



「常陽」燃料溶融限界線出力試験の 照射後試験による評価

山本 一也 櫛田 尚也

大洗工学センター 照射施設運転管理センター 燃料材料試験部

Evaluation on the Power-To-Melt Test in "JOYO" with Post-Irradiation-Experiment

Kazuya YAMAMOTO

Naoya KUSHIDA

Fuels and Materials Division, Irradiation Center, O-arai Engineering Center

燃料溶融限界線出力評価に資するために、「常陽」ではじめて実施された燃料溶融限界線出力試験（PTM：Power-To-Melt 試験）に供せられた試験体の照射後燃料の試験方法を確立した。この中で、PTM 試験評価において決め手となる燃料溶融境界の判定は、金相組織観察に加えて Pu 濃度の分布分析を組合せることが非常に有効であることを示した。また、その試験結果と照射時の線出力分布からその燃料溶融限界線出力（炉内で燃料溶融が発生する線出力）は、ほぼ600～670W/cm の範囲にあることを示した。PTM 値に与える燃料ペレット密度の効果は過去の報告よりも大きいことが示唆されたが、燃料ペレット - 被覆管ギャップや O/M 比の依存性は明確には認められなかった。

The Power-To-Melt (PTM) test was performed in the experimental fast reactor "JOYO". In this study, the post-irradiation-experiment (PIE) technique for the PTM test was established and the PTM values were evaluated. Combination of metallographical observation with plutonium distribution analysis was very effective for the identification of once-molten fuel zone. The PTM evaluation found out that the PTM values were within 600-670W/cm for the most part and suggested that dependence of the PTM on the fuel pellet density was stronger than that of previous foreign PTM tests, while the dependence on the pellet-cladding gap and the oxygen-to-metal ratio was indistinctly.

キーワード

高速増殖炉，燃料，常陽，照射試験，照射後試験，燃料溶融，熱伝達，燃料温度，金相試験

Fast Reactor, Nuclear Fuel, JOYO, Irradiation Test, Post-Irradiation-Experiment (PIE), Power-To-Melt (PTM), Heat Transfer, Fuel Temperature, Metallography



山本 一也

照射燃料試験室所属
副主任研究員
燃料の設計、解析
評価及び照射後試験に従事



櫛田 尚也

照射燃料集合体試験室所属
副主任研究員
燃料の照射後試験、
照射後試験施設の
運転管理に従事

1. はじめに

高速炉燃料の設計において、制御棒誤引き抜きのような反応度投入型事象に対する燃料ピンの健全性判断基準は「燃料中心温度が融点未満であること」としている。燃料溶融の発生が直ちに燃料破損を引き起すものではないが、燃料設計では破損に対する余裕を取ってこれを健全性の判断基準としている。そのため、燃料中心温度の評価手法について、その妥当性を示すための検証データが必要である。このような検証データの取得方法として、実際に炉内において燃料溶融が発生するような線出力で照射し、照射後試験によって燃料ピン軸方向の燃料溶融発生範囲を調べ、燃料溶融が発生する限界線出力を評価する方法がある。このような照射試験は一般に燃料溶融限界線出力試験 (PTM: Power-To-Melt 試験) と呼ばれ、米国の EBR II 炉や FFTF 炉、オランダのペッテンにある HFR 炉等に先例がある^{1)~4)}。

「常陽」における燃料溶融限界線出力試験は、1985年頃から試験のための準備が開始され、当時の高速増殖実証炉研究における燃料仕様を想定して、その燃料溶融限界線出力値(以下、PTM 値)と各燃料仕様パラメータの感度を評価することを目的として企画された。この初めての PTM 試験は、1991年から1992年にかけて予備的な PTM 1 1 試験

と本試験の PTM 1 2 試験の 2 段階で実施された⁵⁾。本研究は、この PTM 1 2 試験について、照射後燃料の金相試験と機器分析を組み合わせた試験方法を確立するとともに、その PTM 値の試験評価値をまとめたものである。

2. PTM 1 2 試験

2.1 照射リグ構造

PTM 1 2 試験に供した試験体は「常陽」の B 型特殊燃料集合体であり、照射リグ内に 6 個のコンパートメントを有し、各コンパートメントには 4 本ずつ試験燃料ピンが収納されている。図 1 に試験体の照射リグ構造の模式図を示す。PTM 1 2 試験では、リグ中心の軸心管内にドジメータカプセル 3 個を装着したフラックスモニタ管を設置し、照射後に集合体中心の中性子フラックスを評価し、線出力値の校正に用いた。また、各コンパートメントの上部キャップに TED 温度モニタ管を設置して、各コンパートメント出口冷却材温度を測定し、被覆管温度計算値の補正に用いた。

2.2 試験パラメータ

PTM 1 2 試験の試験体の燃料ピンの主要仕様を表 1 に示す。燃料ピン外径や Pu 富化度等の燃料ペレット仕様は、PTM 1 2 試験企画当時の高速増殖実証炉の仕様に合わせて設定したものである。本試験体は試験パラメータを燃料ペレット密度、燃料ペレット - 被覆管ギャップ、O/M 比及びタグガスの有無とし、8 種類 24 本の燃料ピンで構成され

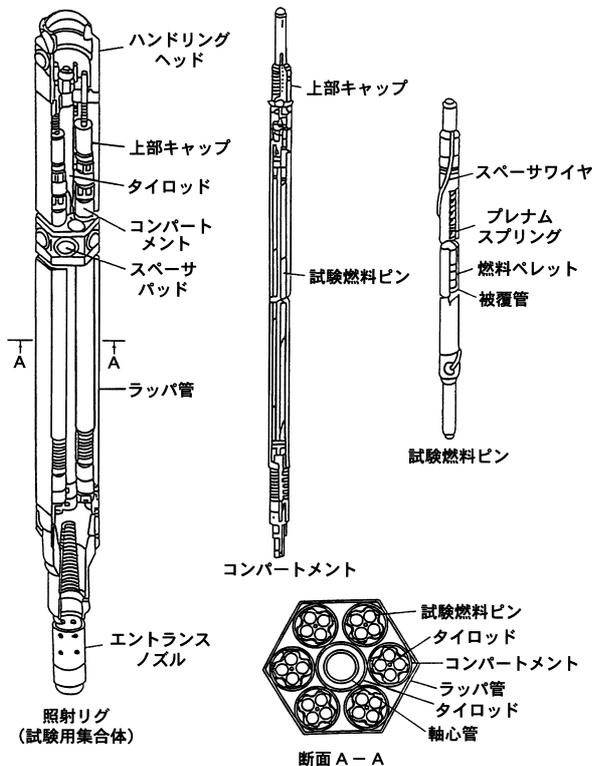


図 1 照射リグ構造

表 1 PTM 1 2 試験燃料ピン主要仕様

項目	仕様
1. 燃料ペレット	
(1) 材質	ウラン・プルトニウム混合酸化物
(2) Pu 富化度 (w/o)	20
(3) ウラン濃縮度 (w/o)	21
(4) ペレット形状	中実 / フラットエンド
(5) ペレット外径 (mm)	6.44, 6.49, 6.54
(6) ペレット高さ (mm)	9
(7) ペレット密度 (%T.D.)	92, 95
(8) O/M 比	1.96, 1.97, 1.98
(9) 燃料スタック長さ (mm)	550
2. 被覆管	
(1) 材質	PNC1520
(2) 外径 (mm)	7.5
(3) 肉厚 (mm)	0.4
(4) 燃料被覆管ギャップ (μm)	160, 210, 260 (直径)
3. 燃料ピン	
(1) 構造形式	上部プレナム
(2) 全長 (mm)	1698
(3) プレナム部長さ (mm)	865
(4) 充てんガス	He: 98000Pa

