

B₄C 中性子吸収材の照射挙動

—「常陽」AMIR 照射試験結果—

1991年4月

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問合せは下記に願います。

〒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

技術開発部・技術管理室

B₄C 中性子吸収材の照射挙動 「常陽」AMIR照射試験結果

木村 好男, 皆藤 威二, 小野瀬庄二
佐藤 義則, 柴原 格

要 旨

B₄C中性子吸収材は、中性子吸収能力が高いなど多くの利点を有しているが、照射に伴うHeの放出やスエリングが原因で制御棒の寿命が決定づけられており、これらB₄C中性子吸収材の挙動を明らかにすることが今後の制御棒の長寿命化および信頼性向上に有効である。本報告では、「常陽」AMIR照射によって得られた最近の試験結果から、B₄Cの照射挙動に影響を与える因子について検討し、今後の課題と改善策を再確認することを目的とした、得られた結論は以下のとおりである。

1) B₄CペレットからのHe放出は、燃焼度 100×10^{20} cap/cm³以上で加速されるため、従来「もんじゅ」で用いられてきた設計式の高燃焼度側への適用には限界があり、シール型吸収ピンの長寿命化を目指す場合には、高燃焼度側のHe放出データをさらに充実させる必要がある。

2) He放出挙動には、濃縮度および結晶粒度依存性が認められた、これらペレット因子に着目して、He放出量評価値の合理化ができる可能性はあるが、このためには濃縮度と粒径のペレットスエリングへの影響評価が必要である。

3) ペレットのスエリングに起因する被覆管との機械的相互作用(ACMI)はペレットの割れとその破片の移動・再配置(リロケーション)によって促進され、吸収ピン寿命を決定する。リロケーションの程度は、ペレットと被覆管の間のギャップが大きい場合に助長されるが、この挙動は多分に偶発的であり、定量的な予測は困難である。この改善策としては、シュラウド型吸収ピンが有効であると考えられる。

4) ペレットの熱伝導度の照射による低下は、照射によって生じたマイクロクラックを含むミクロな損傷が支配因子である。この改善策としてはB₄Cのサーメット化がある。

April 1991

Irradiation behavior of the B₄C neutron absorber materials

-Results of the JOYO AMIR irradiation experiments-

Yoshio KIMURA, Takeji KAITO, Shoji ONOSE,
Yoshinori SATO and Itaru SHIBAHARA

ABSTRACT

The B₄C neutron absorber material has great advantage of high neutron absorbing capability, although the He release and the swelling limit the life time of control rod. So it is important for the life time extension and reliability improvement to investigate the irradiation behavior of the B₄C. This report discuss the important parameters which may control the absorber pin behavior based on the irradiation test results obtained recently by the JOYO AMIR experiments, and re-evaluate the current technical issues and the way of improvements.

The He release from B₄C pellet increase rapidly after a burnup of 100×10^{20} cap/cm³ and exceed the value predicted by the equation which has been applied to the MONJU design. The data is still required when we adopt the seal type absorber pin to use at high burnup. The He release found to depend on the ¹⁰B enrichment as well as the grain size. The He release could be reduced by the optimization of these parameters although the swelling behavior should also be considered since the swelling generally increases with decreasing the He release.

The absorber cladding mechanical interaction (ACMI) is accelerated due to pellet cracking and relocation and essentially limits the life time of control rod. The relocation becomes generally extensive as the pellet-to-cladding gap is increased, but this behavior consider to be stochastic and difficult to make quantitative prediction. Improvement could be attained by using a shroud type absorber pin.

Reduction of thermal conductivity during irradiation is considered to be caused by

micro-defects including the micro-cracking. The degradation may be improved by introducing B₄C cermet.

目 次

1. はじめに	1
2. 評価項目	1
3. 結 果	2
(1) He放出挙動	2
(2) B ₄ C ペレットの健全性	5
(3) ペレット/被覆管の機械的相互作用 (ACMI)	6
(4) B ₄ C ペレットの熱伝導率変化	9
4. 結 論	10

List of Figures

Fig.1 He Release from B ₄ C Pellet	2
Fig.2 He Release from B ₄ C Pellet	3
Fig.3 He Release as a Function of ¹⁰ B Enrichment of B ₄ C Pellet	3
Fig.4 He Release vs. B ₄ C Grain Size	4
Fig.5 The View of Pellet Crack	5
Fig.6 Pellet Swelling as a Function of Burnup	5
Fig.7 The Two Types of Capsule Deformation	6
Fig.8 Relationship between the Degree of Pellet Relocation and Capsule Deformation Mode	7
Fig.9 Initial Gap Dependence of Capsule Deformation Mode	7
Fig.10 Clad. Deformation vs. Remained Gap Expected	8
Fig.11 A Type of Large Relocation	8
Fig.12 Burnup Dependence of Thermal Conductivity of B ₄ C Pellet	9
Fig.13 Temperature Dependence of Thermal Conductivity of B ₄ C Pellet	9

