

分置

「常陽」MK-II 制御棒の照射後試験
－吸収ピンの特異変形挙動(2)－

1994年5月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせください。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

「常陽」MK-II 制御棒の照射後試験

— 吸収ピンの特異変形挙動(2) —

丸山忠司*¹、皆藤威二*¹、堀内博人*¹
内海貴志*² 吽野一郎*³

要 旨

「常陽」MK-II 制御棒の照射後試験は、これまでに13体について実施しており、このうち5体の制御棒で吸収ピン被覆管にクラックが確認されている。本報告書は、これまでの試験結果と被覆管クラックの発生原因および時期を調べるために実施した追加試験の結果をまとめたものである。

これまでに得られた試験結果から、吸収ピンは燃焼度 $57 \times 10^{20} \text{ cap/m}^2$ を超えると被覆管にクラックが発生するようになり、製造時におけるペレットと被覆管とのギャップの拡大はリロケーションの発生を誘発し、逆に制御棒寿命を短くすることが明らかとなった。発生原因はB、CペレットのリロケーションによるACMIの発生と、これに被覆管のHe脆化等の因子が加わったためにクラックが発生するに至ったものと推定できる。また、発生時期は炉内滞在中であると考えられるが、炉運転中であるのか、炉停止時であるのかを特定するのは困難である。今回の試験結果からは、炉から取り出した後の水処理にともなうアルカリ応力腐食割れの可能性は非常に低いと考えられる。

今後、制御棒寿命延長のためにはリロケーションの発生を抑制することが非常に重要である。

*1 大洗工学センター 燃料材料開発部 照射材料試験室 (MMS)
*2 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)
*3 大洗工学センター 燃料材料開発部 技術開発室 (ADS)
現 東海事業所 再処理工場 処理部 化学処理第一課

Post-irradiation examination of "JOYO" MK-II control rods

- Study on unusual mechanical behavior of absorber pin (2) -

Tadashi Maruyama*¹, Takeji Kaito*¹, Hiroto Horiuchi*¹,
Takashi Utsumi*², Ichiro Unno*³

ABSTRACT

Post-irradiation examination(PIE) for "JOYO" MK-II control rods has been carried out with thirteen subassemblies, five of which indicated occurrence of absorber pin breach. The present report describes results of the PIE made for the breached pins and studies were made on features on the breached pins and the cause of breach mechanisms.

It was observed that the threshold burnup of breached pins was 57×10^6 cap/m² above which total 15 pins breached. The pins with wider gap between B, C pellet and cladding tended to breach at lower burnup. In the breached pins, extensive absorber cladding mechanical interactions(ACMI) due to relocation of B, C pellet took place together with accumulation of He in the cladding material to make He embrittlement. It is inferred that these phenomena caused pin breach when they were in the reactor core. However, it is very difficult to clearly specify the time whether the pin breach occurred during the reactor operation or at the time when the reactor was shut down. The results of the present investigation did not support the conclusion made in the previous report that the main cause of pin breach was the stress corrosion cracking and pin breach took place when they were removed from the reactor core.

It was concluded that reducing the ACMI due to relocation of B, C pellet is very important for extension of life of "JOYO" absorber pin.

*1 Materials Monitoring Section, Fuels and Materials Division, OEC
*2 Fuels Monitoring Section, Fuels and Materials Division, OEC
*3 Analysis and Development Section, Fuels and Materials Division, OEC
(Present 1st Chemical Processing Section, Processing Division, TRP)

目 次

1. はじめに	1
2. 照射後試験	2
2.1 供試体の概要	2
2.2 照射後試験項目	3
3. 照射後試験結果	11
3.1 非破壊試験	11
3.2 破壊試験	13
4. 考 察	66
4.1 クラック発生原因と時期	66
4.2 今後の課題	72
5. ま と め	80
6. 謝 辞	82
7. 参考文献	83

1. はじめに

「常陽」MK-II制御棒は1982年に使用を開始し、現在まで29体の使用実績を有している。本制御棒は出力調整機能と緊急停止機能を兼ね備えたものであり、炉心に配置される6体は全て同一機能、同一構造である。また、吸収ピンはベント型を採用し、密封性を本質的に要求しない構造上の特徴を有している。

制御棒集合体と吸収ピンの健全性を確認するための照射後試験は1983年から始められ、これまで合計13体の照射後試験が行われた。これらの照射後試験を通じて吸収ピンの照射挙動に関する多くのデータが取得され、その後の改良設計や交換計画等への反映に取得データの活用が図られてきた。

これまで取得した吸収ピンの照射後試験データのうち、1次取替制御棒の一部の吸収ピン被覆管にクラックの発生をともなう特異変形挙動が認められた。このクラック発生に関しては、『「常陽」MK-II制御棒の照射後試験 —吸収ピンの特異変形挙動—』¹⁾として既に報告されているとおりであるが、その発生原因と時期については、これまでベント孔から吸収ピン内に浸入したNaが洗浄水または貯蔵中の管内水によりNaOHに変化し、炉外貯蔵中に被覆管の応力腐食割れに発展したと考えられていた。しかし、今回の3次および4次取替制御棒の照射後試験から上記報告書の内容と異なり、炉内で使用中にクラックが発生した可能性を示唆する新たな知見も付け加えられるようになった。

以下に、4次取替制御棒までの照射後試験において確認されたクラック発生の現状と発生原因の調査結果について報告する。

2. 照射後試験

2.1 供試体の概要

(1) 仕様と構造

「常陽」MK-II取替制御棒は、中性子吸収材をステンレス鋼管に装填した制御棒要素（吸収ピン）およびそれを収納する保護管等から構成される。また、制御棒は炉心に6体装荷されており、全てが出力調整機能およびスクラム機能を有している。MK-II取替制御棒の仕様と改良実績を表2-1に示す。また、制御棒の炉内装荷位置を図2-1に、構造を図2-2に示す。

中性子吸収材としては、 ^{10}B を90wt%まで濃縮したB,Cを、相対密度90% T. D. のペレット状に成形したものを採用している。ペレット外径は初装荷制御棒では16.3mmであったが、ペレットのスエリングによる被覆管との機械的相互作用（ACMI）の発生時期を遅らせるために、1次取替制御棒では16.15mm、2次取替制御棒では16.1mm、3次取替以降の制御棒では16.0mmと段階的に小径化を施している。ペレットの高さは初装荷制御棒から25.0mmであり、変更はない。B,Cペレットの化学成分を表2-2に示す。

吸収ピンは、外径18.1mm、肉厚0.8mmのSUS316相当鋼（20%冷間加工）製の被覆管に、B,Cペレット26個を長さ650mmに液り装填したものである。吸収ピン上部には、B,Cペレットの燃焼にともない生成されるHeガスを、吸収ピン外部に放出するためのダイビングベル型のベント機構を有している。また、吸収ピン外面には、保護管内に装荷したときに各ピンの間隔を保つため、SUS316相当鋼（20%冷間加工）製のラッピングワイヤが巻かれている。吸収ピンの全長は、初装荷制御棒では1,151mmであったが、4次取替以降の制御棒ではベント機構の長さ変更にとまない1,273mmとなっている。3次取替制御棒（CR301M）で使用した被覆管の化学成分を表2-3に示す。

保護管は、外径64.7mm、肉厚1.5mmのSUS316相当鋼（20%冷間加工）製の管内に、吸収ピン7本が装荷された全長2,250mmのものである。この保護管内において、吸収ピンの両端は支持板により固定され、各ピンの間隔は前述のとおりラッピングワイヤによって保持される構造となっている。

(2) 照射条件

現在までに「常陽」MK-II炉心において29体の制御棒が使用されており、このうち13体について照射後試験を実施した。これら13体のうち12体について、照射期間と照射後試験スケジュールを表2-4に、照射条件を表2-5に示す。（初装荷制御棒MCR004についてはダッシュラム部の寸法測定のみ実施のため表には記載しなかった。）

MK-II 制御棒の使用実績としては、燃焼度は初装荷制御棒MCR005の $78 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ が最大であり、照射期間および照射量は4次取替制御棒CRT402の307日、 $4.1 \times 10^{26} \text{n/m}^2$ ($E > 0.1 \text{MeV}$) が最大である。また、表中の燃焼度および照射量はどちらも『「常陽」照射用炉心の炉心特性総合評価システム(MAGI)』による計算値であり、集合体全体での最大値を示している。

2.2 照射後試験項目

各集合体の照射後試験項目を表2-5に示す。通常、制御棒の照射後試験としては、集合体および吸収ピンの健全性確認を目的とした詳細外観検査、重量測定および寸法測定等の非破壊試験を実施している。また、一部の集合体については、吸収ピンの断面金相観察を実施し、B,Cペレットの割れ、リロケーションの状態およびACMIの発生状態について調べている。さらに、非破壊試験においてクラックの発生が認められた吸収ピンについては、破断面SEM観察および被覆管のリング引張試験等の破壊試験を実施し、クラック発生の原因および時期を調べている。以下に、これまでに実施した試験項目およびその内容を示す。

(1) 非破壊試験

制御棒の照射後試験としては、集合体および吸収ピンの健全性確認を目的とした非破壊試験を実施した。このうち、吸収ピンにおける主な試験項目および内容を以下に示す。

① 吸収ピン詳細外観検査

吸収ピン表面の傷、変色および付着物の有無を調べた。

② 吸収ピン重量測定

吸収ピン重量変化の有無を調べた。

③ 吸収ピン寸法測定

B,Cペレットのスエリングやリロケーションにより生じる吸収ピン被覆管の外径変化を調べた。また、吸収ピンの伸びおよび曲がりの有無を調べた。

(2) 破壊試験

前項の非破壊試験において、クラックの発生が認められた吸収ピンについて、クラックの発生原因および発生時期の究明のためにB,Cペレットおよび被覆管の破壊試験を実施した。主な試験項目および内容を以下に示す。

① 断面金相観察

B,Cペレットの割れ、リロケーションおよびACMIの状態を調べた。また、被覆管について組織変化およびB,Cペレットとの化学的相互作用(ACCI)の有無を調べた。

②破断面SEM観察

被覆管のクラックの破断形態を調べた。

③リング引張試験

クラックの発生していた吸収ピンの被覆管に強度的に異常が生じていないかを調べた。また、引張試験後の破断形態を調べた。

④He分析

被覆管の中に蓄積したHeの量を調べた。

表2-1 「常陽」MK-II 取替制御棒の仕様と改良実績

項目	初装荷制御棒 (10体)	第1次取替制御棒 (6体)	第2次取替制御棒 (4体)	第3次取替制御棒 (5体)	第4次取替制御棒 (5体)	第5次取替制御棒 (4体)	第6次取替制御棒 (5体)	第7次取替制御棒 (4体)
制御棒 ・全長 ・流力駆動制御機構 ・重量 (平均値)	・2,250mm ・70.7mm (ボール回転式) ・18.2kg (実測平均)	→	→ 3桁/1金板 (固定突起式)	→ 72.7mm (二段固定突起式)	→	→	→	→
① 保護管および接続管 ・材質 ・外径 ・内径	・SUS316相当 20%CW材 ・64.7mm ・61.7mm	→	→	→	→	→	→	→
② 上部および下部グリッド板 ・材質 ・外径 (最大部分)	・JIS G 4303 SUS316 ・74.7mm	→	・SUS316相当 (7-4材)	→	→	→	→	→
③ ハンドリングヘッド ・材質 ・外径 (最大部分) ・内径	・ ・78.0mm ・56.0mm	→	・SUS316相当 (7-4材)	→	→	→	→	→
④ 下部構造物 ・材質 ・外径 (最大部分) ・ダッシュラム平行部外径 ・ダッシュラム部テーパ	・ ・64.7mm ・40.25mm ・1/250	→ ・40.10mm (着座φF設置)	・SUS316相当 (7-4材) 20%CW材	→ 下部構造物の 7桁/7A一体化 ・40.0mm	→	→ ・ストレート形状	→	→
⑤ ボール ・材質 ・外径	・ステライトNo.6 ・13.3mm	→	なし	なし	なし	なし	なし	なし
⑥ ボール据え金具 ・材質 ・外径	・ ・20W×42L×7t (mm)	→	なし	なし	なし	なし	なし	なし
制御棒 ・全長 ・重量 (平均値) ・ピッチ ・ワイヤ巻付ピッチ	・1,151mm ・905.7g (実測平均) ・19.95mm ・216mm	→	・1,173mm ・1,000g (実測平均)	→	・1,273mm	→	→	→
① 被覆管 ・材質 ・外径 ・内径	・SUS316相当 20%CW材 ・18.1mm ・16.5mm	→	→	→	→	→	→	→ ・18.2mm ・16.6mm
② B、Cベレット ・材質 ・外径 ・高さ ・スタック	・B90%濃縮B、C ・16.3mm (F+70.2mm) ・25.0mm ・650mm	→ ・16.15mm (F+70.35mm)	→ ・16.1mm (F+70.4mm)	→ ・16.0mm (F+70.5mm)	→	→	→	→ (F+70.4mm)
③ スペーサ ・材質 ・外径 ・高さ	・Al、0 ・16.3mm ・20.0mm	→	・SUS316相当 (7-4材) ・16.1mm ・15.5mm	→	→	→	→	→
④ ベント管 ・材質 ・ベント長	・JIS G 3459 SUS316 ・250mm	→	→	→	→	→ ・350mm	→	→
⑤ 上部、中間、下部端栓 ・材質 ・外径 (被覆管接合部)	・JIS G 3459 SUS316 ・16.5mm	→	・SUS316相当 (7-4材)	→	→	→	→	→
⑥ シュラウド管 ・材質 ・外径 ・内径	なし	なし	なし	なし	なし	なし	5体中1体 ・SUS316 ST材 ・16.2mm ・16.0mm	4体全部 → → →
⑦ ラッピングワイヤ ・材質 ・外径	・SUS316相当 20%CW材 ・1.7mm	→	→	→	→	→	→	→
主な改良点	→	(1) スエリング対策としてダッシュラム径を変更 (φ40.25mm→φ40.1) (2) 燃料洗浄槽内の制御棒位置を下げるため、着座パッドを設置 (3) ACMIの発生時期を遅らせるため、B、Cベレット径を縮小化	(1) 耐スエリング性強化用主要部材の変更 (ダッシュラム20%増加工材) (2) 防護機構を回転式から固定突起式に変更 (3) ACMIの発生時期を遅らせるため、B、Cベレット径を縮小化	(1) 下部構造物本体とダッシュラム部の一体化 (2) 防護突起物を二段とし突起の加工方式を油圧による保護管一体成形とした (3) ACMIの発生時期を遅らせるため、B、Cベレット径を縮小化	(1) ベント長の変更およびそれによる制御棒要素の全長変更 (1) ダッシュラム部を1/250のテーパ形状からストレート形状に変更	(1) 制御棒5体中1体にリローテーション対策としてシュラウド管の採用	(1) 制御棒4体全部にリローテーション対策としてシュラウド管の採用 (2) シュラウド管の熱的制限までギャップを拡大するため、被覆管の内径、外径を拡大	

表2-2 B₄Cペレットの化学成分

(wt%)

成分	全B	全B+全C	B ₂ O ₃	Fe	Ti	Cl+F	Co	Cu	Mn	Na
規格値	77.0±1.0	>99.0	<0.1	<0.8	<0.1	<0.01	<0.005	<0.01	<0.01	<0.01
分析値	76.96	99.45	0.01	0.05	<0.01	検出限界以下	検出限界以下	0.0042	0.0008	0.0026

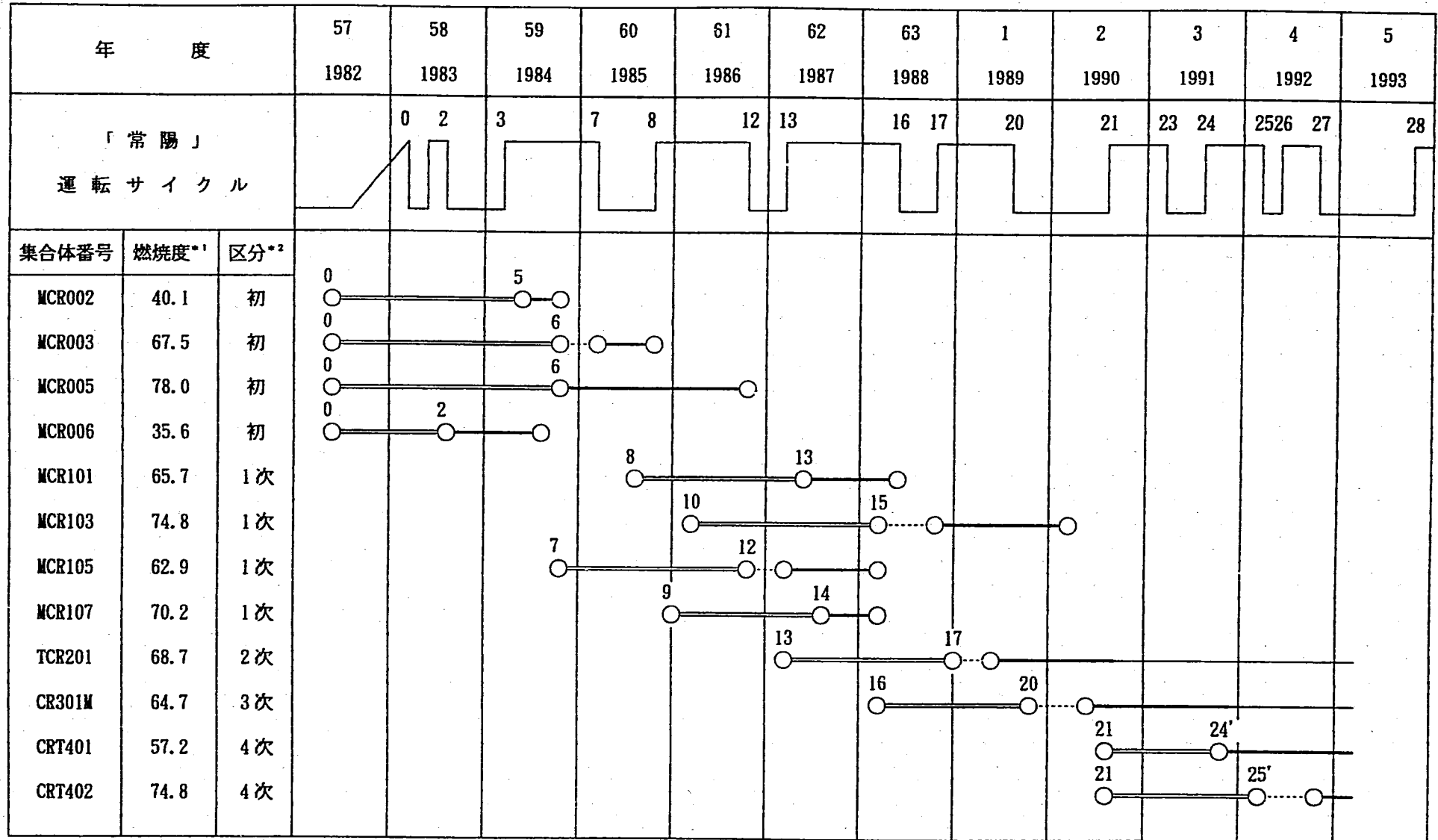
検出限界 Cl : 50ppm F : 5ppm Co : 2.5ppm

表2-3 被覆管の化学成分

(wt%)

成分	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Ti	Co	B	N	V	Nb	Ta	As	Al	Zr	O
規格値	0.040	0.40	1.40	0.015	<0.010	<0.20	13.00	16.00	2.00	0.05	<0.050	0.0020	<0.0100	<0.20	0.05	<0.05	<0.030	<0.050	<0.10	<0.0040
	0.080	1.00	2.00	0.040			14.00	18.00	3.00	0.10		0.0060			0.10					
分析値	0.056	0.77	1.54	0.030	0.003	0.02	13.68	16.27	2.48	0.08	0.001	0.0029	0.0053	0.02	0.018	<0.01	0.002	0.040	<0.01	0.0008
	0.059	0.79	1.74	0.032	0.004		13.79	16.46	2.57			0.0030	0.0055		0.019		0.003	0.044		0.0010

表2-4 「常陽」MK-II取替制御棒の照射期間と照射後試験スケジュール



*1 ポイント最大 ($\times 10^{22}$ cap/m²)
 *2 初装荷・1次・2次・3次・4次取替

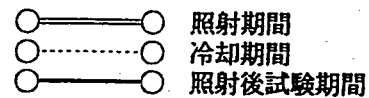


表2-5 「常陽」MK-II 取替制御棒の照射条件と照射後試験項目

	集合体名	照射条件				クラックピン 発生本数 (本)	照射後試験項目						
		照射期間		燃焼度 ($\times 10^{18}$ cap/m ²)	照射量 ($\times 10^{21}$ n/m ² E0.1MeV)		非破壊試験			破壊試験			
		1/1M(装荷位置)	(EPPD)				詳細外観観察	重量測定	寸法測定	断面金相観察	破面SEM観察	リング引張試験	He分析
初装荷	MCR002	0~5 (3E3)	158.77	40.1	2.67	—		○	○				
	MCR003	0~1 (3C3)	247.00	67.5	3.29	—		○					
		2~4 (3F3)											
		6 (3A3)											
MCR005	0~6 (3E3)	291.83	78.0	3.85	—		○	○	○				
MCR006	0~1 (3F3)	115.97	35.6	1.66	—		○	○					
	2 (3C3)												
1次取替	MCR101	8~12 (3A3)	275.15	65.7	3.41	0	○	○	○				
		12~13 (3D3)											
	MCR103	10 (3E3)	318.04	74.8	3.99	2	○	○	○	○	○	○	
		11~12" (3F3)											
13~15 (3E3)													
MCR105	7~12" (3E3)	267.71	62.9	3.31	3	○		○	○				
	12" (3A3)												
MCR107	9 (3C3)	291.06	70.2	3.72	0	○	○	○					
	10 (3F3)												
	11 (3E3)												
	12~12" (3D3)												
	12" (3A3)												
	12" (3E3)												
13~14 (3F3)													
2次取替	TCR201	13~17 (3A3)	283.05	68.7	3.65	0	○	○	○	○			
3次取替	CR301M	16~20" (3C3)	282.79	64.7	3.39	4	○	○	○	○	○	○	○
4次取替	CRT401	21~24" (3C3)	243.34	57.2	2.44	2	○	○	○				
	CRT402	21~25" (3E3)	307.45	74.8	4.09	4	○	○	○				

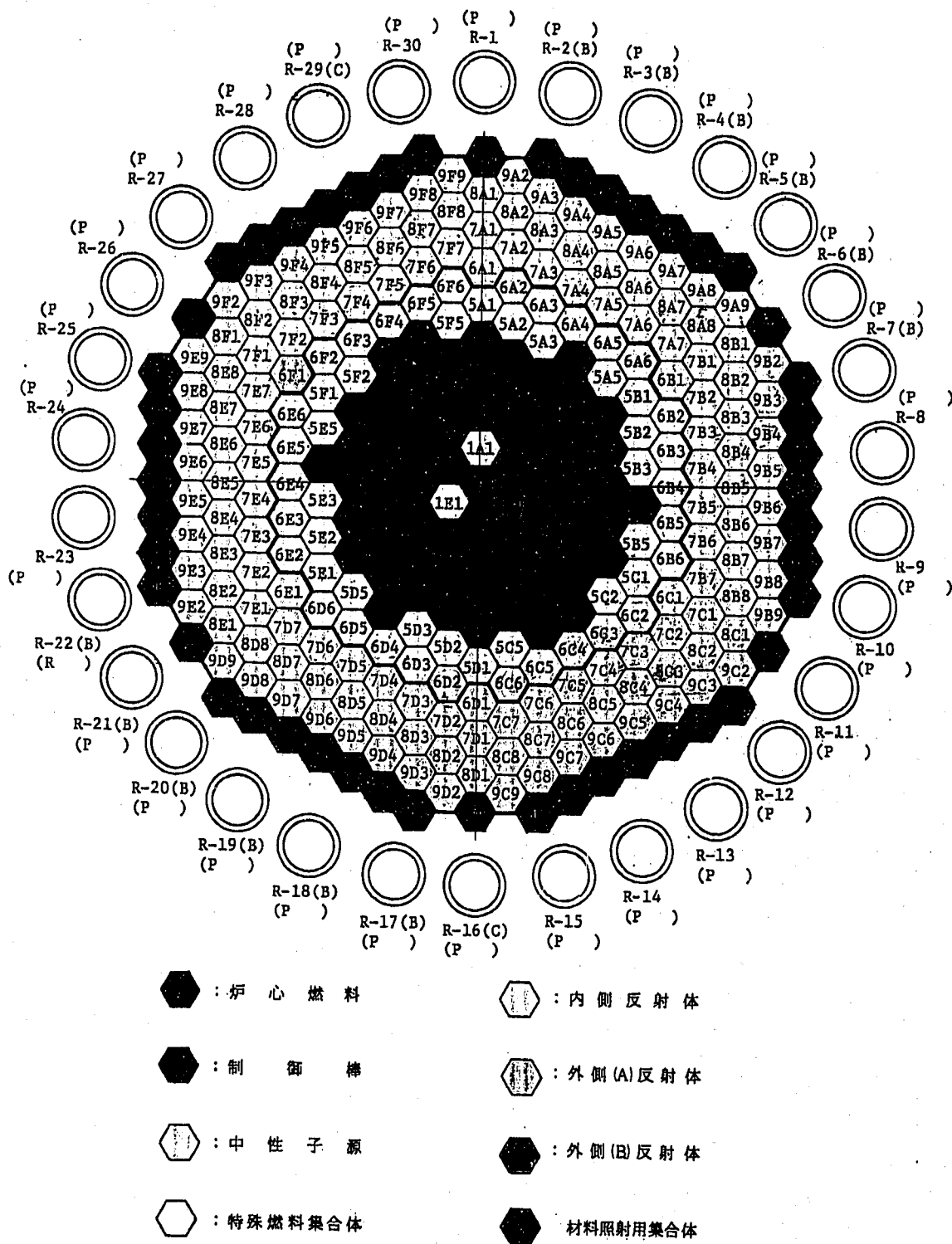


図2-1 「常陽」MK-II炉心の構成

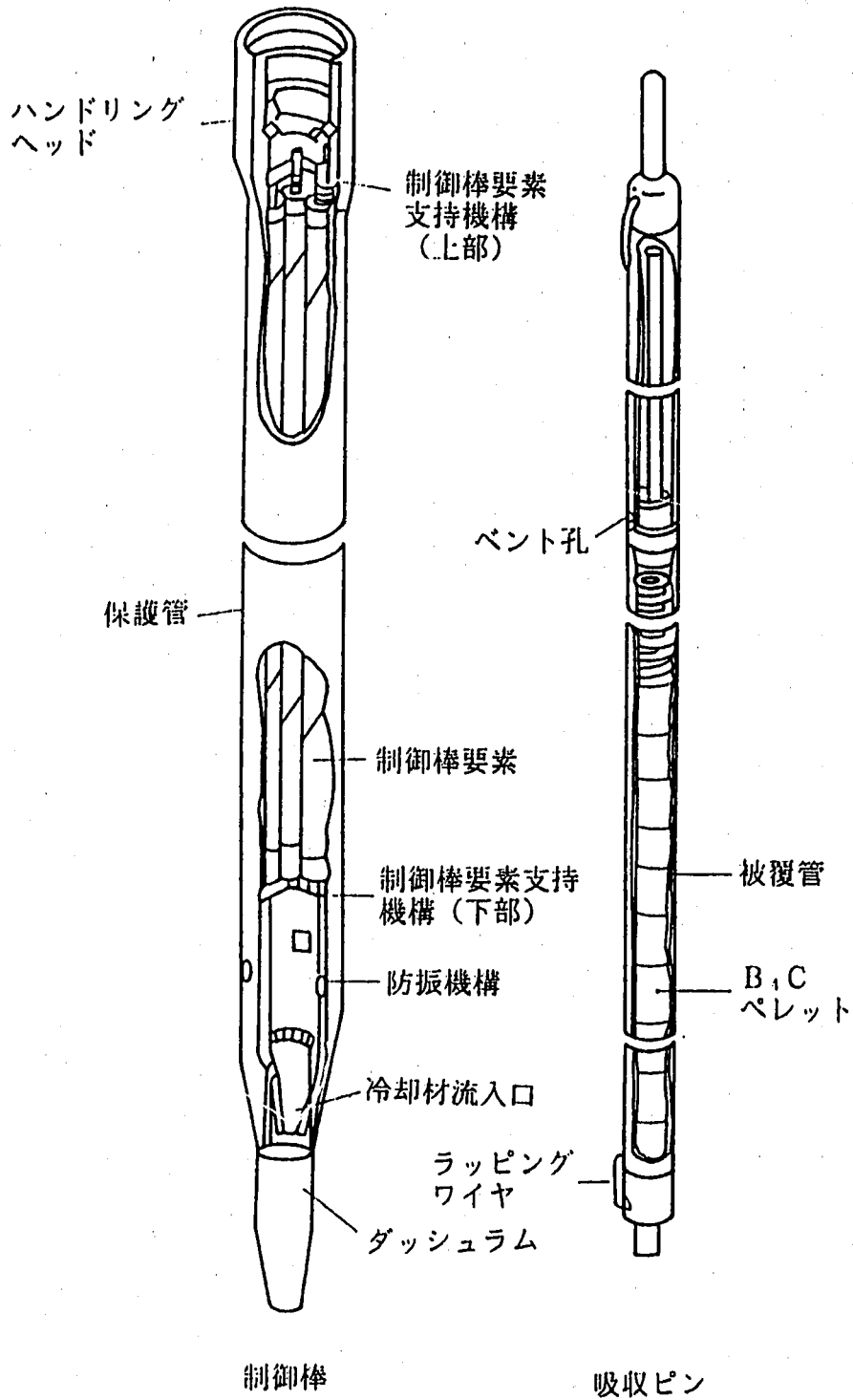


図2-2 「常陽」MK-II 制御棒の構造

3. 照射後試験結果

3.1 非破壊試験

これまでに非破壊検査を実施した制御棒集合体の集合体名、試験結果および搬入経路等の概要を表3-1に示す。

(1) 吸収ピン詳細外観検査

代表的な制御棒吸収ピンの詳細外観検査結果を表3-2に示す。詳細外観検査からは、クラックの確認された吸収ピン（以下「クラックピン」）と確認されなかった吸収ピン（以下「健全ピン」）との間には、クラックの発生以外、表面状態に明確な差異は認められなかった。