ている⁶⁾。各燃料ピンの試験パラメータの製造実績については、第4-2節の表2に示してある。

試験燃料ピン間のPu富化度の製造実績は、19.37wt%から19.50wt%の範囲にあり、燃料中心温度を決定する燃料融点等の物性値の観点からは同一と見なすことができる。燃料ペレット密度については、燃料ピン平均では91% T.D.のグループと95% T.D.のグループの二つに別れ、91% T.D.のグループでは平均91.3% T.D.、95% T.D.のグループでは平均94.6% T.D.であるが、91% T.D.のグループは95% T.D.のグループと比較するとばらつきが大きい。そのため、燃料ペレット個々で見ると、95% T.D.のグループでは同一ピン内の密度の差異が1.7~1.8%であるのに対し、91% T.D.のグループでは2.7~3.5%ある。燃料ペレット-被覆管ギャップは、燃料ペレットの外径研削により約140μm、約190μm、約250μmの3グループを設定した。ただし、前述した二つの密度グループの両方に共通しているのは190μmのグループだけである。同一ピン内の燃料ペレットの外径の変化は15μm以下である。O/M比は、製造上の制約から、91% T.D.のグループでは1.96と1.98、95% T.D.のグループでは1.97のみの設定となった。KrとXeの混合ガスから成るタグガスは、G801、G812、G812の3本の燃料ピンに装てんされている⁶⁾。

2.3 照射

PTM 1-2試験の照射は、1992年6月17日に実施

された。PTM 1-2試験は未照射の燃料に対する試験であり、海外のPTM試験との大きな違いは、出力上昇時における中間出力保持である。図2に海外で実施されたPTM試験とPTM 1-1、1-2両試験の出力上昇パターンの比較を示す。BakerらやMcCarthyらが報告しているEBR-IIのPTM試験では炉出力の90%付近で1時間ほど保持し¹⁾²⁾、Ethridgeらが報告しているFFTFのDEA-2試験では階段状に100%炉出力まで上昇させている³⁾。これに対してPTM 1-2試験では、核熱出力の校正のため、炉出力の50%付近で保持しただけで、その後直線的に100%炉出力まで上昇させている⁵⁾。100%炉出力の保持時間は、EBR-IIのPTM試験、FFTFのDEA-2試験等、海外で実施されたPTM試験と同様、10分としている。また出力の降下は手動スクラムで行った。

このような出力上昇方法を設定したのは、燃料組織変化が十分進行しない段階のPTM値を得るためであり、また、出力降下に手動スクラムを採用したのは、出力降下速度が遅いと一度燃料溶融した組織が再変化し、結果として照射後試験において燃料溶融の発生範囲を判定することが難しくなるので、これを防止するためである。

3. 照射後試験方法

3.1 燃料溶融割合

PTM 1-2試験は、最大燃料溶融割合を20%以下として照射条件を設定し実施した。ここで燃料溶

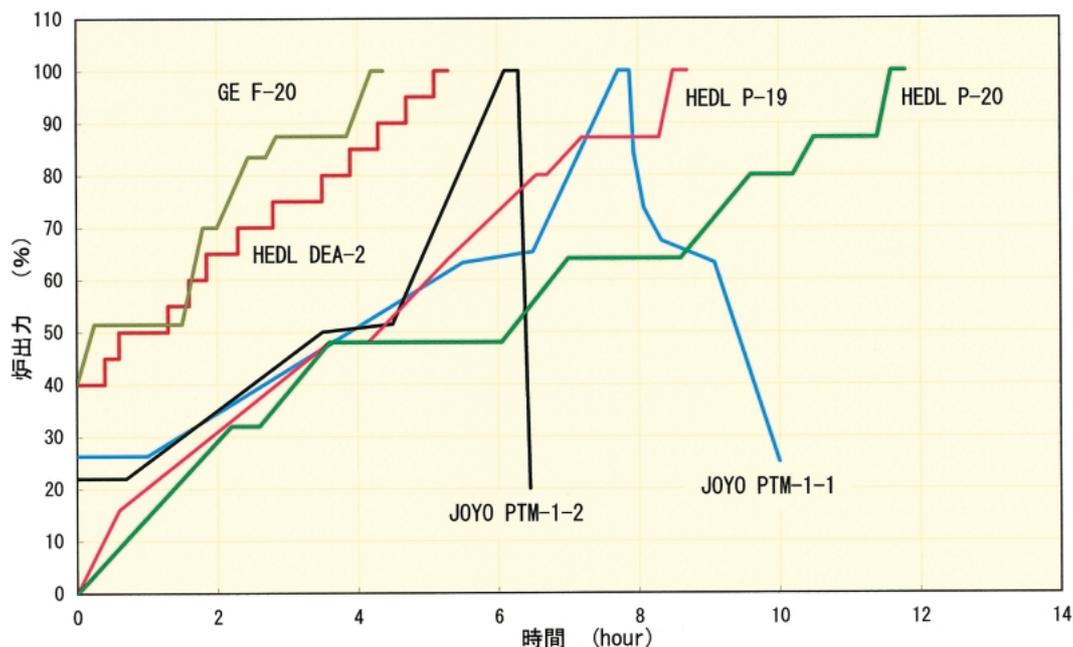


図2 PTM試験の出力上昇パターンの比較

融割合は、燃料ピンの横断面において、中心空孔を含む燃料溶融領域と燃料ペレットの面積比であり、燃料の固相線温度を超えた領域を溶融としている。

照射後試験は、まず燃料溶融割合を評価するため、光学顕微鏡によって一度溶融して再び凝固した燃料（以下、再凝固燃料）の組織観察を実施した。試料は、燃料ピン軸方向中心近くの燃料温度が最も高くなると考えられる線出力ピーク部位から横断面試料を採取し、研磨の後、光学顕微鏡によって燃料組織の金相観察を行った。いくつかの試料については更に化学腐食を行った後、燃料組織の観察を行った。

後述するように、PTM 1 2 試験では必ずしも金相組織の観察だけで再凝固燃料の組織であることを確認できない例があり、このような場合は照射燃料集合体試験施設の遮蔽型 X 線マイクロアナライザー (SXMA) を利用し、Pu の分布から再凝固燃料の範囲を調べる手法を用いた。使用した SXMA は、仏国 CAMECA 社製の CAMEBAX R を改造したもので、分析条件は、ビーム電圧 20kV、ビーム電流 50nA、ビーム径 1 μ m で、Pu の検出には M β 線を用いた。

3.2 軸方向燃料溶融範囲の評価

PTM 試験によって燃料溶融限界線出力値を評価するアイデアは、原子炉内において燃料ピン軸方向線出力分布がピーキングを持つことを利用して、燃料溶融が、線出力密度がピークとなる中央付近の限られた領域で発生するよう照射時の出力を調整し、照射後試験によって燃料溶融のピン軸方向範囲を求め、その軸方向の燃料溶融境界位置に対応した局所線出力値が PTM 値に相当するというこゝに基づいている。

燃料ピン軸方向の燃料溶融発生範囲を評価する試験技術上の課題は以下の 3 点である。

金相観察の試料を切断・採取する位置を決めるため非破壊試験で軸方向の燃料溶融範囲を推定すること。

再凝固燃料と未溶融燃料を判別すること。

再凝固燃料の存在範囲を基に炉内において最初に発生した燃料溶融の範囲（軸方向境界の位置）を推定評価すること。

そこで本研究では、¹ に対しては X 線ラジオグラフィーを利用し、照射後の燃料ピンの中心に形成されている中心空孔の変化に着目して燃料ピン軸方向の燃料溶融の範囲を推定することとした。

