2
3.	照 射 条 件	2
4.	照 射 後 試 験	2
4.1	金 相 試 験	2
4.1.1	試料調製方法	2
4.1.2	試 験 結 果	2
4.2	燃 焼 率 測 定 試 験	3
4.2.1	試料調製方法	3
4.2.2	測 定 結 果	3
4.3	X 線 回 折 測 定	4
4.3.1	試料調製方法	4
4.3.2	測定結果及び考察	4
4.4	熱 拡 散 率 測 定	6
4.4.1	試料調製方法	6
4.4.2	測 定 手 順	6
4.4.3	測定結果及び考察	7
5.	ま と め	9
6.	参 考 資 料	10

List of table

	Page
Table 1	Fuel pin fabrication parameters 13
Table 2	Metallographic examination in AGS 14
Table 3	Summary of ceramography (PFB011) 15
Table 4	Contraction rate of pellet outer diameter 16
Table 5	Composition of spike solution and natural neodymium ... 17
Table 6	Calculation of effective fission yield for 890563 sample 18
Table 7	Result of isotope analysis and burnup calculation for PFB011 890563 sample 19
Table 8	Result of O/M ratio measurement using the X-ray diffractometer 20

List of figures

	Page
Fig. 1	Schematic drawing of fuel pin 21
Fig. 2	Irradiation position of PFB011 subassembly in JOYO MK-II core 22
Fig. 3	Fuel pin position in PFB011 subassembly 23
Fig. 4	Sampling of specimens for PIE in AGS 24
Fig. 5	Flow diagram of metallographic examination in AGS 25
Fig. 6	Axial profile of restructured region (D/D ₀) 26
Fig. 7	Cutting diagram of PFB011 8905 pin for burnup measurement 27
Fig. 8	Specimen preparation process for burnup measurement in AGS 28
Fig. 9	X-ray diffraction patterns of predefected pin fuel 29
Fig. 10	Result of search-match analysis for PFB011 predefected pin fuel 30
Fig. 11	Result of search-match analysis for fuel-sodium reaction products 31

	Page
Fig. 12	Ambient temperature condition for thermal diffusivity measurement 32
Fig. 13	Thermal diffusivity of $(U,Pu)O_2$ fuel irradiated in JOYO MK-II 33
Fig. 14	Comparison between Gibby's data and this work for thermal diffusivity 34
Fig. 15	Calculated oxygen potential versus temperature for $(U_{0.8} Pu_{0.2})O_{2-x}$ at zero burnup based on Woodley model .. 35

List of photo

	Page
Photo 1	Macrographs of "JOYO" PFB011 core fuel (8905 pin) 36
Photo 2	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890542 sample, as polished) 37
Photo 3	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890542 sample, etched) 38
Photo 4	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890562 sample, as polished) 39
Photo 5	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890562 sample, etched) 40
Photo 6	Ceramograph of "JOYO" PFB011 core fuel (890582 sample, as polished) 41
Photo 7	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890582 sample, etched) 42
Photo 8	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (8905A2 sample, as polished) 43
Photo 9	Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (8905A2 sample, etched) 44

1. ま え が き

「常陽」MK-II B型特殊燃料集合体PFB011は、破損燃料集合体検出装置(FFDL)の開発試験のために炉心位置1D1で、100 MW第7サイクル終了後の1985年4月17日から4月19日までの期間に照射された集合体であり、集合体の平均燃焼度は510 MWd/tである。本集合体は、4種類の燃料要素から構成されており、その燃料要素を以下に示す。

- 1) 人工欠陥ピン(2本) : プレナムに人工欠陥を付けた炉心燃料ピン
- 2) 校正用ピン(1本) : 健全な炉心燃料ピン
- 3) ダミ - (I)(1本) : 燃料の代わりにステンレス鋼を装填し、またタグガスキャプセルが装填されている。
- 4) ダミ - (II)(26本) : 燃料の代わりにステンレス鋼が装填されている。

AGSでは、FFDL開発試験のバックアップデータの取得を行うために、下記の2本の燃料ピンを対象に照射後試験を実施した。

- 1) 8905 ピン(校正用ピン)
- 2) 8922 ピン(人工欠陥ピン)

試験項目は、校正用ピンを対象に(a)金相試験(燃料組織観察)及び(b)燃焼率測定、また人工欠陥ピンを対象に(c)物性試験(X線回折測定及び熱拡散率測定)を実施した。

2. 燃 料 ピ ン

PFB011 集合体中の本照射後試験に供された燃料ピンを Fig.1 に示し、またその仕様を Table 1 に示す。

3. 照 射 条 件

本集合体の炉心装荷位置を Fig. 2 に示す。また本集合体において破壊試験を実施した燃料ピンの集合体内装荷位置を Fig. 3 に示す。さらに集合体の照射条件を以下に示す。

- ① 燃焼度（集合体平均）：510 MWd/t
- ② 照射期間：100 MW 第 7 サイクル終了後の約 3 日間
- ③ 集合体ピークフルエンス： 4.29×10^{20} n/cm² ($E \geq 0.1$ MeV)
- ④ 線出力（要素平均）
 - (イ) 試験用燃料ピンについては約 320 w/cm
 - (ロ) 較正用燃料ピンについては約 330 w/cm
- ⑤ 照射位置：1 D1 (Fig. 2 を参照のこと)

4. 照 射 後 試 験

AGS において実施した各試験の項目と、試料採取位置を Fig. 4 に示す。

4.1 金相試験

4.1.1 試料調製方法

金相試験工程を Fig. 5 に示す。また、金相試験の実施内容を Table 2 に示す。

4.1.2 試験結果

較正用ピン（8905 ピン）から採取した 5 試料の代表的な金相断面写真を Photo 1 ～ 9 に示す。これらの金相断面写真より以下の結果が得られた。

1) 燃料組織観察

8905 ピン（最大線出力約 385 w/cm）は、燃料カラム軸方向中央部（最大出力部）付近に、明瞭なレンズ状ボイドや柱状晶が観察されたが（Photo 5 参照）、まだ柱状晶領域の形成までには至っておらず中心空孔もみられなかった。燃料組織は、上端部及び下端部の試料を除き断面中央部よりガスバブル領域、高密度化領域、不変化領域の 3 領域が

順次存在しているのが観察された。上端部及び下端部は外周部と中心部で結晶粒径に若干差が認められたが全般に製造時に近い組織を示していた。クラックは、下端部を除いて貫通クラックや径方向及び周方向クラックが多数入っており、残留ギャップ寸法が、軸方向中央部（直径ギャップ寸法 161 μm ）より上端部（124 μm ）の方で狭いのはペレット内に発生したクラックの影響によるものと考えられる。核分裂生成物と見られる白色析出物は観察されなかった。

画像解析による測定結果を Table 3 に示す。組織領域径 D/D_0 (D_0 は燃料ペレット外径) の軸方向分布を Fig. 6 に示す。

次に、焼きしまり評価を行うため燃料ペレット外径寸法の測定を行った。方法は、画像解析により測定した燃料ペレット面積 (A) からクラックの面積 (B) を除いた燃料ペレット面積 (A') を求め、それより燃料ペレット外径 ($D = 2\sqrt{A'/\pi}$) を算出した。その測定結果を Table 4 に示す。以上より燃料カラム上端部及び下端部を除き、燃料ペレット外径は製造時ペレット外径より 1.2~1.8% 収縮しており、焼きしまりを起こしていると考えられる。

2) FCCI の観察

燃料-被覆管の化学的相互作用 (FCCI) は、各試料に観察されず被覆管内面及び外面共健全であった。

4.2 燃焼率測定試験

^{148}Nd を指標核種として同位体希釈法により燃焼率を求めた。

4.2.1 試料調製方法

試料の採取位置を Fig. 7 に、また試料の調製方法及び手順を Fig. 8 に示す。

4.2.2 測定結果

Table 5 に同位体希釈法計算に使用したスパイク液の濃度及び各スパイク元素の同位体組成等のデータ (質量分析値) を示す。Table 6 に燃焼率計算で使用した ^{148}Nd 、 ^{146}Nd 及び ^{145}Nd の実効核分裂収率を示す。

以上のデータ及び質量分析結果から求めた PFB011 の燃焼率は 0.048 atom%(737MWd/t) であった。

ここで、燃焼率 (atom%) - 燃焼度 (MWd/t) の換算係数は、MAGI コードの中性子発熱と r 発熱の出力比より求めた。燃焼率計算結果の詳細を Table 7 に示す。

4.3 X線回折測定

本試験では、

- 1) 燃料-ナトリウム反応生成物の同定 (人工欠陥ピン燃料)
- 2) ナトリウム及び反応生成物と共存する燃料のO/M比測定
- 3) 熱拡散率測定試料のO/M比測定

を目的に、定性分析および格子定数測定 (O/M比測定) を実施した。

4.3.1 試料および試料調製方法

測定に供した試料は、人工欠陥ピンから定性分析用に1試料、格子定数測定用に2試料 (熱伝導度測定試料を含む)、また校正用ピンから格子定数測定用に1試料の計4試料である (Fig. 4 参照)。

1) 定性分析用試料調製

人工欠陥ピン燃料中に含まれるナトリウムは、取扱い雰囲気中の水分や酸素との反応性が著しく大きく、また燃料-ナトリウム反応生成物も同様に水分等と反応し易いと考えられる。これに対し AGF のセルボックスは空気雰囲気であるため、試料調製は低速度精密カッターによる切断のみとし、水を使用せず短時間で行った。

2) 格子定数測定用試料調製

燃料の格子定数は、空气中雰囲気でも著しい変化はない。また格子定数の測定は定性分析 (反応生成物の同定) に比べ X 線で照射される試料面の平滑さが高いことが要求される。このため格子定数測定用の試料は、精密カッターで縦割り切断後、研磨仕上げを行った。但し、切断および研磨工程を通して潤滑剤、洗浄液等には水の使用を避けるため、それぞれテトラクロロエチレン、アルコール等を使用した。

3) 熱拡散率測定用試料調製

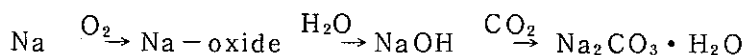
熱拡散率測定済の試料は、小さな試料しか採取できないので、試料を X 線回折用マウントに両面テープで固定する方法で測定を行った。

4.3.2 測定結果及び考察

1) 定性分析

X 線回折による定性分析は、測定で得られた回折ピークパターンを JCPDS カードの標準パターンと照合することによって行った。測定条件を Table 8 に示す。測定で得られた回折パターンを Fig. 10 に示す。図中 a) は不活性ガスを充填した試料保管容器を開封してから 24 時間以内に測定したときの回折パターンである。同様に b) c) はそれぞれ 48 時間及び 72 時間で測定したものである。回折パターン b) c) は a) に比べかなり多くのピークが現われている。これは時間の経過に伴い試料に含まれる燃料-ナトリウム反応生成物が雰囲気中の水分や酸素と反応して化学形態が変化したためと考えられる。

これらのチャートを JCPDS カードと照合したところ全チャートから燃料である (U, Pu)O₂ 相が同定された (Fig. 10)。また b) c) からは Na₂CO₃・H₂O も同定された。これは試料中の Na が空気中の O₂, H₂O, CO₂ と反応し、定性的には次のように変化したものと考えられる。



PFB011 では、炉内運転中の燃料ピン中にナトリウムが侵入する可能性があることから燃料とナトリウムとの反応生成物の生成が考えられたが、今回の測定試料からは同定することができなかった。Fig. 11 は、今回測定された回折パターンとナトリウム-燃料反応生成物の代表例¹⁾²⁾³⁾の基準回折パターンを比較して示したものである。実測と基準パターンを比較すると、回折強度の高いピークはほぼ一致しているものの、強度の低いピークは一致しておらず、この測定結果からナトリウム-燃料反応生成物の存在を確定することはできなかった。しかしながら今回の測定については、次のような解決すべき課題が残った状態での測定であったので、この結果からすぐにナトリウム-燃料反応物の生成を否定することはできない。

- ① 燃料-ナトリウム反応生成物は、室温でも空気中の O₂, H₂O, CO₂ を多量に吸収して結晶構造が変化し易いので、測定時間を十分に長くとれない。
- ② ナトリウム-燃料反応生成物の化学組成や結晶構造については十分な定説がないが、R. Lorenzelli¹⁾らの報告によれば、例えば Na-O-燃料系の平衡状態における反応生成物 Na₃MO₄ (M は U, Pu) の存在量は、初期の MO₂ 量の 1% 以下である。実際の燃料ピン中では燃料の全てが反応するわけでないので、更に少ないと考えられることから、より長時間の測定が必要である。

これらの課題を解決するためには、測定雰囲気制御が必要であり、今後セル内雰囲気の不活性ガス化等の対応を検討していく。

2) 格子定数の測定及び O/M 比の推定

照射燃料の格子定数は、最も 2θ の大きい 5 本の回折ピークから得られた格子定数を、cos²θ を外挿関数として 2θ を 180° に外挿して求めた⁴⁾。

MOX 燃料では燃料中に含まれる Pu 原子が放出する α 線により結晶格子が損傷を受ける (self-irradiation と呼ばれる) ため、燃料の保管中にその格子定数が増大する。その変化率 Δa/a は Pu 濃度 (厳密には α 粒子の total dose) に依存するもので、100% Pu O₂ の場合、格子定数の変化率は t を経過時間 (days) とすれば、

$$\Delta a/a = 3.9 \times 10^{-3} [1 - \exp(-0.87 \times t)] \dots\dots\dots (1) \text{式}$$

となる⁵⁾。20% PuO₂ の場合は

$$\Delta a/a = 3.9 \times 10^{-3} [1 - \exp(-0.612 \times t)] \dots\dots\dots (2)式$$

である。

PFB011のPu濃度である29% PuO₂ に関してはデータがない。このためPFB011の場合、Self-irradiationによる格子定数変化は(1)式と(2)式の間にあるとして推量し、格子定数を補正した。

照射燃料のO/M比はこのようにして求められた燃料の格子定数から、Kleykampら⁶⁾が示した実験式を用いて求めた。さらに hypostoichiometric な燃料はその保管する雰囲気中の酸素濃度や湿度によってO/M比が増加して行くため、Sasakiらの測定結果⁷⁾に基づいて変化量を推量した。その結果、(U_{0.7}, Pu_{0.3}) O_{1.95} の燃料を70日間(本試験の開始から終了までに相当)空気雰囲気中で保管した場合、約0.008のO/M比変化が生じるものと推定された。

以上の手順でPFB011の燃料部のO/M比を求めた。その結果、Table 8にまとめて示すように、較正用ピンのO/M比1.990～2.002に対し人工欠陥ピンのO/M比は1.937～1.955の間にあり、明らかにNaとの反応によってO/M比が低下しており、定性分析では確認できなかった燃料-ナトリウム反応の存在をこれによって明確に確認できたと考える。人工欠陥ピンから採取した熱拡散率測定済試料のO/M比が1.999～2.003と大きいのは、熱拡散率の測定が高温(約1,600℃)で行われるため測定中に試料が酸化したためと考える(詳細は熱拡散率測定の項参照)。