クラックピンについて、クラックの発生していた軸方向位置、周方向位置およびその大きさについてまとめたものを表3-3に示す。また、クラックの発生していた位置についてのみまとめたものを図3-1に示す。クラックの発生していた軸方向位置は、吸収ピン下端から約100mm～120mmの位置のものがほとんどとなっていた。この位置はペレットスタックの最下端に相当する位置であり、燃焼度の最も高い場所でもある。クラックの長さは最大で37.0mm、最小で2.5mmであり、バラツキは大きい、傾向としては3～6mm程度のものが多くなっていた。また、その幅は0.1mm以下のものが大部分を占めていた。また、炉心方向を0°と仮定した場合のクラックの周方向での発生位置を図3-2に示す。傾向としては集合体内部側での発生が多くなっていた。

吸収ピンクラックの代表的なものを写真3-1～3-5に示す。いずれのクラックも基本的には軸方向に伸びる形状となっていた。長いものになると、写真3-2のように軸方向に蛇行しながら伸びるようになっており、CRT402のH305ピンについては、写真3-5のように段階的にクラックが進んでいる様子がみられた。

燃焼度とクラック発生の関係について表したものを図3-3に示す。現在、クラックの発生が確認されている最低の燃焼度は、CRT401における燃焼度 57×10^{20} cap/m²である。また、燃焼度とクラック長さとの関係は特に見出されなかった。

(2) 吸収ピン重量測定

詳細外観検査においてクラックの確認された吸収ピンおよび有意差（2.1g）を超える重量増加が認められた吸収ピンについてまとめたものを表3-4に示す。クラックピンのほとんどが15gからそれ以上の重量増加を示し、平均重量増加は約17g（最大23.5g）となっていた。これは有意差と比較すると約8倍という大きな値である。健全ピンにおいても10gを超える重量増加が認められるものもあるが、大半は10g以下であり、またその多くが有意差以内であった。

この重量増加の原因は、X線ラジオグラフィや破壊試験の結果から、ベント部およ

びクラック部からのナトリウムの浸入によるものと推定されている。3次取替以前のベント長250mmの吸収ピンでは、健全ピンにおいても10gを超える重量増加がみられるものがあり、ベント部からナトリウムが浸入した可能性がある。しかし、ベント長を250mmから350mmに延長した4次取替以降では、クラックピンと健全ピンとの間には重量増加に明らかな違いが認められた。4次取替以降は健全ピンのほとんどが重量増加は有意差以内であり、最大でも4.7gの増加となっているのに対し、クラック発生ピンでは10gを超える重量増加がみられる。これらの結果より、吸収ピンの重量増加の主な原因は、クラックからのナトリウムの浸入によるものと考えられる。これらのことから、3次取替以前のクラックの発生が確認されなかった吸収ピンでも、重量増加が顕著である吸収ピン（例えば、MCR101のB806ピンやMCR107のB902ピン等）については詳細外観検査では確認できなかったような微小なクラックが発生していた可能性もある。

(3) 吸収ピン寸法測定

制御棒吸収ピンの全長測定においては、クラックピンおよび健全ピンともに有意差(1.0mm)を超える全長の変化は認められなかった。

非破壊試験を実施した吸収ピンのうち、39本についてピンの曲がり測定を実施した。クラックピンの中で最大の曲がり量を示したものは、MCR103のD105ピンであり、その曲がり量は1.2mmであった。これは、健全ピンのうち最大の曲がり量を示したMCR107のB906ピンの1.8mmと比較しても十分に小さい値である。いずれにしても、その値は製造時の真直度検査基準である全長当たり2mm以下におさまる範囲であり有意な変化とは認められない。なお、クラックピンの平均曲がり量は約0.6mmであり、健全ピンの平均値0.73mmを下回っていた。また、最大曲がり位置もピン下端から105.3~945mmまでと非常に広範囲にわたっており、その分布傾向も顕著なものは確認されなかった。

クラックピンについて、被覆管の2方向平均で最大外径変化を示した軸位置と、その位置での外径変化率およびクラック発生軸位置についてまとめたものを表3-5に示す。ほぼ全ての吸収ピンにおいて最大外径変化位置、あるいはその近傍でクラックが発生しており、その外径変化率は1%近傍からそれ以上となっていた。また、CRT402においてクラックの発生した4本の吸収ピンについて、被覆管外径36方向平均の軸方向プロファイルを図3-4~3-7に示す。この図からも外径の増加がクラックの発生の原因となっていることが確認できる。

クラック発生位置と被覆管の2方向オーバリティの関係を表3-6に示す。クラック発生位置のオーバリティ量は各ピンの最大値に比べて小さくなっているものが多い。また、その発生位置についても最大オーバリティを示す軸位置との一致はみられず、

2方向のオーバリティからはクラックの発生とオーバリティの大きさとの相関は確認できなかった。図3-8～3-12はCRT401とCRT402のクラックの発生していた軸位置におけるオーバリティとクラックの周方向位置との関係を模式的に表したものである。図よりクラックは、楕円の短径側に近い部分で発生する傾向にあることが確認できた。

(4) 非破壊試験結果のまとめ

前項(1)～(3)までの非破壊試験の結果から、現状クラックの発生が確認されている吸収ピンに共通する事項を以下に示す。

- ①クラック発生位置は吸収ピン下端から100mm付近であり、この位置はペレットスタックの最下端に相当する位置である。また、この位置は燃焼度および外径増加ともに最大となる位置である。
- ②吸収ピン重量増加は10g程度からそれ以上である。
- ③クラック発生位置でのオーバリティに着目した場合、比較的短径に近い側にクラックは多く発生している。

3.2 破壊試験

(1) 断面金相観察

健全ピンの断面金相写真を写真3-6および3-7に、クラックピンの断面金相写真を写真3-8～3-10に示す。写真3-6は初装荷制御棒MCR005のものである。この制御棒はMK-II取替制御棒のなかでは初期ギャップが最も小さい0.2mmのものである。B、Cペレット内には、中性子照射により生じたクラックがみられるが、ペレットのスエリングにより被覆管との間のギャップは閉塞され、被覆管内に隙間なく詰まっている様子がみられた。写真3-7は2次取替制御棒TCR201のもので、初期ギャップは0.4mmである。この写真もMCR005と同様にペレット内にクラックがみられるが、ペレットの偏心によりペレットの片側は被覆管と接触し、その反対側にはギャップが残っている様子がみられた。また、このギャップの所々に割れたペレット小片が入り込んでいる様子もみられた。

写真3-8および3-9は1次取替制御棒MCR103とMCR105のもので、初期ギャップは0.35mmである。写真3-10は3次取替制御棒CR301Mのもので、初期ギャップは0.5mmである。また、それぞれクラックピンのものである。写真3-8および3-10ではTCR201と同様に、ペレットのクラック、偏心およびペレットと被覆管との間にギャップの残存がみられた。また、このギャップ部に割れたペレット小片が入り込んでおり、被覆管のクラックはギャップが残存している側で発生している様子がみられた。写真3-9ではペレットのクラックがみられ、クラック間のギャ

ップは比較的大きいが、ペレットと被覆管との間のギャップはほとんど残っていなかった。

クラックピンのクラック部の金相写真を写真3-11～3-14に示す。クラックは周方向1ヶ所にのみみられ、全て貫通しており、メインクラックに付随して粒界に沿った枝状のクラックが被覆管内面を起点に進展している様子がみられた。またほとんどの吸収ピンで、クラックは被覆管内面に対し垂直(90°)方向に発生していたが、CR301MのE602ピンでは被覆管内面に対し約60°方向であった。なお、クラック部の被覆管組織においては特に異常な析出物等は観察されず、クラック近傍の被覆管内面においてもクラックの発生に至るような初期亀裂等は観察されなかった。しかし、CR301MのE604ピンでは、写真3-15および3-16に示すように被覆管内面のB,Cペレットと接触していた部分に反応層がみられた。

(2) 破断面SEM観察

クラック部の破断面について、直接SEM観察した結果を写真3-17および3-18に示す。破断面は、いずれも典型的な粒界脆性破面であり、各粒界面にはナトリウム酸化物と思われる付着物が認められた。また、クラック部から連なる健全部を折り曲げ強制的に破断させた面を観察したところ、1～3μm径の伸長形ディンプルから成る延性破面であり、脆性破壊的な様子は観察されなかった。

(3) リング引張試験

3次取替制御棒CR301Mのクラックピン(E604)、健全ピン(E606)の被覆管についてリング引張試験を行った。また、同一ロットの非照射材についても試験を行った。試料の採取位置を図3-13に、各試料の試験条件と試験結果をあわせて表3-7示す。それぞれの試験条件で強度に異常がないか、破壊の形態に違いがどうかを調べるために、試験温度は室温、200および400℃、引張速度は0.2および0.01mm/minの計6条件で試験を行った。

試験結果を試験温度で整理したものを図3-14～3-15に示す。照射材の0.2%耐力、引張強さはそれぞれ非照射材に比べ30～40%増加し、逆に破断伸びは30%程度低下した。また、照射材、非照射材ともに試験温度が高くなるほど0.2%耐力、引張強さ、一様伸びおよび破断伸びは全て低下する傾向を示した。一様伸びについては、試験温度が高くなるほど伸びは小さくなる傾向はみられたが、バラツキが大きく照射の影響は確認できなかった。

健全ピンとクラックピンについて比較すると試験温度室温、200℃では0.2%耐力、引張強さおよび破断伸びの全てにおいて非常に良い一致を示し、有意な差はみられなかった。しかし、試験温度400℃において測定値のバラツキが大きくなる傾向がみられ、E606ピンの引張速度0.01mm/minの試料(E606R4)

で破断伸びが0.9%と極端に小さなものがみられた。また、これらの結果を引張速度で整理したものを図3-16~3-18に示す。いずれの試料も引張速度の違いによる明確な差はみられなかった。

リング引張試験後の外観写真を写真3-19~3-21に示す。試料は全て引張方向に対して90°の位置で破断しており、E606R4を除く全ての試料は、破断部の絞りも大きく延性的な破断形態を示していた。また、破断伸びの小さかったE606R4の破断形態が他の試料と違うか否かを調べるために、E606R4および同一条件で引張試験を実施したE604R4の破断部の金相観察を行った。それぞれの試料の破断部の金相写真を写真3-22に示す。どちらの試料も粒内で破断しており、延性的な破壊形態であることが確認された。しかし、E604R4では破断部が大きく絞れている様子がみられたのに対し、E606R4では破断部の絞りは小さく、破断部から若干離れた位置で絞りが大きくなっている様子がみられた。

(4) He分析

3次取替制御棒CR301Mのクラックピン(E604)、健全ピン(E606)の被覆管についてリング引張試験を行った。また、同一ロットの非照射材についても試験を行った。内面側と外面側のHe量の差をみるために、機械研磨により内面および外面から約200μmまでの試料を採取した。試料の採取位置を図3-13に、分析結果を表3-8に示す。非照射材のHe蓄積量は、試料の内外面にかかわらず検出限界以下であった。しかし、照射材では被覆管内面側で25~55appm蓄積しており、外面側でも約10appm蓄積されていることが明らかとなった。

これらの結果を照射量で整理したものを、ラップ管および燃料被覆管の分析結果とあわせて図3-20に示す。ラップ管や燃料被覆管では照射量の増加とともに、Heの蓄積量も増加していく傾向がみられる。これに対し、CR301Mの被覆管は $3.4 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ と比較的低い照射量であるにもかかわらず、Heは50appm程度蓄積されており、非常に大きい値であることがわかった。これは、ラップ管や燃料被覆管のHeはSUS316中の ^{10}B 、FeおよびNi等の中性子との反応により生成されたHeが蓄積されたものであるが、これに対しCR301M被覆管ではB,Cペレットと接触していたと思われる部分で反応層が観察されたこと、被覆管外面に比べてHe量が多いことから、B,Cペレットから被覆管中に直接侵入した ^{10}B の反応により生成した可能性が考えられる。しかし、図3-13に示す試料の採取位置に着目してみると、E606ピンではスペーサ(SUS316)が装荷されていた部分の被覆管は25appmとB,Cペレット装荷部に比べ半分程度の値であったが、E604ピンでは採取位置の違いによるHe蓄積量の差はみられなかった。このことから、B,Cペレットの燃焼にともない生成したHeが被覆管内に入り込んだ可能性もある

と考えられる。

また、リング引張試験の結果と同様に、健全ピン（E 6 0 6）とクラックピン（E 6 0 4）の間には明確な違いはみられなかった。

表3-1 「常陽」MK-II取替制御棒非破壊試験結果の概要

集合体名	最大燃焼度 (10^{20} cap/m ²)	詳細外観結果 クラックの有無	最大重量変化 (g)	ベレット部への Na 浸入の有無	最大外径変化量 ($\Delta D/D\%$)	その他
MCR002	40.1	観察せず	1.2	無	0.19	缶詰保管日数 6日
MCR003	67.5	観察せず	5.6	有	未測定	缶詰保管日数 36日
MCR005	78.0	観察せず	10.5	有	1.04	缶詰保管日数 2日
MCR006	35.6	観察せず	0.9	無	0.08	缶詰保管日数 7日
MCR101	65.7	無	14.8	有	1.28	缶詰保管日数 22日
クラック⇒ MCR103	74.8	有 (05, 07)	18.4	有	1.37	缶詰保管日数 216日
クラック⇒ MCR105	62.9	有 (02, 04, 07)	未実施	有	1.06	缶詰保管日数 15日
MCR107	70.2	無	17.0	有	1.20	キャスクカー
TCR201	68.7	無	-39.0	有	1.21	キャスクカー
クラック⇒ CR301M	64.7	有 (01, 03, 04, 05)	22.3	有	1.60	キャスクカー
クラック⇒ CRT401	57.2	有 (02, 03)	13.0	?	1.84	キャスクカー
クラック⇒ CRT402	74.8	有 (01, 02, 04, 05)	24.0	?	実施中	キャスクカー
備 考						
1. MCR107、TCR201、CR301M、CRT401、CRT402はキャスクカーで搬入後Naを拭き取りにより除去した。						
2. MCR004はダッシュラム部の寸法測定のみ実施したため表から削除している。						
3. TCR201 CRT401 CRT402の重量変化は製造時のピン重量データがはっきりしないため参考値とする。						

表3-2 健全ピンとクラック発生ピンの表面状態の比較

健全ピン

集合体名	MCR006	TCR201
傷	擦り傷（軸方向）	擦り傷（軸方向）
付着物	NaOH	NaOH
変色	有り（黒色）	有り（黒色）
腐食	無し	無し

クラック発生ピン

集合体名	MCR105	CRT401	CRT402
傷	擦り傷（軸方向）	擦り傷（軸、周方向）	擦り傷（軸方向）
付着物	NaOH	無し	無し
変色	無し	有り（黒色）	有り（黒色）
腐食	無し	無し	無し

表3-3 クラック発生位置および大きさ

集合体名	ピンNo.	軸位置*1 (mm)	角 度 (°)	長 さ (mm)	幅 (mm)
MCR105	B202	118	93	19.2	0.06
	B204	162	33	3.5	0.05
MCR103	D105	107	186	22.3	0.30
	D107	112	70	37.0	0.10
CR301M	E601	104	255	3.1	0.10
	E603	109	109	2.5	0.10
	E604	94	288	16.4	0.20
	E605	101	14	6.6	0.10
CRT401	G702	107	150	2.5	0.10
	G703	110	209	9.3	0.20
CR402	H301	104	16	3.0	0.10
	H302	112	351	5.6	0.10
	H304	99	99	3.9	0.10
	H305	104	38	5.8	0.10

*1 吸収ピン下端からクラック中心までの距離

表3-4 吸収ピン重量測定結果 (有意差±2.1g超過分)

集合体名	ピンNo.	ピン重量変化 (g)	詳細外観検査結果 クラック有:○ 無:×
MCR003	9001	+ 5.7	=====
	9002	+ 4.3	=====
	9003	+ 4.8	=====
	9004	+ 2.2	=====
	9005	+ 2.3	=====
	9006	+ 5.6	=====
MCR005	8502	+ 7.9	=====
	8503	+ 9.4	=====
	8504	+10.1	=====
	8505	+10.5	=====
	8506	+ 9.6	=====
	8507	+ 9.7	=====
MCR101	B801	+ 9.7	X
	B803	+ 7.8	X
	B804	+ 6.7	X
	B805	+11.0	X
	B806	+14.8	X
	B807	+ 5.6	X
MCR103	D103	+ 6.5	X
	D105	+18.8	O
	D106	+ 3.0	X
	D107	+14.3	O
MCR105	B202	=====	O
	B204	=====	O
	B207	=====	O
MCR107	B901	+ 4.1	X
	B902	+17.0	X
CR301M	E601	+21.4	O
	E603	+22.3	O
	E604	+16.3	O
	E605	+17.4	O
CRT401	G702	+13.0	O
	G702	+11.8	O
CRT402	H301	+23.5	O
	H302	+19.3	O
	H304	+22.4	O
	H305	+18.6	O
	H306	+ 4.7	X
	H307	+ 4.1	X

注) MCR003、MCR005については詳細外観検査は未実施
MCR105については重量測定は未実施

表3-5 クラック発生位置と2方向最大外径変化率との関係

集合体名	ピンNo.	最大外径変化軸位置*1 (mm)	最大外径変化率 ($\Delta D/D\%$)	クラック発生軸位置*2 (mm)
MCR105	B202	183.1	—	118
	B204	139.0	—	162
MCR103	D105	103.8	2.14	107
	D107	123.4	2.15	112
CR301M	E601	104.2	1.67	104
	E603	104.6	1.19	109
	E604	104.5	1.25	94
	E605	122.3	1.33	101
CRT401	G702	98.0	1.48	107
	G703	112.2	1.62	110
CRT402	H301	104.8	1.35	104
	H302	118.4	1.26	112
	H304	94.7	0.90	99
	H305	126.7	1.10	104

*1 吸収ピン下端からの距離

*2 吸収ピン下端からクラック中心までの距離

注) MCR105については寸法測定試験は未実施

健全ピンの外径変化率 (最大)

	最大値	平均値
外径変化率 ($\Delta D/D\%$)	1.84	0.74

表3-6 クラック発生位置とオーバリティとの関係

集合体名	ピンNo.	クラック発生軸位置*1 (mm)	オーバリティ(mm)	
			クラック発生位置	最大値(軸位置)
MCR103	D105	107	208	319 (103.8)
	D107	112	200	338 (123.4)
CR301M	E601	104	233	233 (104.2)
	E603	109	0	184 (260.5)
	E604	94	93	281 (194.4)
	E605	101	167	274 (182.5)
CRT401	G702	107	198	304 (166.2)
	G703	110	192	311 (154.0)
CRT402	H301	104	80	290 (145.2)
	H302	112	93	178 (166.9)
	H304	99	152	366 (160.2)
	H305	104	125	284 (126.7)

*1 吸収ピン下端からクラック中心までの距離

健全ピンのオーバリティ (各ピンの最大値)

	最大値	最小値	平均値
オーバリティ (μm)	359	22	217

表3-7 リング引張試験結果

試験条件		試料 No.	試験結果			
引張速度 (mm/min)	試験温度 (°C)		0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	一様伸び (%)	破断伸び (%)
0.2	室温	E604R1	971	1049	2.1	7.1
		E606R1	945	1032	1.8	7.0
		COLD1	692	753	4.0	10.3
		COLD2	687	774	2.1	10.6
	200	E604R3	913	954	0.7	3.6
		E606R3	897	946	1.0	4.3
		COLD5	670	690	0.8	5.8
	400	E604R5	799	862	1.1	2.4
		E606R5	942	968	0.8	3.5
COLD7		569	701	1.5	4.6	
0.01	室温	E604R2	982	1070	1.8	7.1
		E606R2	960	1018	2.4	7.8
		COLD3	661	824	1.3	9.7
		COLD4	702	758	1.6	10.6
	200	E604R7	897	976	1.5	3.2
		E606R7	927	978	1.0	3.3
		COLD6	680	716	0.5	5.1
	400	E604R4	883	917	0.7	3.1
		E606R4	845	864	0.6	0.9
E606R6		902	957	0.8	2.6	
COLD8		624	684	1.2	4.5	

表3-8 He分析結果

試料 No.	分析結果 (appm)	
	内面側	外面側
E604H1	54.9	8.9
E604H2	53.5	12.8
E606H1	46.0	8.7
E606H2	24.5	11.9
COLD	検出限界以下	検出限界以下

