

JAERI-M

7807

UO₂燃料の焼きしまり(II)

1978年8月

柳澤和章

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、お申しこしてください。

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(II)

日本原子力研究所 東海研究所 安全工学部

柳 沢 和 章

(1978年7月24日受理)

UO₂ 燃料ペレットの焼きしまり挙動解析のため i) 照射条件, ii) ペレット製造条件 (初期密度, 初期粒度および初期気孔分布等), iii) 軸方向圧縮力等の変数を用いた。得た結果は次のとおりである。

i) 焼きしまりは4~8 GWd/t UO₂ の範囲で最大になる。線出力密度は殆んど焼きしまりに影響しない。

ii) 焼結温度の低いものは焼きしまりやすい。

—初期密度と焼きしまりには強い相関はみられず、僅かに低密度のものが焼きしまりやすい傾向にあった。

—初期粒度と焼きしまりには比較的良い相関がみられ、10 μm以上の粒径をもつペレットでは殆んど焼きしまりがおこらなかった。

—気孔分布は焼きしまりと強い相関もつ。気孔分布上で6~7 μm以上に山をもったペレットは焼きしまりが小さく、逆に1 μm以下に山をもったものは焼きしまりが大きかった。焼きしまりは気孔安定剤の添加で低減できる。

よく焼きしまったペレットでは照射後粒内の気孔が殆んど消失していた。

ペレット中心部では外周部よりも気孔消失量がやや大きい。

—最大の焼きしまりが生じたペレットの製造条件は密度が高く焼結温度が低く粒度の小さいものであった。一方、殆んど焼きしまらなかったペレットのそれは密度が低く焼結温度が低く粒度の小さいものであった。前者ではペレット中で4 μm以下の直径をもった気孔が照射によって良く消失したが後者では2.5 μm以下の気孔が殆んど消失せずむしろ増加の傾向にあった。

3~4 μm以下の気孔の消失が焼きしまりに大きく影響するという我々の結論はD. A. Collins らの結論と良く一致した。

—炉外再焼結実験では粒径の著しい増加が全てのペレットに観察されたが炉内実験ではそれが殆んど観察されなかった。炉内と炉外での焼きしまり量は炉内のものが大きかった。ペレット間での焼きしまり傾向は炉内と炉外実験で良く一致した。

- 一 焼きしまり値 4%TD で燃料の安定性・不安定性を定義した。安定燃料を製造するには気孔安定剤を添加するか、気孔分布上で平均の気孔径が 10 μm 以上になる様にペレットを調整すればよい。
- iii) 軸方向圧縮力は殆んど焼きしまりに影響しなかった。
- iv) 実験結果からの結論に基づき初期粒度と気孔度の 2 つの変数から安定燃料の炉内最大焼きしまりを推定する GPE 法を提案した。

Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets(II)

Kazuaki YANAGISAWA

Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment,
JAERI

(Received July 24,1978)

Analytical results in UO_2 fuel densification experiments are described as part of the irradiation behavior study on reactor fuel assemblies.

The parameters are irradiation conditions, pellet fabrication conditions such as pellet initial density, initial grain size, pore size and pore distribution, and compressive axial force onto the pellet.

- (1) Densification is saturated at burnup about 4~8 GWd/t UO_2 . Densification is little influenced by the linear heat rating.
- (2)-Pellets sintered with low temperature trends to densify with ease.
 - There is not such correlation between the pellet initial density and the densification but the low initial density pellet trends to densify readily.
 - There is comparatively good correlation between the initial grain size and the densification, and the pellets with grain size over 10 μm little densifies.
 - Densification is strongly influenced by the pore distribution. The pellet with peak pore diameter of 6 ~ 7 μm little densifies, while that of peak diameter up to 1 μm the most densifies.
 - The addition of a pore stabilizer (pore former) is effective in decreasing the densification. The pellet densified most shows no inner-granular pores in post-irradiation examination. The removal

of pores is slightly larger in the middle than in the outer portion of pellet.

-Most densified pellets arise from high initial density, low sintering temperature and small grain size, whereas least densified ones from low density, low sintering temperature and small grain size. In the former, pores of diameter less than $4 \mu\text{m}$ are removed, and in the latter, pores of diameter less than $2.5 \mu\text{m}$ are little removed the pore volume rather increases. Our results that large effect of removal of pores with diameters less than $3\sim 4 \mu\text{m}$ upon the densification agrees well D.A. Collins et al.'s result.

-Grain growth is remarkable in out-pile resintering, and little in in-reactor. The tendency of in-reactor densification is similar to that of out-pile.

-Fuel densifying less than 4 %TD is defined as stable and that more than 4 %TD as unstable. Addition of a pore stabilizer or use of pore size distribution with peak diameter about $10 \mu\text{m}$ will be useful in fabricating stable fuel pellets.

- (3) Densification is little influenced by the axial compressive force.
- (4) Based on the above results, a GPE(Initial Grain-Initial Pore Estimation) method is proposed for estimating the in-reactor maximum densification of stable UO_2 fuels.

Keywords: Densification, Uranium Dioxide, Fuel Pellets, Irradiation, Density, Grain Size, Pore Distribution, Sintering Temperature, Axial Compressive Force, Densification New Model.

目 次

1. 序	1
2. 照射と照射後試験	2
3. 製造因子	3
3.1 製造因子の説明	3
3.2 焼きしまりの定義	4
4. 実験結果と討論	5
4.1 照射条件と焼きしまりの関係	5
4.1.1 燃焼度	5
4.1.2 線出力密度	6
4.1.3 燃料温度	6
4.2 燃料製造条件と焼きしまりの関係	7
4.2.1 焼結温度, 焼結時間と焼結密度	7
4.2.2 初期密度	9
4.2.3 初期粒度	11
4.2.4 気 孔	13
a) 初期気孔度/気孔分布/他因子との関連(気孔の安定性と不安定性)	13
b) 粒内・粒界上の気孔/割れの部分の気孔/燃料の半径方向に依存した気孔	19
4.2.5 炉外再焼結実験	19
a) 炉内実験値との比較	19
b) 炉内焼きしまりとの等価性	20
4.3 軸方向に加えた圧縮力の効果と焼きしまり	20
4.4 焼きしまりをおこさない様にするには?	20
4.5 最大焼きしまり値の推定方法	22
5. 結 論	23
謝 辞	25
参考文献	26
付 録 燃料安全第1研究室における焼きしまり実験の成果報告	28

List of Tables

Table 1	The outlines of the fuel and the irradiation conditions	30
Table 2	The explanations of the capsule used in experiment and the matrix arrangement with parameters	31
Table 3	The capsule explanation of 73F densification experiment plan	32
Table 4	Burnup and peak linear heat rating vs corresponding each irradiation capsule	32

List of Figures

Fig. 1	Fuel centre temperature vs burnup	33
Fig. 2	Gamma-scanning of the capsule for 73F densification series	34
Fig. 3	Densification as a function of Burnup induced the result of the 74LF23A experiment	35
Fig. 4	Shrinkage of the stack length vs fuel burnup irradiated with various power density	36
Fig. 5	Densification vs pellet sintering temperature included earlier works by Chubb et al (13)	37
Fig. 6	Relation between geometrical density (GD) and water immersed density (WID)/metha-xylene immersed density (MID)	38
Fig. 7	Relation between the initial density of UO_2 pellet and densification, in which the data of earlier worker's included	39
Fig. 8	Densification as a function of grain size ; figure includes the data derived from earlier workers. {JAERI's plotted data was obtained by multiplying the factor of 1.2 to the original for the purpose of conversion from two dimensional measurement to three one.}	40
Fig. 9	Grain growing rate (%) and grain growth in resintering (μm) as a function of the initial grain diameter; out-of-pile resintering test is performed with the condition	

	of 1700 C, 24 h.	41
Fig. 10	Densification as a function of the initial grain diameter; the plotting is derived from the figure 8 by the partial enlargement of JAERI's data	42
Fig. 11	Photomicrograph of the UO ₂ pellet and its corresponding pore size distribution of 73F-6A (axial effect) series;	43
	where left-hand sides of the photo are the pre-irradiated, as-polished UO ₂ outer surface and right-hand sides the post-irradiated one (all magnitude are in same): in pore size distribution notation —○— corresponds to the pre-irradiation condition and notation —●— to the post-irradiation one.	
Fig. 12(a) and (b)	Photomicrograph of the UO ₂ pellet and its corresponding pore size distribution of 73F-9A (parametric survey) series: where Fig. 12(a) includes the specimens of A, B and C, and Fig. 12(b) includes those of D,E and F; in each, the left-hand sides of the photo are the pre-irradiated, as-polished UO ₂ outer surface and the right-hand sides are the post-irradiated one (all magnitude are in same); in pore size distribution, notation —○— corresponds to the pre-irradiation condition and —●— to the post-irradiation one	45
Fig. 13(a) and (b)	Photomicrograph of the UO ₂ pellet and its corresponding pore size distribution of 73F-11A (parametric survey) series: where Fig. 13(a) includes the specimens of A,B and C, and Fig. 13(b) includes those of D,E and F; in each the left hand sides of the photo are the pre-irradiated; as-polished UO ₂ outer surface and the right-hand sides are the post-irradiated one (all magnitude are in same); in pore size distribution, notation —○— corresponds to the pre-irradiation condition and —●— to the post-irradiation one	49
Fig. 14	Densification as a function of the initial pore diameter (μm); figure includes the data by Freshly et al (8)	53

Fig. 15	Densification as a function of the submicron pore volume (%); figure includes the data by Freshly et al (8)	54
Fig. 16	Photomicrograph of pre-irradiated (left), post-irradiated (middle) and resintered (right) outer surface of the etched UO ₂ pellet	55
Fig. 17	Macroscopic photograph of post-irradiated UO ₂ pellet surface. (as polished)	57
Fig. 18	Photomicrograph of the centre regions of the pellet and of the outer regions of the pellet (post irradiation, magnitude of the photo is all in the same)	59
Fig. 19	Photomicrograph of the pre/post irradiated and of out-pile resintered specimen A and the porosity change as a function of the pore size	61
Fig. 20	Comparison of in-reactor densification with out-of-pile resintering tests, including the data of the other earlier worker's	62
Fig. 21	Densification vs initial density under the axially restrained conditions; where 73F6A is restrained by the spring force in the bellows system	63
Fig. 22	Densification vs initial grain size under the axially restrained conditions; where 73F6A is restrained by the spring force in the bellows system	64
Fig. 23	Densification vs initial pore diameter and vs submicron pore volume under the axially restrained conditions; where 73F6A is restrained by the spring force in the bellows system	65
Fig. 24	Densification as a function of the modelled fabrication factors (initial grain size (left) and initial pore size (right) where broken lines is applied for the case of pore stabilizer adding to the specimen	66

1. 序

焼きしまりの本質を解明しようとする、いろいろな点で難かしい事と直面する。解析上困難なものとして最も簡単な事ではあるが、炉内の燃料の挙動が直視できないという事実である。これは何も焼きしまりに限った事ではなく、リロケーション、スウェリング、更にはペレット-被覆管の相互作用まで全て燃料棒の中で一体何がおこっているのかわからない為に現象の解明が困難なのである。

焼きしまり現象の理解は原子炉の安全性につながる問題であるから、研究者のみならず燃料製造業者に於ても興味のあるテーマとなっている。

焼きしまりに対する現段階での理解は次の様であると考えられる。

- 1) 炉型にもよるが、焼きしまりは多かれ少なかれ実炉で生じることはわかっている。また焼きしまりがおこった結果、生じる事象についてもほぼわかっている。
- 2) ところが焼きしまりを左右する照射条件・燃料製造条件等と焼きしまりとの因果関係に関するデータが蓄積されつつあるが決定的になっていない。製造因子、照射因子を用いたの焼きしまりモデルは数例提案されている{GE (2, 18), Westinghouse (13), KWU (10), CE (4), AECL (22), NRC (29), Halden (5) 等}。しかしながら焼きしまりが単純因子のみでなく数個の因子による複合効果で生じるために、モデルの確立が難かしい。
- 3) 炉の定常運転状態での焼きしまりの評価に加えて遷移状態での焼きしまり～例えば冷却材喪失事故 (LOCA) 時における～評価は蓄積エネルギー評価と直接結びついて重要である。

以上の現状からかんがみて、焼きしまりに対する最も重要で急がれるべき作業は焼きしまりに及ぼす因子の効果を正確に把握することである。この事が可能になれば焼きしまらない燃料を作るにはどうしたら良いかという問題はおのずから解決されると考えた。

炉運転者の立場からみれば、焼きしまり機構の解明は二次的な問題であり、とりあえず焼きしまりがおこっても安全側にあるためにはどうすれば良いかという対策を構じるであろう。例えば加圧型炉におけるヘリウムによる加圧燃料棒の使用がそれである。しかしながらその対策は焼きしまり現象の本質的な解決にはつながらない。

以上の事から原研では焼きしまりに対する照射因子と製造因子等の効果を詳細に調べる為に、1973年からJ M T R を用いて焼きしまり実験を開始した。

本報は焼きしまり実験のとりまとめである。結果とその考察に於ては原研データのみならず、今までに公開された海外の文献を手広く収集して我々の結果との比較を行なった。

2. 照射と照射後試験

すでに報告した論文(5)に於て今回報告する実験に関する次の項目の説明を詳しくしておいた。

- a) 照射計画
- b) UO_2 ペレットの製造
- c) 照射条件
- d) 照射後試験の内容

従って本報では重複を避ける意味でごく簡単な照射と製造因子に関する説明を本章と次章とで説明するにとどめる。

キャプセルの照射条件はTable 1に示す通りである。10重量%の濃縮度をもつ UO_2 ペレットを用いて、3～10（実際には11に近い） $GWd/t UO_2$ までの照射を行なった。照射における特徴はFig. 1に見られる様に燃料棒の中心温度を極めて低く押えて、照射による焼きしまりの機構解明に近づく方法をとった事である。Fig. 1中GおよびHは試料群の名前であり、ともにペレット中央に1.8mm直径の中心孔をつけて、燃料中心温度測定用のペレットとしたものである。GとHの試料としての特性はすぐあとにて触れる。

照射中の燃料棒の様子を知る参考とするため用いたキャプセルの概形と照射後試験によって得たガンマスキャンを、焼きしまり実験で用いた全ての4つのキャプセルについてまとめてFig. 2に示す。Fig. 2を理解するにはあらかじめ燃料棒の特性を知っておく必要があるので、それらを一覧表にしたTable 2を示す。

Table 2の説明：キャプセルは73F-6A, 8A, 9Aおよび11Aの4本を用いた。それぞれの燃焼度はそれぞれ6Aが $3GWd/t UO_2$ 、8Aが11、9Aが3、そして11Aが $8GWd/t UO_2$ であった。線出力密度は190～240 W/cm の間であった。

73F 6Aはペレットに加えた軸方向圧縮力の焼きしまりへの効果を調べる事を目的とした。用いた試料はA, BおよびC試料である。キャプセルはFig. 2でみる様に全体をベローズ系にして、頂部からばね力をもって圧縮力をペレットに照射中加え続けた。ペレット間にはタングステンスペーサーを挿入して1つ1つのペレットを分離した。その結果、図に示す様な出力分布図を得た。試料長さが短かった為に均一な出力分布となっている。

73F 8Aは燃料中心温度を測定する目的で用意したものである。用いた試料は中心孔ペレットGおよびHである。燃焼は $11GWd/t UO_2$ まで行なった。その結果はFig. 1に示した通りである。スタッフは頂部側にH、底部側にG試料を配した形にした。出力分布に勾配があり、用いたペレットの特性の違いも作用して、照射中G試料はH試料よりも100～200 C近く高温になっていた。また照射後試験によってペレット間に軸方向空隙が生じていた個所が見い出された。

73F 9Aは製造因子の焼きしまり効果を調べるために用意したキャプセルである。Table 2より用いた試料はA～Fの6種類、照射度は3GWd/t UO₂であるペレットの配置の仕方と出力分布の様子はFig. 2の通りである。中性子束の分布の影響をうけて全体的には多少出力変動はあるがほぼ同じ出力分布であった。

73F 11Aは9Aと燃料度の違い(8GWd/t UO₂)を除けばほぼ同様である。出力分布はFig. 2でわかる様にペレットとペレットの間にタングステンペレットを入れてそこでの出力吸収を大きくして、個々のペレットの出力分布を明確にする用意が成された。

キャプセルについての特徴を一覧表にしてTable 3に示す。

照射後試験は下記の項目につき行なった。

1. ペレットの取り出しと観察
2. 出力分布測定(ガンマスキャンニング)
3. 密度測定
4. 金相試験
 - (i) 粒度測定
 - (ii) 割れの観察
 - (iii) 気孔度と気孔分布の測定

これら1～4の内容については文献(5)にて報告した。

3. 製造因子

3.1 製造因子の説明

用いたペレットは全部で8種類でそれぞれにA～Hの一連の番号を付けた。焼きしまりに影響を及ぼす製造因子として下記のものを採用した。

- (i) 密度
- (ii) 焼結温度
- (iii) 粒度
- (iv) 気孔度

(i) : 密度については製造時は幾何密度(形状密度)で規格を作り、90%TDと95%TDの2種類を準備した。

(ii) : 焼結温度については低温焼結(1400C)と高温焼結(1600C)の2種類を準備した。

(iii) 粒度 : 粒度については特別の配慮を行なわなかった。

73F 9Aは製造因子の焼きしまり効果を調べるために用意したキャプセルである。Table 2より用いた試料はA～Fの6種類、照射度は3GWd/t UO₂であるペレットの配置の仕方と出力分布の様子はFig. 2の通りである。中性子束の分布の影響を受けて全体的には多少出力変動はあるがほぼ同じ出力分布であった。

73F 11Aは9Aと燃料度の違い(8GWd/t UO₂)を除けばほぼ同様である。出力分布はFig. 2でわかる様にペレットとペレットの間にタングステンペレットを入れてそこでの出力吸収を大きくして、個々のペレットの出力分布を明確にする用意が成された。

キャプセルについての特徴を一覧表にしてTable 3に示す。

照射後試験は下記の項目につき行なった。

1. ペレットの取り出しと観察
2. 出力分布測定(ガンマスキャンニング)
3. 密度測定
4. 金相試験
 - (i) 粒度測定
 - (ii) 割れの観察
 - (iii) 気孔度と気孔分布の測定

これら1～4の内容については文献(5)にて報告した。

3. 製造因子

3.1 製造因子の説明

用いたペレットは全部で8種類でそれぞれにA～Hの一連の番号を付けた。焼きしまりに影響を及ぼす製造因子として下記のものを採用した。

- (i) 密度
- (ii) 焼結温度
- (iii) 粒度
- (iv) 気孔度

(i) : 密度については製造時は幾何密度(形状密度)で規格を作り、90%TDと95%TDの2種類を準備した。

(ii) : 焼結温度については低温焼結(1400C)と高温焼結(1600C)の2種類を準備した。

(iii) 粒度 : 粒度については特別の配慮を行なわなかった。

(V)気孔度 : 気孔安定剤(気孔形成物)を添加したものを3種類作った。

以上の因子を各試料に適当に割りあてて焼きしまり挙動解析の為の因子とした。その割り当ての結果をTable 2に示す。

3.2 焼きしまりの定義

ペレットの焼きしまり(稠密化)は本来ペレットの物理・化学的性質の変化に伴う寸法変化である。従ってその変化を捕える方法として例えば照射前後の

- (i) ペレット1つ1つについての寸法変化(異方性も考慮する)
- (ii) スタック長全体の寸法変化(炉内の伸び計の使用)
- (iii) 密度の変化

が考えられる。照射後のペレットのもつ放射能およびペレット取り出し時の作業の煩雑さから(i)は汎用されていない。(ii)は照射中に時々刻々とかわるペレット寸法を測定できる強みがあり、HBWR(ハルデン炉)にて実行されており、有用なデータが出ている。特に燃焼度の変化による焼きしまり量を追うには優れている。しかしながら、(ii)の実験を実行するには炉内伸び計、出力を知る為の中性子検出器等計装類が揃っている事が条件でありこれらの計装を持たない一般の材料試験炉では採用できない。(iii)の方法は照射前後のペレットの密度測定を行なってその差から焼きしまり量を算出する方法である。この方法では燃焼度変化に対する焼きしまり値が追えない弱みがあるが、照射前後の密度測定は手軽でかつ短時間のうちに実行できる利点がある。

実験に於ては(iii)の密度変化による焼きしまりの算出法を行なった。すなわち焼きしまり量は下式の様定義する。

$$\text{焼きしまり量 (\%TD)} = \text{照射後のUO}_2 \text{ ペレット密度 (\%TD)} - \text{照射前のUO}_2 \text{ ペレット密度 (\%TD)} \quad (1)$$

理論密度には 1.096 Mg/m^3 を採用した。照射前密度では幾何密度、水液浸密度およびメタキシレン液浸密度の三様で測定したが、照射後の密度はメタキシレン液浸のみであったので、実験では UO_2 ペレットの照射前後の密度値にメタキシレン置換液で測定した値を用いた。

置換液に何をを使うかという問題は、 UO_2 ペレット内の開気孔・閉気孔の置換液に対する表面張力の違いから、データの一致性に関して重要な問題になっている。この置換液の違いに密度測定値の差については文献(14)にて報告した。

外国の文献とのデータ比較を行なう場合の困難さの1つに焼きしまり量を密度変化で捕えたものと、燃料スタック長の変化で捕えたものとの違いに由来するデータ差がある。すなわち密度変化で捕える方法により得る焼きしまり量は我々の定義式の如し下式で示される。

$$\Delta\rho = \rho_{\text{post}} - \rho_{\text{pre}} \quad (\%TD) \quad (2)$$

これに対してスタック長変化によるものは焼きしまり量として

$$\Delta l = l_{\text{post}} - l_{\text{pre}} \quad (3)$$

として示される。ここに

Δl : ある燃焼度におけるスタック長から照射前のスタック長を引いた値
または歪として捕えれば(3)は次の(4)のようにもかける。

$$\frac{\Delta l}{l_{\text{pre}}} = \frac{l_{\text{post}}}{l_{\text{pre}}} - 1 \quad (4)$$

UO₂ 燃料が照射を通じて等方的であれば線膨張率、体膨張率との簡単な関係式をそのまま適用して

$$\frac{\Delta \rho}{\rho_{\text{pre}}} = 3 \frac{\Delta l}{l_{\text{pre}}} \quad (5)$$

が成立する。しかし等方性が仮定できなければ両者の間の関係付けはうまくいかない。

実験に於てはW. P. Chernockら(4)の結果と我々の再焼結実験の結果(7)とに基づいて、炉内外の焼きしまりは等方性であるという仮定を採用した。従って(5)式もそのまま使えるという立場をとった。

4. 実験結果と討論

4.1 照射条件と焼きしまりの関係

4.1.1 燃焼度

燃料の焼きしまり現象が炉内の燃焼度に依存する事は多くの文献(1~6)で報告されている。

73F実験では燃焼度を3.8および11GWd/t UO₂にとった。燃焼度を焼きしまりの関係を示す図をFig. 3. に示す。図から次の様な事がわかる。

- (i) 燃焼度8GWd/tにおける焼きしまり量は3GWd/tのものと同じか少し焼きしまっている程度であり、3GWd/tから8GWd/tへの密度の上昇(焼きしまり)程度は非常にゆっくりである。これはすでに4~8GWd/tあたりで焼きしまりが最大値近くに達している事を意味する。
- (ii) 11GWd/t UO₂では95%TD、1600°C燃焼(G)、90%TD、1400°C焼結(H)の両試料とも密度が減少してスウェリングの傾向が強くなっている。特にH試料ではもとの密度より密度が低くなりスウェリング領域に入った。

これに対してスタック長変化によるものは焼きしまり量として

$$\Delta l = l_{\text{post}} - l_{\text{pre}} \quad (3)$$

として示される。ここに

Δl : ある燃焼度におけるスタック長から照射前のスタック長を引いた値
または歪として捕えれば(3)は次の(4)のようにもかける。

$$\frac{\Delta l}{l_{\text{pre}}} = \frac{l_{\text{post}}}{l_{\text{pre}}} - 1 \quad (4)$$

UO₂ 燃料が照射を通じて等方的であれば線膨張率，体膨張率との簡単な関係式をそのまま適用して

$$\frac{\Delta \rho}{\rho_{\text{pre}}} = 3 \frac{\Delta l}{l_{\text{pre}}} \quad (5)$$

が成立する。しかし等方性が仮定できなければ両者の間の関係付けはうまくいかない。

実験に於てはW. P. chernock ら(4)の結果と我々の再焼結実験の結果(7)とに基づいて、炉内外の焼きしまりは等方性であるという仮定を採用した。従って(5)式もそのまま使えるという立場をとった。

4. 実験結果と討論

4.1 照射条件と焼きしまりの関係

4.1.1 燃焼度

燃料の焼きしまり現象が炉内の燃焼度に依存する事は多くの文献(1~6)で報告されている。

73F 実験では燃焼度を3.8および11GWd/t UO₂にとった。燃焼度を焼きしまりの関係を示す図をFig. 3. に示す。図から次の様な事がわかる。

- (i) 燃焼度8GWd/t における焼きしまり量は3GWd/t のものと殆んど同じか少し焼きしまっている程度であり、3GWd/t から8GWd/t への密度の上昇(焼きしまり)程度は非常にゆっくりである。これはすでに4~8GWd/t あたりで焼きしまりが最大値近くに達している事を意味する。
- (ii) 11GWd/t UO₂ では95%TD, 1600 C 燃焼(G), 90%TD, 1400 C 焼結(H)の両試料とも密度が減少してスウェリングの傾向が強くなっている。特にH試料ではもとの密度より密度が低くなりスウェリング領域に入った。

文献(3~6)によれば大きく焼きしめる傾向を持つ燃料の型では0.5~1GWd/tで急速な焼きしまりが生じ、また殆んどのは4~10GWd/t UO_2 で大体焼きしまりが完了して以後はスウェリング過程が支配的になる事が報告されている。Marlowe(2)の粒成長に基づく現場はこの焼きしまり完了時間が他のものに比べて相当長く15~25GWd/tとなっている。