1. はじめに

高速炉用制御棒にはほぼ全ての炉において B_4C 吸収材が使用されている。これは中性子吸収能力が高く、化学的に安定で、成形技術が確立されている上、比較的入手が容易である等の利点によるものである。しかしながら B_4C の照射による He 放出やスエリングおよびその他の物性変化が制御棒の寿命を決める因子ともなっている。よって、これら B_4C 吸収材の照射挙動を明らかにすると共に、その照射挙動の予測精度を高めることが今後の制御棒の長寿命化および信頼性向上に有効である。

吸収材料の照射挙動評価は「常陽」制御棒および吸収材料照射リグ AMIR の照射後試験によって行われているが、今回は AMIR の試験結果を中心にまとめ、 B_4C の照射挙動に影響を与えるパラメーターについて検討した。

2. 評価項目

B_4C ペレットの照射挙動のうち、制御棒を設計するに当たって、その寿命を決定する因子として次のものが挙げられる。

- ・吸収ピンの内圧上昇 $^{10}B(n, \alpha)Li$ 反応において生成する He の B_4C ペレットからの放出による。
- ・被覆管の変形 B_4C ペレットのスエリングによるペレット/被覆管の機械的相互作用 (ACMI)。
- ・ B_4C ペレットの温度上昇 中性子吸収時に発生する熱によるペレット中心温度の上昇 (ACMI 緩和のためにギャップを拡大する際の制限となる)

これらの照射挙動を調べるために以下の項目について評価を行った。

- | | |
|------------------------|-------------------------|
| (1) He 放出挙動 | He 放出量測定 |
| (2) B_4C ペレットの健全性 | 外観、断面観察
ペレットスエリング量測定 |
| (3) ACMI | 被覆管外径変化測定、断面観察 |
| (4) B_4C ペレットの熱伝導率変化 | 熱伝導率測定 |

3. 結 果

(1) He放出挙動

① 燃焼度の影響 (Fig. 1)

He放出量は、「もんじゅ」調整棒の2サイクル最高燃焼度である $110 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$ まで設計値を下回っており、設計式が適用可能であることが確認された。

一方、それ以上の燃焼度では「もんじゅ」設計式の外挿値を越えるものが観られた。これは設計式が燃焼度 $100 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$ 以下のデータから得られたものであるためと考えられる。設計式の高燃焼度領域への適用に当たっては今回のデータを全て内包するような形への改良が必要である。

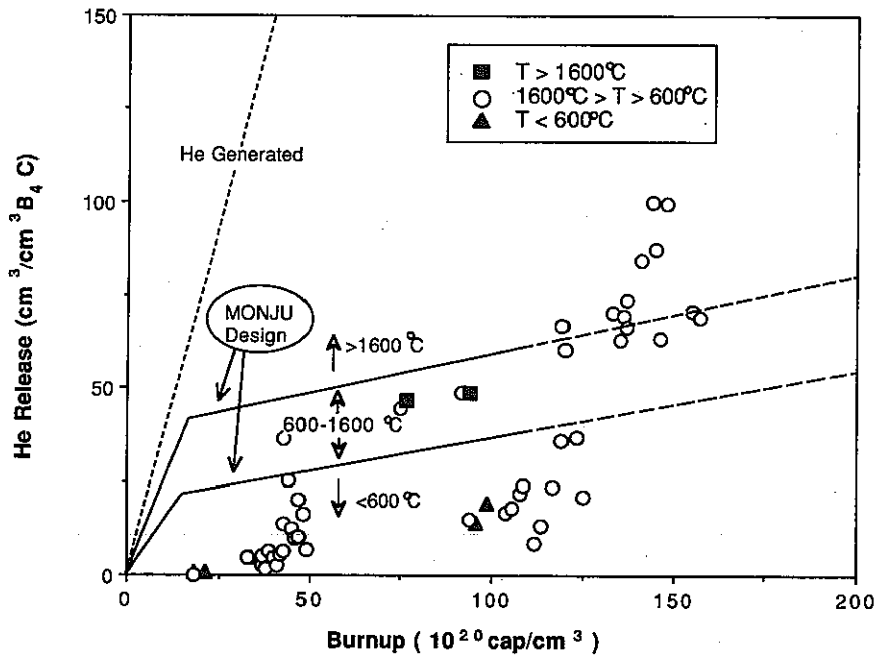


Fig. 1 He Release from B₄C Pellet

② ¹⁰B濃縮度の影響 (Fig. 2, Fig. 3)

Fig. 1のデータを¹⁰B濃縮度別にプロットすると¹⁰B濃縮度の高いペレットからのHe放出量が¹⁰B濃縮度の低いペレットでの値に比べて多いことが判る (Fig. 2)。

燃焼度約 $50 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$ のデータ群について比較すると¹⁰B濃縮度の増加に伴いHe放出率 (He生成量に対する放出量の割合) が増加しており、さらに、この傾向は照射温度の上昇に伴って増大していることが良く判る (Fig. 3)。

「もんじゅ」において、調整棒には¹⁰B濃縮度40atom%のB₄Cが、後備炉停止棒には同90atom%のB₄Cが使い分けられており、制御棒設計に当たっては¹⁰B濃縮度の影響を考慮することが妥当であると考えられる。

