

JAERI-M
7210

UO₂ 燃料の焼きしまりに関する研究

1977年8月

柳澤 和章・内田 正明・林 清純*

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.

UO₂ 燃料の焼きしまりに関する研究

日本原子力研究所東海研究所安全工学部

柳澤和章・内田正明・林清純*

(1977年7月18日受理)

ATR型燃料を実用条件に近い条件でJMTR, OWL-1ループを使用して1720 MWd/tまで照射しUO₂燃料の焼きしまり挙動を調べた。初期密度, 結晶粒度および気孔度の異なる6種類のUO₂ペレットを用いて各々の因子が焼きしまりにおよぼす効果を調べた。

照射前後のペレット密度変化はメタキシレン液浸法を用いて測定した。初期密度の低いものは1.5~2.0%TD近く焼きしまったが, 95%TD以上の高い初期密度のものは殆んど焼きしまらなかった。

UO₂ペレットの結晶粒径は3~11 μm程度であった。粒径が5 μm以下のものは照射で大きく焼きしまったが, それ以上のものは殆んど焼きしまらなかった。

UO₂ペレットの気孔径および気孔の分布の測定には画像解析装置を用いた。小さな気孔径よりなる不安定型のものが焼きしまりが最大であり, 気孔径が大きく安定型分布をしたものには殆んど焼きしまりがなかった。

炉外再焼結実験での密度変化は1700℃, 24時間でほぼ完結した。

* 動力炉・核燃料開発事業団(ATR本部)

本試験は動力炉・核燃料開発事業団との共同研究に係るものである(共同研究テーマ番号 No.20)。

Study on Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets

Kazuaki YANAGISAWA, Masaaki UCHIDA, Kiyozumi HAYASHI*

Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received July 18, 1977)

Densification behavior of ATR-type uranium dioxide fuel pellets was investigated under simulated ATR conditions in OWL-1 loop of JMTR with the average burnup of 1720 MWd/t.

Effects of various factors such as initial density, grain size, and pore size on the densification were studied for six kinds of fuel pellets.

Density change of the pellets was measured by meta-xylene immersion method. The pellets of lowest initial density densified most by 1.5~2.0%TD but those of highest one densified little.

Grain diameters of uranium dioxide were about 3~11 μm . Considerable densification occurred in the pellets with small grain diameters less than 5 μm in contrast to little densification in the pellets with large grains.

Pore diameter and pore size distribution were measured with image analyzing instruments. The pellets with unstable pores together with small grain diameter densified most and the pellet both with stable pores and with large grain diameter densified least.

In out-of-reactor resintering test, the density increase was found to terminate at 1700 C after 24 hr.

Keywords: Densification, Uranium Dioxide Fuel Pellets, Initial Density, Grain Size, Pore Size, Pore Size Distribution, ATR-Type, Irradiation.

* Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (ATR , Head Office)

目 次

1. 序	1
2. 照射の概要	1
3. UO ₂ ペレットの特徴	1
4. 照射後試験	2
4.1 外観検査	2
4.1.1 集合体の外観	2
4.1.2 燃料棒の外観	3
4.1.3 X線検査	3
4.1.4 ガンマスキャニング	3
4.1.5 燃料棒のまがりの測定	3
4.1.6 ペレットの外観	3
4.2 密度測定	3
4.3 金相試験	4
4.3.1 ペレット結晶粒度の測定	4
4.3.2 気孔および気孔分布の測定法	4
4.3.3 気孔の金相写真	5
4.3.4 金相写真からの気孔とその分布の表示	5
4.3.5 気孔分布の検討	6
4.4 炉外再焼結試験	6
4.4.1 試験の目的	6
4.4.2 NRC炉外再焼結試験とのデータ比較	7
4.4.3 未照射試料のO/U比	7
5. 討 論	7
5.1 照射前の粒径と焼きしまり	7
5.2 照射前の気孔径と焼きしまり	7
5.3 照射前の密度と焼きしまり	8
5.4 サブミクロンポアの焼きしまり効果	8
5.5 因子(パラメーター)効果	8
5.5.1 初期密度の焼きしまり効果	8
5.5.2 初期粒度の焼きしまり効果	8
5.5.3 初期気孔度の焼きしまり効果	9
6. 結 言	9
謝 辞	9
図	19
表	11

CONTENTS

1.	INTRODUCTION	1
2.	DESCRIPTION OF THE IRRADIATION TEST	1
3.	CHARACTERISTICS OF UO ₂ PELLETS	1
4.	POST IRRADIATION EXAMINATION	2
4.1.	Visual Examination	2
4.1.1.	Fuel Assemblies After Irradiation	2
4.1.2.	Fuel Rods After Irradiation	3
4.1.3.	X-ray Inspection	3
4.1.4.	Gamma-Scanning	3
4.1.5.	Bowing Measurement for Fuel Rods	3
4.1.6.	Fuel Pellets After Irradiation	3
4.2.	Measurement of the Fuel Density	3
4.3.	Metallographic Examination	4
4.3.1.	Grain Size Measurement for Pellet	4
4.3.2.	Measuring Method for the Pore Size and Pre Distribution ..	4
4.3.3.	Metallography for the Pore	5
4.3.4.	Exhibition of Pore and Its Distribution Using the Pore Metallography	5
4.3.5.	Study on Pore Distribution	6
4.4.	Out of Reactor Resintering Test	6
4.4.1.	Objection of Out of the Test	6
4.4.2.	Data Comparison with Our Working and NRC Suggested for Out of Reactor Resintering Test	7
4.4.3.	O/U Ratio for Pre-Irradiation Sample	7
5.	DISCUSSION	7
5.1.	Relation between Pre-Irradiation Grain Diameter and Densification	7
5.2.	Relation between Pre-Irradiation Pore Diameter and Densification	7
5.3.	Relation between Pre-Irradiation Density and Densifi- cation	8
5.4.	Sub-micron Pore Effect on Densification	8
5.5.	Variable (Parameter) Effects on Densification	8
5.5.1.	Effect of Initial Pellet Density on Densification	8
5.5.2.	Effect of Initial Grain Size on Densification	8
5.5.3.	Effect of Initial Pore Size on Densification	9
6.	CONCLUSIONS	9
7.	ACKNOWLEDGEMENT	9
	REFERENCES	10

FIGURES

- Fig. 1 Schematic drawings of the capsule 74LF23A. Each six kind of UO_2 pellets were arranged and named from A to F. Rod No 74 was used for metallographic and No 23 for density measurement.
- Fig. 2 Fuel assemblies after irradiation.
- Fig. 3 Fuel Rod after irradiation (Rod No 74)
(a) Rod No 74, (b) Rod No 23
- Fig. 4 Gamma-scanning for rod No 74.
- Fig. 5 Gamma-ray spectrum for the pellet at the center position.
- Fig. 6 UO_2 pellets dismounted from the Rod.
(I) Placed at low linear heat rating (<400 W/cm)
(II) High linear heat rating (≈ 540 W/cm)
- Fig. 7 Rod spring after irradiation
- Fig. 8 Photomicrograph of the pre-irradiated UO_2 pellets.
Etched ; $H_2O_2/H_2SO_4=8/1$ solution. Magnification of the picture were in all the same.
- Fig. 9 Photomicrograph of the post-irradiated, etched UO_2 pellets. Etching solution ; $H_2O_2/H_2SO_4=8/1$
- Fig. 10 Photomicrograph of the pre-irradiated, unetched UO_2 pellets.
- Fig. 11 Photomicrograph (Cross section) of the irradiated UO_2 fuel pellet (Specimen A)
(a) placed at a high linear heat rating (LHR) region
(b) a low LHR region
- Fig. 12 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet

(Specimen B)

(a) a high LHR (b) a low LHR

Fig. 13 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen C)

(a) a high LHR (b) a low LHR

Fig. 14 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen D)

(a) a high LHR (b) a low LHR

Fig. 15 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen E)

(a) a high LHR (b) a low LHR

Fig. 16 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen F)

(a) a high LHR (b) a low LHR

Fig. 17 Pore size distribution. In figures, \bigcirc ; pre-
irradiated, \bullet ; post-irradiated conditions.

Fig. 18 Pore size distribution. \bigcirc pre-irradiated,
 \bullet post-irradiated conditions.

Fig. 19 The relation of density between in-reactor and out-
of-reactor resintering test.

Fig. 20 Comparison of density change with in-reactor and
out-of-reactor resintering test.

Fig. 21 The relation between initial grain diameter and
densification.
Densification was defined as follows; (post-irradiation
density)-(pre-irradiation density).

Fig. 22 The relation between initial pore diameter and
densification.

- Fig. 23 The relation between initial density of each specimens and density change (densification).
- Fig. 24 The relation between initial porosity of each specimens and density change (densification).
- Fig. 25 Effect of the sub-micron porosity on densification.

TABLES

- Table 1 Specification of the fuel rod and Irradiation conditions.
- Table 2 Impurities in the UO_2 pellets.
- Table 3 Effect of the irradiation on the density of pellets.
- Table 4 Pre-and post-irradiation grain size^(*).
- Table 5 Effect of irradiation on porosity and pore diameter.
- Table 6 Effect of irradiation on sub-micron porosity.
- Table 7 Change in density during out-of-reactor resintering tests (Geometrical and Water-immersion method).
- Table 8 O/U ratio by two different procedure.
- Table 9 Effect of the pre-irradiation theoretical density on densification.
- Table 10 Effect of the pre-irradiation grain size on densification.
- Table 11 Effect of the pre-irradiation pore size on densification.

1. 序

燃料の焼きしまり現象を国内の施設で調べ、安全審査に役立てるためATR(新型転換炉, Advanced Thermal Reactor)型燃料を実用条件に近い条件で照射を行ない、その焼きしまり挙動を調べた。

照射試料はJMTR, OWL-1用として設計・製作し照射を行なった。照射前、および照射後の UO_2 ペレットの挙動を把握するため次の変数を用いた。

- (イ) 密度
- (ロ) 粒度
- (ハ) 気孔度
- (ニ) 気孔分布

実験を補完するいみで未照射ペレットに対し炉外再焼結試験を行なった。

2. 照射の概要

新型転換炉原型炉で用いる燃料は一般に¹⁾ペレット径14.5mm, 密度94.9%TD, 濃縮度1.5w/oであり, 冷却材の入口, 出口温度がそれぞれ277C, 284Cである。本実験で使用した燃料は UO_2 ペレットで径14.4mm, 密度92.5, 95, 97%TD, 濃縮度1.8w/oであり, これをJMTR, OWL-1にて照射を行なった。燃料の特性および照射条件をTable 1に示す。

酸化物燃料の焼きしまり挙動解析に際して変数として多く用いられるのは試料初期密度, 結晶粒度および気孔度(気移分布も含む)である。実験では初期密度を3種類(92.5, 95, 97%TD), 粒度, 気孔度を2種類(大, 小)に変えた試料を用い, A, B, C, D, E, Fと命名した。順番は規格密度の小さいほうからとした。炉内照射ではA~Fの6個の試料を1グループにして6グループ(36個のペレット)を1本の被覆管に装填し, 燃料棒とした。燃料棒は2本作製し金相試験と密度試験に使用した。前者を“ロッド番号74”とし後者をロッド番号23”とした。その燃料棒内のペレット配置等をFig. 1に示した。

照射後の金相試験用供試料はロッド番号74の中心部(高線出力部)および端部(低線出力部)かそれぞれ1グループ取り出したものを用いた。照射中でのペレットの混合防止にスペーサー(インコネル718)を用い, エンドペレットには焼結アルミナペレットを使用した。

照射後の密度試験用供試料にはロッド番号23中の UO_2 ペレット(6グループ)全部を用いた。

3. UO_2 ペレットの特徴

燃料 UO_2 ペレットA~Fの特徴を以下に示す。

1. 序

燃料の焼きしまり現象を国内の施設で調べ、安全審査に役立てるためATR(新型転換炉, Advanced Thermal Reactor)型燃料を実用条件に近い条件で照射を行ない、その焼きしまり挙動を調べた。

照射試料はJMTR, OWL-1用として設計・製作し照射を行なった。照射前、および照射後の UO_2 ペレットの挙動を把握するため次の変数を用いた。

- (イ) 密度
- (ロ) 粒度
- (ハ) 気孔度
- (ニ) 気孔分布

実験を補完するいみで未照射ペレットに対し炉外再焼結試験を行なった。

2. 照射の概要

新型転換炉原型炉で用いる燃料は一般に¹⁾ペレット径14.5mm, 密度94.9%TD, 濃縮度1.5w/oであり、冷却材の入口, 出口温度がそれぞれ277C, 284Cである。本実験で使用した燃料は UO_2 ペレットで径14.4mm, 密度92.5, 95, 97%TD, 濃縮度1.8w/oであり、これをJMTR, OWL-1にて照射を行なった。燃料の特性および照射条件をTable 1に示す。

酸化物燃料の焼きしまり挙動解析に際して変数として多く用いられるのは試料初期密度, 結晶粒度および気孔度(気移分布も含む)である。実験では初期密度を3種類(92.5, 95, 97%TD), 粒度, 気孔度を2種類(大, 小)に変えた試料を用い, A, B, C, D, E, Fと命名した。順番は規格密度の小さいほうからとした。炉内照射ではA~Fの6個の試料を1グループにして6グループ(36個のペレット)を1本の被覆管に装填し, 燃料棒とした。燃料棒は2本作製し金相試験と密度試験に使用した。前者を“ロッド番号74”とし後者をロッド番号23”とした。その燃料棒内のペレット配置等をFig. 1に示した。

照射後の金相試験用供試料はロッド番号74の中心部(高線出力部)および端部(低線出力部)をそれぞれ1グループ取り出したものを用いた。照射中でのペレットの混合防止にスペーサー(インコネル718)を用い, エンドペレットには焼結アルミナペレットを使用した。

照射後の密度試験用供試料にはロッド番号23中の UO_2 ペレット(6グループ)全部を用いた。

3. UO_2 ペレットの特徴

燃料 UO_2 ペレットA~Fの特徴を以下に示す。

1. 序

燃料の焼きしまり現象を国内の施設で調べ、安全審査に役立てるためATR(新型転換炉, Advanced Thermal Reactor)型燃料を実用条件に近い条件で照射を行ない、その焼きしまり挙動を調べた。

照射試料はJMTR, OWL-1用として設計・製作し照射を行なった。照射前、および照射後の UO_2 ペレットの挙動を把握するため次の変数を用いた。

- (イ) 密度
- (ロ) 粒度
- (ハ) 気孔度
- (ニ) 気孔分布

実験を補完するいみで未照射ペレットに対し炉外再焼結試験を行なった。

2. 照射の概要

新型転換炉原型炉で用いる燃料は一般に¹⁾ペレット径14.5mm, 密度94.9%TD, 濃縮度1.5w/oであり, 冷却材の入口, 出口温度がそれぞれ277C, 284Cである。本実験で使用した燃料は UO_2 ペレットで径14.4mm, 密度92.5, 95, 97%TD, 濃縮度1.8w/oであり, これをJMTR, OWL-1にて照射を行なった。燃料の特性および照射条件をTable 1に示す。

酸化物燃料の焼きしまり挙動解析に際して変数として多く用いられるのは試料初期密度, 結晶粒度および気孔度(気移分布も含む)である。実験では初期密度を3種類(92.5, 95, 97%TD), 粒度, 気孔度を2種類(大, 小)に変えた試料を用い, A, B, C, D, E, Fと命名した。順番は規格密度の小さいほうからとした。炉内照射ではA~Fの6個の試料を1グループにして6グループ(36個のペレット)を1本の被覆管に装填し, 燃料棒とした。燃料棒は2本作製し金相試験と密度試験に使用した。前者を“ロッド番号74”とし後者をロッド番号23”とした。その燃料棒内のペレット配置等をFig. 1に示した。

照射後の金相試験用供試料はロッド番号74の中心部(高線出力部)および端部(低線出力部)かそれぞれ1グループ取り出したものを用いた。照射中でのペレットの混合防止にスペーサー(インコネル718)を用い, エンドペレットには焼結アルミナペレットを使用した。

照射後の密度試験用供試料にはロッド番号23中の UO_2 ペレット(6グループ)全部を用いた。

3. UO_2 ペレットの特徴

燃料 UO_2 ペレットA~Fの特徴を以下に示す。

(i) A試料

初期密度，粒度，気孔度が小さく焼きしまりをおこしやすい条件にある。気孔分布は準安定型である。

(ii) B試料

初期密度は小さいが粒度，気孔度が大きく，焼きしまりの密度依存性に着目した試料である。気孔中に人工気孔が入っていて分布は安定型になっている。

(iii) C試料

A試料を模擬した燃料で粒度，気孔度が小さい。初期密度が95%TDとA試料より高く気孔分布は不安定型である。

(iv) D試料

(iii)の試料と初期密度を共通にしているが粒度が大きい。

(v) E試料

(iii)および(iv)の試料と初期密度を共通にして粒度，気孔度を大きくとったもの。気孔中に人工気孔を入れて気孔分布を安定型にしてある。

(vi) F試料

全試料中初期密度が最大で粒度も大きくした。しかし気孔度は小さい。

使用 UO_2 ペレットの化学分布の結果をTable 2に示す。結果は全て規格内であった。未照射 UO_2 ペレット密度測定には次の3通りの方法を用いた。

- (i) 形状密度（寸法重量 - 真空置換，幾何形状的なもの）
- (ii) 水液浸密度
- (iii) メタキシレン液浸密度

4. 照射後試験

照射済燃料について以下の照射後試験を行なった。

- (i) 燃料集合体，燃料棒，燃料の外観検査
- (ii) 密度測定
- (iii) 金相試験（組織，結晶粒度，気孔度および気孔分布）

そのほか燃料の炉内挙動の対比実験として炉外再焼結実験（炉外加熱による UO_2 ペレットの密度と粒度の変化）も行なった。

4.1 外観検査

4.1.1 集合体の外観

Fig. 2 は照射を行なった集合体の外観である。集合体表面には変色と取扱時の残いすり傷が見られた他は腐蝕，クラック等の異常はなかった。

(i) A試料

初期密度，粒度，気孔度が小さく焼きしまりをおこしやすい条件にある。気孔分布は準安定型である。

(ii) B試料

初期密度は小さいが粒度，気孔度が大きく，焼きしまりの密度依存性に着目した試料である。気孔中に人工気孔が入っていて分布は安定型になっている。

(iii) C試料

A試料を模擬した燃料で粒度，気孔度が小さい。初期密度が95%TDとA試料より高く気孔分布は不安定型である。

(iv) D試料

(iii)の試料と初期密度を共通にしているが粒度が大きい。

(v) E試料

(iii)および(iv)の試料と初期密度を共通にして粒度，気孔度を大きくとったもの。気孔中に人工気孔を入れて気孔分布を安定型にしてある。

(vi) F試料

全試料中初期密度が最大で粒度も大きくした。しかし気孔度は小さい。

使用 UO_2 ペレットの化学分布の結果をTable 2に示す。結果は全て規格内であった。未照射 UO_2 ペレット密度測定には次の3通りの方法を用いた。

- (i) 形状密度（寸法重量 - 真空置換，幾何形状的なもの）
- (ii) 水液浸密度
- (iii) メタキシレン液浸密度

4. 照射後試験

照射済燃料について以下の照射後試験を行なった。

- (i) 燃料集合体，燃料棒，燃料の外観検査
- (ii) 密度測定
- (iii) 金相試験（組織，結晶粒度，気孔度および気孔分布）

そのほか燃料の炉内挙動の対比実験として炉外再焼結実験（炉外加熱による UO_2 ペレットの密度と粒度の変化）も行なった。

4.1 外観検査

4.1.1 集合体の外観

Fig. 2 は照射を行なった集合体の外観である。集合体表面には変色と取扱いの残いすり傷が見られた他は腐蝕，クラック等の異常はなかった。

4.1.2 燃料棒の外観

集合体を解体して取り出した燃料棒の外観を Fig. 3 に示す。図中上段(a)はロッド番号 74 (金相試験用), 下段(b)はロッド番号 23 (密度試験用)である。外観検査の結果異常は認められなかった。