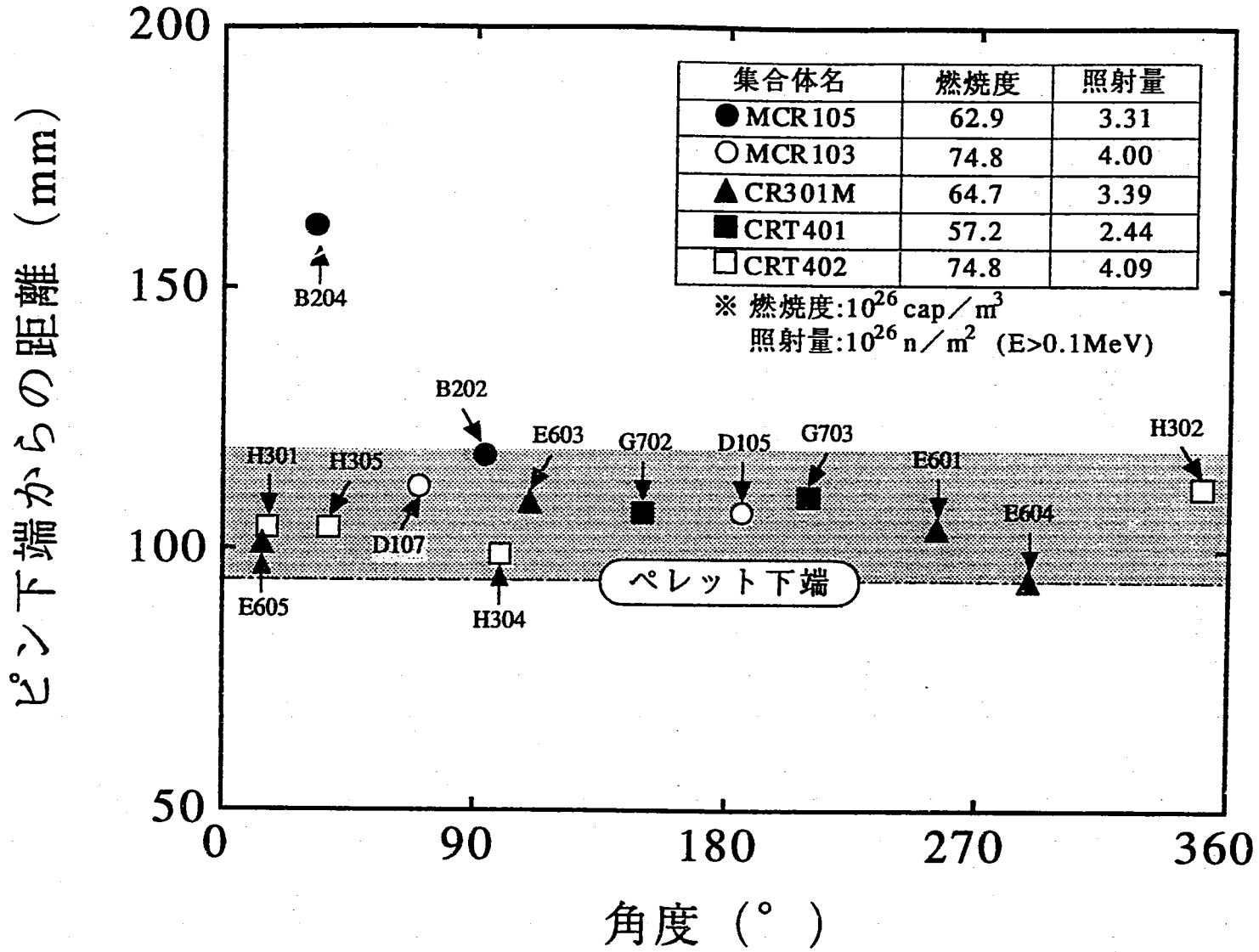


図3-1 吸収ピンククラックの発生位置

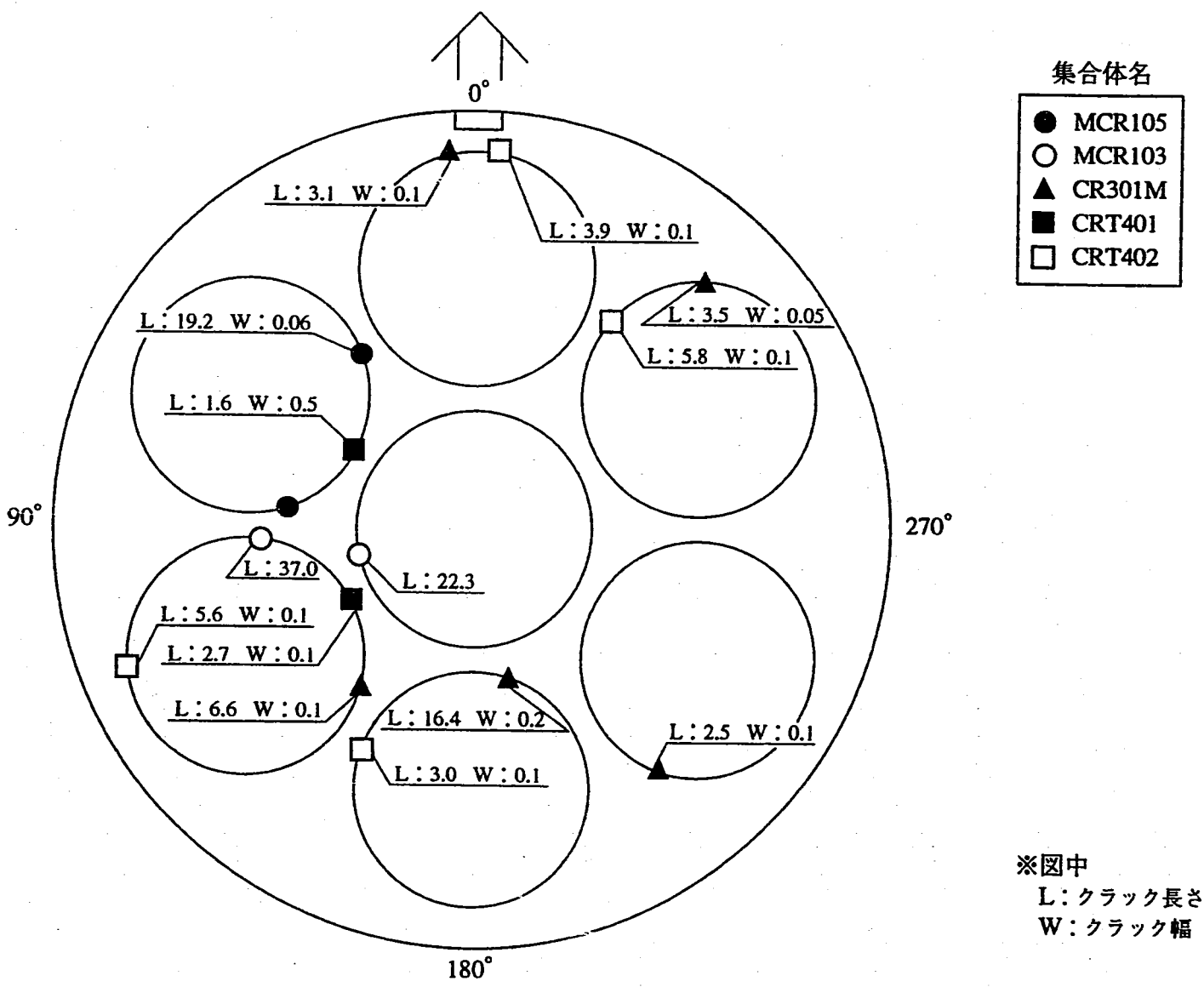


図3-2 周方向クラック発生位置模式図

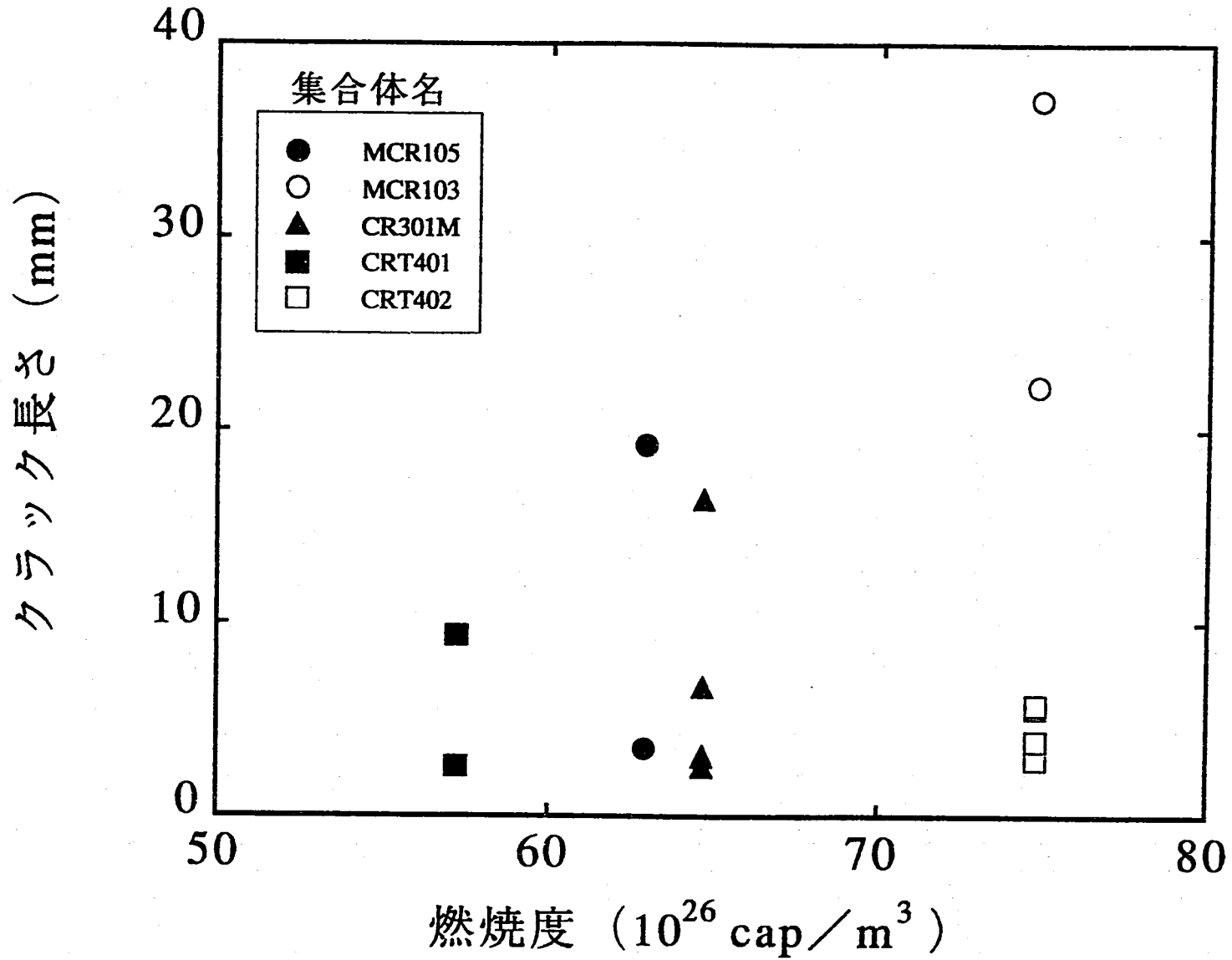


図3-3 クラックの長さ と 燃烧度 と の 関係

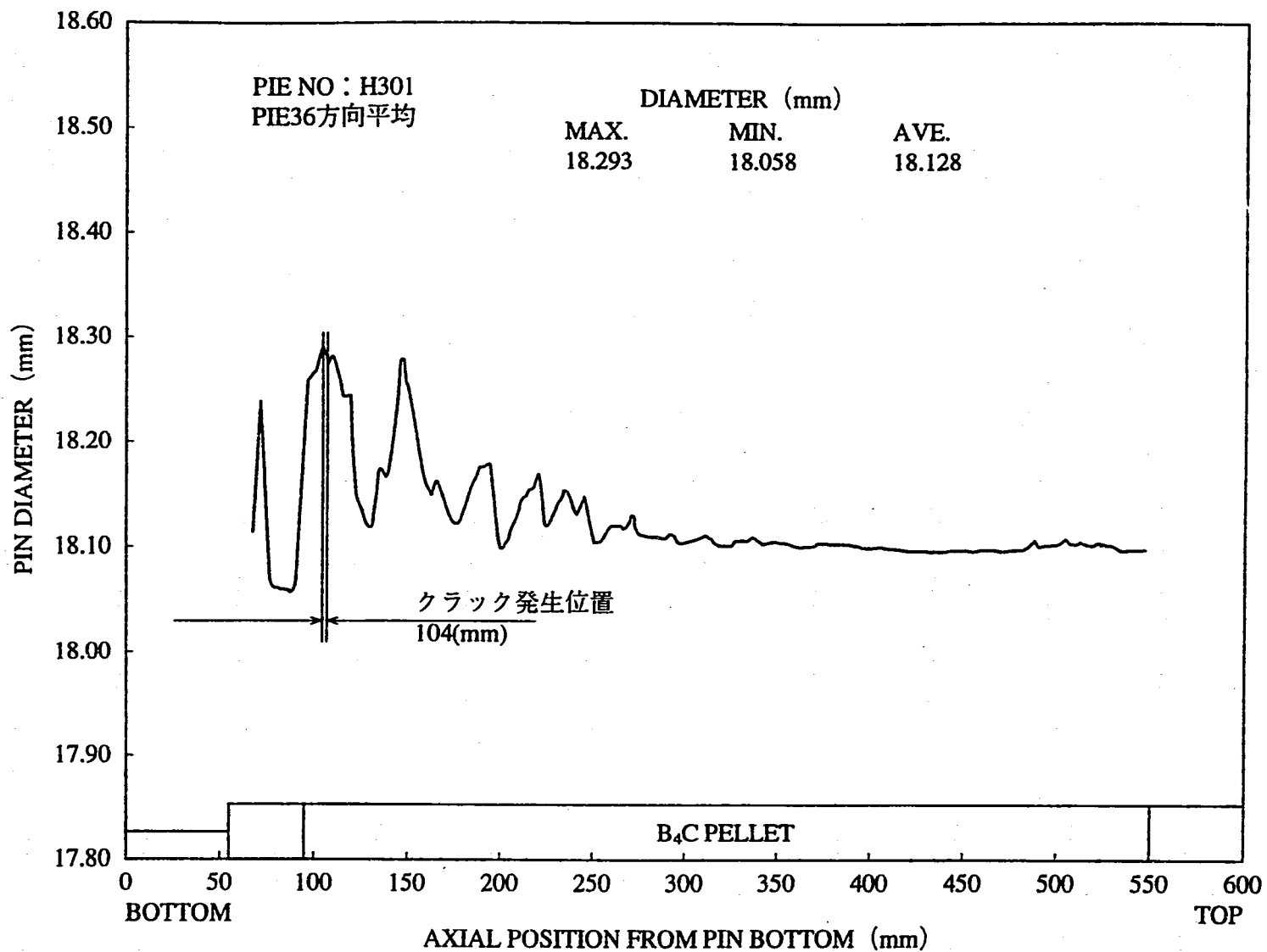


図3-4 吸収ピン外径軸方向プロファイル (CRT402 : H301)

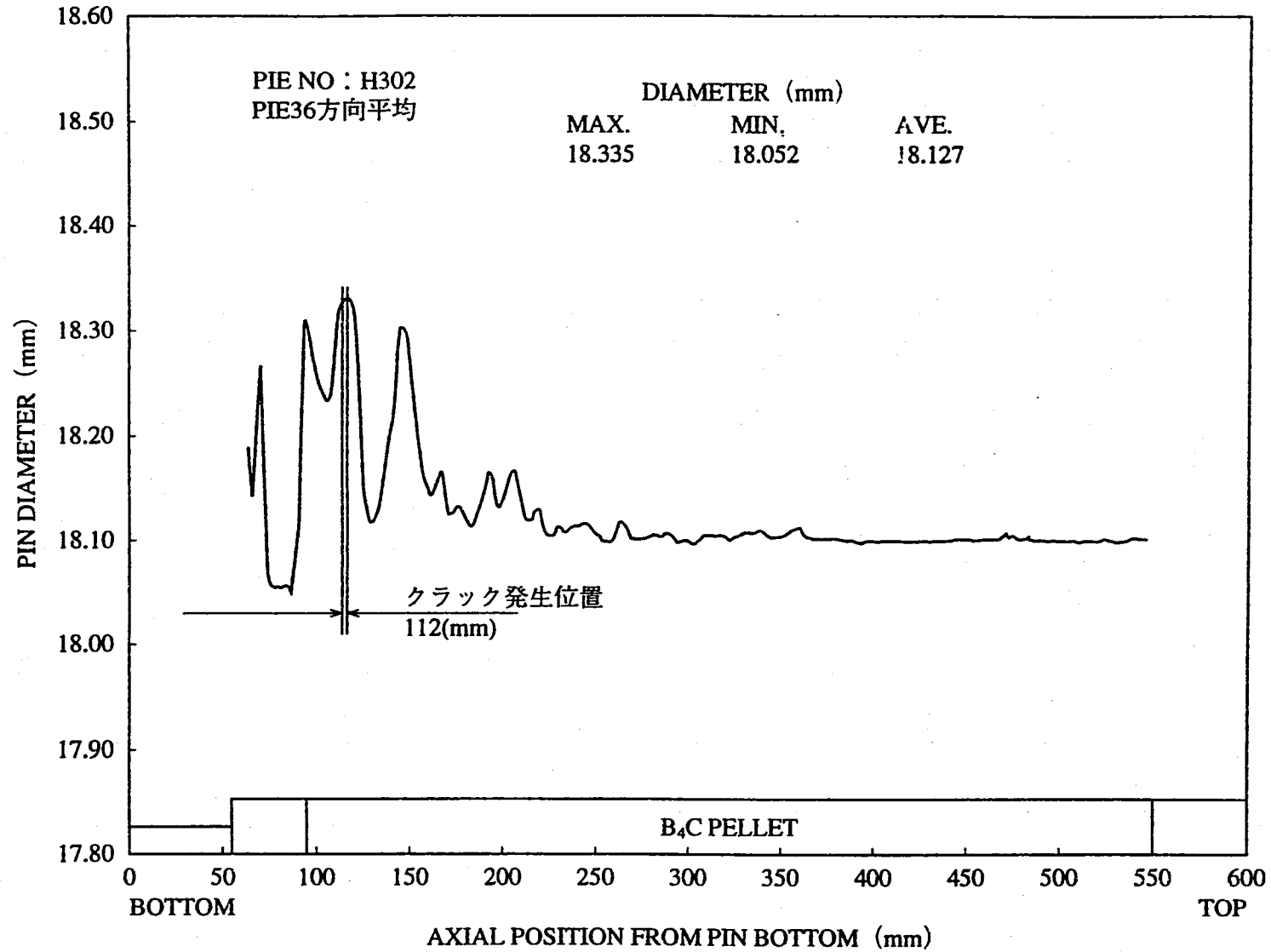


図3-5 吸収ピン外径軸方向プロファイル (CRT402 : H302)

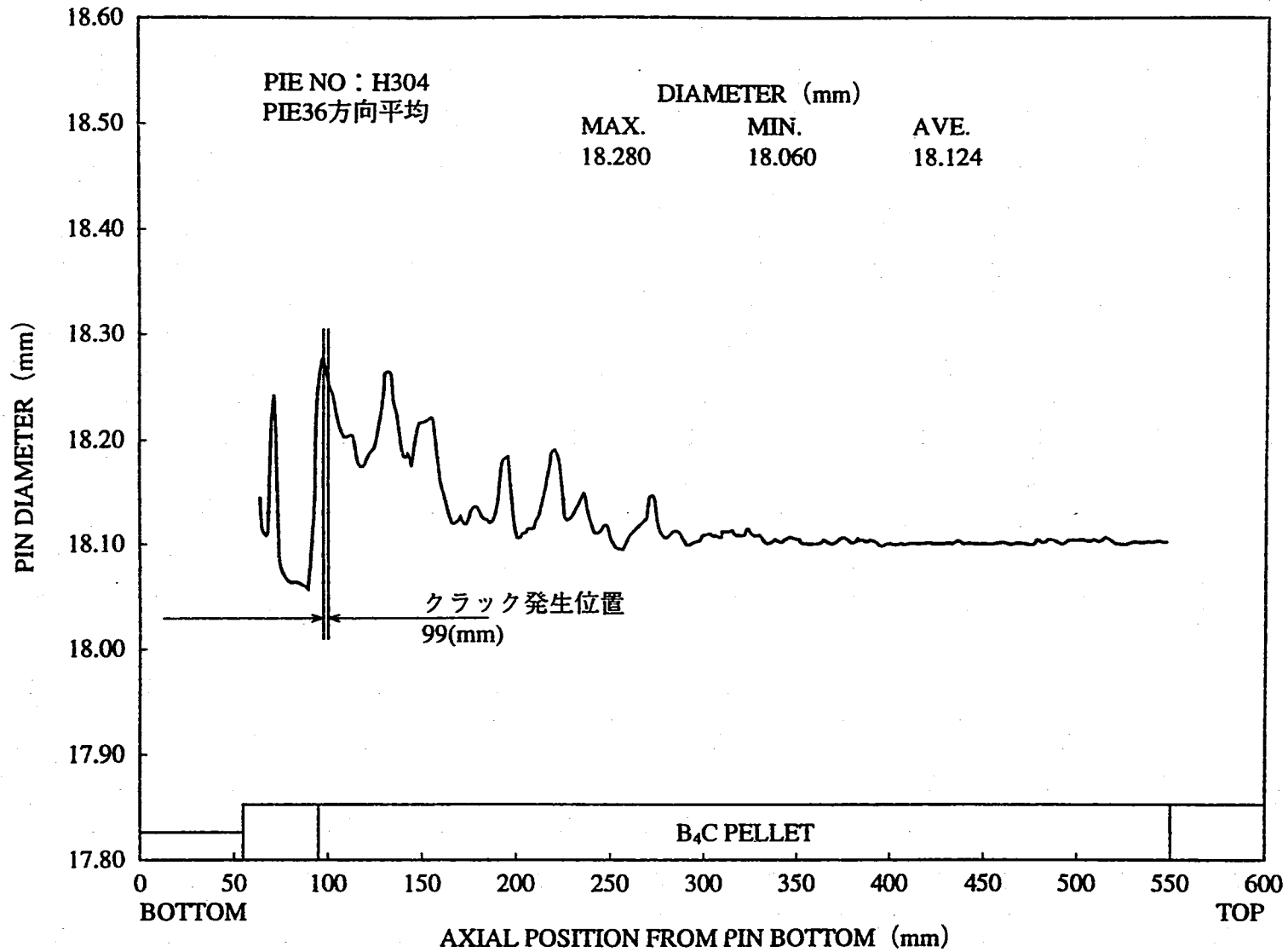


図3-6 吸収ピン外径軸方向プロファイル (CRT402 : H304)

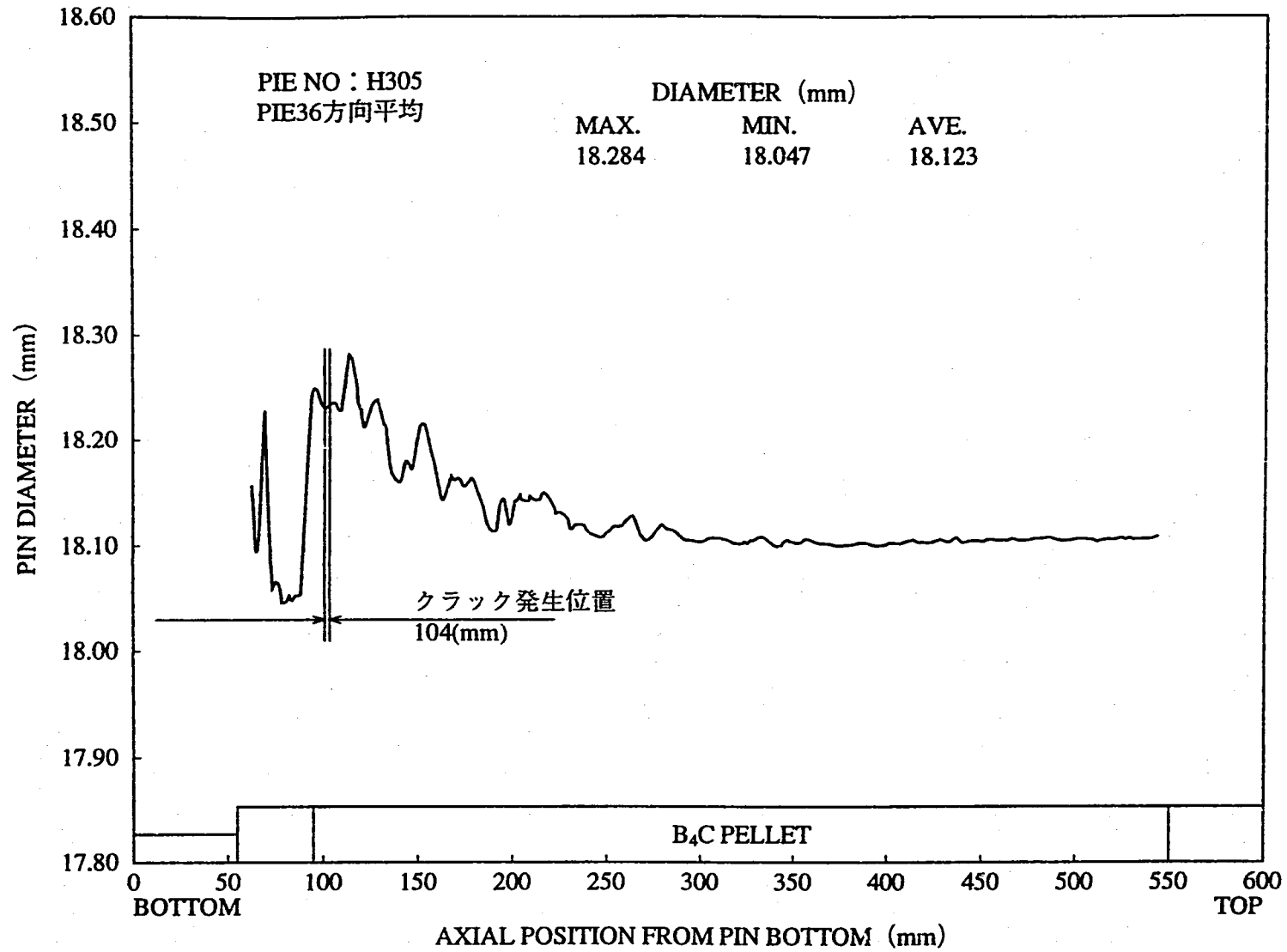


図3-7 吸収ピン外径軸方向プロファイル (CRT402 : H305)

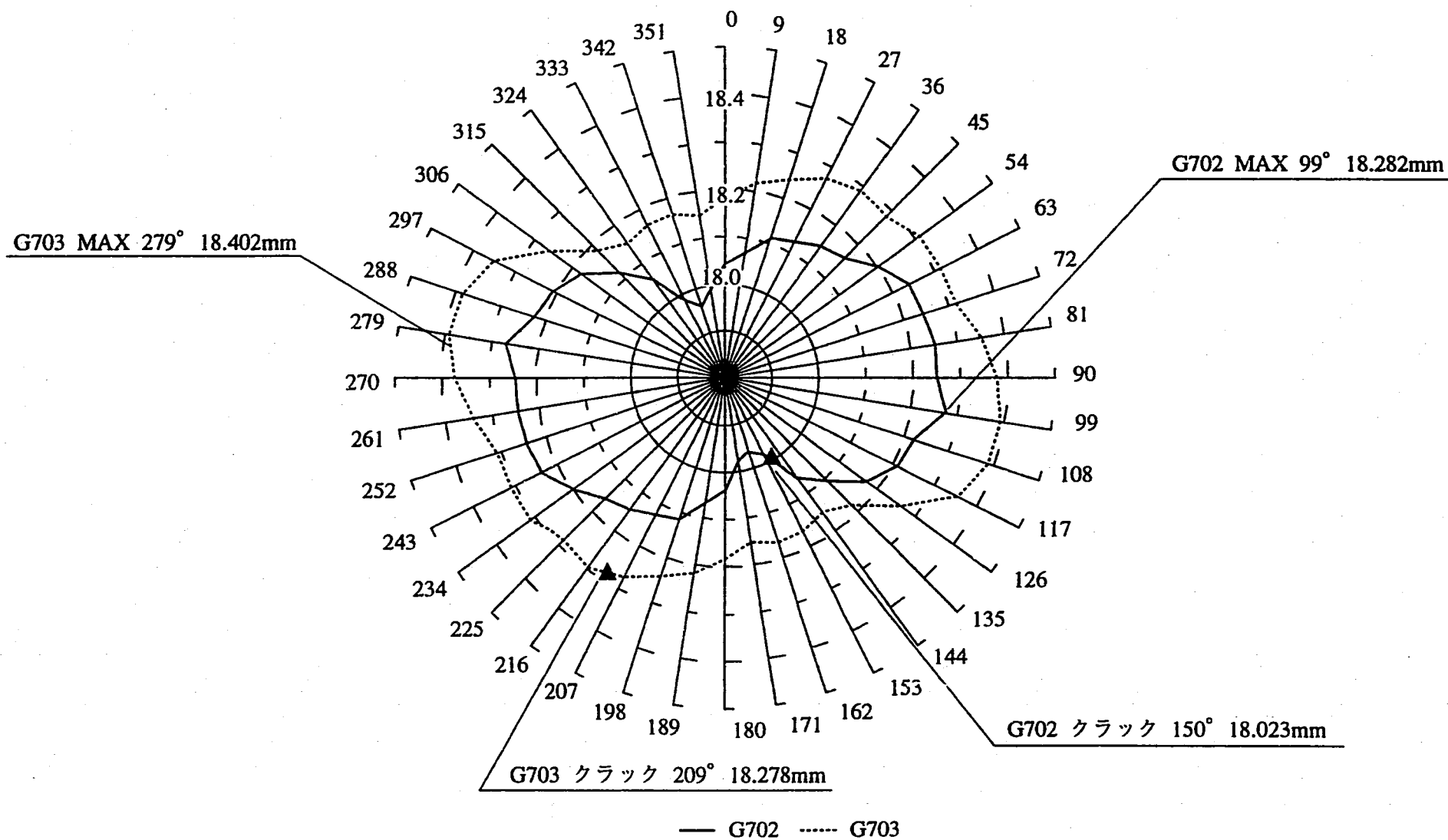


図3-8 クラック発生位置の周方向プロファイル (CRT401)

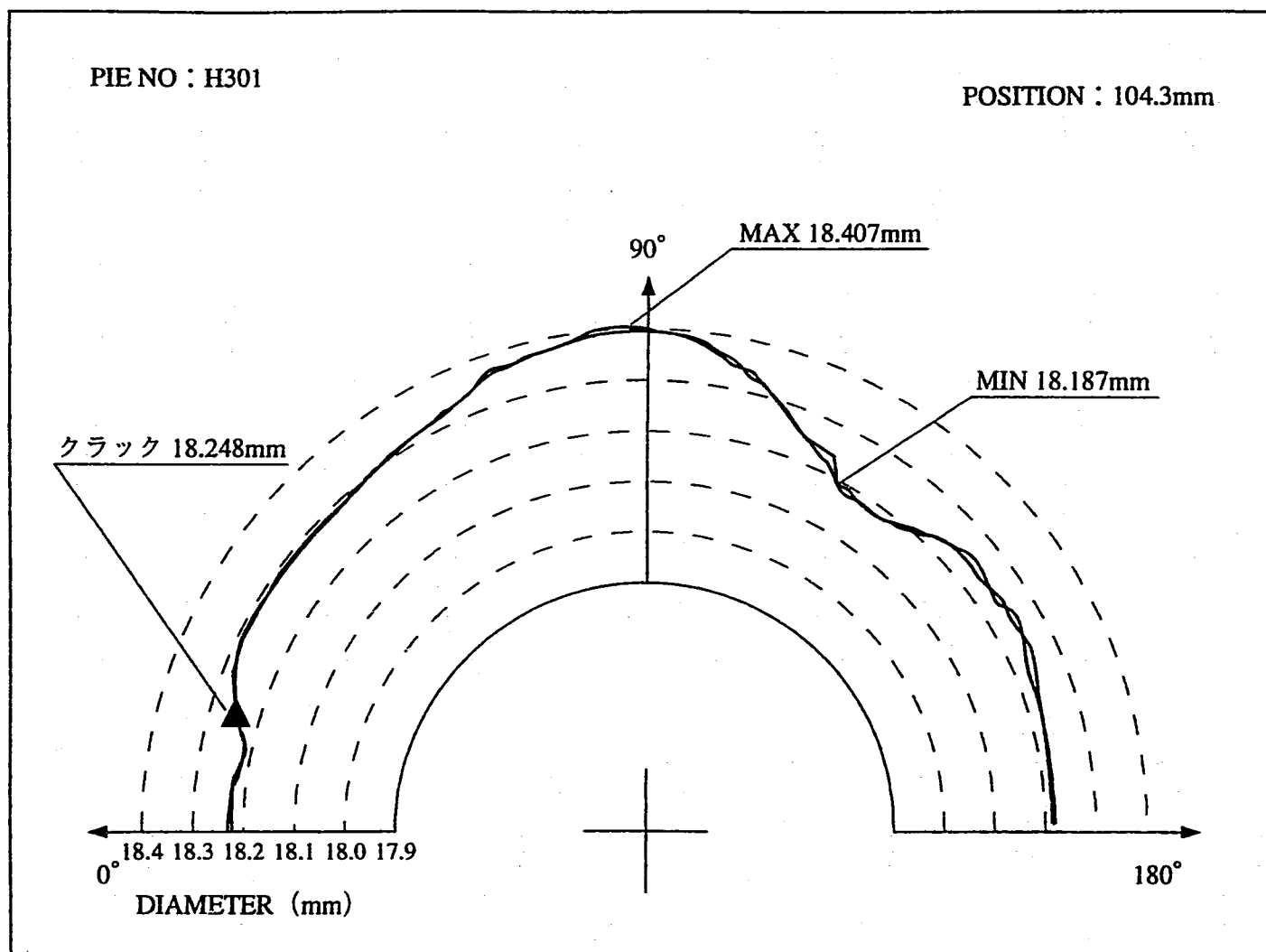


図3-9 クラック発生位置の周方向プロファイル (CRT402 : H301)

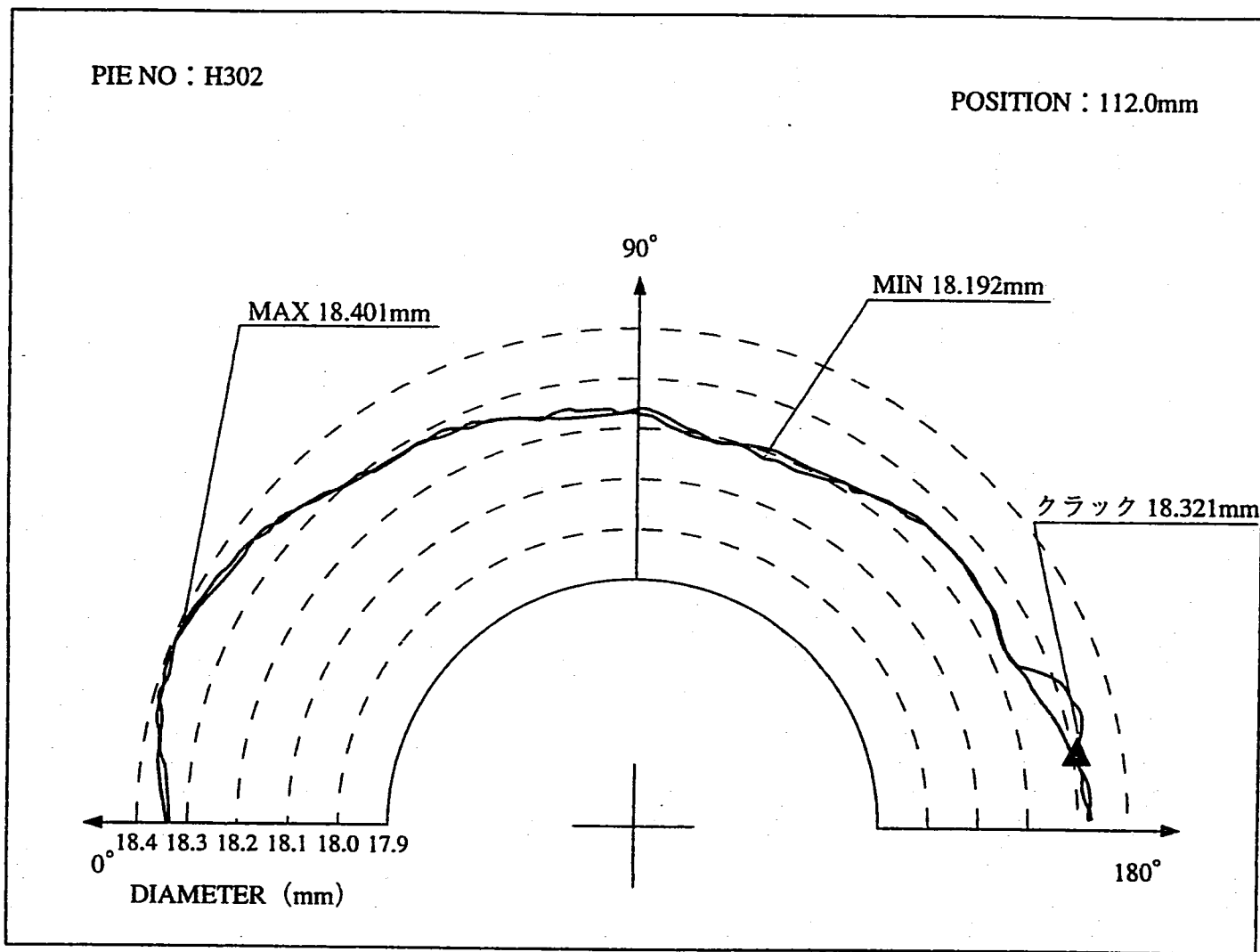


図3-10 クラック発生位置の周方向プロファイル (CRT402 : H302)

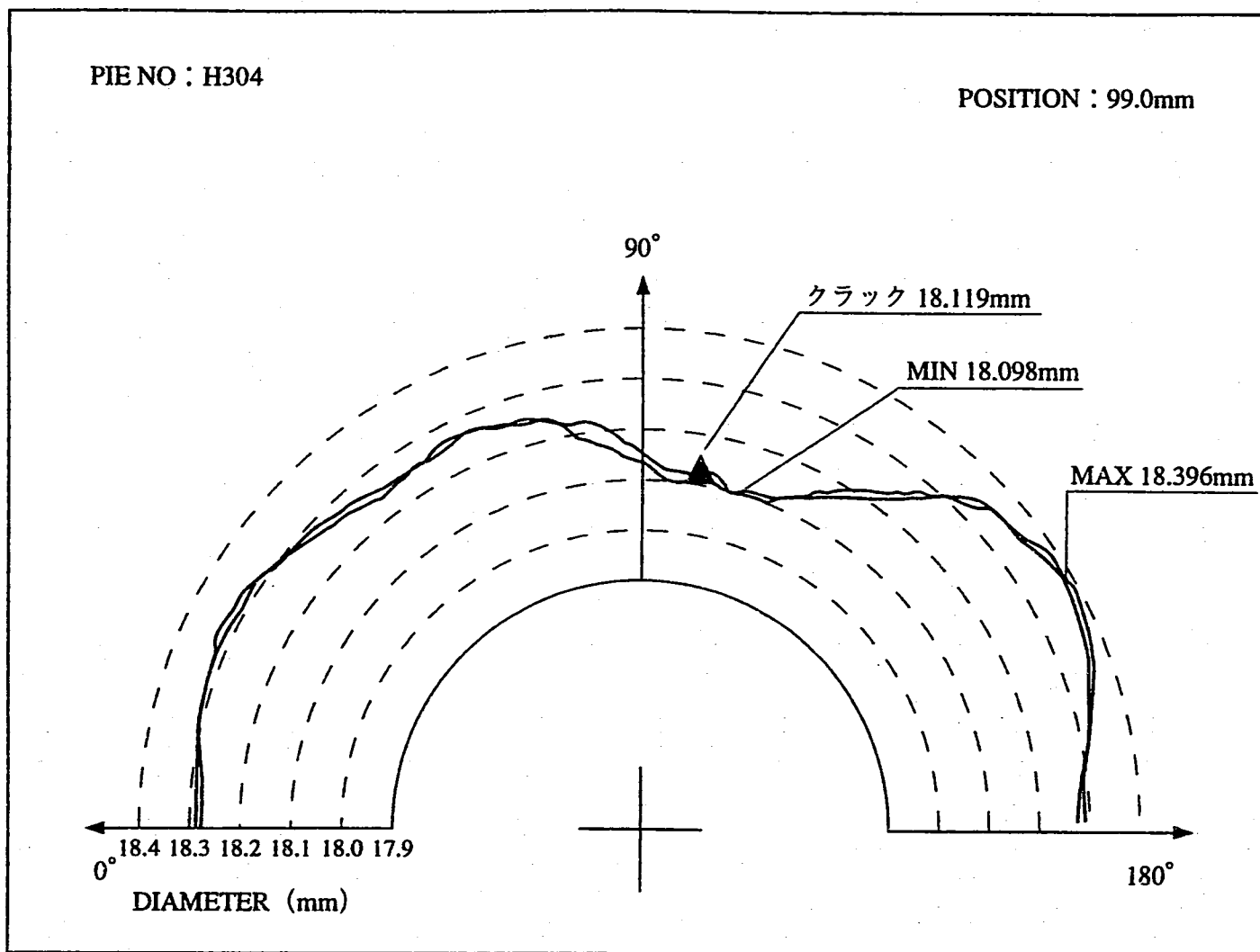


図3-11 クラック発生位置の周方向プロファイル (CRT402 : H304)