4.4 熱拡散率測定

4.4.1 試料調製方法

燃料ピンをダイヤモンドホイールカッター(切削油としてテトラクロルエチレン)を使用し、厚みが約1mmになるように輪切りにした。数個切断した後、クラックの発生が少なくかつ測定に十分な大きさの試料をペリスコープにより選定し、これを熱拡散率測定用試料片とした。「常陽」MK-IIシリーズの測定では測定容器の形状に合った試料片を採取していたが、今回は試料量が少ない為に形状にとらわれず測定可能な試料片を採取し、測定容器を試料片形状に合わせ新たに製作した。

4.4.2 測定手順

測定方法はレーザーフラッシュ法で約600℃～1,600℃の真空中(約 2×10^{-5} torr)で行った。照射済燃料の場合、Self-irradiation等により燃料内に格子欠陥が生じ熱拡散率が低下する。その影響を除去する為に前回のMK-Iシリーズの測定では、真空雰囲気中約1,600℃

で焼鈍した後に各温度で測定を行っていた。今回の測定試験片中には燃料-Na 反応生成物が含まれていると推定され、測定温度が物性値に影響を及ぼすことが考えられる。そこで影響を受けない温度範囲での測定結果を得るために、焼鈍温度を 1,000℃, 1,200℃, 1,400℃, 1,600℃と段階的に上昇させ、600℃から各焼鈍温度までを測定温度範囲とし、測定を実施した。それらの測定手順を Fig. 12 に示す。

4.4.3 測定結果及び考察

測定結果を Fig. 13 に示す。測定温度範囲の最高温度が上がるのに従い熱拡散率も上昇している。これは Self-irradiation 等による格子欠陥が温度の上昇と共に徐々に回復されたこと、及び後述するように O/M 比が高くなったことによるものと考えられる。シリーズ④(約 600～1,600℃) のデータについては、高温域に於いてシリーズ③(約 600～1,400℃) のデータより低い値を示しているが、高温域をバラツキ範囲で比較してみるとシリーズ③と④の測定結果は重なっており、今後のデータの蓄積を待って評価する必要がある。これらのバラツキの主な要因は、測定試料片が多くのクラックを有していることによると思われる。なお、測定終了後の試料片の O/M 比については、X 線回折による格子定数測定から約 2.00 と推定された。

他の測定例との比較については、本測定試料と同様の Pu 富化度 (30%) の測定例は見当たらなかった。そこで Gibby の Pu 富化度 25% のデータ⁸⁾ と本測定データのシリーズ④(約 600～1,600℃) を比較してみた。Fig. 15 にそれを示す。密度に関しては、本測定試験片はクラックが多く測定困難なことから製造仕様値の 93% TD を用い、これに合わせて Gibby のデータの 96% TD を 93% TD に換算した。換算式⁹⁾ を以下に示す。

$$\alpha = \alpha_{100} (1 - 2.5 P)$$

ここで、 P : fractional porosity

α_{100} : 密度 100% のとき熱拡散率

Fig. 14 に示すように Pu 富化度の違い (熱拡散率への影響は少い) 及び密度の不確定さはあるものの本測定結果と Gibby との結果はよく一致している。

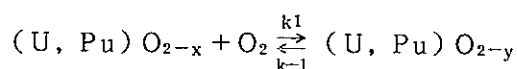
次に燃料と Na の反応が熱拡散率に及ぼした影響について考察する。

燃料-Na 反応生成物は 1,100℃, 約 4 atm の条件で分解し、圧力が低い場合は分解温度は低くなり、約 1 atm では 900℃になると言われている¹⁰⁾。

今回の測定は約 2×10^{-5} torr (約 5×10^{-9} atm) の真空中で行ったことから、燃料-Na トリウム反応生成物は 1,000℃よりも低い温度で分解したと予想され、測定終了後の試験片の周辺部が細かく碎けていたのはこのためと考えられる。実際の熱拡散率測定においては、測定のためのレーザービームがスポット状に試料片中央部のみに照射される。測定試

料片の中心付近では、燃料とナトリウムはほとんど反応していないと考えられるので、熱拡散率測定値への燃料-ナトリウム反応生成物による大きな影響はなかったものと考えられる。

燃料-ナトリウム反応によるO/M比の低下については、熱拡散率測定に使用した試料採取位置の近傍から別試料を採取してX線回折による格子定数測定を行ったところO/M比推定値として約1.95を得た。これは製造時の1.98（製造時測定データ，ロットNo.FFDL-01）からは明らかに低下しているが、実際の熱拡散率測定後の試料片は推定値約2.00であった。これは測定試料片が約 2×10^{-5} torrの真空雰囲気中での測定にもかかわらず酸化したものと考えている。真空雰囲気中での酸化の可能性についての検討結果を以下に述べる。 $(U,Pu)O_{2-x}$ が真空雰囲気中の加熱で酸化するか否かは、下記に示す反応が系中でどちらに進むかで決まる。



k：平衡定数

ここで、真空雰囲気中の酸素ポテンシャル ΔG_{O_2} と測定試験片の酸素ポテンシャル ΔG_{O_2} の大小を比較してみる。測定雰囲気中の ΔG_{O_2} は下記に示す式から求めることができる。

$$\Delta G_{O_2} = R \cdot T \cdot \ln P_{O_2}$$

ここで R：ガス定数（1.98 cal/deg・mol）

T：温度（K）

P_{O_2} ：酸素分圧（atm）

$T = 1873$ K（1,600℃）， $P_{O_2} = 5 \times 10^{-9} \sim 5 \times 10^{-8}$ atm（装置真空度 $2 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-4}$ torr）を代入すると $\Delta G_{O_2} = -63.5 \sim -72.3$ kcal/molとなる。真空度に幅があるのは、 2×10^{-5} torrは装置排気系直上で測定されたものであるため、試料近傍の真空度をこれより1桁高い値まで考慮したことによるものである。

種々のO/M比を有するMOX燃料が平衡系で有する ΔG_{O_2} と温度との関係をFig. 16に図示した。これは、当部、燃料材料技術開発室がWoodleyモデルを使用した評価したもの¹¹⁾である。この図からは、測定試料条件（温度1,600℃，O/M比1.95）の ΔG_{O_2} は測定雰囲気中の ΔG_{O_2} より低いことが明らかである。また測定雰囲気条件と平衡になるようなMOX燃料のO/M比は1.997～1.9985であることがわかる。即ち、熱拡散率測定試料片は、測定雰囲気中（真空度 $2 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-4}$ torr）では酸化されてO/M比が上がるのが理論的に考えられる。但し、Fig. 16の計算値はPu富化度20%のMOX燃料のものであり、実際の試料のPu富化度は30%である。30%Pu富化度についてのデータはない。また上記の検討は、平衡状態での比較であり反応速度を考慮していないため断言はできない。今後、適当な低O/Mを有する試験片を用いて加熱前後のO/Mを測定比較することにより確認する必要がある。

5. ま と め

「常陽」MK-II B型特殊燃料集合体PFB011は、破損燃料集合体検出装置（FFDL）の炉内試験のために照射された集合体であり、人工欠陥付燃料ピン、健全な炉心燃料ピン、ダミーピン等の4種類の燃料ピンから構成されている。集合体平均燃焼度の計算値は510 MWd/tである。AGSでは、FFDL試験のバックアップデータを取得する目的で、人工欠陥ピンと較正用ピン（健全な炉心燃料ピン）の2本を対象に照射後試験を実施した。得られた結果を以下に述べる。

1) 金相試験結果

較正用燃料ピンについて軸方向5箇所を顕微鏡観察を実施したところ以下の結果を得た。

- 燃料組織は、軸方向中央部の最大出力位置では、明瞭なレンズ状ポイドや柱状晶が観察されたが、柱状晶領域の形成までには至っておらず、中心空孔も見られない。
- 上端部及び下端部の燃料組織は、ほぼ製造時の組織を示している。
- 上端部及び下端部を除く軸方向中央部付近の燃料ペレットの外径寸法が、製造時に比べて1.2～1.8%収縮していることが画像解析により得られており、焼きしまりを起こしていると考えられる。
- FCCIは観察されなかった。

2) 燃焼率測定結果

較正用燃料ピンの軸方向中央部をNd法で測定したところ、燃焼率として0.048 atom%を得た。

3) X線回折測定結果

人工欠陥ピンの軸方向中央部の試料について定性分析および格子定数測定（O/M測定）を実施した。その結果、(U, Pu)O₂相のO/M比が製造時よりも低下しており、侵入ナトリウムと燃料が反応していることが確認されたが、定性分析による燃料-ナトリウム反応生成物の同定はできなかった。

4) 熱拡散率測定

人工欠陥ピンの軸方向中央位置から採取した試料の熱拡散率を約600℃～1,600℃真空中で測定したが、繰り返し測定時の試料の酸化の効果およびセルフイラディエーションによって生じた格子歪みが回復する効果等が重畳したため燃料-ナトリウム反応による燃料部の熱拡散率への効果は明確に見出せなかった。

6. 参 考 文 献

- 1) R. Lorenzelli, T. Athanassiadis and R. Pascard, J. Nucl. Mater., 130 (1985) P298-315.
- 2) P. E. Blackburn, Behaviour and Chemical State of Irradiated Ceramic Fuels, Panel Proceedings Series (IAEA, Vienna, 1974) P 393.
- 3) R. T. Pepper et al, Appl. Mater. Res., 3 (1964) P 203.
- 4) 三次他：「遠隔操作による照射燃料のX線回折測定」, PNC N941 85-105.
- 5) J. Leteurtre, Y. Quéré, "Irradiation Effects in Fissile Material Defects in Crystalline Solids", (1972) North-Holland Publishing Co.
- 6) H. Kleykamp and R. Pejsa, J. Nucl. Mater., 124 (1984) P 56-63.
- 7) S. Sasaki et al, PNCT831-80-01.
- 8) R. L. Gibby, BNWL 927 (1969).
- 9) D. G. Martin, J. Nucl. Mater., 110 (1982).
- 10) ANL Weekly Report, No. 170.
- 11) 鶴飼他：「照射燃料の酸素ポテンシャルとO/M比の評価」, PNC SN941 85-108.

データ集

Table 1 Fuel pin fabrication parameters

S/A name	PFB011	Pin No	No 8905, No.8922
Fuel			
Fuel form	Flat end solid pellet		
Pellet diameter (mm)	4.63 ± 0.05		
Pellet density (%T, D)	93.0 ± 2.0		
Fuel composition	29 ± 1 w/o PuO ₂ -UO ₂		
U-235 enrichment (%)	12.0 ± 0.3		
Pu isotopic composition (%)	Pu 239/240/241/242 75.7/20.7/2.8/0.7		
O/M ratio	1.97 ± $\begin{matrix} 0.02 \\ 0.03 \end{matrix}$		
Cladding			
Material	SUS 316, 20% cold work		
Outer/inner diameter (mm)	5.5 ± 0.030 / 4.8 ± 0.025		
Lot identification	No 8905 : K 551 ; No.8922 : S 015		
Fuel pin			
Pin length (mm)	1533 ± 2		
Pin outer diameter (mm)	5.5 ± 0.030		
Fuel column length (mm)	550 ± 5		
Plenum length (mm)	—		
Blanket length (mm)	{ Upper : 12 ± 1 Bottom : 12 ± 1		
Fuel/cladding dia. gap (mm)	0.170		
Pin spacing & support	Wrapping wire		

Table 2 Metallographic examination in AGS

	as polished		etched	
	仕 様	目 的	仕 様	目 的
燃料 / 被覆管 共 通	× 200 部分写真	被覆管肉厚 ギャップ観察		
燃 料	× 10.5 全面写真 × 75 全面写真 × 100 部分写真 × 400 部分写真	燃料全体組織観察 ボイド分布測定 ボイド分布測定	× 10.5 全面写真 × 75 全面写真 × 100 部分写真 × 400 部分写真	燃料全体組織観察 } 詳細燃料組織観察
被 覆 管	× 200 ~ 750 部分写真	FCCI		

Table 3 Summary of ceramography (PFB011)

Section No	Distance from Core Bottom (mm)	Restructured Region Dia. (mm)				Residual Diametral Gap Size (μm)	Pellet Outer Dia. (mm)	Clad Dia. (mm)		Linear Heat Rate (w/cm)
		Central Void	Columnar Region	Gas Bubble Region	Densified Region			Inner	Outer	
890522	26					195	4.616	4.811	5.503	267
890542	125			2.476	3.005	162	4.648	4.810	5.506	338
890562	247			2.418	3.303	161	4.651	4.812	5.501	383
890582	435			2.438	2.810	129	4.678	4.807	5.503	319
8905A2	534					124	4.688	4.812	5.505	237

Table 4 Contraction rate of pellet outer diameter

Section No.	Location (D. F. C. B) (mm)	Pellet Density (%TD)	Apparent Pellet Area (A) (mm ²)	Crack Area (B) (mm ²)	Real Pellet Area (A') (mm ²)	Pellet Outer Dia. $D=2\sqrt{A'/\pi}$ (mm)	Contraction Rate ^(*1) (%)
890522	26	93.0 ± 2.0	16.786	0.126	16.660	4.60	(*2)
890542	125	93.0 ± 2.0	17.041	0.579	16.462	4.57	1.2
890562	247	93.0 ± 2.0	17.068	0.636	16.432	4.57	1.4
890582	435	93.0 ± 2.0	17.235	0.975	16.250	4.55	1.8
8905A2	534	93.0 ± 2.0	17.468	0.819	16.649	4.58	(*2)

(*1) Contraction rate : $D/4.63 \times 100$ (%)

fabrication pellet diameter : 4.63 ± 0.05 (mm)

(*2) ペレット外径が4.68~4.58mmの範囲内にあるものは除いた。

Table 5 Composition of spike solution and natural neodymium

スパイク中の原子数 (atoms/ml)	U 233	4.3914×10^{18}
	Pu 242	7.9674×10^{17}
	Nd 150	7.1740×10^{15}
天然ネオジムの同位体比	Nd 142 / Nd 150	4.824980
	Nd 145 / Nd 150	1.472180
	Nd 146 / Nd 150	3.050830
	Nd 148 / Nd 150	1.021325
ネオジムスパイクの 同位体比	Nd 142 / Nd 150	0.008937
	Nd 145 / Nd 150	0.004336
	Nd 146 / Nd 150	0.009122
	Nd 148 / Nd 150	0.007046
ウランスパイクの 同位体比	U 234 / U 233	0.014108
	U 235 / U 233	0.000401
	U 238 / U 233	0.006410
プルトニウムスパイクの 同位体比	Pu 239 / Pu 242	0.001309
	Pu 240 / Pu 242	0.013696
	Pu 241 / Pu 242	0.000859