² に対しては、X 線ラジオグラフィーによる推定

に基づき、その近傍の燃料を切断、燃料ピン縦断面の金相試料を作製し、前述の燃料溶融割合に関する試験で得た知見を基に腐食後の金相組織観察から再凝固燃料を判別した。採取した試料中に再凝固燃料組織の境界が確認できない場合は、更にその上部あるいは下部から試料採取して確認した。観察倍率は 30 倍を基本とし、必要に応じて高倍率での詳細観察により確認した。³ の燃料溶融の発生範囲について第 4.3 節で詳細に述べるように、再凝固燃料の形状と範囲を基にして評価した。図 3 にこの照射後試験による PTM 値評価の方法を模式図で示す。

4. 照射後試験結果と評価

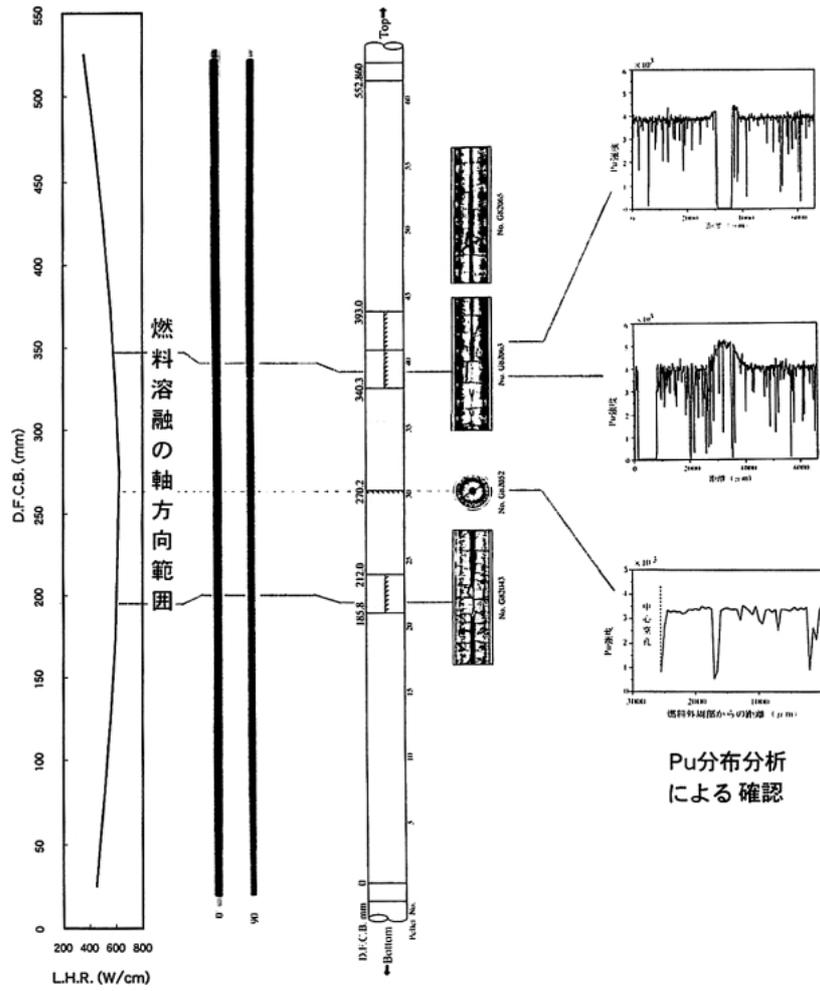
4.1 燃料溶融領域と判定方法

(1) 燃料組織の金相観察

燃料溶融割合を評価するため、線出力ピーク部位の横断面試料について金相組織観察を行った。研磨後と化学腐食後の横断面試料の金相組織の例を写真 1 に示す。この例の場合、通常燃料中心に形成されている中心空孔が完全に埋められて、研磨後の観察ではポアや小さなボイドが消失し、白く光った均一な組織（ポアフリー組織）として観察され、化学腐食後の観察ではこれが一度溶融したことを示す典型的な組織、いわゆる柱状組織あるいはデンドライト組織⁷⁾と、その周りを囲む結晶粒が著しく粗大化した組織の 2 領域から成ることが分かる。以降、ここでは前者を簡単にデンドライト組織、後者を粗粒化組織と呼ぶこととする。米国の Ethridge と Baker は、これを中心空孔のプラグニング (plugging) と呼び、溶融した燃料が中心空孔内で凝固したものと考えている³⁾。写真 1 に見られるように、化学腐食後の低倍率の観察では、粗粒化組織において通常の未溶融燃料組織との境界付近に円状のラインが観察される。Ethridge らは FFTF における DEA 2 試験において、このラインを再凝固燃料の境界の指標としているようである³⁾。高倍率観察ではこのラインは観ることができないことから、試料面上に緩いわずかな段差があり、低倍率の観察ではこれがラインとして見えたものと考えられる。

(2) 燃料組織の判定と Pu 濃度分布の利用

この粗粒化組織がデンドライト組織と同様に再凝固燃料の組織であることを確認するため、組織に生じている偏析に着目した。これは、試験燃料ピンはピン外周を流れる冷却材によって除熱されているから、炉停止後溶融した燃料の凝固はピン外周側から燃料中心に向かって進行するため、凝



線出力分布 X線ラジオグラフィ 金相組織の観察

図3 照射後試験によるPTM値評価方法

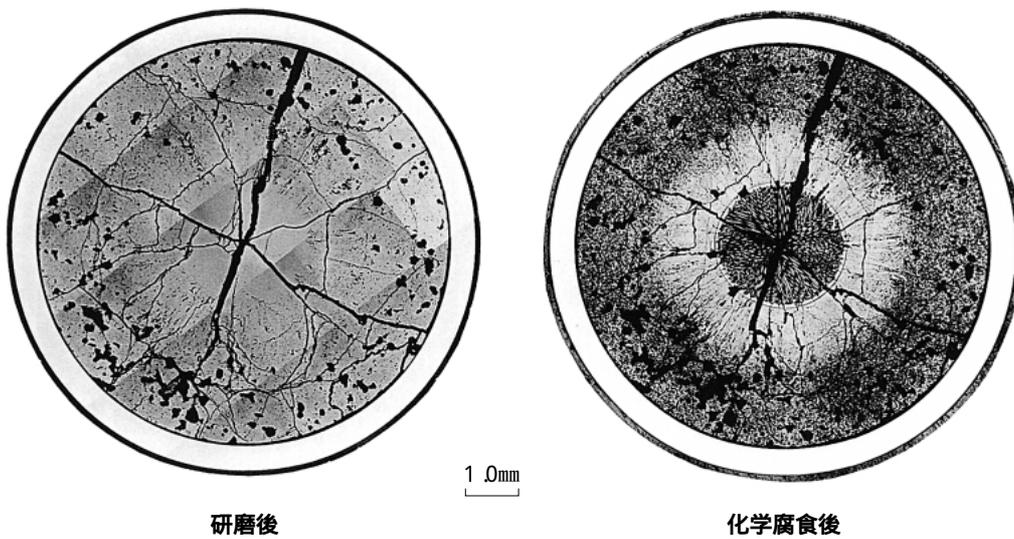


写真1 出力ピーク部の横断面金相組織の例 (試料No.80922)

固時に燃料中に含まれる成分が偏析すると考えられたからである。BakerらやEthrige, Freundら諸外国の研究者は、金相試験による燃料組織観察に加えて、オートラジオグラフィーを補助的に用いている¹⁾³⁾⁴⁾。主にPuの分布を知ることができる。オートラジオグラフィーは、燃料マトリックスのPu濃度が30wt%前後あるため、偏析による高々2～3wt%の濃度変化は不鮮明で利用できない。オートラジオグラフィーの場合、照射で生成されたRuの分布像を示すと考えられており、PTM 12試験のような未照射燃料のPTM試験のように生成量が極く微量であっても濃度変化の様子を知ることができる。しかしながら、照射済燃料のオートラジオグラフィーは、専用の試験設備が必要であること、処理の難しい放射性廃棄物の発生、更に後述するように熔融燃料が移動して残っていないようなケースでは役に立たないという欠点がある。