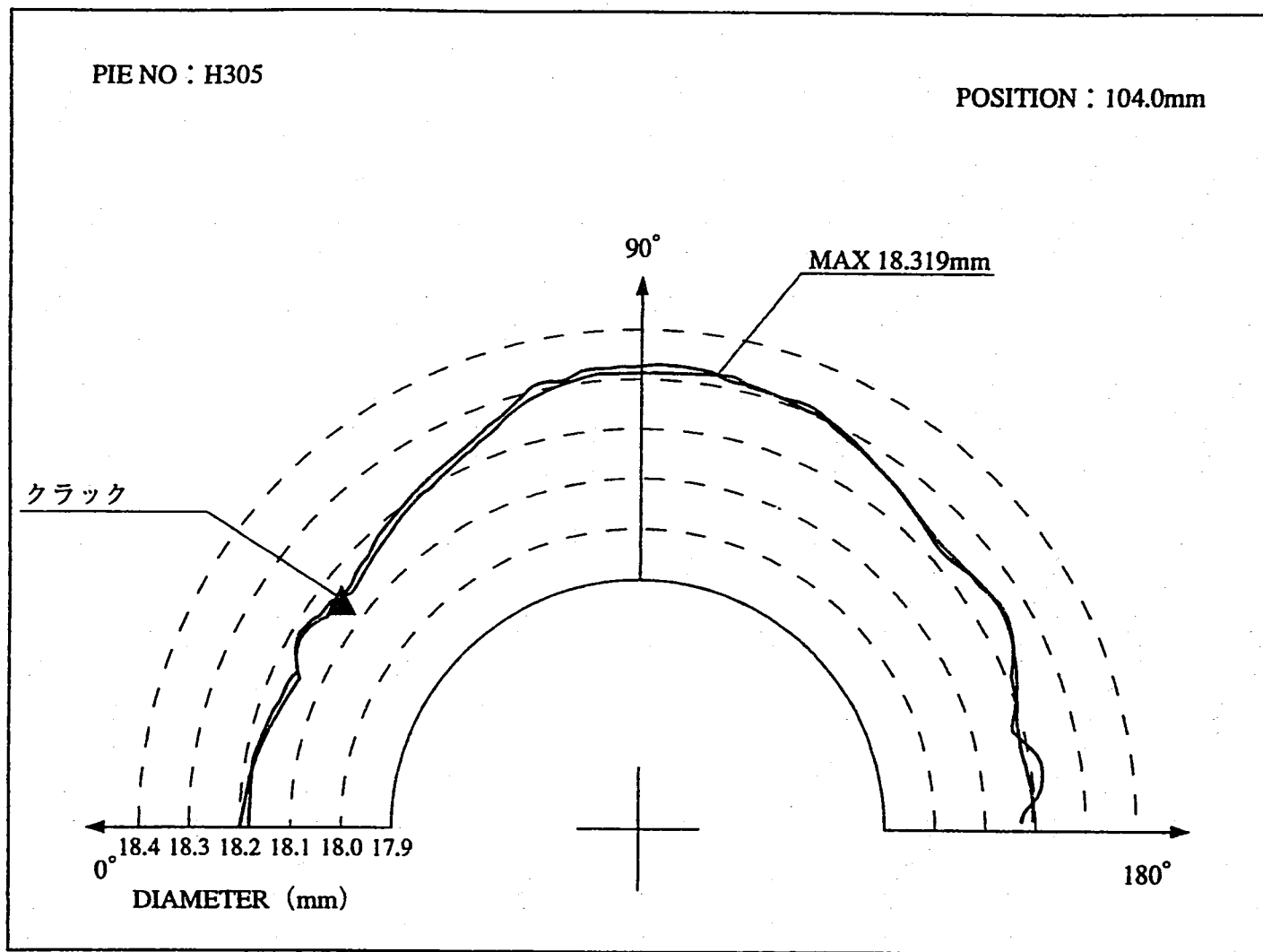


図3-12 クラック発生位置の周方向プロファイル (CRT402 : H305)

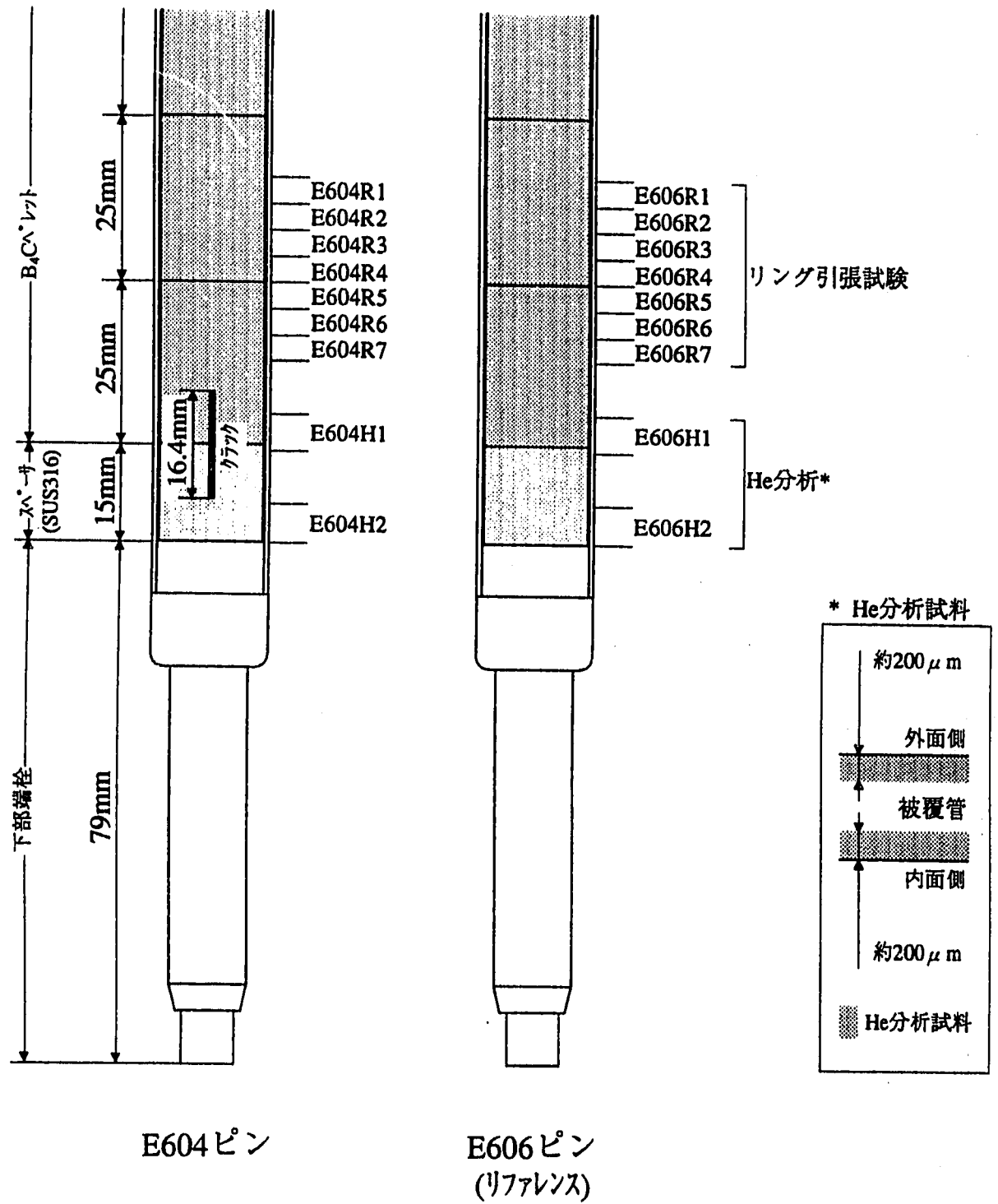
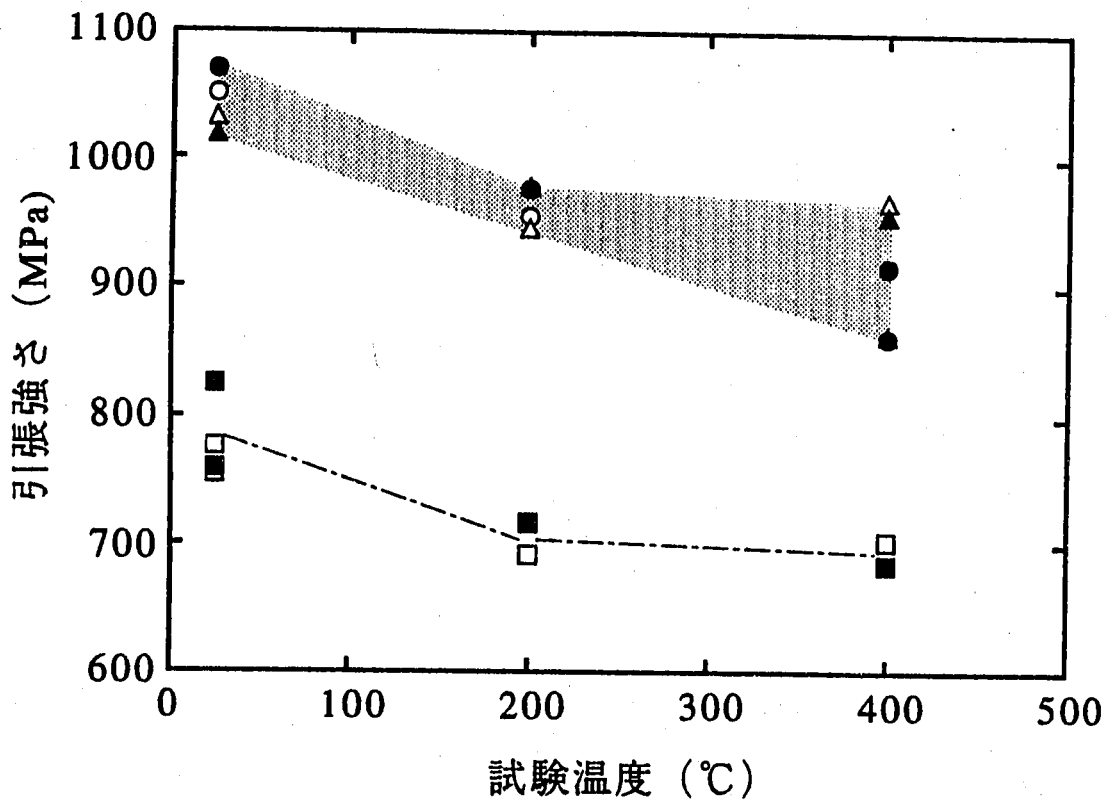
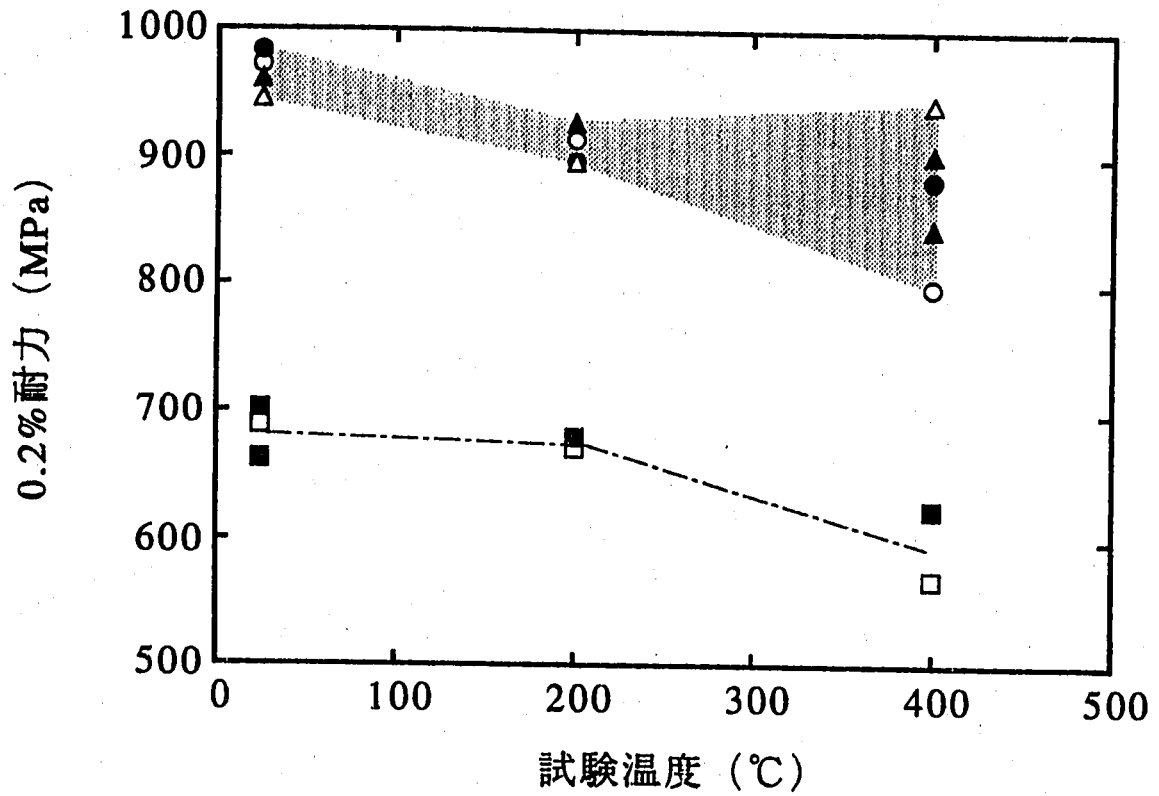
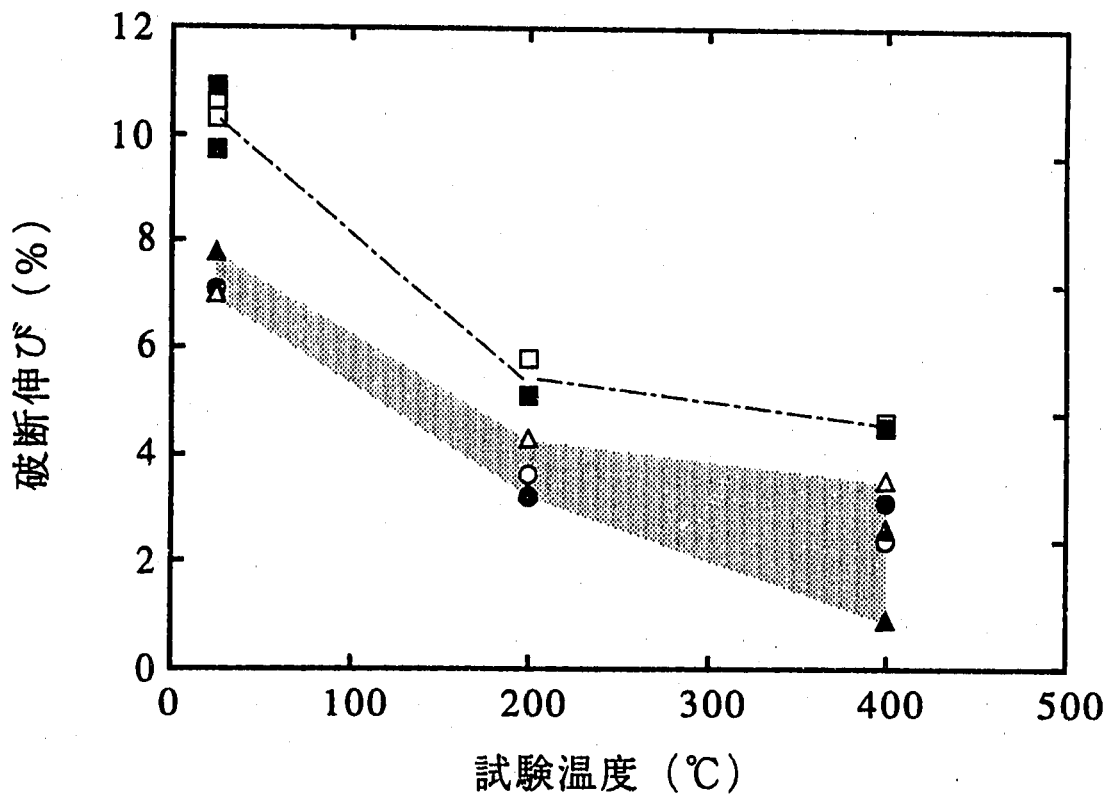
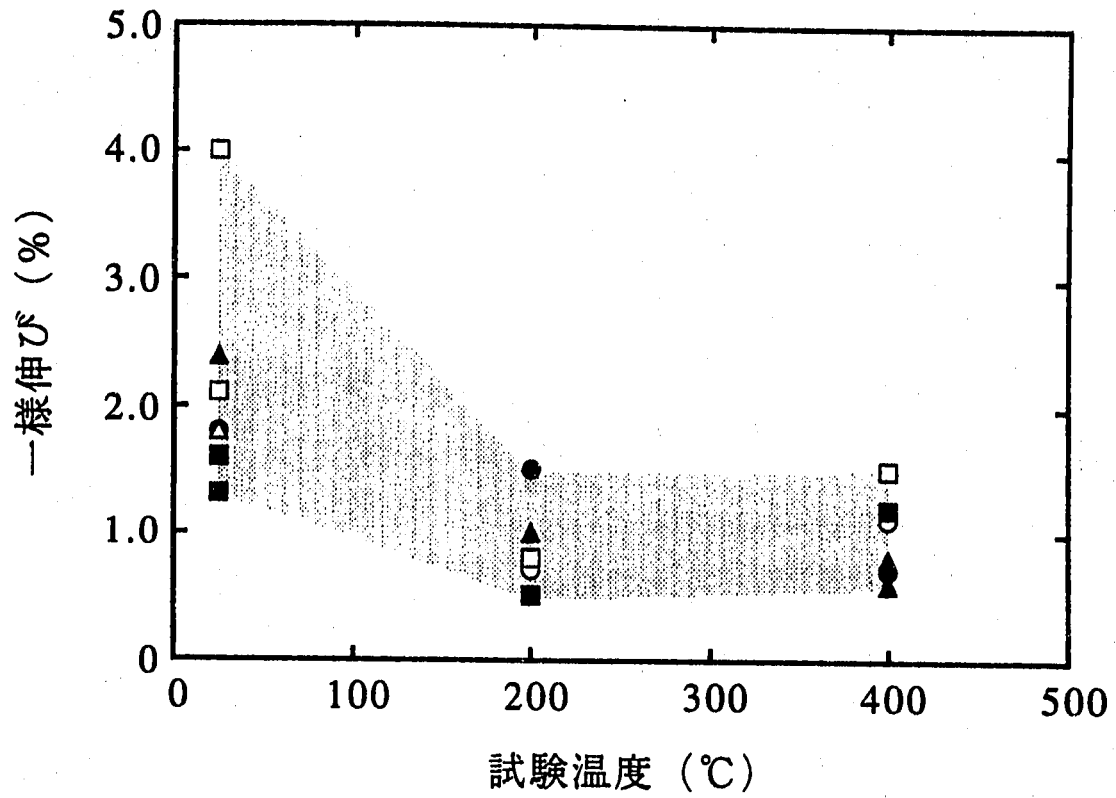


