

JAERI-M

5 7 2 2

二酸化ウランペレットにおけるレンズ状  
ボイドの移動挙動と生成機構

1974年5月

菊地 章・飛田 勉

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

二酸化ウランペレットにおけるレンズ状ボイド  
の移動挙動と生成機構

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

菊地 章, 飛田 勉

(1974年5月10日受理)

内側高密度, 外側低密度の $UO_2$  2重ペレットが焼結法によって調製され, 中心加熱実験を行なうことによってレンズ状ボイドの移動挙動が解析された。さらにレンズ状ボイドの生成機構を解明するための実験が行なわれ, 同ボイドの生成-安定機構として応力誘導-蒸発凝固理論が提唱された。

Migration Behaviour and Formation Mechanism of  
Lenticular Voids in  $UO_2$  Pellet

Akira KIKUCHI and Tutomu TOBITA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

( Received May 10, 1974 )

$UO_2$  double pellets, which compose of inner high dense and outer low dense  $UO_2$ , were prepared by sintering, and central heating experiments were performed for analysing the migration behaviour of lenticular voids. Furthermore, stress heating experiments were carried out to make clear the formation mechanism of the void, using special samples; as the result, stress-induced and evaporation-condensation mechanism is proposed.

## 目 次

1. 序 論	1
2. レンズ状ボイドの移動挙動	2
2.1 実 験	2
2.1.1 試 料	2
2.1.2 中心加熱装置	2
2.1.3 中心加熱実験	2
2.2 結果および検討	2
2.2.1 結 果	2
2.2.2 検 討	3
3. レンズ状ボイドの生成-安定機構	4
3.1 応力誘導-蒸発凝固プロセス	4
3.2 応力加熱実験および結果	5
4. 結 論	6
5. 謝 辞	7
参 考 文 献	7

## 1. 序 論

二酸化ウラン燃料はその照射特性（スウェリング，FPガス放出など）の良いことから軽水炉あるいは高速炉用燃料として広く使用されている。燃料には経済上の観点から高い熱出力および融点ぎりぎりまでの温度条件が課せられるが，二酸化ウランの大きな欠点である低熱伝導度特性のため高い温度勾配分布をまぬがれることができない。過去における多くの情報にみられるように，二酸化ウランの熱伝導度はその結晶組織あるいは製造仕様によって一桁も二桁も異なり，これが原子炉用燃料の設計に大きく影響している。初期装荷の燃料仕様が炉内装荷後の照射初期に変化するものであれば経済上あるいは安全上大きな問題となる。前述の二酸化ウランにおける高い温度勾配分布が燃料仕様を変化させることは充分想像できることで，また現に炉外および炉内実験をとおしてその現象が観察されてきた。

核分裂ガスを保持させるため二酸化ウラン燃料の密度を低くとり燃料内部に比較的多量の気孔を含ませることが一般に考慮され，実施されている。この燃料が高温度かつ高温度勾配下におかれたとき生じる典型的な現象はレンズ状ボイドの高温側への移動である。炉外，炉内実験を含めてレンズ状ボイドの移動に伴なり柱状晶の形成が観察されている。Fig. 1は $UO_2$ 圧粉体を中心加熱したときに生じたレンズ状ボイドと柱状晶の生成を示した我々の実験の一例であるが，これにみられるように組織の変化は相当著しいものである。 $UO_2$ 圧粉体におけるこの様な現象は特殊な例であるとして，実用範囲の仕様における $UO_2$ の場合，どの程度の組織変化を生じるか，また，レンズ状ボイドの移動に伴って核分裂生成物がどの程度高温側に移動するか，などに関連したレンズ状ボイドの移動現象を把握する必要性が生じてくる。

過去，D. R. Dehalas<sup>(1)</sup>やF. A. Nichols<sup>(2)</sup>らによりレンズ状ボイドの移動機構が検討されている。彼等の提唱する蒸発-凝固の機構を直接実験によって正確に確認した例は未だ報告されていないようである。この研究の目的は二酸化ウランペレット中のレンズ状ボイドの移動速度を実際に観察することである。 $UO_2$ 圧粉体の例にみられるように一つのレンズ状ボイドに着目しても，その始点および終点が明らかでなく，従って移動速度を求めることが不可能であり，温度勾配方向のどの位置にレンズ状ボイドが発生したかを定めることができない。そこでこの実験においてはその始点を明確にするために $UO_2$  2重ペレット（内側高密度，外側低密度）を調製して使用している。すなわち 低密度領域で発生したレンズ状ボイドを移動媒体としての高密度領域に移動させることによって，ボイドの始点および終点を明白にさせた。

レンズ状ボイドは約1800℃以上の温度領域において観察されるが，ボイドの特殊な形状の生成機構を解析することは，ボイドの移動挙動をより深く理解する上で非常に重要であり，さらに興味の対象でもある。過去，D. R. De Halas<sup>(3)</sup>やF. A. Nichols<sup>(4)</sup>によってその説明が行なわれているが，いずれにしてもレンズ状ボイドの生成，安定機構を十分に説明しうるに至っておらず，定説の無いのが現状である。本報告の第2の内容は彼等と異なる説明を提唱することで，理論と実験とに基づいて1つの機構が考えられた。

## 2. レンズ状ボイドの移動挙動

### 2.1 実験

#### 2.1.1 試料の調製

序論に寸言したようにこの実験の特色は、 $\text{UO}_2$  2重ペレットを使用することにある。ペレットは外側ペレットと内側ペレットの2重構造をしている。外側ペレットは外径14.0mm、内径8.8mmの寸法で、密度約56% T. D (理論密度)の多孔質性 $\text{UO}_2$ である。内側ペレットは外径8.8mm、内径4.0mmで、その密度約95% T. Dの焼結体 $\text{UO}_2$ である。Fig. 2に $\text{UO}_2$  2重ペレットの外観写真を示す。 $\text{UO}_2$  2重ペレットは次のような方法で調製された。プレス機の試料台の中心にセンタレスグライディング仕上げで加工して作った内側ペレットが置かれ、この周囲に外側ペレット用 $\text{UO}_2$ 粉末が充填された。約4 ton/cm<sup>2</sup>の圧力で外径16mmの2重圧粉体が作られ (Fig. 2(a))、次いで1200°C、約 $1 \times 10^{-1}$  mmHgの真空雰囲気中で、2時間の仮焼結が行なわれた (Fig. 2(b))。2重ペレットの外側-内側境界は外側 $\text{UO}_2$ の収縮によってほとんど完全に密着し、理想的な試料を製造することができた。

#### 2.1.2 中心加熱装置

$\text{UO}_2$  2重ペレットは中心加熱装置によって中心加熱され、試料内に急激な温度勾配が与えられた。中心加熱装置の構成をFig. 3に示す。試料の中心には直径3mmのタングステンヒーター棒が上下水冷電極によって垂直に固定されている。試料にはその異密度境界面まで直径約1mmの孔が水平に明けられており、装置の両側に設けた観測孔をとおして、試料表面および界面の温度が光高温計によって測定される。加熱実験は約300 cc/minのAr雰囲気中で行なわれた。