He放出が ^{10}B 濃縮度に依存する原因の詳細は明らかにできていないが、 ^{10}B 濃縮度の高いペレットにより多くの組織損傷（微細なクラック、結晶粒の脱落）が認められたことから、照射によって生じた多くのペレット損傷がHe放出の経路となったものと考えられる。

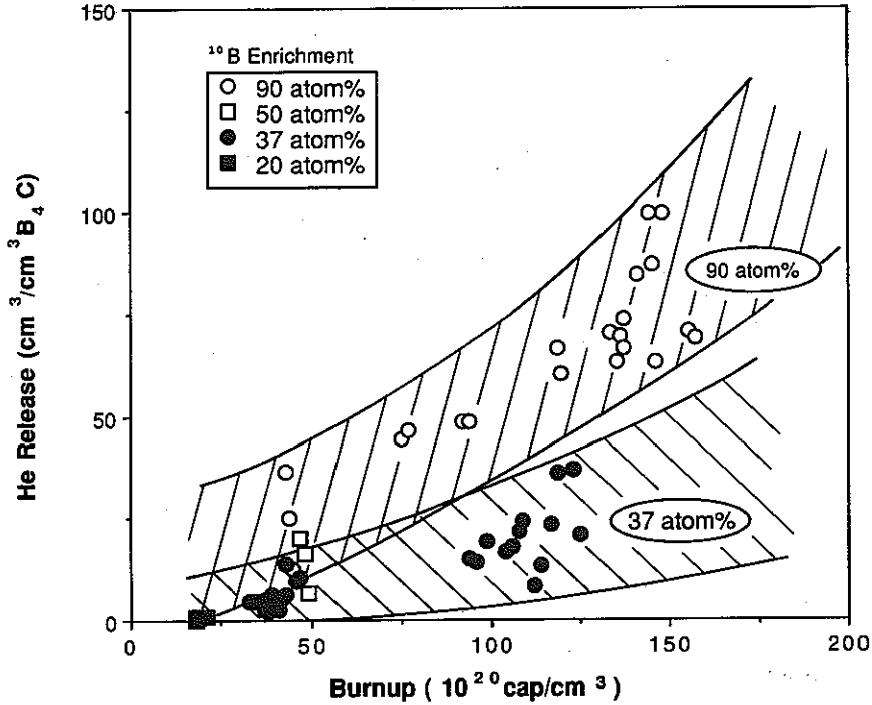


Fig. 2 He Release from B₄C Pellet

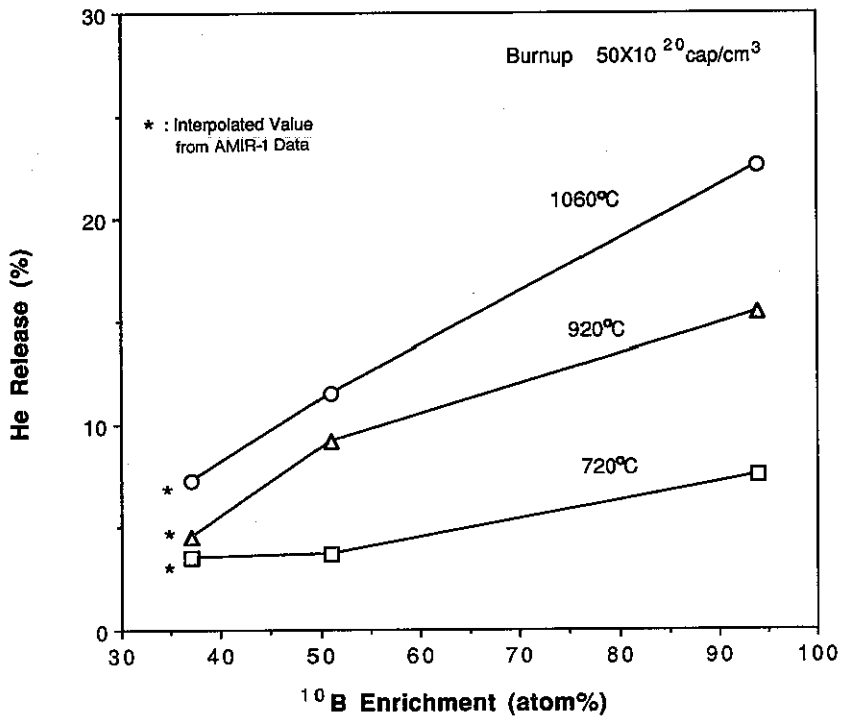


Fig. 3 He Release as a Function of ^{10}B Enrichment of B₄C Pellet

③ B₄C結晶粒径の影響 (Fig. 4)

He放出の律速過程は一般にHeのB₄C 粒内拡散であると考えられており、結晶粒径が大き
く、拡散距離の長いものではHeの放出が低下することが予想される。「常陽」および「も
んじゅ」仕様のB₄C に比べて、結晶粒径の大きなペレットからのHe放出は30~50%少なくな
っており、上記の予想に合致することが確認された。