多くの文献の示すところと我々の燃焼度に関する焼きしまり量との間には良い一致が見られた。

4.1.2 線出力密度

Fig. 3には74LF実験(文献7)の結果もあわせて示してある。74LFは燃焼度が1.7GWd/tと小さいが線出力密度を最大540W/cm(平均400W/cm)と高くとっており、73Fの線出力密度(最大190~240W/cm)の2倍~3倍近くで燃焼させたものである。燃料としての特性についてはすでに2章でのべた。

図からわかる様に74LFで異常に焼きしまったC試料以外のDおよびE試料(95%TD初期密度、高温焼結)と同じ型の73F試料BおよびC試料が燃焼が進んだ段階で焼きしまっている事からして線出力密度の効果は大きく焼きしまりに影響するとは考えられない。

Hanevikら(3)がドイツペレットを用いて行なった実験によれば、87%TDおよび92%TDのペレットを用い190W/cm(低線出力)および500~520W/cm(高線出力)で3~4GWd/tまで燃焼させた結果、スタック長さの収縮(焼きしまり)は線出力に殆んど無関係であった。その結果の図をFig. 4に示す。Ferrari(6)らも出力密度範囲50~560W/cmで同様の結論になっている。

Hanevikらの結果は我々の実験結果によく一致している。しかしながらデータ数が少なく正確を期する為には更に実験が必要であろうと思われる。

一般に焼きしまり実験に用いられる線出力密度は典型的なBWRのそれ(200~400W/cm)やPWRのそれ(200~540W/cm)を模擬されたものが多く殆んどが200~500W/cm程度の線出力で実験を行なっている。(3, 4, 8, 9)

4.1.3 燃料温度

焼きしまりの効果は焼きしまりが生じギャップが大きくなる事で、燃料棒内に蓄積できるエネルギーを増加させ、燃料ペレットの線出力を増加させ、さらにはペレット~被覆管の熱伝達能力を低下させて温度分布をきつくさせる事である。

しかしながら焼きしまりの因子効果を求める観点から燃料棒をあらかじめある温度範囲でおさえておいて、燃料棒温度と焼きしまりとの関係を調べる事も興味深いことである。

燃料の温度はそこにあるペレットの物理的・化学的性質に効果を与える。例えば1)結晶粒成長をおこしている割れのゆ着をおこす、2)製造時の UO_2 の強度の回復をおこす、3)微細組織(粒度、密度および気孔と気孔分布等)に変化をおこす、4)空孔等の拡散定数が温度依存

性であるからそれに影響を及ぼす等である。

特に中心温度と照射量が一体化して UO_2 ペレットの物理的性質に寄与する機構、例えば気孔の消失との関連等に於ては重要な役割を演じていると考えられる。

第3章の照射の項で説明した様に本実験では73F8AのGおよびH試料で燃料中心温度の測定を行ない、5サイクルの運転期間中、G試料は1100-1000°C、H試料は860-900°Cの温度範囲にあった。実験期間中の燃焼度は7~8 GWd/tである。(Fig. 1参照)

Fig. 1より今回の焼きしまり実験はTable 4に示す線出力密度でほぼ定常に照射されていたと言える。

また90%TDの燃料については860~900°C、95%TDの燃料については1000~1100°Cの中心温度となっていた事が言える。

73F8Aの照射は $2\sim 4 \times 10^{20}$ fissions/cm²程度まで行なった。Fig. 3によればGとH試料の挙動には大きな違いがある。すなわち

- (i) G試料(95%TD)は気孔安定化物を混入し高温焼結(1600°C焼結)なのにも拘らず11 GWd/tの燃焼度で、約1%TD程度焼きしまっている。
- (ii) H試料(90%TD)は気孔安定化物をまぜかつ低温焼結(1400°C焼結)なのにも拘らず11 GWd/tの燃焼度で約0.2%TD程度、初期密度に対して密度の低下(スウェリング)を生じている。

この原因にはいろいろと考えられるが、G試料の中心温度がH試料に比べ100~200°C高く、この温度差による物理的差違が挙動様式の変化に影響したとできる。

Stehle et al (10)によれば気孔分布があまり複雑でないと800°C以上の温度では微細気孔による初期焼きしまりは温度に依存することが知られている。あとで示す様に本実験に使用したペレットの気孔分布は比較的単純でありStehleらの言う条件によく合致している事から、GおよびH試料が燃料温度の影響を受けたと推定される。

4.2 燃料製造条件と焼きしまりとの関係

4.2.1 焼結温度、焼結時間と焼結密度

コールドプレスした UO_2 粉末体の焼結には3つの段階がある。つまりi) 粒子間に頸部ができる、ii) 中間的に結合した気孔の減少、iii) 孤立した気孔の連続的な密度上昇(焼きしまり) (11)。この最終段に達するのは理論密度が92~93%TDに達するときである。

焼結温度が焼きしまりに影響する事は確かである。文献(5)によればハルデンプロジェクトでは燃料の焼きしまりは燃焼度、初期密度および焼結温度の関数として取り扱われている。

しかしながらBe Ileら(12)のADU酸化物を65%TDにプレスしたあと水素雰囲気中で焼結したデータによれば開気孔と閉気孔のでき方に差はあるものの、焼結温度(1500°Cと1700°C)

に同してはデーターに差異がみられない。

Fig.5は焼結温度に対する燃料の焼きしまり量をプロットしたものである。Fig.5中にはChubbら(13)の結果もあわせて示してある。Fig.5から次の様なことがわかる。

- (i) 1600 C前後で焼きしまりの焼結温度特性が変化する。すなわち1600 Cより高温では焼きしまり量が減少していくのに対してそれ以下のものでは大きく焼きしまる。
- (ii) 1400 Cで焼結したものは $\sim 2\%$ TD近く焼きしまったのに対して1600 Cのものは最大 $\sim 1\%$ TDでデーターにはっきりと差が出た。

しかしながらFig.5中試料Dは他のものとは異なる挙動がみられた。このDについて少し研究してみたい。密度-焼結時間曲線(Ref.15のFig.2)によるとDは明らかにまだ焼結完了に至っていないかった。

D試料とA試料は焼結温度が1400 Cと低いながらA試料が形状密度95%TDなのに対してD試料は90%TDの形状密度となっている。どうしてこの様な差異が生じたのであろうか。

その一つの解答と思われるものをFig.6に示す。この図は著者が“ UO_2 ペレット密度測定法の相関関係”(文献14)という報告した統計解析結果の一部である。図中にはBell et al(12)から得た焼結密度に関する開気孔および閉気孔の量を示す曲線も並べてある。

図中GDは形状密度(幾何密度), WIDは水液浸密度そしてMIDはメタキシレン液浸密度である。

Fig.6中興味深いのは開気孔が急激に減じて閉気孔がピークになる93%TD(GD)以下で水液浸密度とメタキシレン液浸密度の相関が崩れることである。殆んど開気孔の消失した95%TD(GD)以上ではWID, MIDが殆んど同じ値を示す。

水とメタキシレンとの差は即気孔に対する浸透度/表面張力の差である事から95%TD(GD)以上でWIDとMIDの値に一致性があるのはペレット内が殆んど閉気孔のみで構成されている事の裏付けである。WIDとMIDの値に差が出て来るのは93%TD(GD)以下でここでは閉気孔の減少, 開気孔の増加がおこり, その開気孔量に対応してWIDとMIDの値に違いが出て来るのである。

図中D試料では水液浸密度とメタキシレン液浸密度の差が1.75%TDとなり, E試料の場合の密度差3.75%TDの約半分程度である。これはD試料は同じ形状密度(GD)を持つEおよびF試料にくらべて開気孔の割合の少ない微細組織を有している事を意味している。

またFig.44からわかる様にA, BおよびC試料はGDが95%TDで殆んど開気孔を持たない即ち閉気孔が沢山ある試料である。

以上試料DがFig.4.3で特別な挙動を示した点について言及して来たが簡単にまとめると次の様になる。

- i) A, B, C およびG 試料は組織中の気孔が閉気孔で構成されている。それに対して初期形状密度の低いE, F およびH 試料は開気孔が支配的の範囲に入っている。
- ii) D 試料は初期形状密度は低いながら, 密度試験の結果の示す所によれば開気孔が少なくむしろ

閉気孔の特に多い試料である。

- iii) H試料は何とも不思議な試料で他の試料では水液浸密度(WID) > メタキシレン液浸密度(MID)なのに対して1つだけ逆転の関係をもった試料である。
- iv) 焼きしまり挙動に対しては密度試験の観点からは閉気孔で形成された試料{A, B, C, DおよびG}が1つの群, {EおよびF}が1つの群, そして{H}が1つの群として挙動する。

中心温度測定の結果(Fig. 1)からあわせて考えると(A, B, C, DおよびG試料は閉気孔が支配的な試料で, 炉内照射中1000 ~ 1100 Cに中心温度があった), (EおよびF試料は開気孔と閉気孔との混在で特に開気孔が支配的であり, 中心温度は860 ~ 900 Cの範囲にあった), ついでに(Hは表面張力の小さい水を簡単にうけつけず, 水より表面張力の大きいメタキシレンをよく通すといった他の試料とは逆の性質をもった試料であり, 中心温度は860 ~ 900 Cの範囲にあった)とまとめることができる。

以上の討論に基づいて再びみると, 1400 C焼結では閉気孔支配-高温中心温度のA試料が一番よく焼きしまっており, 同様に閉気孔支配-高温中心温度のDが焼きしまっていない。また, 1600 Cでは開気孔支配-低温中心温度のE試料が閉気孔支配-高温中心温度のB試料よりやや大きく焼きしまっている。

Chubbらの実験結果ともあわせ考えて結論すると以下の様になる。

- ① 高温(1600 C以上)で焼結したものは焼きしまりをおこしにくく, 低温(1600 C以下)で焼結したものは焼きしまりやすかった。
- ② 焼結温度が同じであれば, 組織中の気孔の形態(すなわち開気孔/閉気孔), 燃料中心温度は多少効果はするものの焼きしまりに対して支配的でない。むしろ他の因子の作用が大きく焼きしまりに寄与する。(例えば1600 C焼結のBとE試料を比較すれば, B試料(95%TD, GD)の気孔は殆んど閉気孔で燃料中心温度は高く, E試料(90%TD, GD)の気孔は殆んど開気孔で燃料中心温度が低かったのにも拘らずその焼きしまりは殆んど同じかむしろE試料の方が高目であった。)

焼きしまりに対しては気孔が開気孔であるか, 閉気孔であるかという事よりは, それぞれの存在量, 存在場所, 存在の仕方(大きさ, 分布)の方が重要である。

4.2.2 初期密度

初期密度それのみが焼きしまり因子としてどの程度効果するかという推定を行なうのはかなり難解な問題の1つである。その理由として密度は気孔と密接に結びついており, その気孔が照射によっていろいろと物理的・化学的に変化するからである。

さらに初期密度による焼きしまり量評価を複雑にしているのが, 密度の測定上の問題である。著者が報告書にて報告(14)している様に, 現在汎用されている密度測定法, 例えば形状法, 水液浸

法、メタキシレン液浸法および水銀ピクノメトリー法とかいったものは測定手法はかなり正確であっても、同一ペレットに対して用いた方法で値がみな異なる。この事はFig.6をみても明らかであり、特に93%TDの低密度域になると、ペレット中に存在する気孔の開気孔量と閉気孔量の割合によって各用いた方法で測定値が大きくばらつく。そのばらつきは低密度燃料程ひどい。

実験では測定値に一貫性を持たせる為に照射前後の密度測定にメタキシレン液浸法を用いた。これは、表面張力が水と水銀の間にあり、比較的広範囲に渡ってペレット中の気孔の状態を知らせてくれると考えたからである。

初期密度に対する焼きしまり量との関係をプロットしてFig.7に示す。図中にはW.P.Chernockら(4)、W.Chubbら(13)、およびM.D.Freshlyら(8)の結果も併せてプロットしてある。

Fig.7から次の様なことがわかる。

- i) 初期密度の小さかったEおよびF試料それぞれ2%TDおよび1%TD程度の焼きしまりがあった。初期密度の大きかったA、B、CおよびGはAを除いて1~2%程度焼きしまっており、初期密度の小さかったEおよびFとほぼ同等であった。
- ii) A試料はB、CおよびG試料と同じ程度の初期密度をもったものなのに3.5%TD前後に焼きしまっていた。
- iii) D試料は形状密度は小さかった(90%TD, GD)がメタキシレン密度は他のものに比べて一番大きかった。また焼きしまり量も一番小さかった。
- iv) 密度測定で他の試料とは異なった性質を示したH試料(Fig.6参照)は0.3%TD逆にスウェリングをおこした。

ところで気孔形態(開気孔、閉気孔)では同じ状態にあった{A、B、C、G}試料のうちA試料がとび抜けて大きく焼きしまった事からしてA試料の焼きしまりに密度因子が大きく作用したとは考えられない。

また初期密度には差があったが焼結温度等他の条件を同一に揃えた{EとF}およびそれに対応した{BとC}試料がほぼ同一程度の焼きしまりをおこしている事からして実験範囲内の初期密度(90~95%TD)のペレットには焼きしまりと強く相関する初期密度との相関関係はみられない。

事実Fig.7の初期密度90~95%TDをもった試料と焼きしまりは相当な範囲で広がっており、実験でのA試料の如く4%TD近くも焼きしまった試料がある一方で同一初期密度下で殆んど焼きしまらなかった(~0.2%TD)ものもある。

但し全体的には低密度になるに連れて焼きしまり量が大きくなる傾向にあることおよび96%TD初期密度以上では殆んど焼きしまりがおこらない傾向にある事が観察される。

Ferrariら(6)の言う様に確かに98%TDの初期密度を持ったものは安定である。しかしながらChernockら(4)が言うように93~96%TDの範囲に初期密度をおさめれば安定であるというのは早計であり、むしろChubbら(13)の言うように95%TD初期密度以上でも微細気孔のため大

きな焼きしまりが生ずる事があるから対策が必要というのが当を得ている。

Freshly ら(8)は初期密度と焼きしまり安定性との相関はないと報告している。彼らの実験結果によれば、初期密度の最も小さいものが大きく焼きしまり、最大7%TD以上、97.8%TDにも達した。

著者らの結果(7, 15)と本実験の結果によればペレット初期密度はそれのみでは焼きしまりと強い相関関係にない。この点ではFreshly らの結論と一致しているが、初期密度の最も小さいものが一番大きい焼きしまりを示したというFreshly らの結果とは一致してない。

95%TDの高い初期密度のものでも焼きしまったり焼きしまらなかったりするというChubbらの結果を本実験でも経験したが、更に96%TDをこえると殆んど焼きしまりが生ぜず、GとH試料の比較からわかる様にむしろスウェリングに転じる傾向にあることがわかった。

この96%TDという密度は未照射 UO_2 ペレット中の開気孔が殆んど消失し殆んど閉気孔のみになる(12)境界の密度値である事も興味深い。

4.2.3 初期粒度

(1) UO_2 ペレットの結晶粒度と焼きしまり

UO_2 ペレットの結晶粒度は1つの物理量であり、しかも定量化の可能な量であるため、焼きしまり研究に関しては重要な因子となっている。

実際の結晶は不完全構造あるいは格子不整を数多く含んでおり、照射下で生じた(過剰濃度の)空孔の沈みとなる。従って結晶粒度はそれ自体の成長が焼きしまりに及ぼす効果の上からの重要性に加えて、粒界附近または粒界上に存在している気孔との相互作用による焼きしまりへの寄与という観点から着目すべき量であると考えられる。

燃料製造上の観点から考えれば焼きしまりをおこしにくい燃料を作るのが主目的であって、気孔の形態、気孔の結晶粒中の位置、結晶粒の焼きしまりに対する貢献度等は興味がないかも知れない。しかし本報はあらゆる観点に立っての焼きしまり現象の解明を行なうのであって結晶粒と焼きしまりとの関係には興味注がれる。

さて、Fig. 8は実験結果をプロットしたもので、他の研究者のデータ(8, 13)もあわせて示してある。初期密度-焼きしまり相関データとは異なり、初期粒度と焼きしまりとの関係はChubbら(13)およびFreshlyら(8)の実験結果とJAERIのデータ間にバラツキが少なく一致性が良い。図から次の様なことがわかる。

- (i) 初期結晶粒径が小さくなるに従って焼きしまり量は増大し、逆に結晶粒径が大きくなるに従って焼きしまり量は減少する。
- (ii) 我々の実験によれば粒径が10 μm 以上では殆んど焼きしまりが生じなかった。この結果はFreshlyらの結果と非常に良い一致を示した。Chubbらの結果では粒径が30 μm になっても0.5%TD程度の焼きしまりが生じていた。

(2) 結晶粒の収縮・成長に効果を及ぼす因子についての検討

初期粒径の焼きしまり特性を考察する為に我々のデーターを使って検討を行なってみる。

ここで非常に興味があるのはA試料と同程度の小さい結晶粒でありながらDおよびH試料は焼きしまらなかつたこと、{EとB}、{FとGとC}試料が殆んど粒径に関係なく同一程度の焼きしまりを示したことである。これに対して考察を加えてみる。Fig. 9は照射前後、および炉外実験での結晶粒の大きさを各試料ごとに並べたものである。

またFig. 10はFig. 9の説明の補助のためFig. 8の我々のデーター部分のみを拡大したものである。

試料GおよびHについては照射後、金相試験を行なわなかつたのでFig. 9にはデーターがプロットされていない。

Fig. 9およびFig. 10をあわせて観察することにより次の事がわかる。

- (i) AおよびD試料では結晶粒は殆んど照射前後で変化しなかつた。
- (ii) EとB試料は低燃焼度で(3GWd/t)が成長をおこし、高燃焼度(8GWd/t)では成長の度合いが小さかつた。しかし実験を通じて結晶粒はもとの結晶粒に対して成長をおこした。両者の焼きしまり量はほぼ同一であつた。
- (iii) CとF試料は低燃焼度では粒が成長をおこしたが高燃焼度ではもとの粒径のままであつた。焼きしまり量はほぼ同じであつた。

以上(i)~(iii)の記述を総合すると初期粒径の小さい(AとD)は粒変化が殆んどなく(E, B)は粒成長、そして(FとC)は粒成長、高燃焼度で無変化となつた。興味があるのはこの組みあわせであつて共に結晶粒が無変化の(A, D)は低温焼結(1400 C)、共に成長をおこした(E, B)は高温焼結(1600 C)、成長/無変化の組合わせの(F, C)は高温焼結で気孔安定剤入りであつた。

すでに焼結温度と焼きしまりとの関係を調べ、高温焼結のものは焼きしまりしにくく、低温焼結のものは焼きしまりやすいことが観察された。粒の成長が上記でのべた様に焼結温度に関係する(つまりは気孔の生成・消滅に関係する)のを証明するには、今までのべた各試料中の結晶粒の成長が炉内の熱的過程にあまり依存しないことを言わなければいけない。それを証明するために炉外再焼結実験(1700 C, 24h)を行なつた。これは純粹な熱的過程のみであるから、温度によってペレットの粒度がどの様に変化するかがわかる。この結果もFig. 9中に示してある。またおこした密度変化についてもFig. 10中に示してある。

Fig. 9によれば全試料とも7~11 μm の粒成長(再焼結後の粒径-再焼結前の粒径)を生じており、特に初期粒径の小さかつた試料Aが最大の11 μm 、また初期粒径の小さかつたDが最小の7 μm であつたことは実に興味深い。

また密度変化も絶対値は低かつたが炉内でのそれを大体に於て踏襲した形になっていた。

4.2.4 気孔

UO₂ ペレット製造時に母相中に存在していた気孔が炉内の照射によって定量的に変動をおこし、それが焼きしまり現象に結びつくことは多くの報告書でのべられている。(2~4, 6~10, 13, 16~18, 20~22)

気孔が何故焼きしまり現象の解析に重要であるかという疑問に対して次の様に答えられるであろう。

- (i) 気孔は定量化が可能で照射前後の金相試験により量変化について正確な情報が得られる。
- (ii) 気孔は初期密度と相互に関係し合う量であり、UO₂ ペレット製造上の制御因子としても重要である。
- (iii) 熱中性子、燃焼度、燃料温度、FP ガス等の焼きしまりに関係のある量と密接に結びついている。

しかしながら気孔変動~焼きしまりの関係は一因子的に結びつくものではなく、そのときの照射条件によって多因子が組みあわさって焼きしまり効果をおこすと考えられるため、解析は簡単ではない。

気孔と焼きしまりの関係を捕えるアプローチの仕方はいろいろとあろうが本報では次の様な観点に立って解析を行なった。

- 1 照射前後の気孔分布を定量化する。その分布から得られる気孔平均径、気孔量と焼きしまり量との相関関係を調べる。
- 2 気孔の分布の型と焼きしまり量とに何らかの相関があるかどうかをパターン認識を使って調査する。
- 3 他因子(例えば初期密度、粒度)との関連を加味して安定な気孔、不安定な気孔とはどのようなものかを調べる。
- 4 因子調査として照射前後で次の量ほどの様に変動したかを金相によって調べる。
 - イ) 粒内と粒界上の気孔
 - ロ) 割れの部分の気孔
 - ハ) 燃料の半径方向に依存した気孔

以下では以上1~4について実験結果およびそれに対する討論を行なう。

まとめの都合上、上記1~3を1つにまとめ、4を1つにまとめる。

a) 初期気孔度/気孔分布/他因子との関連(気孔の安定性と不安定性)

すでに第2章の「照射と照射後試験」でのべた手法に基づいて気孔分布を定量化した。その結果をFig. 11, Fig. 12(a), (b), およびFig. 13(a), (b)に示す。Fig. 11は73F-6A: 軸方向の荷重効果を調べる目的で3GWd/tUO₂まで照射したA, B, C 3試料の照射前後の金相と気孔分布である。写真の倍率は各試料とも全て同じ値になっている。

同様にFig. 12は73F-9A: 諸因子効果(燃焼度3GWd/tUO₂)について調べたものの

結果、Fig. 13は73F-11A：諸因子効果（燃焼度8GWd/t UO₂）について調べたものの結果である。図中(a)は試料A～C、(b)は試料D～Fについて示している。

気孔分布測定に関しての定量化手法については報告書が出ている（23）。気孔分布測手に関する基本的な考え方は次の通りである。

ある程度の小さい気孔が沢山あってもその量が全体に対して占める体積割合はそう大きくないであろう。例えば小さい気孔量の合計値は大きい気孔の1個にしか相当していないという事もありうる。

焼きしまり現象の解明では照射による気孔の個数の消滅に関する変動情報が知りたいのであるから、まずある気孔径の区間（ i, j ）を代表する気孔径 d_{ij} とその区間内に存在する気孔の個数 n_{ij} からその区間における平均気孔径 \bar{d}_{ij} （下式）を求める。

$$\bar{d}_{ij} = \frac{\sum_{i < j} d_{ij}}{n_{ij}}$$

片対数横軸に \bar{d}_{ij} 、縦軸に n_{ij} をプロットする。気孔率 P_{ij} は相全体の横面積 A_{all} が知れるから次の様にして求められる。

$$P_{ij} = \frac{\pi (\bar{d}_{ij})^2 \times n_{ij}}{A_{all}} \times 100 (\%)$$

Fig. 14は上記のやり方によって求めた初期気孔径 d_p （ $d_p \leftarrow d_{ij}$ ：置き換えた）と焼きしまり量との関係を示したものである。図中には我々の実験結果の他にFreshlyら(8)の結果もあわせて示してある。また右上には我々の結果について詳細に示してある。Fig. 14から次の様なことがわかる。

- (i) 我々のデータでは $d_p = 4 \sim 7 \mu\text{m}$ でも焼きしまりが生じているのに、Freshlyらでは $d_p = 1 \mu\text{m}$ 程度で焼きしまりがはなはだしくそれ以上の気孔径では殆んど焼きしまりが生じない。
- (ii) 全体的に気孔径の小さいもの程焼きしまりが大きく、気孔径が大きくなると焼きしまりが小さくなる。

また $d_p < 1 \mu\text{m}$ なる気孔径（体積％）に対して焼きしまり量をプロットした結果をFig. 15に示す。図中にはFreshlyら(8)の結果も含んである。また右上には我々の結果を拡大して示してある。

Fig. 15から次の様なことがわかる。

- (i) 我々の結果では～2％程度のサブミクロン気孔量を得た。サブミクロン気孔と焼きしまりの間には明確な相関はえられなかったが、同程度のサブミクロン気孔でも焼きしまるものと焼きしまらないものが存在した。

Freshly ら(8)のデータはサブミクロン気孔が1%以上で我々のデータと補完を成している。我々のデータとの共通部分では我々のデータの方が1%TD程度焼きしまり量が大きかった。1%以下のサブミクロン気孔量でも焼きしまりが4%近くまでおこることがわかり、 $d_p < 1 \mu\text{m}$ の気孔量に大きく焼きしまりが依存するとしたFreshlyらの結果とは合っていない。

- (ii) データ拡大図によれば、サブミクロン気孔の焼きしまりへの寄与はA試料については例外である。

A試料はサブミクロン気孔量が少なかったのにも拘らず大きく焼きしまった。それ以外の試料では全体的にはっきりした傾向はあらわれなかった。

気孔・気孔分布と焼きしまり／気孔と組みあわされた他因子の加算効果 (Fig. 14, 15 を主体にして)

① A試料とD試料に対する詳しい検討

A試料は初期密度は95%TD (GD)と比較的高かったが焼結温度、結晶粒度、気孔径等が他試料に比べて最も低くかつ小さかった。

Fig. 11~Fig. 13の金相・気孔分布によればA試料は $0.1 \mu\text{m}$ から最大 $25 \mu\text{m}$ 程度までの気孔を有し、照射前の状態で最も大きい気孔は40個程度しか存在していなかった。照射によって $4 \mu\text{m}$ 径以下の気孔径のものが相当量焼きしまっており、かつ(結晶粒の成長の項で述べた様に)結晶粒は無成長であった。即ちA試料に於ては $4 \mu\text{m}$ 以下の閉気孔の照射による収縮→消滅が生じ、これに伴う空孔の結晶粒界への移動(原子の気孔中への移動)が生じた結果、焼きしまり因となったと考えられる。