#### 2.1.3 中心加熱実験

Table. 1に実験用試料および中心加熱条件を挙げる。全ての実験において $\text{UO}_2$  2重ペレットの境界温度が約1800°Cになる様にヒーター熱出力が制御された。内側ペレットの内面温度の測定は不可能であったため、この温度は別に行なった実験によって得られた内側ペレットに対する熱伝導度より計算で求めた。加熱実験は7回実施されたが、内2回はペレットに破損が生じ、失敗に終わっている。中心加熱終了後の試料外観写真は先のFig. 2(c)に示されている。これにみられるように、外側多孔質 $\text{UO}_2$ ペレットは焼結が進み寸法が収縮していた。また熱応力による径方向クラックも存在していた。Fig. 4に2重ペレットの加熱後断面における観察写真を示す。試料DP-Aおよび-Cでは境界面が未だ残って観察されたが、他の試料(DP-D, -Fおよび-G)ではそれが消失している。

### 2.2 結果および検討

#### 2.2.1 結果

DP-A試料では内側焼結体へのボイド移動は観察されなかった。これは温度の低いことと短時間加熱 (Table. 1 参照) の理由によるものと思われる。

観察の典型的な例としてDP-F試料における組織をFig. 5に示す。これによると高、

低密度境界面が明らかに示されており、境界面に発生したレンズ状ポイドは高密度内側ペレットの内部方向に約650ミクロン移動したことが判る。さらに、DP-C, -Dおよび-G各試料における組織の1例をFig. 6に挙げる。各写真における先端ポイド位置を統計処理によって求め、また境界面の消失している場合には初期における境界面を寸法測定より求めることにより各試料におけるレンズ状ポイドの移動距離が決定された。その結果をTable 2に挙げる。

### 2.2.2 検 討

D. R. De. Halas<sup>(1)</sup>はレンズ状ポイドの移動について理論的考察を行ない、レンズ状ポイドが真空である場合について蒸発-凝固機構による移動速度を導出している。やゝ遅れてR. A. Nichols<sup>(2)</sup>はポイド内が真空では無く気体で充満されている場合を想定し、高温面からの蒸発 $UO_2$ 分子の気体中拡散を考慮した上での移動速度を導出している。両者の理論展開および結論をTable. 3にまとめた。なお同表下欄には本実験に用いた試料で考えられうる数値も示されている。

Table. 3よりレンズ状ポイドの移動速度を計算した結果をTable. 4に示す。またTable. 2およびTable. 4の結果を図化してFig. 7に挙げる。各 $UO_2$  2重ペレットにおけるレンズ状ポイドはその異密度境界面(温度 $T_B$ )より移動を始め、ポイドはその先端部(温度 $T_T$ )まで進んだ状態にあり、従って同図では横軸の温度として $T_B \sim T_T$ 直線で表示されている。○印の点は $T_B$ および $T_T$ の中央値に相当する。実験値はDe Halasの理論値にやゝ一致しており、いずれの値もNicholsの理論値よりは数倍大きいものであることが判る。

理論式へのインプットデータとして用いた値は1つの例であって、より正確に計算するためにはさらに多くの実験を実施する必要があると思われる。レンズ状ポイドの移動速度はそのポイドの形状、すなわち巾と厚みに大きく影響を受ける。Fig. 8はDP-F試料にみられたレンズ状ポイドの拡大写真であるが、きれいなレンズ状をなすものの、たとえば厚みに対する巾( $a/d$ )などに温度に対する統一性がない。また、全ての試料での結果を総括してみるとレンズ状ポイドは約1750°C以上の領域にのみ観察され、より低温部には存在していない。レンズ状ポイドの移動挙動をより詳しく知るためには、まず、レンズ状ポイドがどのような機構によって生成され、且つ何故安定に存在しうるかという疑問に答える必要がある。以下にはこの点の検討について述べる。



### 3. レンズ状ボイドの生成，安定機構

過去，レンズ状ボイドの生成およびその安定に存在する機構についていくつかの考慮がなされている。F. A. Nichols ははじめに熱的考察によってボイドは球状になるかあるいは温度勾配に沿って長く伸びた形状 (Elongated void) になるかのいずれかでレンズ状ボイドを説明するには他の何らかの機構を必要とすると報告し，後になって試料製造時にすでにあった扁平なボイドあるいはクラックがその起源となり，理論式に変形項を加えてそれが安定となる，と報告している<sup>(3)</sup>。一方，D. R. De Halas は， $UO_2$  多結晶体の結晶粒界に存在する小さなポアが粒界を移動し，集積してレンズ状ボイドの生成となる，と報告している<sup>(4)</sup>。いずれの報告においても生成—安定機構を首尾1貫して完全に説明しうるに至っていない。

我々は，生成に対しての応力誘導，さらに安定に対しての蒸発凝固，の2つのプロセスによってレンズ状ボイドが生成し，安定に存在する機構を考察した。

#### 3.1 応力誘導—蒸発凝固プロセス

顕微鏡による組織観察の結果から， $UO_2$ ペレット中のボイドは少なくともレンズ状(あるいは扁平状)ではなく，むしろ球状であることが認められている。 $UO_2$ ペレットの半径方向に温度勾配が存在すると，それによる熱応力が生じる。Fig. 9 に径方向の熱応力分布の様子を示すが，これから判るように圧縮応力であって，もしボイドが存在するとそれに対しても圧縮応力が作用する。さらに，もし塑性変形の領域にボイドが存在する場合には変形するであろう。

今， $UO_2$ 中の1つの球状ボイドが1つの圧縮応力下に存在する状態をFig. 10(A)の様に模型化する。ボイド球面の1点Pにおける動径応力 $\sigma_a$ とこれに垂直な方向のせん断応力 $\tau_a$ は，次の様に表示される。

$$\sigma_a = \frac{2(1+\nu)A}{a^3} + \frac{2A(5-\nu)}{a^3} \cos^2\psi + \frac{B}{a^3} - \frac{12C}{a^5} + \frac{36C}{a^5} \cos^2\psi \quad (1)$$

$$\tau_a = -\frac{2(1+\nu)A}{a^3} \sin\psi \cos\psi + \frac{24C}{a^5} \sin\psi \cos\psi \quad (2)$$

$$A = \frac{5Sa}{2(7-5\nu)}$$

$$B = \frac{S(1-5\nu)a}{7-5\nu}$$

$$C = \frac{Sa}{2(7-5\nu)}$$

こゝに  $\nu$ : ポアソン比

a : ボイドの半径

S : 圧縮応力

である。以上の式に基づいて5つの角度 $\varphi$ に対する $\sigma_{a\varphi}$ および $\tau_{a\varphi}$ を計算するとTable 5のような結果が得られる。ボイド周辺の $\text{UO}_2$ マトリックスが塑性の領域に存在すると考えた場合、その応力に応じた塑性変形が存在することになる。Fig. 10 CはTable 5の応力をそのまま塑性変形とみなして得られた模式図であり、この図より判る様にはじめ球状にあったボイドは圧縮応力とマトリックスの特殊な状態下(すなわち塑性変形を生じる程の高温度)において扁平に変形することを示している(Fig. 10 D)。この過程を応力誘導プロセスと名付けている。