4.1.3 X線検査

燃料棒のプレナム中心部を含む 3 箇所を 1 方向につき X線検査を行なった。欠陥等はいずれの場所でも認められなかった。

4.1.4 ガンマスキャンニング

ロッド番号 74 のガンマスキャンニングの結果を Fig. 4 に示す。選択核種は ^{95}Zr - ^{95}Nb であった。図から放射線強度は中心付近が最大で 520 cps 程度であった。下部および上部では 100 cps 程度燃料の下部の放射線強度が高かった。

燃料棒下部から数えて 20 番目の中心ペレットにつきガンマ線スペクトロメトリーをとった (Fig. 5)。主要核種は ^{103}Ru , ^{144}Pr , ^{134}Cs であった。

4.1.5 燃料棒のまがりの測定

2 本の燃料棒のまがり (bowing) の測定を行なった。測定時の試料温度はクロメル-銅コンスタンタンを用いてはかり 25.5°C であった。最大のまがりはロッド番号 74 で 270 μm , ロッド番号 23 で 280 μm であった。

4.1.6 ペレットの外観

ペレットは殆んどものが割れていた。その様子を Fig. 6 に示す。図中 I は燃料棒端部, II は中央部である。線出力の高かった中心部のペレットには中心孔ができていた。

照射によってもペレット抑えバネは健全であった。その外観を Fig. 7 に示す。

4.2 密度測定

密度測定は未照射のものと照射後のものについて行なった。測定手法には種々のものがあり本実験で使用したもの、および測定法の相関関係についてはすでに報告を行なった²⁾。その報告書の中で照射前の密度測定の詳細な取り扱いを行なった。UO₂ ペレットの密度変化による焼きしまり表示では照射前後の測定法に一貫性が必要とされる。実験ではメタキシレン液浸法を用いた。密度試験用供試料は A ~ F 各 12 個であった。それを真空中 (1.3 Pa) で 18 時間乾燥したのち重量を測定した。置換液中の浸漬時間は 20 分以上とした。UO₂ の理論密度の値には 10.96 (grams/cc) を用いた。データとしてのせた最終的な密度値 (%TD) は照射前後の測定データの 99% 信頼度による母集団分布 $N(m, \sigma)$ の推定値を使った。

密度測定の結果を Table 3 に示す。表には規格 (Normalization) も一緒にしておいた。表での焼きしまり量は照射後のメタキシレン液浸密度値 (%TD) から未照射でのそれを差し引いた値で表示してある。従って、値が大きいことは焼きしまりが大きいことに対応する。表中最下段の量は

焼きしまり量を未照射ペレットの密度で除したものである。

CおよびA試料の焼きしまりが一番大きかった。またF試料の焼きしまりが最低であった。規格初期密度はそれぞれ95,925%TDであった。F試料は粒度が大きく気孔度が小さいのが特徴で規格初期密度は97%TDと一番大きかった。詳細は5.の討論で論じた。

4.3 金相試験

4.3.1 ペレット結晶粒度の測定

UO₂ペレットの結晶粒度(以下粒度と略記する)の測定次元には1~3次元までである。測定法も汎用されているもので、切断法および比較法等がある。粒度は結晶粒を表示する確率変数であるから等価直径対象体にいろいろな図形、例えば正方形、円、立方体、球、多面体が挙げられる。本実験で用いた粒径は測定次元が2次元で等価直径対象体に正方形を用いて表わした粒度である、それにさらに係数1.2を乗じて2次元→3次元にモデルの変換を行なった³⁾。測定法には切断法を用いた。実験ではさらに数人の人間による切断方法と画像解析装置を用いた計数法とでデータのつきあわせを行ない一致性を確かめてデータとした。粒度測定の結果をTable 4に示す。また測定に使用した試料写真をFig. 8(照射前)およびFig. 9(照射後)に示す。Fig. 8ではAおよびB試料は粒径が極く小さく、BおよびE試料中には大きな気孔(人工気孔)が見られる。Fig. 9は照射後のものである。粒径測定は試料横断面全域について径方向で行なった。

粒径因子はAとCが粒度小で他は大である。照射前では試料Aが最も粒度が小さく3.0 μ m、試料Eが最も大きく10.9 μ mであった。照射後Aが0.4 μ mの粒成長をおこした他は成長が見られなかった。しかし焼きしまり量はAとCが大きかった。これは焼きしまりに対し粒度のみが単独に作用するのではないことを意味する。他因子との相関は5.で論じた。

4.3.2 気孔および気孔分布の測定法

気孔度とその分布の測定・表示法については前述の粒度と同様なことがいえる。形態は焼結条件等で変化するが、平面的に見る限り円形で分布する。本実験では気孔を円として考えた2次元-円等価直径モデルとした。結晶粒とは分布が存在する点で異なる。つまり粒度測定では等軸等晶を前提としたが気孔は今回の実験でも数 μ mのオーダーから100 μ m付近まで大小様々存在する。その分布もいろいろである。焼きしまりに対し気孔径とその分布は重要な因子として作用する。実験で気孔分布について不安定型分布と呼んだのは多数の微細な気孔が片寄って分布しているもの、安定型分布と呼んだのは逆に大きな径をもった多数の気孔が分布しているもので、準安定型分布はその中間状態にあるものである。

BおよびE試料はナフタレンの添加により人工的な気孔をUO₂母相中に混入させ、気孔径の大きい安定型の気孔分布にした。それ以外の試料は気孔平均径の小さい不安定もしくは準安定型分布にした。気孔径およびその分布の定量は画像解析装置を用いた。未照射試料は顕微鏡の影像を直接画像解析装置にかけ試料全面にわたり測定行なった。使用した未照射試料の金相をFig. 10に示す。照射後の測定は試料のホットラボからの持ち出しが困難であったため、燃料棒の中心部と端部に位置していた試料の金相写真を撮った。A~F試料それぞれについて中心からの外周部に向けモザイ

ク写真を作った (Fig. 11 ~ Fig. 16)。例えば Fig. 11 をみてわかるように、照射後の UO_2 ペレットは3つの部分(I)~(III)に分割できる。つまり

- (I) ペレット中心部で気孔の集積がおこる
- (II) 中間部でレンズ状の気孔がある
- (III) 外周部

である。(I)および(II)の部分は未照射のペレットに比べて明らかに形状が異なる。そこで、気孔径と分布の対象として(III)の部分照射済のペレットに対してえらび測定を行なった。気孔径はポアの分布量を考慮し加重平均とした。

4.3.3 気孔の金相試験

Fig. 10 (未照射), Fig. 11~16 (照射済)の一連の金相写真から以下のことが観察された。

- (1) 照射済の全ての試料に割れが入っていた。割れの様子は燃料棒中心部と端部のペレットでは様相が異なる。端部(低い線出力密度)ペレットでの割れは断面中心部分を貫通して端に達するが、中心部(高い線出力密度)でのそれは断面のある距離から放射状にひろがっている。割れの数(中心から外周まで達した割れを1つと数える)は中心部ペレットで平均11個、端部ペレットで平均6個であった。
- (2) 燃料棒中心部に位置していたペレットの横断面を見るとF試料をのぞいて全部中央付近に気孔の集積による中心孔ができていた。しかし端部付近でのペレットにはそれが見られなかった。
- (3) 燃料棒中心部ペレットの横断面は気孔の形態が4.3.2で述べた如く(I)~(III)の3つの形態に分けられた。中心から中間域では気孔の消失の度合いが大きく、よく発達したレンズ状の気孔がみられた。燃料棒端部にあったペレットにはそれが見られなかった。

4.3.4 金相写真からの気孔とその分布の表示

気孔およびその分布の定量化については4.3.1で述べた。照射前試料の気孔分布範囲は顕微鏡の分解能、試料の表面状態(エッチング等)で決まった。測定の結果気孔は $0.5 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度で分布した。照射後の定量化には写真を用いたがこれについても $0.5 \sim 100 \mu\text{m}$ の分布を得た。その結果を Fig. 17 (A~C試料)および Fig. 18 (D~F試料)に示す。気孔率 (porosity) は次のように定義した。

$$\text{気孔率}(\%) = \text{試料中の全気孔体積} / \text{試料全体積}$$

気孔径は2次元円等価直径を用い分布からの加重平均で算出した。すなわち気孔径を幾つかの区間に区切りそこでの気孔率を $f_i(\%)$ とし、そのときの円等価直径モデルにより定めた気孔径を $d_i(\mu\text{m})$ とすれば、加重平均気孔径 \bar{d} は

$$\bar{d} = \sum f_i d_i / \sum f_i$$

で与えられる。

加重平均気孔径と気孔分布の定量化によって得た結果を Table 5 に示す。

4.3.5 気孔分布の検討

得られた気孔分布より以下のことが観察された。

- (1) 加重平均気孔粒径（以下平均気孔径と略す）の分布は0.5~100 μm とひろかった。照射前試料のB, E以外のものでは平均気孔径を中心としたなだらかな分布となっていたが、人工的な気孔形成物を添加したB, E試料はその添加物の効果によって分布のピークの立ちあがり急激であった。平均気孔径でみると照射前ではB試料が最も大きく30 μm 程度、最小はF試料の8 μm であった。
- (2) 照射後のポア分布には変動があった。すなわち照射によって未照射試料のB, Eのようなピークが各試料に生じたこと、およびそのピーク位置が気孔径の大きい方にずれたことである。
- (3) 照射によって気孔量が減ったこと、特に10 μm 以下の気孔量の減りが大きくなったことからして照射により微細な気孔の消失がおこったと考えられる。
- (4) 熱的に不安定とみられる気孔径1 μm 以下の気孔（サブミクロンポア）を定量した。結果をTable 6に示す。1 μm 以下の気孔は照射中消失して大きく焼きしまりに寄与するという報告^{4)~6)}があるが、本実験では照射前後で0.1%しか全体的に変化しておらずその効果は認められなかった。

4.4 炉外再焼結試験

4.4.1 試験の目的

炉外再焼結試験を行なうことにより炉内による照射挙動との関連性を調べられる。炉内では熱中性子等による照射効果が熱的な効果と相乗して燃料に作用するし核分裂生成物（FP）の効果もある。しかし炉外では熱中性子等の効果が無視でき焼きしまりに対する純熱的な効果を知ることが可能である。さらに炉外再焼結試験で炉内の燃料挙動を知ることができる。USAECの報告⁷⁾によれば炉外1700 $^{\circ}\text{C}$ 、24時間再焼結試験による UO_2 ペレットの密度変化値は炉内での最大焼きしまり量に対応する。

本実験では炉外再焼結試験を1700 $^{\circ}\text{C}$ 、4時間および24時間で行なった。密度測定は形状密度および水液浸密度測定法の2通りの方法で行なった。結果をTable 7に示す。これより以下の知見を得た。

- (1) 粒度および気孔径が小さかったCとA試料の密度変化が大きかった。最大の密度変化はC試料の2.5%TD（1700 $^{\circ}\text{C}$ 、24時間、水液浸）であった。つづいてA試料の1.7%TD、最小はF試料の0.4%TDであった。密度変化値を炉内のそれと比べると次のようになる。

：炉外再焼結試験による密度変化（大きい順に）

C→A→D→B→E→F

：炉内での密度変化（大きい順に）

C→A→B→D→E→F

結果は順番から見るとよく一致していた。全体的な傾向として密度変化（上昇）は炉内のものより炉外再焼結によるもののほうが高かった。（Fig. 19）

- (2) 炉外再焼結試験の密度変化はほぼ24時間で完結する。

4.4.2 NRC炉外再焼結試験とのデータ比較

USAEC(現在USNRC)の最近の報告^{13)~15)}によれば今まで独自の焼きしまりモデルを提示していなかったNRCがその提示を行なった。それによると炉内での最大焼きしまり量は炉外再焼結試験(1700°C, 24時間)における密度の変化量と等価である。さらに焼きしまりの燃焼度依存性⁸⁾も考慮されている。Fig. 20は本実験の結果および内田らの結果をもあわせたNRC焼きしまりモデルにもとづく対応図である。我々の実験結果では炉内密度変化量と1700°C, 24時間炉外再焼結密度変化が必ずしも対応しないという結果を得た。今の場合炉外再焼結実験によって炉内焼きしまりを予測すると実際の値より小さめに出るという結論になった。NRCモデル等の解説は文献(16)に紹介されている。

4.4.3 未照射試料のO/U比

各試料のO/Uの値を酸化重量法およびポーログラフィー法で測定した。結果をTable 8に示す。O/U値は2.005から2.007の間であった。

5. 討 論

5.1 照射前の粒径と焼きしまり

粒径(d_g)と焼きしまり(照射後の密度-照射前の密度, %TD, メタキシレン液浸法による)との関係をFig. 21に示す。図には73F焼きしまり実験の結果も含めてある。実験では粒径の小さかったC試料(初期粒径4.6 μm)およびA試料(3.0 μm)の焼きしまり量が他のものに比べて大きく、粒径の大きいE(10.9 μm), F(10.6 μm)試料は殆んど焼きしまらなかった。初期粒径 $d_g(\mu\text{m})$ と焼きしまり量DENS(%TD)をFig. 21から定量化すると、

$$\text{DENS} \leq 23.3 \exp(-0.0156 d_g) - 19.7$$

$$2 \leq d_g \leq 11$$

となった。

結晶粒の焼きしまり効果は、核分裂スパイクによる気孔、空孔のシンク(沈み)に粒界がなりうることから生じているものと思われる。微細な結晶粒は粒界が多く沢山のシンクがあるので熱活性で移動してきた気孔等がそこで消失し、ペレット全体は気孔消失により高密度化(焼きしまり)をおこす。ただし、粒径が小さいことは即大きな焼きしまりに結びつかない。すなわち他の焼きしまりの因子と考えられる気孔径、気孔分布の安定性、初期密度等も焼きしまり挙動に影響するからである。

5.2 照射前の気孔径と焼きしまり

Fig. 22はFig. 21同様気孔の加重平均直径と焼きしまりとの関係を示したものである。図から、

4.4.2 NRC炉外再焼結試験とのデータ比較

USAEC(現在USNRC)の最近の報告^{13)~15)}によれば今まで独自の焼きしまりモデルを提示していなかったNRCがその提示を行なった。それによると炉内での最大焼きしまり量は炉外再焼結試験(1700℃, 24時間)における密度の変化量と等価である。さらに焼きしまりの燃焼度依存性⁸⁾も考慮されている。Fig. 20は本実験の結果および内田らの結果をもあわせたNRC焼きしまりモデルにもとづく対応図である。我々の実験結果では炉内密度変化量と1700℃, 24時間炉外再焼結密度変化が必ずしも対応しないという結果を得た。今の場合炉外再焼結実験によって炉内焼きしまりを予測すると実際の値より小さめに出るという結論になった。NRCモデル等の解説は文献(16)に紹介されている。

4.4.3 未照射試料のO/U比

各試料のO/Uの値を酸化重量法およびポーラログラフィー法で測定した。結果をTable 8に示す。O/U値は2.005から2.007の間であった。

5. 討 論

5.1 照射前の粒径と焼きしまり

粒径(d_g)と焼きしまり(照射後の密度-照射前の密度, %TD, メタキシレン液浸法による)との関係をFig. 21に示す。図には73F焼きしまり実験の結果も含めてある。実験では粒径の小さかったC試料(初期粒径 $4.6\mu\text{m}$)およびA試料($3.0\mu\text{m}$)の焼きしまり量が他のものに比べて大きく、粒径の大きいE($10.9\mu\text{m}$), F($10.6\mu\text{m}$)試料は殆んど焼きしまらなかった。初期粒径 $d_g(\mu\text{m})$ と焼きしまり量DENS(%TD)をFig. 21から定量化すると、

$$\text{DENS} \leq 23.3 \exp(-0.0156 d_g) - 19.7$$

$$2 \leq d_g \leq 11$$

となった。

結晶粒の焼きしまり効果は、核分裂スパイクによる気孔、空孔のシンク(沈み)に粒界がなりうることから生じているものと思われる。微細な結晶粒は粒界が多く沢山のシンクがあるので熱活性で移動してきた気孔等がそこで消失し、ペレット全体は気孔消失により高密度化(焼きしまり)をおこす。ただし、粒径が小さいことは即大きな焼きしまりに結びつかない。すなわち他の焼きしまりの因子と考えられる気孔径、気孔分布の安定性、初期密度等も焼きしまり挙動に影響するからである。

5.2 照射前の気孔径と焼きしまり

Fig. 22はFig. 21同様気孔の加重平均直径と焼きしまりとの関係を示したものである。図から、

気孔径は焼きしまりの直接因子とはならないことがわかる。すなわちCとF, AとDの気孔径は同程度であったのに、焼きしまり量は大きかったり小さかったりしている。DとFはともに人工ポアの入った安定型気孔分布であったのに、E(平均気孔径26 μ m)が殆んど焼きしもらずB(平均気孔径40 μ m)が1%TD程度焼きしまった。

5.3 照射前の密度と焼きしまり

低密度試料では気孔が多く内在する。同じ気孔でも開気孔(95%TD以下のものに多い)と閉気孔(95%TD以上のものに多い)では作用が異なる。密度と焼きしまりの関係をFig. 23に示す。初期密度の低かったA, BおよびC試料(92~95%TD)は初期密度の高かったD, E, F試料(95~97%TD)より大きく焼きしまった。焼きしまりは95%TDを境にして急激に低下した。C試料は初期密度が95.2%TDと高かったが、これは密度というよりもむしろ気孔分布の変化、粒径の効果による焼きしまりと考えられる。密度効果を補足するため画像解析装置を用いて得た気孔量と焼きしまりの関係をFig. 24に示す。

CとF, AとEには等量の気孔に対し焼きしまりの程度に差があった。

5.4 サブミクロンポアの焼きしまり効果

サブミクロンポロシティの焼きしまりに対する効果をFig. 25に示す。この量の多かったAとCは焼きしまりを大きくおこした。ただし気孔量全体に対してこの量の占める率が少なく、焼きしまりに対する寄与の傾向を知るだけにとどまった。

5.5 因子(パラメータ)効果

すでに述べたように焼きしまり因子として初期密度、粒度および気孔度(気孔分布)を考えた。実際の焼きしまり現象はこれらの因子等の相乗作用により生ずるものと考えられるが、他因子の条件をそろえて1因子のみの効果を比較することも興味深いと考えられる。

5.5.1 初期密度の焼きしまり効果

AとC, BとE, DとFで比較する。Table 9は比較を行なった結果である。

AとCでは密度の高いCがよく焼きしまった(これは一見矛盾しているようであるが、他の因子を抑えたための帰結であると考えられる)。BとEでは密度の低いBがEの5倍程度焼きしまり、DとFでは同様に密度の低いDが4倍程度焼きしまった(Fの気孔分布の不安定が大きく影響しなかったのは高密度にともなう閉気孔が焼きしまりの抑圧に作用したと考えられる)。以上総じて低密度のものは高密度のものよりも焼きしまりしやすいことがわかった。