A試料と対を成す様に因子を配列してあったのがD試料である。これは幾何形状密度が90%TDとA試料の95%TDに比べて低い他は製造条件が同じであった。ところがメタキシレン密度測定によればA試料より密度の高い結果が出て、前にのべた様に開気孔混在型(幾何形状密度は低いが開気孔量が多い型)試料となった。開気孔の多い分だけ気孔分布にも差が出て照射前のA試料 $d_p = 4.5 \mu\text{m}$ に対して、D試料 $d_p = 7.5 \mu\text{m}$ と $3 \mu\text{m}$ 程大きかった。サブミクロン気孔の量もA試料の3倍程度あった。

ところが照射を行なった結果ではA試料は全試料中、一番焼きしまり量が大きかったのに対して、D試料が一番小さかった。これは実に興味深い事実である。更に詳しい観察によれば次の様な事がわかった。

即ちFig. 9からAおよびDは照射によっても結晶粒はほぼ無変化であった。

D試料の焼きしまりを妨げたのは何であったのだろうか?その答はFig. 12およびFig. 13の注意深い観察によって与えられる。つまりA試料とD試料は気孔分布の照射による変化が異なる

のである。Fig. 12(a), (b)のA試料とD試料の金相写真，気孔分布の比較をすれば，A試料は4 μm 以下の気孔が照射によって全体的に量の低減（消滅）をおこしているのに対し，D試料は2.5 μm 以上の気孔は照射によって変化をうけたが，それ以下の小さい気孔は照射前後で変動せず，むしろ増加の傾向にある。この傾向はFig. 13で更にはっきりする。

A試料は先程と同様4 μm 以下の気孔に変化を生じているのに対し，D試料は2.5 μm 以上の気孔が照射によって変動したのみで，それ以下は変化しないかむしろ増加した。金相写真からもこの様相がうかがえて，黒く大きめの気孔数が照射後少なくなっているのに小さい気孔がそのままになっている。

A試料とD試料の焼きしまり機構を支配したのは，以上の結果からその気孔形態であることがわかる。即ちA試料は気孔が閉気孔で構成されており，これが照射によって4 μm 以下のものが消滅作用をおこし，結晶粒径の微細さ（空格子の沈みが多く分散していると考え）が手伝って焼きしまりが大きくなった。ところがD試料は開気孔，閉気孔混在型であり，照射によって2.5 μm 以上の大きい径をもつ開気孔がこわれて消滅もしくは小さい気孔に転換したが（一部は結晶粒を収縮させた）2.5 μm 以下の気孔は照射によっても変化をおこさず動かなかつた。

このD試料でおこった現象はHealら(20)の計算結果とは全く違う結論に達した。彼らの報告では閉気孔は捕獲ガス内圧が表面張力と平衡に達するまで収縮し続けるとし，空孔径20 μm 以上は収縮しないとしている。また10 μm のものは0.2 μm まで収縮するという結論である。

またFreshlyら(8)の結果とは一部一致するが，矛盾点もある。つまり彼らの報告では密度が小さくても（9.13%TD）（彼らの照射前のペレットの密度測定は水液浸密度であり，メタキソレン液で測定すればD試料と同じ様な挙動を示す可能性は十分に考えられる）中間気孔径1 μm 以上，結晶粒径10 μm 以上は照射中安定であるという結論に達している。これはまさにD試料の条件（幾何密度90%TD，初期粒径 \sim 10 μm ）とピッタリである。しかしD試料が焼きしまらなかつたのは彼らの言う様に1 μm 以下の気孔が照射中に急激に減少し1 \sim 10 μm 範囲の気孔が急激に増大したのではなく2.5 μm 以下の気孔が照射中，極めて安定にいたからである。

D試料で大きな気孔径をもったものが照射によって変動したが，この種の事がおこりうるのはA. M. Ross (16)も予測している事である。

A試料では大体3 \sim 4 μm 以下の気孔消失が生じて大きく焼きしまりが生じたが，この結果はP. A. Collinsらの結果(19)と非常に良い一致を示した。MacEwenら(22)は1 μm 以上の気孔が消失するのに $10^{19}\text{f}/\text{m}\cdot\text{sec}$ 下で75日かかると予測したが本報の結果（ $2\sim 4\times 10^{20}\text{fissions}/\text{cm}^2$ ）ではいちがいにそうは言えないことがわかる。

D試料でみられた開気孔の変動現象は，D試料のみでなくFig. 6に示す幾何密度が小さかつたEおよびF試料にも全く同じ様に見られた。（Fig. 12, 13のE, F試料の気孔分布参照）

Fig. 10の炉外再焼結データにおいてもA試料の密度変化は最大，D試料のそれは最小で，炉内のそれとよい対応を示した。

② B 試料とE 試料に対する詳しい検討

B 試料とE 試料は①で詳述したA-D 試料に対して焼結温度が1600 Cと高い試料である。

焼きしまりの結果はB およびE 試料ともにA 試料の半分、B 試料の2倍、つまりA-D 試料の焼きしまり値の中間程度となった。これは焼結の効果が利いたと考えて良いであろう。

しかしながら、ここで興味あるのはB とE 試料が殆んど同一程度に焼きしまりをおこしたという事実である。即ち幾何密度で95 %TD のB 試料と90 %TD のE 試料が殆んど照射によって焼きしまりが違わなかった。

Fig. 6 の密度相関図によればB 試料は殆んど閉気孔より構成され、E 試料は開気孔量の相当多い開気孔・閉気孔混在型である。粒径およびサブミクロン気孔量に相違は殆んどない。初期気孔径がB が4 μm 、E が8 μm と大体幅ほどある。

照射によってB およびE 試料は結晶粒が成長した (Fig. 9 参照)。Fig. 12 およびFig. 13 の金相写真と気孔分布をみると、B 試料は0.4~4 μm までの気孔が減少していたのに対しE 試料はほぼ全気孔域に渡って気孔の変動が生じている。しかしながらE 試料では1.0 μm 以上の照射前の気孔が比較的多量に存在していたしその存在域も、B がせいぜい40 μm が最大気孔径だったのに対して70 μm までであった。D 試料の経験から言えば開気孔の相当量の減少は焼きしまりにあまり作用せずむしろ3 μm 程度以下の気孔の減少に注意が必要である。

Fig. 16 の金相写真によれば、A 試料中では結晶粒内の微細気孔が照射によって消失していたが、B およびE 試料では粒内気孔が照射によって減少したが依存として粒界・粒内に気孔が存在している。

以上によればB とE 試料がA 試料より焼きしまりが小さかったのは焼結の効果、結晶粒の大きかったことと照射による粒の成長、そして照射前気孔量が多く、照射によってそれが大きく変動しなかった事であろうと考えられる。B とE 試料がD 試料より焼きしまったのは3 μm 以下の気孔がD 試料と比べてよく消失したからであろう。

③ C 試料とF 試料に対する詳しい検討

C 試料とF 試料の最大の特徴は人工的に大きな気孔を添加したことである。この気孔安定剤の添加効果を着目するために、C-F 試料とB-E 試料の比較を行なう。その理由はB-E/C-F は気孔安定剤の添加以外はUO₂ ペレットの製造データがほぼ等しいからである。

各試料の特徴は次の通りである。

試料	B	C	E	F
幾何密度(%TD)	95	95	90	90
焼結温度(C)	1600	1600	1600	1600
気孔安定剤	なし	添加	なし	添加
初期気孔径(μm)	4.1	8.7	7.8	8.6
焼きしまり量(%TD)	~1.8	~0.8	~1.8	~0.8

これよりわかる事は気孔安定剤の添加によって気孔径が平均で約2倍になり、焼きしまり量は約1/2になったという事である。

更にFig. 12およびFig. 13より次の事がわかる。

安定剤の添加を行なった照射前のC試料では1 μm 付近の山に引き続いて20 μm 付近に山が生じた。一方、F試料ではE試料との比較により2 μm 付近にあらたに山が生じた。

照射後の気孔分布の変動は安定剤の添加によって変わらなかった。

気孔の安定性と不安定性

焼きしまりに多大に貢献する気孔を不安定な気孔、焼きしまりに貢献しないものを安定な気孔とすれば、一体どの様な気孔が安定性を持つであろうか？今までの検討によればA試料の様な気孔は不安定性要素が強く、D試料のようなものは安定性要素が強い。B、およびE試料は本実験では中程度に焼きしまったが、気孔安定剤の添加によって、最も焼きしまりの小さかったD試料の水準までおとすことができた。

そこでA試料、D試料について、気孔の観点からみた安定条件、不安定条件を比較してみる。

(総合的な観点からみた焼きしまりにくいペレットの検討は後の方で検討する)

	A 試料	D 試料
平均気孔径(μm)	4.5	8.7
サブミクロン気孔体積(%)	0.3	1.4
照射前気孔分布の特徴	最大30 μm 程度の小さい気孔がなだらかに分布しており、山は1.0 μm 程度	最大50 μm 程度の比較的大きい気孔が分布しており、山は6~7 μm 程度。
照射前後の分布変動	4 μm 以下のものがよく消失した	3 μm 以下のものが消失しなかった。大きな気孔に変動があった。
気孔の形態	殆んど閉気孔	開気孔・閉気孔の混在型

b) 粒内・粒界上の気孔／割れの部分の気孔／燃料の半径方向に依存した気孔

A.M. Ross (16)によれば気孔の消失は粒界でできる割れの増大、照射中に生じる粒内応力によって影響を受ける。つまり核分裂ガスで満たされた気孔に照射によるガス原子の吸着が生じ、高エネルギー分裂片による動エネルギーの増加と共に UO_2 格子中へガス原子が再解する過程で焼きしまるといものである。

D. M. Collins ら(19)によれば粒界上の気孔の焼結が焼きしまりが生じる。

Burton ら(21)によれば焼結中に気孔が粒界から離脱する。

またM. Megata ら(24)によれば $1\ \mu\text{m}$ 以下の気孔の消失はペレット中間部で著しく、高温部では粒界上に気泡が形成された。

我々の実験結果によれば大きく焼きしまったA試料では照射後粒内から微細な気孔が存在していたが、それ以外では全部に粒内気孔がみられた。粒界上には照射前後を通じて多量の気孔が存在していた。

またペレットの割れ部分の焼きしまりへの寄与はFig. 17の全体的な写真からわかる様に割れ自体がペレットの焼きしまりに大きく貢献する様には分布していない。

照射中のペレットの中心部と外周部では当然の事ながら、大きな温度勾配が生じており、その違いによる焼結機構には差が生ずる事が考えられる。Fig. 18はペレット中心部と外周部を対比させた写真であり、中心部における気孔は幾分少なめであるがその差は顕著でなかった。

4.2.5 炉外再焼結実験

a) 炉内実験値との比較

すでに文献(7)にて報告した様に炉外再焼結実験による密度変化は $1700\ \text{C}$ 、24時間で完結する。Chernock ら(4)によればある程度の時間内に微細組織変化をおこさせるには $1200\ \text{C}$ 以上の温度が必要であり、炉外では炉内よりも低い温度($400\sim 1000\ \text{C}$)でしかも短期間に焼きしまりが生ずる。 $1700\ \text{C}$ は $1200\ \text{C}$ に比べて十分高い温度である。

炉外再焼結実験の結果生じた結晶粒の成長現象については炉内のそれと関連させて、すでに4.2.3でのべた。一般に結晶粒の成長は炉外実験では著しく炉内では殆んど成長しなかった(かむしろ収縮の傾向にあった)AおよびD試料では5~7倍、その他のものでは2~3倍の結晶粒成長が生じた。

これは炉内のペレットが $1700\ \text{C}$ よりかなり低い条件にあり、そのために炉内ペレットの結晶粒は炉外のものに比べて熱的過程による結晶粒成長が小さいと考えられる。

照射前後および再焼結実験に於て最も大きな密度変化(焼きしまり)が生じた試料Aについて、その金相と気孔分布の比較を行なった。その結果をFig. 19に示す。

図から明らかな様に照射前の気孔分布を基準にして考えると再焼結試験では $2\ \mu\text{m}$ 以下の気孔が炉内のものよりも大きく消失する。しかしながら大きな気孔は再焼結試験では炉内のもの

より減りかたが小さいし、むしろ大きくなっている傾向がある。

b) 炉内焼きしまりとの等価性

炉外焼結実験による密度上昇と炉内でのペレットの密度上昇（焼きしまり）との相関を知ることは興味深い。その理由は簡単な炉外試験での炉内の焼きしまり量を予測する事が可能となるからである。H. Devold (25) によれば炉外焼きしまりは炉内のものと一致した。また M. D. Freshly ら(8)によれば 1200 ~ 1300 C, 1500 時間での等温焼結による結果がそれと等価な照射による焼きしまりによって得た平均気孔分布に相似している。

1700 C, 24 時間の再焼結実験による密度変化は、我々の実験に於ては炉内の焼きしまり値よりも低目に評価された。結果を Fig. 20 に示す。図中のデータは全て 1700 C, 24 時間のものである。図中には EPRI の Freshly ら (8, 26), その他 (27, 28 より引用) の結果も含まれている。

実験データ間の相互比較を行なうと、我々の結果では炉内焼きしまり > 炉外再焼結焼きしまりとなりその違いは約 1% TD になる。これに対して EEI / EPRI では逆に炉内焼きしまり < 炉外再焼結焼きしまりとなっている。

炉内焼きしまりと炉外再焼結焼きしまりとの相関はバラツキはあるものの比較的良い。我々の実験データは、しかしながら炉外実験から推定したものが、炉内での焼きしまりを過小評価する傾向にあり、より一層のデータの蓄積が望まれる。

4.3 軸方向に加えた圧縮力の効果と焼きしまり

軸方向に拘束力を加えた場合と加えない場合ではペレットの焼きしまり挙動に差が出るか否かは興味ある事実であり、それによって焼きしまりが低減化されるなら焼きしまりの防止対策になりうる。

実験では 73F 6A をベローズ系にし、ばね力で圧縮力をペレット軸方向に加えた。照射後の結果は等燃焼度で圧縮力を付加しなかった 73F 9A の同一試料と比較した。試料は 6A と 9A につき A, B および C 試料の 3 種類であった。軸方向圧縮力下の焼きしまりに及ぼすペレットの初期密度、初期粒度および初期気孔度 / サブミクロン気孔量の効果を Fig. 21 ~ Fig. 23 に示す。

これらの図のどれをとってみても殆んど同一焼きしまりのデータ値が得られており、軸方向圧縮力は焼きしまりにはあまり影響を及ぼさなかったと結論できる。

Freshly ら(8)も軸方向拘束力下での焼きしまりを調べており、我々と同一の結論に達している。

4.4 焼きしまりをおこさない様にするには？

UO₂ ペレットの焼きしまりについて論じてきたが、各節で得られた結論に基づいて、最も焼

きしまりの生じない安定な燃料にする為には、どうしたら良いのかという疑問について考察してみる。

焼きしまりに対する燃料安定化条件（以下安定化条件）について個条書きすれば次の様になる。

安定な燃料とは大きな焼きしまりをおこさない燃料のことで本実験の製造因子に関する一連の実験で大体4%TDの焼きしまり値が安定・不安定燃料の境界値と考えられる。

安定化条件1

気孔安定剤（気孔形成物）を添加すること。

実験で気孔安定化剤を添加した試料は、密度・粒度等その他の製造条件を無視しうる程安定であった。

安定化条件2

気孔安定剤を添加しない場合にはD試料を模擬した燃料が好ましい。

この燃料は焼結温度が1400 C、幾何密度90%TD、粒径2 μ mという燃料であり、開気孔・閉気孔量混在型である。気孔分布は10 μ m程度の所にピークをもつもので、平均気孔径も7.5 μ mと同じ幾何密度で高温焼結した燃料と同程度の大きい気孔径を持っていた。

この試料と最大焼きしまりを示した試料との製造条件の差異については4.2.4 “気孔”，気孔の安定性と不安定性の項で一覧表にしておいた。

安定化条件3

中心孔をつけること。

H試料はD試料に中心孔（5.55 mm ϕ の直径に1.8 mm ϕ の中心孔）をつけたもので、D試料と同様に焼きしまらず 11G Wd /t UO₂ の照射によって逆に密度の減少（スウェリング）に転じていた。

安定性という言葉は、焼きしまりをおこさないという言葉と同義であろうが、それがどの程度の焼きしまり量であるのかは明確でない。本報では4%TDの密度上昇値をもって燃料の焼きしまりに対する安定・不安定を区別している。外国の文献では燃料の安定性についてどの様な見解を持っているかを紹介する。

(1) M.O. Marlowe (2) : 気孔安定剤を添加すること。

焼結前に高圧でプレスラッキングな粉体を用いること。

(2) A. Hanevik et al (3) : 安定化はペレット組織に依存するから、製造上で組織を安定化する様に作ること。

(3) W.P. Chernock et al (3) : 製造時における微細気孔量に留意すること。

(4) W.Chubb et al (4) : 燃料中の微細気孔の量を制限すること。組織と気孔の制御を的確に行なう為材料の選択に細心し、適切な製造過程を用いる事。

(5) M.D. Freshly et al (8) : 微細構造組織がある範囲内に入る様に作った焼結UO₂ ペレ

ットが安定。初期密度が低くても(9.13%)、微細気孔量を $1\mu\text{m}$ 以上に大きくしておきかつ結晶粒径を大きく($\geq 10\mu\text{m}$)しておけば安定である。

- (6) H.Devold et al (25) : 高温 $\sim 1700\text{C}$ で焼結したものは、最も安定な燃料となり、初期粒度の大きいもの($\geq 12\mu\text{m}$)は焼きしまらない。

以上の(1)~(6)と我々との結果を比較すると、(1)~(6)の殆んどが製造条件・および微細構造組織について解説している。但し(5)の文献を除いてはかなり説明が抽象的であいまいである。我々の実験と同程度に詳しく解説したのは(5)の文献である。但し(5)文献が解説している気孔径は $1\mu\text{m}$ 以上ならば安定としているが、我々の実験では $3\sim 4\mu\text{m}$ 以下の気孔径が大きく変動して焼きしまりに寄与するので焼きしまりをできる限り低減化(1%TD以下)するには $7\sim 8\mu\text{m}$ 程度の気孔径にするのが望ましいというのが我々の結論である。

4.5 焼きしまり値の推定方法

燃料体の照射挙動の解析で燃料の焼きしまりを評価する場合、実験によれば $4\sim 8\text{GWd/t}$ あたりで焼きしまりは飽和するが、それ以前では燃焼度(以下BU)の関数となる。

そこで焼きしまり現象を照射前のデータからアプローチする仕方について提案する。

① 製造データから最大焼きしまりを推定する方法

実験で得た結果を総合するとデータ集団に於て極端に焼きしまるものと焼きしまらないものとの境界値は初期密度/粒度/気孔度に於ては4%TD、焼結温度に於ては2%TDであることがわかる。

更に密度について考えると4%TDで焼きしまりを区切ると90~96%TDの範囲で、データ間に殆んど相関がなくなる。同様に焼結温度でも2%焼きしまりで区別を行なうと1300~1800Cの範囲で殆んど相関が消失する。

従って製造データのうち初期粒度(Initial Grain Size)と初期気孔度(Initial Pore Size)とから最大焼きしまり値を得る方法を考慮する。ここでいう最大焼きしまり値は実際の炉では $4\sim 8\text{GWd/t}$ におこるものと考えている。

実験データからモデル化を行なえばFig. 24の様になる。この粒度-気孔度推定法(Grain Size-Pore Size Estimation Method : 以下GPE法とかく)はFig. 24を使って製造データより得た粒径と気孔径より最大焼きしまり値を推定するものである。

- [例]① 73F実験で使用したA試料は粒度 $IG = 2\mu\text{m}$ 、気孔度 $IP = 4\mu\text{m}$ であった。これをFig. 24にあてはめるとIG曲線より $\Delta\rho_{\text{max}}(IG) = 4\%TD$ 、IP曲線より $\Delta\rho_{\text{max}}(IP) = 4\%TD$ 、従って最大焼きしまり推定値 $\Delta\rho_{\text{max}}(A) = 4\%TD$ である。(実験では $3.5\sim 3.8\%TD$) $\Delta\rho_{\text{max}}(IG)$ と $\Delta\rho_{\text{max}}(IP)$ の値が異なった場合は大きい値を採用する。

- ② E 試料は IG $4\mu\text{m}$, ID $8\mu\text{m}$ であった。このとき $\Delta\rho_{\text{max}}(\text{IG}) = 2.6\% \text{TD}$,
 $\Delta\rho_{\text{max}}(\text{IP}) = 2\% \text{TD}$, 従って $\Delta\rho_{\text{max}}(\text{E}) = 2.6\% \text{TD}$ (実験では 1.8%TD)

- ② 炉外再焼結実験を行なってそのデータから最大焼きしまりを推定する方法

実験結果によれば、炉外再焼結実験は 1700, 24 時間で完結する。そこで 1700 C, 24 時間の炉外一炉内の焼きしまり値を対応させた Fig. 20 を用いて炉外焼結の実験データから炉内の最大焼きしまり値を推定できる (////// 内の値を採用)。

NRC 焼きしまりモデルはこの炉外実験の値を更に燃焼度と結びつけて、燃焼度変化と焼きしまりを結びつけている。

5. 結 言

燃料体の照射挙動に関する研究の一環として実施した UO_2 燃料の焼きしまりに関する実験結果が解析し終えたので報告する。

焼きしまり挙動解析のために以下の変数を用いた :

- (i) 照射条件 (燃焼度, 線出力, 中心温度)
- (ii) ペレット製造条件 (初期密度, 初期粒度, 気孔度および気孔分布)
- (iii) 軸方向圧縮力

得た結果は下の通りである。

- (i) 一焼きしまり実験は燃焼度 3 ~ 11 Gwd/t UO_2 の範囲で行なった。焼きしまりは 4 ~ 8 Gwd/t UO_2 ではほぼ飽和した。照射量は $2 \sim 4 \times 10^{20}$ fissions/cm² であった。
 一線出力密度を 190 ~ 540 W/cm に変えて実験を行なったが焼きしまりには殆んど影響しなかった。
 一焼きしまり実験中の燃料中心温度は定常で 860 ~ 1100 C の範囲にあった。ペレット中心温度の差によって焼きしまり量に差が生じた。
- (ii) 一高温焼結 (1600 C) したペレットは焼きしまりにくく、低温焼結 (1400 C) したものは焼きしまりやすい傾向がみられた。
 一ペレットは低密度のものが高密度のものにくらべて焼きしまりやすい傾向にあったが、全体的にはペレット初期密度と焼きしまりの間に強い相関はみられなかった。96%TD 以上の高密度ペレットでは殆んど焼きしまりは生じない。また 95%TD 付近では同一初期密度のペレットでも 3%TD 以上の焼きしまり量の差が生じた。ペレット初期密度の値は 93%TD 以下の低密度域では開気孔の存在のため、用いた密度測定法によって測定した密度が大きく変わる。これに対して 93%TD 以上では用いた測定法によらずほぼ一定の値を示す。

- ② E 試料は IG $4\mu\text{m}$, ID $8\mu\text{m}$ であった。このとき $\Delta\rho_{\text{max}}(\text{IG})=2.6\%TD$,
 $\Delta\rho_{\text{max}}(\text{IP})=2\%TD$, 従って $\Delta\rho_{\text{max}}(\text{E})=2.6\%TD$ (実験では $1.8\%TD$)

- ② 炉外再焼結実験を行なってそのデータから最大焼きしまりを推定する方法

実験結果によれば、炉外再焼結実験は 1700, 24 時間で完結する。そこで 1700 C, 24 時間の炉外一炉内の焼きしまり値を対応させた Fig. 20 を用いて炉外焼結の実験データから炉内の最大焼きしまり値を推定できる (////// 内の値を採用)。

NRC 焼きしまりモデルはこの炉外実験の値を更に燃焼度と結びつけて、燃焼度変化と焼きしまりを結びつけている。

5. 結 言

燃料体の照射挙動に関する研究の一環として実施した UO_2 燃料の焼きしまりに関する実験結果が解析し終えたので報告する。

焼きしまり挙動解析のために以下の変数を用いた :

- (i) 照射条件 (燃焼度, 線出力, 中心温度)
- (ii) ペレット製造条件 (初期密度, 初期粒度, 気孔度および気孔分布)
- (iii) 軸方向圧縮力

得た結果は下の通りである。

- (i) 一焼きしまり実験は燃焼度 3 ~ 11 Gwd/t UO_2 の範囲で行なった。焼きしまりは 4 ~ 8 Gwd/t UO_2 ではほぼ飽和した。照射量は $2 \sim 4 \times 10^{20}$ fissions/cm² であった。
 一線出力密度を 190 ~ 540 W/cm に変えて実験を行なったが焼きしまりには殆んど影響しなかった。
 一焼きしまり実験中の燃料中心温度は定常で 860 ~ 1100 C の範囲にあった。ペレット中心温度の差によって焼きしまり量に差が生じた。
- (ii) 一高温焼結 (1600 C) したペレットは焼きしまりにくく、低温焼結 (1400 C) したものは焼きしまりやすい傾向がみられた。
 一ペレットは低密度のものが高密度のものにくらべて焼きしまりやすい傾向にあったが、全体的にはペレット初期密度と焼きしまりの間に強い相関はみられなかった。96%TD 以上の高密度ペレットでは殆んど焼きしまりは生じない。また 95%TD 付近では同一初期密度のペレットでも 3%TD 以上の焼きしまり量の差が生じた。ペレット初期密度の値は 93%TD 以下の低密度域では開気孔の存在のため、用いた密度測定法によって測定した密度が大きく変わる。これに対して 93%TD 以上では用いた測定法によらずほぼ一定の値を示す。