我々は、この応力誘導プロセスを実験によって実証したが、これは3.2節にまとめられている。

応力誘導プロセスによって生成した扁平ボイドが温度勾配下にある状態を考える。Fig. 10 B)に示すようにボイドの形状を楕円と仮想した扁平ボイド面上のP点よりの $\text{UO}_2$ 分子の蒸発量 $R_p$ は次のように表示される<sup>(2)</sup>。

$$R_p = \left\{ -\frac{Dv}{\kappa T} \right\} \left\{ \frac{P_0 \Omega}{\kappa T} \right\} \exp \left\{ -\frac{\Delta H_v}{RT} \right\} \left\{ -\frac{\Delta H_v}{T} \right\} \left( -\frac{dT}{dy} \right) \cos \alpha$$

$$\propto \exp \left\{ -\frac{\Delta H_v}{RT} \right\} F \cos \alpha \quad (3)$$

$$\tan \alpha = \left( \frac{a^2}{b^2} \right) \tan \theta \quad (4)$$

ここに、

Dv :  $\text{UO}_2$ 分子のボイド中における拡散定数

$\kappa$  : ボルツマン定数

$P_0$  : 定数

$\Omega$  :  $\text{UO}_2$ のモル体積

$\Delta H_v$  :  $\text{UO}_2$ 分子のモル比熱

R : 気体定数

T : 温度

F : 温度勾配

a : 楕円形の長径

b : 楕円形の短径

高温側面上の各点における蒸発量の差より高温面における扁平度はさらに扁平化される。高温面から蒸発した $\text{UO}_2$ 分子は低温面より低温部に凝固するので低温面は平面になる(Fig. 10 E)。すなわち温度勾配下における扁平ボイドはレンズ状になることがより安定であると結論される。この過程を蒸発凝固プロセスと名付けた。

### 3.2 応力加熱実験および結果(応力誘導プロセス実証のための実験)

前節に述べた応力誘導プロセスを実験的に実証することを目的として次の様な実験を行なった。

## 〔 1 〕 試 料

UO<sub>2</sub>粉末に粒径 100 $\mu$ の球状ナフタレン粒子が均一に混合され、4.5 トン/cm<sup>2</sup>で圧粉されてグリーンペレットが作られた。このペレットは真空中 200℃で1時間熱処理され、内包するナフタレンが蒸発されて球状ポイドが形成された。さらに、1600℃に昇温しアンゴン雰囲気中で3時間熱処理され、焼結体試料が調製された。試料中には直径約50 $\mu$ 程度の球状ポイドがほぼ均一に分散されていた。

## 〔 2 〕 応力加熱

球状ポイド分散UO<sub>2</sub>ペレット試料は応力加熱装置に組み込まれ、実験された。Fig. 11に装置の構成図を示す。試料はタングステン製棒上に置かれ、その上面はタングステン製圧縮棒に接している。試料取付後、約10<sup>-3</sup>mmHg真空中、300℃で脱ガスを行ない、約30mmHg正圧アンゴンガスを充填して、実験温度に昇温し、そこで外部に設けられている圧縮機によりある応力が負荷された。応力加熱実験はTable 6に示すように6つの異なる条件で実施された。加熱温度の増すにつれて塑性変形が増し、従って負荷応力のサイクルを増すことによって応力を補っている。

## 〔 3 〕 実験結果

Fig. 12に応力加熱終了後のポイドの形状を示す顕微鏡写真を挙げる。SH-1~SH-3試料ではあまりポイドの扁平化はみられないが、扁平化はSH-4試料あたりから始まりSH-5試料ではきれいな扁平ポイドが形成されている。さらに1800℃になると極端に小さな負荷応力(Table. 6参照)でも扁平ポイドがみられる。Fig. 13にSH-5試料における典型的な扁平ポイドの高倍率観察写真を示す。

## 4. 結 論

温度勾配下におけるUO<sub>2</sub>のレンズ状ポイドの移動およびその生成、安定機構について、次のことが判った。

- 1) レンズ状ポイドの移動速度を求めるための実験手段として2重UO<sub>2</sub>ペレット(外側低密度および内側高密度UO<sub>2</sub>ペレット)を用いることは非常に良い方法である。実験を行なった結果、移動速度はD. R. De Halas およびF. A. Nichols が導出したそれぞれの理論的展開による計算値のほぼ中程にあることを知った。さらに、レンズ状ポイドは、約1800℃附近の位置より、温度勾配、時間およびポイドの大きさに依存する速度で高温側に移動することが判った。
- 2) UO<sub>2</sub>中に存在する球形ポイドは、UO<sub>2</sub>の温度勾配による熱応力と関連をもって、もしUO<sub>2</sub>の塑性領域にある場合その熱応力方向に垂直に扁平化することが実験によって確認された。これと理論的考察とによってレンズ状ポイドの生成-安定に対する機構が求められた。生成機構として応力誘導プロセスが、また安定機構として蒸発凝固プロセスが提唱された。

## 〔 1 〕 試 料

UO<sub>2</sub>粉末に粒径 100 $\mu$ の球状ナフタレン粒子が均一に混合され、4.5 トン/cm<sup>2</sup> で圧粉されてグリーンペレットが作られた。このペレットは真空中 200℃で1時間熱処理され、内包するナフタレンが蒸発されて球状ポイドが形成された。さらに、1600℃に昇温しアンゴン雰囲気中で3時間熱処理され、焼結体試料が調製された。試料中には直径約50 $\mu$ 程度の球状ポイドがほぼ均一に分散されていた。

## 〔 2 〕 応力加熱

球状ポイド分散UO<sub>2</sub>ペレット試料は応力加熱装置に組み込まれ、実験された。Fig. 11に装置の構成図を示す。試料はタングステン製棒上に置かれ、その上面はタングステン製圧縮棒に接している。試料取付後、約10<sup>-3</sup> mmHg 真空中、300℃で脱ガスを行ない、約30 mmHg 正圧アンゴンガスを充填して、実験温度に昇温し、そこで外部に設けられている圧縮機によりある応力が負荷された。応力加熱実験はTable 6に示すように6つの異なる条件で実施された。加熱温度の増すにつれて塑性変形が増し、従って負荷応力のサイクルを増すことによって応力を補っている。

## 〔 3 〕 実験結果

Fig. 12に応力加熱終了後のポイドの形状を示す顕微鏡写真を挙げる。SH-1~SH-3試料ではあまりポイドの扁平化はみられないが、扁平化はSH-4試料あたりから始まりSH-5試料ではきれいな扁平ポイドが形成されている。さらに1800℃になると極端に小さな負荷応力 (Table. 6 参照) でも扁平ポイドがみられる。Fig. 13にSH-5試料における典型的な扁平ポイドの高倍率観察写真を示す。

## 4. 結 論

温度勾配下におけるUO<sub>2</sub>のレンズ状ポイドの移動およびその生成、安定機構について、次のことが判った。

- 1) レンズ状ポイドの移動速度を求めるための実験手段として2重UO<sub>2</sub>ペレット (外側低密度および内側高密度UO<sub>2</sub>ペレット) を用いることは非常に良い方法である。実験を行なった結果、移動速度はD. R. De Halas およびF. A. Nichols が導出したそれぞれの理論的展開による計算値のほぼ中程にあることを知った。さらに、レンズ状ポイドは、約1800℃ 附近の位置より、温度勾配、時間およびポイドの大きさに依存する速度で高温側に移動することが判った。
- 2) UO<sub>2</sub>中に存在する球形ポイドは、UO<sub>2</sub>の温度勾配による熱応力と関連をもって、もしUO<sub>2</sub>の塑性領域にある場合その熱応力方向に垂直に扁平化することが実験によって確認された。これと理論的考察とによってレンズ状ポイドの生成-安定に対する機構が求められた。生成機構として応力誘導プロセスが、また安定機構として蒸発凝固プロセスが提唱された。

## 5. 謝 辞

筆者は、この研究の機会を与えていただいた動管室武谷清昭主任研究員、および本報告書作成に激励をいただいた燃料工学部の石原健彦部長および岩本多実室長の方々に対し、心からの感謝の意を表したい。