図3-13 リング引張試験およびHe分析用試料の試料採取位置



引張速度	試料No.	E604	E606	非照射材
0.2mm/min		○	△	□
0.01mm/min		●	▲	■

図3-14 0.2%耐力、引張強さと試験温度との関係



引張速度	試料No.	E604	E606	非照射材
0.2mm/min		○	△	□
0.01mm/min		●	▲	■

図3-15 一様伸び、破断伸びと試験温度との関係

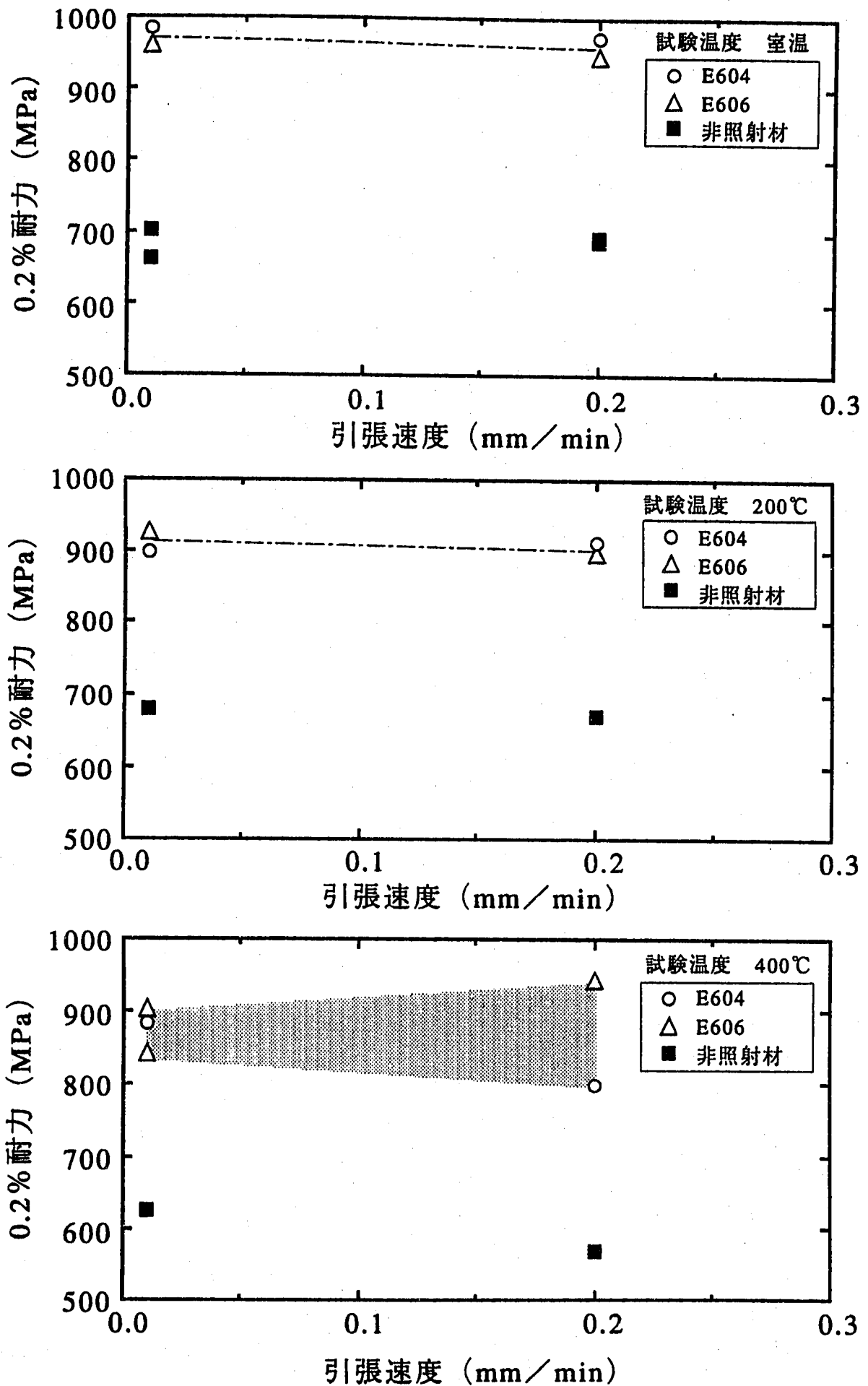


図3-16 0.2%耐力と引張速度の関係

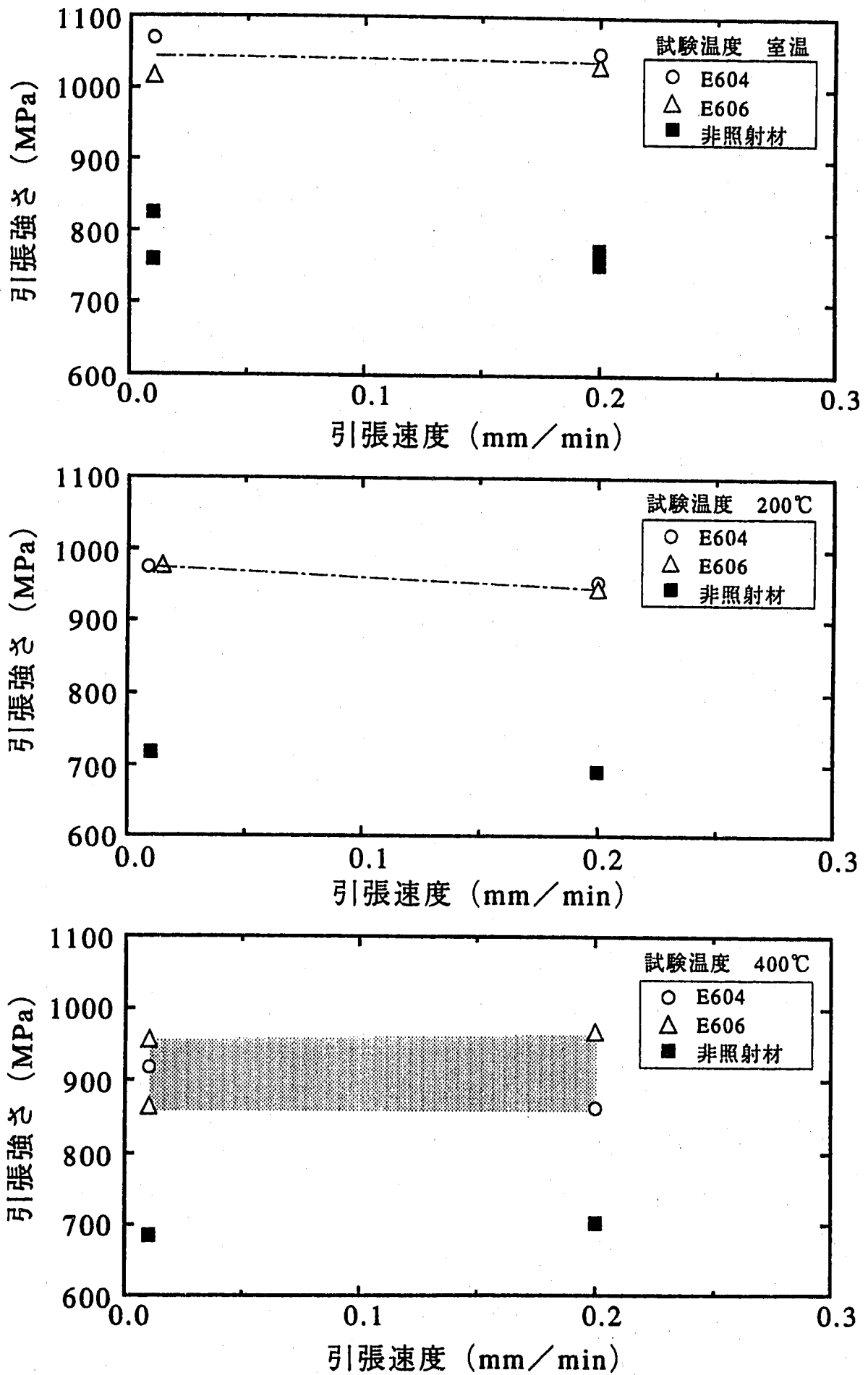


図3-17 引張強さと引張速度の関係

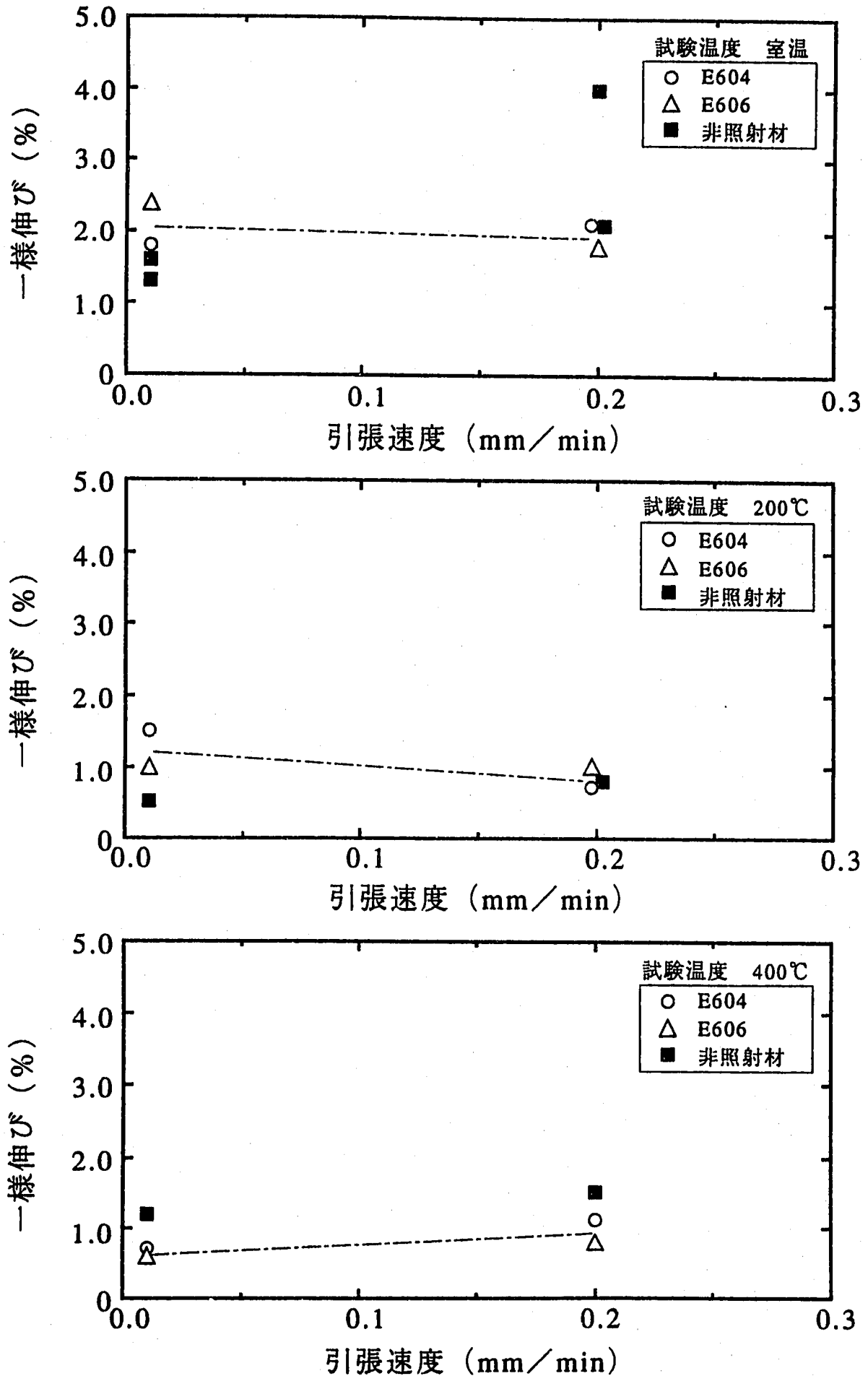


図3-18 一様伸びと引張速度の関係

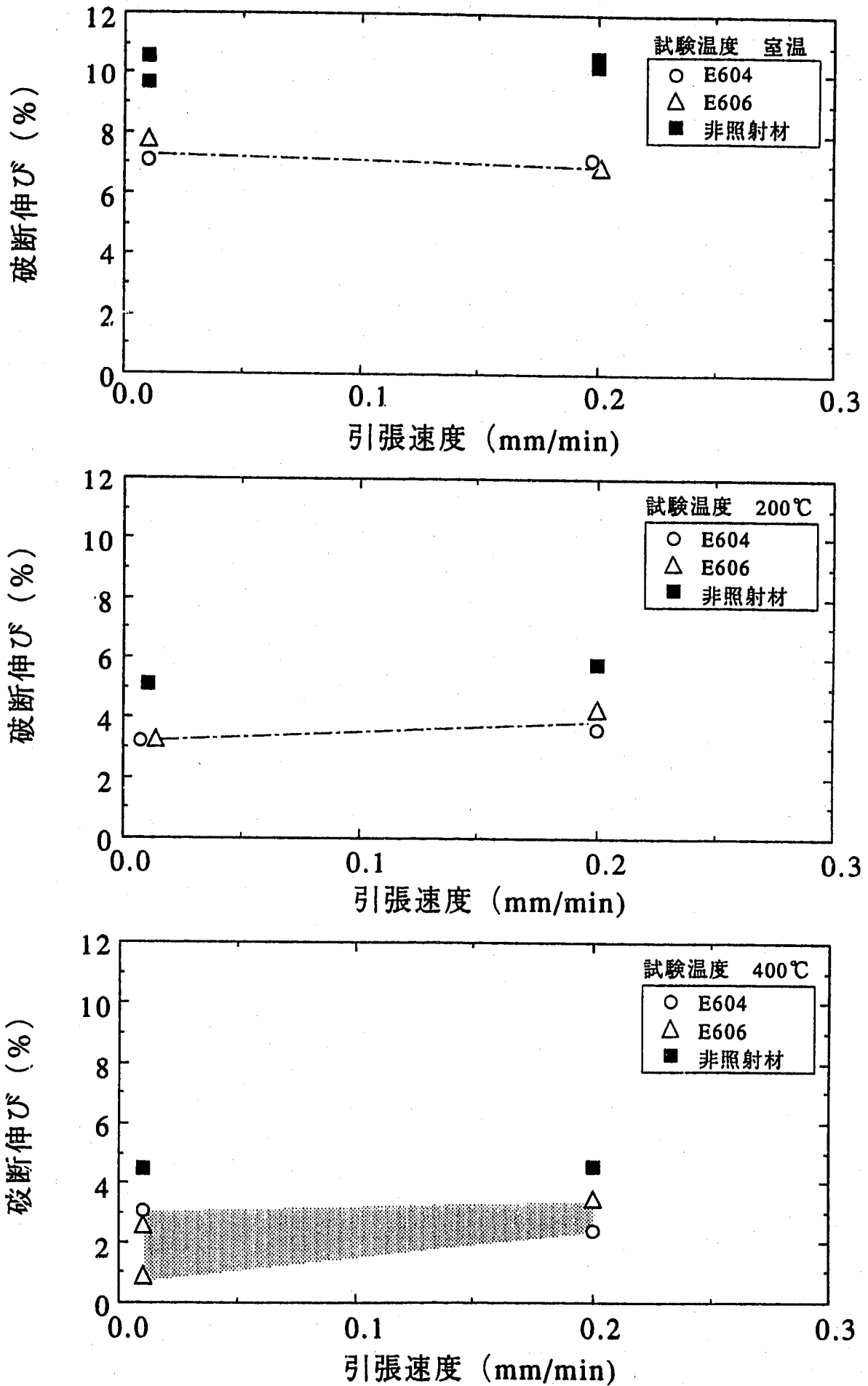


図3-19 破断伸びと引張速度の関係

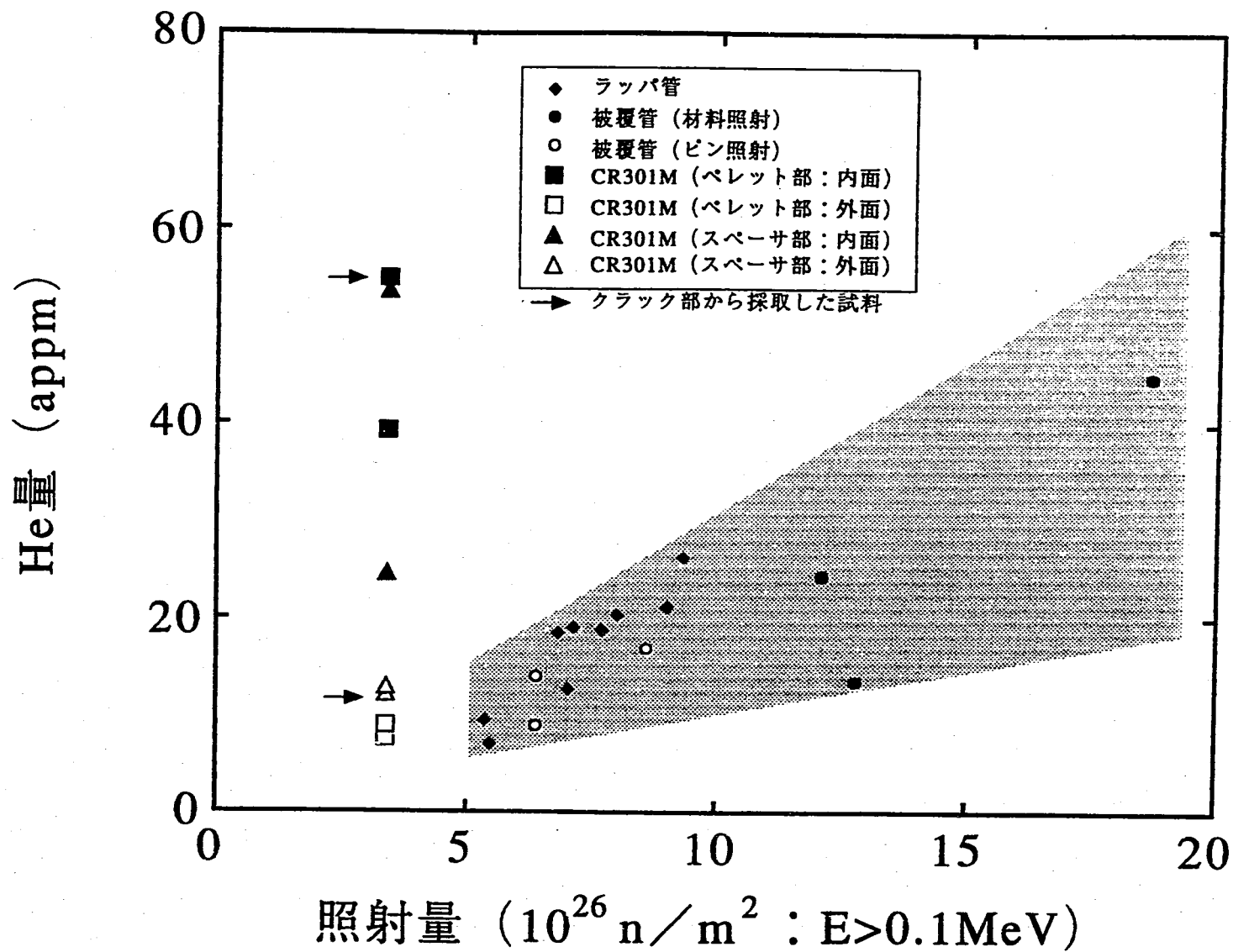


図3-20 He分析結果と照射量との関係



5mm



5mm

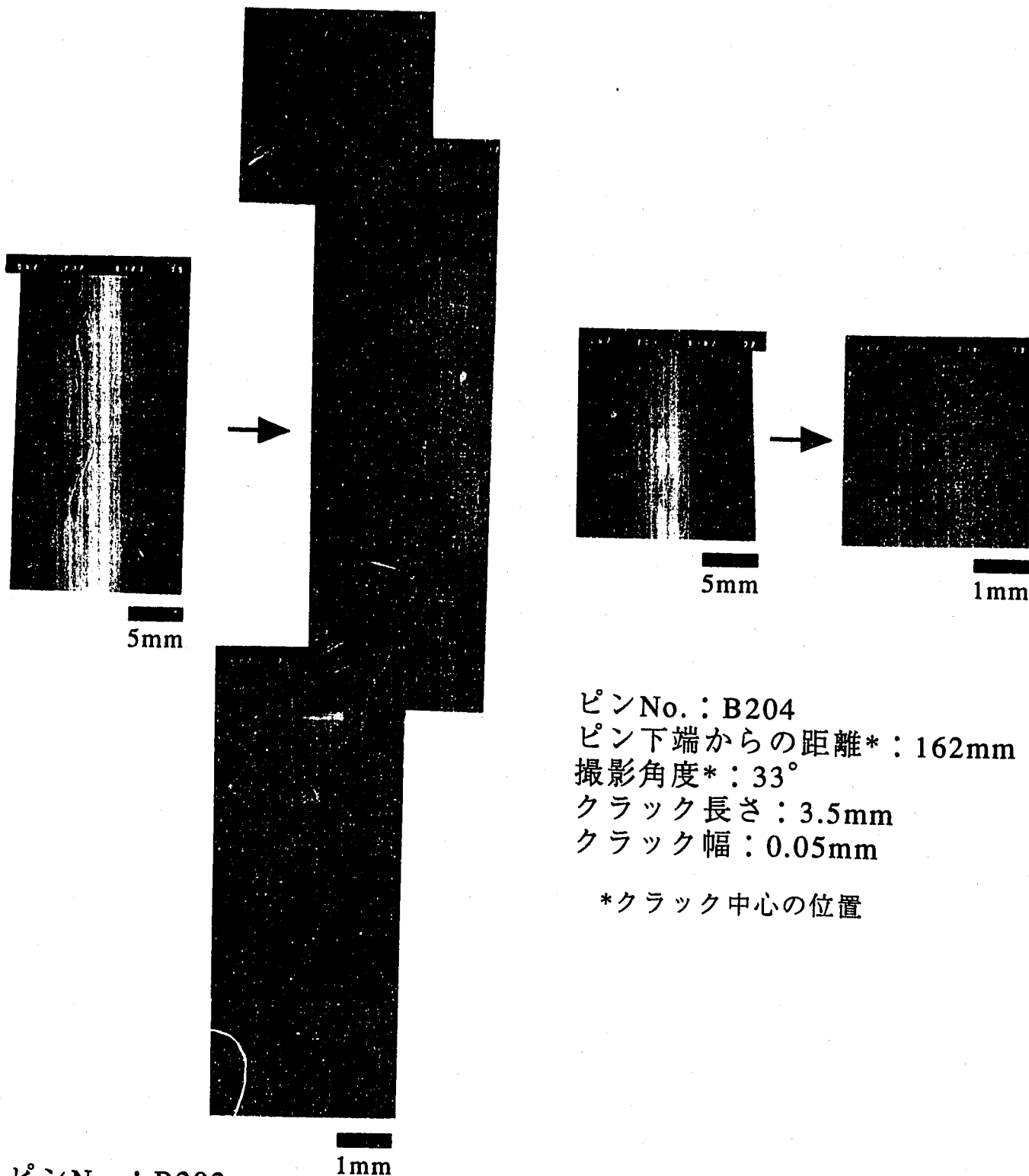
ピンNo. : D105
ピン下端からの距離* : 107mm
撮影角度* : 186°
クラック長さ : 22.3mm
クラック幅 : 0.30mm

*クラック中心の位置

ピンNo. : D107
ピン下端からの距離* : 112mm
撮影角度* : 70°
クラック長さ : 37.0mm
クラック幅 : 0.10mm

*クラック中心の位置

写真3-1 吸収ピンクラック部外観写真 (MCR103)



ピンNo. : B204
ピン下端からの距離* : 162mm
撮影角度* : 33°
クラック長さ : 3.5mm
クラック幅 : 0.05mm

*クラック中心の位置

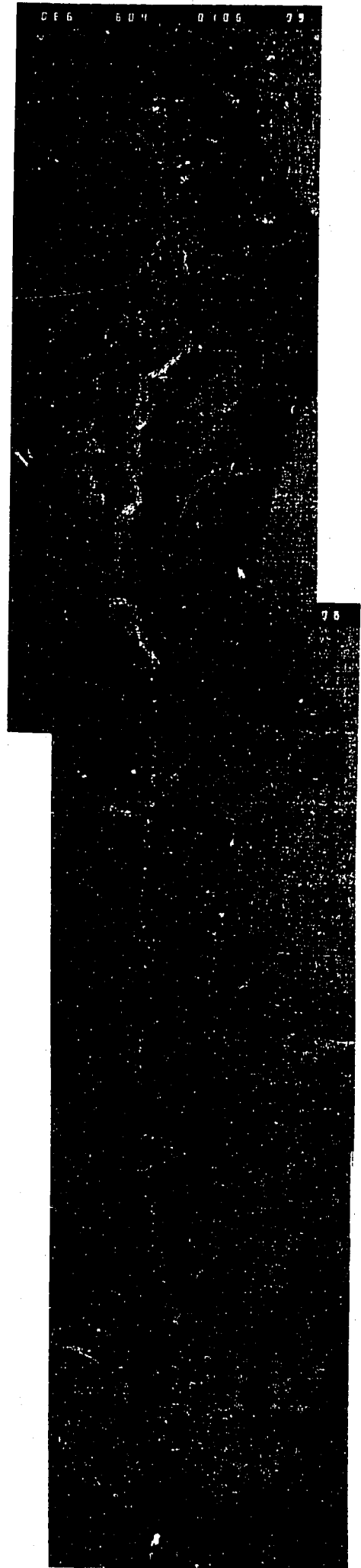
ピンNo. : B202
ピン下端からの距離* : 118mm
撮影角度* : 93°
クラック長さ : 19.2mm
クラック幅 : 0.06mm

*クラック中心の位置

写真3-2 吸収ピンクラック部外観写真 (MCR105)



5mm

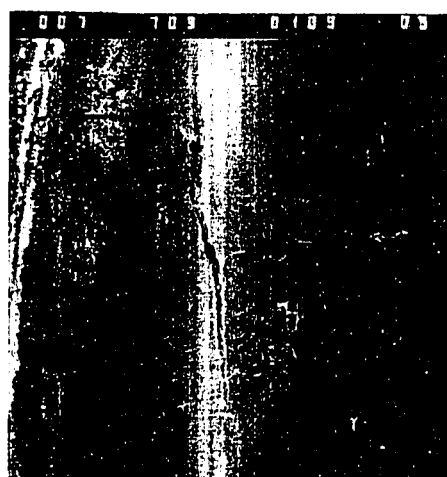


1mm

ピンNo. : E604
ピン下端からの距離* : 94mm
撮影角度* : 288°
クラック長さ : 16.4mm
クラック幅 : 0.20mm

*クラック中心の位置

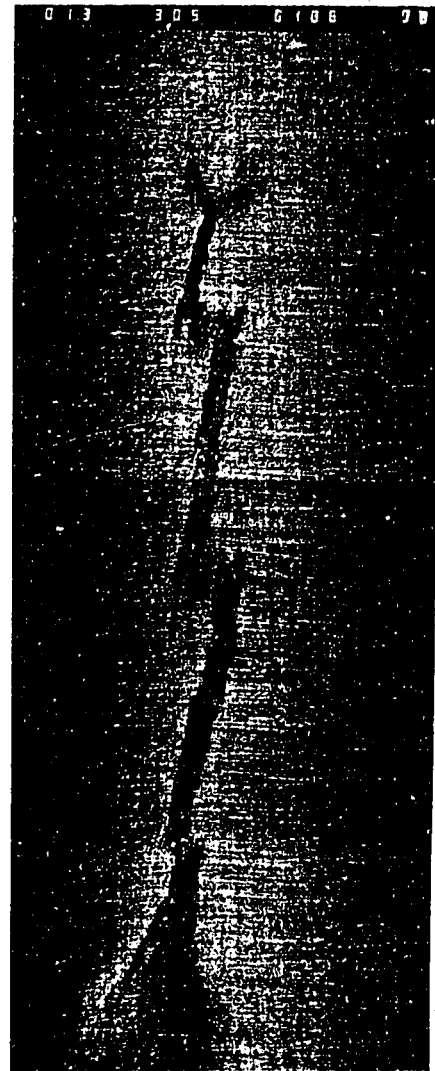
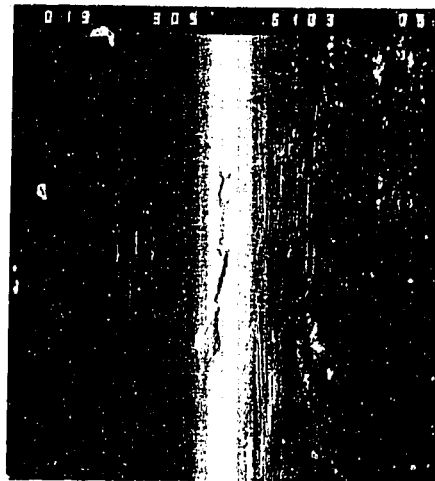
写真3-3 吸収ピンクラック部
外観写真 (CR301M)



ピンNo. : G703
ピン下端からの距離* : 110mm
撮影角度* : 209°
クラック長さ : 9.3mm
クラック幅 : 0.20mm

*クラック中心の位置

写真3-4 吸収ピンクラック部外観写真 (CRT401)



ピンNo. : H305
ピン下端からの距離* : 104mm
撮影角度* : 38°
クラック長さ : 5.8mm
クラック幅 : 0.10mm

*クラック中心の位置

写真3-5 吸収ピンクラック部外観写真 (CRT402)

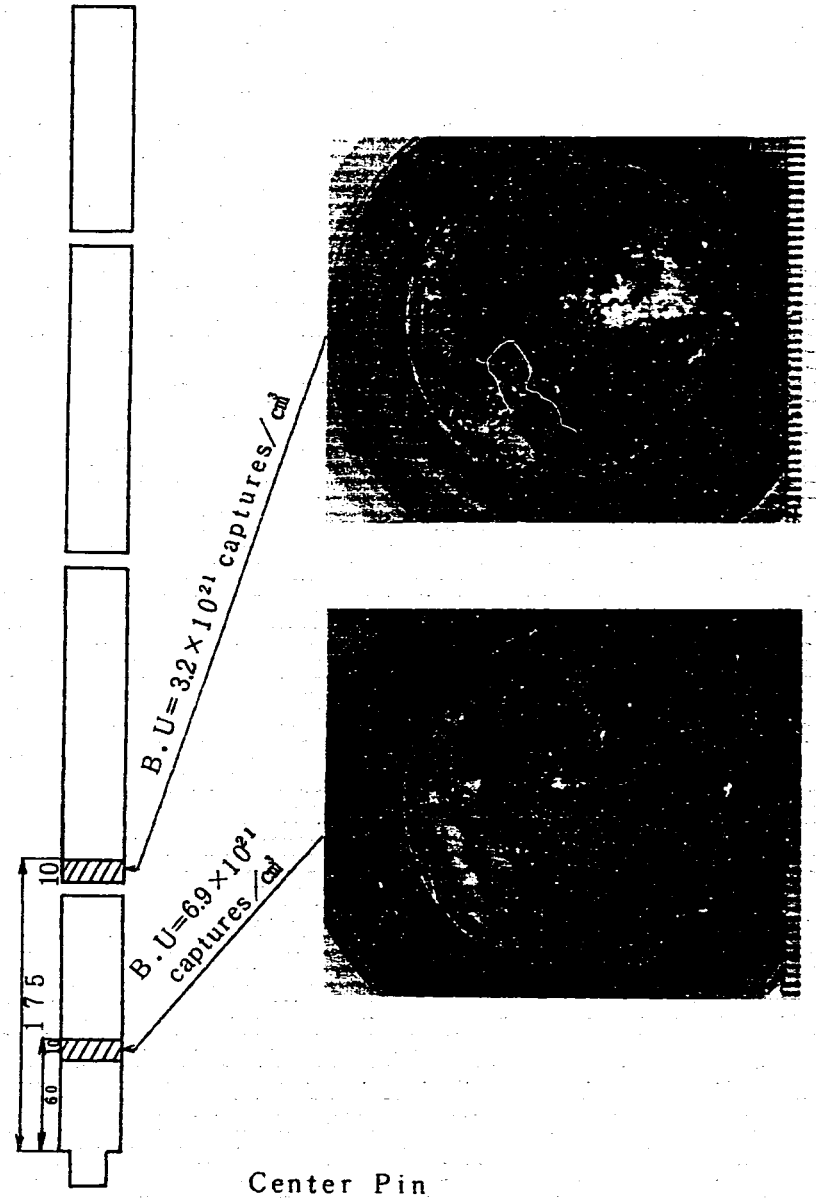
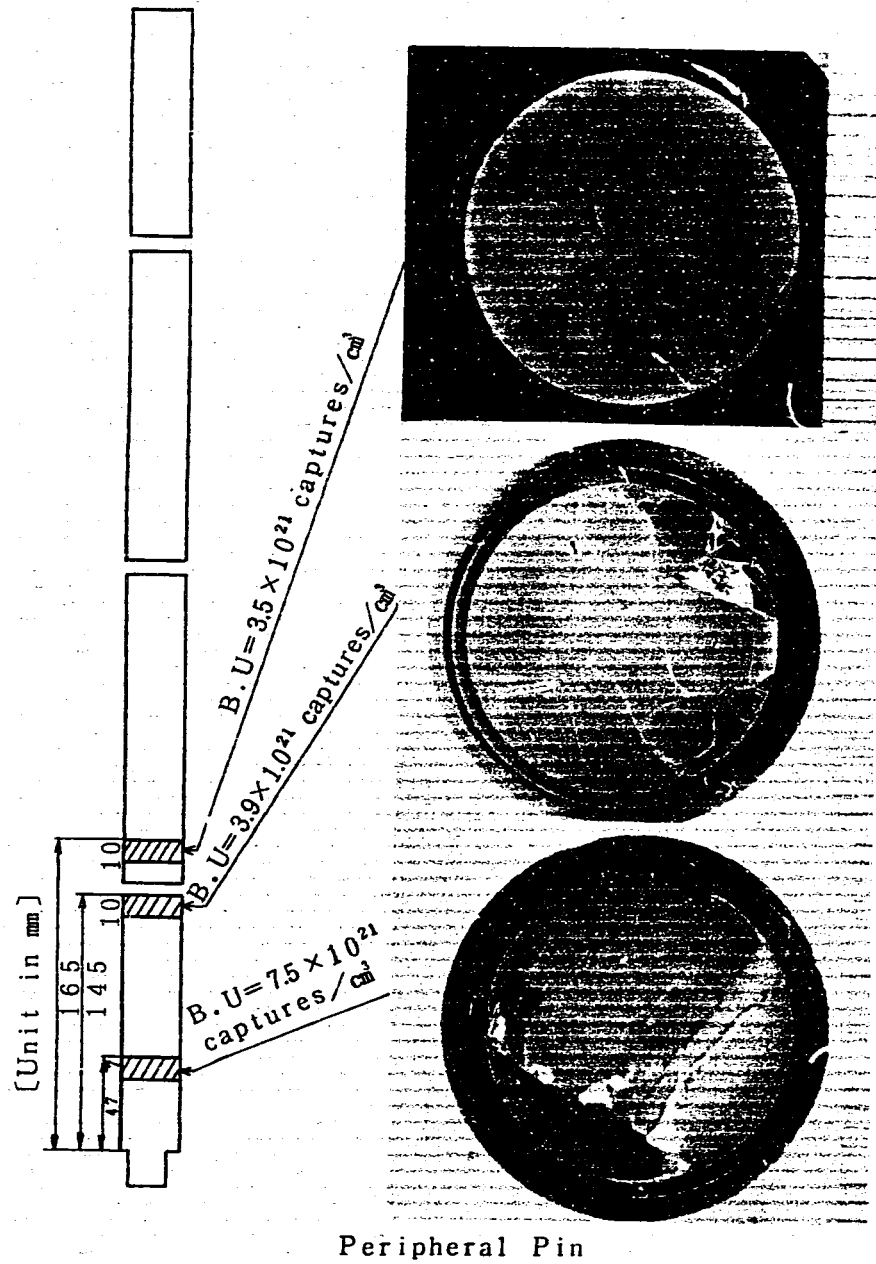
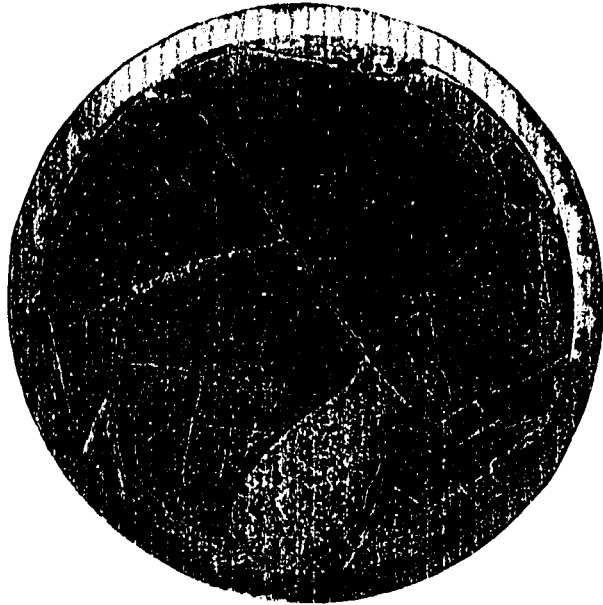


写真3-6 吸収ピン断面金相写真 (MCR005)



試料No. : D30456
燃焼度 : $30 \times 10^{26} \text{ cap/m}^3$
(D.K.K.ペレット)



試料No. : D30424
燃焼度 : $68 \times 10^{26} \text{ cap/m}^3$
(D.K.K.ペレット)



試料No. : D30762
燃焼度 : $24 \times 10^{26} \text{ cap/m}^3$
(E.P.ペレット)



試料No. : D30732
燃焼度 : $68 \times 10^{26} \text{ cap/m}^3$
(E.P.ペレット)

写真3-7 吸収ピン断面金相写真 (TCR201)

"JOYO" MK-II MCR103
Specimen NO. D10722

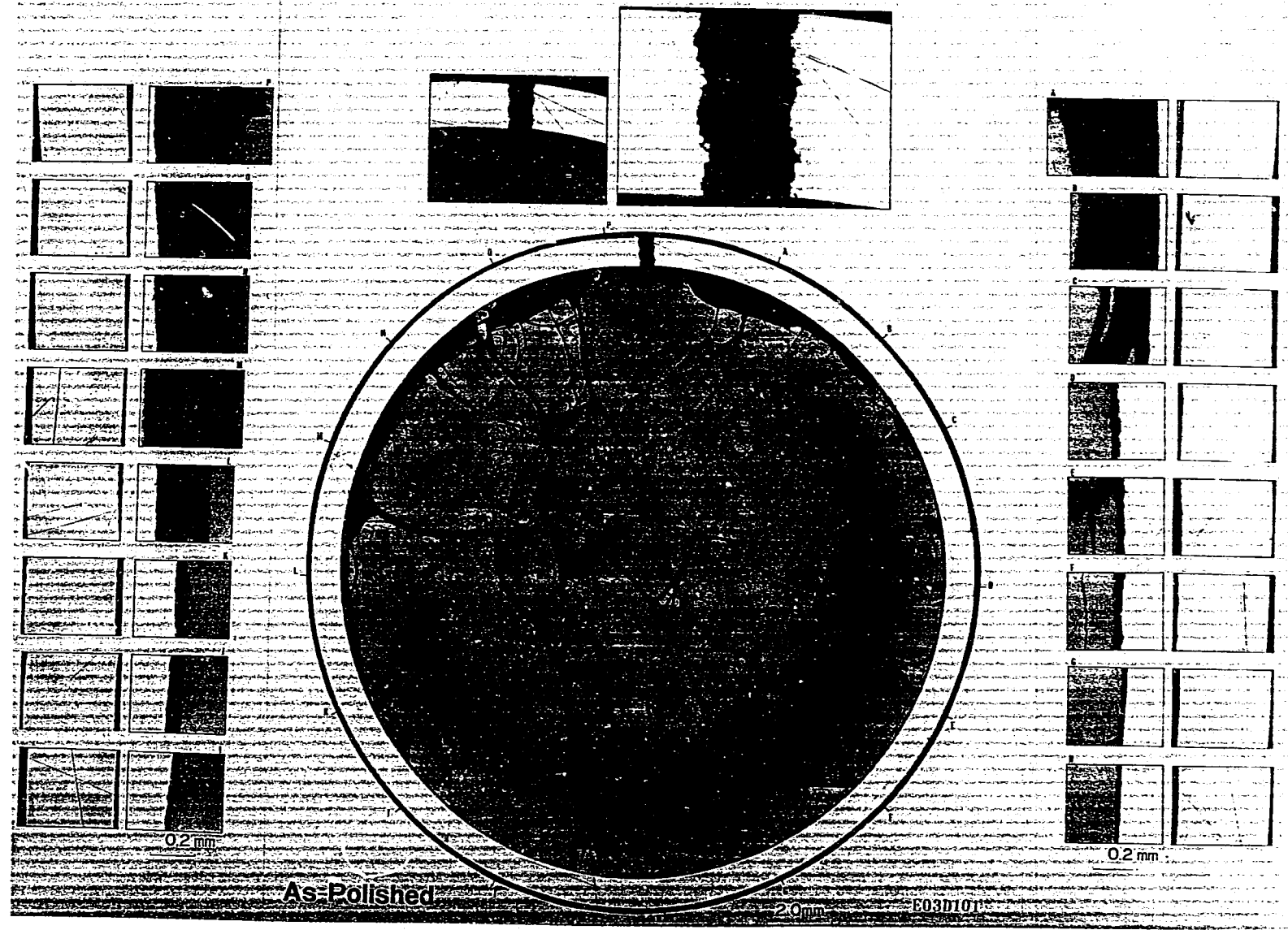


写真3-8 吸収ピン断面金相写真 (MCR103)