5.5.2 初期密度の焼きしまり効果

CとDについて比較した結果をTable 10に示す。Dに比べ粒径が半分程度のCが約5倍も焼き

しまった。粒径の小さなものは大きいものと比べて焼きしまりをおこしやすいと言える。

5.5.3 初期気孔度の焼きしまり効果

DとEとで比較した結果をまとめてTable 11に示す。Eに比べ平均気孔径の小さいDが2倍程度焼きしまった。気孔径の小さいものは大きいものに比べて焼きしまりやすいと言える。

初期密度^{4),5)}, 初期粒度⁶⁾, 初期気孔度の焼きしまり効果より得た結果は、H. Stehle, M. D. Freshly¹⁰⁾, W. Chubb¹¹⁾, S. R. MacEwen¹²⁾ および Rolstad¹²⁾ らの結果と一致した。

6. 結 言

燃料の照射による焼きしまり挙動を調べるためUO₂ペレットを用い、初期密度、結晶粒度、気孔度(気孔分布)を変数(パラメーター)にした実験を行ない下記の結論を得た。

- 1 初期密度の小さいものは焼きしまり程度が大きく1.5~2.0%TDの密度上昇があった。しかし初期密度の高いものは殆んど焼きしまらず約0.1%TDの密度上昇であった。
- 2 試料初期粒径は3~11 μ mの範囲であった。照射により粒径の小さいものは焼きしまりが大きく、大きいものはそれが小さかった。
- 3 気孔径の小さいものは焼きしまりが大きかった。ただし気孔は単独に焼きしまりに作用するのではなく気孔分布とあわせて焼きしまりに影響する。安定型の気孔分布は焼きしまりが小さく、不安定型のそれは焼きしまりが大きかった。
- 4 炉外再焼結試験での密度変化は1700 $^{\circ}$ C, 24時間で完結した。

謝 辞

本実験の遂行にあたって、総括責任者として適切な助言と協力を賜われた安工部部長村主進氏に心から感謝いたします。また照射後試験とそのデータ作製につきましては大洗研究所ホットラボ課の青山功、大内正博氏、図表の整理等につきましては当燃料安全第1研の藤田操氏に御世話になりました。御礼を申し上げます。

しまった。粒径の小さなものは大きいものと比べて焼きしまりをおこしやすいと言える。

5.5.3 初期気孔度の焼きしまり効果

DとEとで比較した結果をまとめてTable 11に示す。Eに比べ平均気孔径の小さいDが2倍程度焼きしまった。気孔径の小さいものは大きいものに比べて焼きしまりやすいと言える。

初期密度^{4),5)}, 初期粒度⁶⁾, 初期気孔度の焼きしまり効果より得た結果は、H. Stehle, M. D. Freshly¹⁰⁾, W. Chubb¹¹⁾, S. R. MacEwen¹²⁾ および Rolstad¹²⁾ らの結果と一致した。

6. 結 言

燃料の照射による焼きしまり挙動を調べるため UO_2 ペレットを用い、初期密度、結晶粒度、気孔度(気孔分布)を変数(パラメーター)にした実験を行ない下記の結論を得た。

- 1 初期密度の小さいものは焼きしまり程度が大きく1.5~2.0%TDの密度上昇があった。しかし初期密度の高いものは殆んど焼きしまらず約0.1%TDの密度上昇であった。
- 2 試料初期粒径は3~11 μm の範囲であった。照射により粒径の小さいものは焼きしまりが大きく、大きいものはそれが小さかった。
- 3 気孔径の小さいものは焼きしまりが大きかった。ただし気孔は単独に焼きしまりに作用するのではなく気孔分布とあわせて焼きしまりに影響する。安定型の気孔分布は焼きしまりが小さく、不安定型のそれは焼きしまりが大きかった。
- 4 炉外再焼結試験での密度変化は1700 $^{\circ}C$, 24時間で完結した。

謝 辞

本実験の遂行にあたって、総括責任者として適切な助言と協力を賜われた安工部部長村主進氏に心から感謝いたします。また照射後試験とそのデータ作製につきましては大洗研究所ホットラボ課の青山功、大内正博氏、図表の整理等につきましては当燃料安全第1研の藤田操氏に御世話になりました。御礼を申し上げます。

しまった。粒径の小さなものは大きいものと比べて焼きしまりをおこしやすいと言える。

5.5.3 初期気孔度の焼きしまり効果

DとEとで比較した結果をまとめてTable 11に示す。Eに比べ平均気孔径の小さいDが2倍程度焼きしまった。気孔径の小さいものは大きいものに比べて焼きしまりやすいと言える。

初期密度⁶⁾、初期粒度¹⁰⁾、初期気孔度の焼きしまり効果より得た結果は、H. Stehle^{4),5)}, M. D. Freshly⁶⁾, W. Chubb¹⁰⁾, S. R. MacEwen¹¹⁾ および Rolstad¹²⁾ らの結果と一致した。

6. 結 言

燃料の照射による焼きしまり挙動を調べるためUO₂ペレットを用い、初期密度、結晶粒度、気孔度(気孔分布)を変数(パラメーター)にした実験を行ない下記の結論を得た。

- 1 初期密度の小さいものは焼きしまり程度が大きく1.5~2.0%TDの密度上昇があった。しかし初期密度の高いものは殆んど焼きしまらず約0.1%TDの密度上昇であった。
- 2 試料初期粒径は3~11 μ mの範囲であった。照射により粒径の小さいものは焼きしまりが大きく、大きいものはそれが小さかった。
- 3 気孔径の小さいものは焼きしまりが大きかった。ただし気孔は単独に焼きしまりに作用するのではなく気孔分布とあわせて焼きしまりに影響する。安定型の気孔分布は焼きしまりが小さく、不安定型のそれは焼きしまりが大きかった。
- 4 炉外再焼結試験での密度変化は1700 $^{\circ}$ C、24時間で完結した。

謝 辞

本実験の遂行にあたって、総括責任者として適切な助言と協力を賜われた安工部部長村主進氏に心から感謝いたします。また照射後試験とそのデータ作製につきましては大洗研究所ホットラボ課の青山功、大内正博氏、図表の整理等につきましては当燃料安全第1研の藤田操氏に御世話になりました。御礼を申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 浅田他：原子力ハンドブック，オーム社（1976）
- 2) 柳澤：JAERI-M 7158 "UO₂ペレットの密度測定法の相関関係"（1977）
- 3) 柳澤：JAERI-M 6839 "結晶粒度の概念，定義および測定法 - UO₂ペレットの粒径決定 -"
（1976）
- 4) H. Stehle et al., Nucl. Eng. Design 33, 230 (1975)
- 5) ibid., J. Nucl. Mat., 61, 326 (1976)
- 6) M.D. Freshly et al., J. Nucl. Mat., 62, 138 (1976)
- 7) USAEC, Supplement 1 to the Technical Report on Densification of
GE Reactor Fuels, 14 (1973)
- 8) M. Uchida, K. Yanagisawa, M. Ichikawa, JAERI-M6904 "Densification
of Uranium Dioxide Fuel Pellets(I)" (1977)
- 9) J. Belle, "Uranium Dioxide Properties and Nuclear Applications"
(1961)
- 10) W. Chubb et al., Nucl. Tech., 26, 486 (1975)
- 11) S.R. MacEven et al., Phil. Mag., 31, 1 (1974)
- 12) Rolstad, OECD Halden Reactor Project ; 40th Annu. Report, 62 (1973)
- 13) R.O. Meyer, USNRC Report NUREG-0085 (1976)
- 14) "An Acceptable Model and Related Statistical Methods for the
Analysis of Fuel Densification" USNRC Regulatory Guide 1.126
- 15) "Technical Report on Densification of LWR Fuels", USAEC Regulatory
Staff Report, WASH-1236 (1972)
- 16) K. Yanagisawa, to be published.

Table 1 Specification of the fuel rod and Irradiation conditions.

(1) Fuel Pellet

Material	:	Uranium Dioxide (UO ₂)
Enrichment	:	1.8 w/o
End Form	:	Dished at both ends with chanfer
Dimensions	:	14.40 mm diameter 18.0 mm height
Density	:	Three sort of species (92.5, 95, 97 %TD)

(2) Cladding

Material	:	Zircaloy-2
Dimensions	:	16.40 mm O.D. 0.80 mm thickness

(3) Fuel Rod Design

Total length	:	848 mm
Fuel length	:	698 mm
Gap size of pellet-cladding:		0.30 mm

(4) Irradiation Conditions

Linear Heat Rating	:	max. 540 W/cm average 400 W/cm
Irradiation Cycle	:	3 cycles
Burn Up	:	max. 2320 MWd/t (200 GJ/g) average 1720 MWd/t (150 GJ/g)
Fuel total power level	:	60 kW
Electric conductance	:	0.3 μΩ/cm
Dissolved oxygen	:	33 ppb
PH	:	7.0
Clad inlet pressure	:	9.2 MPa
Total inlet flowing water	:	44 kg/min
Fuel outlet temperature	:	285 °C
Fuel inlet temperature	:	269 °C
Clad outlet temperature	:	272 °C
Clad inlet temperature	:	256 °C

Table 2 Impurities in the UO₂ pellets.

(ppm)

Element	Specification	Type of pellet					
		A	B	C	D	E	F
Fe	≤200	180	175	180	175	170	175
Mg	≤100	16	14	16	14	15	10
Mo	≤ 50	2	3	2	2	3	2
N	≤200	38	32	28	33	38	28
Ni	≤ 70	8	8	9	7	8	7
Pb	≤100	1.2	1.4	1.2	1.4	1.2	1.2
Si	≤200	18	20	19	20	25	24
Volatile impurities	≤ 60 ul/g	14	11	12	8	12	17
Dy+Eu+Gd+Sm	-	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2

Table 3 Effect of the irradiation on the density of pellets.
(Each value were estimated with 99% confidence coefficient.) (% TD)

Type	A	B	C	D	E	F
Normalization: geometrical density	92.5 ^{+1.0} _{-1.5}	92.5 ^{+1.0} _{-1.5}	95. ^{+1.5} _{-1.0}	95. ^{+1.5} _{-1.0}	95. ^{+1.5} _{-1.0}	97. ^{+1.5} _{-1.0}
grain size	small	large	small	large	large	large
pore size	small	large	small	small	large	small
pore formers	-	naphthalene	-	-	naphthalene	-
Density: Pre-irradiat.						
geometrical	92.94±0.32	92.99±0.38	95.28±0.33	95.50±0.21	95.76±0.41	97.37±0.18
water	94.23±0.26	93.32±0.48	95.43±0.21	95.71±0.12	95.95±0.19	97.63±0.13
(1)						
meta-xylene	94.34±0.28	93.07±0.94	95.22±0.33	95.60±0.46	95.85±0.87	97.50±0.42
Post-irradiat.						
(2)						
meta-xylene	95.93±0.20	93.99±0.35	97.21±0.35	96.03±0.17	96.05±0.18	97.61±0.26
Densification:						
(2)-(1)	1.59	0.92	1.99	0.43	0.20	0.11
Fractional density change						
$\frac{(2)-(1)}{(1)}$	1.69×10 ⁻²	0.99×10 ⁻²	2.09×10 ⁻²	0.45×10 ⁻²	0.21×10 ⁻²	0.11×10 ⁻²

Table 4 Pre-and post-irradiation grain size (*).

	A	B	C	D	E	F
Normalization :	small	large	small	large	large	large
(1) Pre-irradiat.	3.0	7.8	4.6	9.4	10.9	10.6
(2) Post-irradiat.	3.4	6.2	4.0	14.9	10.7	15.0
Difference (2)-(1)	0.4	-1.6	-0.6	5.5	-0.2	4.4

(*) Grain sizes obtained here were multiplying a two-dimensional, mean intercept diameter by 1.2 for the conversion of a two-dimensional into the three-dimensional intercept measurements.

Table 5 Effect of irradiation on porosity and pore diameter.

Type	A	B	C	D	E	F
Normalization:	small	large	small	small	large	small
pore formers	-	Naphthalene	-	-	Naphthalene	-
Porosity : (1) pre-irradiat.	4.64	6.85	2.30	3.97	4.76	2.41
(2) post-irradiat.	2.38	6.11	1.44	1.92	4.41	1.69
<u>porosity change</u>	2.26	0.74	0.86	2.05	0.35	0.72
(1)-(2)						
Weighted mean pore diameter *)						
(μm) (3) pre-irradiat.	15.5	30.5	11.1	16.2	25.7	7.6
(4) post-irradiat.	17.7	56.0	44.9	21.5	45.5	18.1
<u>diameter change</u>	2.2	25.5	33.8	5.3	19.8	10.5
(4)-(3)						

*) Used two dimensional, circle equivalent diameter model.

Table 6 Effect of irradiation on sub-micron porosity.

Type	A	B	C	D	E	F
Sub-micron porosity :						
(1) pre-irradiat.	0.33	0.19	0.30	0.19	0.20	0.20
(2) post-irradiat.	0.32	0.16	0.28	0.13	0.18	0.19
<u>sub-micron porosity change</u>						
(1)-(2)	0.01	0.03	0.02	0.06	0.02	0.09

(%)

Table 7 Change in density during out-of-reactor resintering tests (Geometrical and Water-immersion method).

Type	A	B	C	D	E	F	
Temperature							
Time	Method						
4 hr	geometrical	2.50	0.18	2.25	0.33	0.19	0.28
	water-immersion	1.71	0.21	2.20	0.36	0.21	0.28
24hr	geometrical	2.86	0.25	2.47	0.54	0.46	0.52
	water-immersion	1.71	0.45	2.53	0.47	0.44	0.40

1 700°C

(%TD)

Table 8 O/U ratio by two different procedure.

Type	A	B	C	D	E	F
Gravimetric procedure	2.01	2.01	2.01	2.01	2.01	2.01
Polarographic procedure	2.006	2.005	2.007	2.007	2.006	2.005

Table 9 Effect of the pre-irradiation theoretical density on densification.

Sample	A	C	B	E	D	F
Density :	94.34	95.22	93.07	95.85	95.60	97.50
Grain size : (μm)	3.0	4.6	7.8	10.9	9.4	10.6
Pore size : (μm)	15.5	11.1	30.5	25.7	16.2	7.6
Pore size distribution :	meta-stable	unstable	stable	stable	meta-stable	unstable
Densification : (%TD)	1.6	< 2.0	0.9	> 0.2	0.4	> 0.1

Table 10 Effect of the pre-irradiation grain size on densification.

Sample	:	C	D
Grain size	:(μm)	4.6	9.4
Density	:(%TD)	95.22	95.60
Pore size	:(μm)	11.1	16.2
Pore size distribution	:	unstable	metastable
Densification (%TD)	:	2.0	> 0.4

Table 11 Effect of the pre-irradiation pore size on densification.

Sample	:	D	E
Pore size	:(μm)	16.2	25.7
Pore distribution	:	metastable	stable
Density	:(%TD)	95.60	95.85
Grain size	:(μm)	9.4	10.9
Densification (%TD)	:	0.4	> 0.2

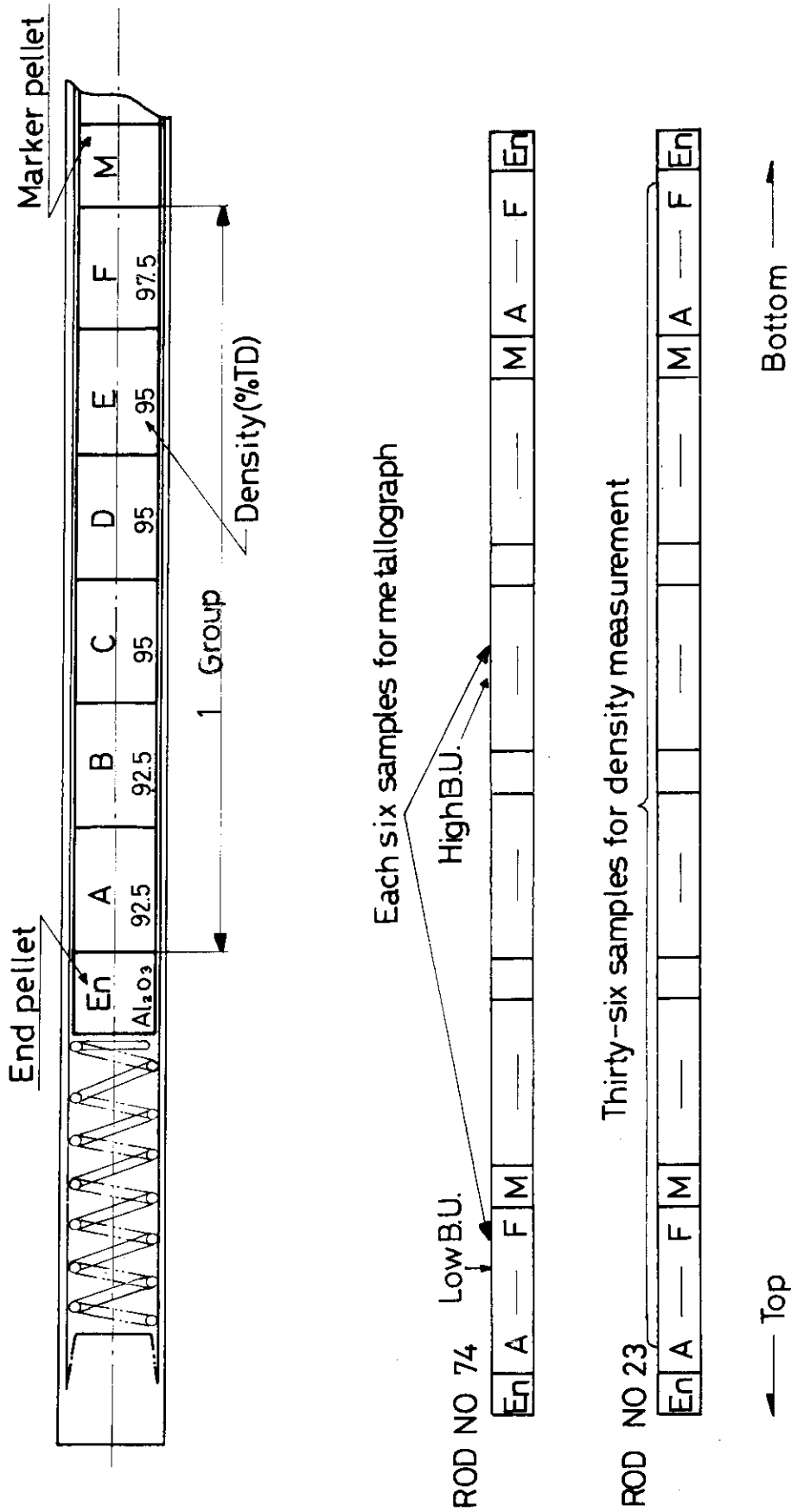


Fig. 1 Schematic drawings of the capsule 74LF23A. Each six kind of UO₂ pellets were arranged and named from A to F. Rod No 74 was used for metallographic and No 23 for density measurement.