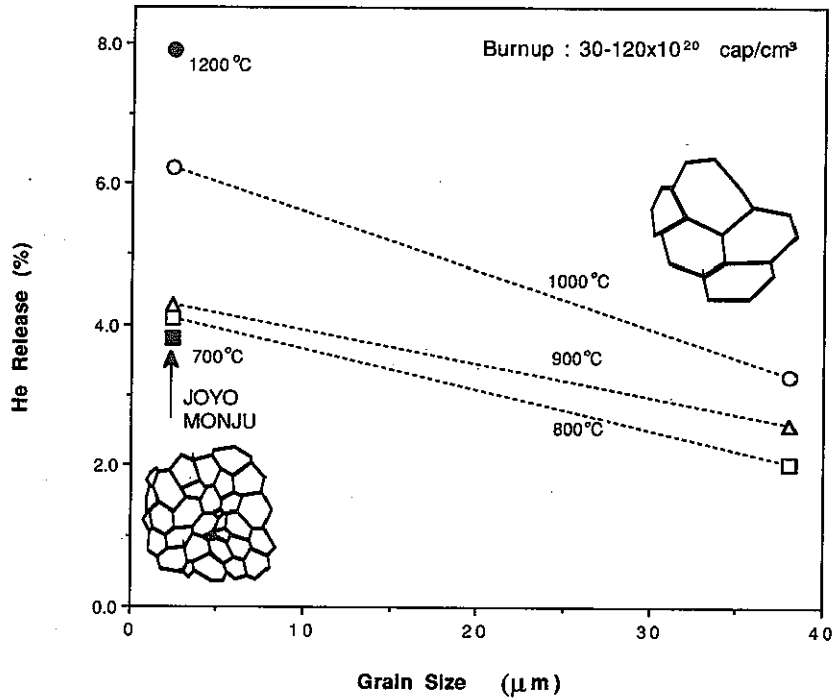
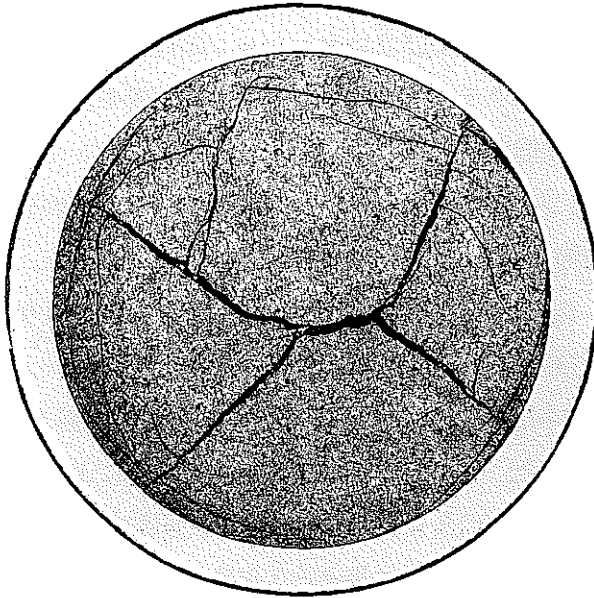


Fig. 4 He Release vs. B₄C Grain Size

(2) B₄Cペレットの健全性

① ペレットクラック (Fig. 5)

低燃焼度 ($< 33 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$)かつ低照射温度 ($< 700 \text{ }^\circ\text{C}$) のペレット以外の全てのペレットにおいてクラックの発生が認められた。低燃焼度のものについては照射温度の上昇に伴ってより細かくクラックする傾向が観られた。クラックの原因としては、炉の立ち上げ時の熱衝撃、スエリングによる歪応力などが考えられる。



Burnup	$117 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$
Irrad. Temperature	$1000 \text{ }^\circ\text{C}$
(Pellet Centerline)	
Initial Gap	0.55mm

Fig. 5 The View of Pellet Crack

② ペレットスエリング (Fig. 6)

比較的クラックの少ないペレットにおいて得られたデータより、燃焼度 $100 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$ (「もんじゅ」2サイクル最高程度) あたり約3.1%のスエリングが起こることが判った。

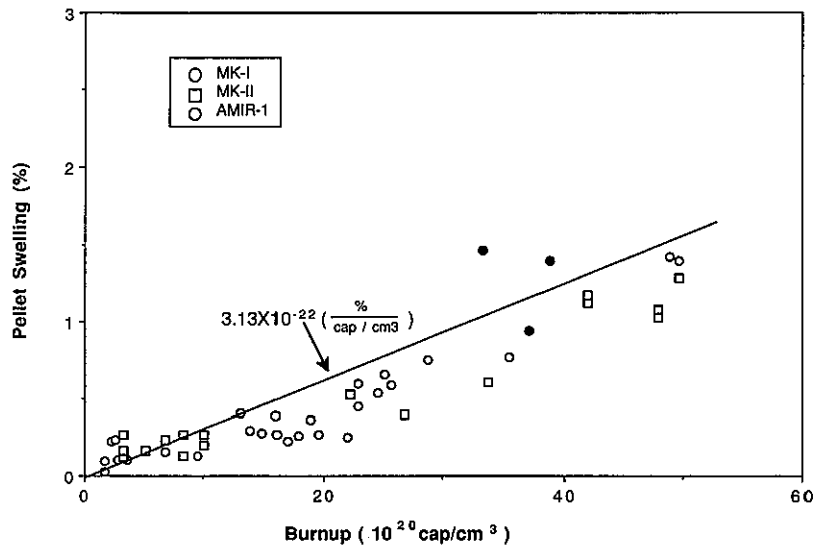


Fig. 6 Pellet Swelling as a Function of Burnup

(3) ペレット／被覆管の機械的相互作用 (ACMI)