そこで、本研究ではSXMAを利用し、Puの分布から再凝固燃料範囲を調べる手法を用いた。すなわち、SXMAでは生成量の微量なRuは検出できないが、マトリックス濃度が20wt%程度あるPuであれば、2～3wt%の偏析による変化を検出することは容易であり、また金相写真との照合もオートラジオグラフィーよりも容易に、かつ新たな放射性廃棄物を発生させずに行うことができる。図4に粗粒化組織を中心に分析したPu分布の例を示す。この分析は、未熔融燃料組織から、中心空孔の周囲の dendroライト組織までPu強度をスキャ

ンしたもので、同様な分析をいくつかの試料に対しても実施した結果、未熔融燃料組織のPu濃度に対し、粗粒化組織で一度2%程低下し、デンドライト組織で数%上昇するという傾向を確認した。また、未熔融燃料組織から粗粒化組織にかけてPu濃度の低下の始まる位置は前述の円状ラインよりわずかに外周側となることが分かった。結晶粒内の更に詳細なPu濃度分布の分析結果を踏まえ、Pu濃度の変化と熔融燃料の凝固過程の関係について、次のようなモデルを考えた。すなわち、粗粒化組織の範囲まで熔融していた燃料が、シャットダウン直後の短時間では小さな冷却速度で燃料中心に向かって凝固し始めるが、温度が固相線の近傍であり、固相と液相の二相状態の中で、固相は液相中に含まれるPuを排出しながら燃料中心に向かって成長し粗大化した結晶粒を形成する。やがて冷却速度が大きくなると、結晶が十分に成長せずに凝固するようになり、デンドライト組織が形成される。そのため、粗粒化組織領域ではPu濃度が低下し、排出されたPuが集積されたデンドライト組織で高濃度となったと考えられる。

高速炉燃料では通常の定常照射燃料でも、燃料温度勾配や燃料物質の蒸発・凝縮過程によるPu再分布が発生する。しかし、これまでの「常陽」の短時間照射燃料を用いた試験の経験では、このような定常照射のPu再分布で観察されるPu濃度の低下領域は、PTM 12試験の粗粒化組織ほど著しいものではなく、また中心空孔周辺に生じるPu濃度の上昇は200～300 μ mの範囲でより緩慢に発生する⁸⁾。特に明瞭なPu再分布は、中心空孔が同時に形成されているところに特徴がある。このような特徴から、図4の例に示したようなPu濃度の変化は定常照射のPu再分布とは異なるものである。

(3) 燃料熔融領域の判定

これまでの結果から、金相観察で確認できる粗粒化組織までが再凝固燃料組織であり、腐食後の金相観察で見られる円状のラインは、粗粒化組織と燃料熔融の発生していない組織との境界よりわずかに内側となるが、その差は小さく、燃料熔融割合を評価するための判定という観点では、ほぼ一致すると見なしても評価精度上影響はほとんどないと考えられる。したがって、Ethrigeらがこの円状のラインを再凝固燃料範囲の指標としたことは妥当であったと考えられる。しかし、この円状ラインの領域そのものには特異な析出相は見られず、SXMAでも組成の変化は確認することができなかったことから、ラインとして観察される燃料面上の段差が化学腐食によってできる原因は明

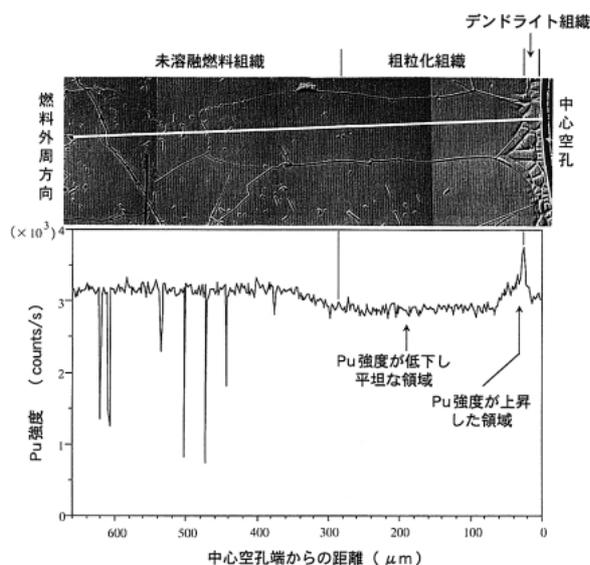


図4 粗粒化した組織付近のPu濃度分布の例(試料No. G82142) *写真中の白線は分析ラインを示す。

らかではない。

PTM 1 2 試験の多くの燃料ピンについては、金相組織観察によって線出力ピーク部位における再凝固燃料組織の範囲を確認することができたが、いくつかの試験燃料ピンでは、これを確認することができず、燃料組織からは通常の定常照射後の組織とほとんど区別できないものがあった。しかし、これらの燃料ピンについては、X線ラジオグラフィや軸方向の異なる位置における金相組織の観察によって、すべて燃料溶融が発生したことを確認している。このことから、これらの燃料ピンでも線出力ピーク部位で燃料溶融が発生したと考えるべきであり、これを確認するために、Pu濃度の分布を調べてみた。金相組織観察では再凝固燃料組織を確認できなかった例の金相組織と径方向のPu分布を図5に示す。この例の金相組織は、中心空孔が形成された通常の照射燃料の金相組織ときわめてよく似ているが、Pu分布は平坦であり、前述したような定常照射燃料で通常観察されるPu再分布は認められない。Pu再分布の発生メカニズムから考えて⁹⁾、中心空孔が形成されるような燃料温度条件ではPuの再分布が発生していないとは考えられないので、このような現象は燃料の溶融が関与しているものと考えられる。最も考えられる原因として、燃料が溶融する前に中心空孔が形成

され、通常のPu再分布を生じたが、その後再分布による高Pu濃度領域を含む燃料中心部に溶融が発生し、さらにその溶融燃料が重力等によって完全に下方に移動した結果、Pu再分布の生じていない未溶融燃料部分だけが残ったものと推定している。以上のような金相組織だけで判断できないケースの場合、オートラジオグラフィでは詳細な評価は困難であると予想され、Pu濃度分布の分析を金相組織観察と組み合わせることが再凝固燃料組織の判定には非常に有効である。

4.2 燃料溶融割合の評価

燃料溶融割合は、燃料ピンの部位の横断面金相観察によって、一度溶融して凝固した再凝固燃料組織の領域径を測定し、燃料ペレットとの面積比として算出した。その評価結果を表2に示す。なお、線出力ピーク部位で再凝固燃料組織の確認できなかった燃料ピンは、前述のように溶融燃料が完全に移動したものと考え、中心空孔径から燃料溶融割合を算出した。

PTM 1 2 試験の線出力分布は、関根、青山らが、中性子輸送モンテカルロコード MCNP による線出力分布計算結果を照射後の¹⁴⁸Nd生成量分析結果と⁹⁵Zrスペクトルの スキャン測定結果で補正することによって評価している^{10),11)}。本研究では、実