—初期結晶粒度の小さいペレットでは焼きしまりが大きく、その大きいペレットでは焼きしまりが小さかった。初期粒径と焼きしまり量との間には比較的良い相関が見られた。10 μm 以上の粒径をもったペレットでは殆んど焼きしまりはおこらなかった。この結果はFreshlyらの焼きしまり実験の結果と非常に良く一致した。炉内では結晶粒の成長はあまり大きくなかったが、炉外では再焼結実験によって7~11 μm の結晶粒の成長が用いた試料全部に観察された。

—実験で用いたペレットの気孔径は平均で4~7 μm 直径の範囲にあった。Freshlyらの結果によれば焼きしまりに多大に寄与する気孔は1 μm 以下のものであったが、実験では4~7 μm の範囲にある気孔の消失も相当焼きしまりに寄与した。1 μm 以下の気孔の総量(サブミクロン気孔)が焼きしまりに及ぼす寄与は明確でなく、それが少ないものでも焼きしまりが大きいという現象が観察された。

—気孔分布上、気孔径の山の位置は焼きしまりとよい相関をもつ。すなわち気孔径が径の大きい範囲まで分布し6~7 μm 以上の付近に分布の山をもったペレットは焼きしまり量が小さかった。これに対して気孔径の分布がせまく(最大でも30 μm 程度)1 μm 付近に分布の山をもったペレットは焼きしまり量が大きかった。

気孔安定剤(気孔形成物)の添加によって気孔分布に変動が生じ焼きしまりにくくなる。実験では気孔安定剤の添加によって気孔平均径が2倍となり、逆に焼きしまり量は添加前の半分となった。

良く焼きしまったペレットでは照射後、結晶粒内に気孔が存在していなかった。その他のものでは照射後でも粒内に気孔が存在しているのが観察された。ペレットの割れの焼きしまりへの寄与ははっきりしなかった。

ペレット中心部での気孔消失量は外周部に比べてやゝ大きい。

—製造条件がほぼ同じでも焼きしまり挙動が全く異なる場合が生じる；最大焼きしまりを生じたペレットの製造時の特性は高密度、低温焼結かつ低結晶粒度であった。一方、最小焼きしまりを示したペレットの製造時の特性は低密度、低温焼結かつ低結晶粒度であった。照射における両者の挙動で最も違いの大きかった事は気孔分布の変動の様相であった。即ち最大焼きしまりペレットでは4 μm 以下の気孔径をもった気孔の照射による消失が著しかったが、最小焼きしまりペレットでは2.5 μm 以下の気孔が照射後でも殆んど消失せずむしろ増加の傾向にあった。3~4 μm 以下の気孔の消失が焼きしまりに大きく効果した現象が最大焼きしまりペレットに於て観察されたが、この現象はD. A. Collinsらによっても同様に観察されている。

—開気孔が照射によって影響される現象が見られた。閉気孔が大きな割合を占めるペレットでは閉気孔・開気孔混在型のものより大きく焼きしまりをおこす傾向が見られた。

—炉内で最大に焼きしまったペレットは炉外再焼結実験でも同様に最大に焼きしまり、炉内で

の最小焼きしまりペレットは炉外でも最小となっていて、炉内—炉外での焼きしまり傾向には良い一致性が見られた。しかしながら最終には炉内焼きしまり量は炉外実験のものよりも全ペレットに対して大きかった1700 C、24時間条件で行なった炉外再焼結実験でのペレット焼きしまり量は炉内最大焼きしまり量(4~8 GWd/t UO₂ 燃焼度での密度変化量)よりも小さい値を示した。

炉外実験における気孔分布の変化は2 μm以下の気孔径で炉内照射後のものより大きく、2 μm以上ではその逆となっていた。すなわち炉外試験では2 μm以下の気孔の消失が炉内より大きい。

—焼きしまり値4%TDで燃料の安定性・不安定性を区別するのが妥当であるとの結論を得た。安定燃料を得るには気孔安定剤を添加するか、10 μm以上の所に山をもつ(平均径では6~7 μm以上)気孔分布を持たせたペレットを製造工程で作ることにより可能となる。

(iii)—軸方向圧縮力は殆んど焼きしまりに影響しなかった。

(iv)—実験結果から得た結論に基づいて粒度—気孔度の2変数より安定燃料の最大焼きしまり量を推定するGPE法を提案した。

謝 辞

照射後試験に於て注意深い作業を行なって下されたJMTRホットラボのスタッフの皆様、および照射に関しての仕事に専心下されたJMTRの石井氏に感謝致します。実験の遂行ととりまとめに関しましては有効な助言と討論をして下さった当研究室の市川室長、および内田正明氏(在バルデン)に深く感謝致します。

の最小焼きしまりペレットは炉外でも最小となっていて、炉内—炉外での焼きしまり傾向には良い一致性が見られた。しかしながら最終には炉内焼きしまり量は炉外実験のものよりも全ペレットに対して大きかった1700 C、24時間条件で行なった炉外再焼結実験でのペレット焼きしまり量は炉内最大焼きしまり量(4~8 G Wd / t UO₂ 燃焼度での密度変化量)よりも小さい値を示した。

炉外実験における気孔分布の変化は2 μm以下の気孔径で炉内照射後のものより大きく、2 μm以上ではその逆となっていた。すなわち炉外試験では2 μm以下の気孔の消失が炉内より大きい。

—焼きしまり値4%TDで燃料の安定性・不安定性を区別するのが妥当であるとの結論を得た。

安定燃料を得るには気孔安定剤を添加するか、10 μm以上の所に山をもつ(平均径では6~7 μm以上)気孔分布を持たせたペレットを製造工程で作ることにより可能となる。

(iii)—軸方向圧縮力は殆んど焼きしまりに影響しなかった。

(iv)—実験結果から得た結論に基づいて粒度—気孔度の2変数より安定燃料の最大焼きしまり量を推定するG P E法を提案した。

謝 辞

照射後試験に於て注意深い作業を行なって下されたJ M T R ホットラボのスタッフの皆様、および照射に関しての仕事に専心下されたJ M T Rの石井氏に感謝致します。実験の遂行ととりまとめに関しましては有効な助言と討論をして下さった当研究室の市川室長、および内田正明氏(在ハルデン)に深く感謝致します。

参 考 文 献

- (1) USAEC; Technical Report on Densification of General Electric Reactor Fuels, TID-24659 (1973)
- (2) M.O. Marlowe; In-reactor Densification Behavior of UO_2 , GE Internal Report, NEDM-12440 (1973)
- (3) A. Hanevik et al; In-reactor Measurement of Fuel Stack Shortening, Paper No. 89 presented BNES Nuclear Fuel Performance Conference, London (1973)
- (4) W.P. Chernock et al; Fuel Performance-Impact of Densification, Proceed, Amer. Power Conf., 36 (1974) 234
- (5) P.E. MacDonald et al: A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of LWR Fuel Rod Behavior ANCR-1263 (1976)
- (6) H.M. Ferrari et al; Fuel Densification Experience in Westinghouse PWR, Paper No.54, presented at BNES Nuclear Fuel Performance Conference, London, October 15-19 (1973)
- (7) K. Yanagisawa et al; Study on Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets, JAERI-M 7210 (1977)
- (8) M.D. Freshly et al; Irradiation-Induced Densification of UO_2 Pellet Fuel, J. Nucl. Mat., 62 (1976) 138
- (9) Chislain de Contenson et al; Nucl. Energy Maturity, 3(1975) 145
- (10) H. Stehle et al; In-Reactor UO_2 Densification, J. Nucl. Mat., 61 (1976) 326
- (11) W. Beere; The Sintering and Morphology of Interconnected Porosity in UO_2 Powder Compacts, J. Mat. Sci., 8 (1973) 1717
- (12) J. Belle et al; Uranium Dioxide Properties and Nuclear Applications, USAEC, Washington (1961) 93
- (13) W. Chubb et al; The Influence of Fuel Microstructural on In-pile Densification, Nucl. Tech., 26 (1975) 486
- (14) K. Yanagisawa; Correlations Between Different Methods of UO_2 Pellet Density Measurement, JAERI-M 7158 (1977)
- (15) M. Uchida et al; Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets (I), JAERI-M 6904 (1977)
- (16) A.M. Ross; Irradiation Behavior of Fission-Gas Bubbles and Sintering Pores in UO_2 , J. Nucl. Mat., 30 (1969) 134
- (17) E.E. Gruber; On the theory of migration and coalescence of bubbles in solids, ANL-7079 (1965)

- (18) M.O. Marlowe; Predicting In-reactor Densification Behavior of UO_2 , Trans ANS 17 (1973) 166
- (19) D.A. Collins et al; Performance-Limiting Phenomena in Irradiated UO_2 , Paper No.50, presented at BNES Nuclear Fuel Performance Conference, London, October 15-19 (1973)
- (20) T.J. Heal et al; Development of Stable Density UO_2 Fuel, Paper No.52, presented at BNES Nuclear Fuel Performance Conference, London October 15-19 (1973)
- (21) B. Burton et al; The Sintering of Grain Boundary Cavities in UO_2 , J. Nucl., Mat., 45 (1972/73) 104
- (22) S.R. MacEwen et al; A Model for In-reactor Densification of UO_2 , Phil. Mag., 31 (1975) 135
- (23) K. Yanagisawa; Grain Size, Pore Size and Pore Size Distribution Measurement of UO_2 Pellet by Utilizing a Image Analyzing Instrument (QTM), JAERI-M 7289 (1977)
- (24) K. Megata et al; Fall Meeting of the Atomic Energy Society of Japan (1977) G52
- (25) H. Devold et al; Private Communication
- (26) "EEI/EPRI Fuel Densification Project" EPRI Report (Revised) (1975)
- (27) W.R. Corcoran (CE) Letter to O.D. Parr (USAEC) with attachment, (Proprietary version also included) (1974)
- (28) R.O. Meyer; The Analysis of Fuel Densification, NUREG-0085 (1976)
- (29) "An Acceptable Model and Related Statistical Methods for the Analysis of Fuel Densifications" U.S. NRC Regulatory Guide 1,126 (1977)
- (30) K. Yanagisawa; (1977)
- (31) H. Devold et al; Private Communication

付録 燃料安全第1研究室における焼きしまり実験の成果報告

燃料安全第1研究室では

“原子炉燃料体の照射挙動に関する研究”

なるテーマのもとに UO_2 ペレットの焼きしまりを一貫して研究した。以下はその成果集である。

A 報告書(公開文献)

- (A. 1) M. Uchida et al ; Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets (I), JAERI-M 6904 (1977)
- (A. 2)* K. Yanagisawa et al ; Study on Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets, JAERI-M 7210 (1977)
- (A. 3) K. Yanagisawa ; Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets (II), JAERI-M 7807

<焼きしまり実験から派生したもの>

- (A. 4) K. Yanagisawa ; Conception, Definition, Measuring Procedure of Grain Size - A grain size diameter determination of a UO_2 pellet -, JAERI-M 6839 (1976)
- (A. 5) K. Yanagisawa ; Correlations Between Different Methods of UO_2 Pellet Density Measurement, JAERI-M 7158 (1977)
- (A. 6) K. Yanagisawa ; Grain Size, Pore Size and Pore Distribution Measurement of UO_2 Pellet by Utilizing a Image analyzing Instrument (QTM), JAERI-M 7289 (1977)

B 学会報告, 雑誌への投稿

- (B. 1) M. Uchida et al ; Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets (I), 1976 Fall Meeting of the AESJ

* PNC (動燃団) との共同研究。

(B. 2) K. Yanagisawa et al ; Study on Densification of Uranium
Dioxide Fuel Pellets , 1977 Fall Meeting of the AESJ .

(B. 3) K. Yanagisawa et al ; Study on Densification of Uranium
Dioxide Fuel Pellets , J. Nucl . Mat . , (投稿中)

(B. 4) K. Yanagisawa ; Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets (II)
1978 Fall Meeting of the AESJ .

(予定)

(B. 5) K. Yanagisawa ; Densification of Uranium Dioxide Fuel Pellets (II)
; (投稿先未定)

* その他、ハルデンデータ等を焼きしまりの考察にとり入れた未公開文献も所内資料用に作成されている。

Table 1 The outlines of the fuel and the irradiation conditions

Irradiation conditions of the capsule

The specifications of the fuel

Material	:	Uranium dioxide
Enrichment	:	10 weight percent
Geometrical density	:	90 and 95 %Theoretical Density
The dimensions of the pellet	:	5.5 mm diameter x 5.5 mm height

Irradiation conditions

Estimated power density	:	63 W/g
Estimated fuel centre temperature:		less than 1 000 C
Estimated attained burnups	:	about 10 GWd/tUO ₂ (2.8 x 10 ²⁶ fissions/m ³)

Table 2 The explanations of the capsule used in experiment and the matrix arrangement with parameters

Group of the pellets	A	B	C	D	E	F	G	H
Capsule 73F- 6A	The effect of axial force-----							
8A	Measurement of the fuel centre temperature							
9A	Parametric survey (density, grain, pore etc.)-----							
11A	Parametric survey (density, grain, pore etc.)-----							
Geometrical density (%TD)	95	95	95	90	90	90	95	90
Sintering temperature (C)	1400	1600	1600	1400	1600	1600	1600	1400
Pore stabilizer	x	x	added	x	x	added	added	x

Table 3 The capsule explanation of 73F densification experiment plan

item	capsule name	73F6A	73F8A	73F9A	73F11A
specific objective		effect of axial loading	center-temp.. change due to densification	parametric survey	
instrumentations & control		bellows system	4 center T/C 2 T/C 2 SPD	4 T/C	
number of stacks		1	2	2	
number of UO ₂ pellets		9 (A,B,C each 3)	40 (G and H each 20)	36 (A to F each 6)	
reactor cycles		1	5	1	4

Table 4 Burnup and peak linear heat rating vs corresponding each irradiation capsule

Capsule	Burnup(GWd/tUO ₂)	peak LHR(W/cm)
73F-6A	3	190
-8A	11	240
-9A	3	210
-11A	8	240
74LF23A	1.7	540

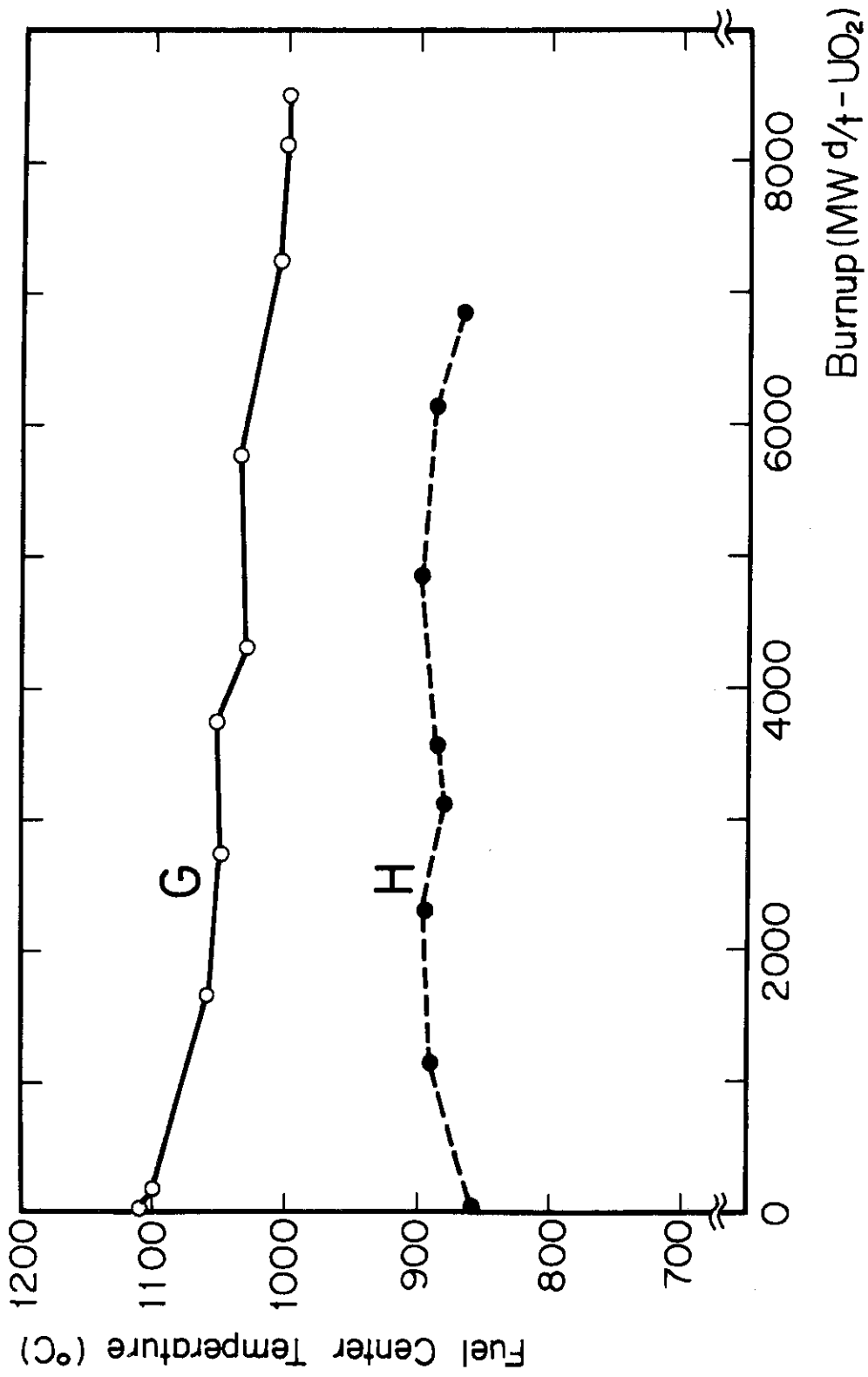


Fig. 1 Fuel centre temperature vs burnup

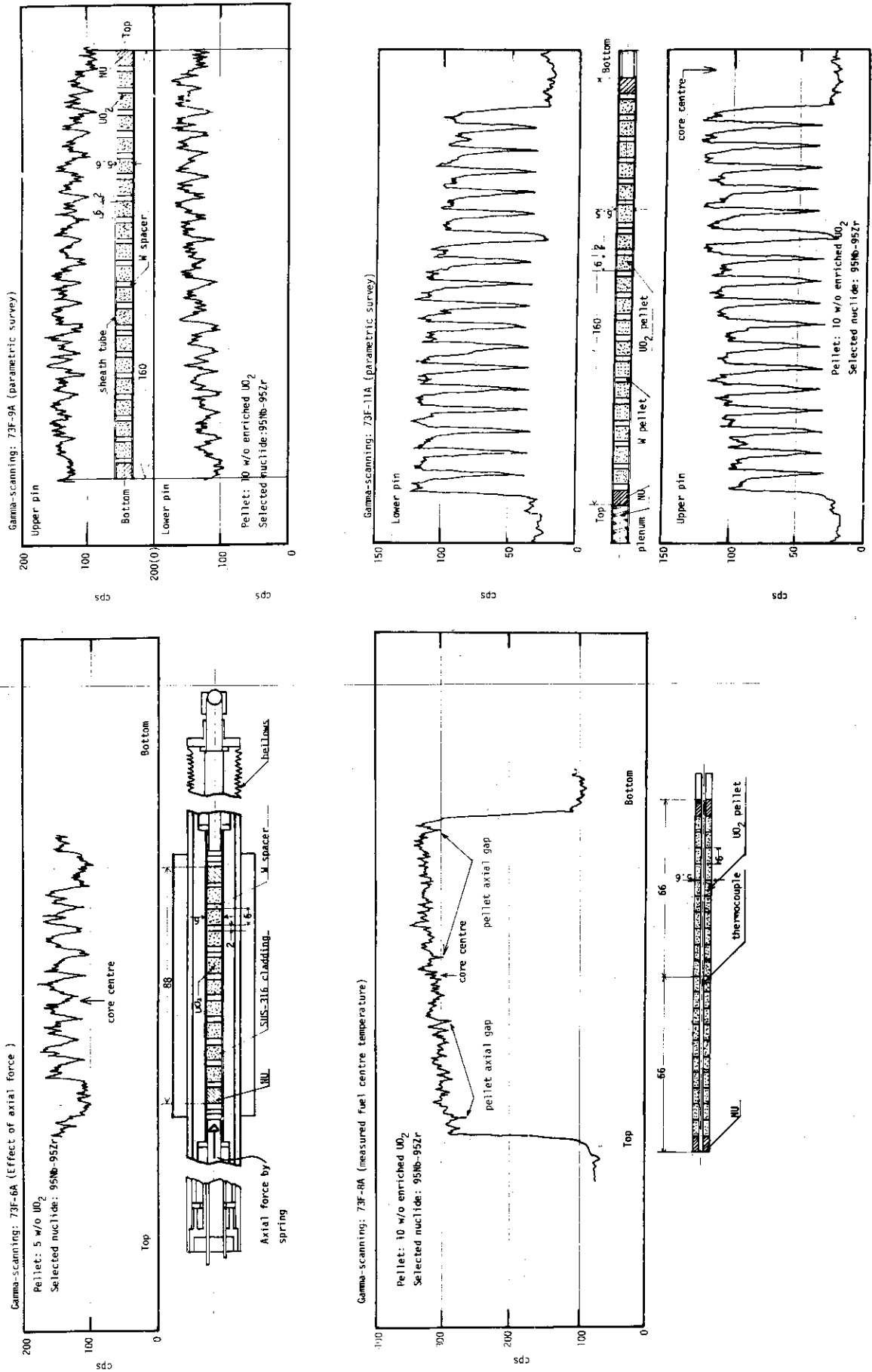


Fig. 2 Gamma-scanning of the capsule for 73F densification series

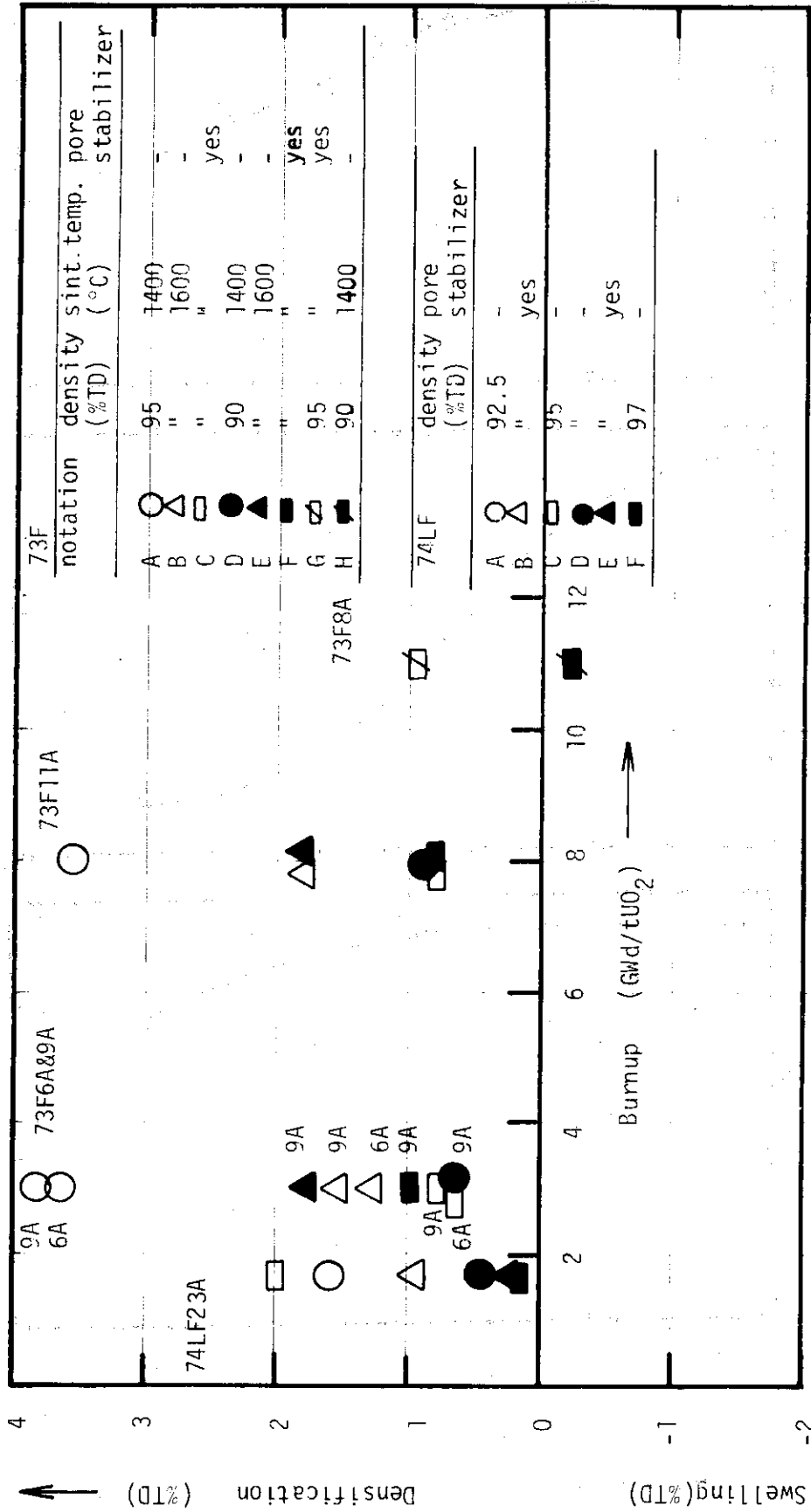


Fig. 3 Densification as a function of Burnup induced the result of the 74LF23A experiment