Table 6 Calculation of effective fission yield for 890563 sample

Nuclide	Composition (Atom Fraction)	Fission Cross Section [barn]	Nd-148		Nd-146		Nd-145	
			Fission Yield [%]	Fractional Fission Yield	Fission Yield [%]	Fractional Fission Yield	Fission Yield [%]	Fractional Fission Yield
U 233	nd	- ¹⁾	1.14 ²⁾	-	3.20 ²⁾	-	4.10 ²⁾	-
U 234	0.000722	- ¹⁾	1.44 ²⁾	-	3.08 ²⁾	-	4.00 ²⁾	-
U 235	0.088164	1.94E+00 ¹⁾	1.68 ³⁾	0.446	2.94 ³⁾	0.781	3.76 ⁴⁾	0.899
U 236	0.000074	1.25E-01 ¹⁾	1.81 ²⁾	0.000	3.06 ²⁾	0.000	3.77 ²⁾	0.000
U 238	0.629876	5.45E-02 ¹⁾	2.08 ³⁾	0.111	3.40 ³⁾	0.181	3.50 ²⁾	0.186
Pu238	0.000347	- ¹⁾	1.76 ²⁾	-	2.79 ²⁾	-	3.24 ²⁾	-
Pu239	0.214203	1.84E+00 ¹⁾	1.65 ³⁾	1.009	2.46 ³⁾	1.505	3.01 ³⁾	1.841
Pu240	0.057464	4.46E-01 ¹⁾	1.84 ²⁾	0.073	2.83 ²⁾	0.112	3.34 ²⁾	0.133
Pu241	0.007349	2.51E+00 ¹⁾	1.94 ²⁾	0.055	3.01 ²⁾	0.086	3.52 ²⁾	0.101
Pu242	0.001002	3.51E-01 ¹⁾	2.04 ²⁾	0.002	3.10 ²⁾	0.003	3.70 ²⁾	0.004
Effective Fission Yield [%]			1.70		2.67		3.26	

Note; nd=not detected

Fractional Fission Yield=(AF)(CS)(FY)/SUM(AF)(CS)

AF:atom fraction of U and Pu(PIE data) CS:fission cross section

FY:fission yield

Effective Fission Yield=SUM(Fractional Fission Yield)

1)MAGI code

2)TRG-2143-R

3)ICP-1050-1

4)AERE-R-8753

Table 7 Result of isotope analysis and burnup calculation
for PFB011 890563 sample

S/A NO.(FAB) ; PFB011	PIN NO.(PIE) ; 8905
SAMPLE NO. ; 890563	SAMPLE POSITION ; 247.1~252.4 (mm)*

VOLUME RATIO OF SPIKE SOLUTION TO SAMPLE SOLUTION ; 0.500

ISOTOPIC RATIO OF U,Pu,Nd IN (a)SAMPLE AND (b)SAMPLE-SPIKE MIXTURE ;

[U233/238]	[U234/238]	[U235/238]	[U236/238]			
nd	0.001146	0.139970	0.000117	-(a)		
0.049959	0.001715	0.139859	0.000129	-(b)		
[Pu238/239]	[Pu240/239]	[Pu241/239]	[Pu242/239]			
0.001618	0.268267	0.034308	0.008414	-(a)		
0.001618	0.268642	0.034252	0.035075	-(b)		
[Nd142/150]	[Nd143/150]	[Nd144/150]	[Nd145/150]	[Nd146/150]	[Nd148/150]	
0.050570	4.890119	1.725507	3.390626	2.788639	1.787439	-(a)
0.011732	0.405578	0.152475	0.281555	0.237910	0.152792	-(b)

ISOTOPIC COMPOSITION OF U,Pu,Nd IN SAMPLE (atom%) ;

[U233]	[U234]	[U235]	[U236]	[U238]		
nd	0.1004	12.2648	0.0103	87.6245		
[Pu238]	[Pu239]	[Pu240]	[Pu241]	[Pu242]		
0.1233	76.1843	20.4377	2.6137	0.6410		
[Nd142]	[Nd143]	[Nd144]	[Nd145]	[Nd146]	[Nd148]	[Nd150]
0.3235	31.2809	11.0377	21.6890	17.8383	11.4338	6.3968

Pu CONTENT (atom%)/(weight%) ; 28.116 / 28.236

NUMBER OF TOTAL HEAVY ELEMENT (atoms/sample) ; 2.0926E+21

	[Nd148]	[Nd146]	[Nd145]
<u>NUMBER OF Nd NUCLIDE (atoms/sample)</u>	; 1.7061E+16	2.6655E+16	3.2404E+16
<u>EFFECTIVE FISSION YIELD</u>	; 1.70E-02	2.67E-02	3.26E-02
<u>NUMBER OF FISSIONS (fissions/sample)**;</u>	1.0036E+18	9.9831E+17	9.9400E+17
<u>BURNUP (atom%)#</u>	; 0.048	0.048	0.048
<u>SPECIFIC BURNUP (MWd/t)##</u>	; 737	734	730

NOTE ; nd=not detected

* Distance from core fuel bottom

** FISSIONS=NUMBER OF Nd/EFFECTIVE FISSION YIELD

BURNUP=100*FISSIONS/(TOTAL HEAVY ELEMENT+FISSIONS)

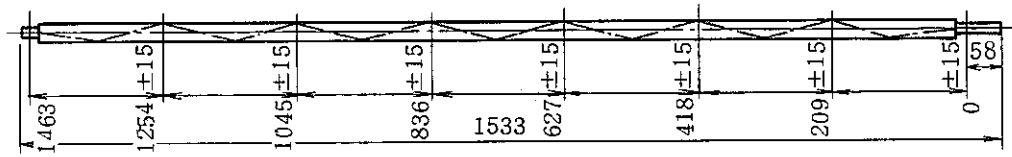
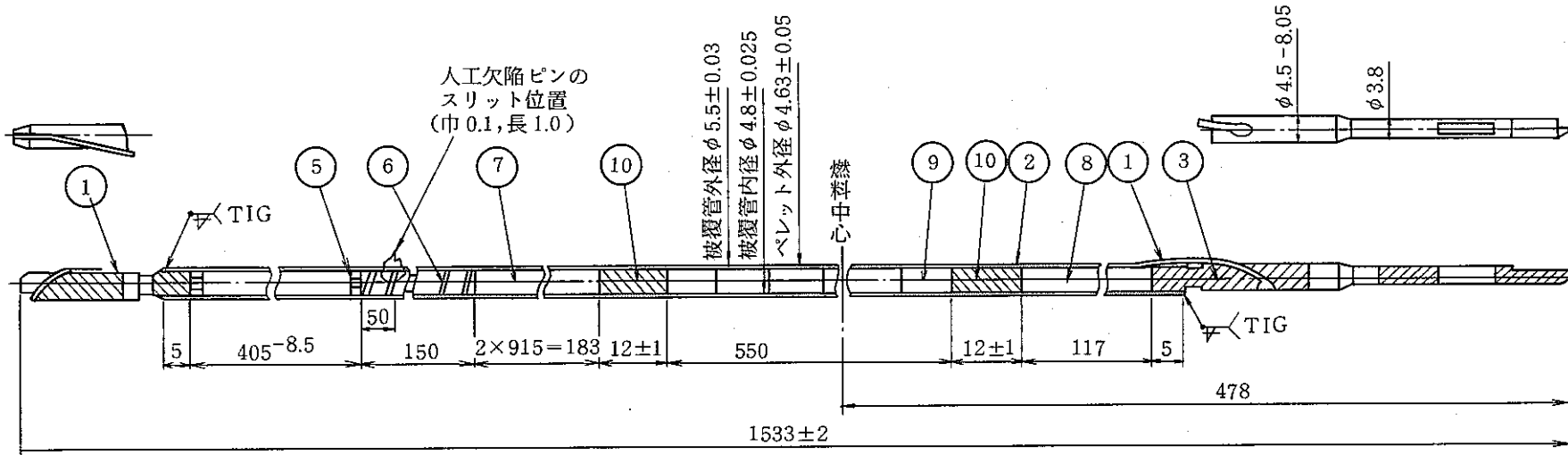
.65 atom% BU=10000 MWd/t BU

Table 8 Results of O/M ratio measurement using the X-ray diffractometer

試料名	8922511 (人工欠陥ピン)	890562 (校正用ピン)	8922514 (人工欠陥ピン) (熱拡散率測定済試料)
格子定数 (測定値) Å	+0.0010 5.4674 -0.0008	+0.0008 5.4546 -0.0012	+0.0005 5.4489 -0.0006
S-I補正後の ^{※1} 格子定数 Å	5.4631~5.4677	5.4479~5.4514	5.4476~5.4489
O/M比	1.945~1.955 ^{※2} (1.937~1.955)	1.990~2.002	1.999~2.003

※1 S-I : Self Irradiation

※2 保管中の酸化を補正した値



ワイヤラッピング全体図 (1/5)

10	インシュレータペレット	劣化 UO_2	2	
9	炉心用ペレット	PuO_2-UO_2	61	
8	要素反射体 (下)	SUS316	1	
7	要素反射体 (上)	SUS316	2	
6	プレナムスプリング	SUS304WPB	1	
5	抑エ板付プレナムスリーブ	SUS316	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	$\phi 0.9 \pm 0.01$
品番	品名	材質	個数	備考