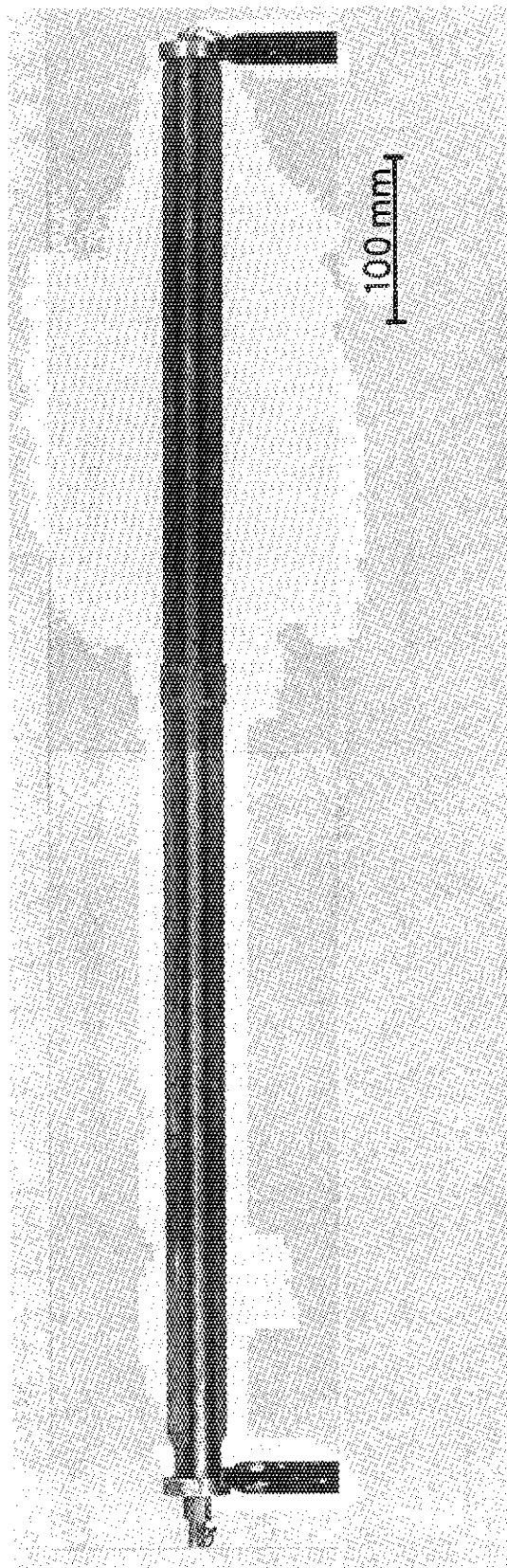
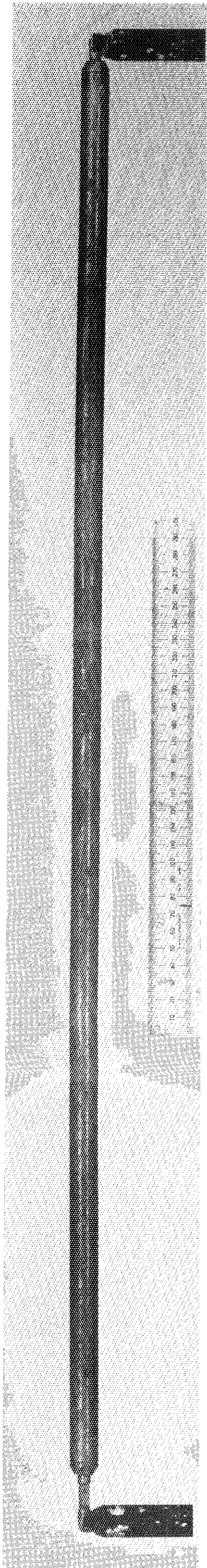
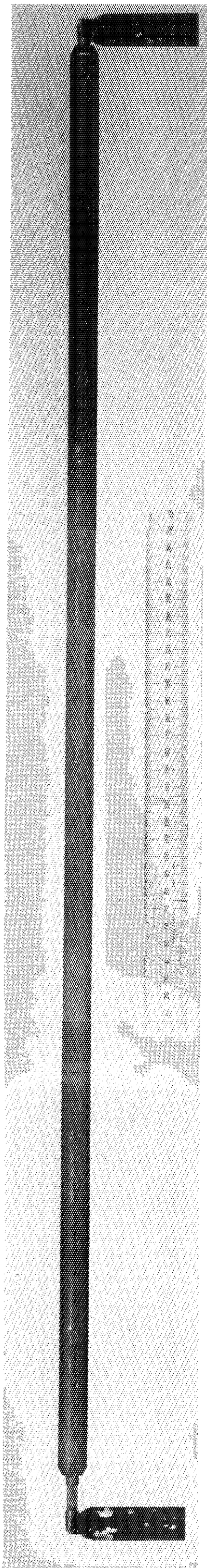


Fig. 2 Fuel assemblies after irradiation.



(a)



(b)

Fig. 3 Fuel Rod after irradiation (Rod No 74)

(a) Rod No 74, (b) Rod No 23

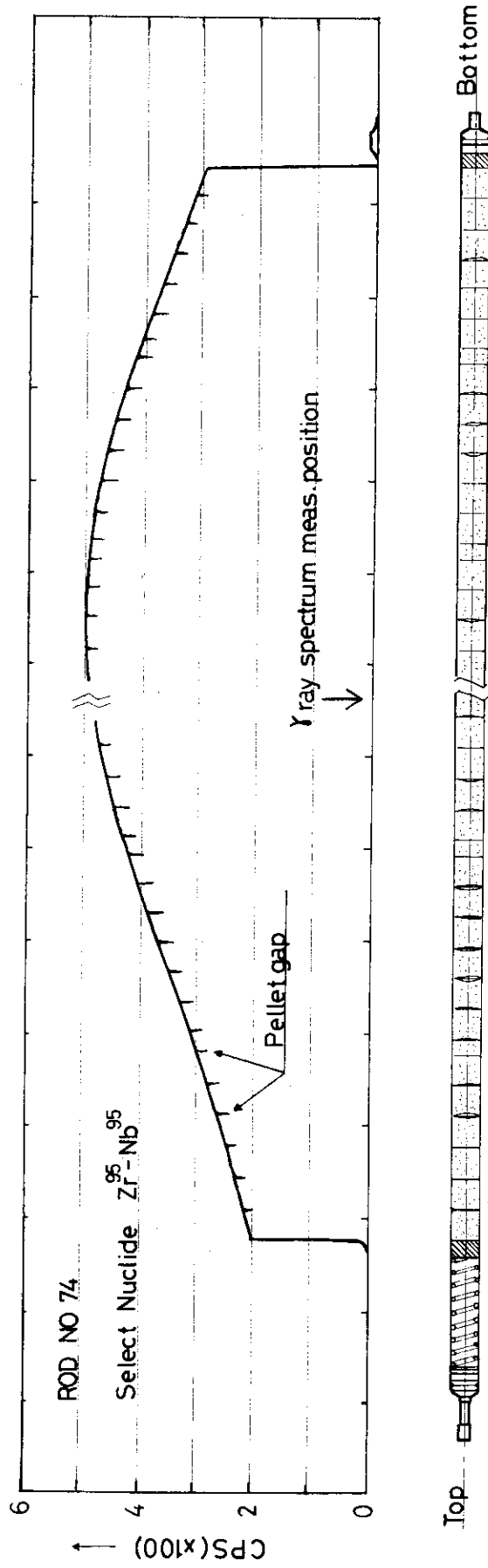


Fig. 4 Gamma-scanning for rod No 74.

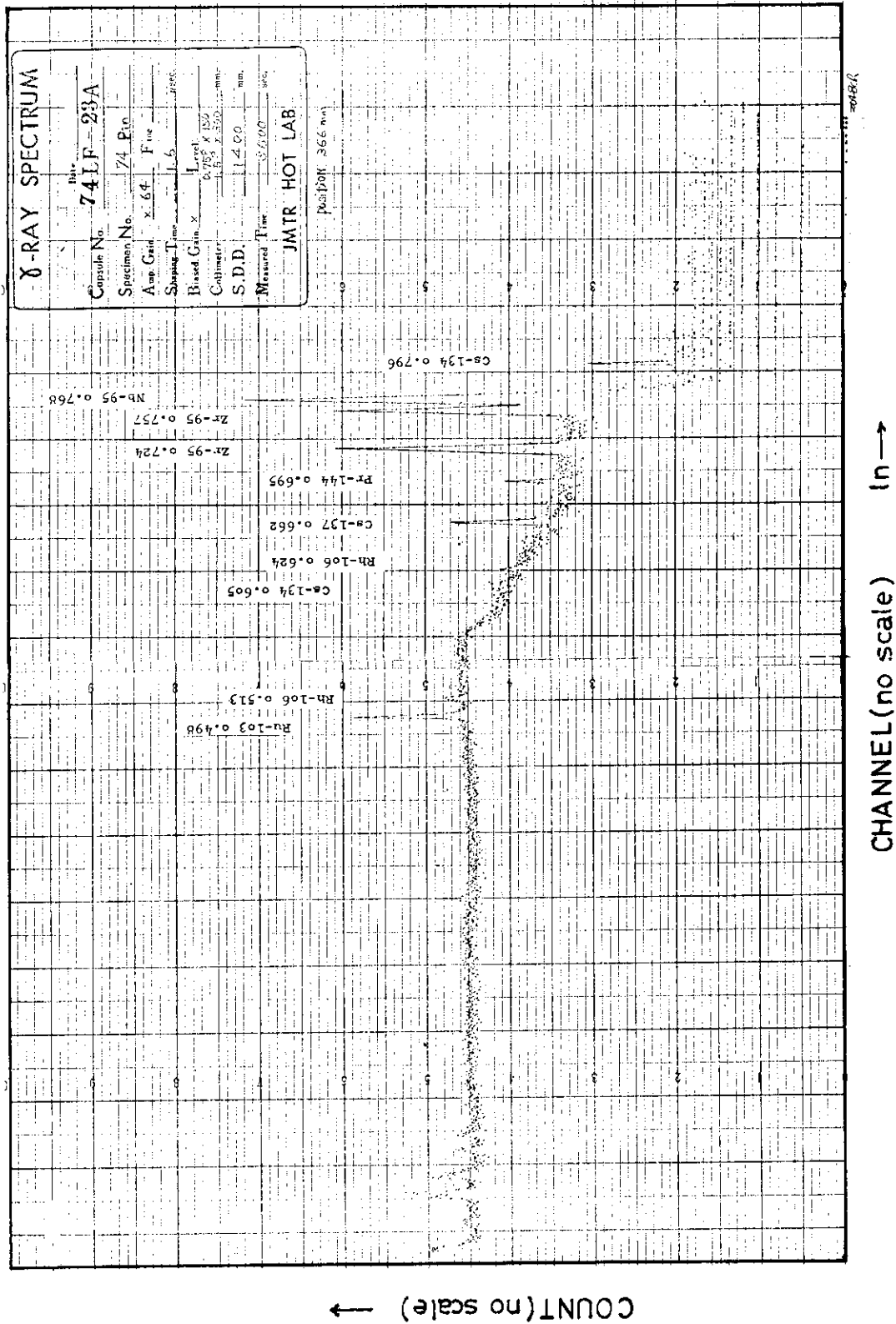
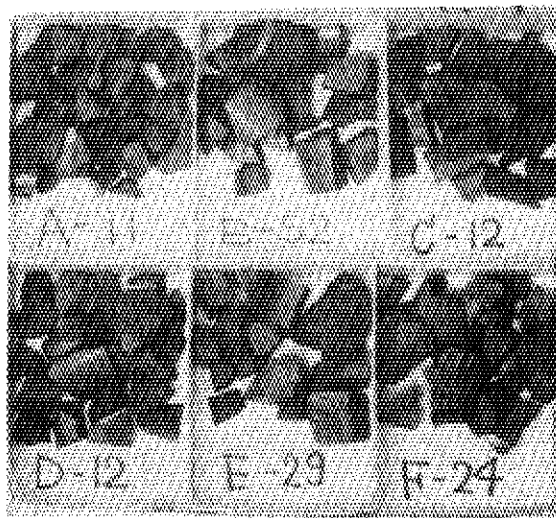
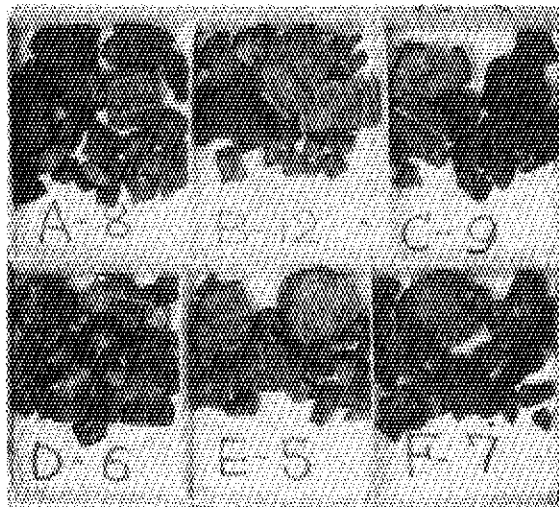


Fig. 5 Gamma-ray spectrum for the pellet at the center position.



(I)



(II)

Fig. 6 UO_2 pellets dismantled from the Rod.
(I) Placed at low linear heat rating (<400 W/cm)
(II) High linear heat rating (≈ 540 W/cm)

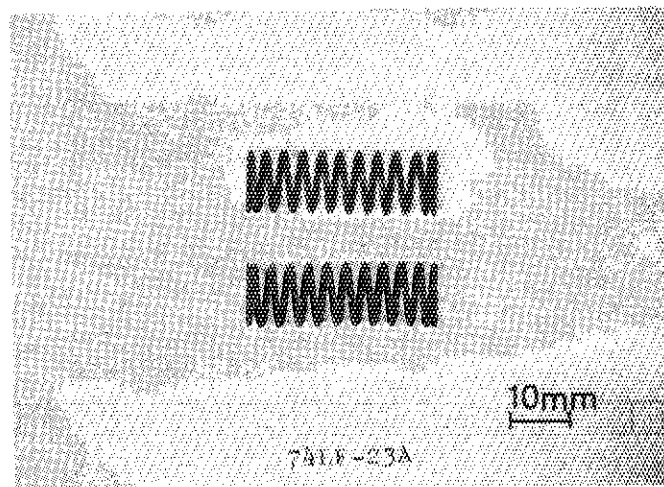


Fig. 7 Rod spring after irradiation

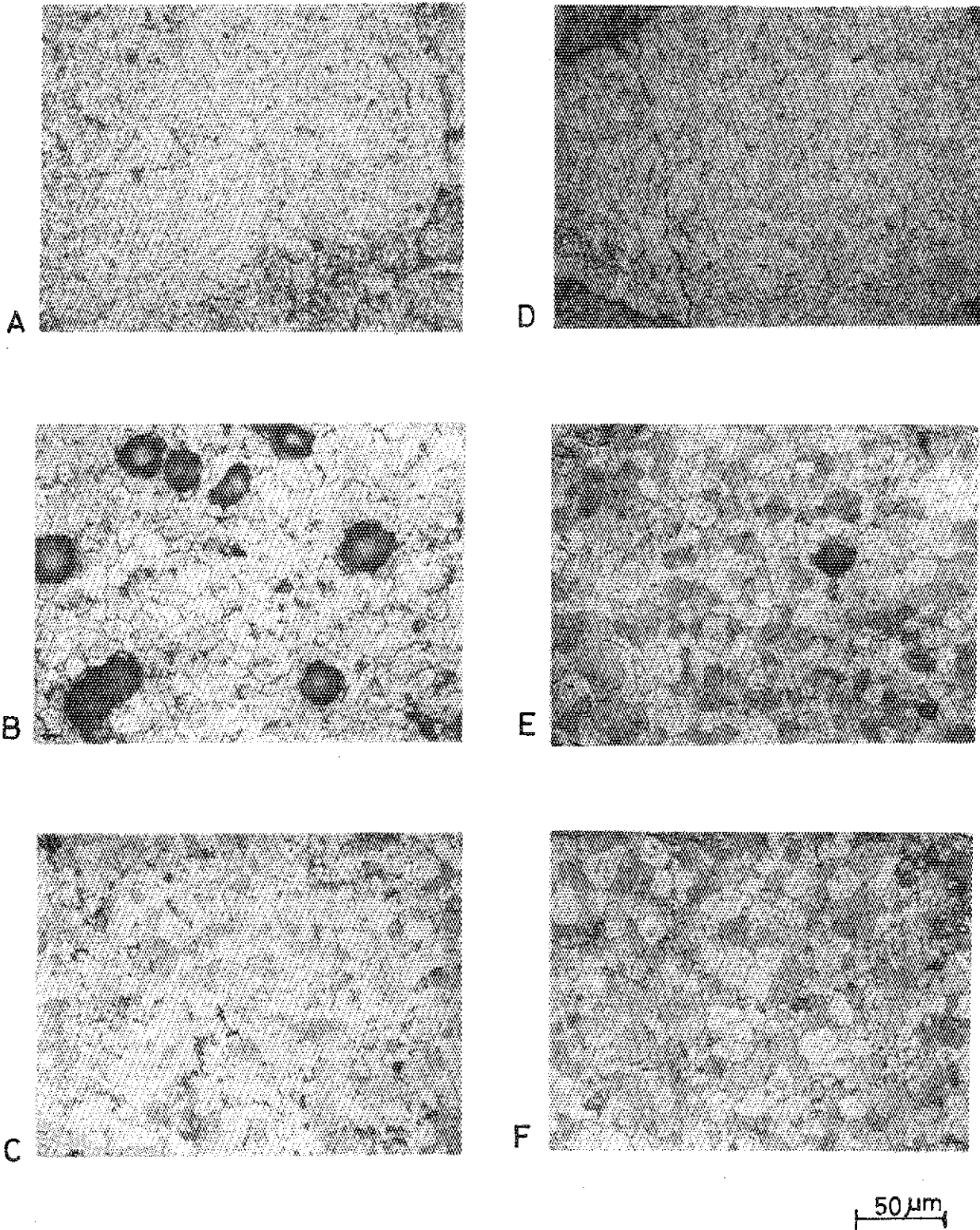


Fig. 8 Photomicrograph of the pre-irradiated UO_2 pellets. Etched ; $H_2O_2/H_2SO_4=8/1$ solution. Magnification of the picture were in all the same.