## 参考文献

- (1) D. R. De Halas et al, J. Nucl. Mat. 8(1963) 207
- (2) F. A. Nichols, J. Nucl. Mat. 22(1967) 214
- (3) D. R. De Halas, J. Nucl. Mat. 23(1967)
- (4) F. A. Nichols, J. Nucl. Mat. 27(1968) 137

## 5. 謝 辞

筆者は、この研究の機会を与えていただいた動管室武谷清昭主任研究員、および本報告書作成に激励をいただいた燃料工学部の石原健彦部長および岩本多実室長の方々に対し、心からの感謝の意を表したい。

## 参考文献

- (1) D. R. De Halas et al, J. Nucl. Mat. 8(1963) 207
- (2) F. A. Nichols, J. Nucl. Mat. 22(1967) 214
- (3) D. R. De Halas, J. Nucl. Mat. 23(1967)
- (4) F. A. Nichols, J. Nucl. Mat. 27(1968) 137

Table 1 Samples and heating conditions for the experiments on the migration of lenticular voids

Sample	Temperature (°C)			Heating time (hr)
	Outer-surface	Boundary	Center*	
DP-A	1160	—	—	0.5
DP-C	1230	1810	2190	1.0
DP-D	1220	1760	2135	2.8
DP-F	1230	1790	2170	6.5
DP-G	1210	1770	2150	4.0

\* Calculated values

Table 2 Migration rates of lenticular voids obtained by the experiments

Sample	Temperature* (°C)	Time (hr)	Migration		
			Distance (μ)	Rate	
				(μ/hr)	(cm/sec.)
DP-C	1810~1820	1.0	50	50	1.4x10 <sup>-6</sup>
DP-D	1760~1845	2.8	350	125	3.5x10 <sup>-6</sup>
DP-F	1790~1965	6.5	650	100	2.8x10 <sup>-6</sup>
DP-G	1770~1925	4.0	700	175	4.9x10 <sup>-6</sup>

\* Values calculated from the distance

Table 3 Theoretical equations induced by D.R.De Halas and F.A.Nichols

**Nichols' Equation**

$$v = - \frac{D_v}{kT} \frac{\Omega_s}{\Omega_v} f$$

$$\frac{\Omega_s}{\Omega_v} = \frac{R\Omega}{kT} \exp\left(\frac{-\Delta H_v}{RT}\right)$$

$$f = - \frac{3\Delta H_v}{2T} \frac{dT}{dx}$$

$$D_v = \frac{3R^2 T^2}{2 \Omega \pi n a^2} \left( \frac{M_1 + M_2}{M_1 M_2} \right)^{1/2}$$

$$v_N = \frac{9R\Omega \Delta H_v (N(M_1 M_2))^{1/2} \exp(-\Delta H_v/RT) dT}{16 P T^2 (2 \pi k M_1 M_2)^{1/2} a^2 dx}$$

**De Halas' Equation**

$$v = - \frac{M}{N P} q$$

$$q = - D_2 \frac{dn}{dx}$$

$$\frac{dn}{dx} = \frac{R \Delta H_v \exp(-\Delta H_v/RT) dT}{R k T^2 dx}$$

$$D_2 = \frac{k^2 T^2 (M_1 + M_2 / M_1 M_2)^{1/2}}{3 \pi n a^2}$$

$$v_D = \Omega D_2 \frac{R \Delta H_v \exp(-\Delta H_v/RT) dT}{k R T^2 dx}$$

**Difference :**

$D_v \neq D_2$

If  $D_v = D_2 N \frac{3}{2}$ , then  $v_N = v_D$ .

**Legend:**

- a : Space
- Ω : Const.
- Ω : Mol.vol. of UO<sub>2</sub>
- ΔH<sub>v</sub> : Mol.heat of vapor.
- N : Avogadro No.
- M<sub>1</sub> : Mol. weight of UO<sub>2</sub>
- M<sub>2</sub> : Mol. weight of Ar
- k : Boltzmann const.
- P : Total pressure
- R : Gas const.

- 30·10<sup>-8</sup> cm
- 1.64·10<sup>8</sup> dyne/cm<sup>2</sup>
- 4.09·10<sup>22</sup> cm<sup>3</sup>
- 142600 cal/mol
- 6.02·10<sup>23</sup> (g mol.)<sup>-1</sup>
- 45·10<sup>-23</sup> g
- 67·10<sup>-23</sup> g
- 1.38·10<sup>-16</sup> erg/k
- nkT
- 8.31·10<sup>7</sup> erg/mol·k

Table 4 Calculated values of the migration rate of lenticular voids using the equations by D.R.De Halas and F.A. Nichols

Temperature		Migration rate			
(°K)	(°C)	De Halas		Nichols	
		(μ/hr)	(cm/sec.)	(μ/hr)	(cm/sec.)
2000	1727	26	$7.2 \times 10^{-7}$	4	$1.1 \times 10^{-7}$
2100	1827	140	$3.9 \times 10^{-6}$	20	$5.6 \times 10^{-7}$
2200	1927	561	$1.6 \times 10^{-5}$	78	$2.2 \times 10^{-6}$
2300	2027	2010	$5.6 \times 10^{-5}$	280	$7.8 \times 10^{-6}$

Table 5 Radial and circumferential stresses with angle

Angle	$\sigma_a$	$\tau_a$
0	S	0
$\pi/6$	$(3/4)S$	$(\sqrt{3}/4)S$
$\pi/4$	$(1/2)S$	$(1/2)S$
$\pi/3$	$(1/4)S$	$(\sqrt{3}/4)S$
$\pi/2$	0	0

Table 6 Samples used in the stress-heating experiments and the experimental conditions

Sample	Temperature (°C)	Time (min.)	Applied stress (kg/cm <sup>2</sup> )		
			Max.	Min.	Cycle
SH-1	1300	60	530	440	1
SH-2	1410	60	710	230	2
SH-3	1470	60	220	60	4
SH-4	1600	180	410	90	12
SH-5	1710	30	350	20	2
SH-6	1800	60	5.0	5.0	1