Fig. 1 Schematic drawing of fuel pin

炉内照射位置

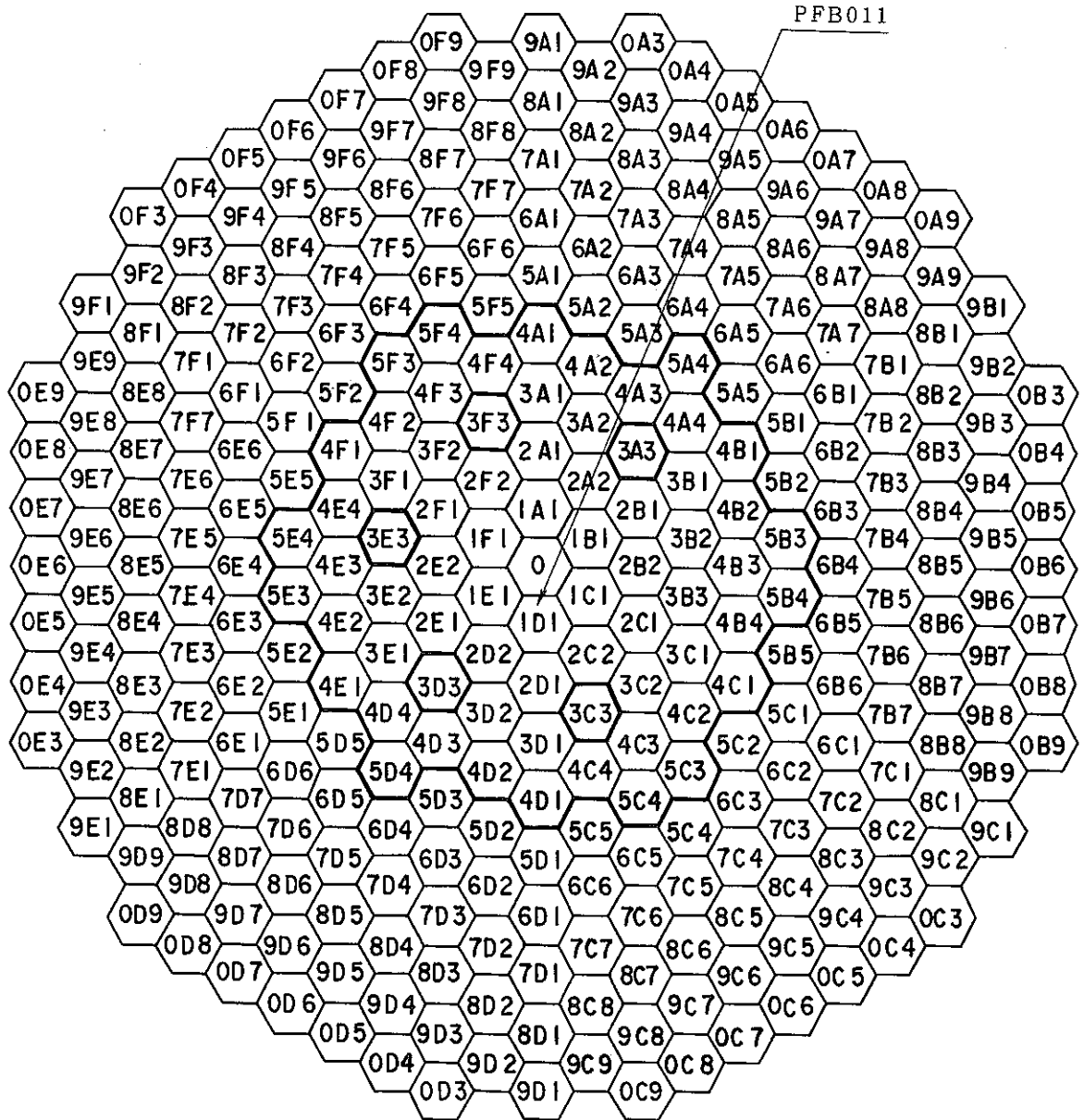


Fig. 2 Irradiation position of PFB011 subassembly in JOYO MK-II core

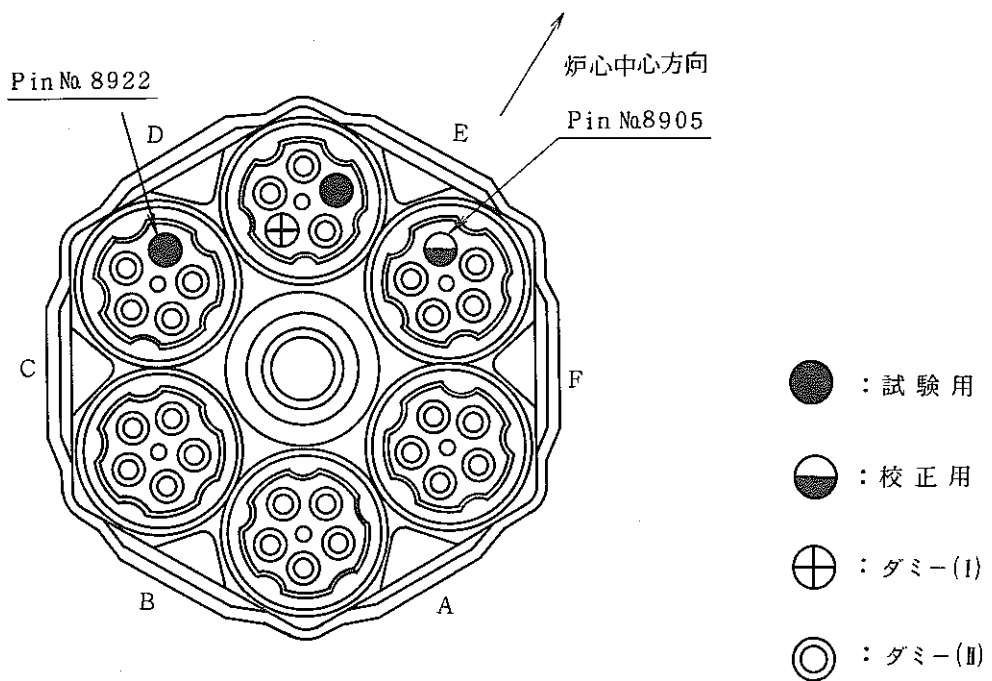


Fig. 3 Fuel pin position in PFB011 subassembly

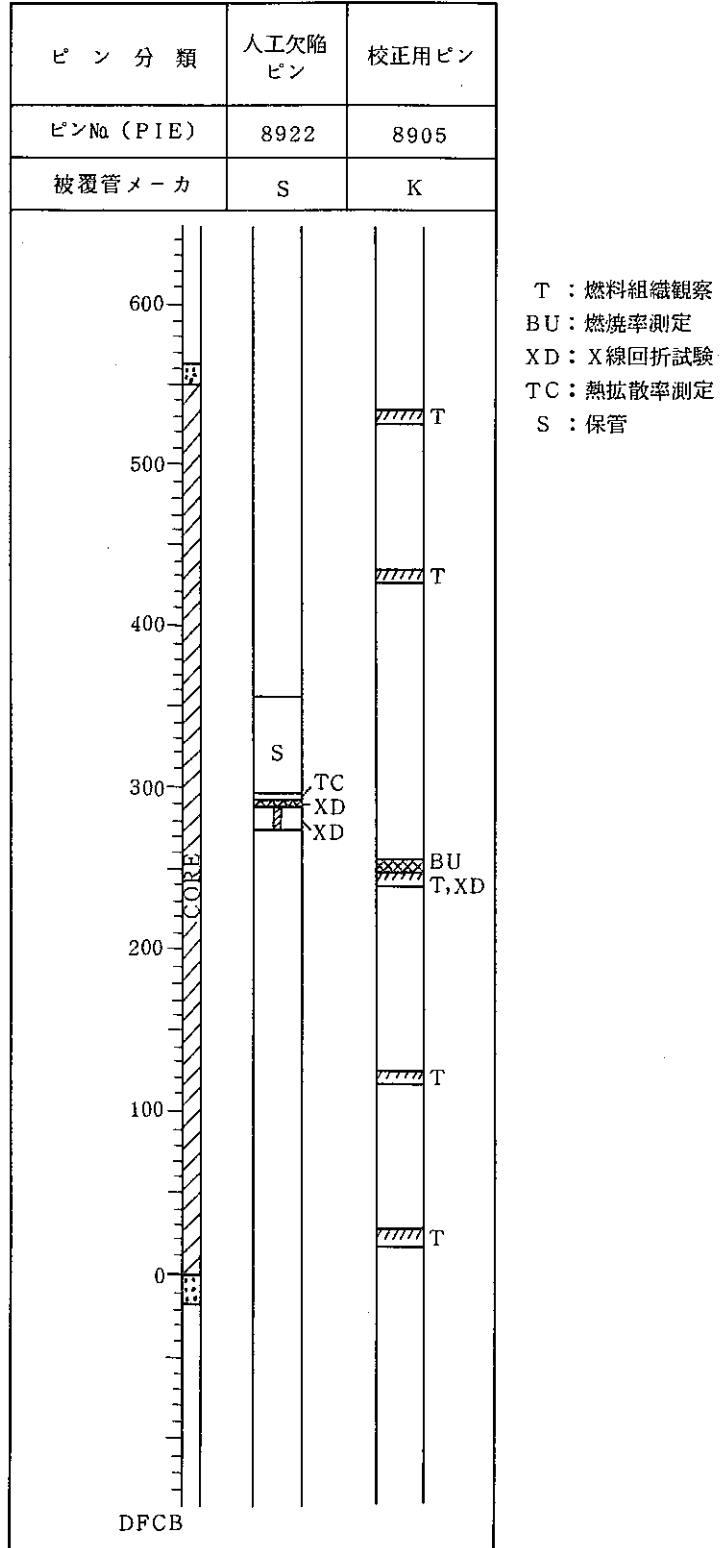


Fig. 4 Sampling of specimens for PIE in AGS

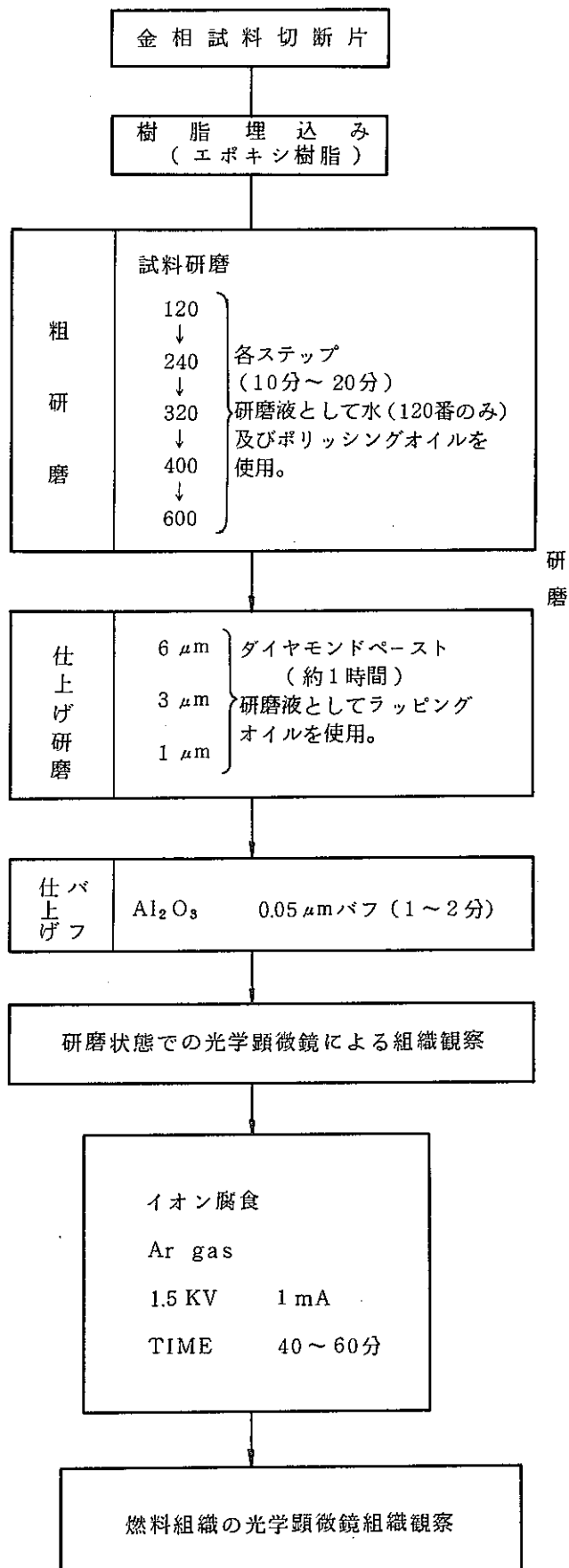


Fig. 5 Flow diagram of metallographic examination in AGS

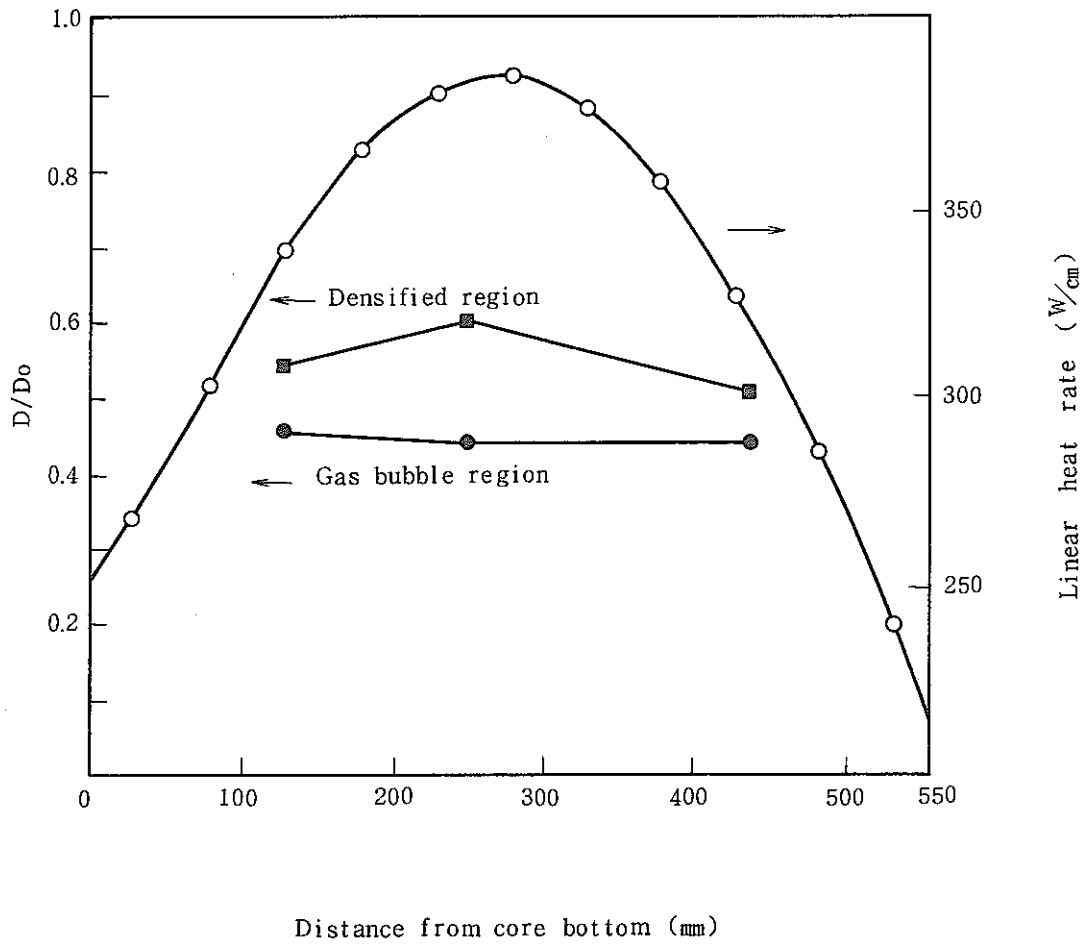


Fig. 6 Axial profile of restructured region (D/D₀)

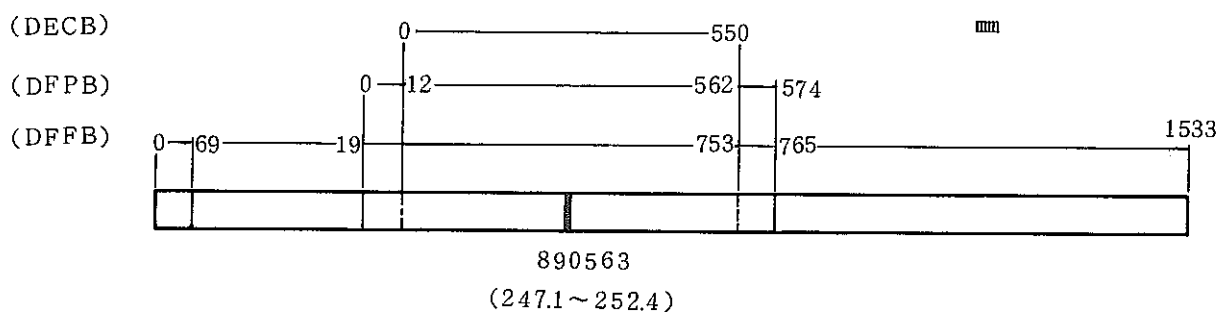
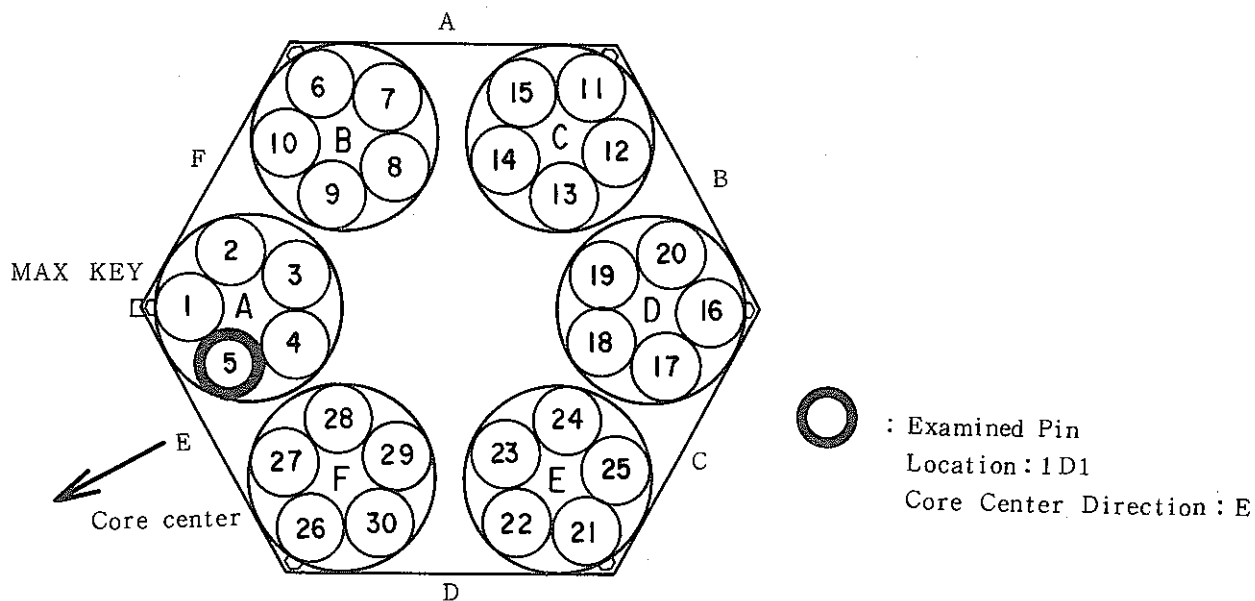