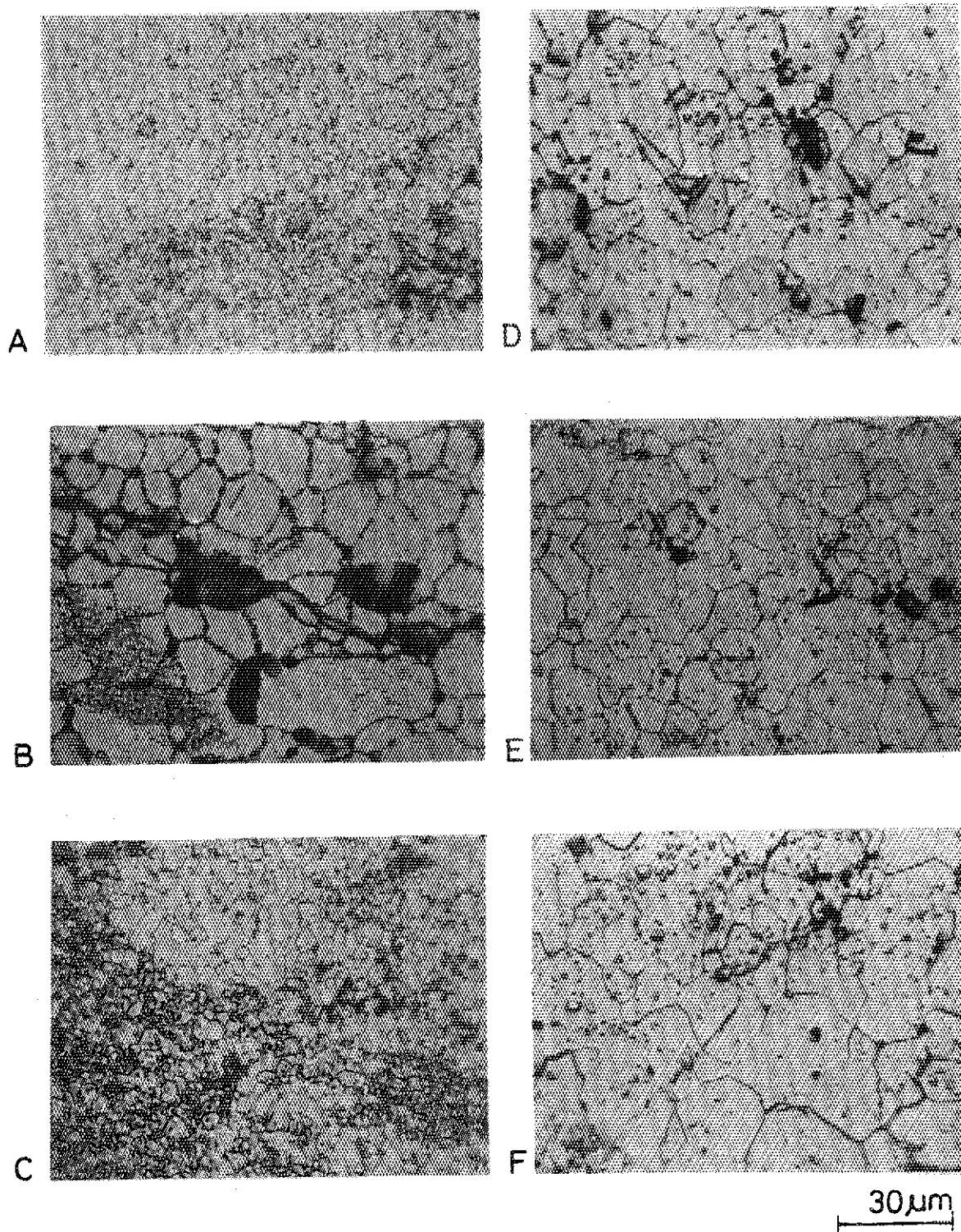
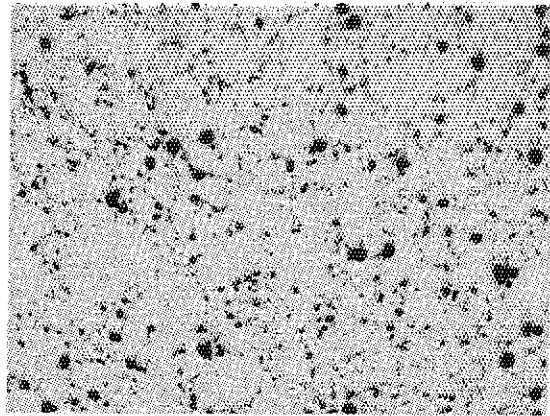
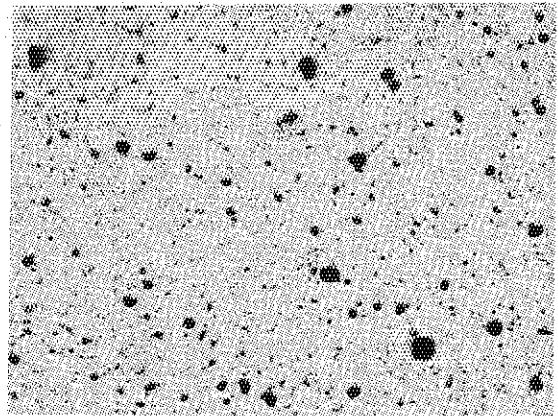


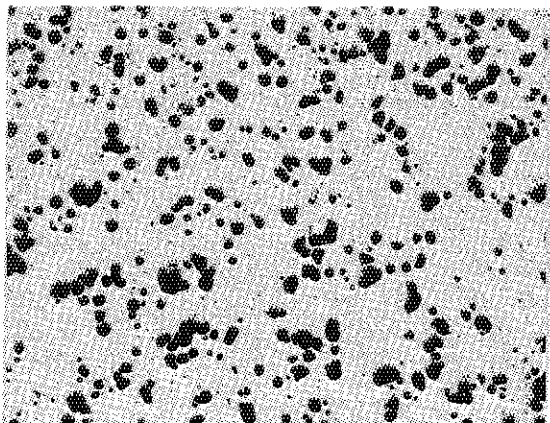
Fig. 9 Photomicrograph of the post-irradiated, etched UO_2 pellets. Etching solution ; $H_2O_2/H_2SO_4=8/1$



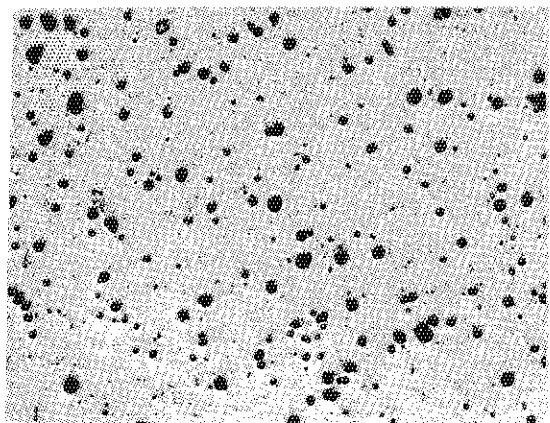
A



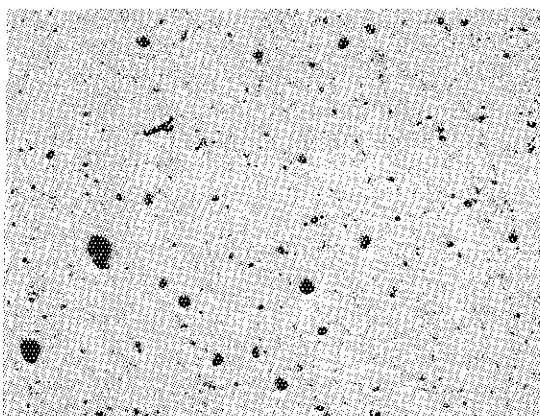
D



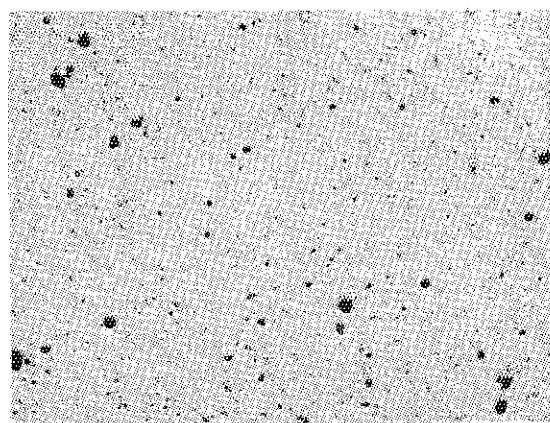
B



E



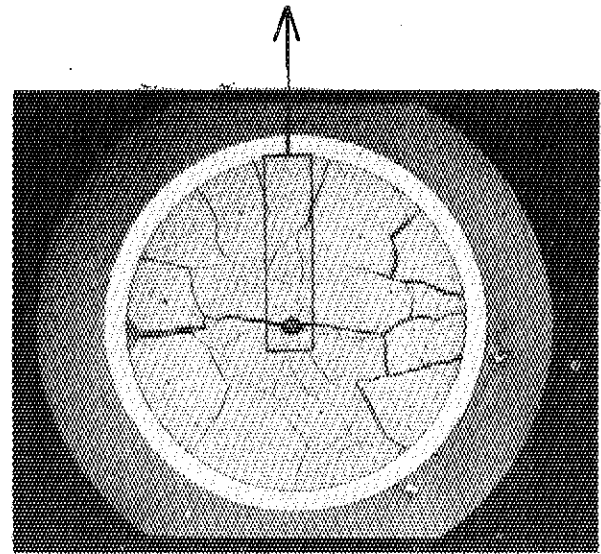
C



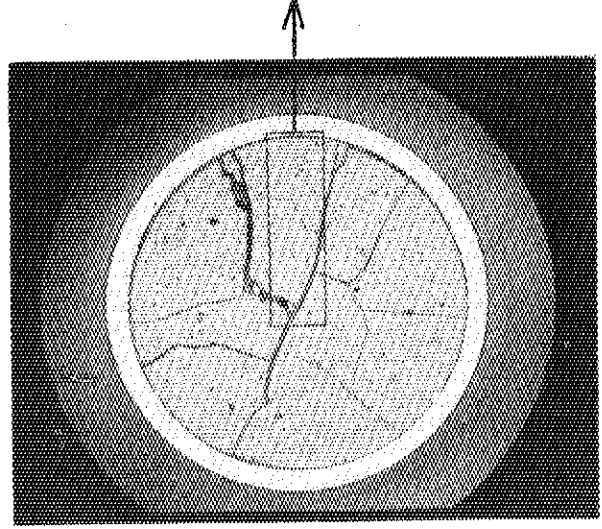
F

400μm

Fig. 10 Photomicrograph of the pre-irradiated, unetched UO_2 pellets.



(a)



(b)

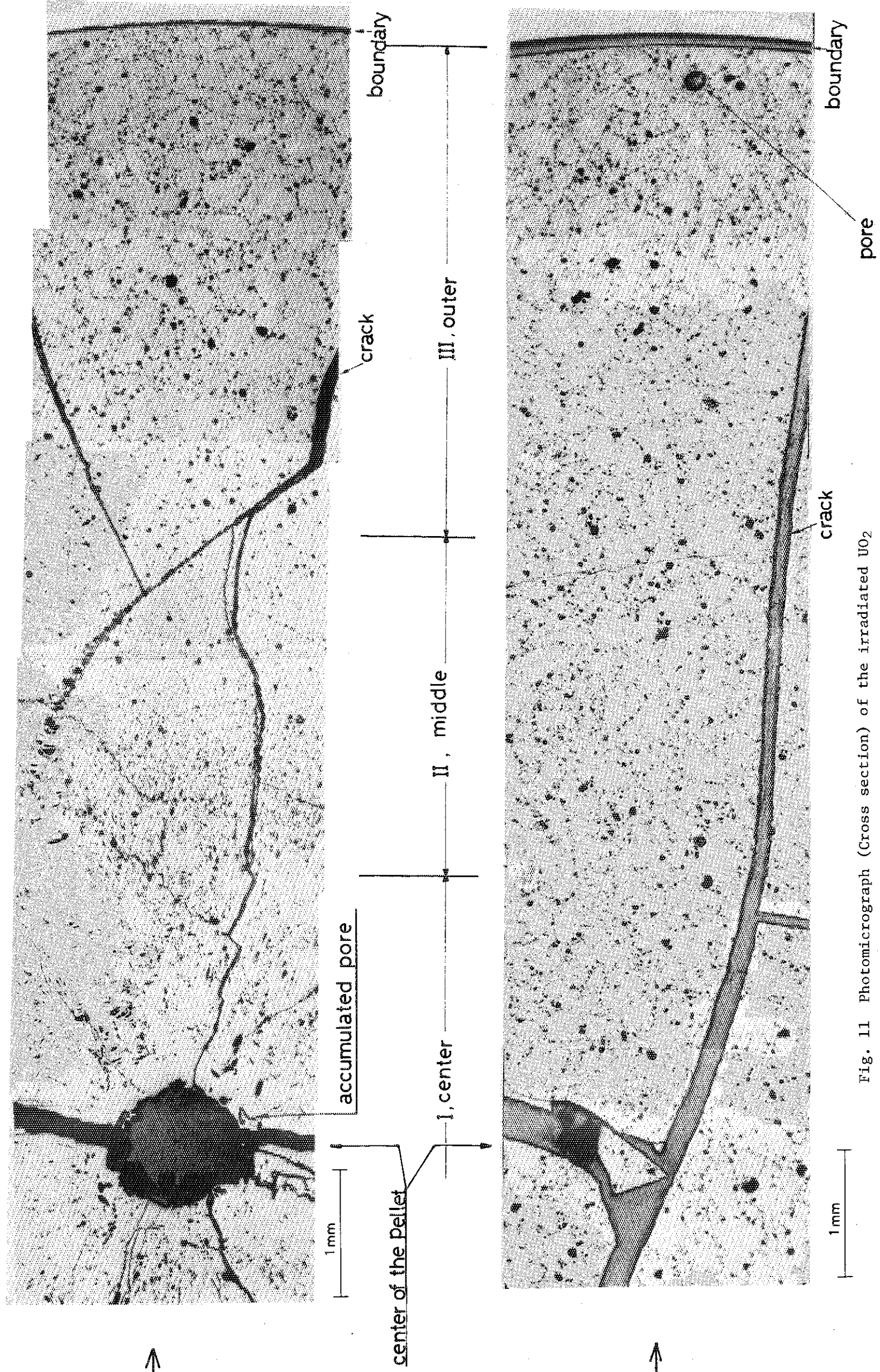
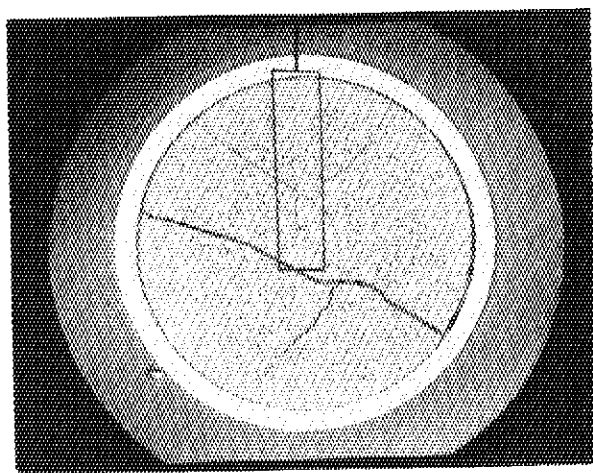
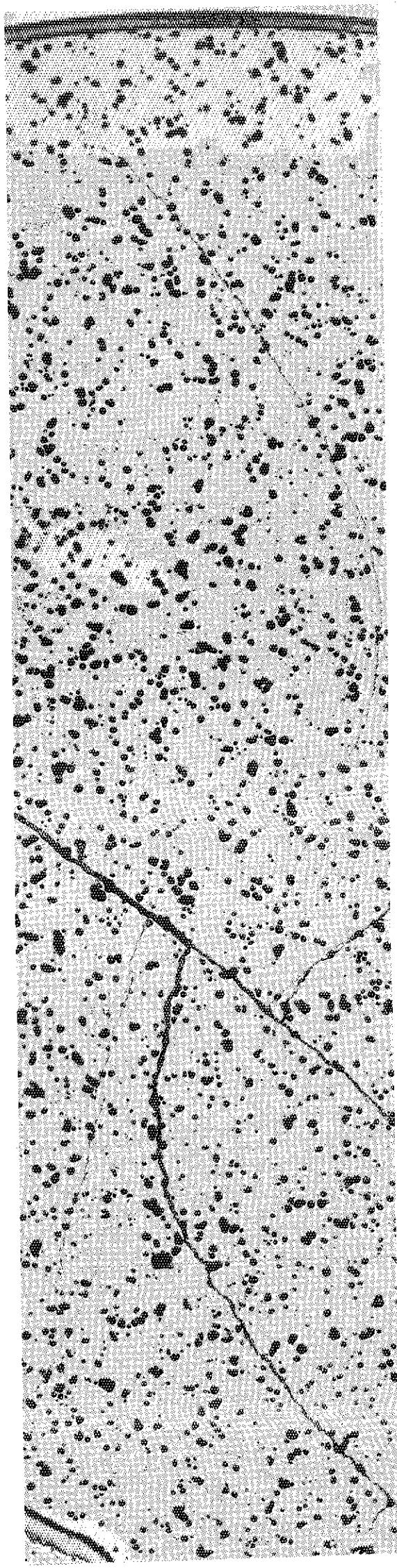
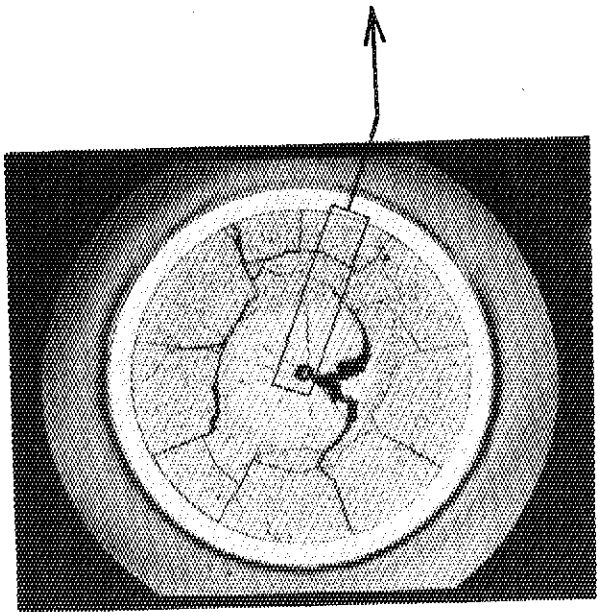
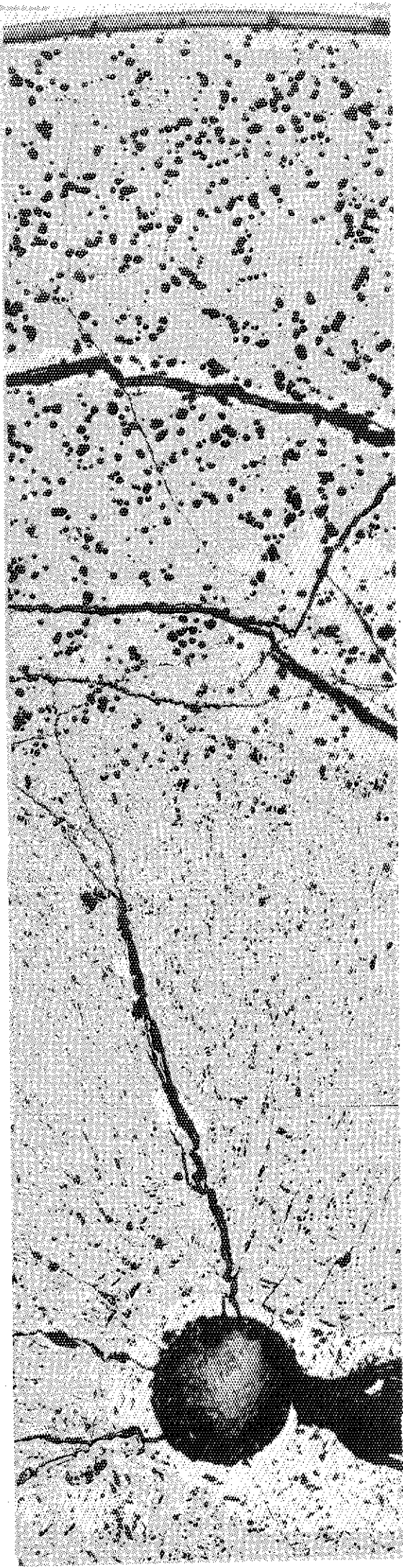