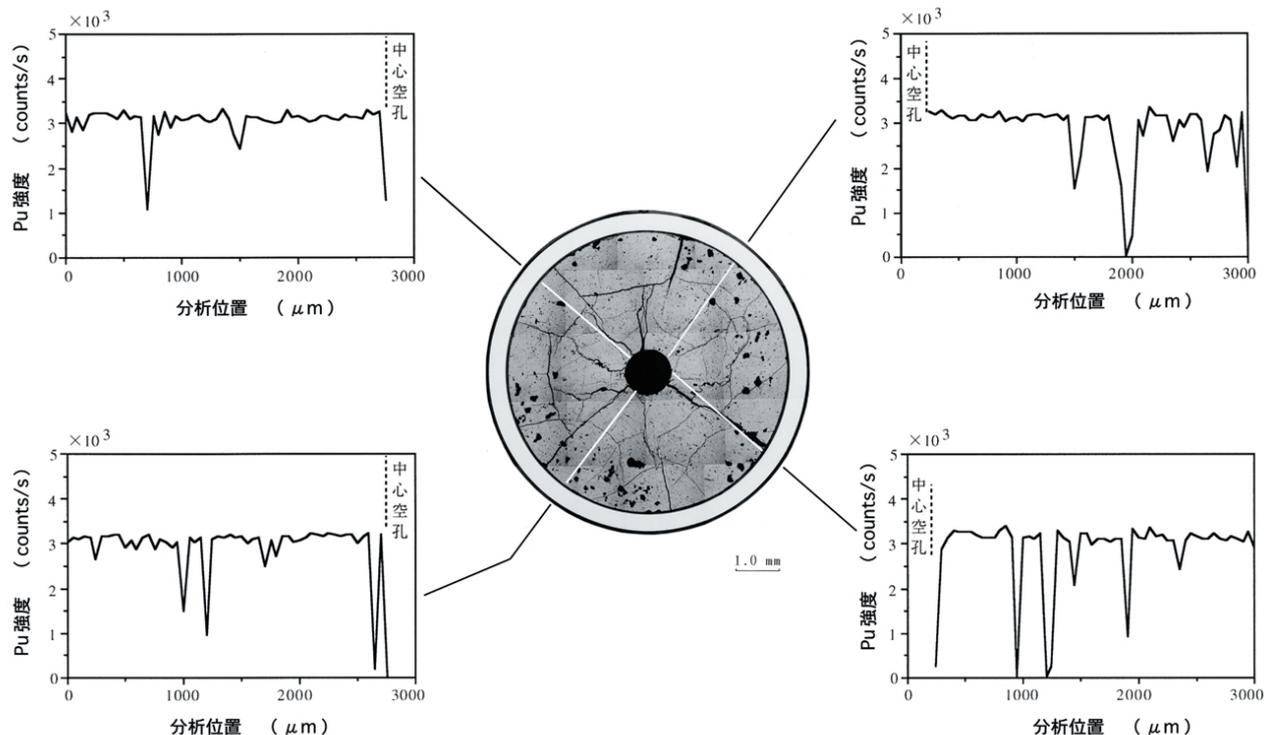


図5 再凝固燃料の組織が認められない例における金相組織と径方向Pu分布
*写真中の白線は分析ラインを示す。

表2 照射後試験によるピーク線出力位置における燃料溶融割合の評価結果

ピン番号 (wt%) [*]	Pu 富化度	O/M 比 [*]	タグガス	ペレット密度 (%TD) [*]	直径ギャップ幅 (μm) [*]	局所線出力 (W/cm)	燃料溶融割合 (%) ^{**}
G804	19.50	1.98		91.3	189	654	10.5
G818				91.2	186	667	3.4
G820				91.3	188	656	4.7
G822				91.2	187	662	3.0
G815	19.37	1.97		95.3	245	703	10.0
G819				95.1	246	670	7.4
G823				95.2	244	704	9.2
G802	19.50	1.98		91.4	133	676	3.6
G805				91.3	137	678	3.1
G807				91.4	137	671	4.5
G814				91.2	132	671	3.4
G824				91.4	133	671	3.0
G801	19.50	1.98		91.4	139	687	8.5
G813				91.5	136	677	2.3
G803	19.37	1.97		95.0	187	702	5.1
G806				94.9	188	681	7.7
G810				95.0	188	691	6.7
G812				94.8	186	694	6.7
G816	19.46	1.96		91.6	199	666	4.3
G817				91.5	202	676	7.2
G821				91.3	197	657	6.6
G808	19.46	1.96		91.3	139	677	2.7
G809				91.2	139	682	10.7
G811				91.4	139	671	8.5

* 製造時実績値。密度とギャップはピン装荷ペレットの平均値

**最大線出力位置 (約271mmD F.C.B.) における面積割合

際、金相観察位置に対応する局所（ピーク）線出力を彼らが評価した線出力分布を内挿して求めた。

24本の試験燃料ピンすべてについて燃料溶融が発生したことを試験によって確認し、ピーク線出力位置における最大燃料溶融割合は、G809ピンの10.7%で、条件として設定した最大値20%の約半分であった。燃料溶融割合が製造時の各燃料パラメータと局所線出力値の両方に依存するため、各試験燃料ピン同士の単純な比較は難しいが、本ピンを含む燃料密度91%TDのグループは、同じ燃料パラメータのグループ内で燃料溶融割合に大きな差が見られた。さらにX線ラジオグラフィにおいてピーク線出力位置以外で燃料溶融がより大きいと予想される部位が認められ、試験ではこれらについても確認し、最大の燃料溶融割合として11.8%を得た。これらはいずれも91%TDのグループに属しており、中心空孔の周囲に著しい再凝固燃料組織が観察された。これら燃料溶融割合の大きな部位では、線出力のより大きなピーク線出力位置よりも大きな燃料溶融割合を示しており、単に燃料溶融がそこで発生しただけではなく、その上方、あるいは下方から溶融燃料が移動し、局所的に燃料スミア密度を上昇させ、その結果局所線出力が高くなって、燃料溶融割合がさらに増加

するという、いわゆる二次溶融が発生した可能性が否定できない。実際、線出力ピーク部位で再凝固燃料組織が確認できず、溶融燃料が完全に移動したと考えられる燃料ピンの燃料溶融割合はいずれも3%前後であって、どれも小さめであり、また中心空孔周囲の再凝固燃料組織があまり大きくない試料でもこれと同程度の溶融割合と考えることができる。このことから、91%TDのグループの線出力ピーク位置における溶融割合は、二次溶融が発生しなければ、本来この程度であったものと推定される。

4.3 軸方向燃料溶融範囲の評価

第3.2節で述べたように、PTM値を得るためには、再凝固燃料の存在範囲から炉内において最初に発生した燃料溶融の軸方向範囲、すなわち燃料溶融境界の位置、を推定評価することが中心課題である。第4.2節で述べたように、炉内において中心空孔を通じた溶融燃料の移動が生じるため、最初に発生した燃料溶融の境界位置を決定するためにはこの溶融燃料の移動挙動を考慮して評価しなければならない。ここでは、金相観察に基づく溶融燃料の移動挙動の考察とそれに対応した燃料溶融境界位置の評価方法及びその結果について述

べる。

(1) 溶融燃料の軸方向移動の分類

X線ラジオグラフィと縦断面金相試料の観察から、ピン軸方向燃料溶融範囲の境界付近においても溶融燃料が中心空孔を通じて上下に移動することを確認し、その移動形態を、ピン上部側の燃料溶融境界で2種類、ピン下部側の溶融境界で1種類に分類した。すなわち、図6に示すように、ピン上部側の燃料溶融境界では、溶融燃料が完全に落下し、溶融したことを示す再凝固燃料組織がほとんど観察できないケース(図中1(1))と、溶融燃料が中心空孔内に閉じ込められたガスの圧力等によって押し上げられ、プラグングを形成したケース(図中1(2))があり、ピン下部側の燃料溶融境界では、溶融燃料が落下し、中心空孔内にプラグングを形成したケース(図中2)である。燃料の溶融範囲を判定するには、これらの溶融燃料の移動形態に応じた方法により評価する必要がある。図6に本研究で採用した判定方法を図示するとともに、以下に縦断面金相組織と溶融範囲の境界判定の例について述べる。