JOYO MK-II MCR105

Specimen NO. B20415

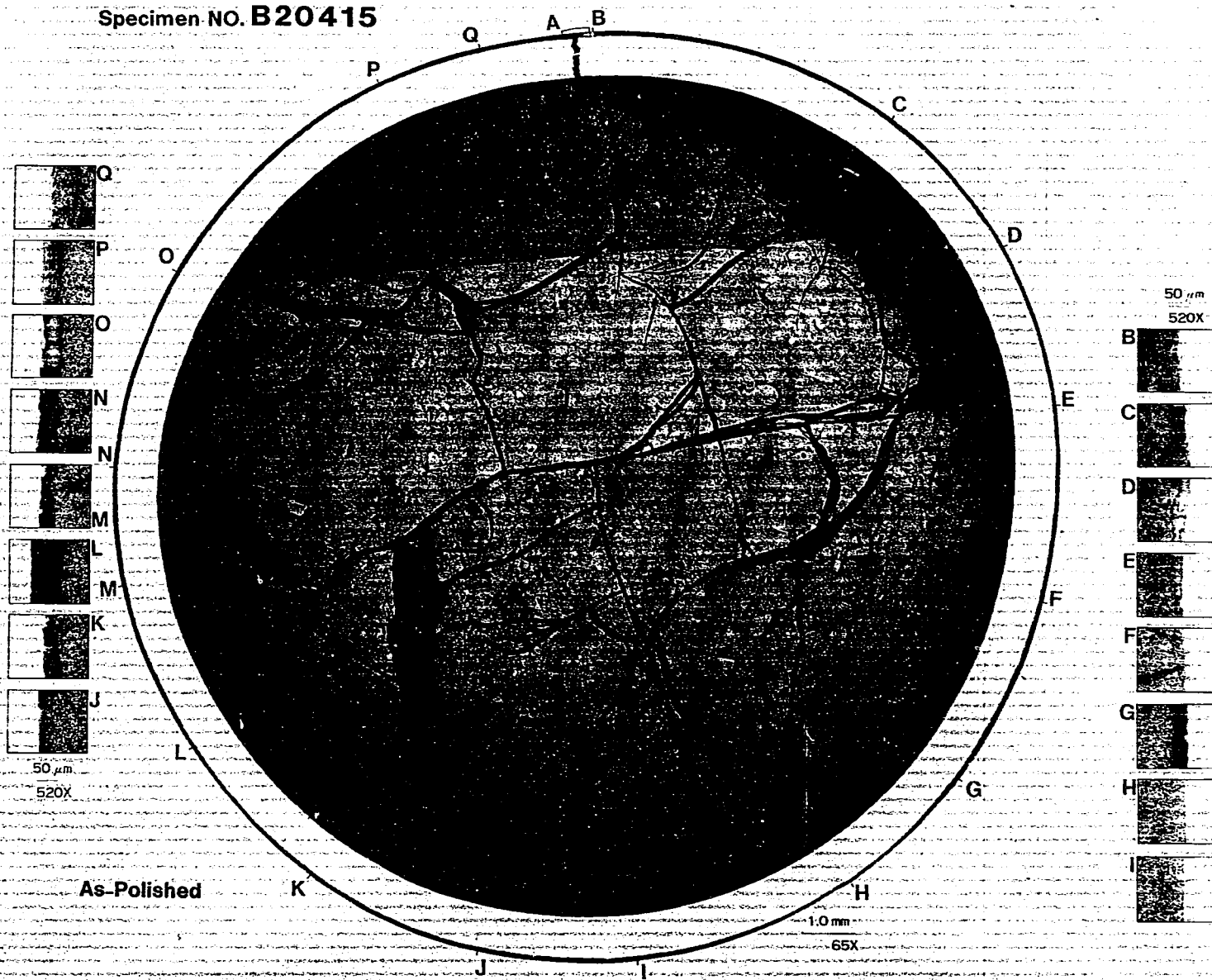


写真3-9 吸収ピン断面金相写真 (MCR105)

"JOYO" MK-II CR301M Specimen NO. E60521

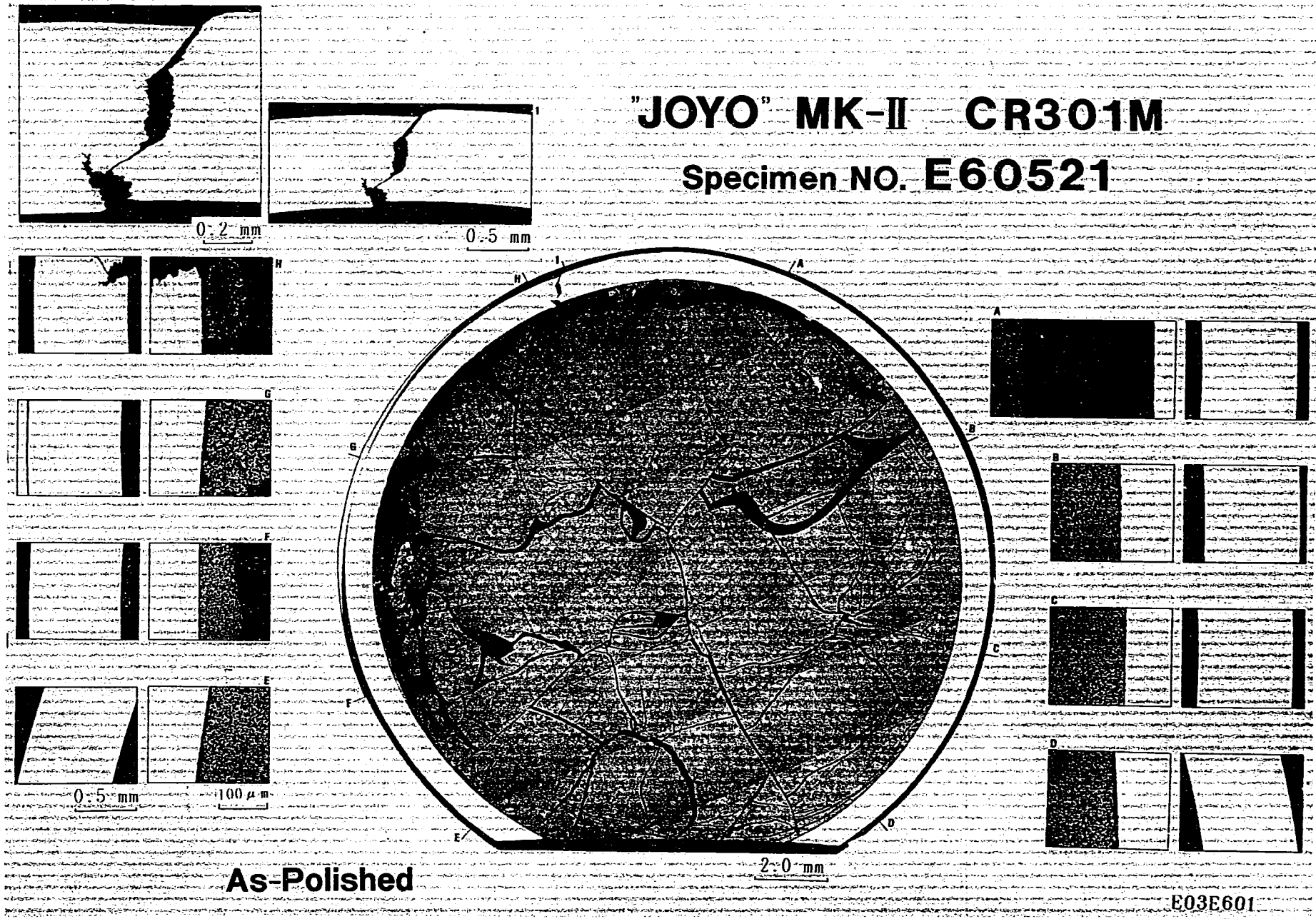
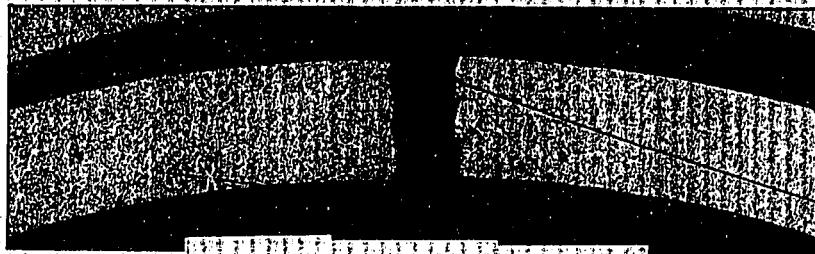
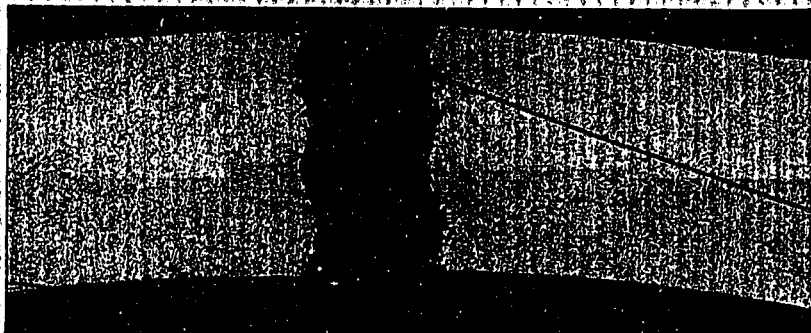


写真3-10 吸収ピン断面金相写真 (CR301M)

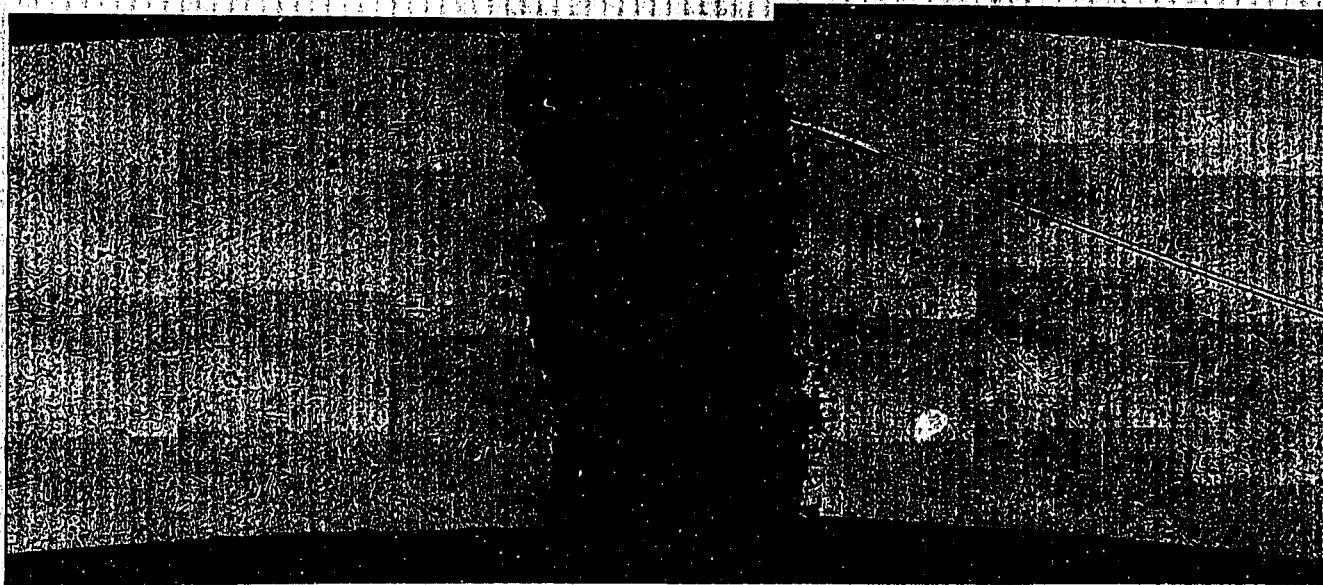
"JOYO" MK-II MCR103 Specimen NO. D10722



1.0 mm



0.5 mm



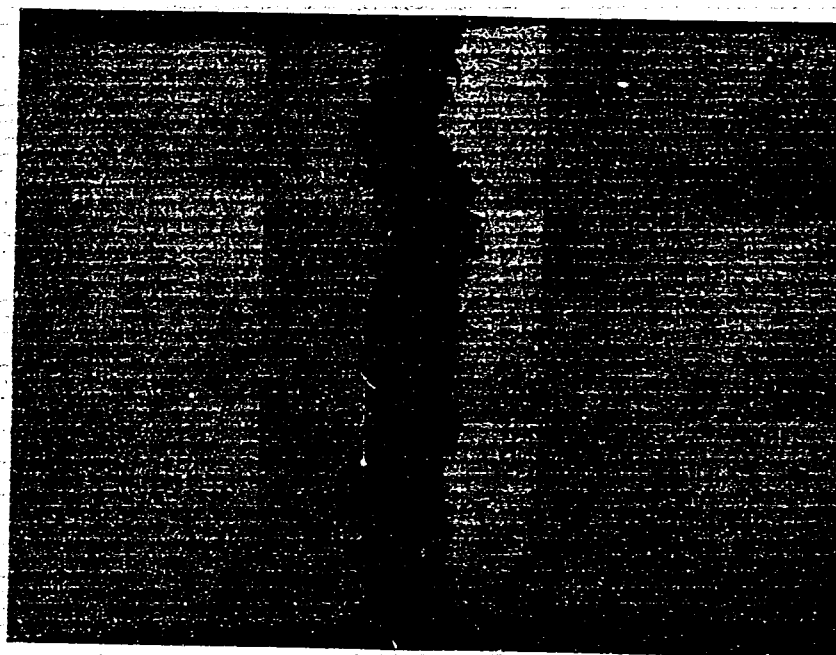
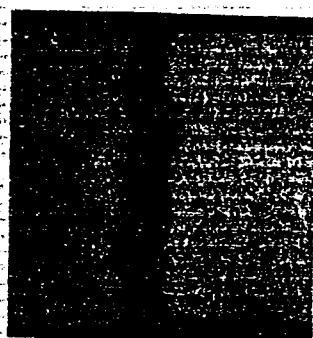
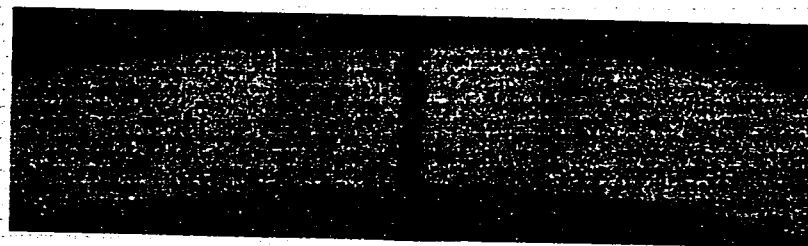
0.2 mm

As-Etched

E03D102

写真3-11 吸収ピン断面金相写真 (クラック部：MCR103)

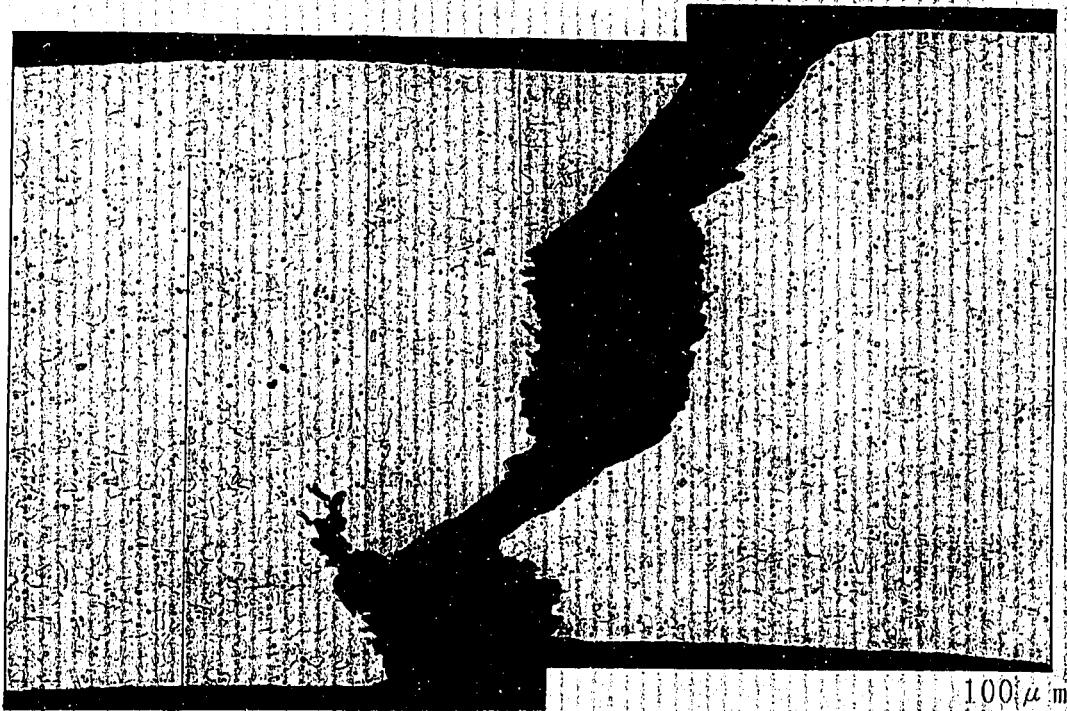
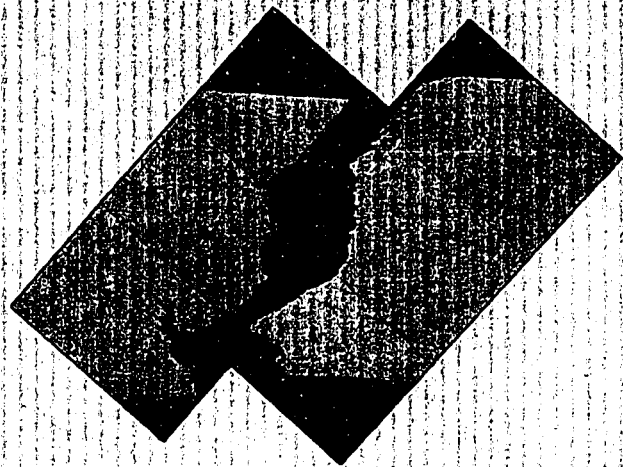
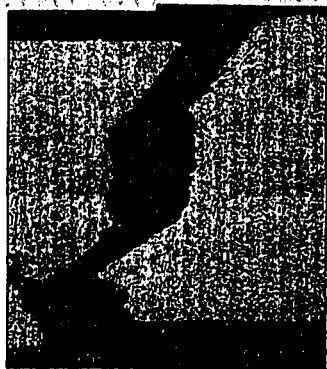
"JOYO" MK-II MCR105 Specimen No. B20415



As-Etched

写真3-12 吸収ピン断面金相写真 (クラック部：MCR105)

"JOYO" MK-II CR301M
Specimen NO. E60521



Etched

E03E602

写真3-13 吸収ピン断面金相写真 (クラック部: CR301M)

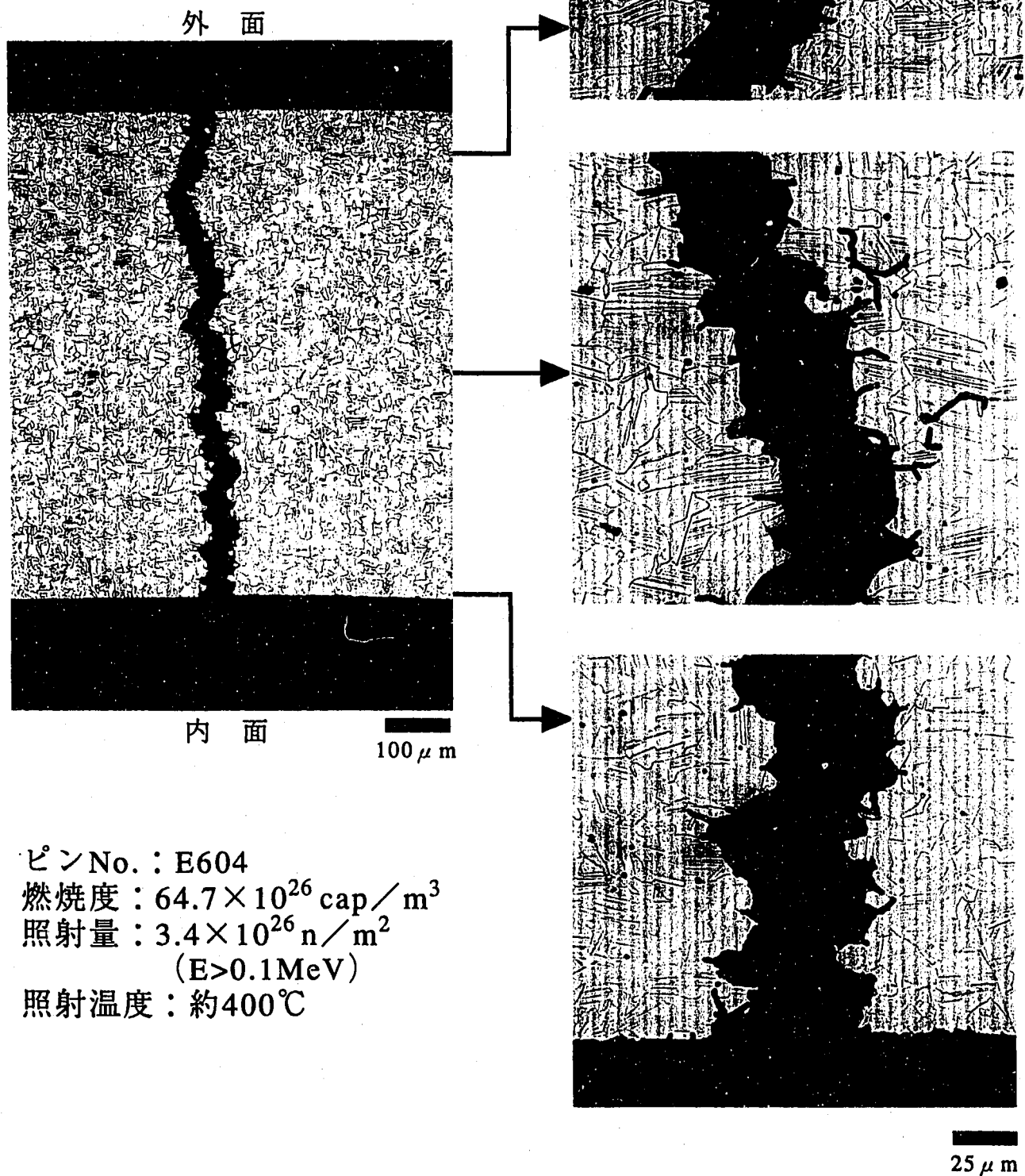


写真3-14 吸収ピン断面金相写真 (クラック部 : CR301M)

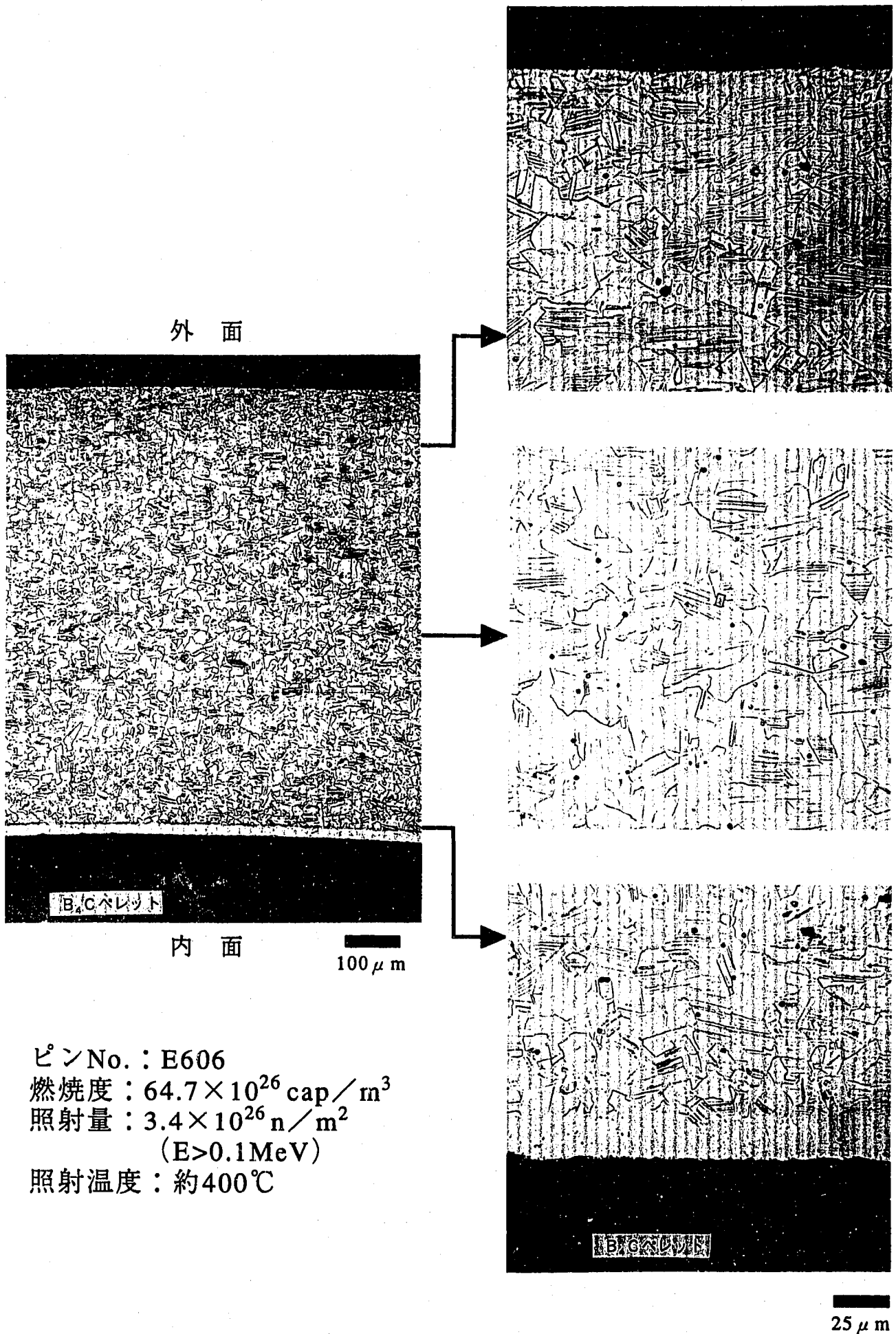


写真3-15 吸収ピン断面金相写真 (反応層部 : CR301M)

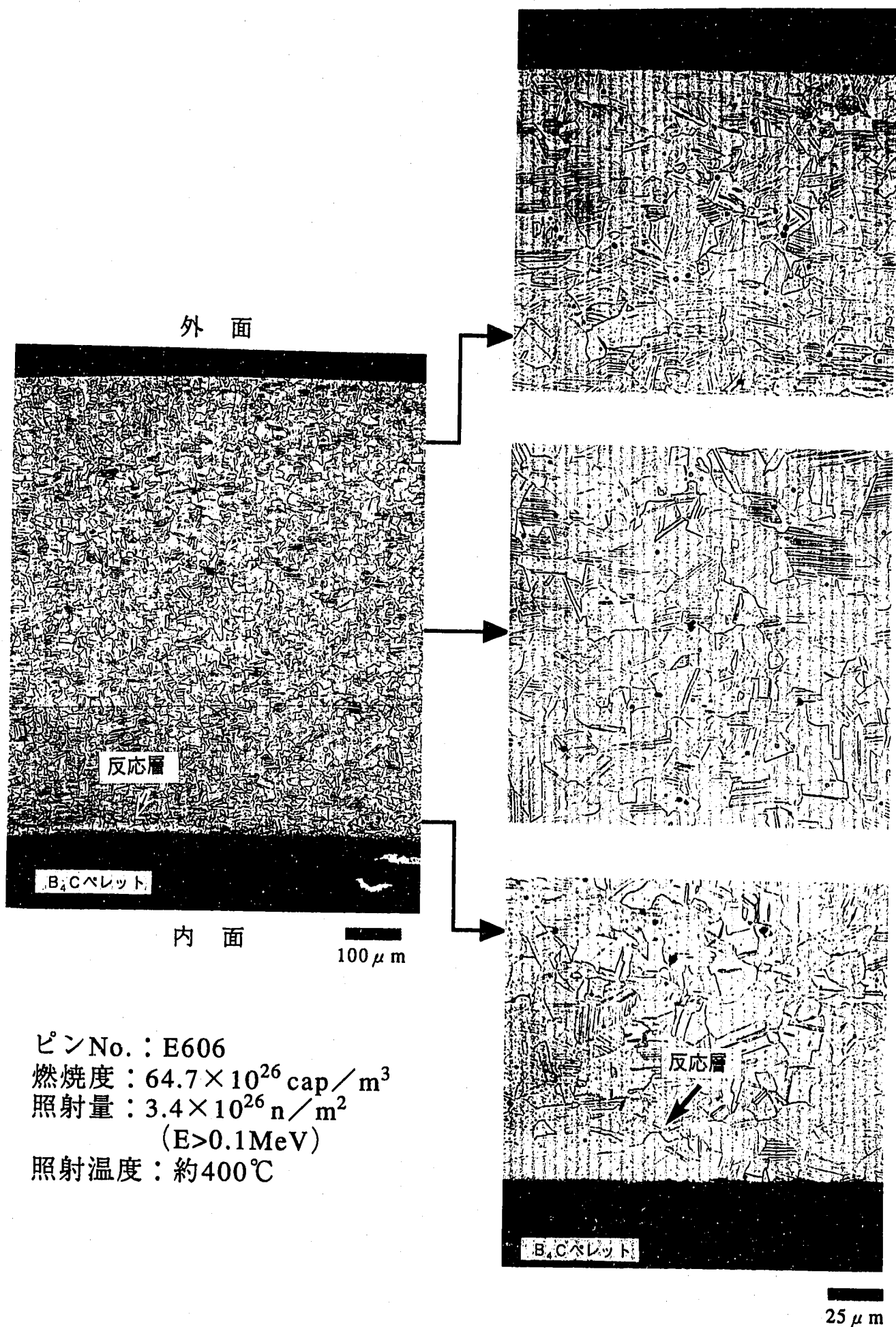


写真3-16 吸収ピン断面金相写真 (反応層部 : CR301M)