① ACMIの発生過程 (Fig. 7, Fig. 8)

被覆管の外径変化には等方的な変形と異方的な変形の2種類がある (Fig. 7)。

Fig. 7では、ともに被覆管がペレット装荷位置において変形していることから、ACMIによる変形と考えてよい。なお、いずれの例においてもペレットにはクラックが発生していた。

ACMIの発生過程を模式的に表すとFig. 8のようになる。照射中にクラックを起こしたペレットはさらに被覆管内でその配置を変える(リロケーションを起こす)ことにより内部に間隙を形成する。ペレットクラックの無い場合およびリロケーションの程度が小さい場合には、被覆管は等方的に変形する。ペレットクラックの無い場合には被覆管の変形量はペレットスエリング量とペレット／被覆管初期ギャップの量によって決まる。ペレットクラックの発生している場合(リロケーション小)にはペレット片の間に生ずる間隙の分だけ見掛け上のペレットスエリング量が増加し、ACMIを促進すると考えられる。一方、ペレットクラックが激しく、且つ、クラック片が被覆管内で移動し易い場合にはリロケーションの程度が大きくなり、被覆管は異方的に変形する。このような大きなリロケーションには2つの形態がある。ひとつはペレット片が被覆管内で回転を伴うような再配置をし、ペレット片の間により広い間隙を形成する場合、もうひとつは激しいクラックにより生じたペレットの小片がペレットと被覆管のギャップに入り込み、被覆管に局所的な変形を与える場合である。いずれの場合もリロケーションは多分に偶発的な現象であり、その発生の有無および程度は予測が困難であるが、ペレット／被覆管初期ギャップ量やペレットクラックの程度に依存するものと予想される。