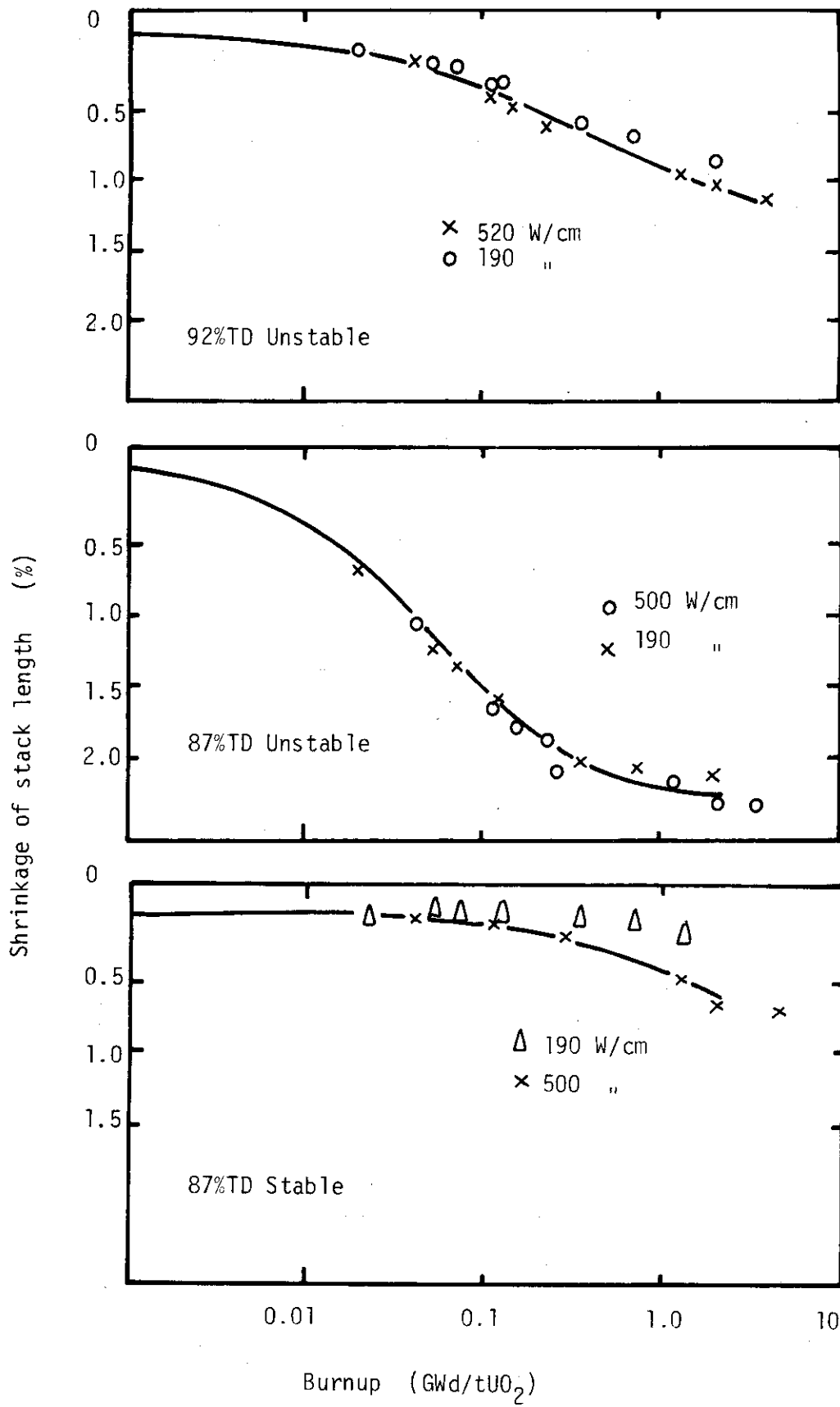


Fig. 4 Shrinkage of the stack length vs fuel burnup irradiated with various power density

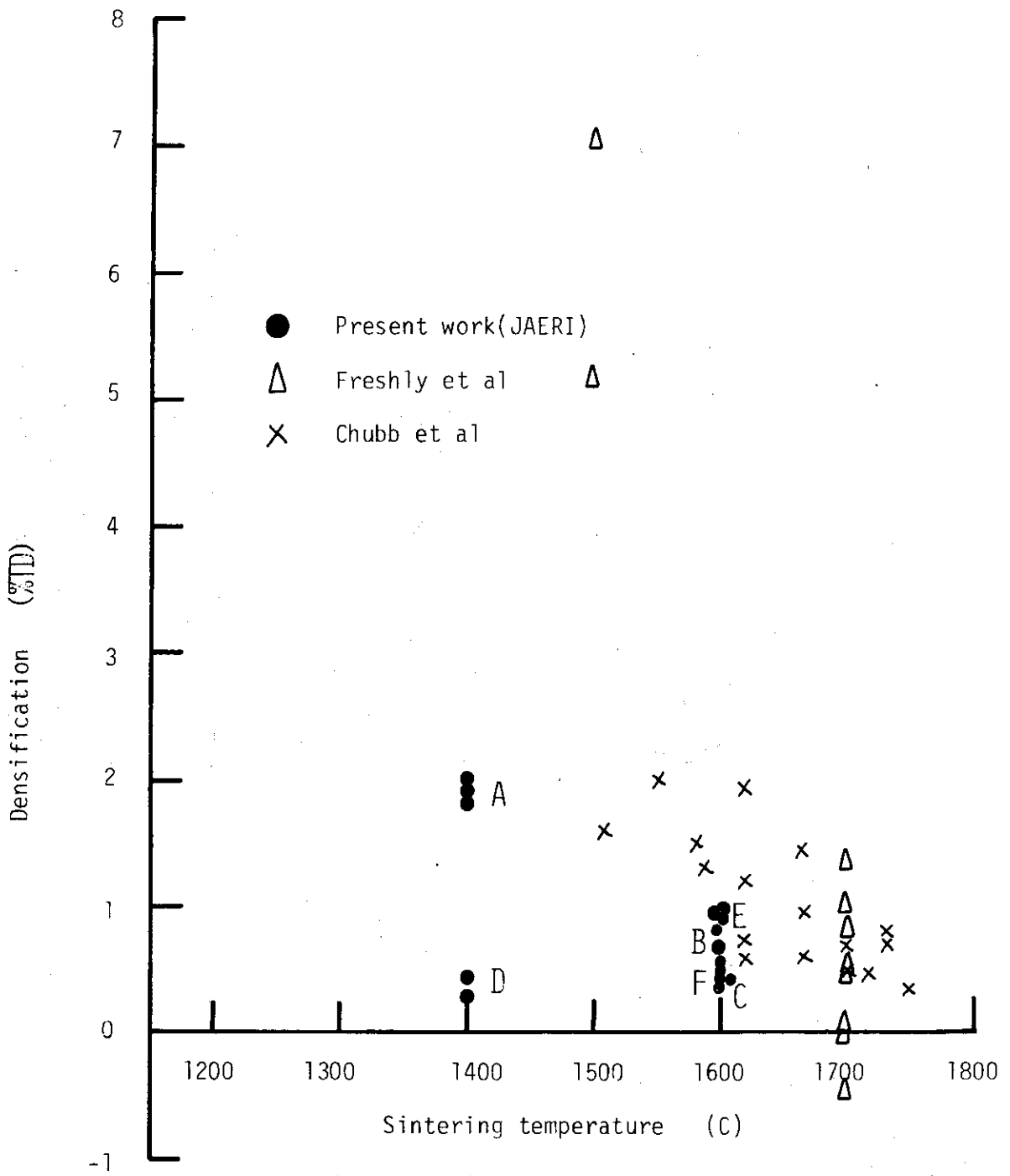


Fig. 5 Densification vs pellet sintering temperature included earlier works by Chubb et al (13)

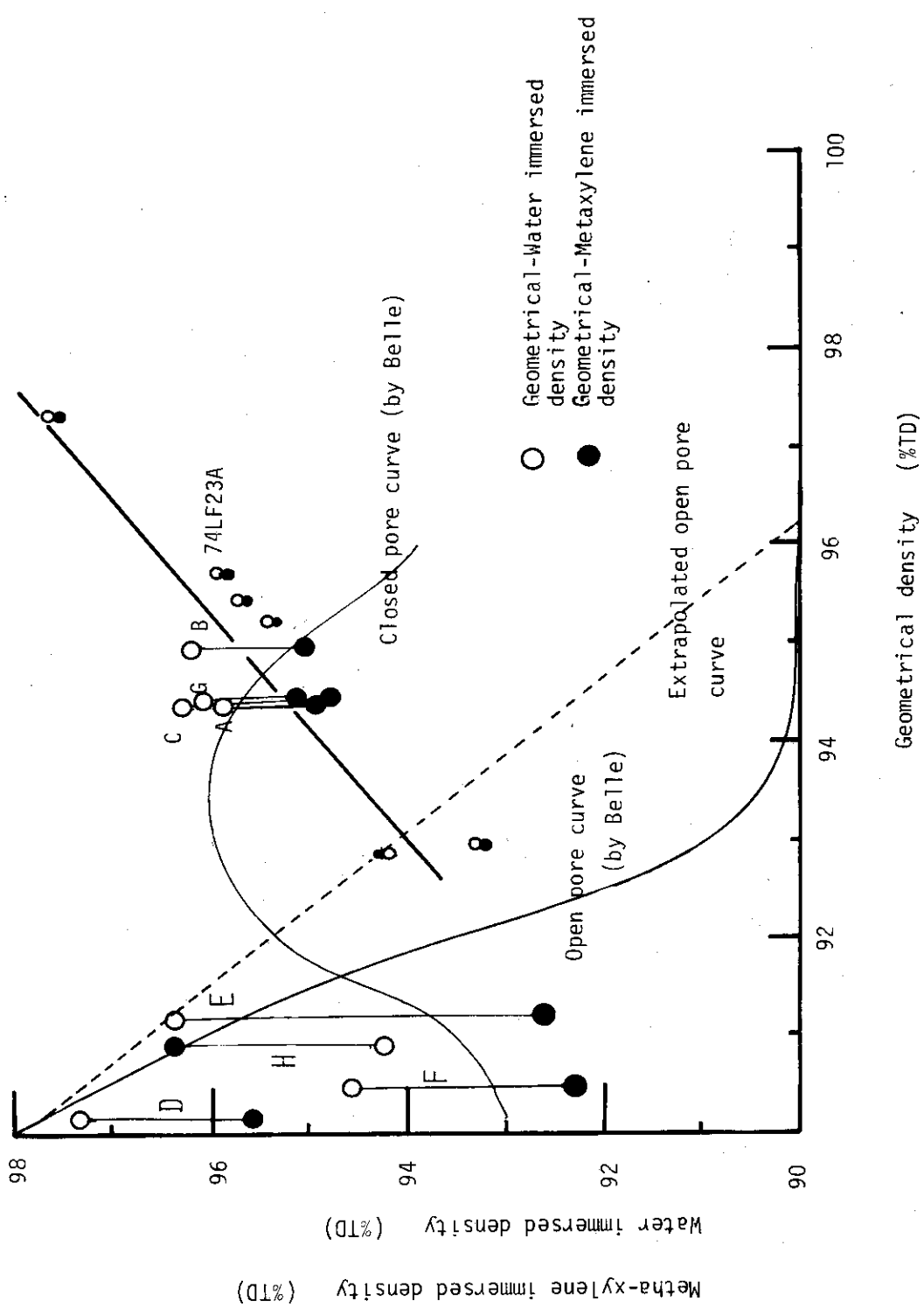


Fig. 6 Relation between geometrical density (GD) and water immersed density (WID)/metha-xylene immersed density (MID)

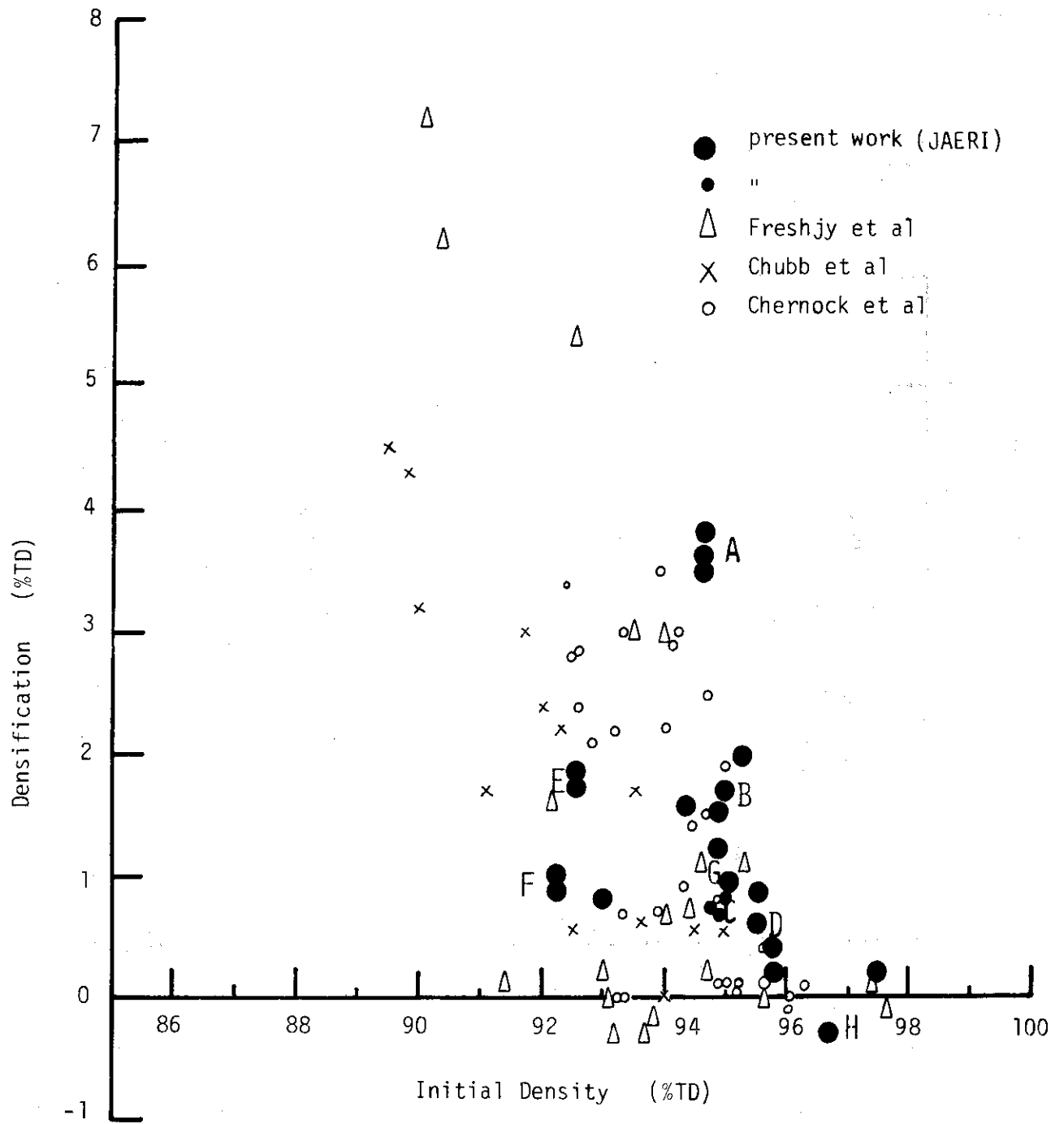


Fig. 7 Relation between the initial density of UO_2 pellet and densification, in which the data of earlier worker's included.

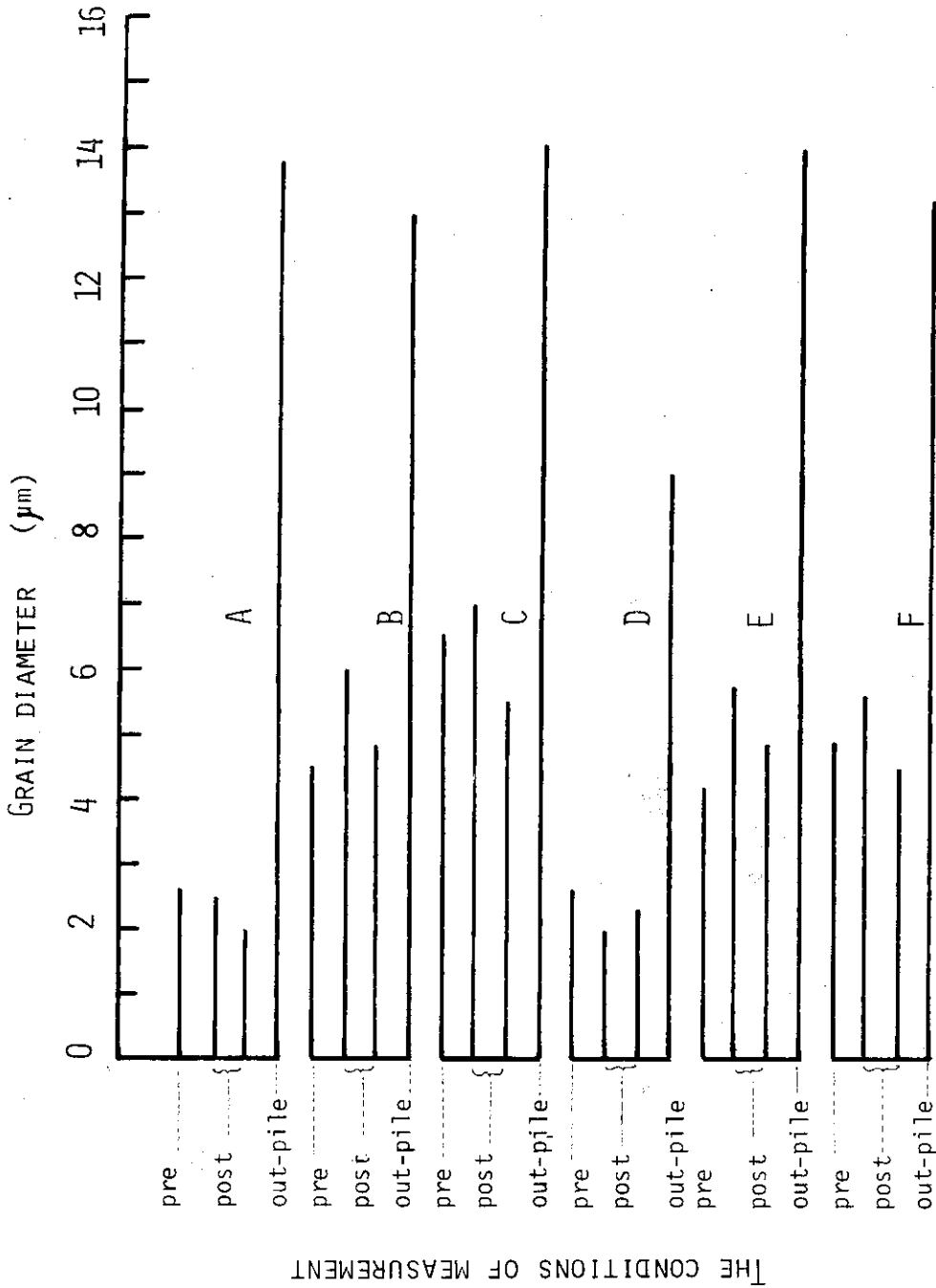


Fig. 9 Grain growing rate (%) and grain growth in resintering (μm) as a function of the initial grain diameter; out-of-pile resintering test is performed with the condition of 1700°C, 24 h.

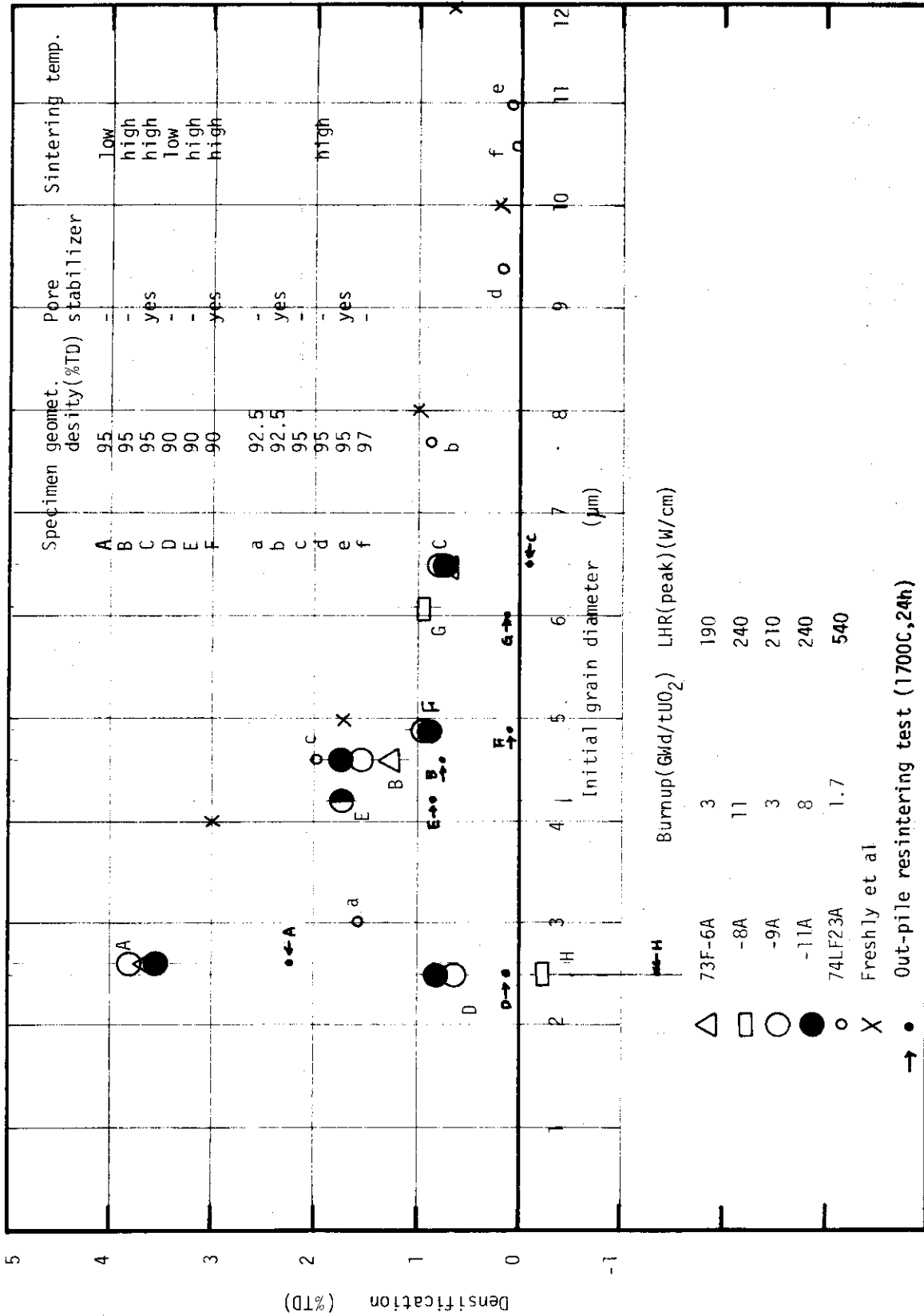


Fig. 10 Densification as a function of the initial grain diameter; the plotting is derived from the figure 8 by the partial enlargement of JAERI's data.