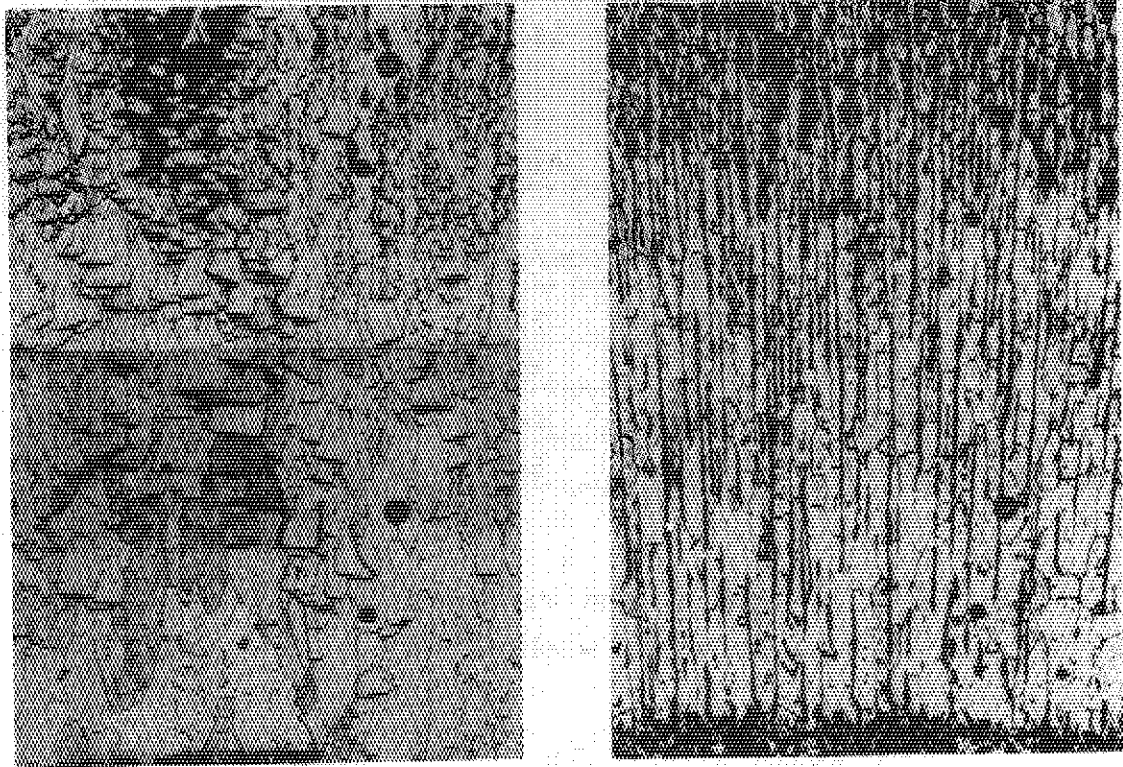
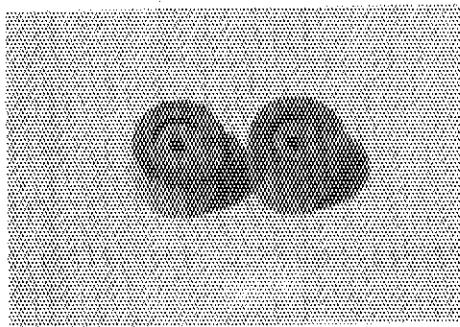
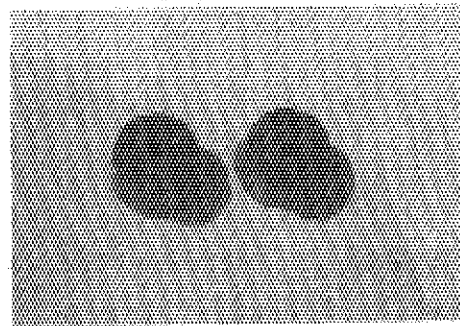


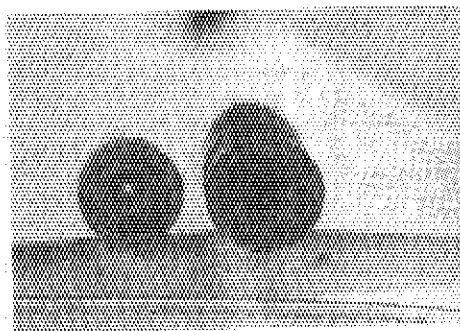
Fig. 1 Typical aspects in  $UO_2$  green pellets after heating under steep temperature gradient



(a) Before pre-sintering



(b) After pre-sintering



(c) After central heating

Fig. 2 Appearance of  $UO_2$  double pellet

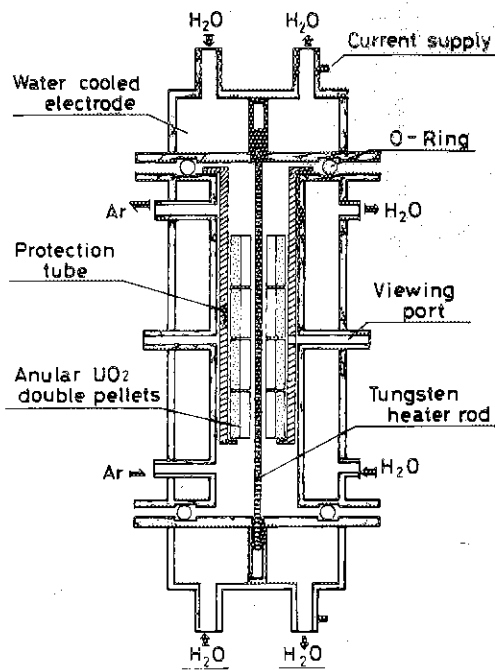


Fig. 3 Apparatus for central heating

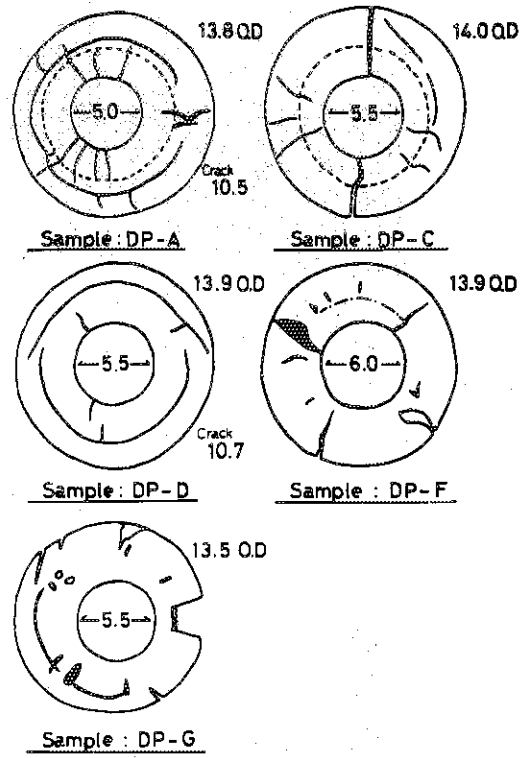


Fig. 4 Schematic drawing of the cross sections in UO<sub>2</sub> double pellets after central heating