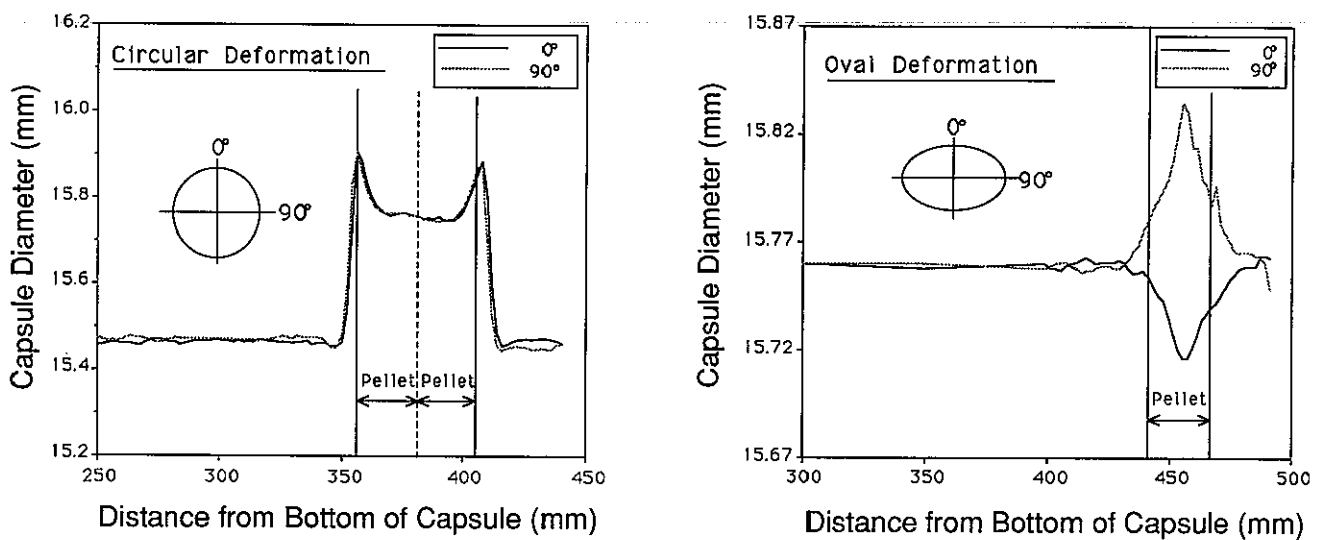


Fig. 7 The Two Types of Capsule Deformation

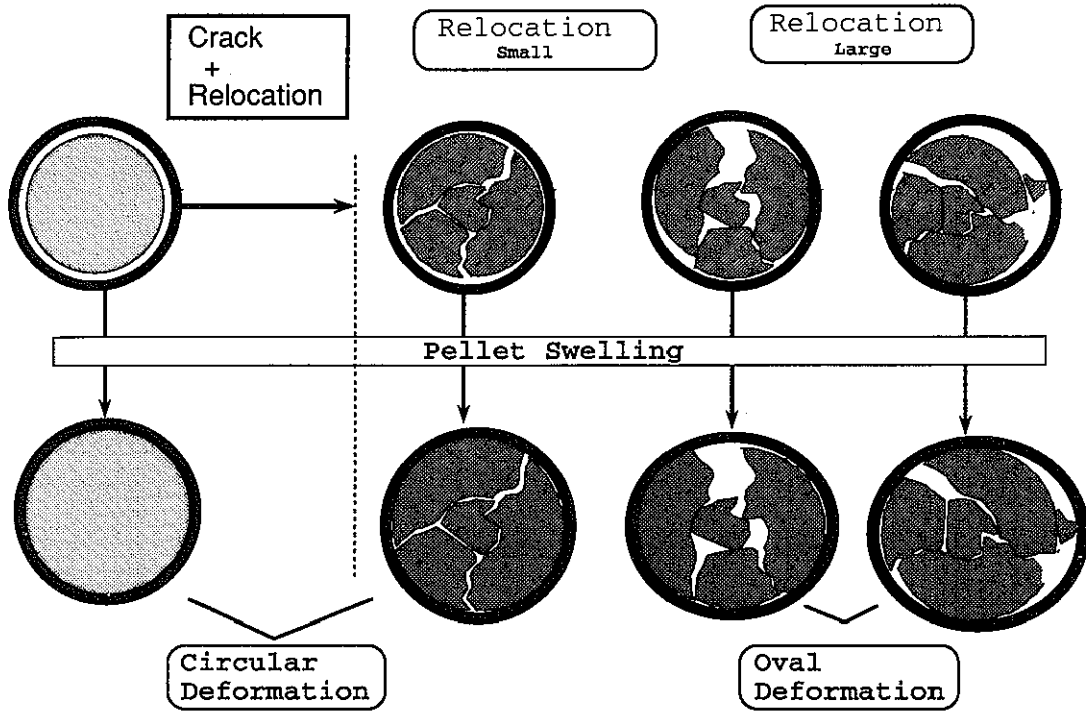


Fig. 8 Relationship between the Degree of Pellet Relocation and Capsule Deformation Mode

② ペレット/被覆管の初期ギャップ量の影響 (Fig. 9)

リロケーション発生因子のひとつとしてペレット/被覆管初期ギャップ量の影響を観ると、初期ギャップ量の小さい場合には等方的な変形、初期ギャップ量を大きく取った場合には異方的な変形が起こっており、初期ギャップ量の大きなものほどリロケーションの程度が激しくなることが推測される。

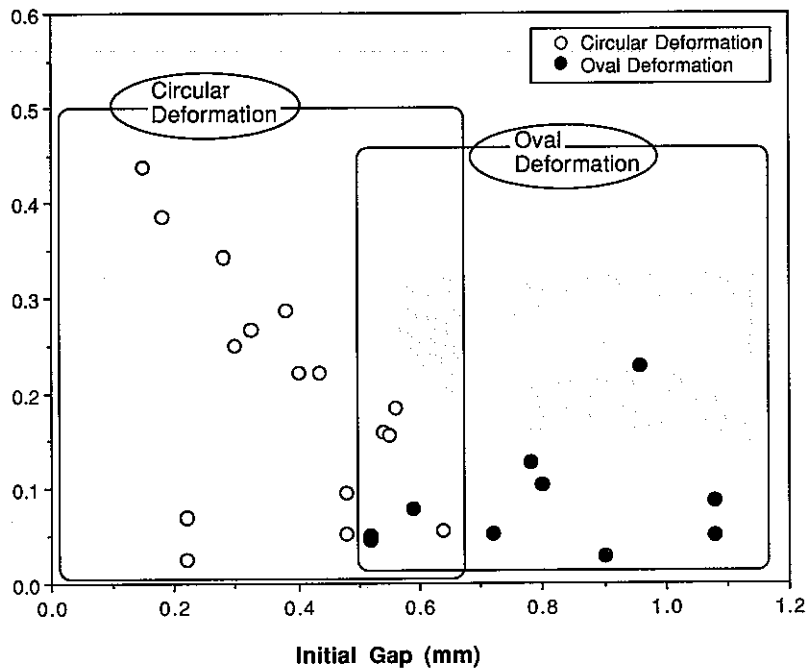


Fig. 9 Initial Gap Dependence of Capsule Deformation Mode

③ リロケーションのACMIへの影響 (Fig. 10)

図において横軸「残留ギャップ量」は(初期ギャップ量) - (ペレットスエリング量予測値)であり、ペレットクラックの発生が無いと仮定した場合、(+)領域はACMIが起これないと予測される領域、(-)領域はACMIにより被覆管が(Fig. 10の破線に従って)変形すると予測される領域である。