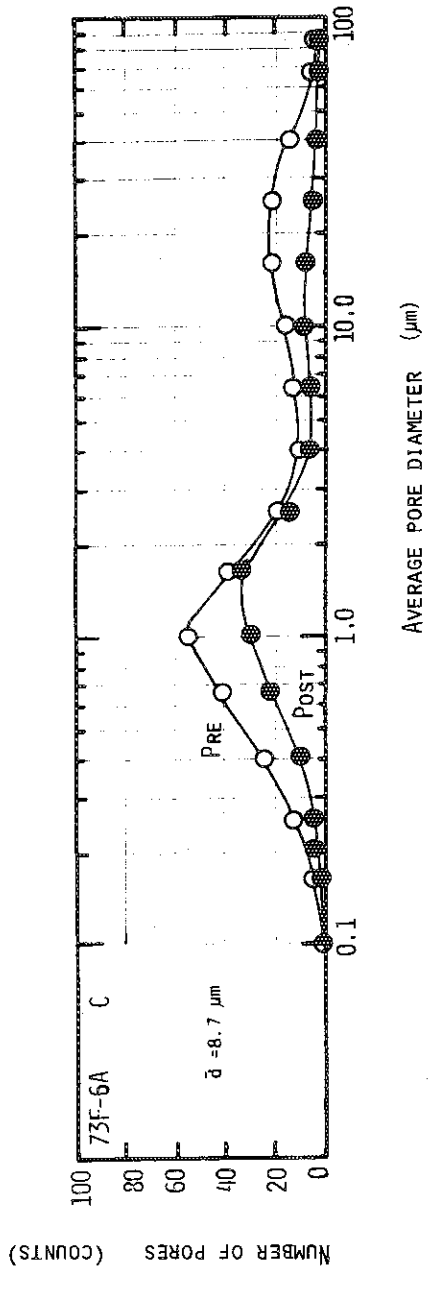
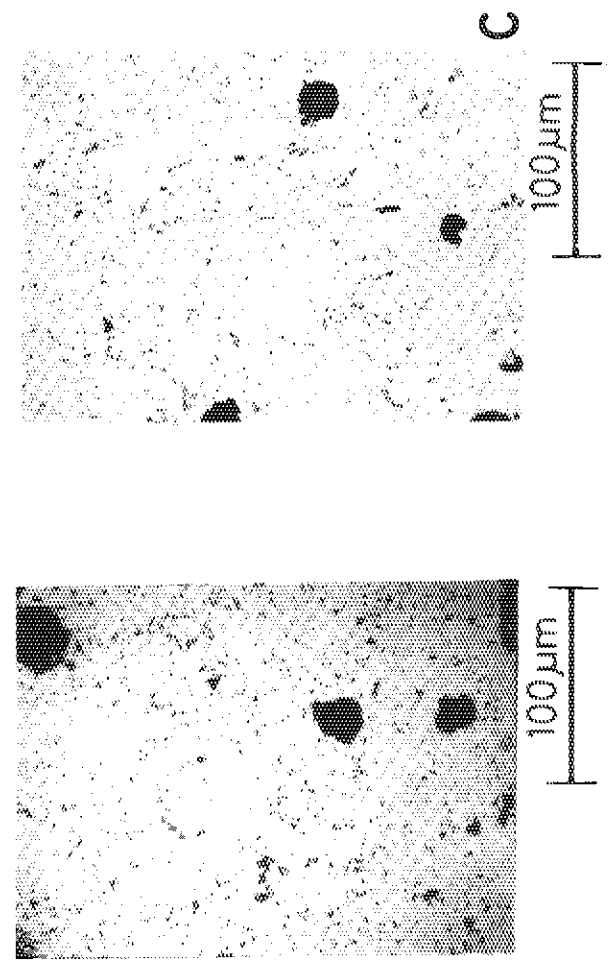
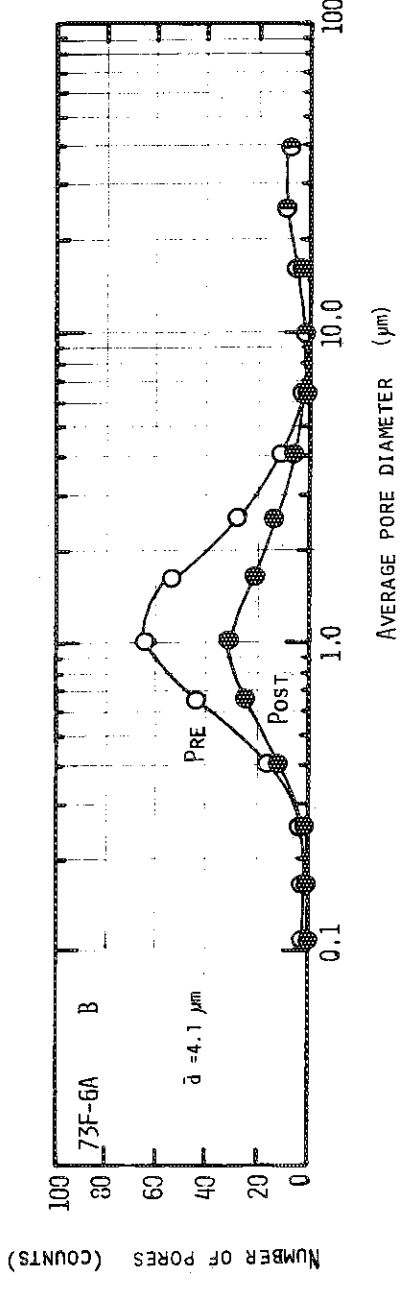
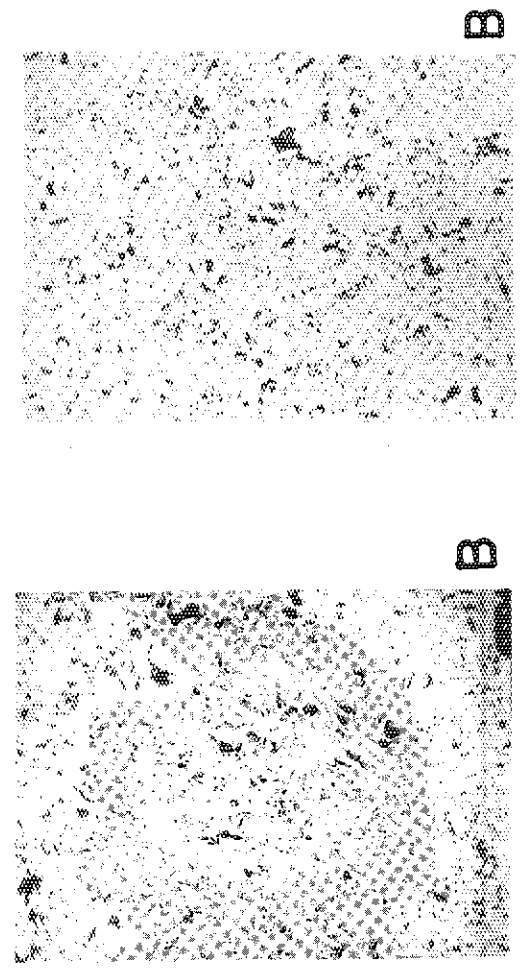
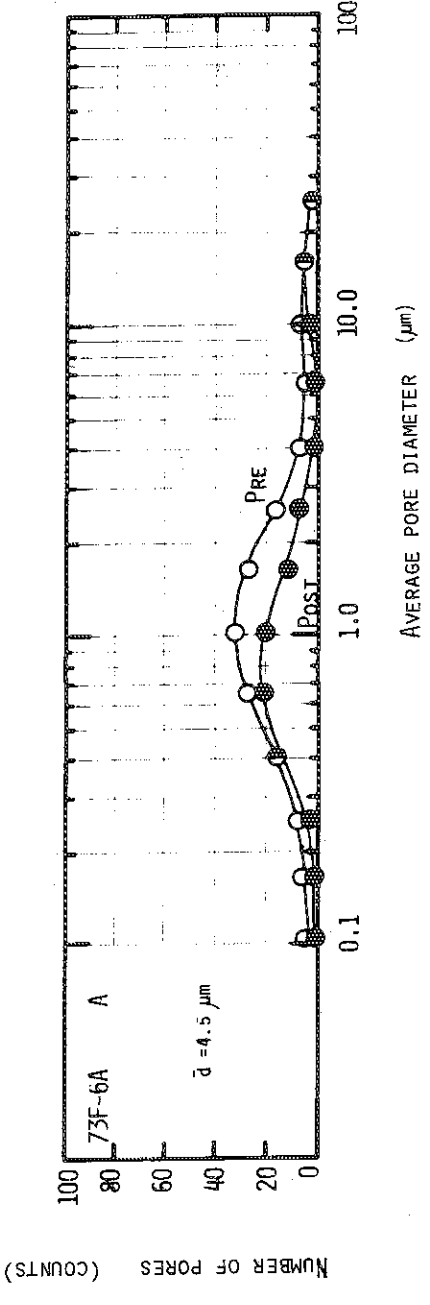
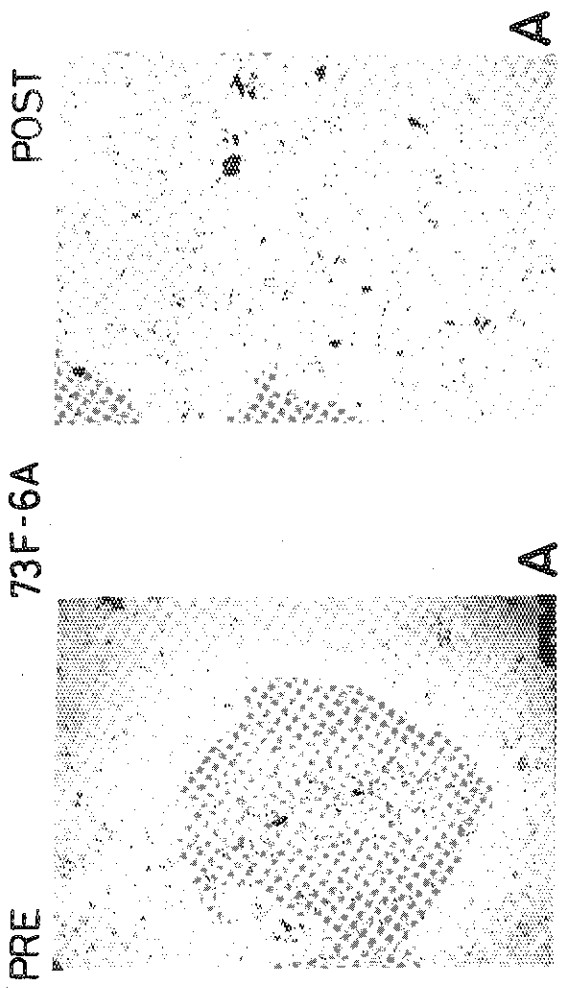


Fig. 11 Photomicrograph of the UO_2 pellet and its corresponding pore size distribution of 73F-6A (axial effect) series; where left-hand sides of the photo are the pre-irradiated as-polished UO_2 outer surface and right-hand sides the post-irradiated one (all magnitude are in same): in pore size distribution notation \circ corresponds to the pre-irradiation condition and notation \bullet to the post-irradiation one.

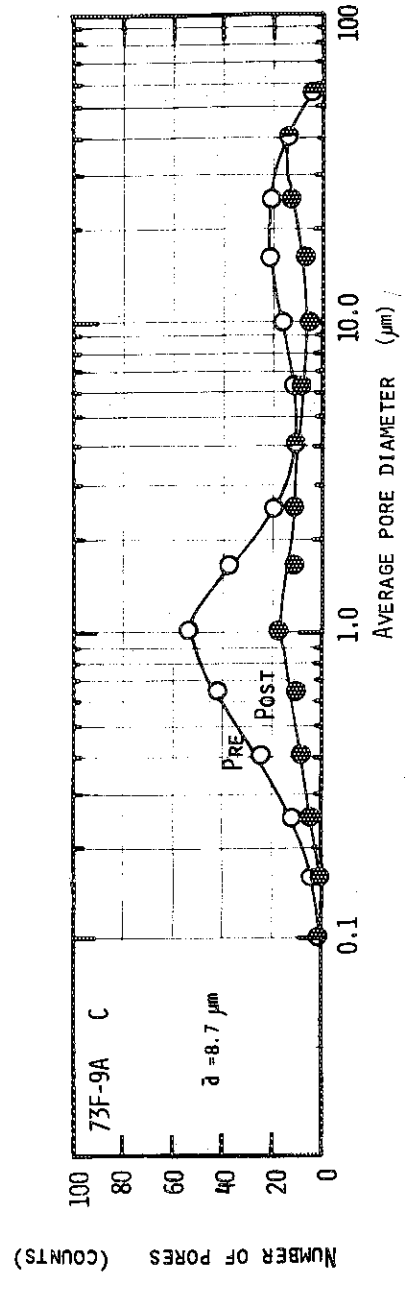
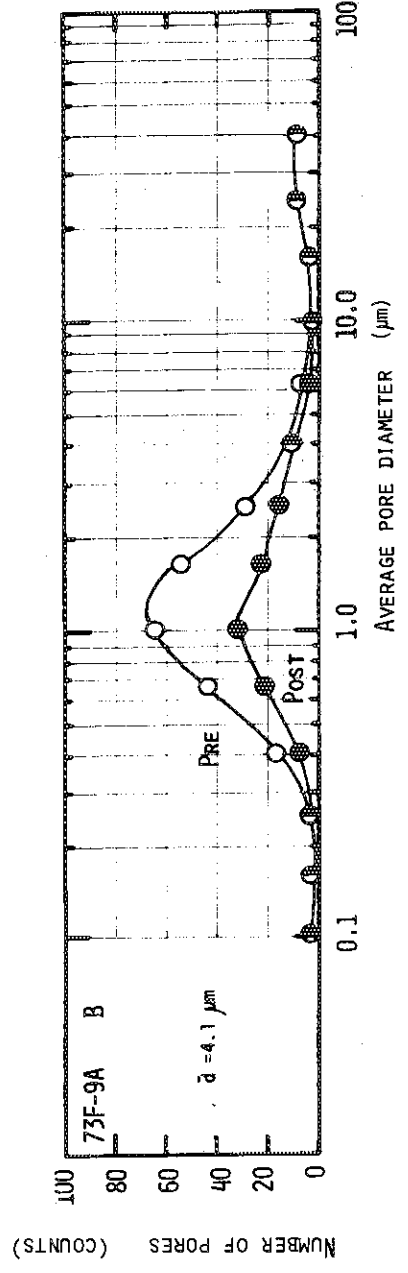
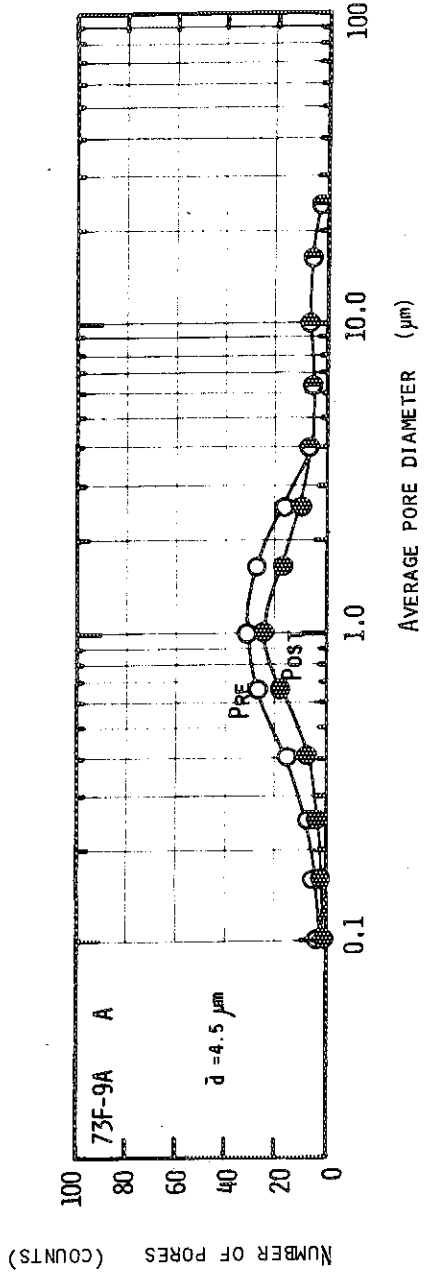
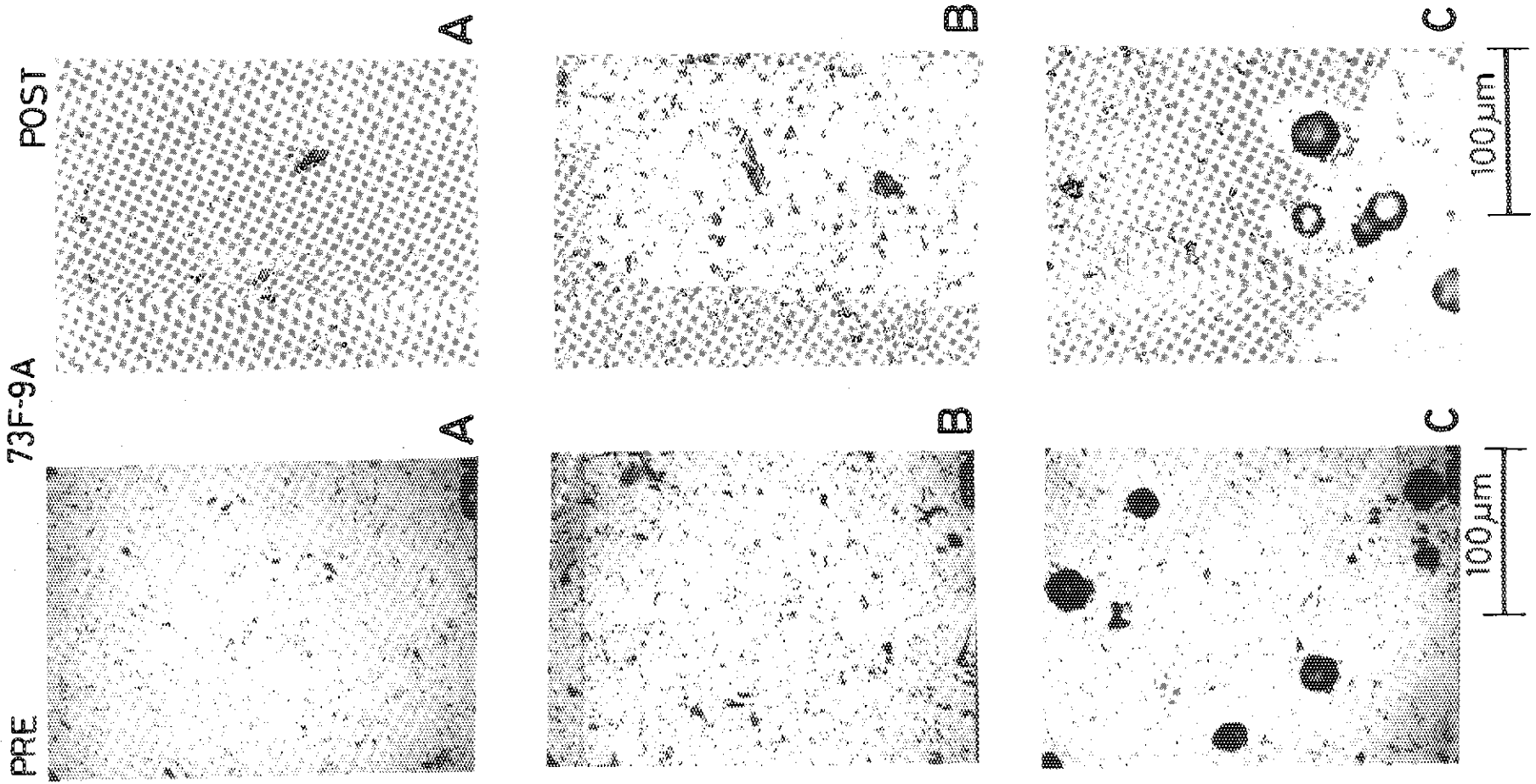


Fig. 12(a) and (b) Photomicrograph of the UO₂ pellet and its corresponding pore size distribution of 73F-9A (parametric survey) series; where Fig.12(a) includes the specimens of A, B and C and Fig.12(b) includes those of D, E and F; in each, the left-hand sides of the photo are the pre-irradiated, as polished UO₂ outer surface and the right-hand sides are the post-irradiated one (all magnitude are in same): in pore size distribution, notation —○— corresponds to the pre-irradiation condition and —●— to the post-irradiation one.

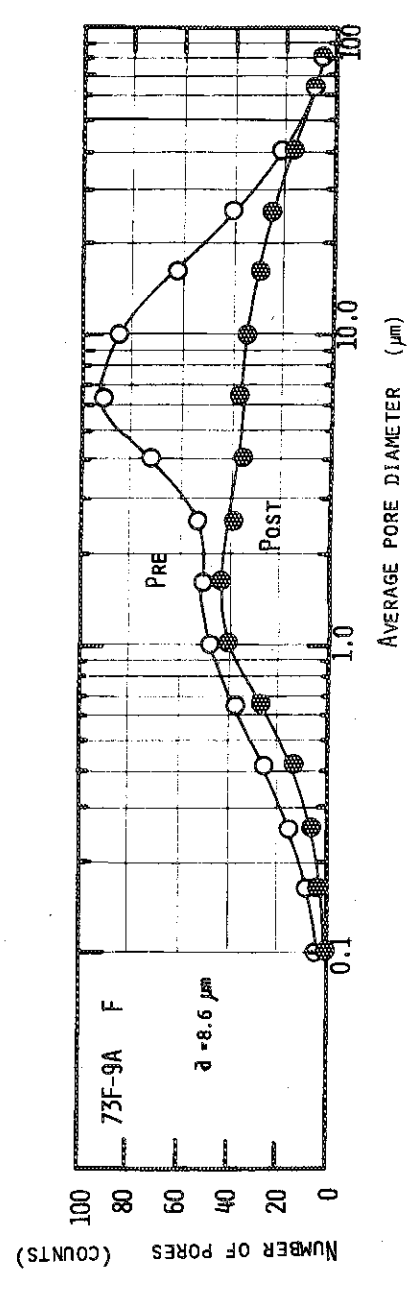
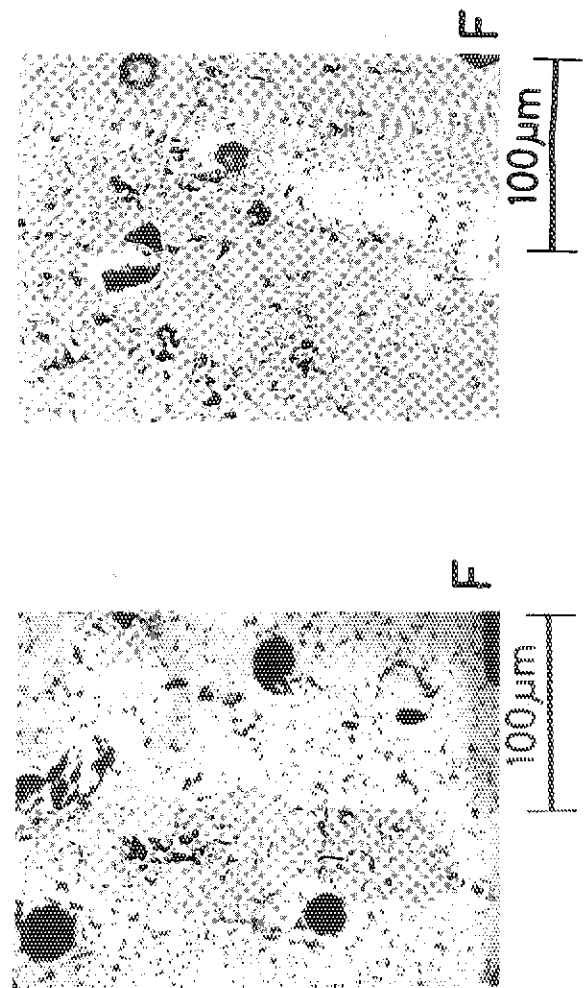
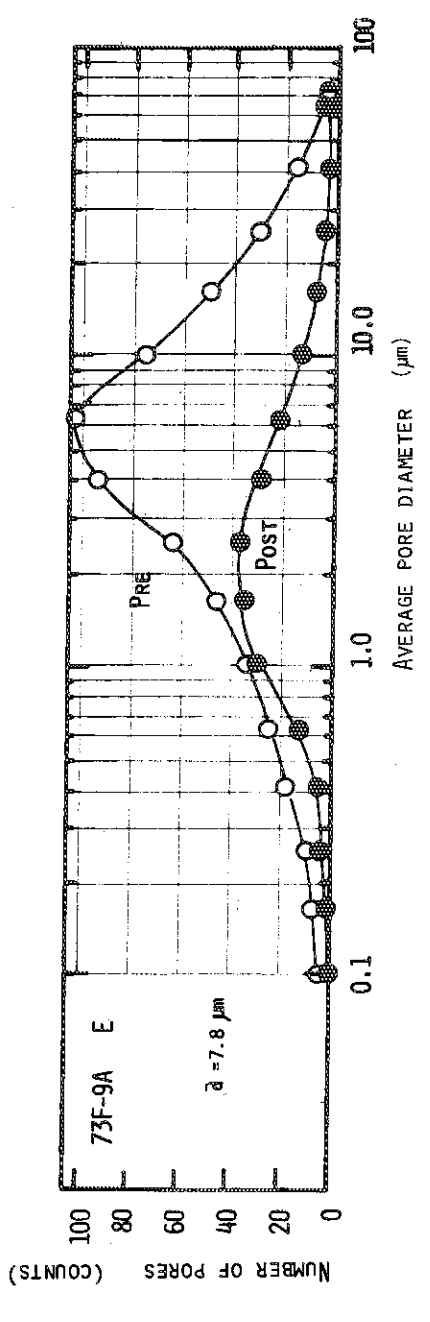
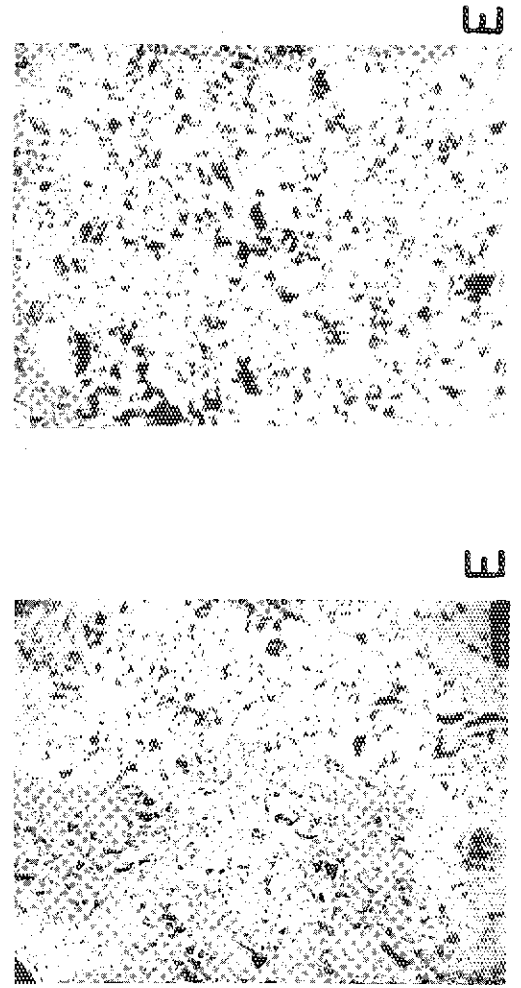
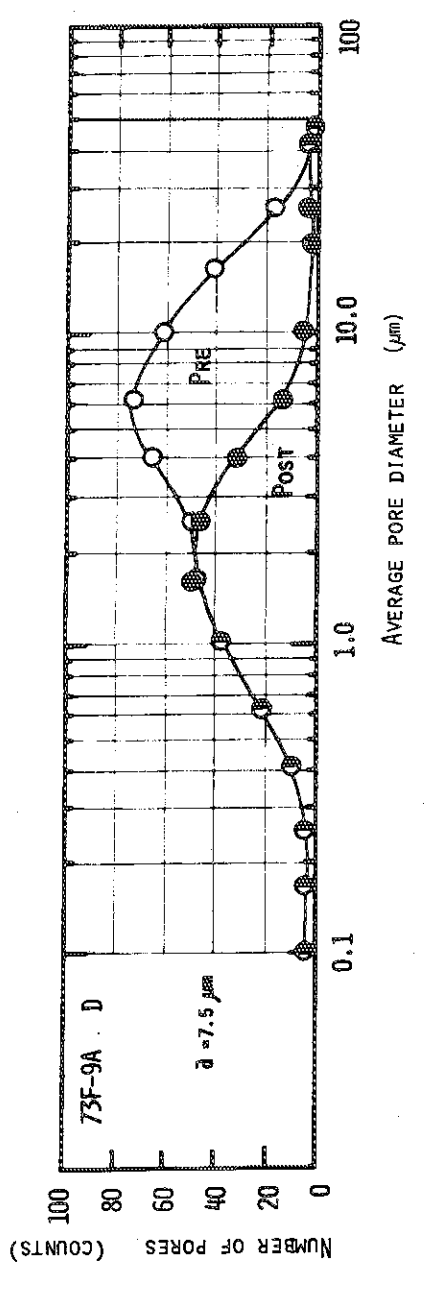
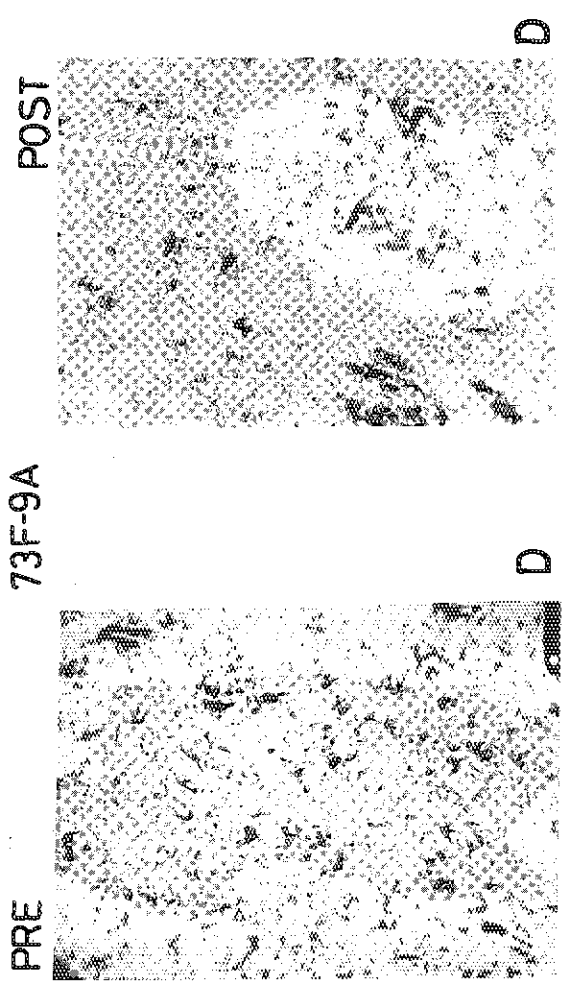