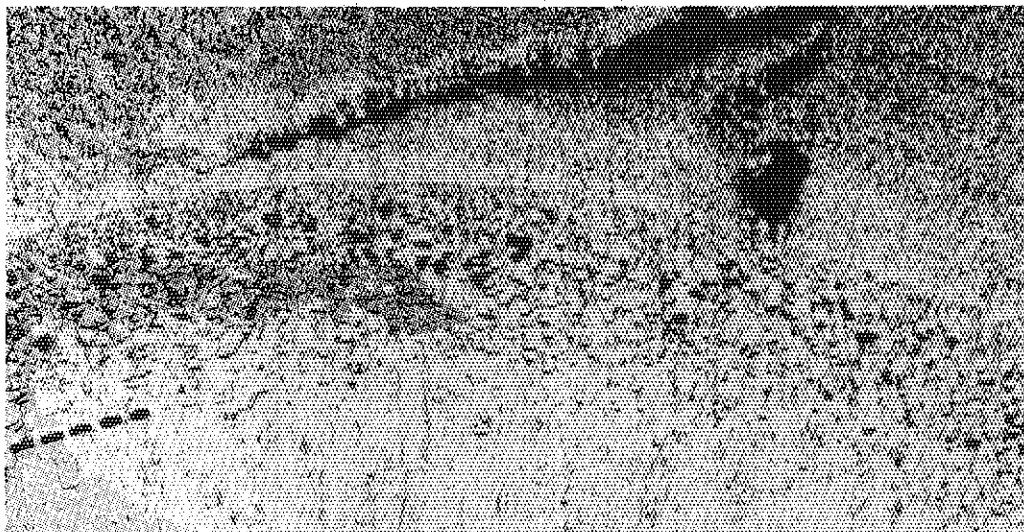


Fig. 5 Photo-micrograph of the sample DP-F after stress-heating

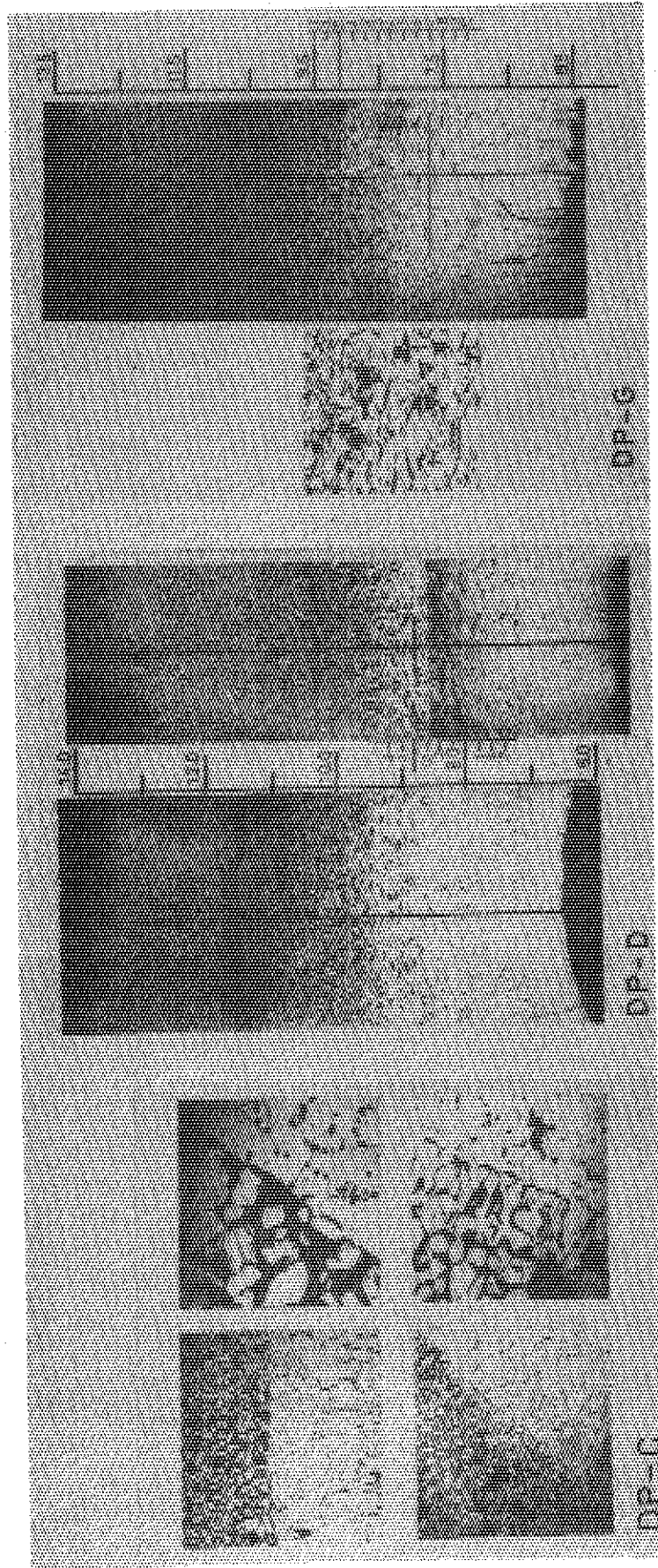


Fig. 6 Typical aspect showing the migration of lenticular voids in the samples DP-C, -D and -G after central heating

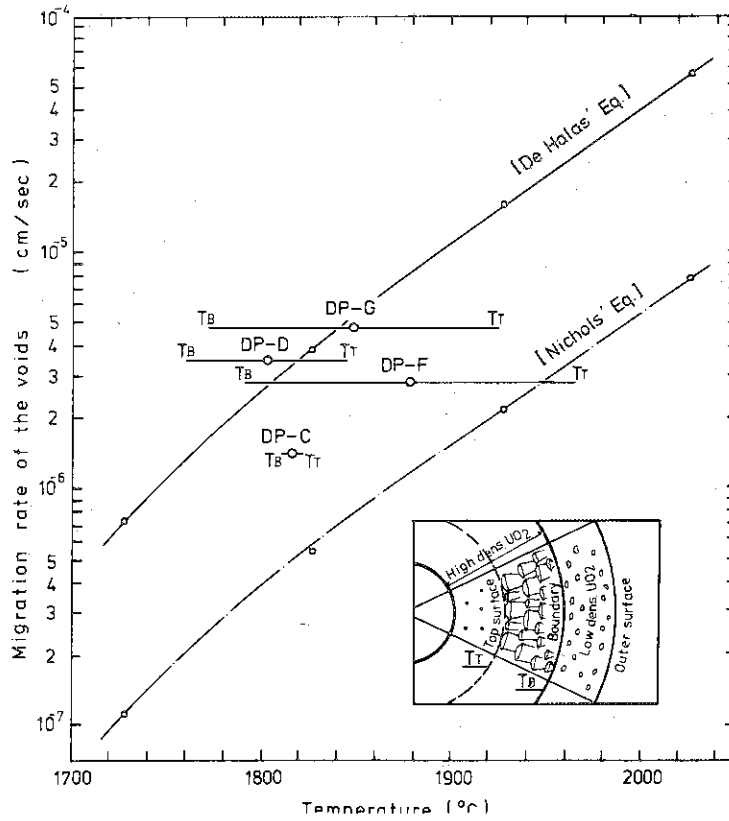


Fig. 7 Migration rate of lenticular voids vs. heating temperature (Comparison of the experimental results with theoretical values)

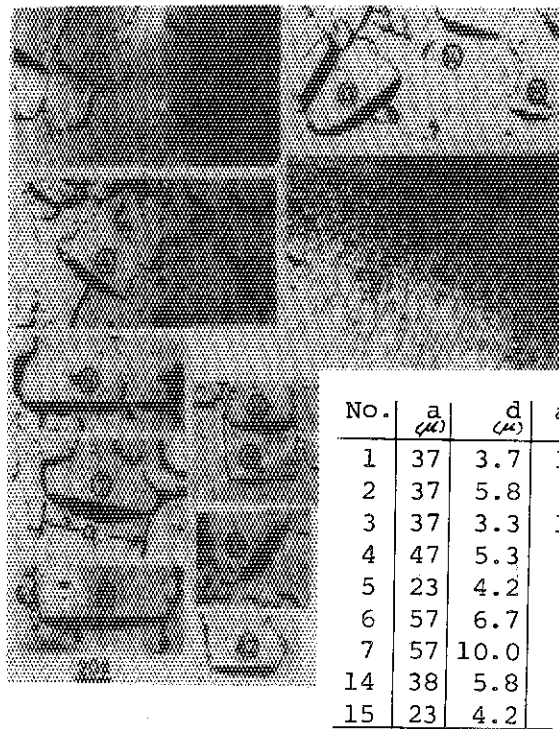


Fig. 8 Magnified aspect of lenticular voids observed in the sample DP-F

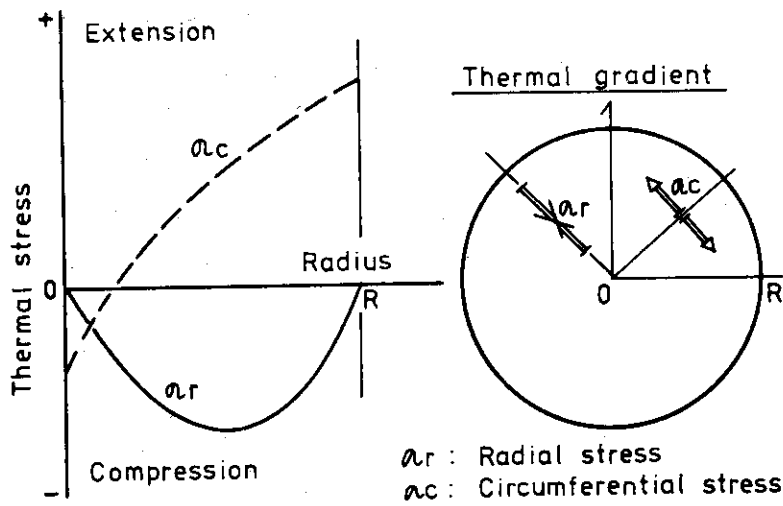


Fig. 9 Stress-aspect at a radial point in  $UO_2$  cylindrical rod under thermal gradient