Fig. 7 Cutting diagram of PFB011 8905 pin for burnup measurement

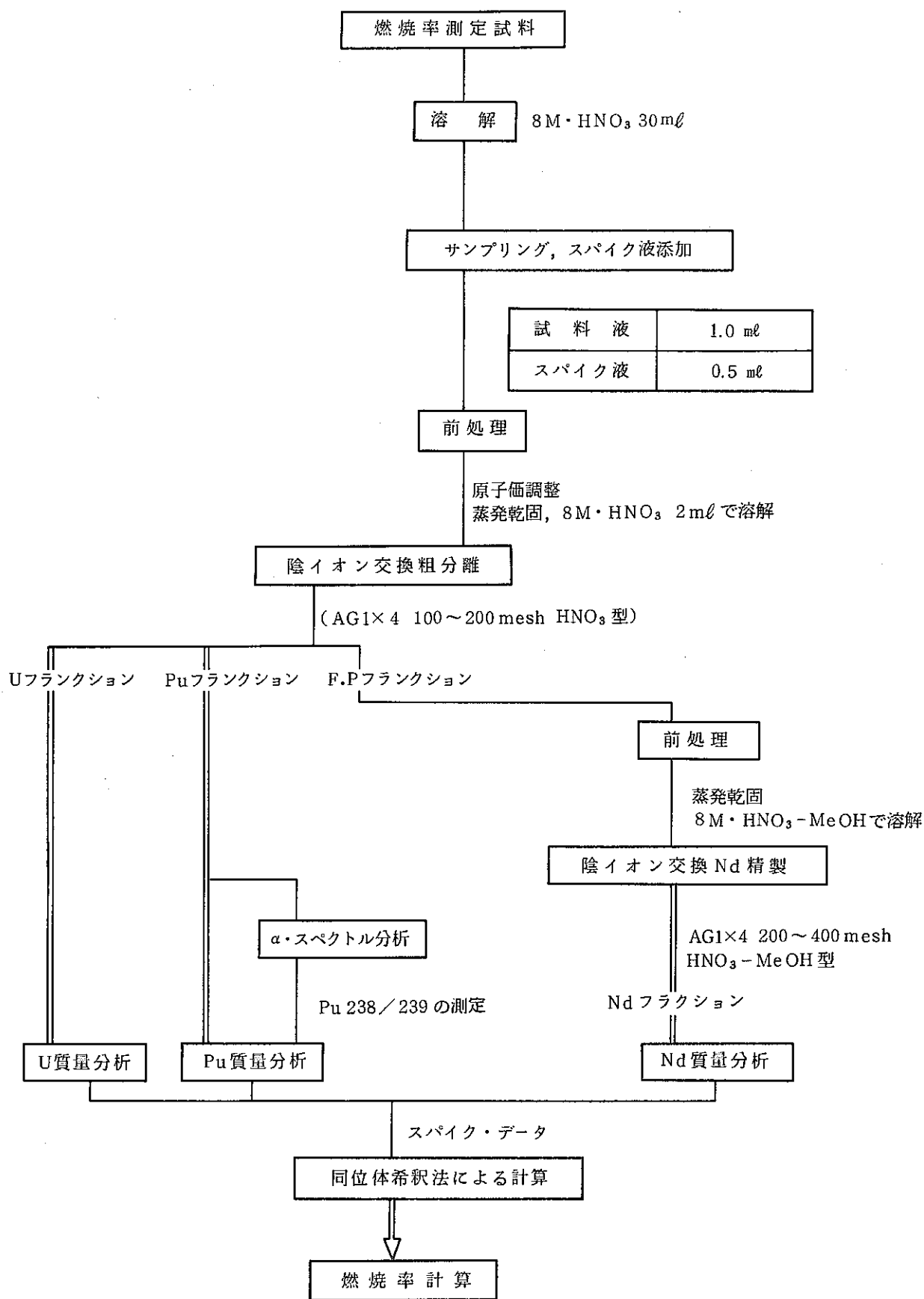


Fig. 8 Specimen preparation process for burnup measurement in AGS

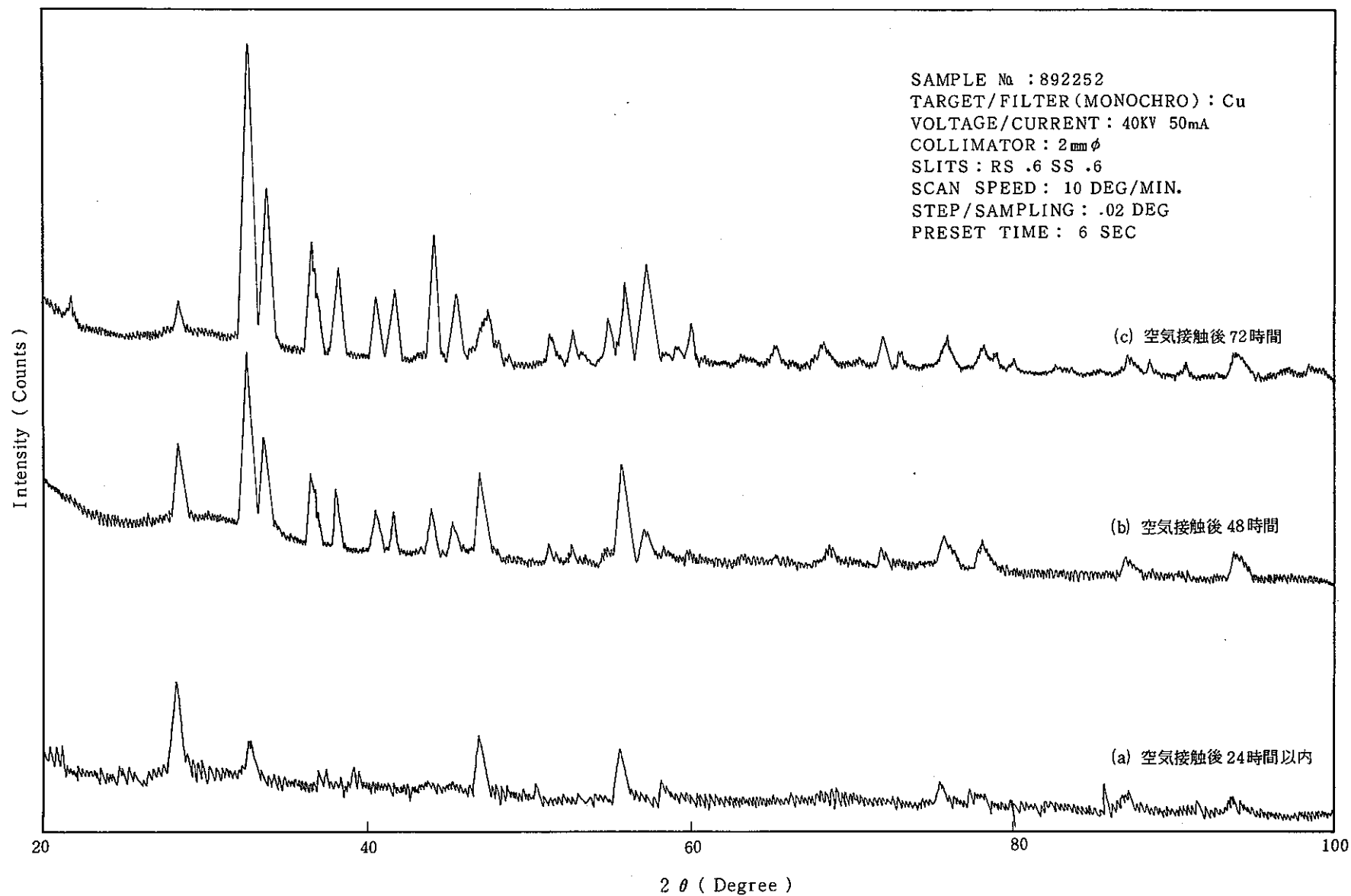


Fig. 9 X-ray diffraction patterns of predefected pin fuel

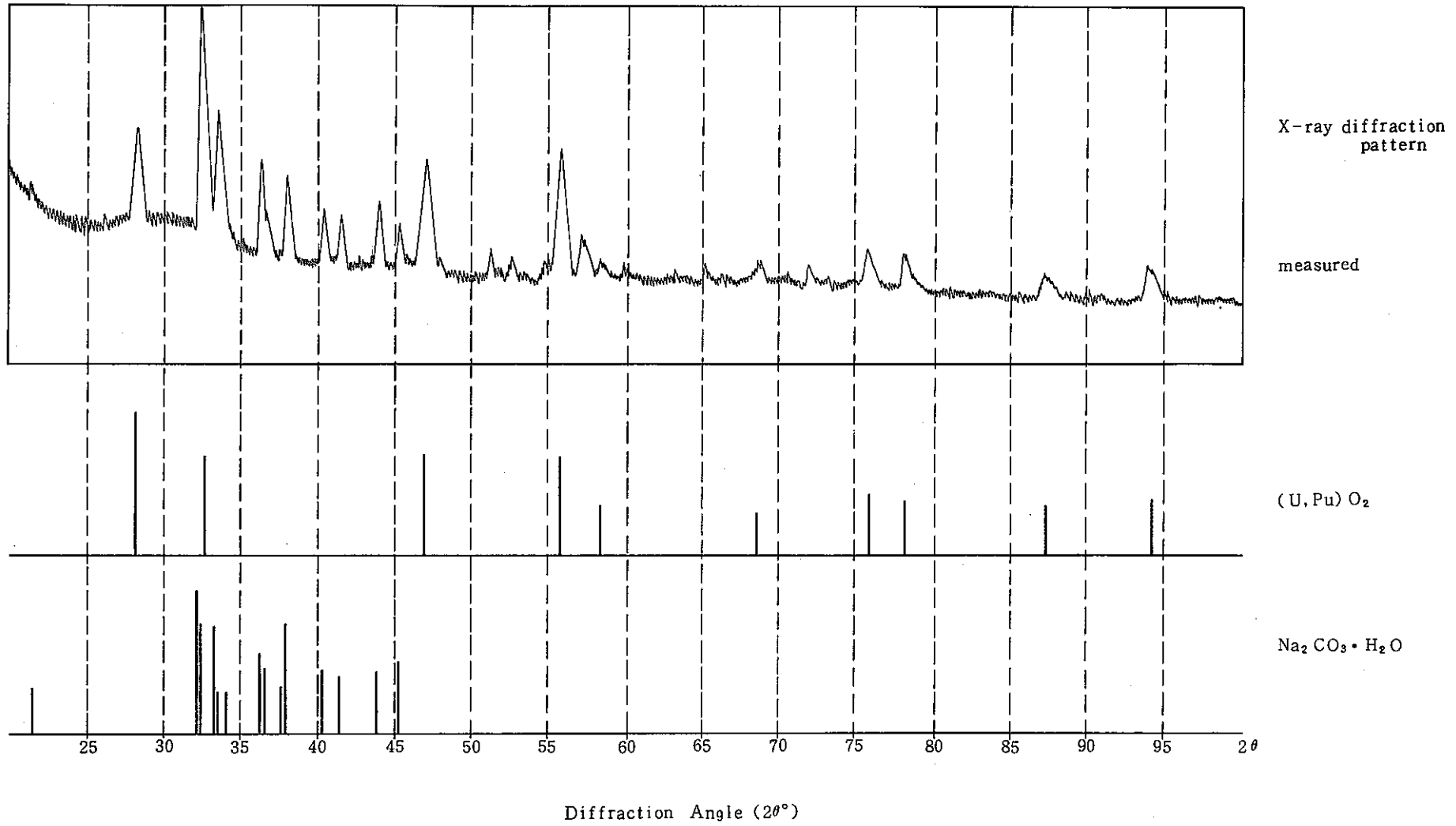


Fig. 10 Result of search-match analysis for PFB011 predefected pin fuel

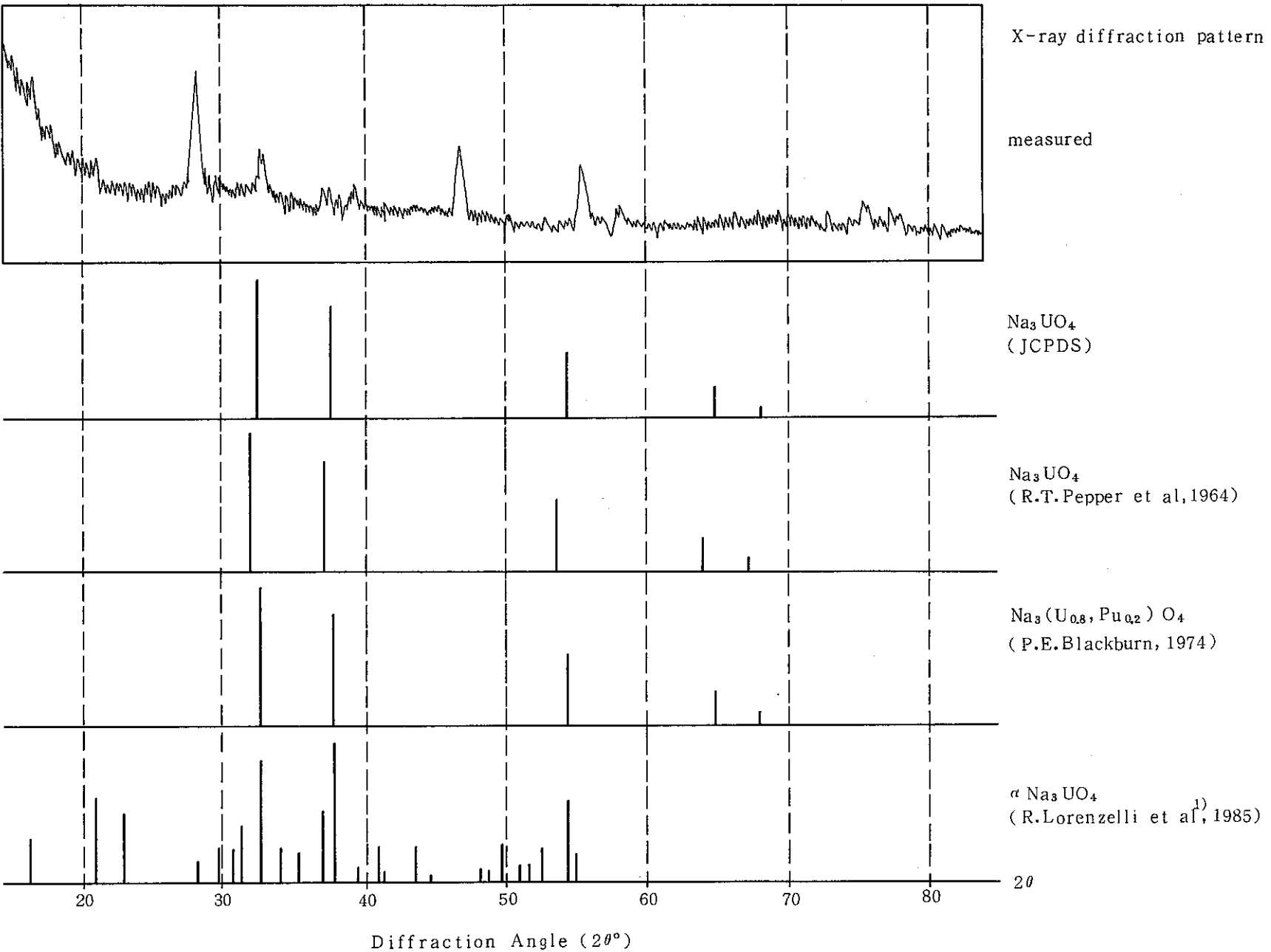


Fig. 11 Result of search-match analysis for fuel-sodium reaction products