(2) 溶融燃料が完全に落下したケース

ピン上部側の溶融燃料の縦断面金相組織と判定

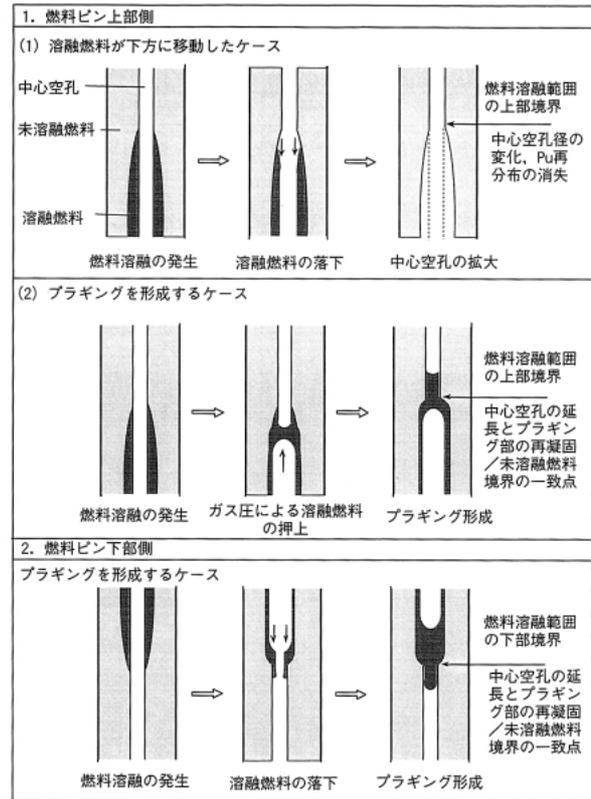


図6 溶融燃料の典型的な移動形態と燃料溶融発生範囲の判定方法

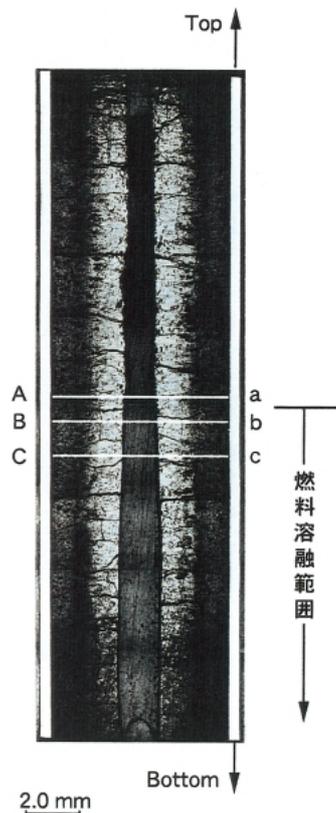
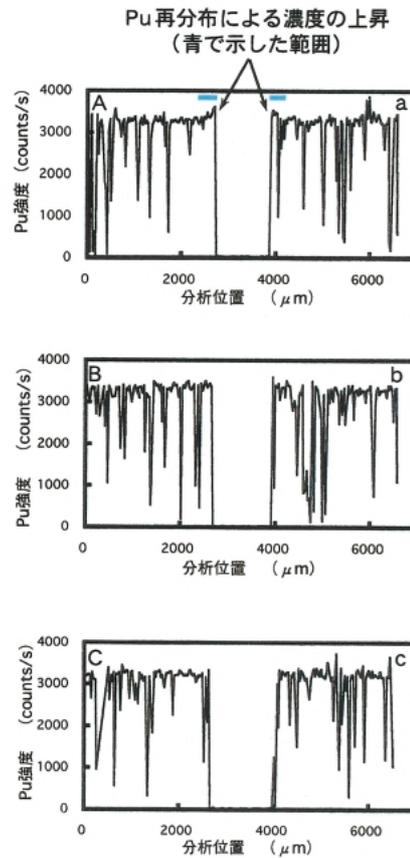


図7 溶融燃料の落下した例の金相組織と溶融境界近傍のPu濃度分布(試料No. G804312)



の例を図7に示す。この例では、再凝固燃料組織はまったく観察できない。しかし、この試料中央付近より下部側では、中心空孔径が次第に拡大し、またその内面も上部側と違って滑らかであり、さらにこの試料採取位置の下方で燃料プラグングが形成されていることがX線ラジオグラフィで確認できた。このことから、この試料中央付近から下方の範囲で燃料溶融が発生したことが示唆される。このような組織は、図5に示した再凝固燃料組織が確認できなかった横断面金相組織とよく似ており、溶融した燃料が完全に落下したため、再凝固したことを示す燃料組織が残らなかったものと推測される。それを確認するために、図5の例と同様に、この縦断面試料のPu濃度分布を調べた。その結果を図7の右に示す。同図中のA aより上方では中心空孔の周囲で通常の定常照射燃料で見られるPu再分布によるPu濃度の上昇が認められるが、その下のB b、あるいはC cより下方では

Pu分布は平坦である。このことから、この例ではA aとB bの間に燃料溶融が発生した境界があると考えられ、更にPu濃度分布の分析を詳細に実施して燃料溶融の境界位置を判定した。このような詳細な燃料溶融境界の評価は、従来の金相組織観察とオートラジオグラフィでは困難であり、上記の結果は、PTM試験の照射後試験においてX線マイクロアナライザーを利用したPu濃度分布の分析を実施することが非常に有効であることを示している。

(3) 溶融燃料がプラグングを形成したケース

ピン上部側で溶融燃料がプラグングを形成したケースとピン下部側でプラグングを形成したケースは溶融燃料の移動方向が異なるだけで、溶融境界位置の判定方法は基本的に同じである。図8にピン下部側においてプラグングが形成されたケースの縦断面金相組織と判定の例を示す。この溶融燃料プラグングでも、前出の写真1に示した横断