Fig. 11 Photomicrograph (Cross section) of the irradiated UO_2 fuel pellet (Specimen A)
 (a) placed at a high linear heat rating (LHR) region
 (b) a low LHR region



(b)

Fig. 12 Photomicrograph of the irradiated UO₂ fuel pellet

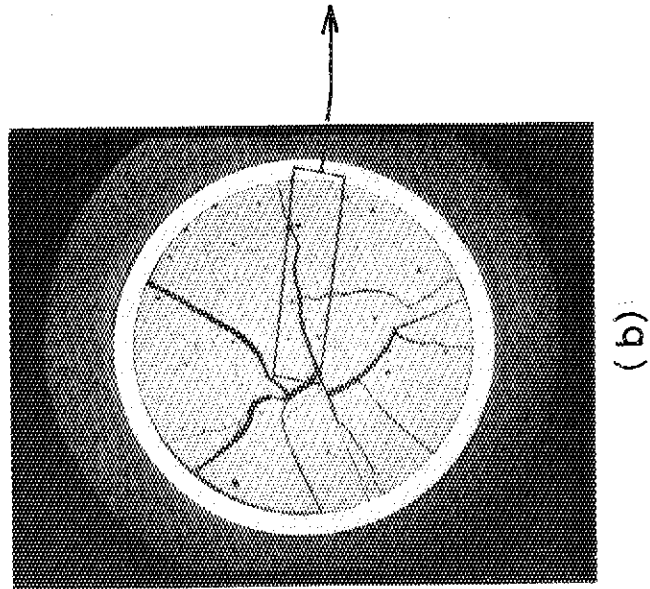
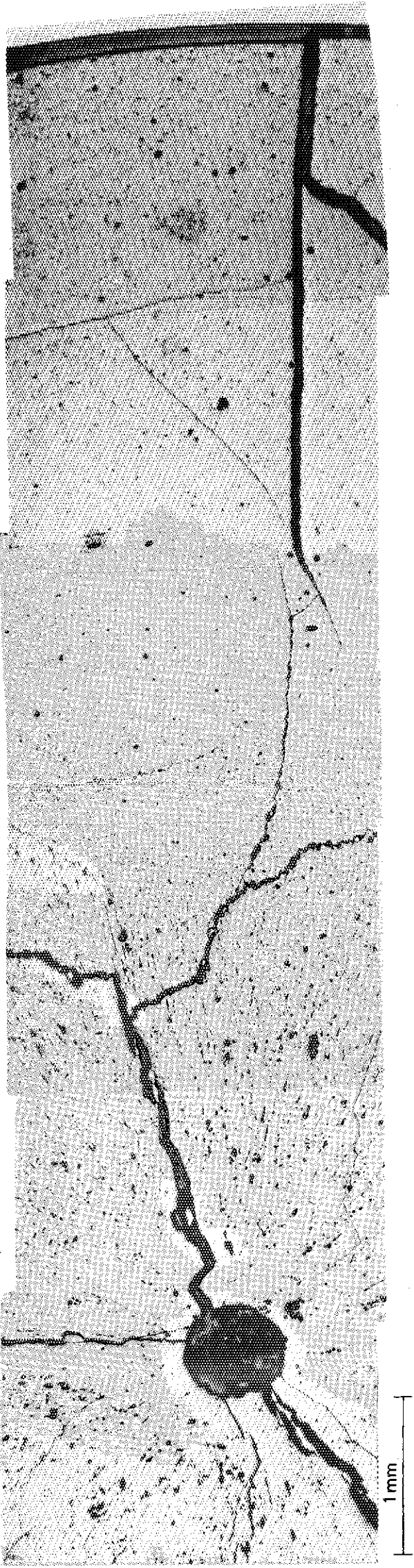
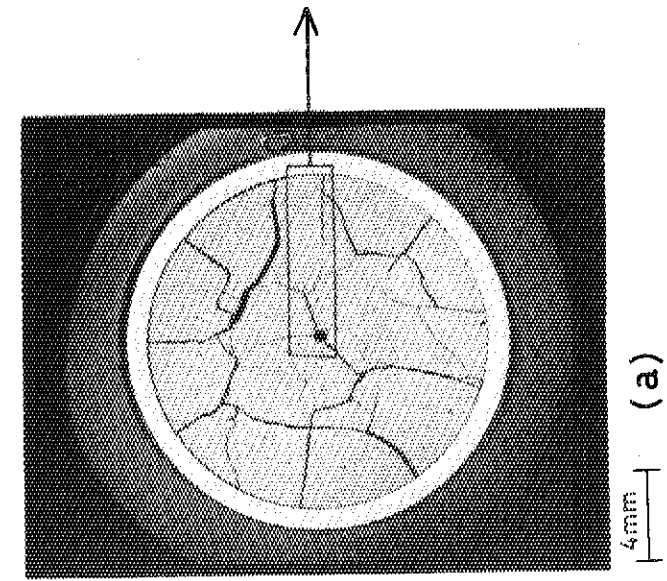


Fig. 13 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet (Specimen C)

(a) a high LHR (b) a low LHR

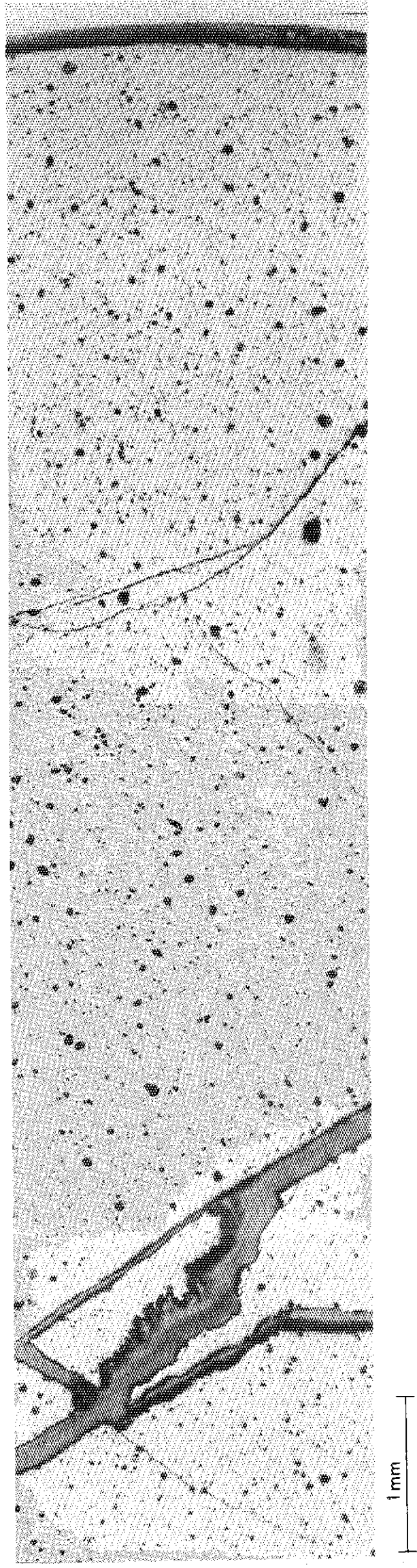
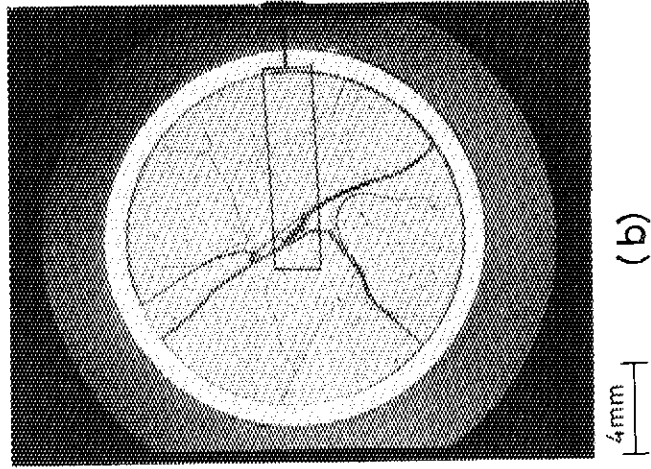
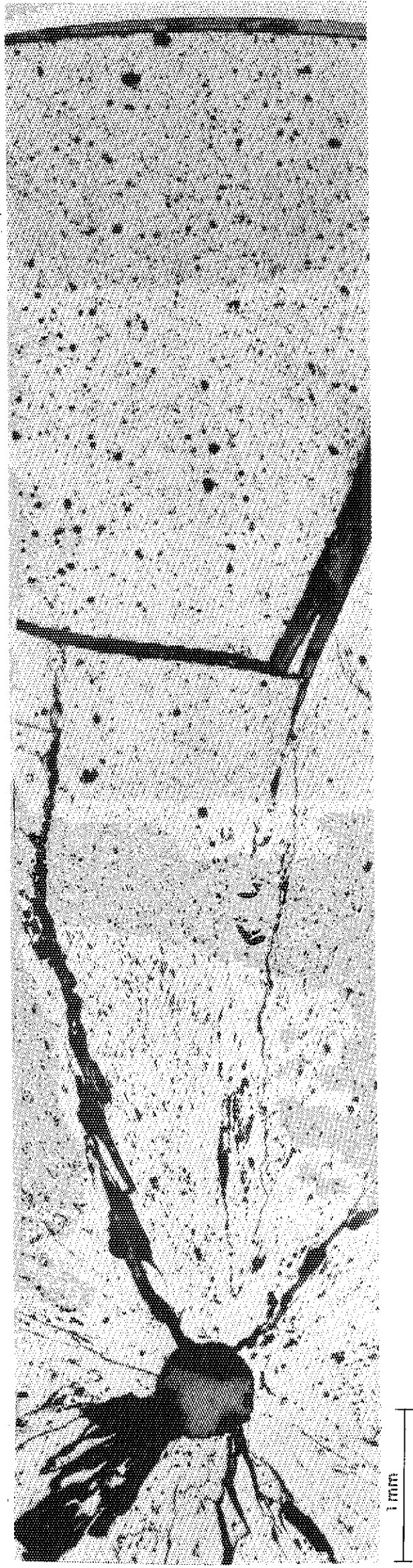
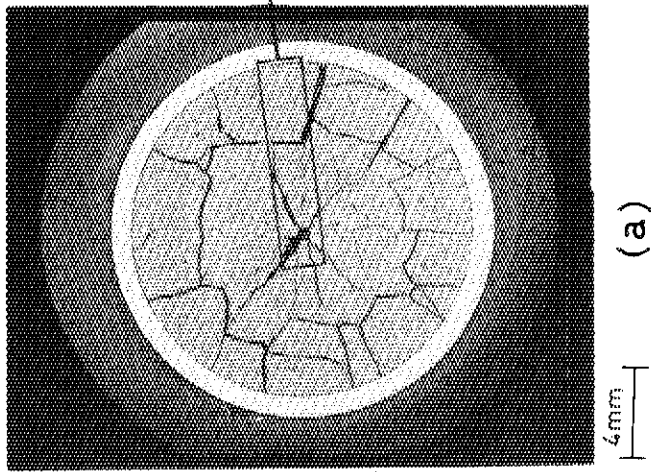
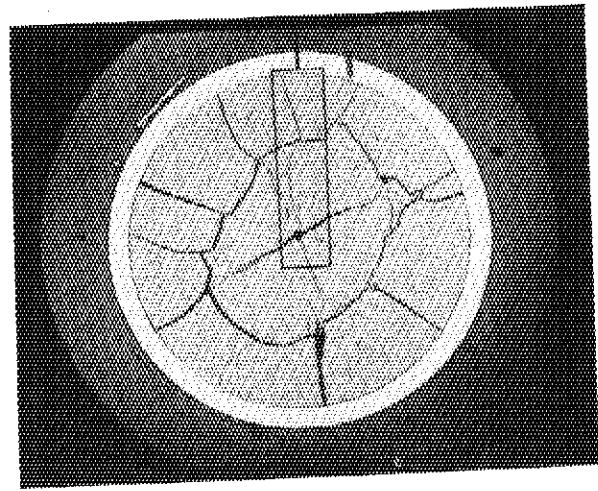
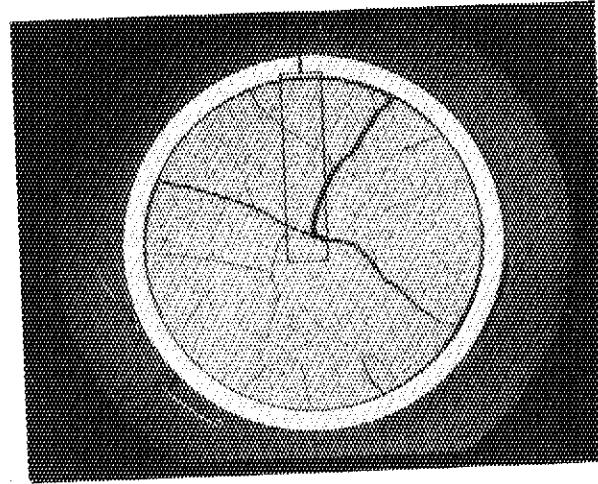


Fig. 14 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen D)

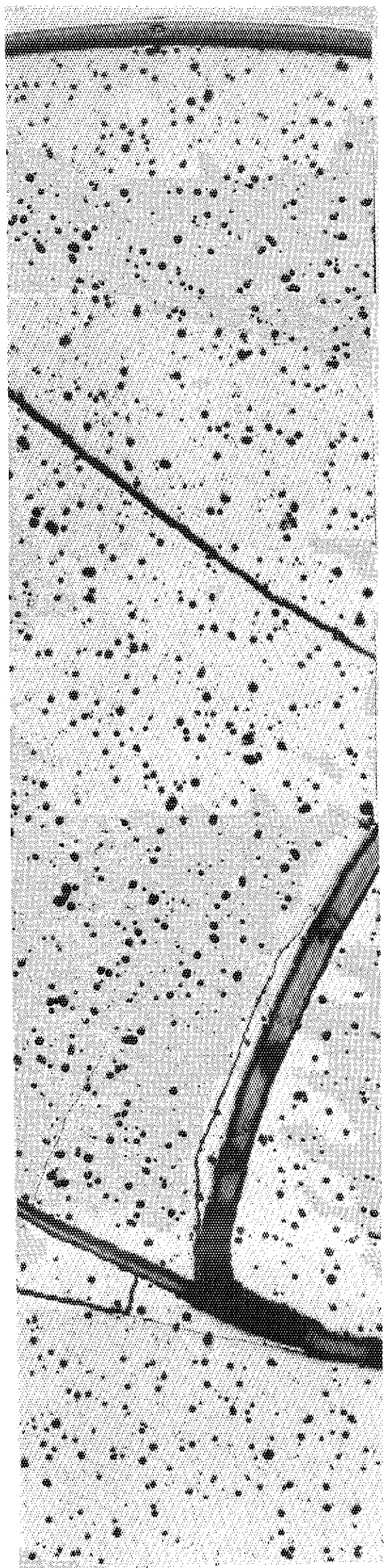
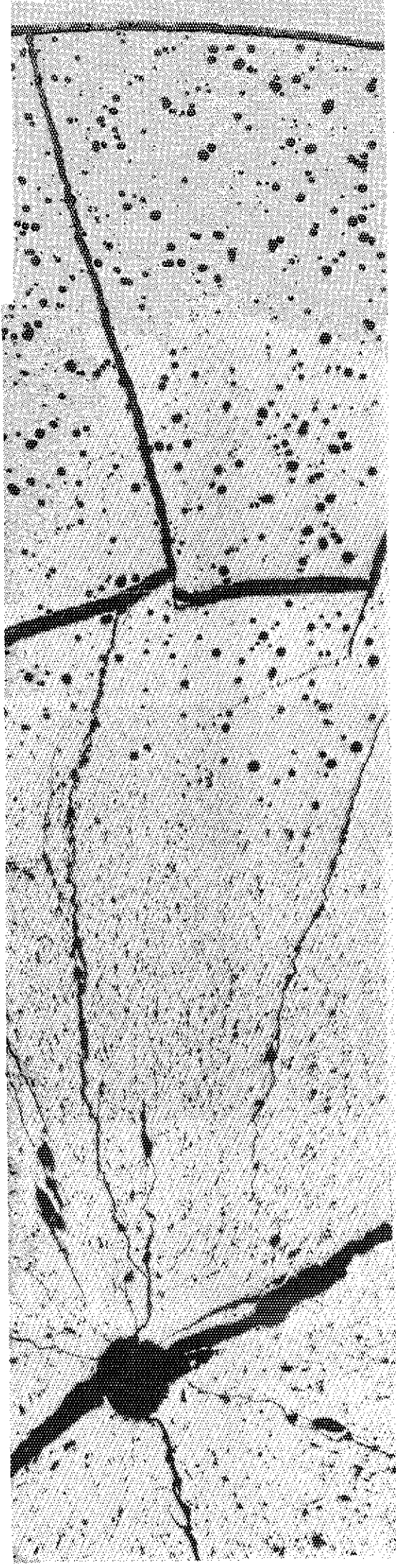
(a) a high LHR (b) a low LHR



4mm (a)

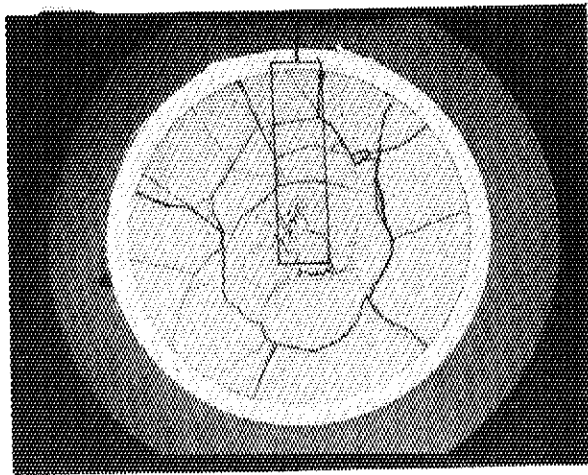


4mm (b)

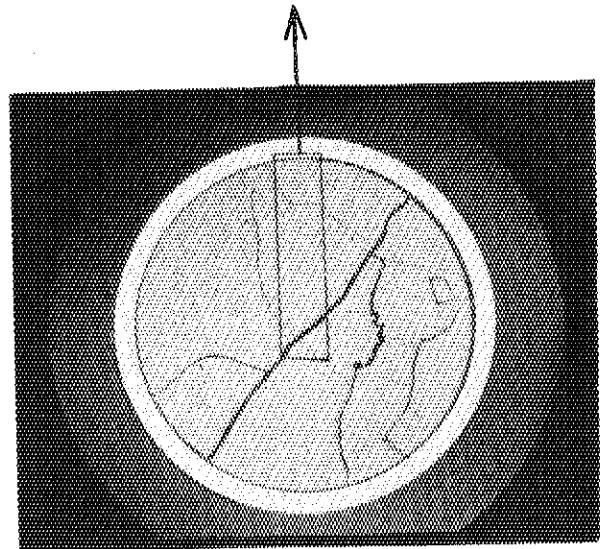


1mm

Fig. 15 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen E)
(a) a high LHR (b) a low LHR



(a)



(b)