Fig. 12(b)

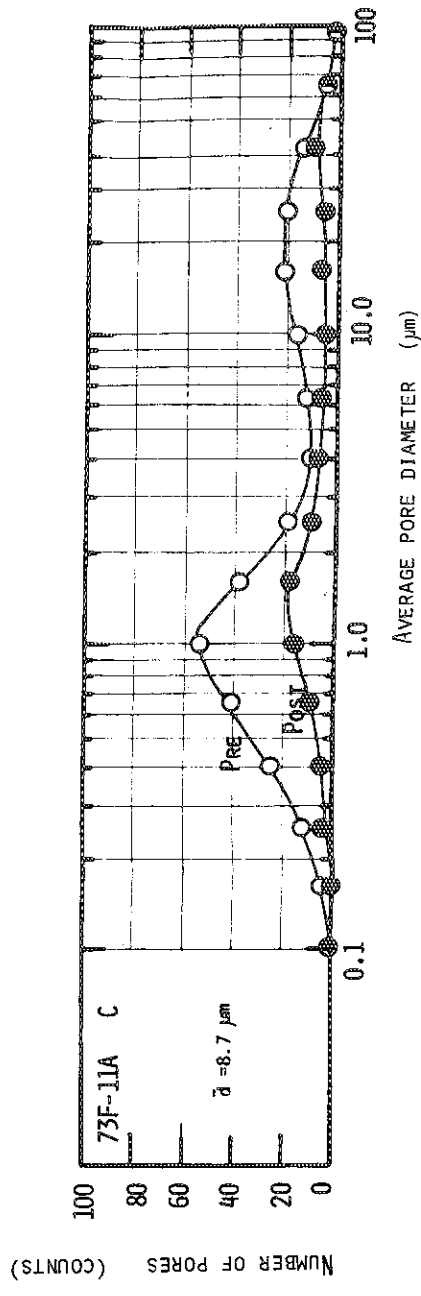
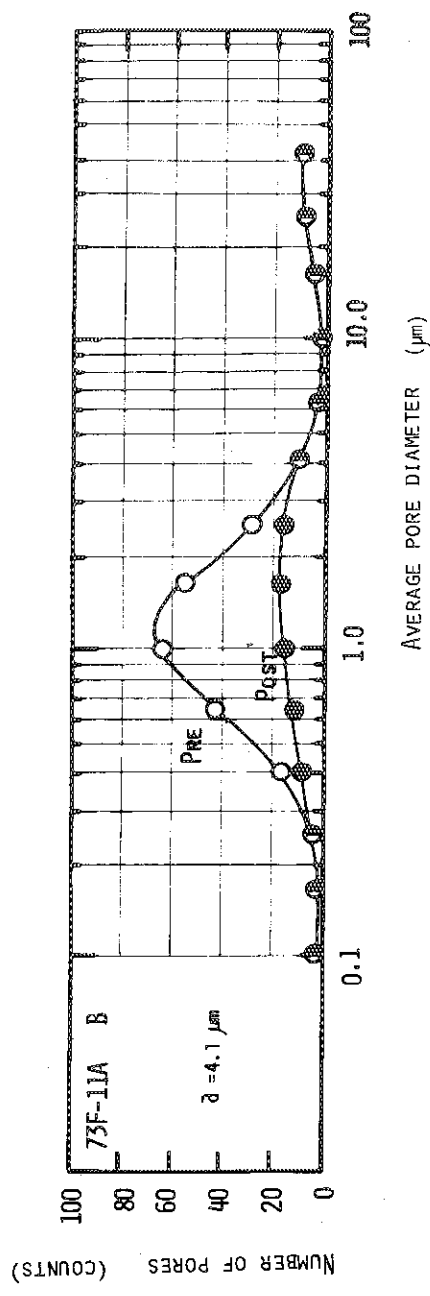
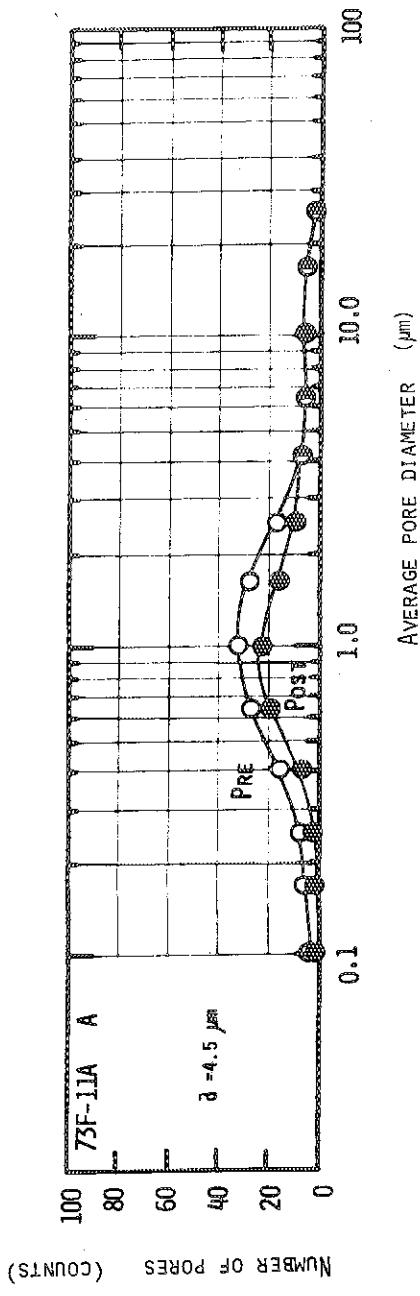
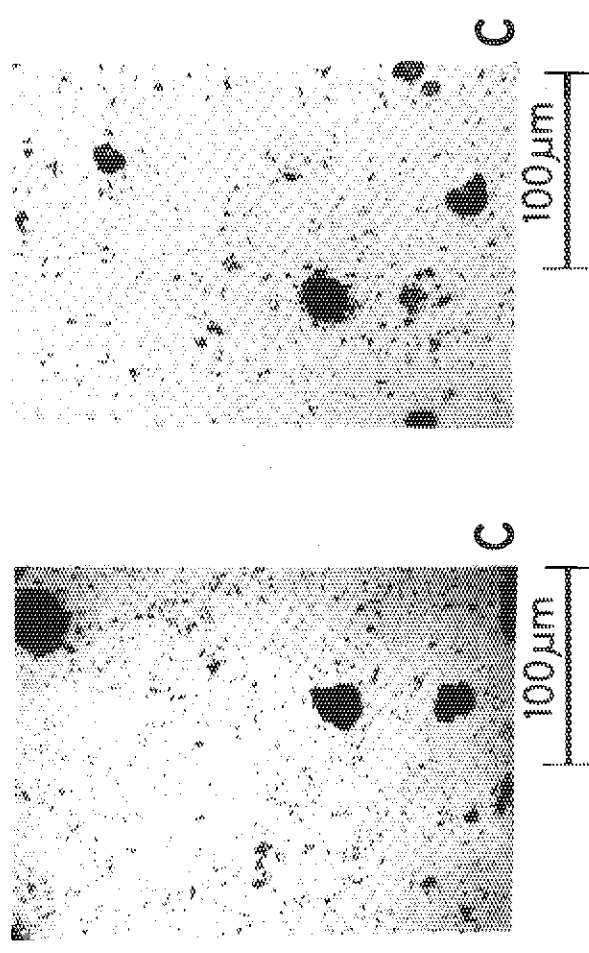
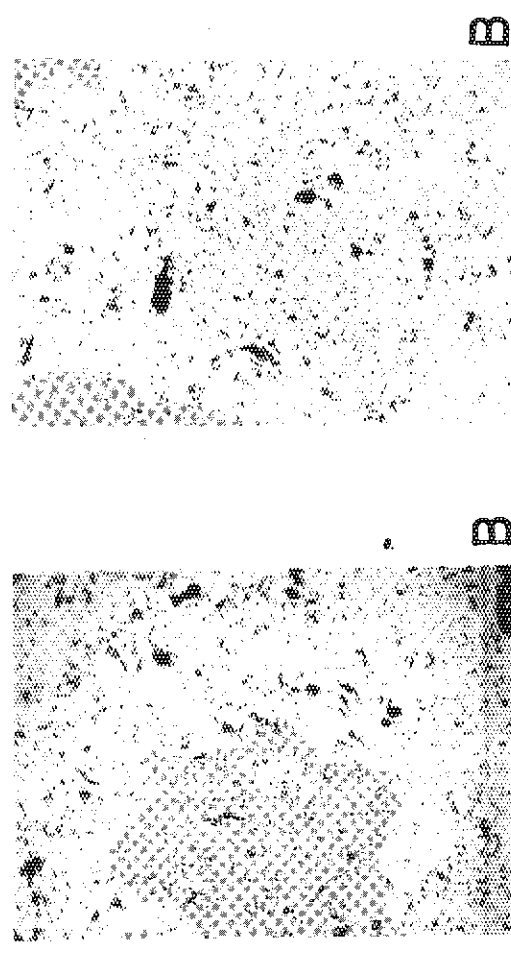
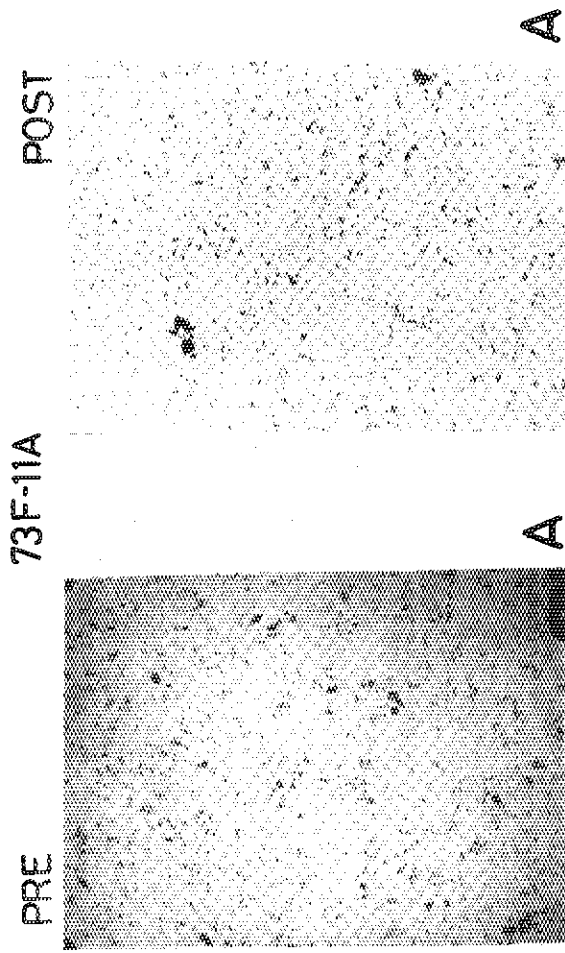


Fig. 13(a) and (b) Photomicrograph of the UO₂ pellet and its corresponding pore size distribution of 73F-11A (parametric survey) series; where Fig. 13(a) includes the specimens of A, B and C, and Fig. 13(b) includes those of D, E and F; in each which the left hand sides of the photo are the pre-irradiated, as-polished UO₂ outer surface and the right-hand sides are the post-irradiated one (all magnitudes are in same); in pore size distribution, notation —○— corresponds to the pre-irradiation condition and —●— to the post-irradiation one.

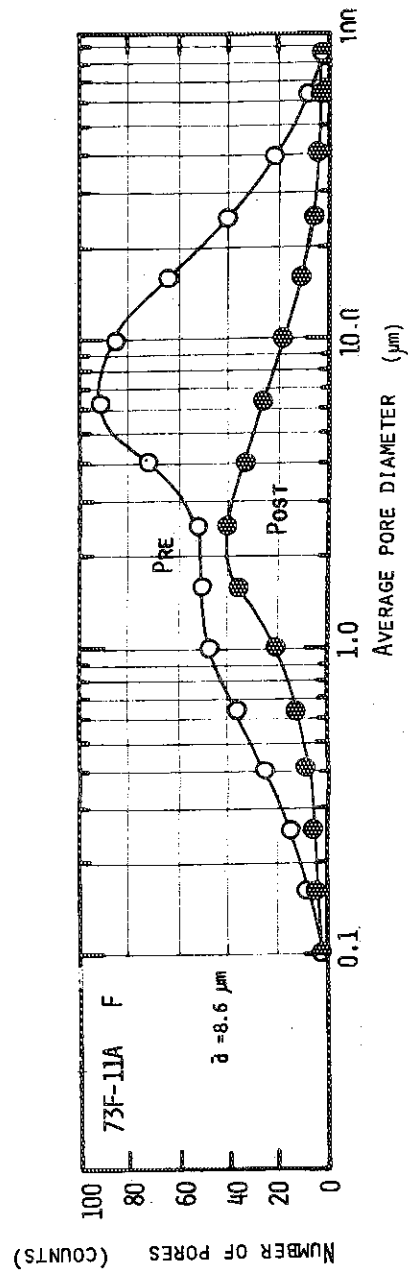
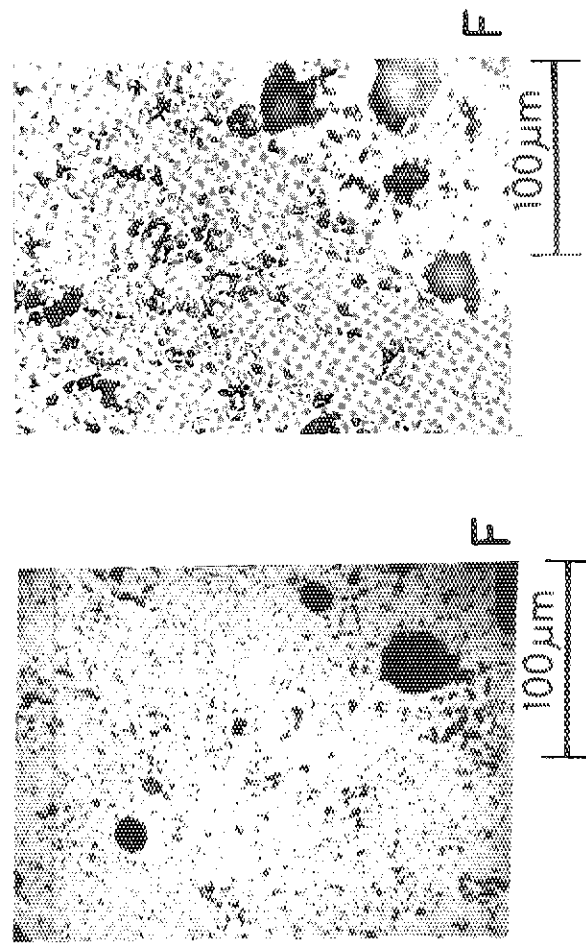
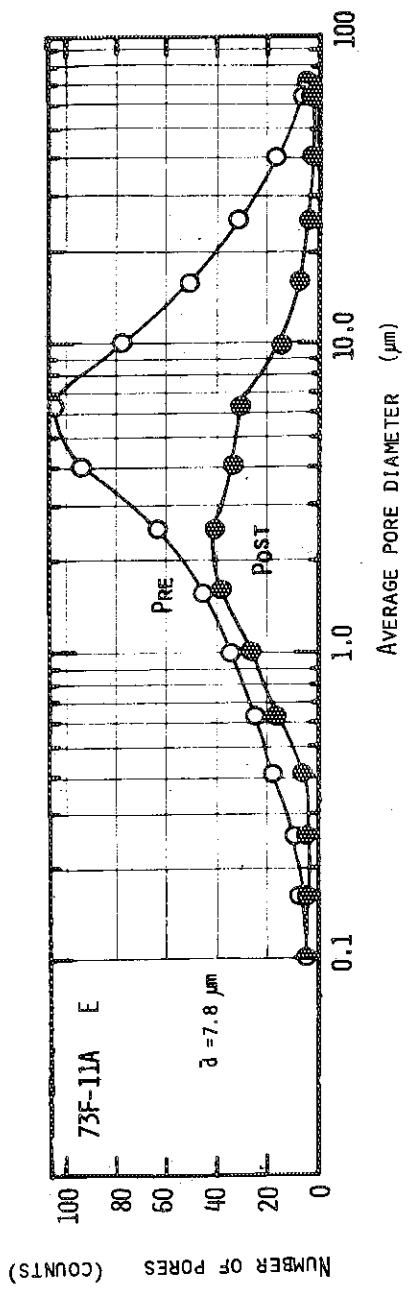
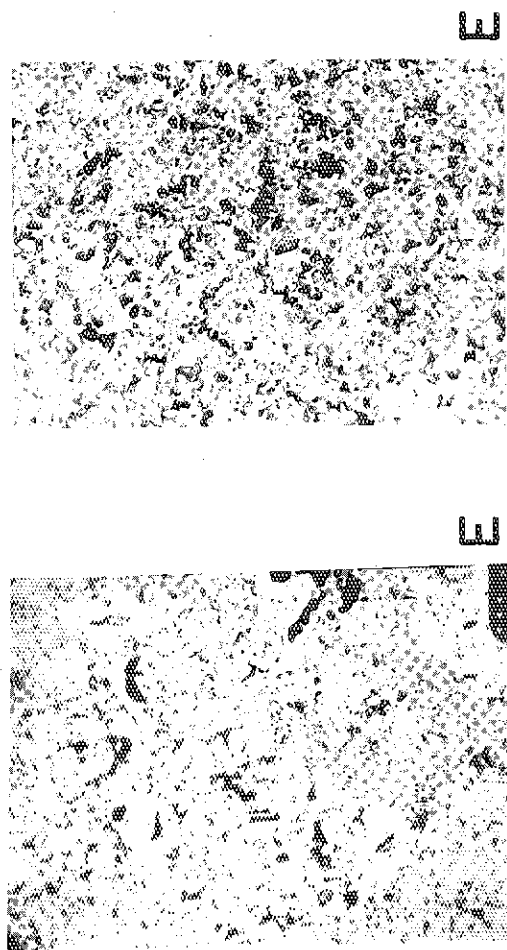
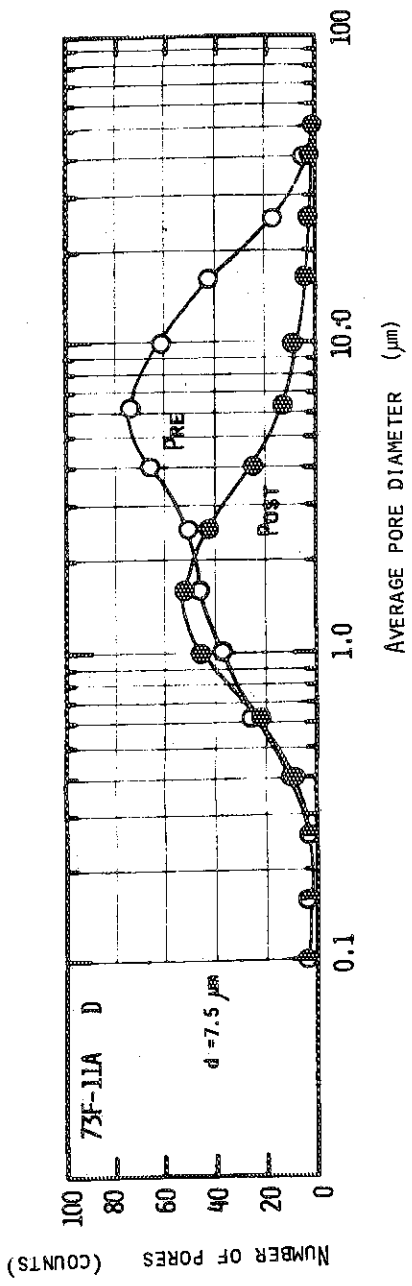
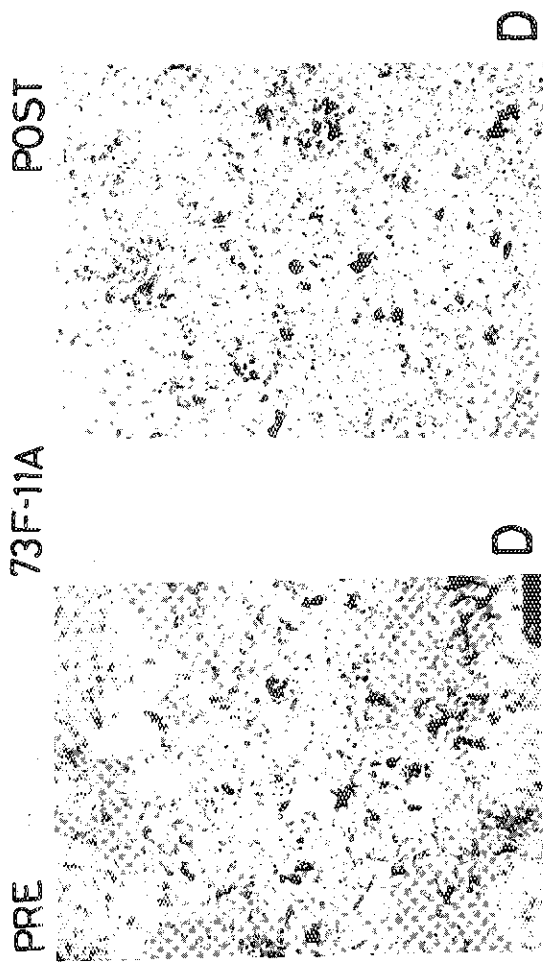


Fig. 13(b)

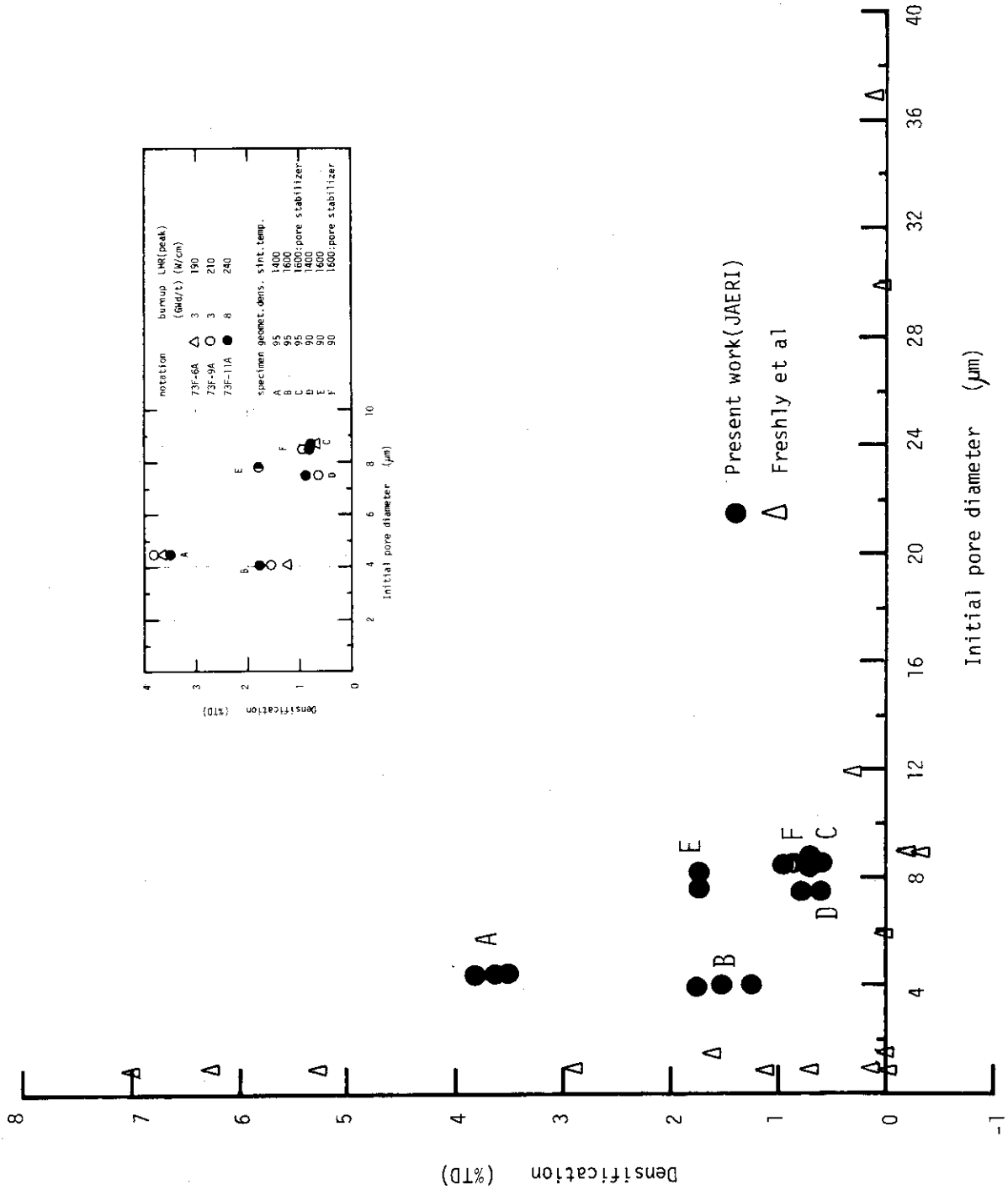


Fig. 14 Densification as a function of the initial pore diameter (μm); figure includes the data by Freshly et al. (8)