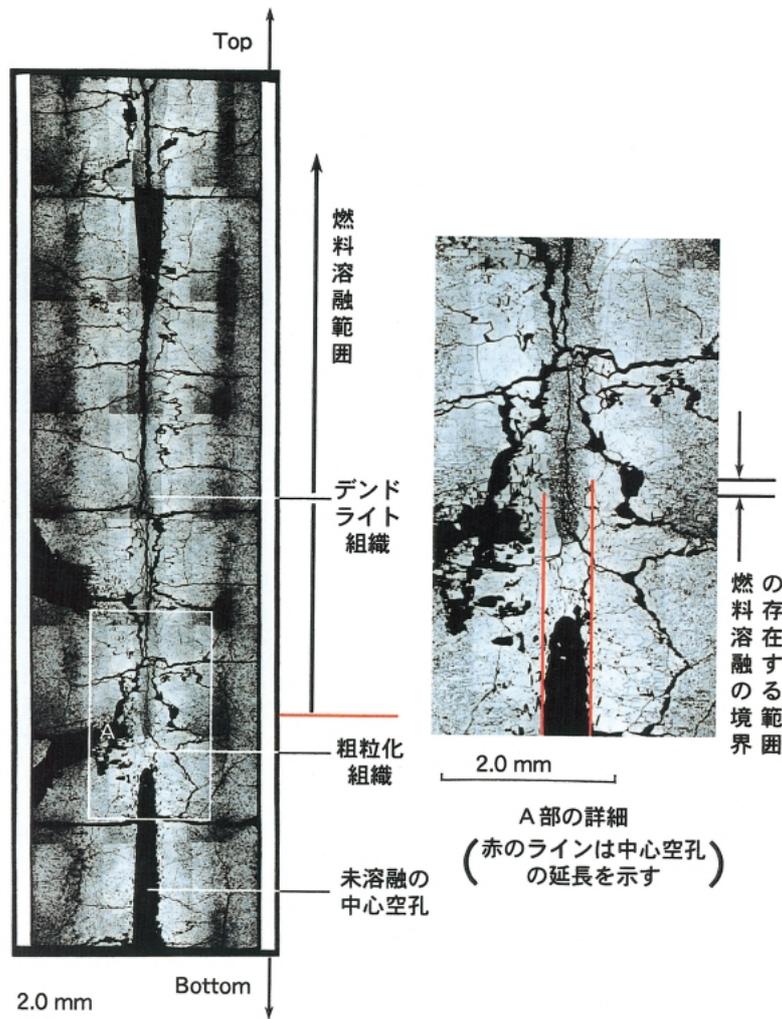


図8 ピン下部において形成された溶融燃料プラグングと溶融境界の決定方法（試料No.G823321の例）

面金相組織と同様に、デンドライト組織の周囲に結晶粒の粗粒化組織が形成され、その粗粒化組織と通常の未熔融燃料組織の境界付近にラインが観察された。この試料では熔融燃料ブラギングの下方に未熔融の中心空孔が認められることから、この部位から上方で燃料熔融が発生し、重力によって熔融燃料が落下し、ブラギングを形成したと考えられる。このようなケースでは、ブラギング部に最も近い未熔融部の中心空孔径を基準に、それをブラギング部に延長し、これが再凝固燃料組織と未熔融燃料組織の境界と交わる点を燃料熔融範囲の下部境界とした。この方法は、Baker や Ethridge が PTM 試験の評価を行なった時に採用した手法と同じである¹⁾³⁾。前述したように、再凝固燃料組織と未熔融燃料組織の境界は、粗粒化組織と通常の未熔融燃料組織の境界付近で観察されるラインを指標としても熔融境界の位置の決定にはほとんど問題はない。ただし、実際の金相組織観察ではこのラインが判別できない場合も多く、このような時は図4に示したような Pu の濃度分布を基に再凝固燃料の範囲を確認した上で上記の方法を適用した。ピン上部側の熔融燃料がブラギングを形成したケースは、やはりブラギングの上方に通常の定常照射燃料と同じ中心空孔が存在していることから、この部位から下方で燃料熔融が発生し、熔融燃料が下方から上昇してブラギングを形成したものと考えられる。一部のケースでは中心空孔内に丸みを持った空洞がブラギング中に形成されている等、熔融燃料中にガスが泡となって存在していたことを示唆している例があった。PTM 1 2 試験は未照射燃料を用いた非常に短い時間の照射であるから燃料ペレット内に包蔵されていたガスは少ないと考えられるが、このような金相観察結果から、製造段階でポアに閉じ込められていたガスが燃料熔融と同時に放出され、ピン上部側の燃料熔融範囲境界付近から落下してきた熔融燃料を押し上げたものと考えられる。

前述したピン上部側あるいは下部側で熔融燃料がブラギングを形成したケースに対する熔融境界位置の判定方法は、その近傍の未熔融部の中心空孔径を基準にするので、ブラギングを形成する熔融燃料が下方あるいは上方に移動していたとしても、その燃料熔融量や移動距離が小さくならない。もし燃料熔融量が多いと二次熔融が発生し、最初に形成された熔融 / 未熔融燃料境界が変化し判別できなくなる。また、中心空孔内のガスの圧力により熔融燃料が大きく移動したようなケースでは照射後試験で最初に熔融した境界の位

置を判定することは不可能である。ただし、このような場合、熔融燃料は必ず線出力の低い燃料ピンの上下端方向に移動することから、正確な熔融境界の位置を決定できなくても、PTM 値がそれより下回ることはない下限の値は評価できるので、この下限値の評価を実施した。

4.4 燃料熔融限界線出力の評価

第4.3節に述べた方法によって評価した燃料熔融境界の燃料ピン軸方向位置とそれに対応した局所線出力値、すなわち燃料熔融限界線出力値 (PTM 値) を表3に示す。局所線出力は、第4.2節で述べたように、関根、青山らが MCNP コードによる解析値を照射後試験結果で補正することによって得た線出力分布^{10),11)}を用い、燃料熔融境界位置について内挿して求めた値である。また、燃料熔融量あるいは移動量が大きく、熔融境界の位置が判定できなかったケースは下限値として不等号を用いて示している。

評価の結果、PTM 1 2 試験で得られた PTM 値は、ほぼ600~670W/cm の範囲であった。

表3に示した PTM 値の誤差は、線出力分布の持つ誤差と熔融境界位置にかかわる誤差が要因として考えられる。前者は、青山らの評価によると、統計誤差として16W/cm (1σ) 以下、原子炉熱出力に係る系統誤差として8W/cm (1σ) 以下である¹¹⁾。一方後者は、熔融境界位置判定できなかったケースを除けば、再凝固燃料組織境界を判定するときの不確かさが最大3.1mm (1σ) あり、線出力値の誤差としては4W/cm 以下である。

PTM 値と製造時の燃料パラメータ、すなわち燃料ペレット - 被覆管ギャップ、燃料ペレット密度、O/M 比、の関係を図9に示す。熔融境界位置が判定できなかったケースについては下限値を示している。

図9から、高密度の94.5~95.5% T.D. のグループ (以下95% T.D. のグループとする) と低密度の90~93% T.D. のグループ (以下91% T.D. のグループとする) の PTM 値はいずれも燃料ペレット - 被覆管ギャップに対する明確な依存性を示していない。特に、95% T.D. のグループはギャップの依存性がほとんど見られない。これに対して、Baker あるいは Ethridge らの PTM 試験結果は、燃料ペレット - 被覆管ギャップの増加による PTM 値の低下をはっきりと示している¹⁾³⁾。これらの試験に比較して PTM 1 2 試験では、燃料ピン径が大きく、相対的にペレット - 被覆管ギャップが小さいこと、また金相観察の中には中心空孔径が局所的に縮小