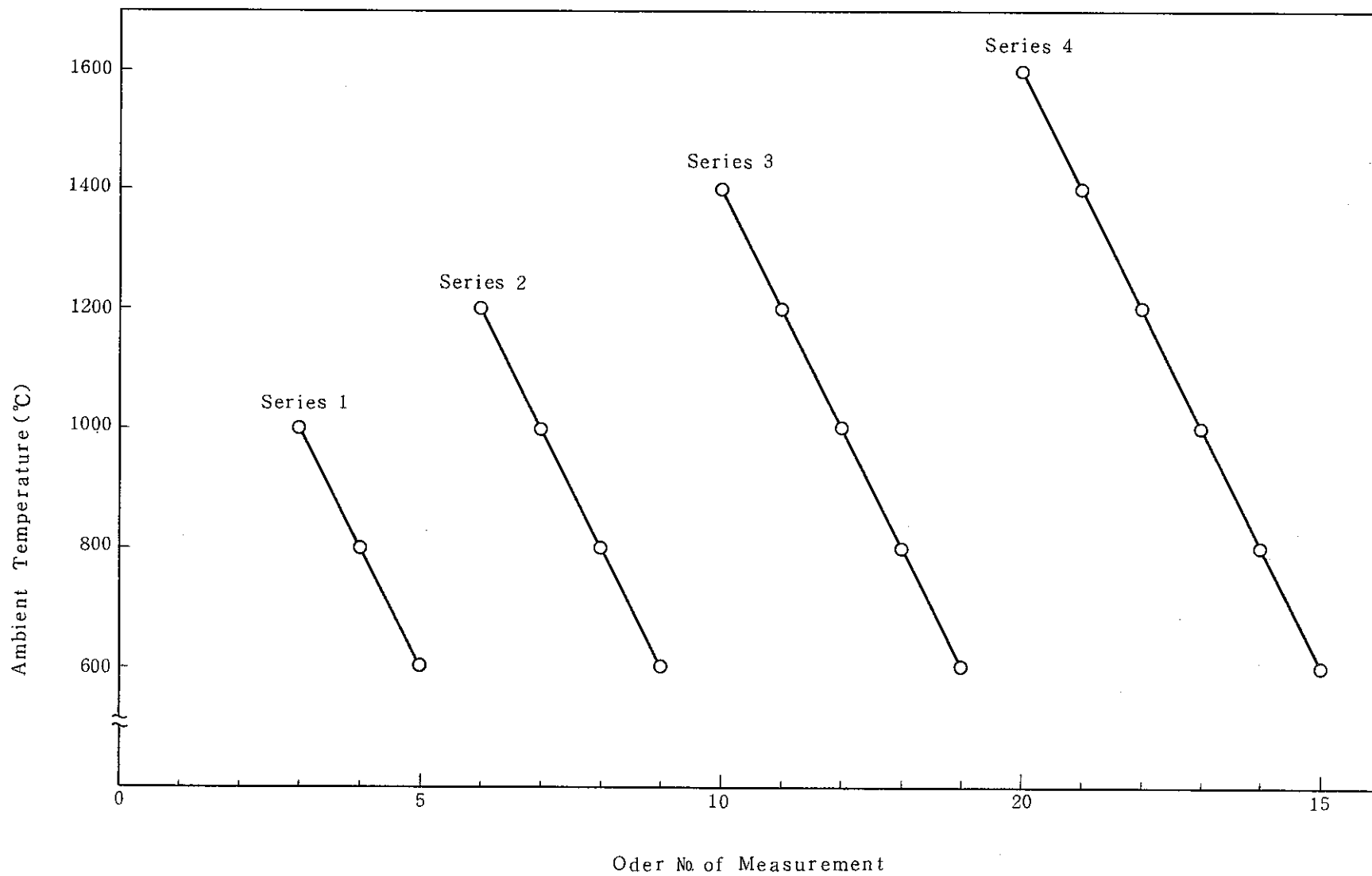


Fig. 12 Ambient temperature condition for thermal diffusivity measurement

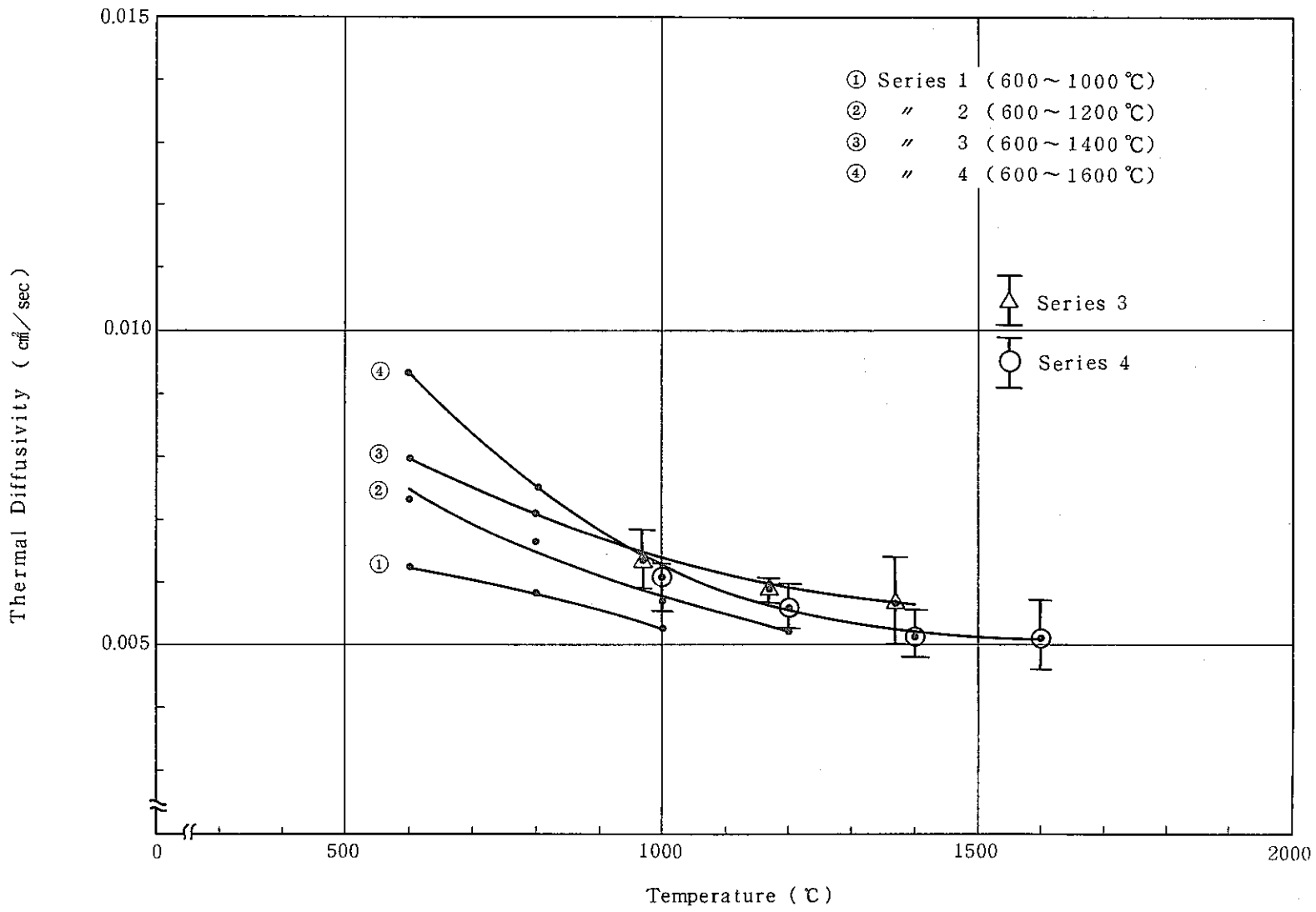


Fig. 13 Thermal diffusivity of (U,Pu)O₂ fuel irradiated in JOYO MK-II

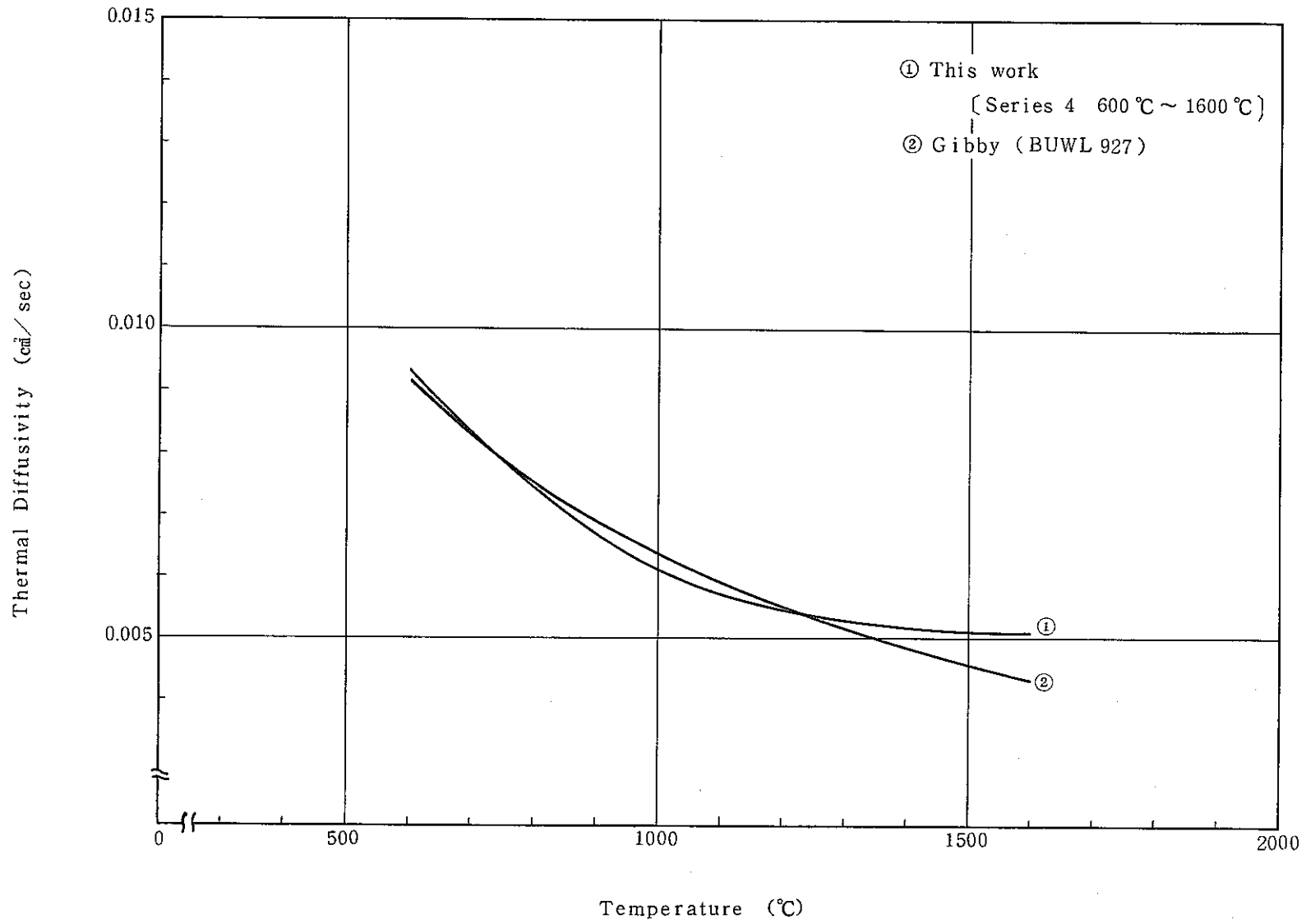


Fig. 14 Comparison between Gibby's data and this work for thermal diffusivity

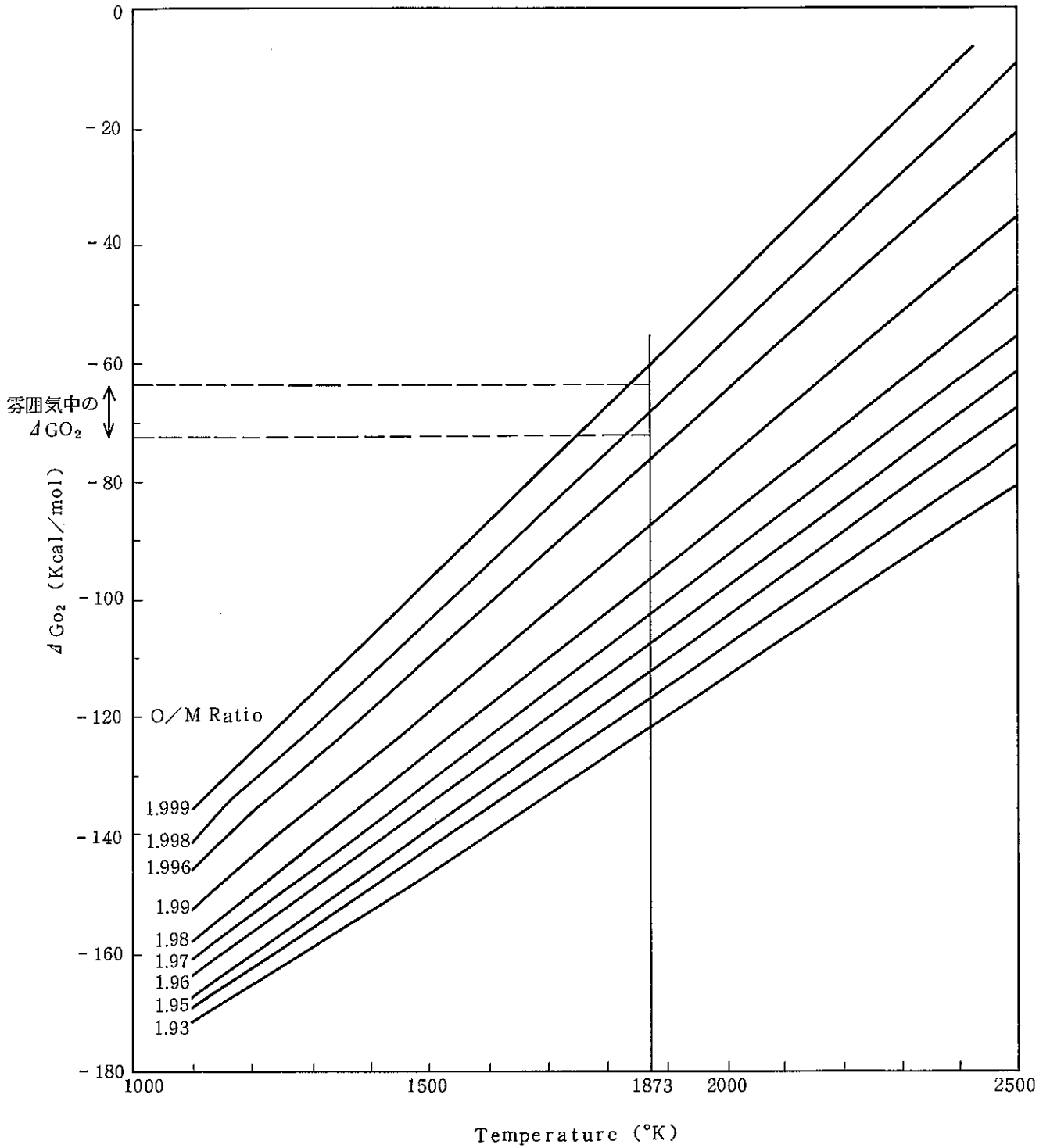


Fig. 15 Calculated oxygen potential versus temperature for $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}$ at zero burnup based on Woodley model