"JOYO" MK-II MCR103

Specimen NO. D107211

(SEM)

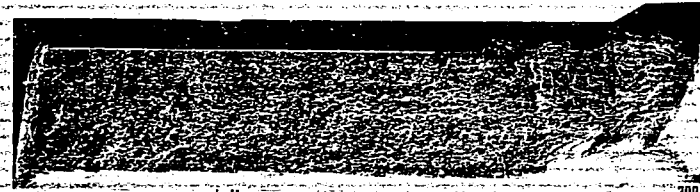


写真3-17 破断面SEM写真 (MCR103)

"JOYO" MK-II CR301M

Specimen NO. E60512C

(SEM)



A B C D

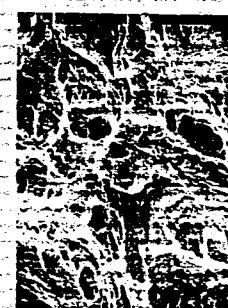
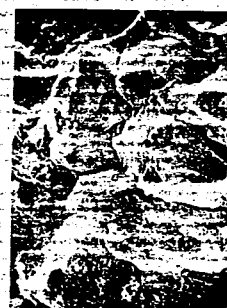
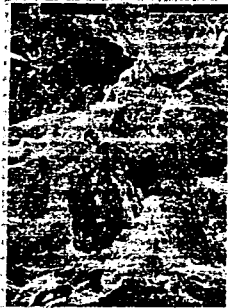
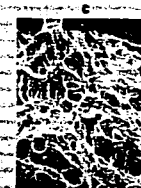
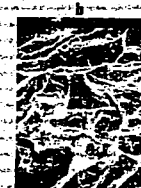
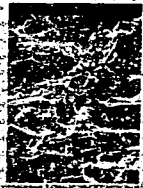
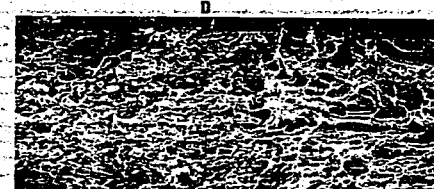
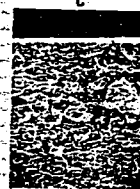
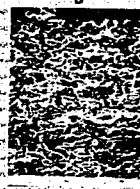
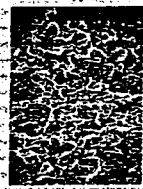


写真3-18 破断面SEM写真 (CR301M)

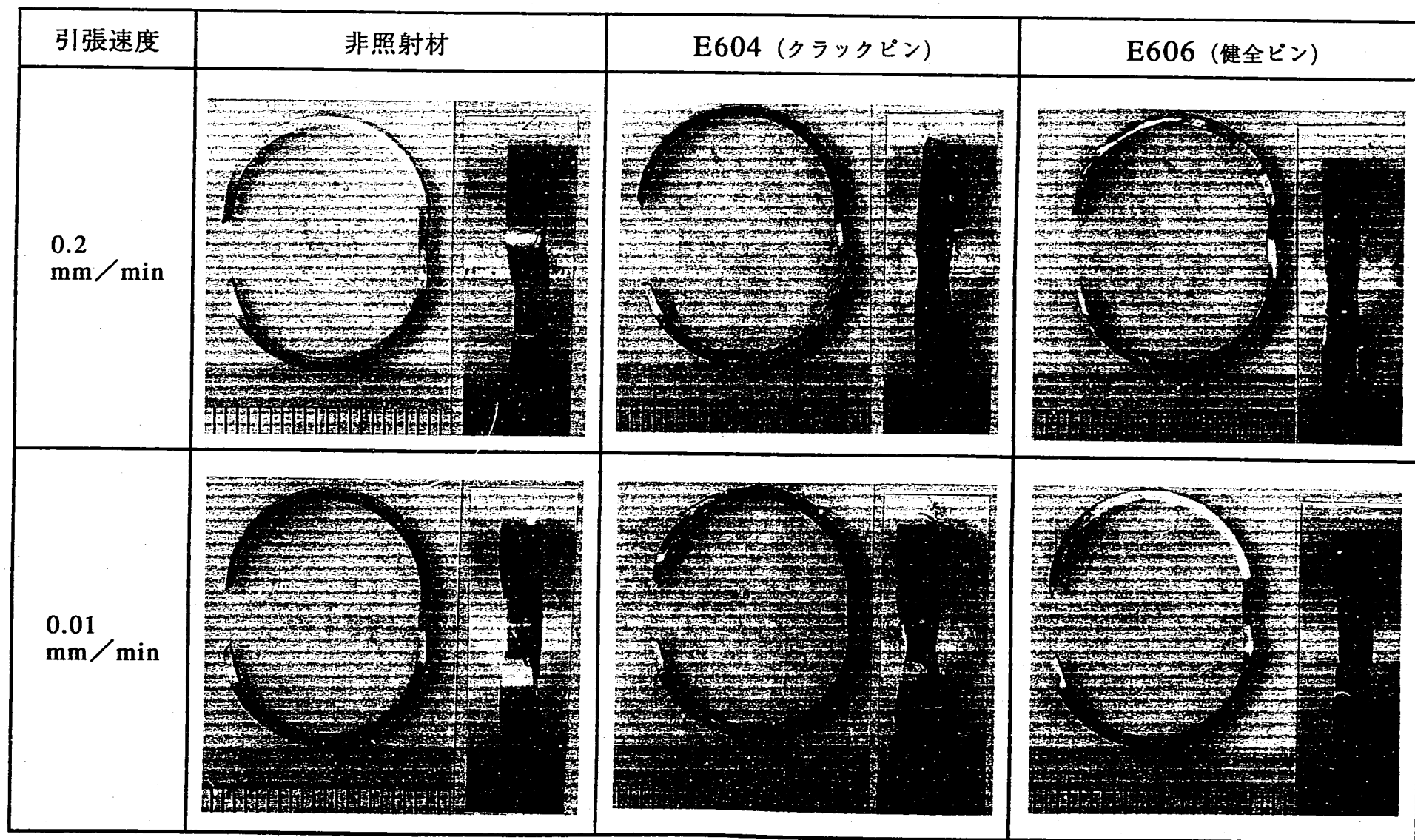


写真3-19 リング引張試験後の外観写真 (試験温度：室温)

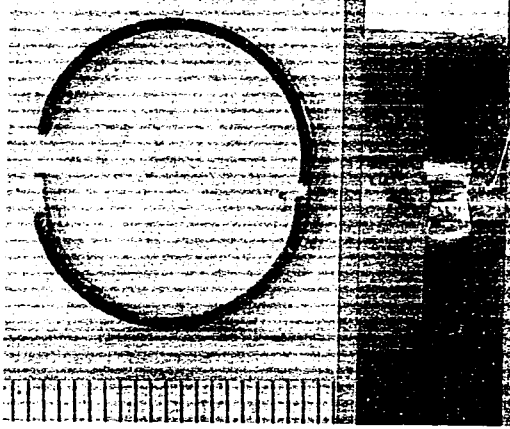
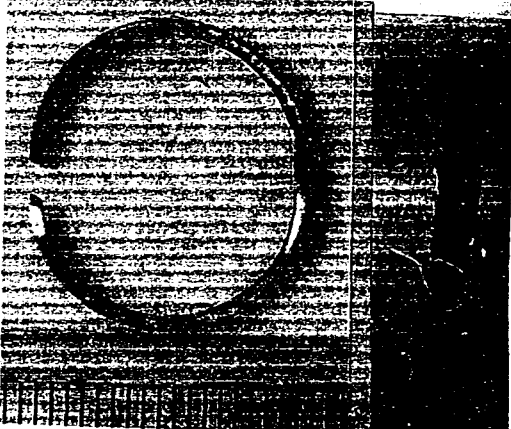

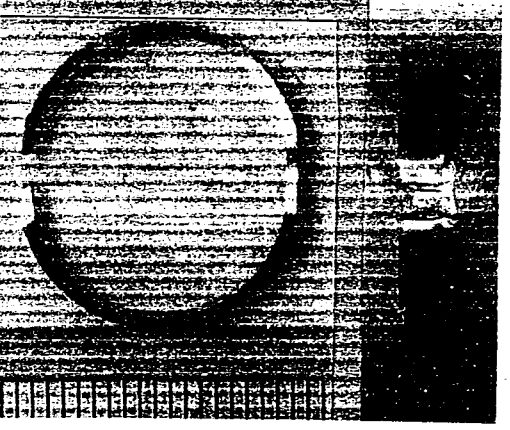


引張速度	非照射材	E604 (クラックピン)	E606 (健全ピン)
0.2 mm/min			
0.01 mm/min			

写真3-20 リング引張試験後の外観写真 (試験温度：200℃)

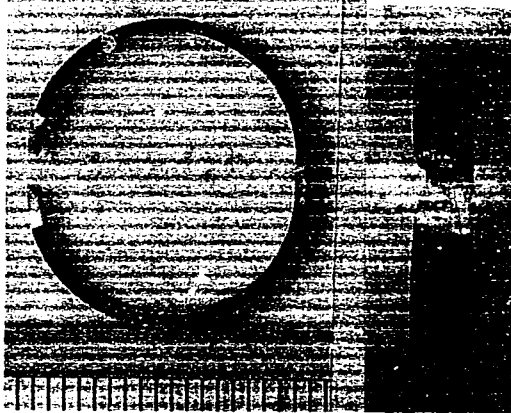





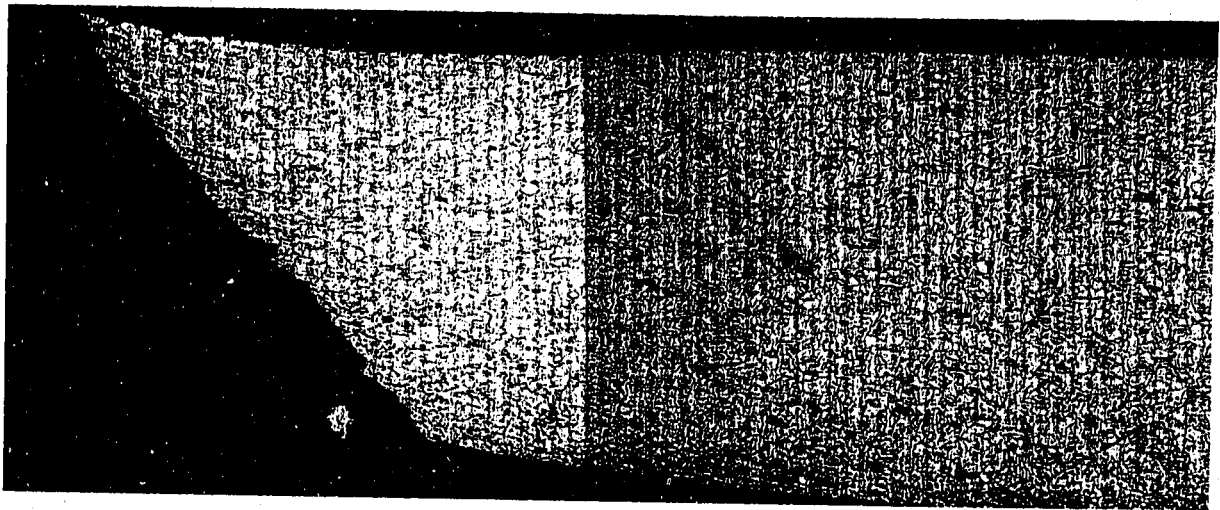
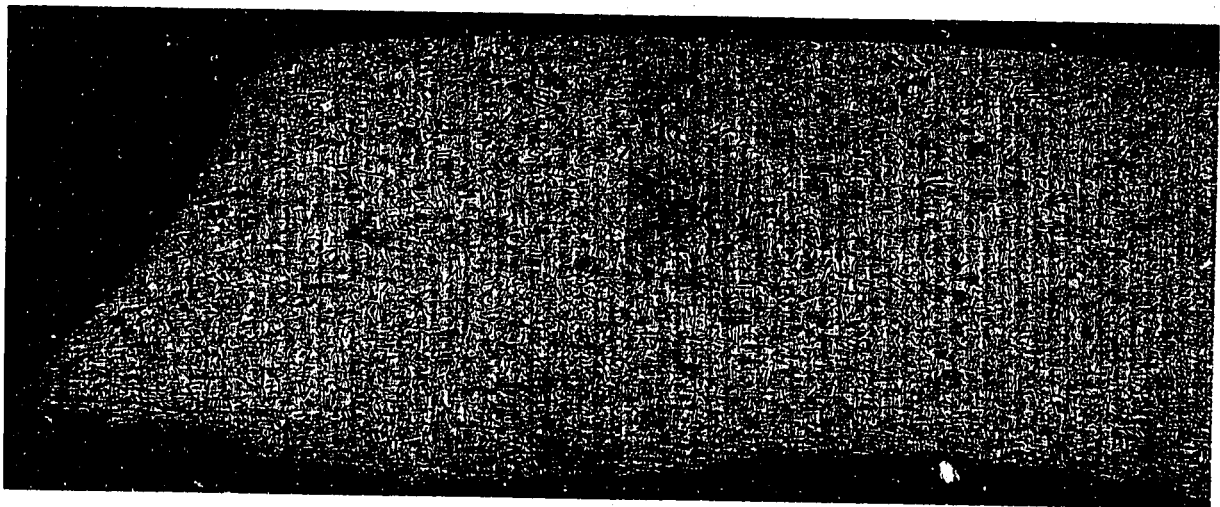
引張速度	非照射材	E604 (クラックピン)	E606 (健全ピン)
0.2 mm/min			
0.01 mm/min			

写真3-21 リング引張試験後の外観写真 (試験温度：400℃)



ピンNo. : E604
試験条件 引張速度 : 0.01mm / min
試験温度 : 400℃



ピンNo. : E606
試験条件 引張速度 : 0.01mm / min
試験温度 : 400℃

写真3-22 リング引張試験後の破断部の金相写真 (CR301M)

4. 考 察

4.1 クラック発生原因と時期

以前の報告¹⁾では、吸収ピン被覆管のクラックは、炉から取り出した後のアルカリ応力腐食により発生したと考えられていた。しかし、水貯蔵無しでもクラックが発生していること、また、今回の試験結果等をあわせて考えると、アルカリ応力腐食割れの可能性は非常に小さいと考えられる。

現在までに実施された各照射試験の結果から、クラックの発生原因および時期について考察する。

(1) 吸収ピンの重量増加

図4-1に有意差(2.1g)を超える重量増加が認められた吸収ピンについて、吸収ピンの重量増加と燃焼度との関係を示す。重量増加と燃焼度との相関はみられないが、現在クラックの確認されている吸収ピンは全て10g以上の重量増加が認められており(ただし、MCR105は重量測定未実施のため不明)、この値がクラック発生のしきい値となっているのがわかる。一部の健全ピン(詳細外観検査未実施分も含む)でも10gを超える重量増加が認められるものがあるが、ほとんどの健全ピンが10g以下であり、またその内の多くが有意差以内である。この吸収ピン重量増加の原因は、3.1(2)項でも述べたとおり、ナトリウムの浸入によるものであることがほぼ明らかとなっている。

ここで、吸収ピン内へのナトリウムの浸入経路を考察するために、ベント長に着目してベント長250mmの3次取替までの制御棒吸収ピンと、ベント長を250mmから350mmに延長した4次取替制御棒の吸収ピンとにわけてピン重量測定の結果を整理してみる。まず、4次取替の吸収ピンについてみると、クラックピンでは20g前後の重量増加が認められるが、健全ピンのほとんどが重量増加は有意差以内であり最大でも4.7gの増加である。このように、4次取替の吸収ピンでは、クラックピンと健全ピンとの間には重量増加に明らかな違いが認められ、吸収ピンの重量増加にクラックの発生が寄与していることは明らかである。これに対し、3次取替までの吸収ピンについてみると、クラックピンおよび健全ピンともにほとんどの吸収ピンで4次取替と同じ傾向にあるが、健全ピンの一部にも10gを超え最大17gの重量増加が認められるものがある。これらのことから、3次取替以前の吸収ピンではナトリウムはベント孔から浸入した可能性が否定できないが、同時に図4-1に示すようにクラックピンでは健全ピンより重量増加が大きいことから、3次取替までの吸収ピンのうち10gを超える大きな重量増加が認められた健全ピンについても、詳細外観検査で確認できなかったような微小なクラックが発生していた可能性がある。いずれにしろ、吸収ピンの大きな重量増加はクラックの発生に起因していると考えられ、その重

量増加の大半はクラックの発生後に起こっていると考えられる。

また、クラックピンにおけるナトリウムの浸入経路が、クラック部あるいはベント部のどちらであったとしても、ナトリウムの浸入は制御棒を炉から取り出す以前に起こっていると考えられる。つまり、クラックピンの大きな重量増加の原因がクラックの発生によるものと考えられることから、クラックの発生も炉からの取り出し時以前と考えることができる。

(2) 吸収ピンの外径増加とペレットのリロケーション

吸収ピンは通常、ACMI緩和のために、あらかじめペレットと被覆管との間に隙間（初期ギャップ）を設けている。このギャップの存在により、中性子照射により割れたペレットが被覆管内で移動・再配置する。この現象を、「リロケーション」と言う。ペレットのリロケーションと吸収ピン被覆管の変形の模式図を図4-2に示す。リロケーションが発生しない、あるいは発生してもその程度が小さい場合は、ペレットのスエリングによりACMIが生じて、吸収ピンは等方的に膨れる。しかし、リロケーションが生じると吸収ピンは異方的に膨らみ楕円形に変形する。これを「オーバリティ」と言う²⁾。

3.1 (1)項でも述べたとおり、初装荷制御棒の吸収ピン断面写真をみると、ペレットの割れはみられるが、ペレットは被覆管内に隙間なく詰まっており、ギャップはほとんど残っていない。これは図4-2 (b)の状態とほぼ同じであり、リロケーションの程度としては非常に小さいものと思われる。また、1次取替制御棒MCR105の吸収ピンも同様にギャップは残っていないが、リロケーションの程度としては比較的大きいと思われ、図4-2 (c)に相当する。しかし、MCR103およびCR301Mの吸収ピンの断面写真をみると、ペレットは偏心し片側は被覆管と接触しているが、その反対側にはギャップが残っており、割れたペレット小片がギャップ部に入り込んでいる様子がみられている。これは、図4-2 (d)の状態である。これら1次取替以降の制御棒吸収ピンは、初期ギャップの設計裕度が大きいにもかかわらず、被覆管の外径増加が大きくオーバリティの程度も大きいものが多い。すなわち、初期ギャップが大きいほど図4-2 (d)のようなリロケーションが発生し易くなり、設計時の予測よりも早い時期にACMIによる吸収ピンの外径増加が生じると言える。

図4-3および4-4に吸収ピンの外径増加と燃焼度との関係を示す。ここで、外径増加率としては、図4-3では周方向1方向での最大値を用いており、図4-4では周方向2方向の平均値で最大を示した値を用いている。当然、外径増加率としては図4-4の方が全体的に小さくなっている。クラックピンについては、どちらの図についてもクラック中心部での外径増加率を用いている。この図から、吸収ピンの外径増加率は燃焼度が高くなると全体的に大きくなることがわかる。しかし、初期ギャップが0.2

mmと小さいものの方が燃焼度が高くても吸収ピンの外径増加率は小さく、初期ギャップを大きくするほど外径増加も大きくなり、クラックが発生し易くなっているのがわかる。また、クラックの確認された吸収ピンは全て初期ギャップが0.35mm以上のものであり、初期ギャップが0.5mmと最も大きい吸収ピンにおいては燃焼度 $57 \times 10^{20} \text{ cap/m}^2$ でクラックが発生していた。また、吸収ピンの最大外径増加率が0.6%、2方向平均の最大外径増加率で0.5%程度と非常に小さい値からクラックは発生していることがわかる。しかし、同一のクラックピンでもクラック部以外では外径増加率1%を超える部分があり、必ずしも外径増加が最大を示した位置でクラックが発生しているわけではない。このように、初期ギャップと被覆管の外径増加率との関係は、前述のリロケーションの発生状態に対応しており、リロケーションの程度の大きいものほどクラックが発生し易くなっていると言える。ただし、被覆管の外径増加率やリロケーションの程度が大きければ、必ず吸収ピンにクラックが発生するという訳ではない。しかし、被覆管の外径増加が生じていない部分（吸収ピン上部）ではクラックが生じていないこと、比較的等方的に変形している吸収ピンではクラックが生じていないことは明らかである。

これらのことから、クラックの発生原因には、少なくともリロケーションによるACMIが影響しているのは明らかである。また、現状得られている吸収ピン詳細外観検査結果からは、燃焼度 $57 \times 10^{20} \text{ cap/m}^2$ 未満の制御棒では吸収ピンのクラックは確認されていない。

また、前述の結果を初期ギャップで整理し、吸収ピンの健全性について評価したものを図4-5に示す。図中の△は健全ピンを示し、●はクラックピンである。また、図中の実線は各ギャップにおいて、クラックの生じていた吸収ピンの最小燃焼度を直線で結んだものである。なお、□は初装荷制御棒（初期ギャップ0.2mm）であり、外観検査を実施していないためにクラックの有無が明確にはされていない。しかし、重量増加の値から考えて、大部分の吸収ピンは健全であったと考えられる。この図からわかるように、初期ギャップが0.35mmと小さいものはクラックの発生している確率は小さく、半数以上の吸収ピンが健全であった。これに対し、初期ギャップが0.5mmと大きいものほどクラックの発生している確率が高く、これまでに照射後試験を実施した吸収ピンの半分にクラックの発生が認められている。図4-6にAMIR試験²⁾における初期ギャップと被覆管外径増加およびオーバリティの発生との関係を示す。ここでオーバリティの定義としては被覆管の外径増加が0.05mm以上で最大外径と最小外径との差が0.05mm以上とした。AMIR試験の結果では、被覆管クラックの発生はみられなかったが、初期ギャップを上げると0.4mm付近から被覆管にオーバリティが生じ始め、0.6mmを超えると明らかにオーバリティが

発生し易くなっていることが示されている。この図に、実機制御棒の結果をプロットすると、実機制御棒では初期ギャップ0.2 mmですでにリロケーションが発生しており、リロケーションの発生が加速されることが示されている。これは、実機制御棒の場合、AMIR等の静的な試験に比べ振動が大きく、スクラム性能等の試験によりペレット小片が移動し易くなるためと思われる。このように、初期ギャップを大きくするほどリロケーションが発生し易くなることが明らかであり、またその程度も大きくなる傾向にあることがわかる。また、前述のとおり実機制御棒ではリロケーションの発生が加速されることから、実機制御棒においては初期ギャップが大きくなるほど低燃焼度からクラックが発生し易くなると考えられる。

これらの結果を考慮し、図4-5から「もんじゅ」調整棒の健全性を評価してみる。「もんじゅ」では初期ギャップが0.7 mmと比較的大きく、図4-5によれば $\sim 50 \times 10^{20} \text{ cap/m}^2$ の燃焼度でクラックの発生する可能性があることを示している。今後、この点を照射後試験で早急に確認する必要がある。

(3) クラックの破断形態

3.2 (2)項で述べたとおり、クラック発生ピンの破断面は全て粒界脆性的な破壊形態を示している。また、リング引張試験の結果をみると、前述のとおり中性子照射により0.2%耐力と引張強度は共に増加しているが、一様伸びと破断伸びは逆に低下しているのがわかる。さらに、試験温度に着目してみると、すべて試験温度の上昇と共に低下しているのがわかる。ただし、今回得られたデータからは試験温度200℃と400℃の間には明確な違いはみられず、また破断形態はすべて延性的なものであった。しかし、高温でかつ歪み速度が緩やかであるほど、粒界脆性的な破壊形態を示すと言われている³⁾。照射中の被覆管温度は400～500℃であり高温とは言えないが、被覆管の歪み速度はB,Cペレットの燃焼速度およびスエリング率から計算すると、概略で $1 \times 10^{-9} \text{ mm/min}$ 程度と非常に緩やかであり、粒界脆性的破壊形態を示す条件に比較的近いと思われる。

次に、He分析の結果をみると、今回測定を実施した3次取替制御棒CR301Mの吸収ピン被覆管のHe蓄積量は、被覆管内面側で約50 appm、外面側で約10 appmである。これは同程度の照射条件で材料照射をしたSUS316鋼に比べると、外面側、内面側ともに多く、内面側では特に多くなっている。He脆化は被覆管内に1 appmでもHeが蓄積されれば起こり始めるといわれており、またHe脆化の影響は高温であるほど顕著に現れる^{3) 4)}。

これらのことから、破断形態についてのみ着目すると、炉運転中のACMIやHe蓄積の影響により被覆管にクラックが発生する可能性がある。ただし、後述するとおり、炉運転中に生じる被覆管の歪みは照射クリープにより緩和され、炉運転中にク

ラックは発生しない可能性もある。

(4) 「制御棒挙動解析コード (CORAL)」による挙動評価

過去に「制御棒挙動解析コード (CORAL)」で吸収ピンの挙動評価を行った例があるが⁵⁾、これによると炉運転中は被覆管の照射クリープによりACMIにより生じる応力は緩和され、炉運転中に吸収ピン被覆管にクラックが発生する可能性は非常に低いと予測している。また、炉停止時や炉からの取り出し時の温度が低下するときの、B、Cペレットと被覆管との熱収縮差により被覆管に過大な応力が生じるが、この応力は被覆管にクラックを生じさせるほどのものではないとしている。

ここで、炉停止時および制御棒取り出し時の熱収縮差により生じる被覆管の歪みを計算してみると、炉停止時の被覆管の歪み速度は約 1×10^{-4} mm/min程度で、このときの歪みは約0.4%となる。また、制御棒取り出し時の被覆管の歪み速度は約 3×10^{-3} mm/min程度で、このときの歪みは約0.3%となる。炉停止時から取り出しまでに吸収ピン被覆管に生じる全歪みは約0.7%となり、リング引張の一樣伸び値とあわせて考えると、この過程でクラックが発生する可能性はある。リング引張試験の結果はすべて延性的な破壊であるが、炉停止時から取り出しまでに生じる被覆管の歪み速度は今回のリング引張試験よりも緩やかであるため、この過程でも脆性的な破壊形態を示す可能性もあると思われる。リング引張の試験条件についてはさらに検討する必要がある。

また、「CORAL」ではペレットのリロケーションを考慮していないため、被覆管全体に均等に応力がかかる状態を模擬している。このため、リロケーションにより部分的に過大な引張応力がかかるような実際の状態は、「CORAL」による予測よりも厳しいと考えられる。さらに、照射クリープによる歪み、Heの蓄積による被覆管の脆化等の因子とをあわせて考えると、運転サイクル間の炉停止時あるいは炉からの取り出し時に吸収ピン被覆管にクラックが発生していることは十分に考えられる。

(5) クラック発生原因と時期の推定

前述の(1)~(4)までの内容から、クラックの発生原因と時期について以下のようにまとめられる。

①クラック発生原因

ペレットのリロケーションやスエリングによるACMIの発生が必須条件であることは明らかである。また、被覆管内へのHeの蓄積による脆化の影響も充分にあると考えられる。

②クラック発生時期

現状得られているデータからは、クラックは制御棒が炉内滞在中に発生していると考えられる。しかし、クラックの発生は炉運転中であるのか、炉停止時あるいは

取り出し時であるのかの判断は難しい。可能性としてはどちらも考えられるが、炉運転中に生じるACMIは被覆管の照射クリープにより緩和され、歪みも1%以上は十分に耐えられること、炉停止時の熱収縮差により生じる歪みも約0.4%と小さい値であること等の理由から、断定できないのが現状である。

燃焼度としては $57 \times 10^{20} \text{ cap/m}$ までの間にクラックは発生していることが明らかである。

4.2 今後の課題

これまでに得られたデータからは、吸収ピンの外径増加や重量増加以外ではクラック発生ピンと健全ピンとの間に明確な違いはみられなかった。クラック発生の原因および時期については、4.1 (5)項のとおり推定できるが、いずれも決定的なものがなく断定はできないのが現状である。このため、今後炉から取り出される制御棒について従来通りの試験項目の実施によるデータの拡充に加え、新たな試験項目の検討およびコード計算等によるリロケーションや被覆管脆化の影響を考慮したACMIの解析が必要であると考える。以下に今後実施する照射後試験(案)を示す。

(1) 非破壊試験

①吸収ピン詳細外観検査

従来の目視による外観検査に加え、渦電流探傷装置によるさらに詳細な検査を実施する。目視では確認できなかったクラックを発見することも可能になるとと思われる。

②吸収ピン外径寸法測定

従来の周方向2方向だけの測定ではなく、周方向6方向30°ピッチでの外径寸法測定を実施し、クラックの周方向位置のデータを拡充する。

③吸収ピン重量測定

クラック発生と重量増加との関係を調べる。特に4次取替以降のベント長を延長した吸収ピンで、クラック発生ピンと健全ピンとの間に重量増加に明確な差があるかどうかを調べる。