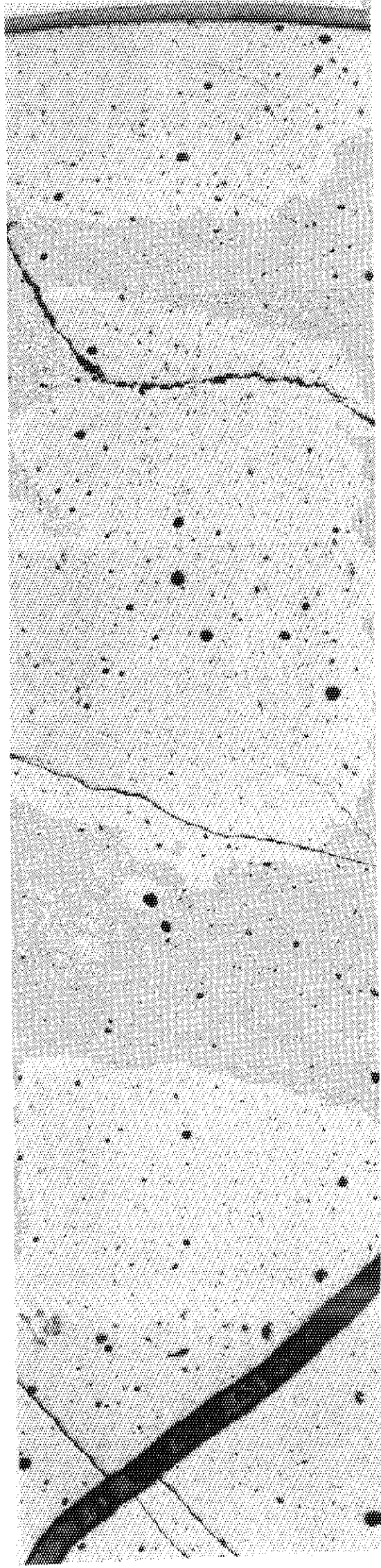
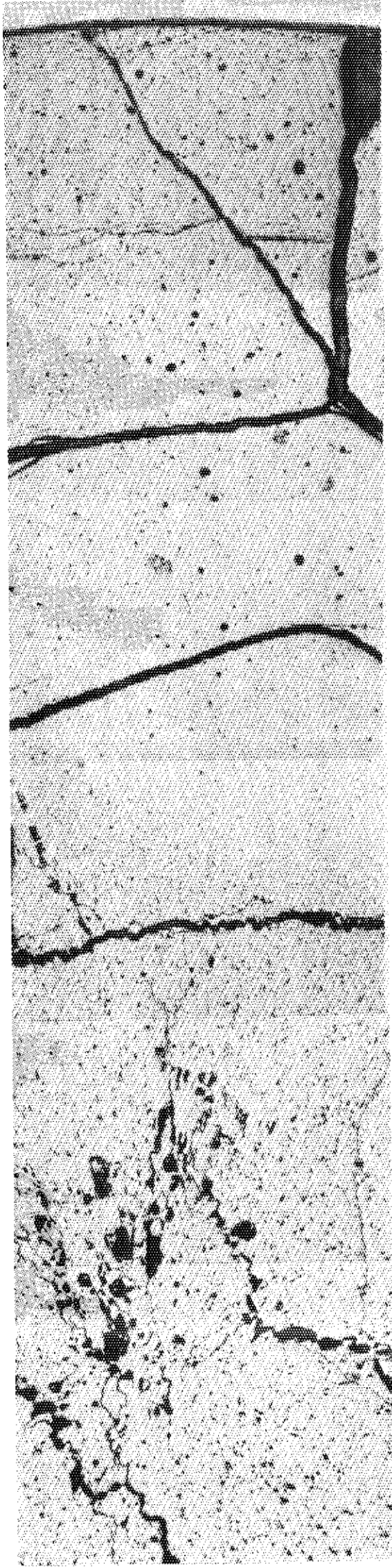


Fig. 16 Photomicrograph of the irradiated UO_2 fuel pellet
(Specimen F)
(a) a high LHR (b) a low LHR

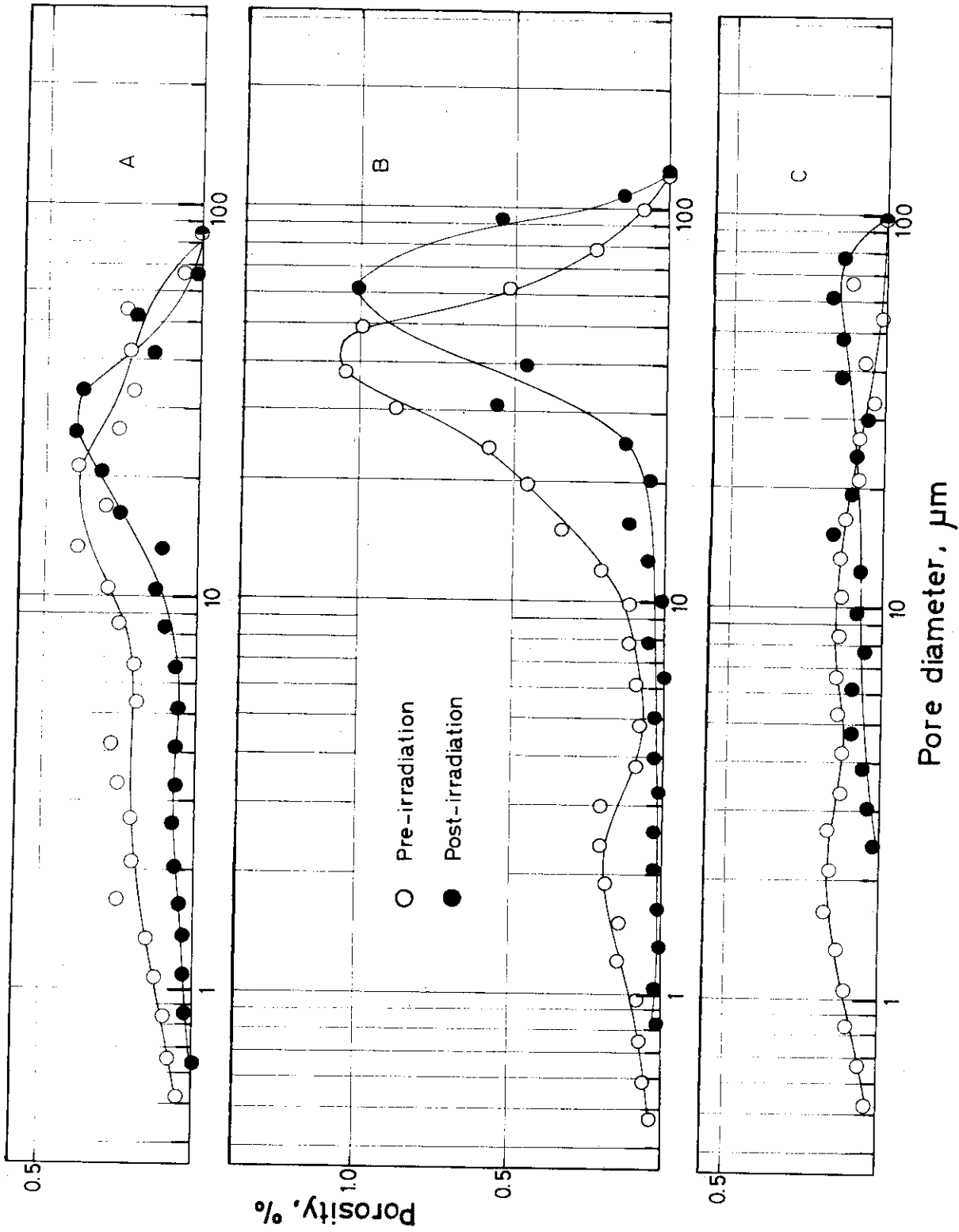
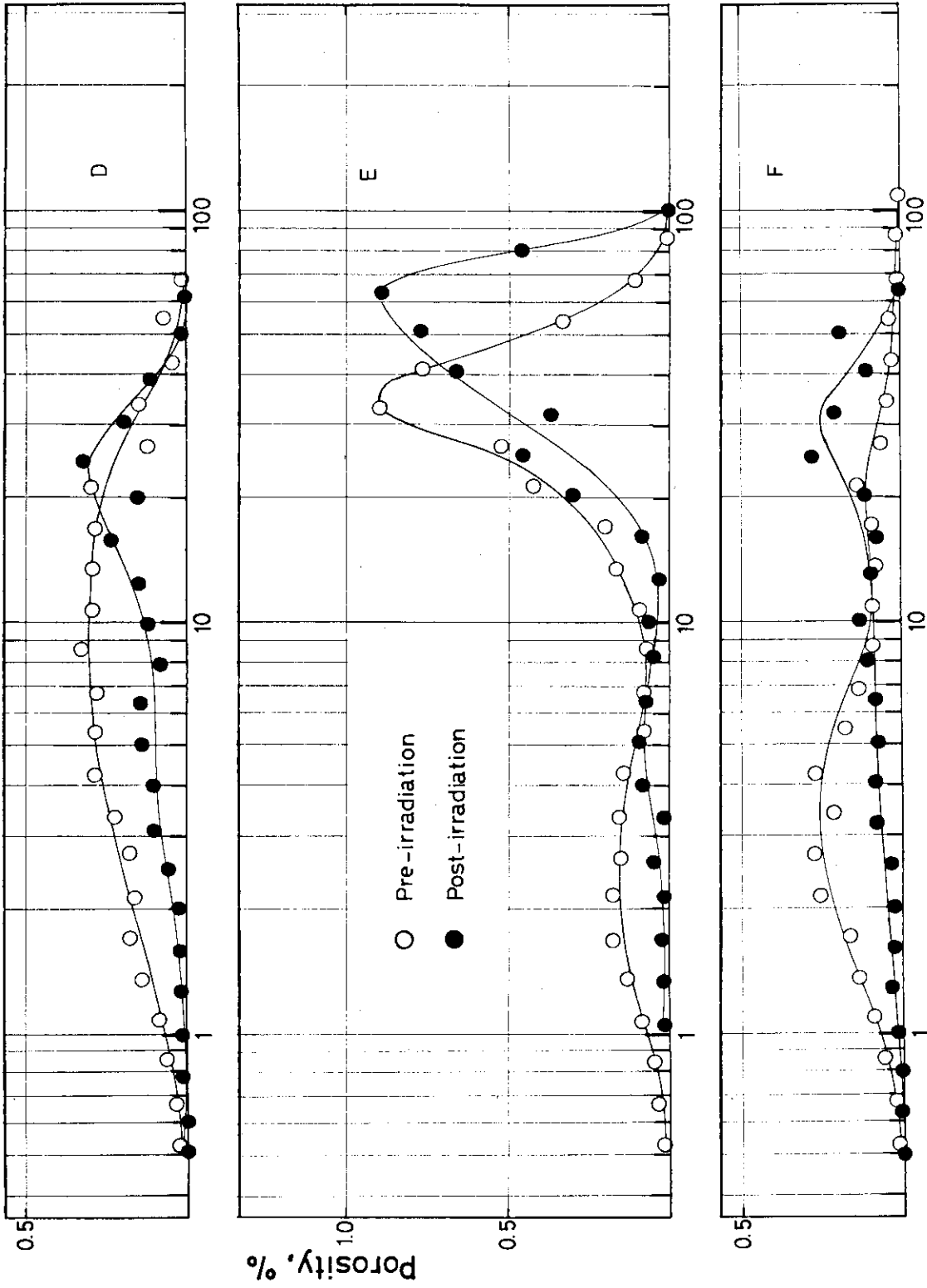


Fig. 17 Pore size distribution. In figures, \circ —; pre-irradiated, \bullet —; post-irradiated conditions.



Pore diameter, μm

Fig. 18 Pore size distribution. —○— pre-irradiated, —●— post-irradiated conditions.

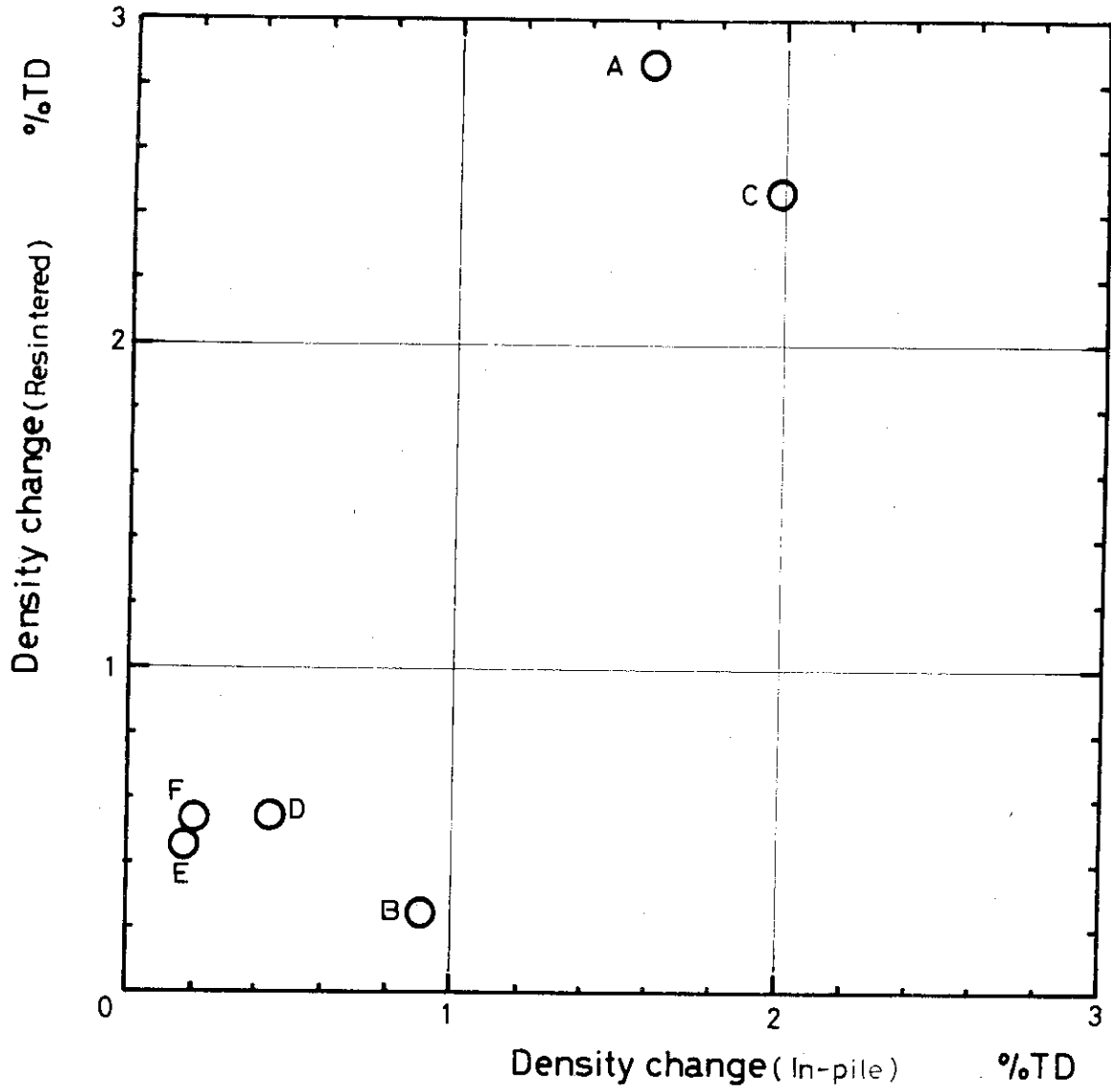


Fig. 19 The relation of density between in-reactor and out-of-reactor resintering test.

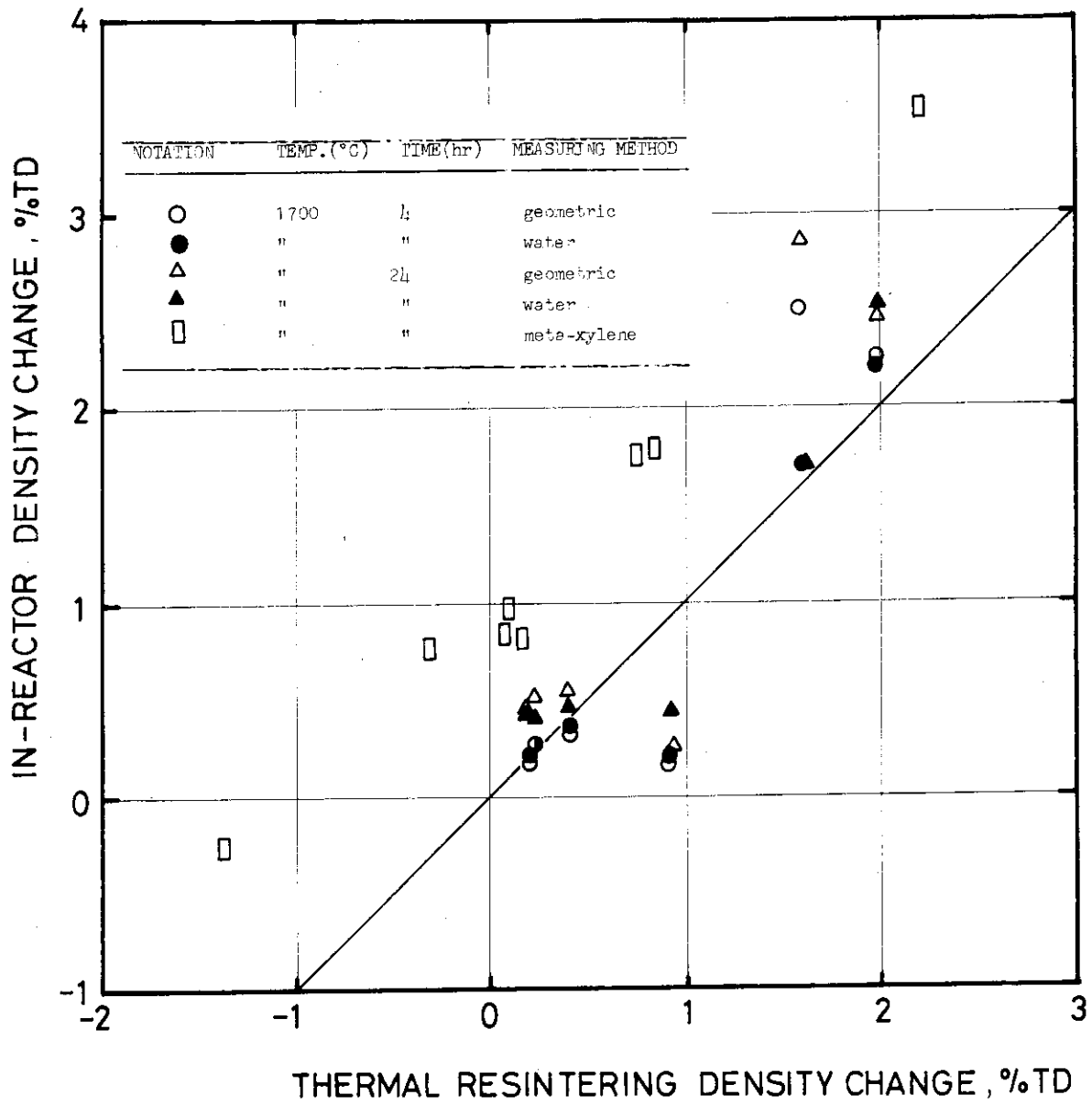


Fig. 20 Comparison of density change with in-reactor and out-of-reactor resintering test.