被覆管外径の実測値はペレットクラックの無い場合の予測よりも約 0.2mm大きな変形量(「もんじゅ」B₄Cペレット径の約1.6%に相当)を示している。

ペレットは全てクラックを発生していることが確認されており、さらに、被覆管の変形は等方的なものであった。よって、この差はペレットクラックにより生じた小さなリロケーションによるもの、つまり、ペレット片の間のクラックギャップが閉塞しきれなくなったために被覆管の変形が促進されたものと解釈される。

一方、Fig. 11に示すペレット小片がペレットと被覆管の間に入り込んだタイプのリロケーションの場合、残留ギャップ量測定値に対して約0.6mm(ペレット径の約 4.8%)の被覆管変形促進が認められた。

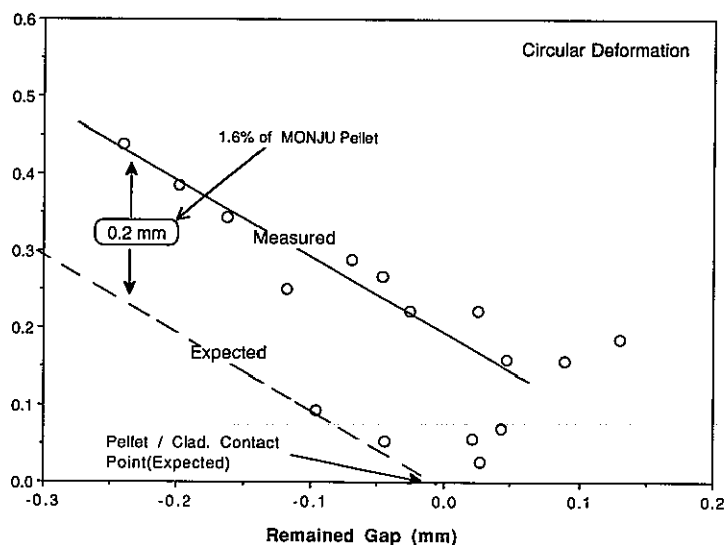
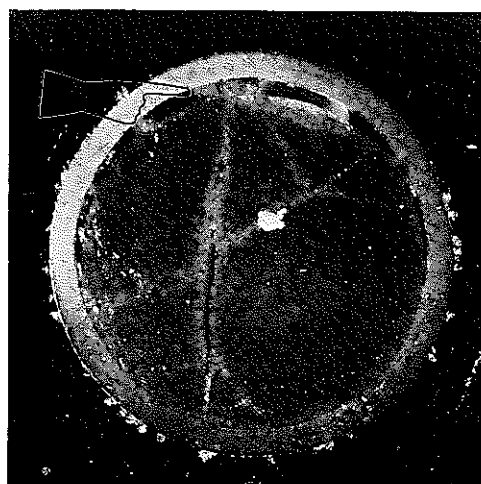


Fig.10 Clad. Deformation vs. Remained Gap Expected



Burnup $119 \times 10^{20} \text{ cap/cm}^3$
 Irrad. Temp. 1200°C
 (Pellet Centerline)
 Initial Gap 0.96mm

Fig. 11 A Type of Large Relocation

(4) B₄Cペレットの熱伝導率変化

① 燃焼度の影響 (Fig. 12)

B₄C の熱伝導率は照射初期に急速に低下し、燃焼度の比較的高い領域では変化量は少ない傾向を示す。熱伝導率の低下は、照射により生成した各種の欠陥やマイクロクラックが熱の移動を阻害するためと考えられる。

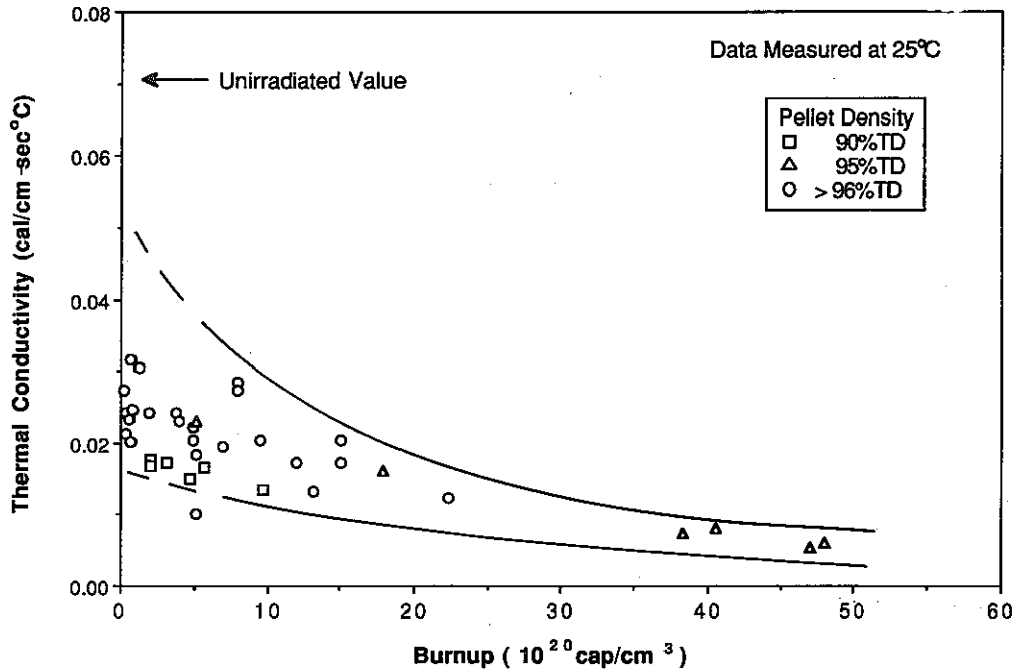


Fig. 12 Burnup Dependence of Thermal Conductivity of B₄C Pellet

② 測定温度依存性 (Fig. 13)