(2) 破壊試験

①吸収ピン断面観察

吸収ピンを切断し、ナトリウムが浸入しているかどうかを調べる。特にクラックの発生が認められた吸収ピンや重量増加が認められた吸収ピンについては、ナトリウムがどの位置にまで浸入しているかを調べる。可能であればベント部についても切断し、ナトリウムの有無を確認する。この結果と吸収ピン重量測定との結果をあわせ、吸収ピン内に進入したNa量を正確に評価する。

②断面金相観察

破断の形態、クラック発生位置とB、Cペレットのリロケーションの状態との関係を調べる。ただし、吸収ピン切断時に振動等により、ペレットの配置が実際の使用中の状態と変わってしまう可能性があるため、切断方法について検討する必要がある。また、中性子照射による被覆管の組織変化を調べる。反応層の生じていた被覆管については、IMA等による被覆管の成分分析を行い、機械的強度およびHe蓄積量との相関を調べる。

③破断面SEM観察

破断の形態を調べる。ただし、破断面SEM観察については、すでに破断の形態が粒界脆性破壊であることが明らかとなっているため、試験実施の必要性は少ないと思われる。

④リング引張試験

炉運転中、シャットダウン時のACMIによる被覆管の歪み速度および温度を模擬し、強度および伸びの変化を調べる。炉運転中に生じるACMIによる被覆管の歪み速度、炉停止時の熱収縮差により生じる被覆管の歪み速度は非常に緩やかであり、リング引張試験では模擬不可能であるため、クリープ試験の実施を検討する。また、He脆化の可能性を調べるために、He脆化が顕著に現れる高温での引張試験の実施を検討する。試験終了後、破断面の金相およびSEM観察を実施し、各試験条件で破断の形態に違いが生じるかどうかを調べる。

⑤被覆管He分析

被覆管内へのHeの蓄積量を調べる。また、He量と燃焼度や機械的強度との相関を調べる。

⑥TEM観察

被覆管内のHeバブルの状態を調べ、前述のHe分析の結果とあわせてHe脆化の可能性を調べる。

これらの試験を実施し評価する上で、制御棒の照射条件を明らかにする必要があると思われる。特に被覆管の挙動に大きく影響する照射温度については、計算コードによる評価もできていないのが現状である。被覆管の挙動評価を充実させるためにも、照射条件を明らかにすることは重要であると考え。さらに、照射後試験により得られたそれぞれのデータを「CORAL」等の挙動解析コードに反映し、より詳細な評価・解析を実施する必要があると考える。

また、現在のところ燃焼度 5.7×10^{26} cap/m²から吸収ピンにクラックが発生していることが明らかとなっている。制御棒の寿命を評価する上で、どの程度までの燃焼度であれば吸収ピンの健全性が保たれているのかを調べるために、燃焼度が 5.7×10^{26} cap/m²に至るまでの制御棒について非破壊試験による健全性確認試験を実施する必要があると思われる。

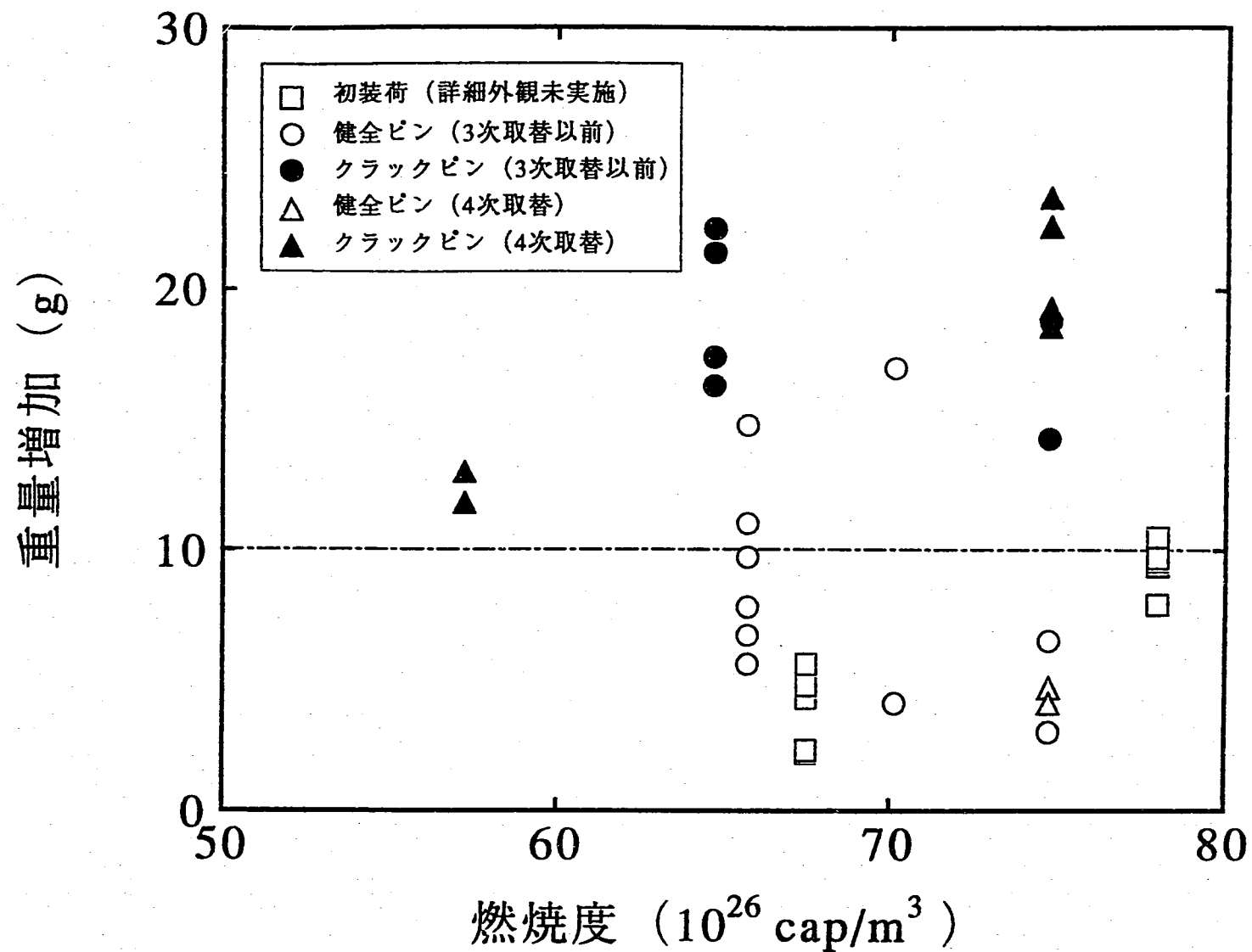


図4-1 吸収ピン重量増加と燃焼度との関係

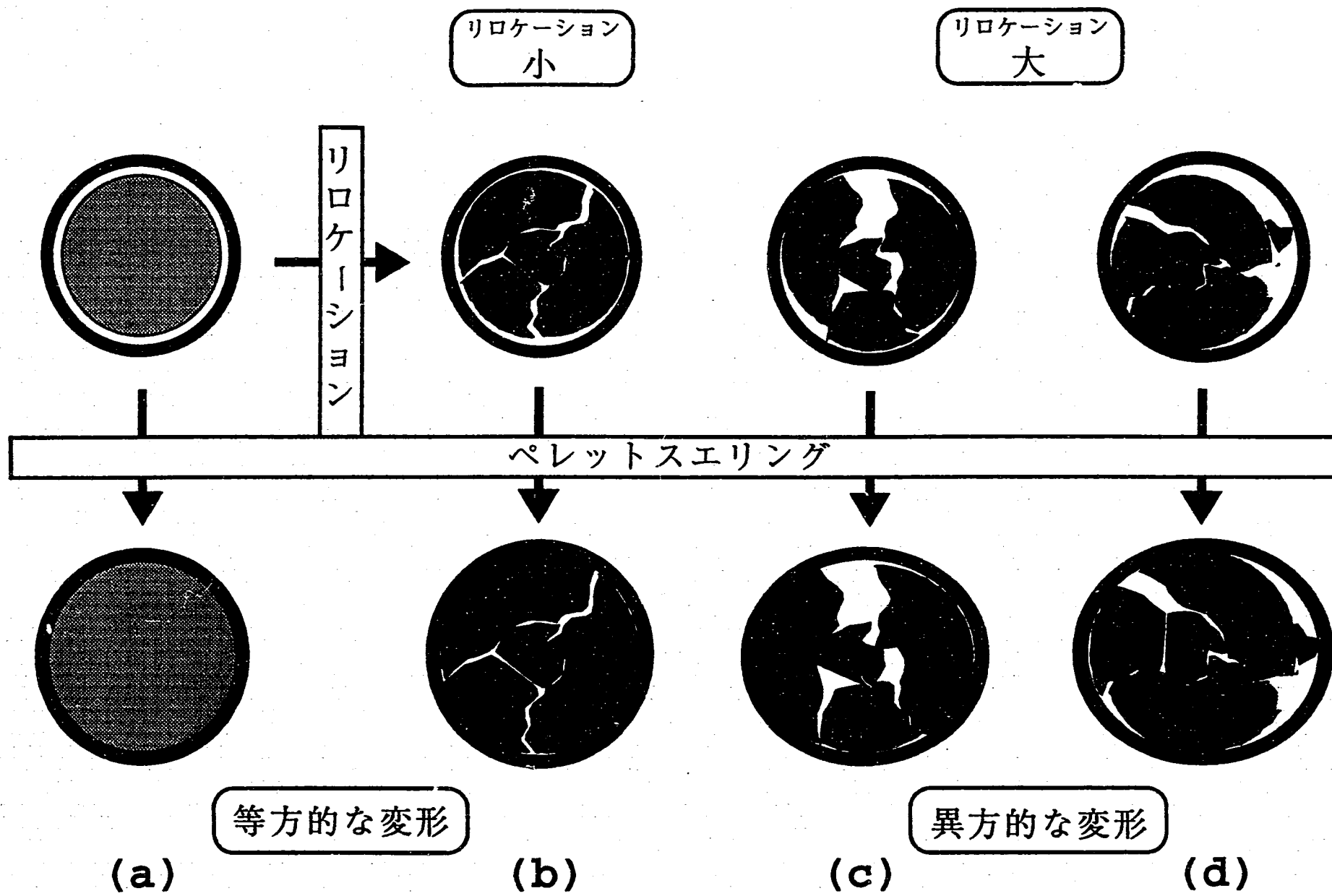


図4-2 ペレットリロケーションと被覆管変形モードとの関係

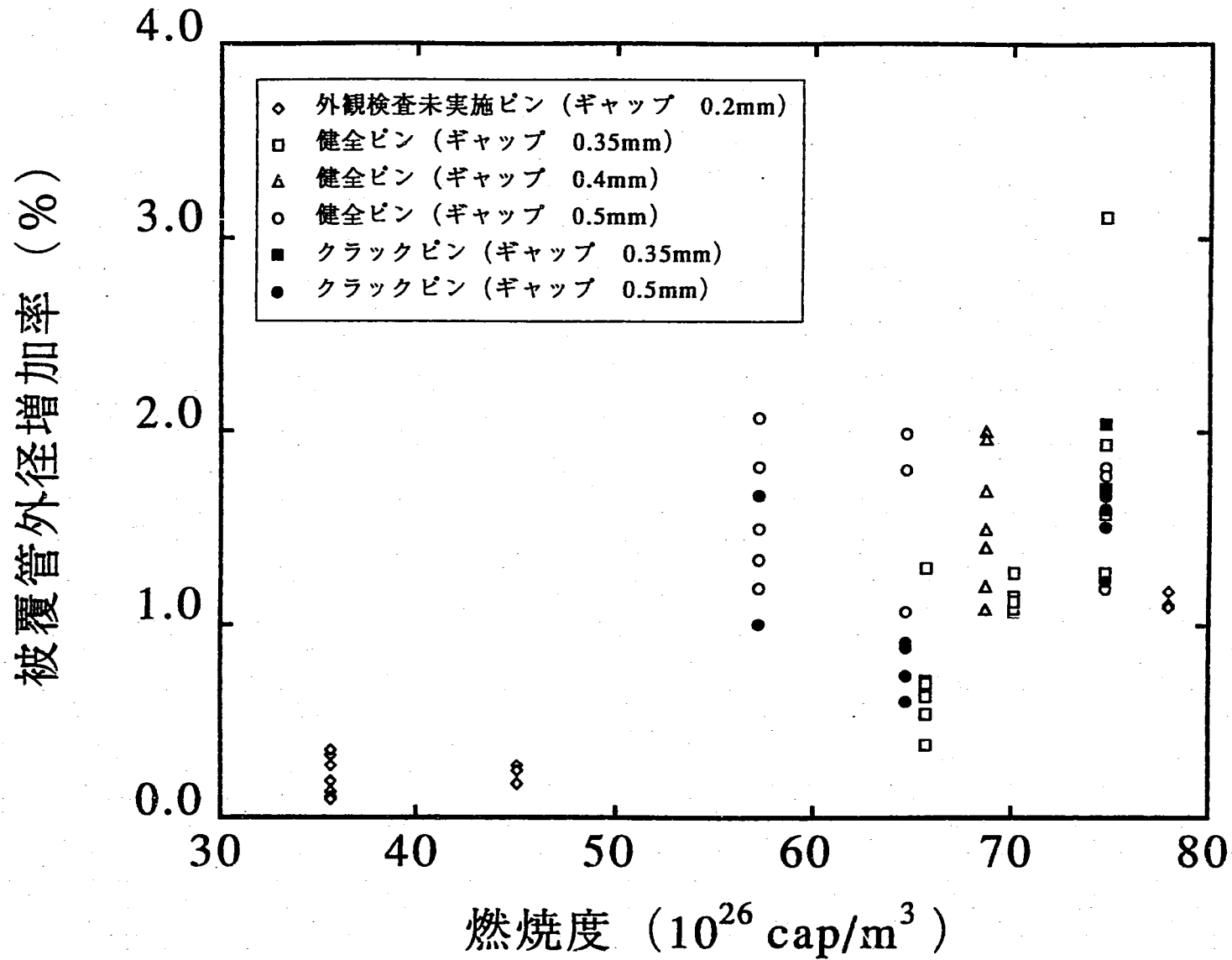


図4-3 吸収ピン外径増加と燃烧度との関係
(最大外径増加率)

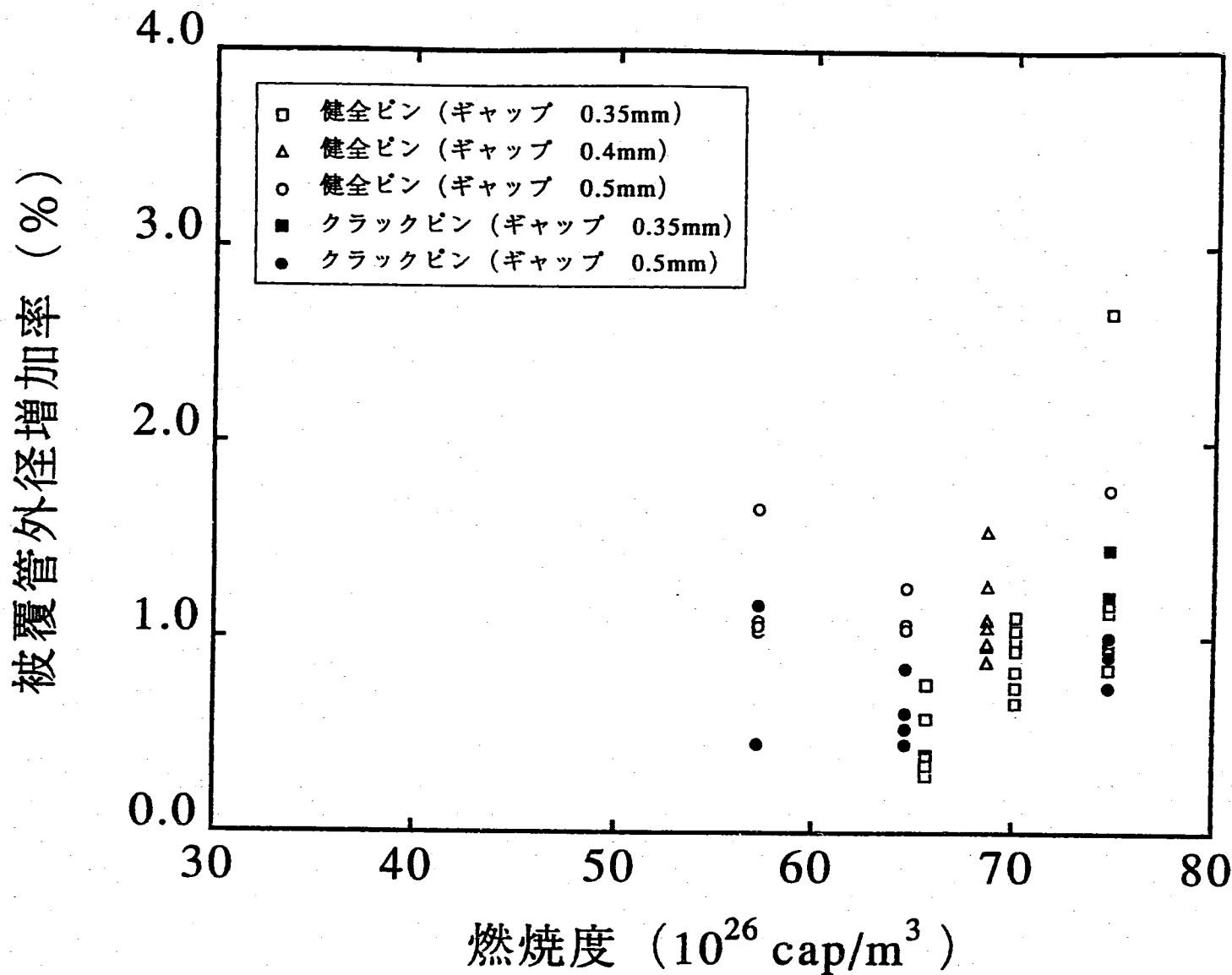
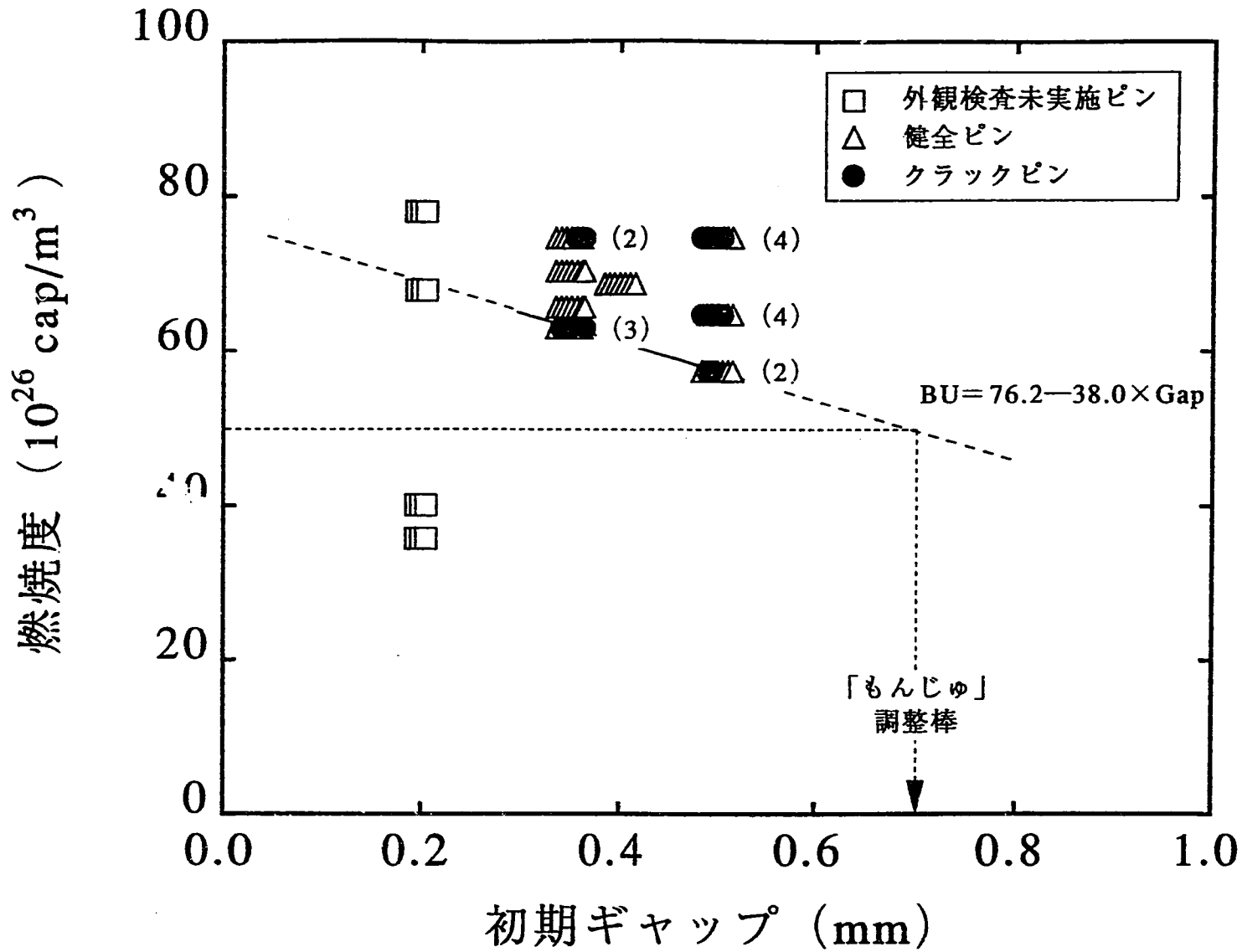


図4-4 吸収ピン外径増加と燃焼度との関係
(2方向平均の最大外径増加率)



* 図中 () 内の数字はクラックピンの数を示す。

図4-5 初期ギャップと燃焼度との関係

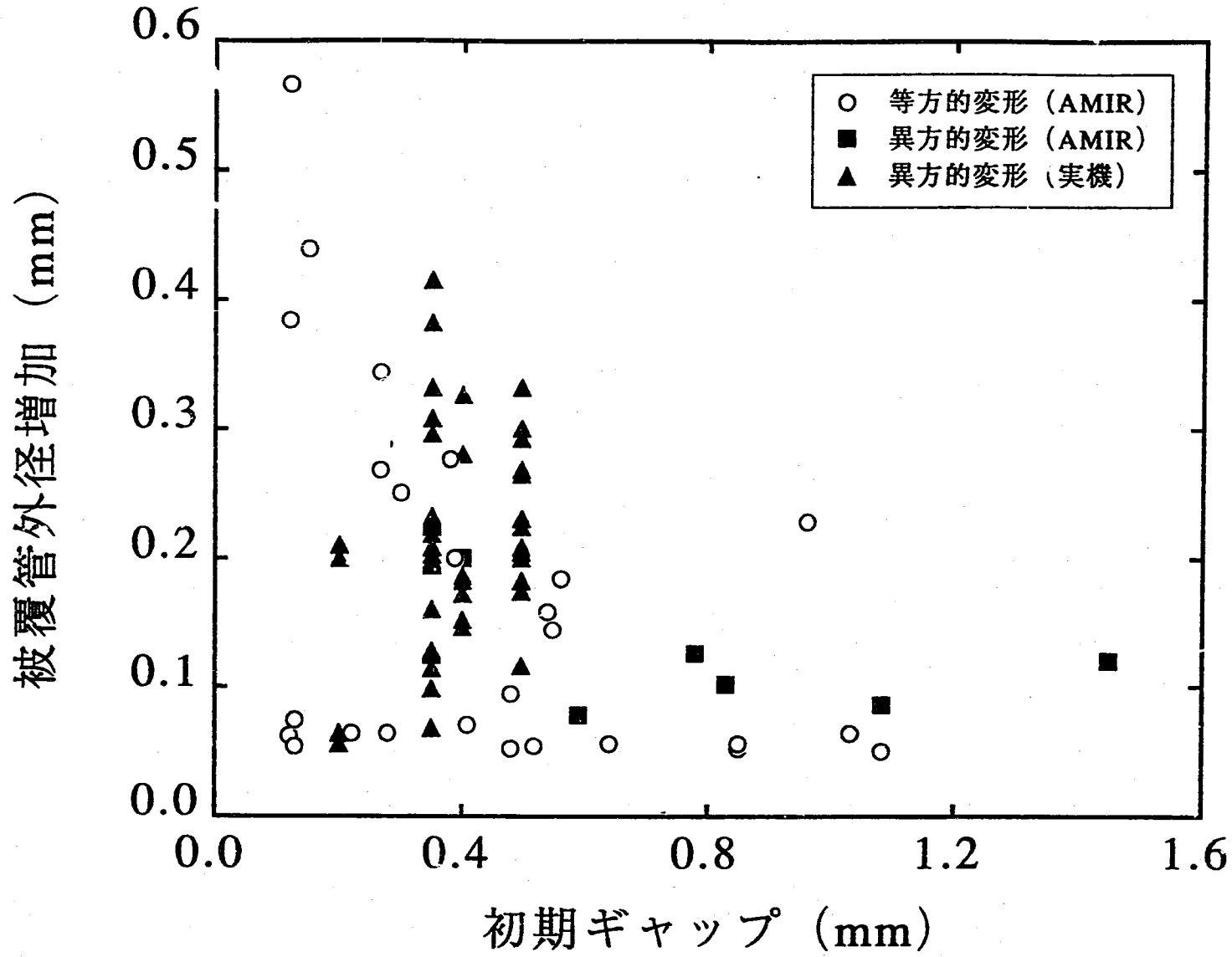


図4-6 被覆管変形モードと初期ギャップとの関係

5. まとめ

以上照射後試験結果をまとめると次のようになる。

照射後試験を行った制御棒13体のうち、1次、3次および4次取替制御棒の合計5体で吸収ピンにクラックが確認され、その数は合計15本となった。クラック発生が確認された吸収ピンの燃焼度で一番低いものは $57 \times 10^{26} \text{ cap/m}^2$ であり、「常陽」制御棒ではこの値が現在クラック発生のしきい値となっている。クラックの発生位置はほとんどが吸収ピンの軸方向下端から約100から120mmの位置に発生していて、形状は長さ約3mmから37mm程度、幅0.05mmから0.3mmで軸方向に長く伸びた比較的直線に近いものである。吸収ピン全長および曲がり量には特に異常はみられないが、外径変化にはオーバリティが認められていて、クラック発生位置付近で最大外径を示しているものが多い。吸収ピンの外径増加量が1%以下であってもクラックの発生しているものがある。また、クラックピンは全て10g以上の重量増加が認められており、この重量増加の原因はクラックから吸収ピン内にNaが浸入したことによるものと考えられている。金相観察と強度試験によれば、クラック破面は脆性的な粒界破壊の様相をしている。一方、引張試験を行うとクラック破面と異なり、破面は延性的な破壊モードを示す。この破壊モードの差がACMI破壊特有の挙動のようである。被覆管のHe分析を行った結果では、Heは被覆管内側に高濃度に蓄積していて、He脆化の可能性を示す。しかし、上記リング引張試験の結果では特にその点は明瞭に確認されなかった。

以上の結果から、吸収ピンのクラック発生原因と時期について以下のように考えることができる。

Na洗浄を行わないで外観検査を行った吸収ピンについてもクラックが入っていることが確認されたため、炉から取り出した後の水洗浄または貯蔵中の缶内水によるアルカリ応力腐食割れに起因したものと以前の説明が必ずしも唯一の原因とは言えなくなった。むしろ、クラック発生は炉内で照射中あるいは炉停止時の冷却によるペレットと被覆管との熱収縮差により入ったものと考えの方が妥当である。すなわち、炉内で使用中にクラックが生じたものと考えられる。B,Cペレットにクラックが入るとペレット小片はリロケーションにより、ペレットのクラック間あるいはペレットと被覆管とのギャップに入りこむ。その状態でB,CペレットがスエリングするとACMIが発生することになる。高燃焼度までピンを照射すると、ACMIが大きくなり、ついには被覆管にクラックを発生させる。あるいは炉の停止時、被覆管温度が低下するとペレットと被覆管との大きな熱収縮差のため、過大な応力が発生してクラックを発生させるものと考えられる。

「常陽」制御棒の照射後試験の結果から、ACMIを防ぐためのギャップ拡大は、かえってリロケーションを促進させる可能性があることが明らかにされた。このペレット破

片のリロケーションを防ぐため、B、Cペレットにシュラウドを被せることが有効と考える。

なお、制御棒の長寿命化をさらに図るにはギャップの拡大やシュラウドの熱的条件を緩和させるため、Naボンドを採用することが必要と思われる。また、中性子吸収材としてB、Cペレットを使用する場合、B、Cペレットは熱衝撃のために容易にクラックが入り、また非常に硬い等の欠点がある。そのため、それらの欠点を補うために、中性子吸収能力に優れ、なおかつ延性や熱衝撃特性、熱伝導度等に優れる高性能制御材の開発も必要と考える。

6. 謝 辞

本試験の実施、また報告書の作成にあたり、原子力技術株式会社 深見 俊郎氏、大里 行弘氏、額賀 貞芳氏、小沼 康博氏、検査開発株式会社 佐藤 茂氏、燃料材料開発部照射燃料集合体試験室 試験グループの方々並びに関連部署で協力、御指導を頂いた方々に厚く謝意を表します。

7. 参考文献

- 1) 畔野 他、「常陽」MK-II制御棒の照射後試験-吸収ピンの特異変形挙動-
PNC ZN9410 92-031 (1992)
- 2) 木村 他、B,C中性子吸収材の照射挙動-「常陽」AMIR照射試験結果-
PNC ZN9410 91-171 (1991)
- 3) K.Aoto et al., Effects of Neutron Irradiation on Creep Properties of FBR
Grade 316 Stainless Steel
IWGFR Specialists Meeting (1993)
- 4) N.H.Packan et al., Effects of Radiation on Materials Volume I
14th International Symposium (1990)
- 5) 野崎 他、高速増殖大型炉の設計主要目に関する研究 (I)
制御棒B,Cペレットと被覆管の機械的相互作用の検討
PNC SN9410 87-120 (1987)