S/A No.	JOYO-PFB011
Pin No.	8905
S/A Peak Burn up	570 MWd/t

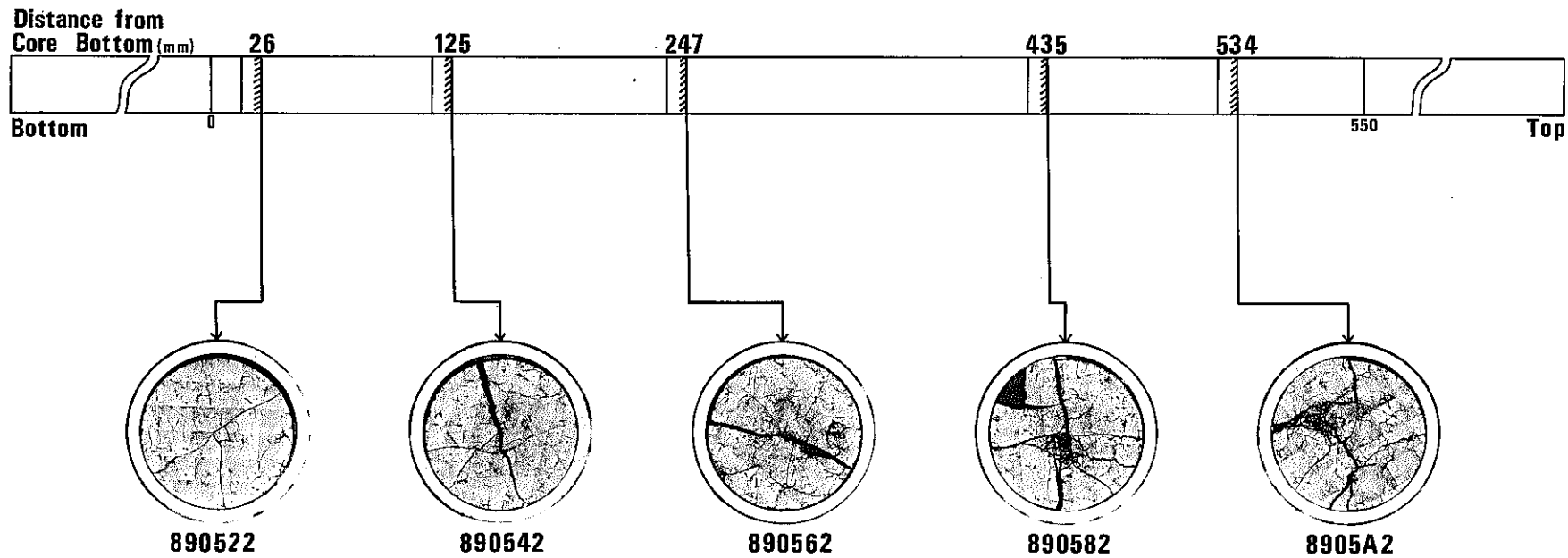


Photo. 1 Macrographs of "JOYO" PFB011 core fuel (8905 pin)

S/A Name	JOYO-PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	890542	
Distance from bottom of pin		328mm
Distance from bottom of fuel column		125mm

As polished

1mm

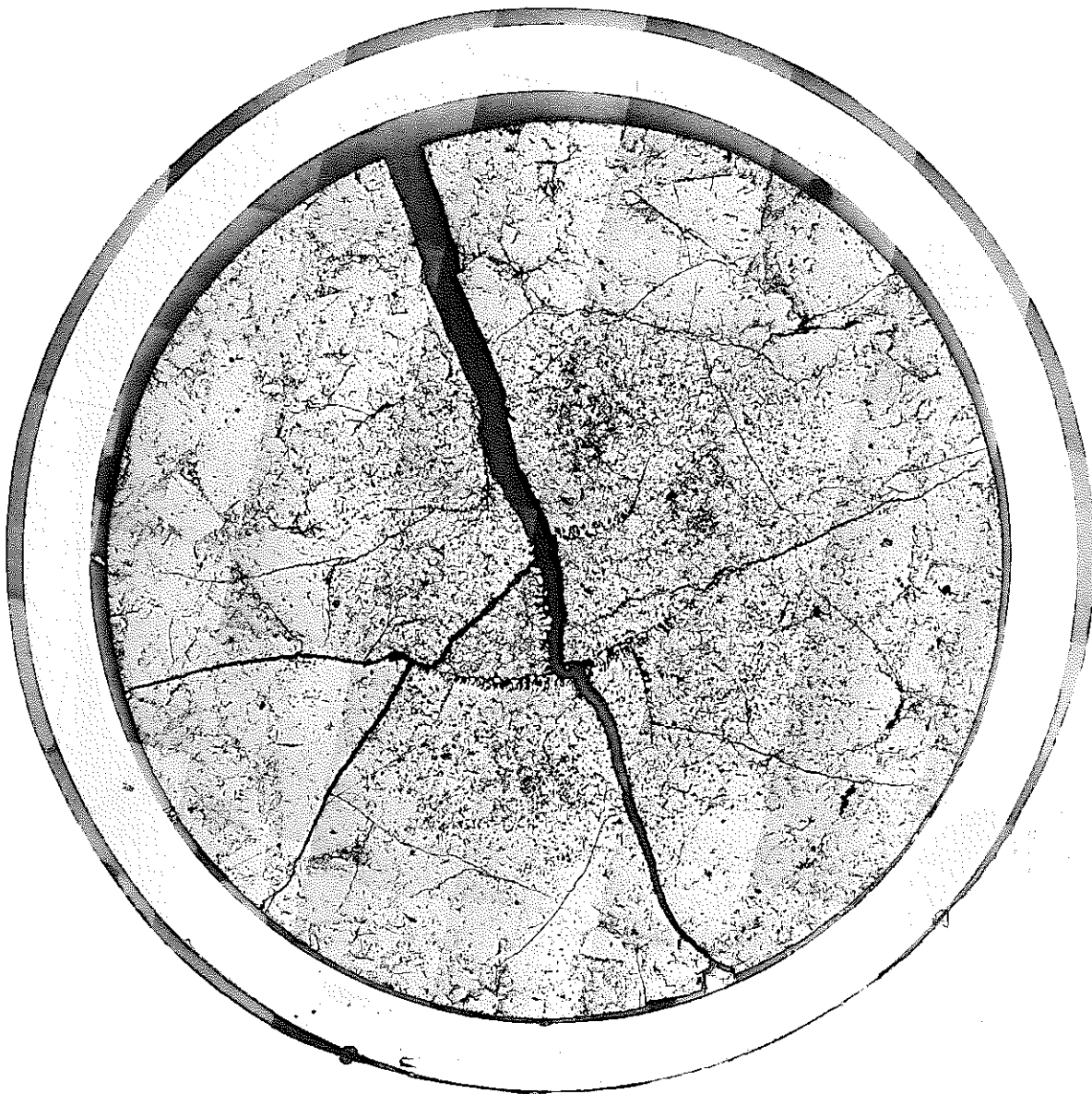
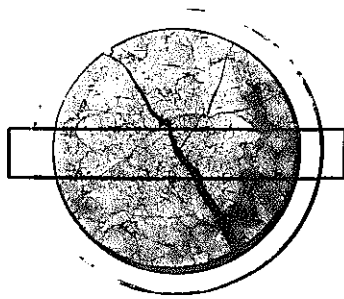


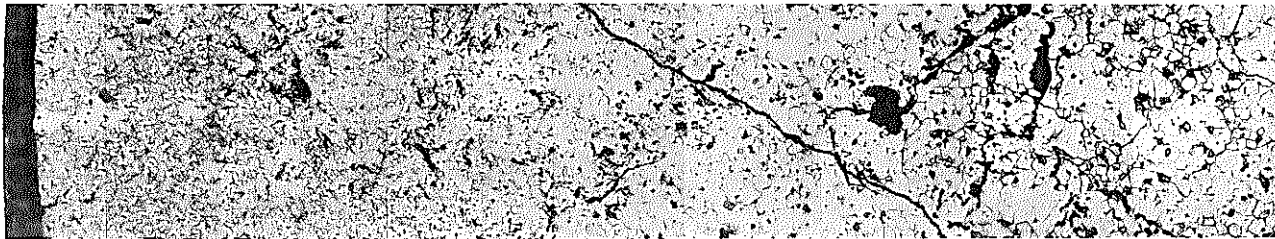
Photo. 2 Ceramograph of "JOYO" PFB011 core fuel (890542 sample, as polished)



S/A Name	JOYO - PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	890542	
Distance from bottom of pin		328mm
Distance from bottom of core column		125mm

etched

1mm



0.1mm

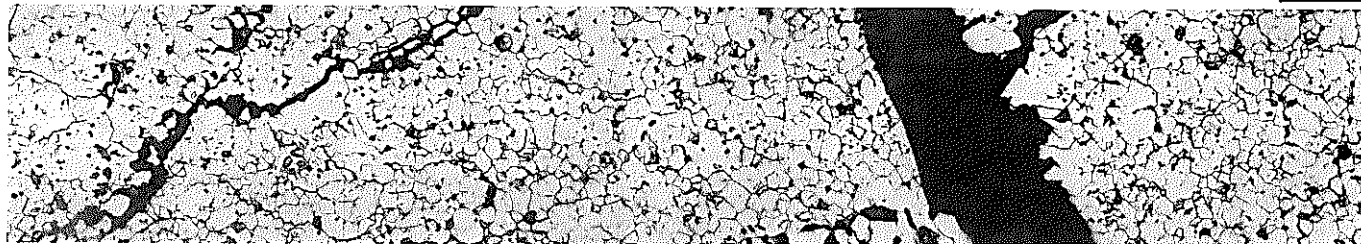


Photo. 3 Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890542 sample, etched)

S/A Name	JOYO-PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	890562	
Distance from bottom of pin		450mm
Distance from bottom of fuel column		247mm

As polished

1mm

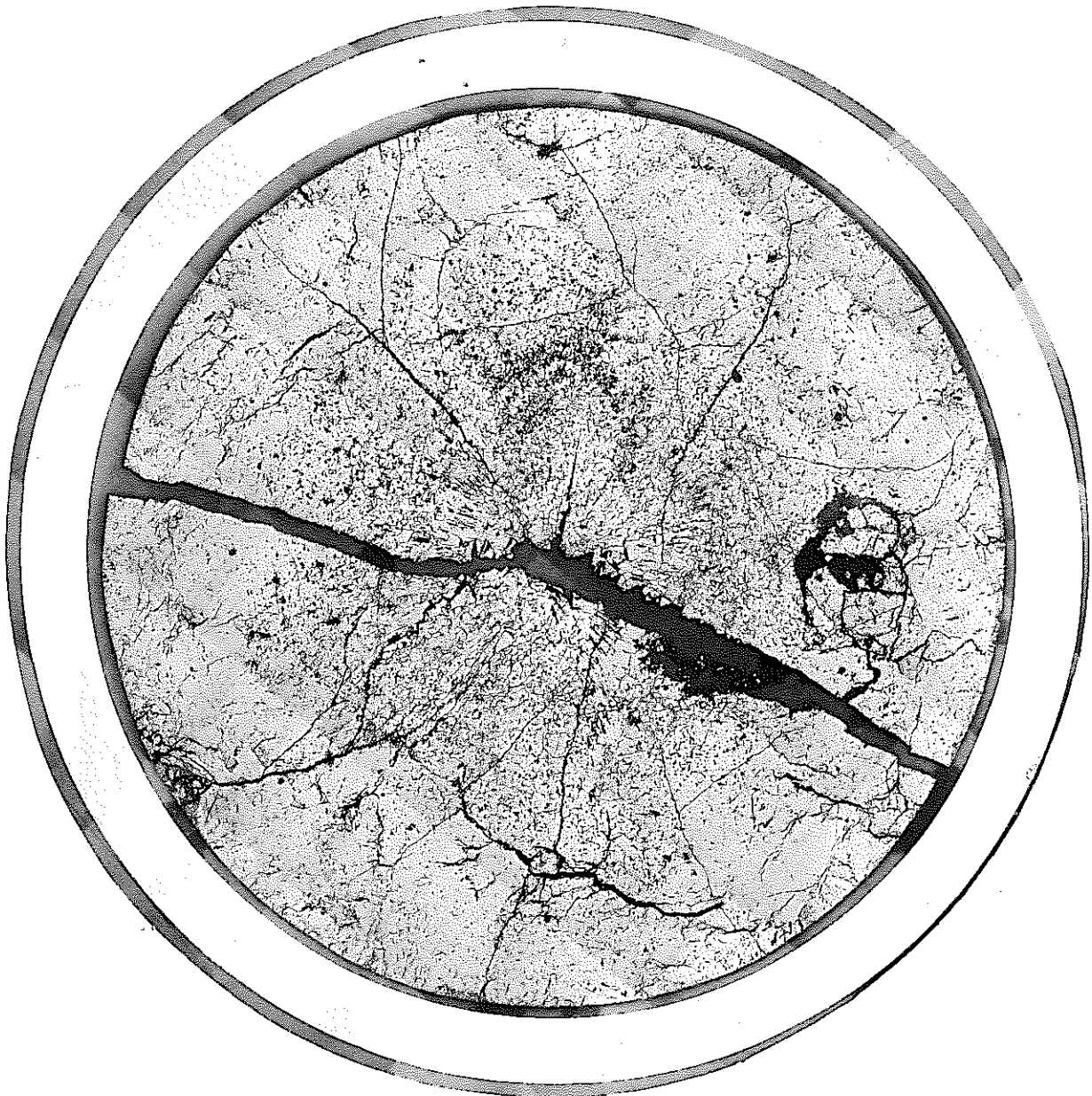
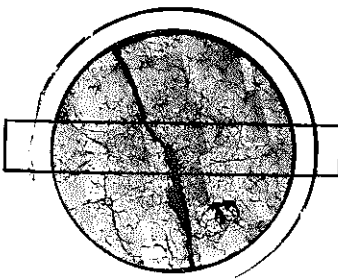


Photo. 4 Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel
(890562 sample, as polished)



S/A Name	JOYO - PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	890562	
Distance from bottom of pin		450mm
Distance from bottom of core column		247mm

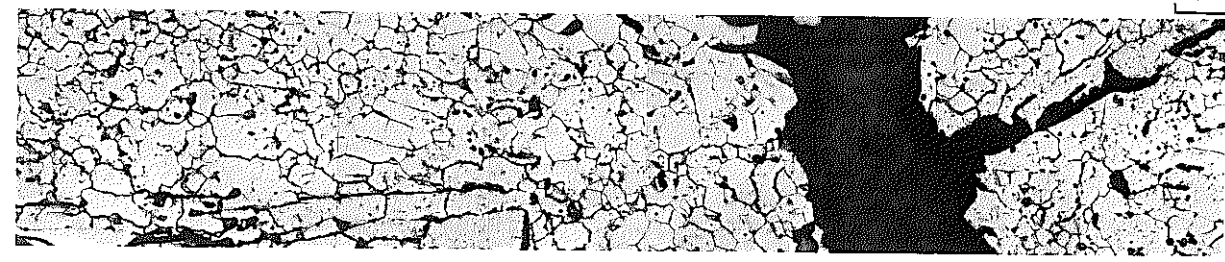
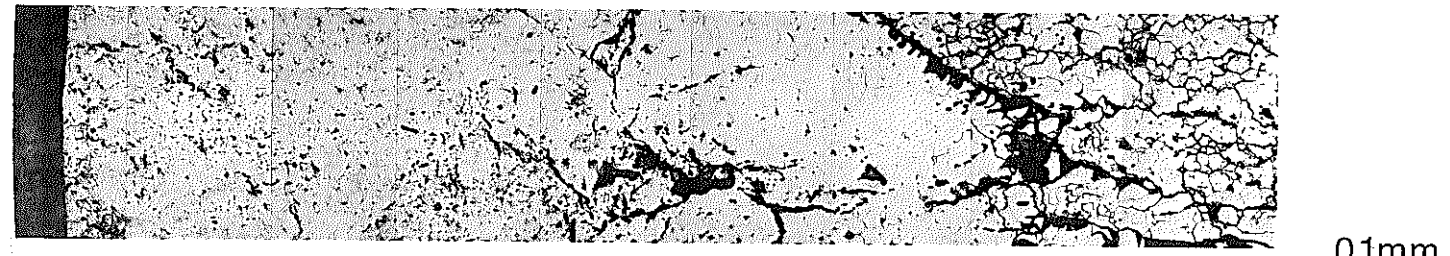
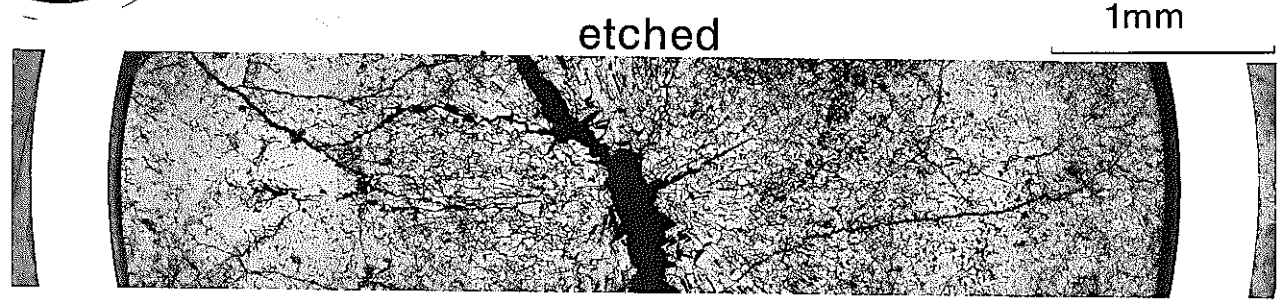