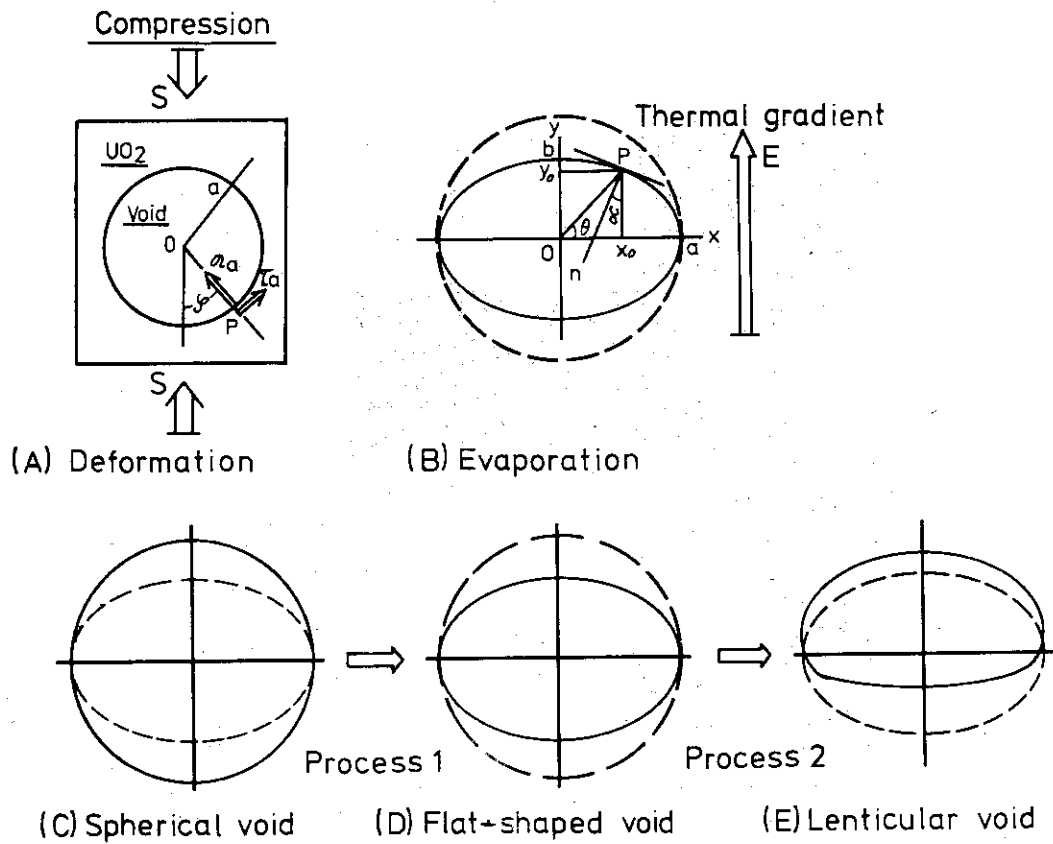


Fig. 10 Diagrams for explaining the formation-stabilisation mechanism of lenticular void

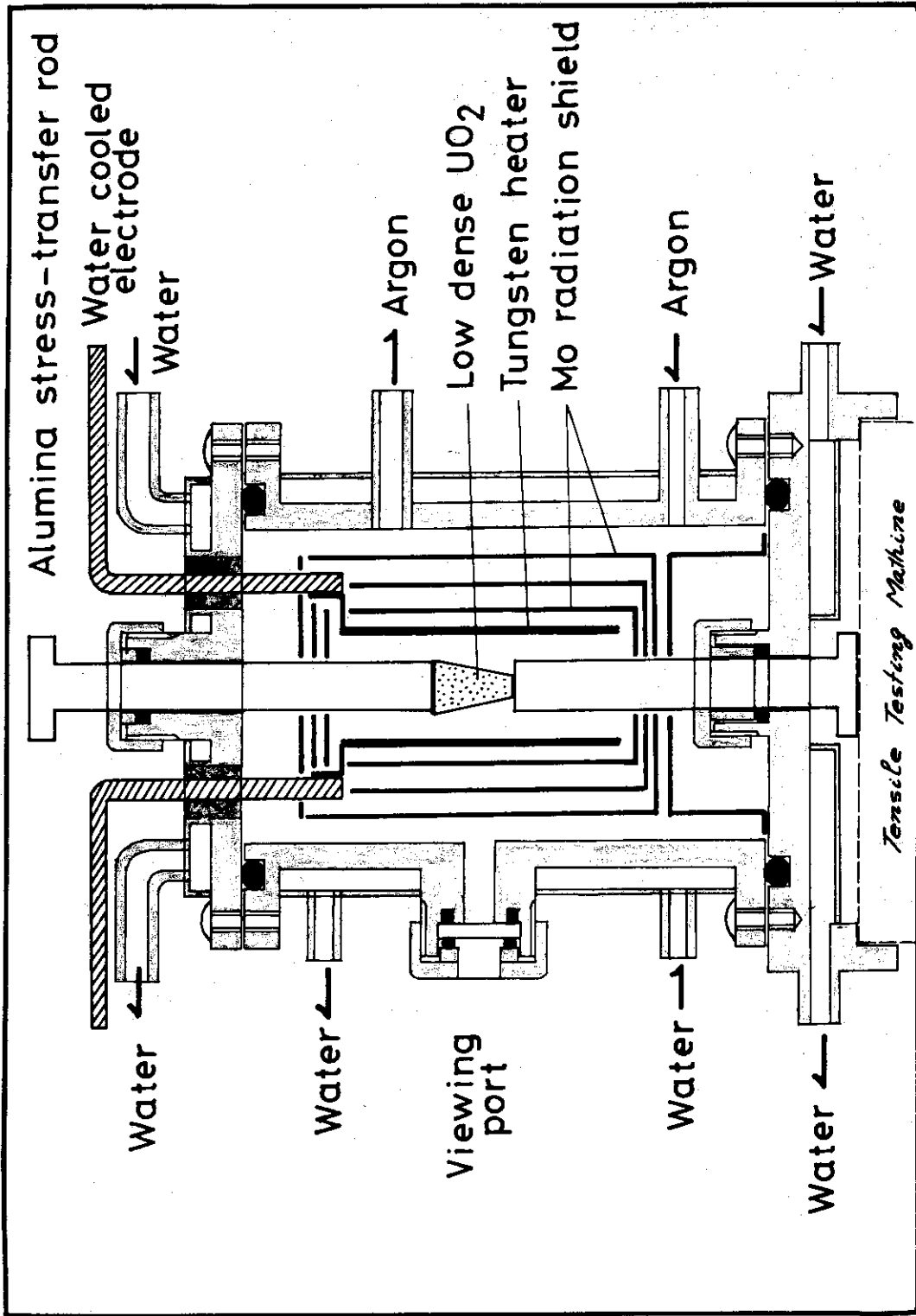
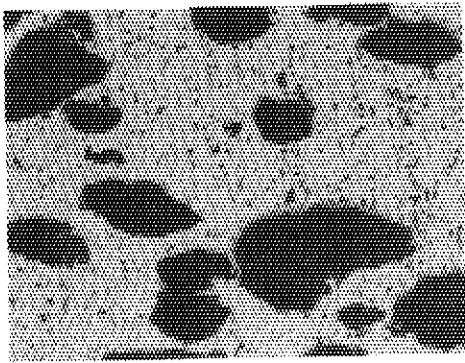
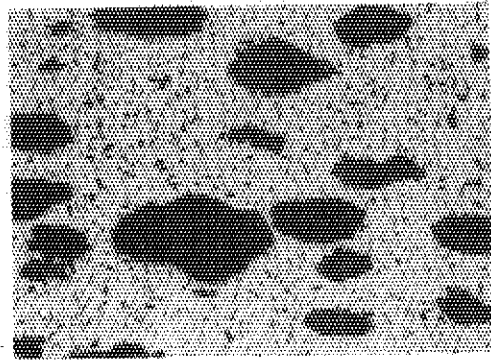