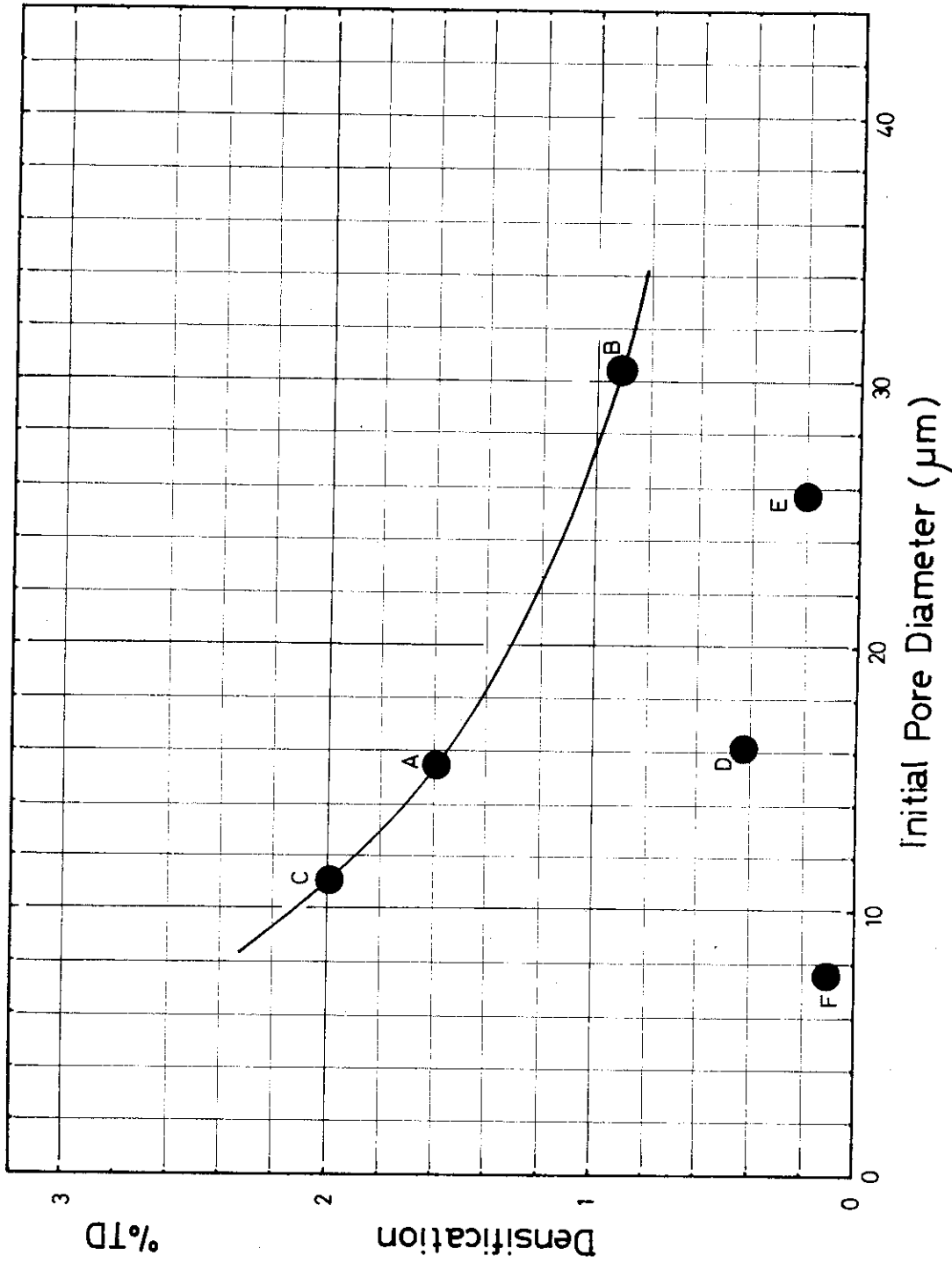


Fig. 21 The relation between initial grain diameter and densification.
 Densification was defined as follows; (post-irradiation density)-(pre-irradiation density).

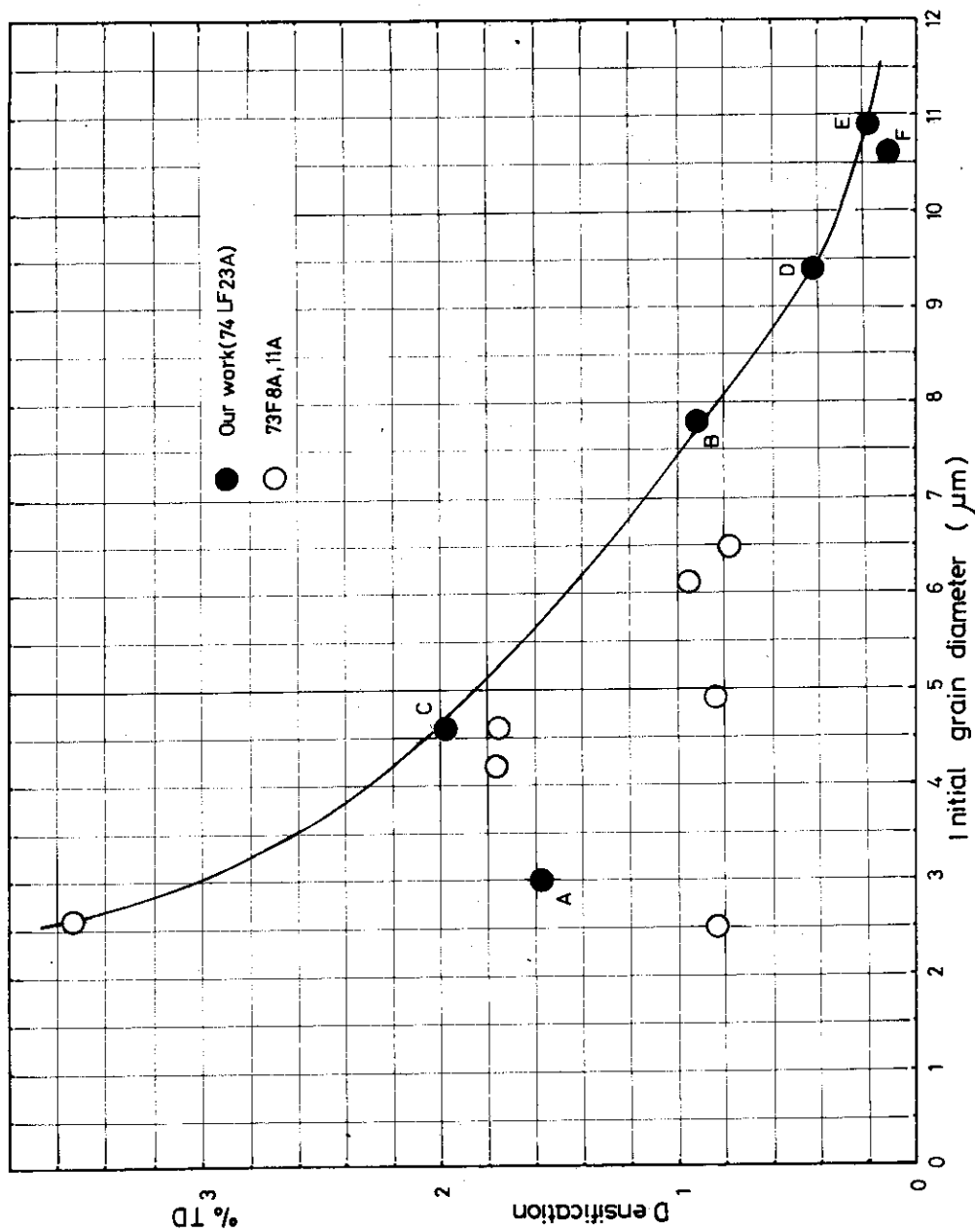


Fig. 22 The relation between initial pore diameter and densification.

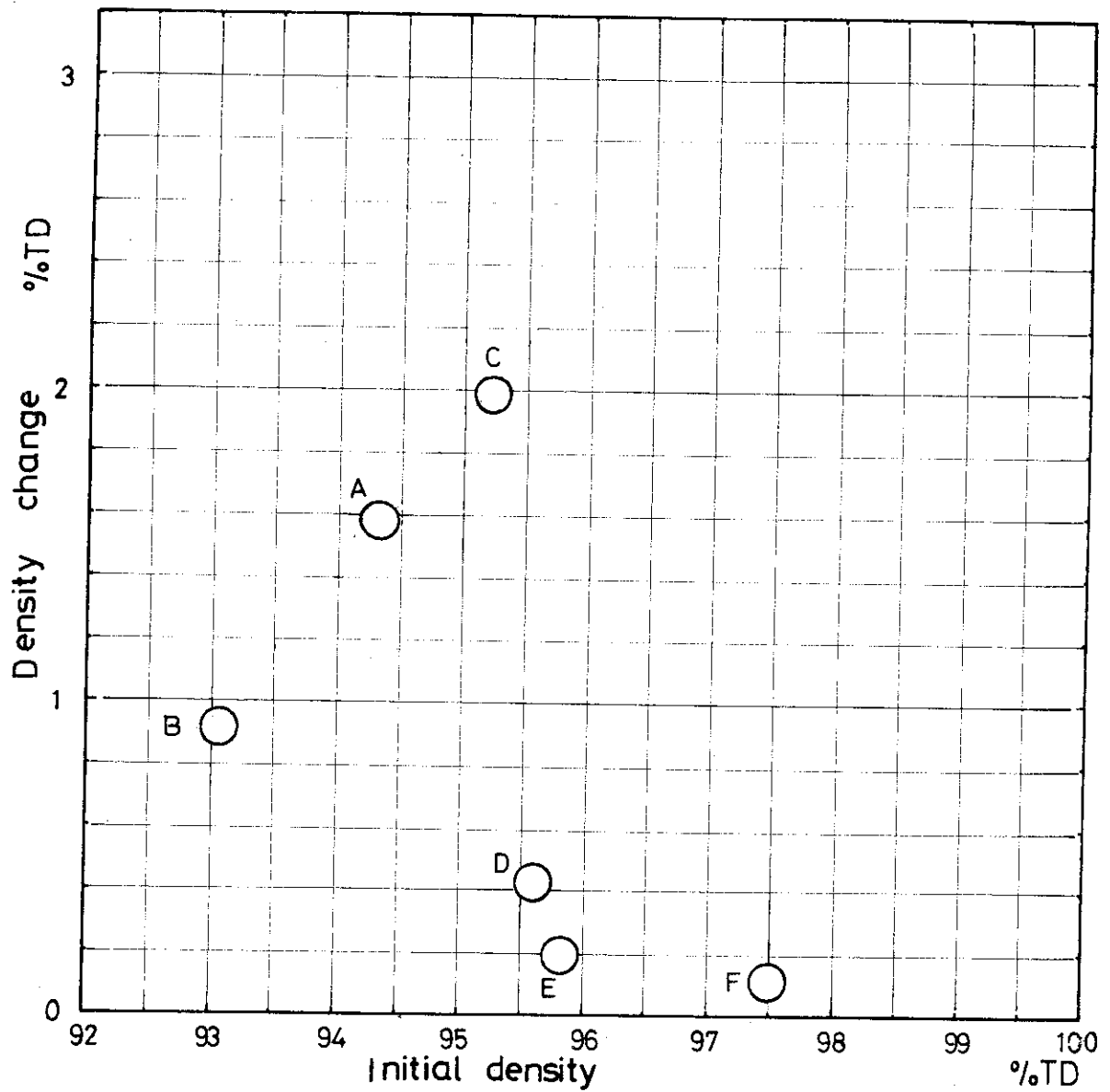


Fig. 23 The relation between initial density of each specimens and density change (densification).

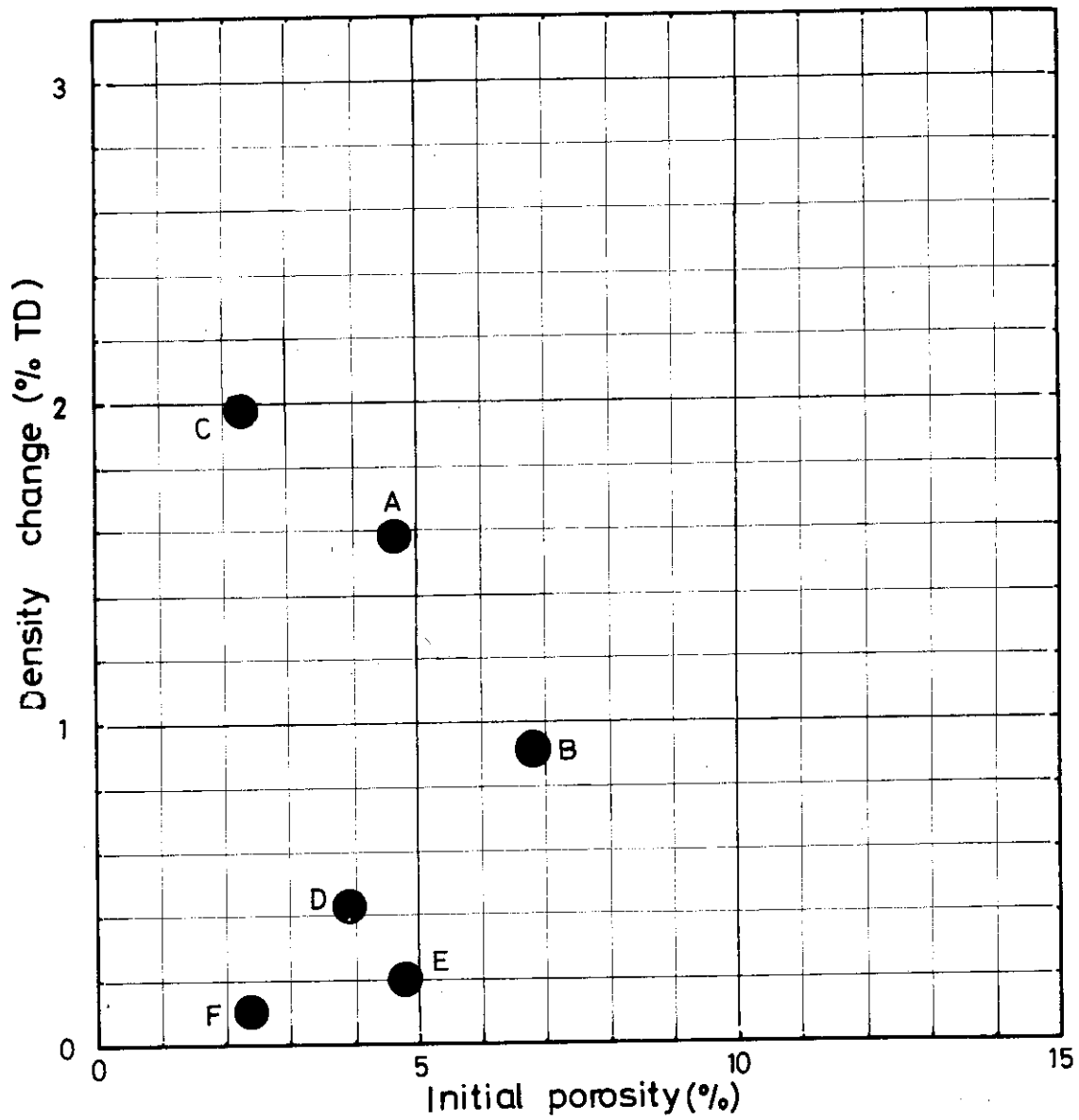


Fig. 24 The relation between initial porosity of each specimens and density change (densification).

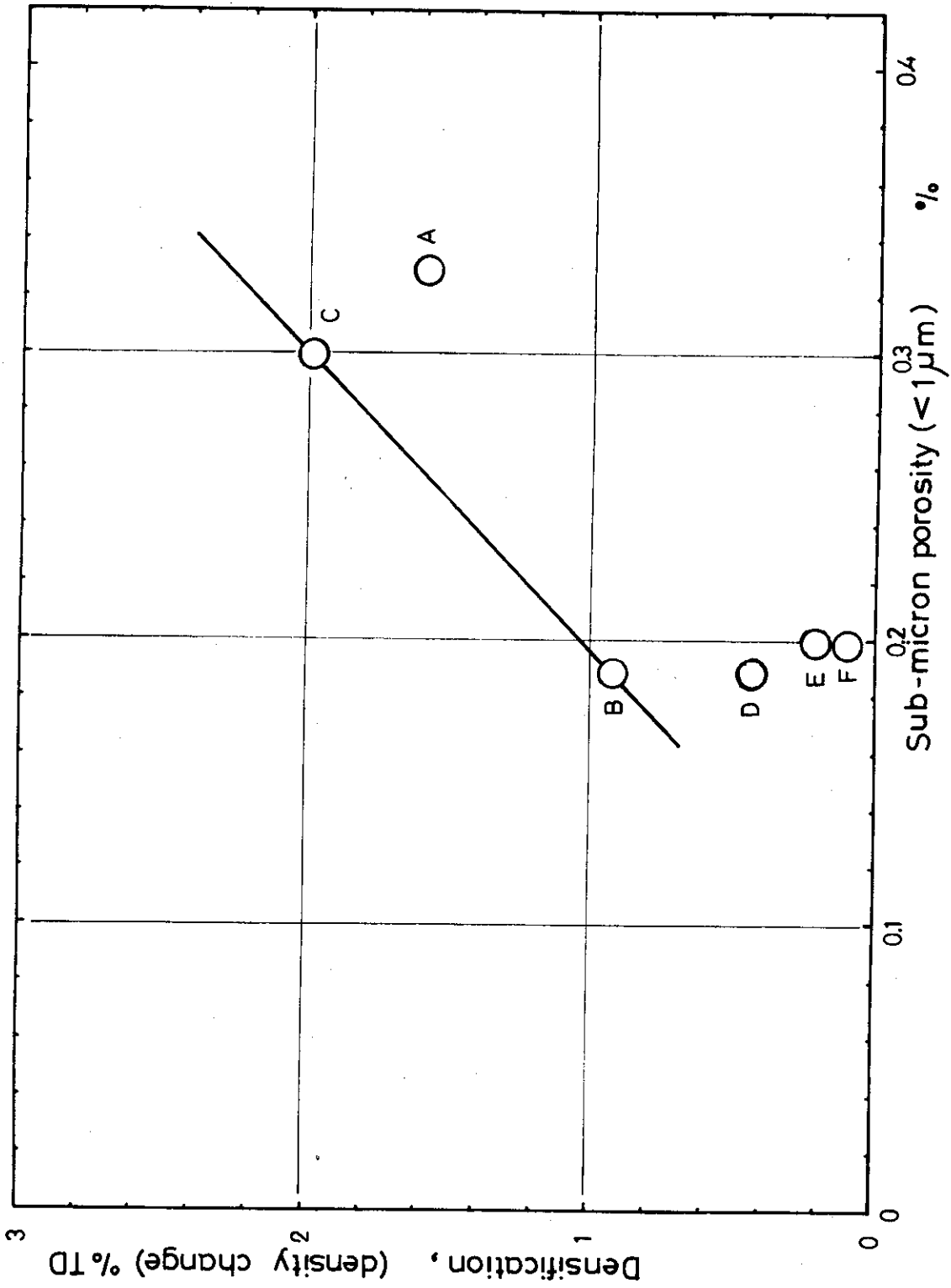


Fig. 25 Effect of the sub-micron porosity on densification.