照射材においては、非照射材に見られたような、測定温度の低下に伴い熱伝導率が増大する現象が観られなくなる。熱伝導を阻害する因子が、非照射材では結晶格子の熱振動であったのに対し、照射材では欠陥やマイクロクラックの方が支配的になったためと考えられる。

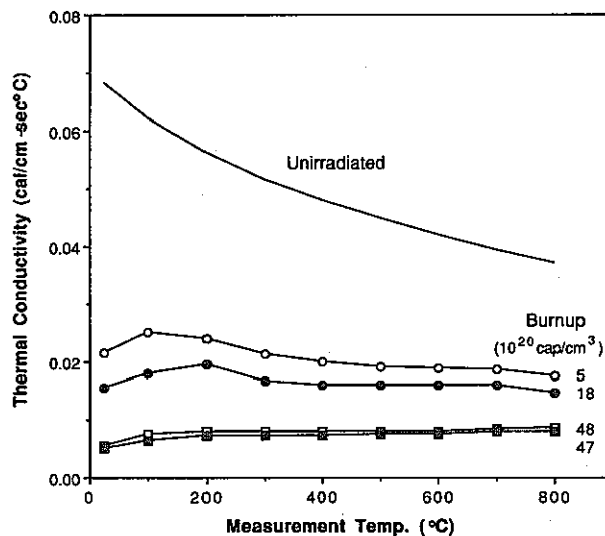


Fig. 13 Temperature Dependence of Thermal Conductivity of B₄C Pellet

4. 結 論

(1) He放出挙動

- 「もんじゅ」に用いられているHe放出量の設計式は燃焼度 $110 \times 10^{20} \text{cap/cm}^3$ まで適用可能である。これ以上の燃焼度ではHe放出は加速される。
- ^{10}B 濃縮度の高いペレットの方が、同一燃焼度、同一燃焼率（燃焼速度）において、He放出しやすい傾向が認められた。また、照射温度の高い場合に特にこの傾向は強いことが分かった。この ^{10}B 濃縮度依存性の詳細なメカニズムは不明であるが、照射によるペレットの組織損傷（微小クラック等）によりHe放出が促進されたものと解釈できる。
- He放出は B_4C 結晶粒径が大きいものほど低下する。これよりHe放出は結晶粒内におけるHe拡散過程により律速されることがわかった。
- このようなペレットの因子を制御することによってHe放出の低減が可能であるが、一般に、He放出の低い B_4C ペレットはスエリングが大きい傾向にあるので、今後さらにペレットの因子とスエリングの関係を調査する必要がある。

(2) ペレットのスエリングと割れ

- ペレットのスエリング率は燃焼度 $100 \times 10^{20} \text{cap/cm}^3$ 当たり約 3.1%であった。
- 低燃焼度・低照射温度以外のペレットにはすべて割れが認められ、燃焼度が高くなるほど、また照射温度が高くなるほど割れの程度は細くなる傾向が認められた。

(3) ペレットと被覆管の機械的相互作用 (ACMI)

- B_4C ペレットの割れによるペレット片の移動・再配置（リロケーション）は、ペレットスエリングの進行と共に被覆管の変形を加速する。
- ペレットと被覆管の間の初期ギャップが小さい場合にはペレット片のリロケーションは少なく、被覆管は等方的な変形を起こすが、ペレット内に生ずる割れのギャップがペレットの外径増加に寄与し、この増加分はペレット径の1.6%と見積もられた。
- ペレットと被覆管の初期ギャップが大きい場合には、ペレット小片がギャップ部へ移動し、被覆管にオーバリティのある大きな変形を引き起こすことがわかった。被覆管変形へのリロケーションの寄与分はペレット径の 4.8%と見積もられたが、このようなリロケーション挙動は多分に偶発的であり、定量的な予測は困難である。
- リロケーションを防止することによってACMIの大幅な緩和が期待できる。このための方法としては、 B_4C ペレットに密着させて薄肉の鞘を被せた、シュラウド型吸収ピンが有効である。

(4) B_4C ペレットの熱伝導率

- 熱伝導率は照射初期において急速に低下し、その後低下率は飽和する傾向を示した。

また、非照射材に見られる熱伝導率の測定温度依存性は、照射材では認められなかった。これは、照射によって生じたマイクロクラックを含むマイクロな損傷が熱伝導を支配しているためである。

- このような熱伝導率低下の改善には、 B_4C サーメット化が有効であると考えられる。