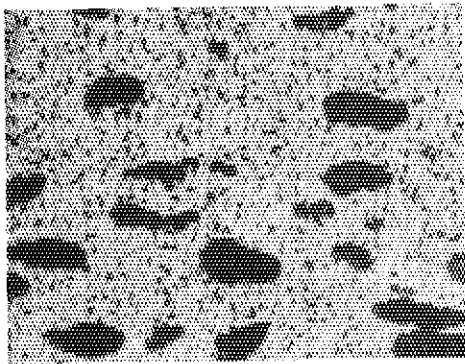
Fig. 11 Apparatus used in the stress-heating experiments



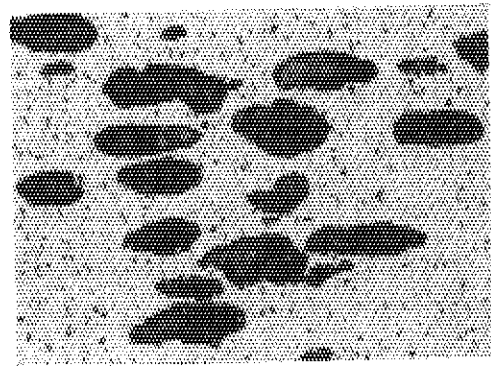
S H - 1



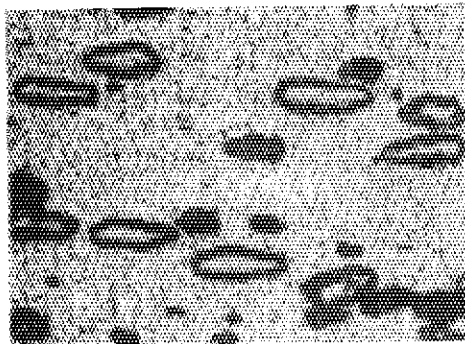
S H - 2



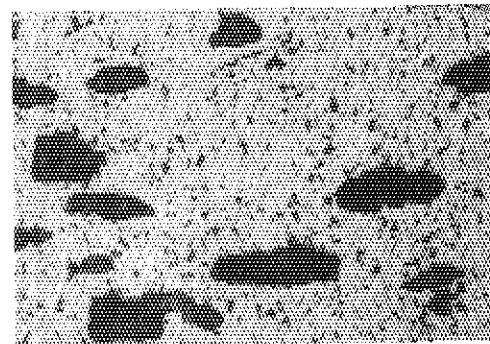
S H - 3



S H - 4



S H - 5



S H - 6

Fig. 12 Shapes of the voids in the samples after stress-heating

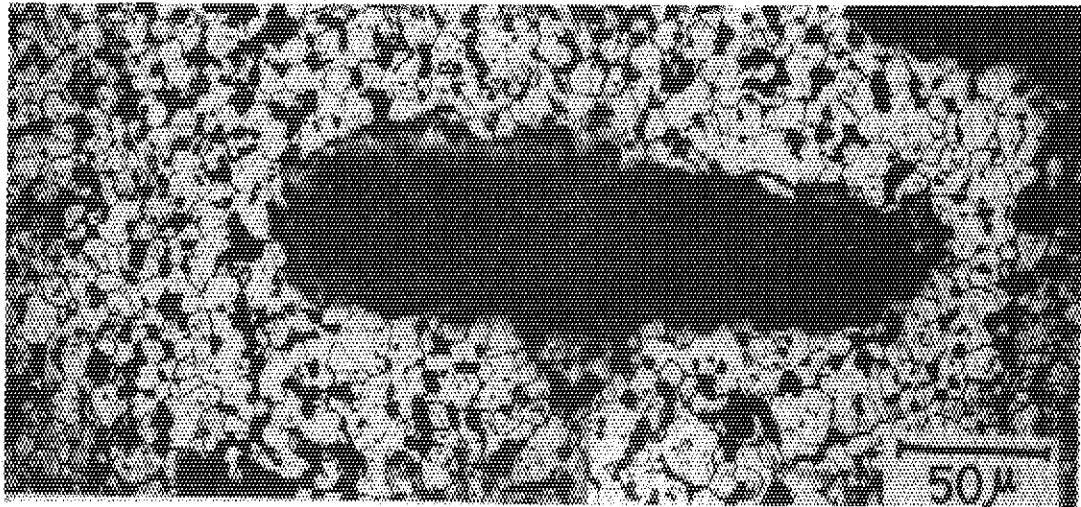
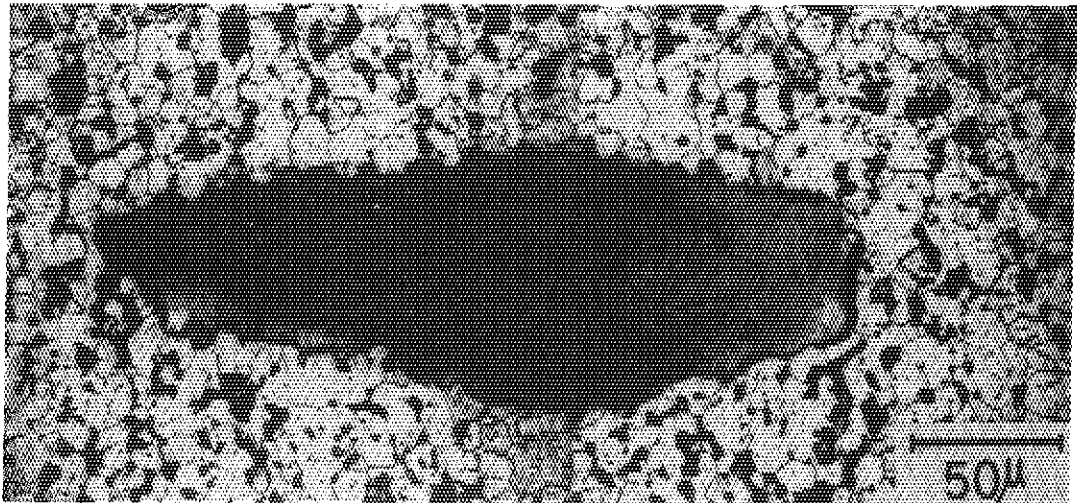


Fig. 13 Magnified flat-shaped voids in the sample SH-5