Photo. 5 Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890562 sample, etched)

S/A Name	JOYO - PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	890582	
Distance from bottom of pin		638mm
Distance from bottom of fuel column		435mm

As polished

1mm

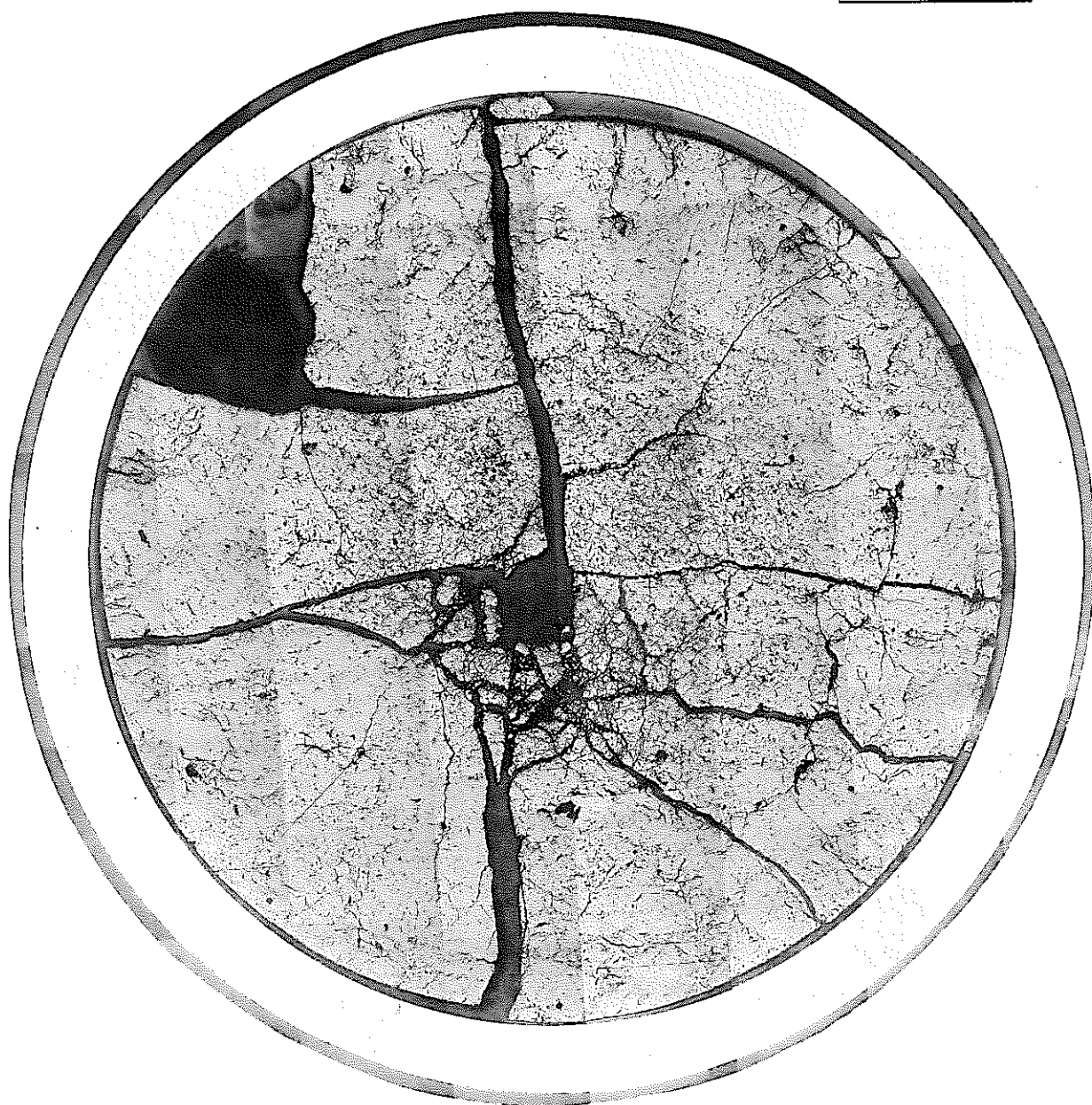
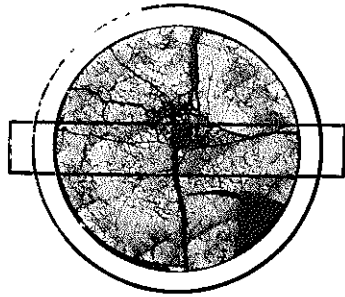
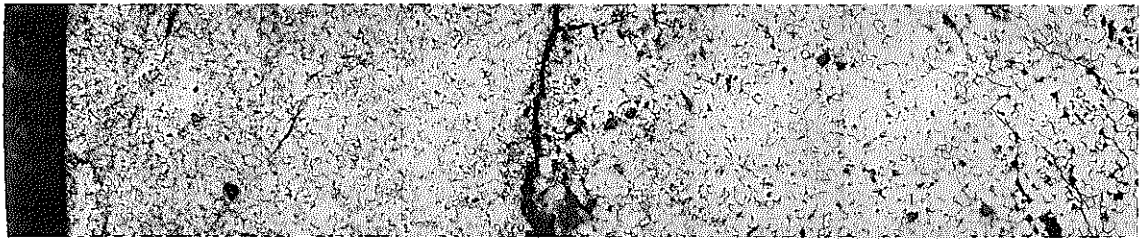
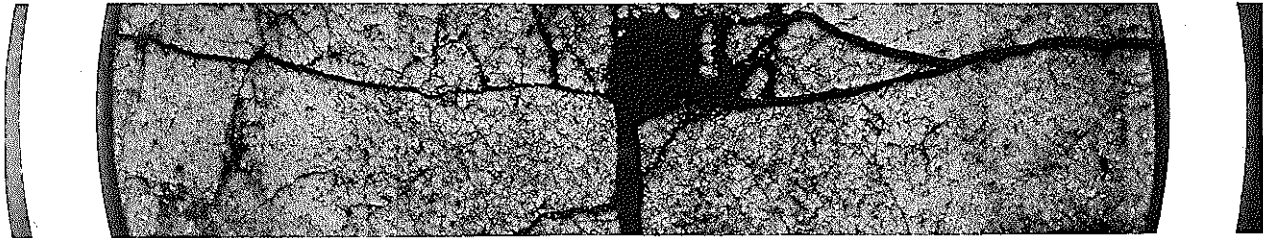


Photo. 6 Ceromograph of "JOYO" PFB011 core fuel
(890582 sample, as polished)



S/A Name	JOYO - PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	890582	
Distance from bottom of pin	638mm	
Distance from bottom of core column	435mm	

etched 1mm



0.1mm

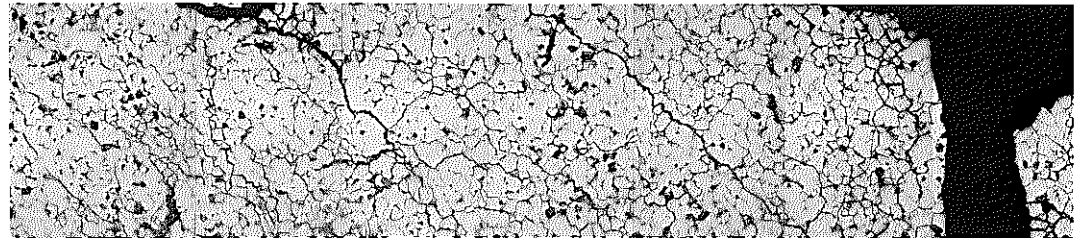


Photo. 7 Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (890582 sample, etched)

S/A Name	JOYO - PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	8905A2	
Distance from bottom of pin		737mm
Distance from bottom of fuel column		534mm

As polished

1mm

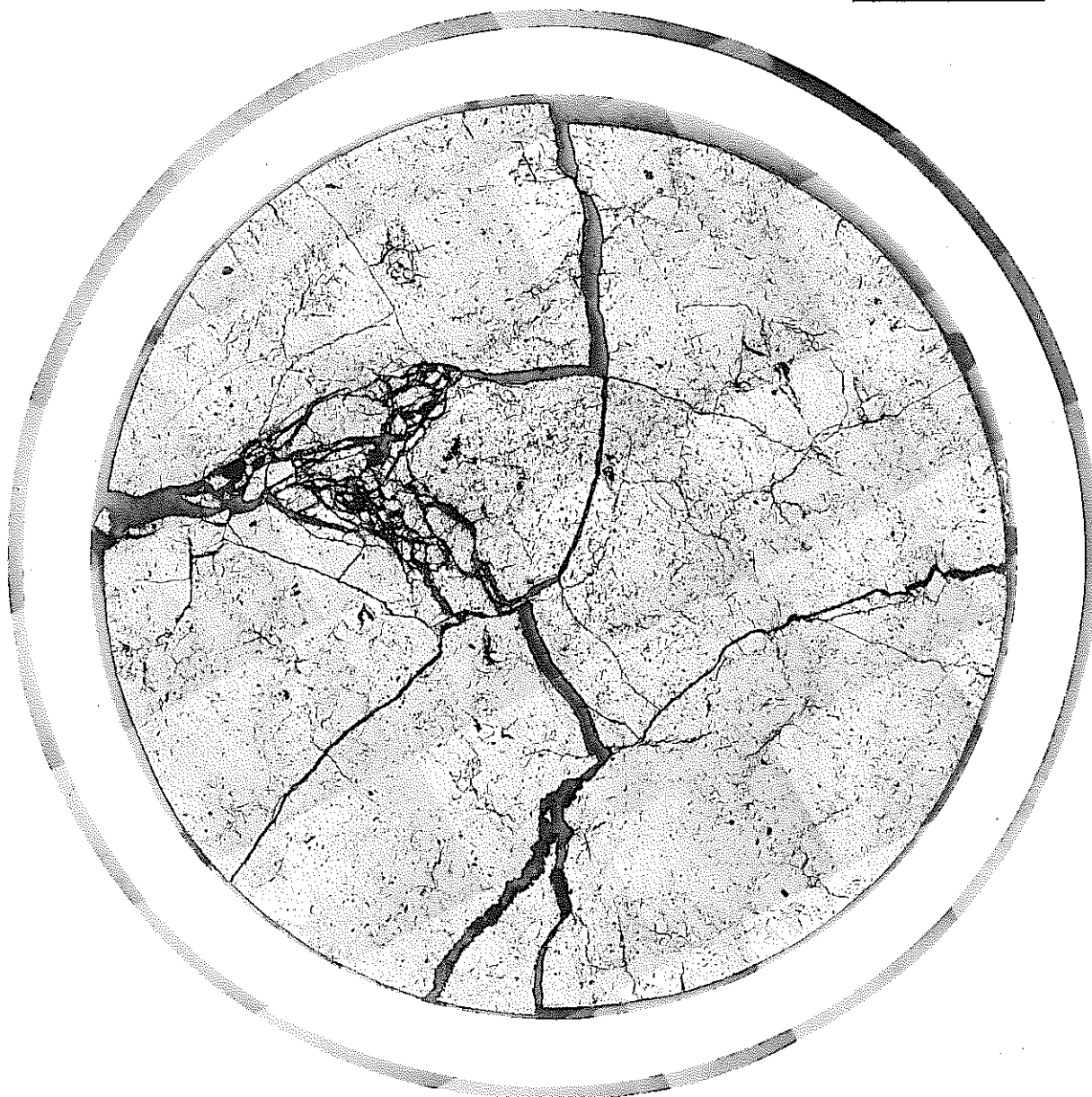
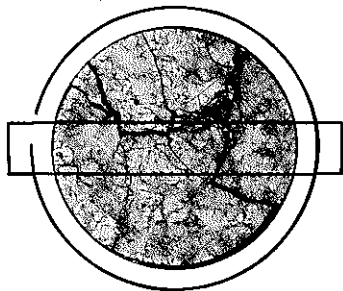


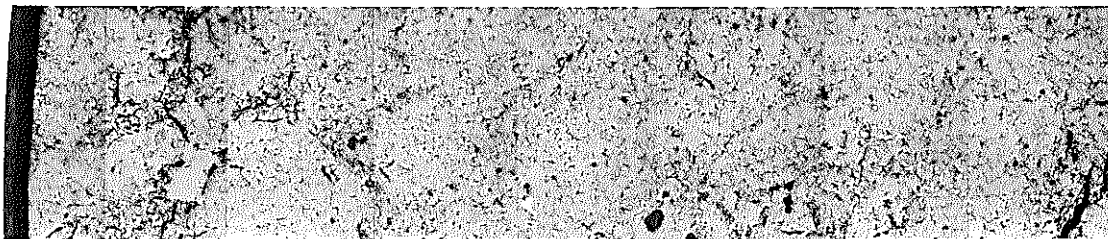
Photo. 8 Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (8905A2 sample, as polished)



S/A Name	JOYO - PFB011	
Pin No.	8905	
Section No.	8905A2	
Distance from bottom of pin		737mm
Distance from bottom of core column		534mm

etched

1mm



0.1mm

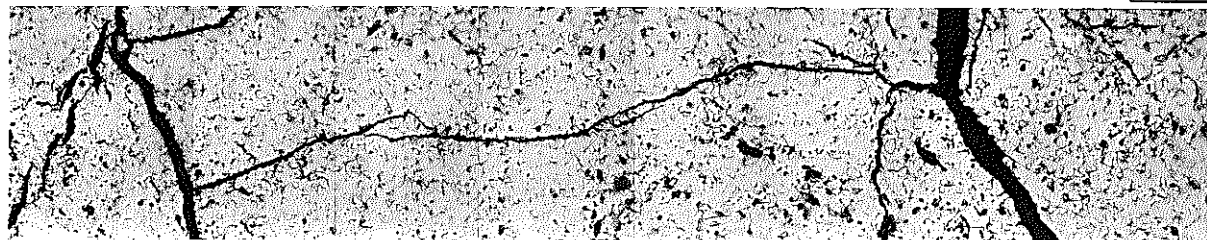


Photo. 9 Ceramographs of "JOYO" PFB011 core fuel (8905A2 sample, etched)