表3 燃料溶融境界位置と溶融限界線出力の評価結果

ピン番号	Pu 富化度 (wt%)*	O/M 比*	タグ ガス	溶融境界 位置	ペレット 密度* (%T.D.)	直径ギャップ幅 (μm)*	溶融境界 (mm)*		溶融限界線出力 (W/cm)*	
							D.F.C.B.	不確かさ	線出力値	不確かさ
G804	19.5	1.98		Bottom	90.82	193	>149.6	-	>615	-
				Top	90.24	193	313.1	1.7	639	17
G818				Bottom	92.06	195	165.0	0.8	639	23
G820				Bottom	91.20	189	196.4	0.2	646	23
				Top	92.18	190	348.7	0.9	616	22
G822				Top	90.51	191	345.4	0.5	625	22
G815	19.37	1.97		Bottom	95.49	249	>128.4	-	>641	-
				Top	95.08	249	369.0	1.5	641	23
G819				Bottom	95.08	249	>134.5	-	>617	-
				Top	95.06	250	362.4	0.9	617	17
G823				Bottom	95.01	246	157.4	1.0	668	24
				Top	95.14	248	<376.7	-	>633	-
G802	19.5	1.98		Bottom	90.76	143	>163.8	-	>646	-
				Top	91.96	141	<364.1	-	>621	-
G805				Bottom	91.22	138	>194.4	-	>667	-
				Top	91.25	139	<336.3	-	>647	-
G807				Bottom	90.65	140	187.4	1.7	656	24
				Top	91.15	139	<344.4	-	>634	-
G814				Bottom	92.13	143	>176.0	-	>650	-
				Top	90.31	144	348.8	0.7	630	23
G824				Bottom	91.07	139	180.5	0.9	652	24
				Top	91.43	141	<354.9	-	>625	-
G801	19.5	1.98		Bottom	90.27	138	168.2	1.0	660	18
				Top	91.75	138	359.1	1.0	636	17
G813				Bottom	91.62	137	>146.0	-	>633	-
				Top	91.18	136	366.6	3.0	620	22
G803	19.37	1.97		Bottom	95.08	187	>161.1	-	>669	-
				Top	94.70	185	342.5	0.9	665	18
G806				Bottom	94.97	187	>158.1	-	>647	-
				Top	94.89	184	359.3	2.4	630	23
G810				Bottom	95.04	186	>164.1	-	>661	-
				Top	95.00	187	<369.1	-	>630	-
G812				Bottom	94.89	188	>159.2	-	>660	-
				Top	95.17	189	365.8	0.4	636	17
G816	19.46	1.96		Bottom	91.40	194	>127.9	-	>607	-
				Top	90.30	195	<374.9	-	>601	-
G817				Bottom	91.81	196	135.0	3.1	622	23
				Top	93.14	191	388.0	2.9	596	21
G821				Bottom	90.51	195	145.6	1.6	614	22
				Top	91.35	197	366.4	0.8	601	22
G808	19.46	1.96		Top	91.79	142	<366.9	-	>619	-
G809				Bottom	91.41	144	>150.3	-	>642	-
				Bottom	91.45	145	165.9	0.5	643	23
G811				Top	90.22	143	375.6	0.4	605	22

*製造実績値 **不等号は真値の存在する範囲の限界値、不確かさは1 σ の信頼限界を表す。

しているケースがあること等、炉内でギャップが閉じていた可能性が示唆されている。もし炉内でギャップが閉じていれば、PTM 値の製造時ギャッ

プの依存性は非常に小さくなるものと考えられる。

燃料ペレット密度については、ギャップ幅約190 μm における95%T.D.のグループ(O/M比1.97)

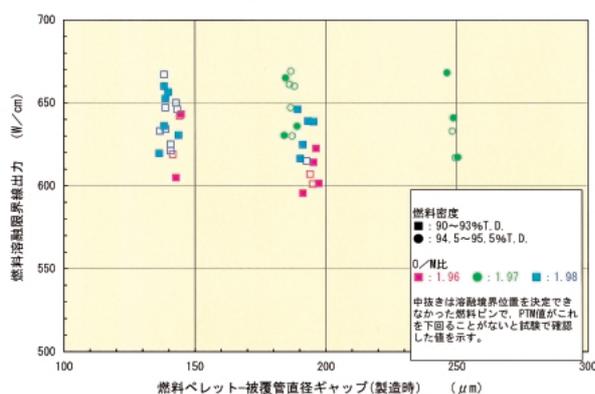


図9 燃料溶融限界線出力と燃料パラメータの関係

と91% T.D.のグループ(O/M比1.98)のPTM値を比較すると、データのばらつきはあるが、密度の高い95% T.D.のグループの方が20~30W/cm程高くなっている。燃料ペレット密度の上昇に対してPTM値は一般的に上昇するが、EthrigeらのDEA 2の結果³から、O/M比の違いを考慮してこの密度の差の効果を評価すると10W/cm程の上昇と予測される。したがって、PTM 1 2試験ではより密度の効果が大きく現れている。このような違いは、第2 3節で述べたように、PTM 1 2試験が燃料組織変化があまり進行しない段階で燃料溶融を発生させるという特徴的な出力上昇方法で行われたことに起因しているものと推定される。

燃料ペレットのO/M比については、データ点数が限られている上にばらつきが大きく、明確な依存性は確認できない。しかし、91% T.D.のグループのギャップ幅約190μm付近のデータを見ると、O/M比1.98のPTM値に対して1.96では30W/cm程低くなっている。O/M比は、燃料ペレットの熱伝導率を変化させると同時に、熱膨張率を変化させペレット-被覆管ギャップに影響を及ぼすため、PTM値の依存性は単純ではない。Ethrigeらは、DEA 2試験でO/M比の差に対してPTM値の差は一定ではなく、ギャップ幅によって変化することを報告している³。本研究における結果では、そのようなギャップ幅の依存性は認められなかったが、ギャップ閉塞にかかわる挙動がDEA 2試験燃料と異なっており、そのためにこのような結果が得られたものと考えられる。

さらに被覆管内面温度差、タグガスに対するPTM値の依存性は、過去に報告されているPTM試験に比べて、いずれも明確には認められなかった。このことが、PTM 1 2試験が特徴的な出力上昇方法で行われていること、あるいは炉内においてギャップが閉じていた可能性と関連があるかど

うかは現在のところ不明である。

5. おわりに

本研究は、高速炉燃料設計における燃料温度評価手法の開発に資するため、「常陽」における初めての燃料溶融限界線出力試験PTM 1 2において、その照射後試験の方法を確立するとともに、試験結果から炉内で燃料溶融が発生する線出力、すなわちPTM値、の評価を行ったものである。

本研究において、PTM試験評価において決め手となる燃料溶融境界の判定は、金相組織観察に加えてPu濃度の分布を組合せることが非常に有効であることを示した。また、評価の結果、線出力ピーク部位における最大燃料溶融割合は10.7%であり、PTM値は、ほぼ600~670W/cmの範囲にあることを示した。PTM値に与える燃料ペレット密度の効果は過去の報告よりも大きいことが示唆されたが、燃料ペレット-被覆管ギャップやO/M比の依存性は明確には認められなかった。現在、ギャップ閉塞の挙動などについて解析コードによる評価を進めており、その結果によって上記について確認できるものと考えられる。

参考文献

- 1) R. B. Baker and R. D. Leggett: "Early in Life Thermal Performance of UO₂ PuO₂ Fast Reactor Fuel", International Conference on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, CA, U. S. A., P. 258 (1979)
- 2) W. H. McCarthy, D. R. Jedlovec, et al.: "The Influence of Design and Operating Parameters on Mixed Oxide Fuel Power To Melt", International Conference on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, CA, U. S. A., P. 268 (1979)
- 3) J. L. Ethridge and R. B. Baker: "Thermal Performance of Fresh Mixed Oxide Fuel in a Fast Flux LMR", The 8th. International Heat Transfer Conference, San Francisco, CA, U. S. A., P. 2485 (1986)
- 4) D. Freund, D. Geithoff, et al.: "Evaluation of the power to melt experiments POTOM", J. Nucl. Mater. 204 (1993) 228.
- 5) 籠田栄一, 北村了一 他: "「常陽」における照射技術 燃料設計限界に係わる限界照射技術", 日本原子力学会「1994年秋の大会」, P. 4.
- 6) 山本一也, 榎田尚也 他: "高速炉用混合酸化物燃料の溶融限界線出力評価", JNC TN9400 2000 029 (1999).
- 7) 大野篤美, "新訂金属凝固学", 地人書館, (1982).
- 8) 石井徹哉, 根本潤一 他: "Pu再分布挙動評価手法の高度化", JNC TN9400 2000 045 (2000).
- 9) D. R. Olander: "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", NTIS TID26711 P1, P. 166 (1976)
- 10) 関根 隆, 北村了一 他: "MCNPによる高速炉用MOX燃料の線出力密度の解析精度向上", JNC TN9400 2000 071 (2000).
- 11) 青山卓史, 関根 隆 他: "高速炉用MOX燃料の溶融限界線出力密度の高精度評価", 日本原子力学会「2001年春の年会」, K17.