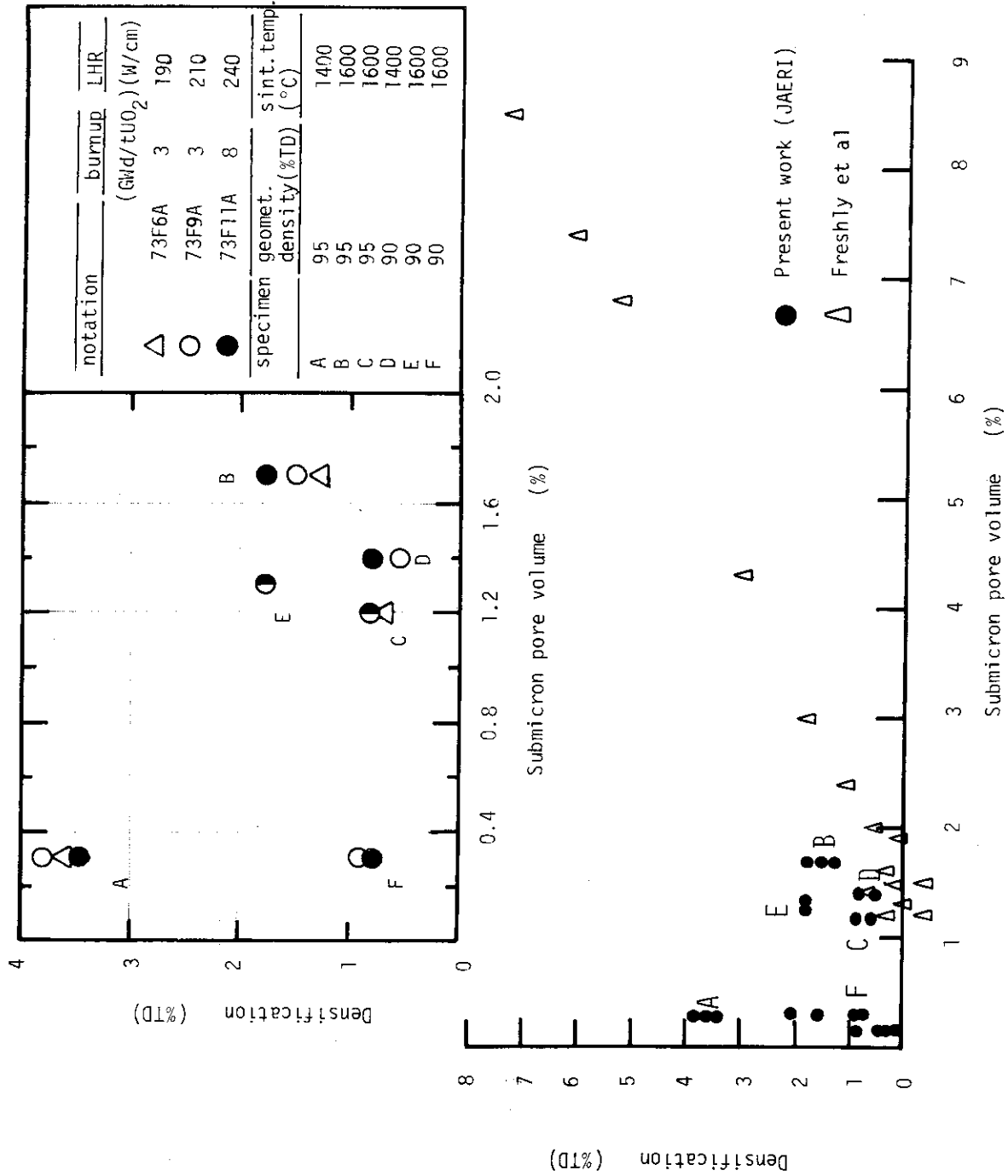


Fig. 15 Densification as a function of the submicron pore volume (%); figure includes the data by Freshly et al (8)

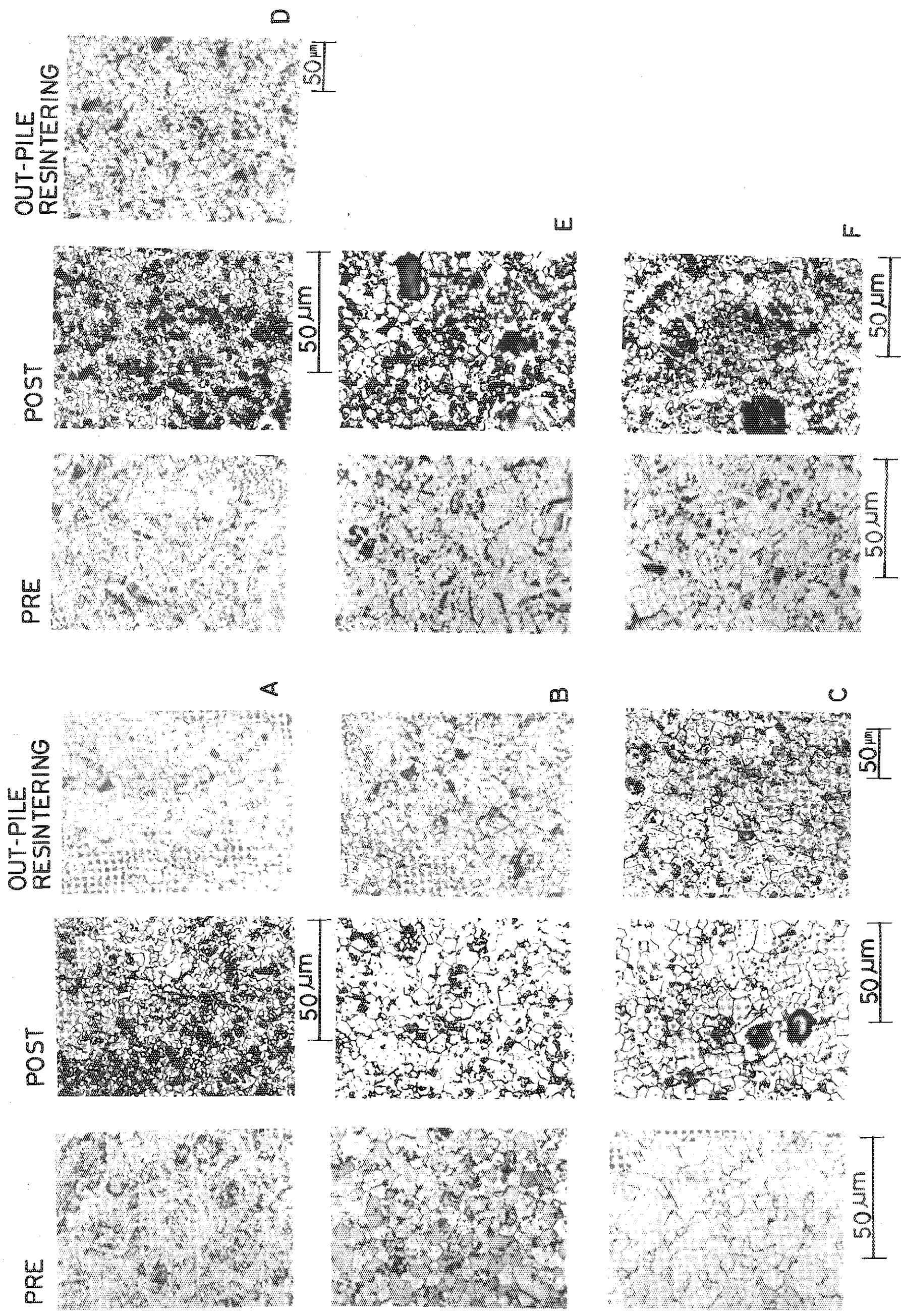


Fig. 16 Photomicrograph of pre-irradiated (left), post-irradiated (middle) and resintered (right) outer surface of the etched UO_2 pellet.

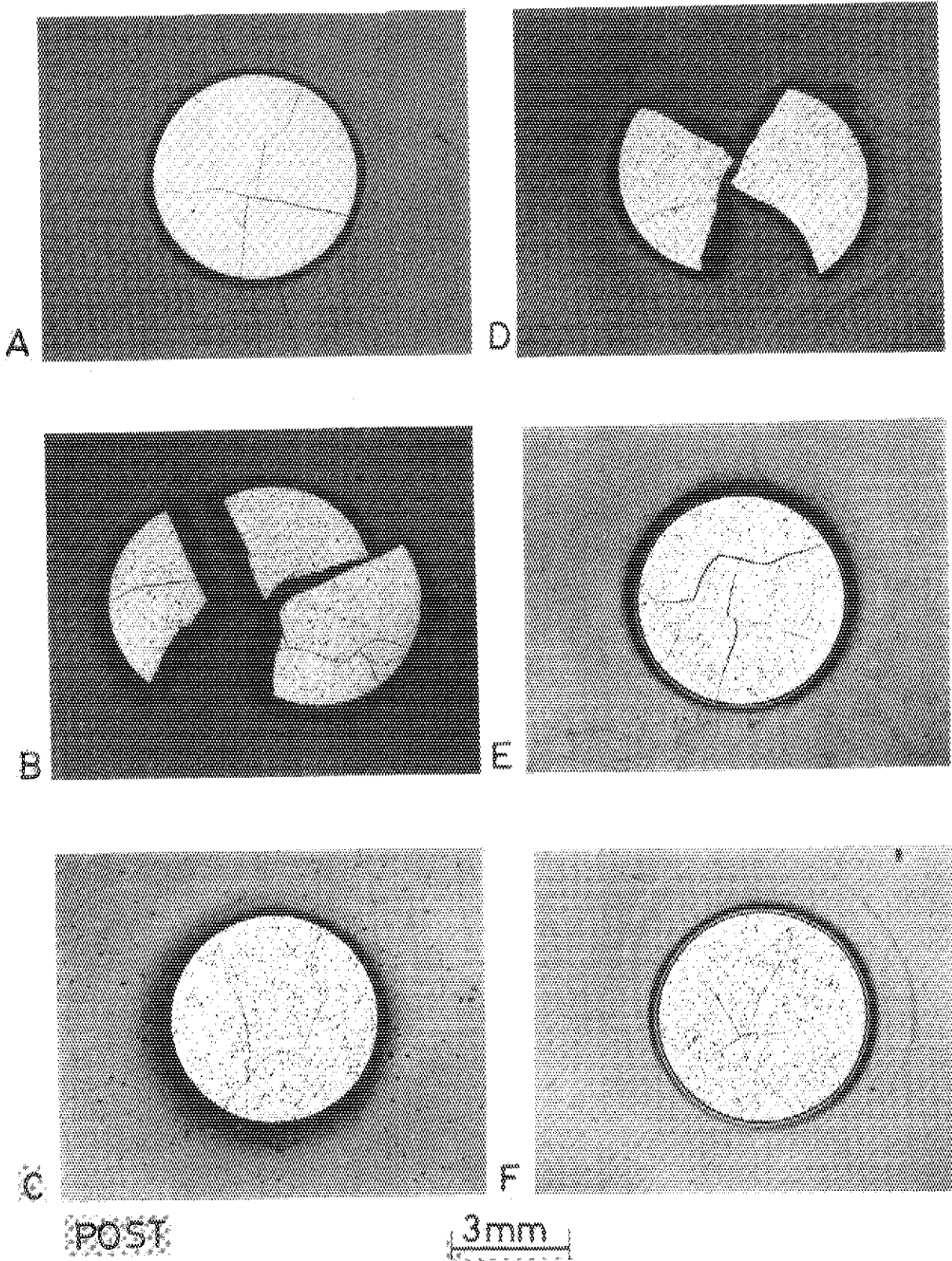


Fig. 17 Macroscopic photograph of post-irradiated UO_2 pellet surface. (as polished)

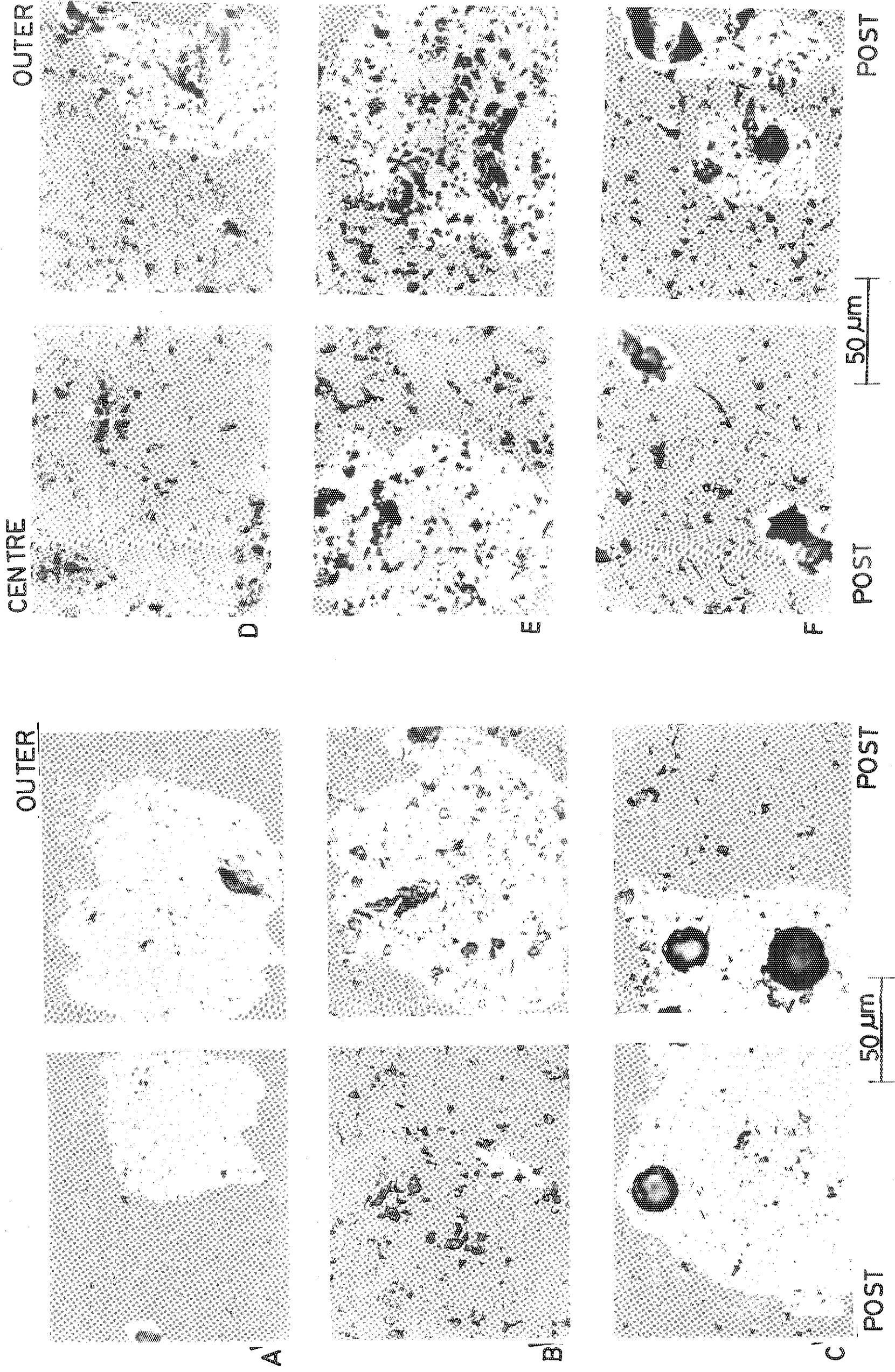


Fig. 18 Photomicrograph of the centre regions of the pellet and of the outer regions of the pellet (post irradiation, magnitude of the photo is all in the same).

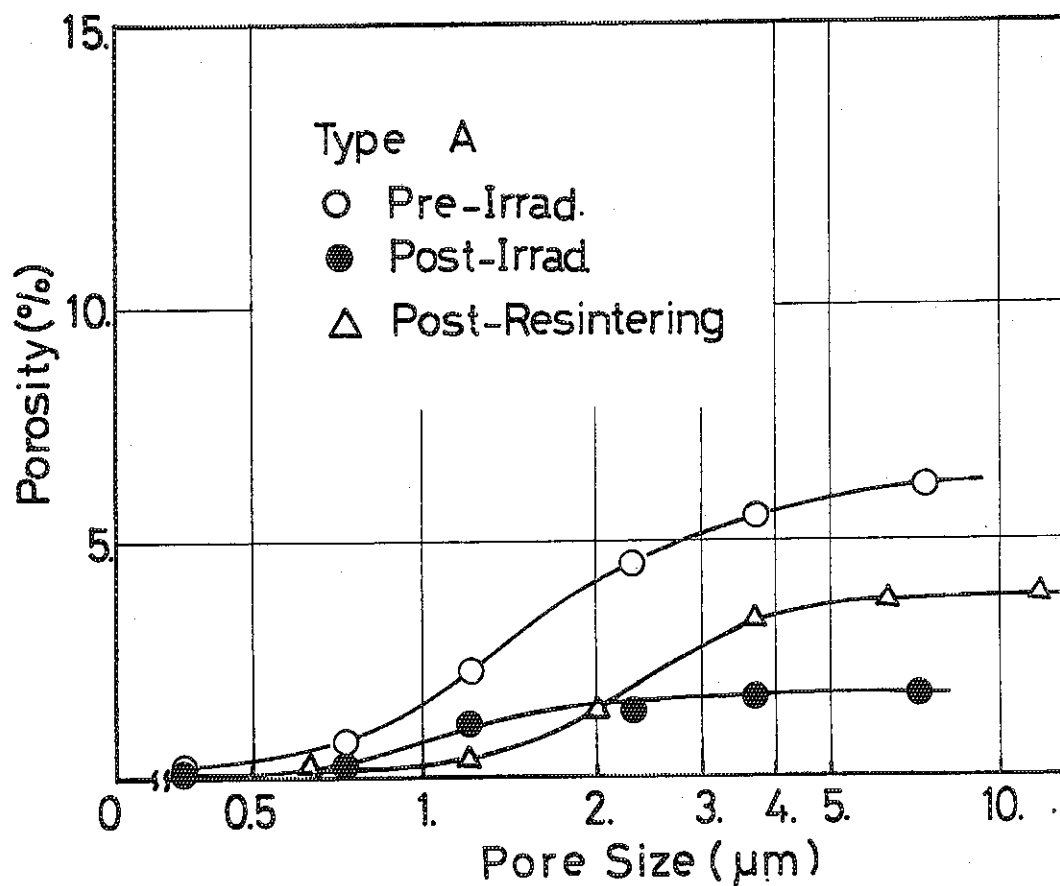
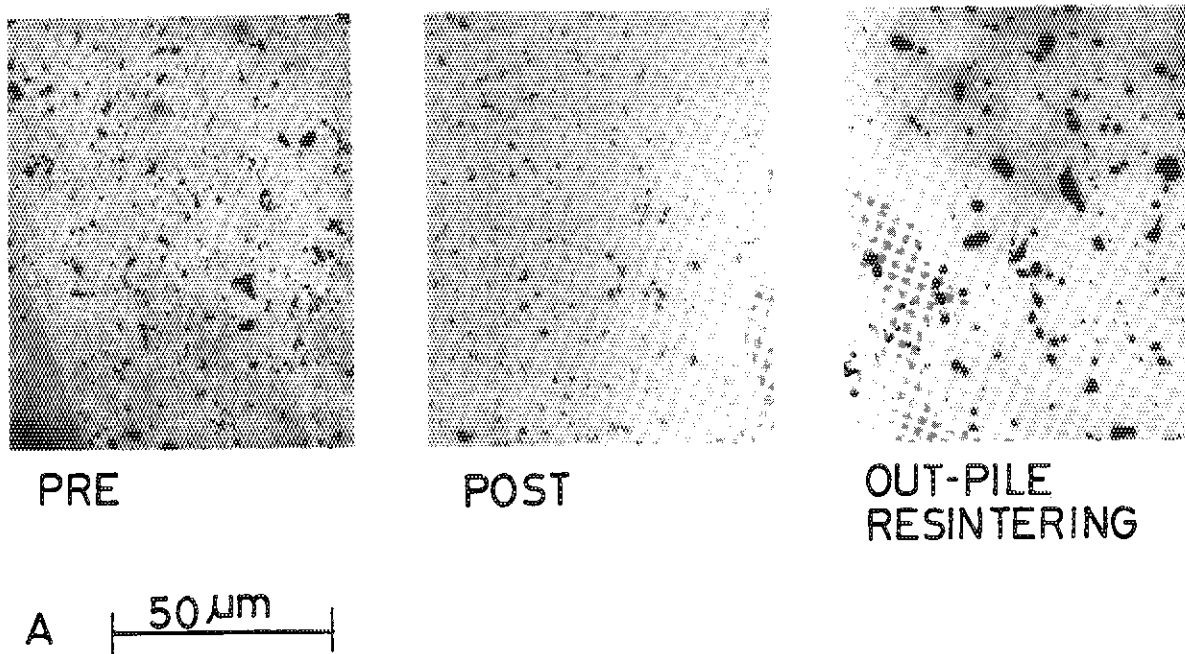


Fig. 19 Photomicrograph of the pre/post irradiated and of out-pile resintered specimen A and the porosity change as a function of the pore size

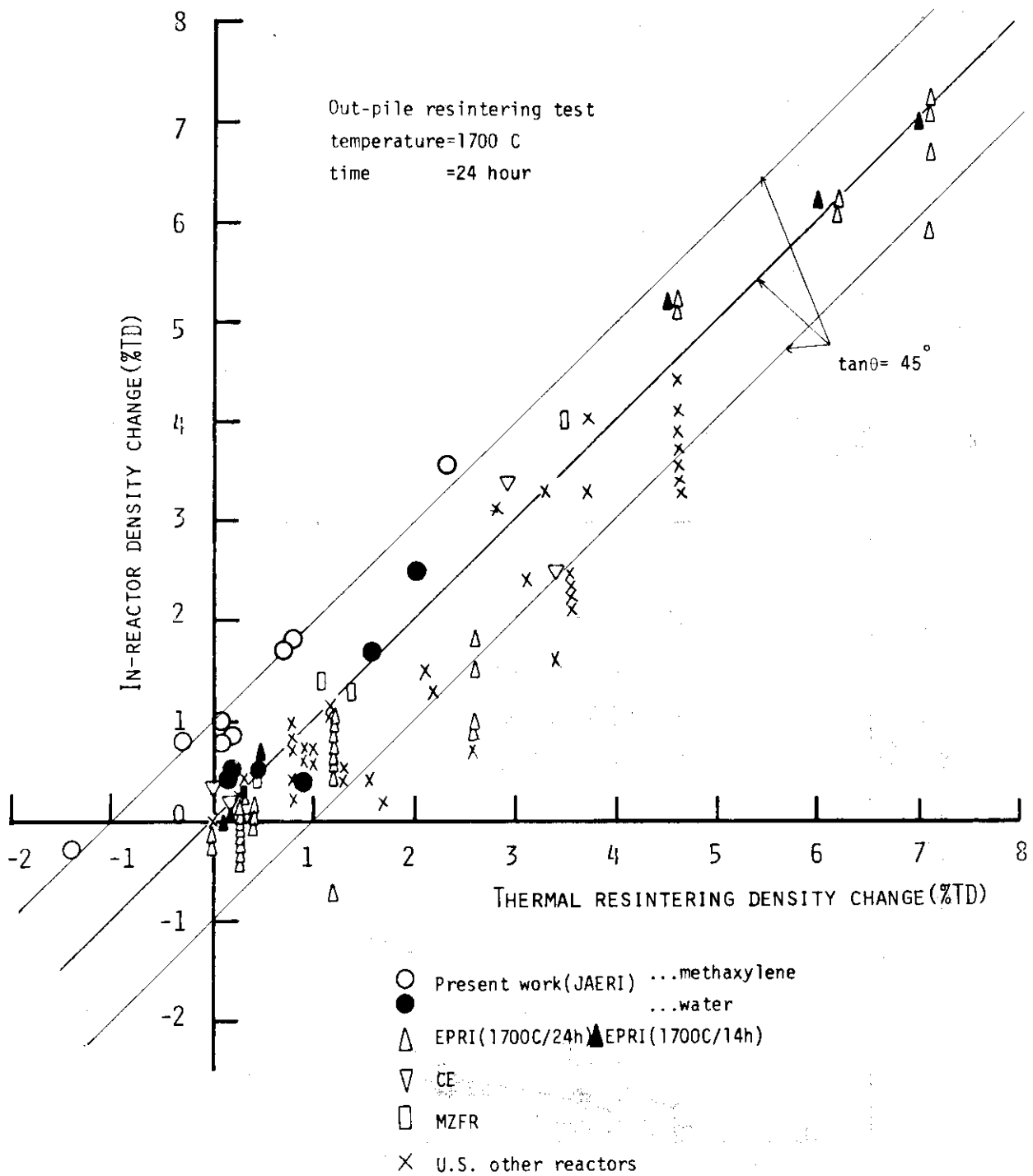


Fig. 20 Comparison of in-reactor densification with out-of-pile resintering tests, including the data of the other earlier worker's

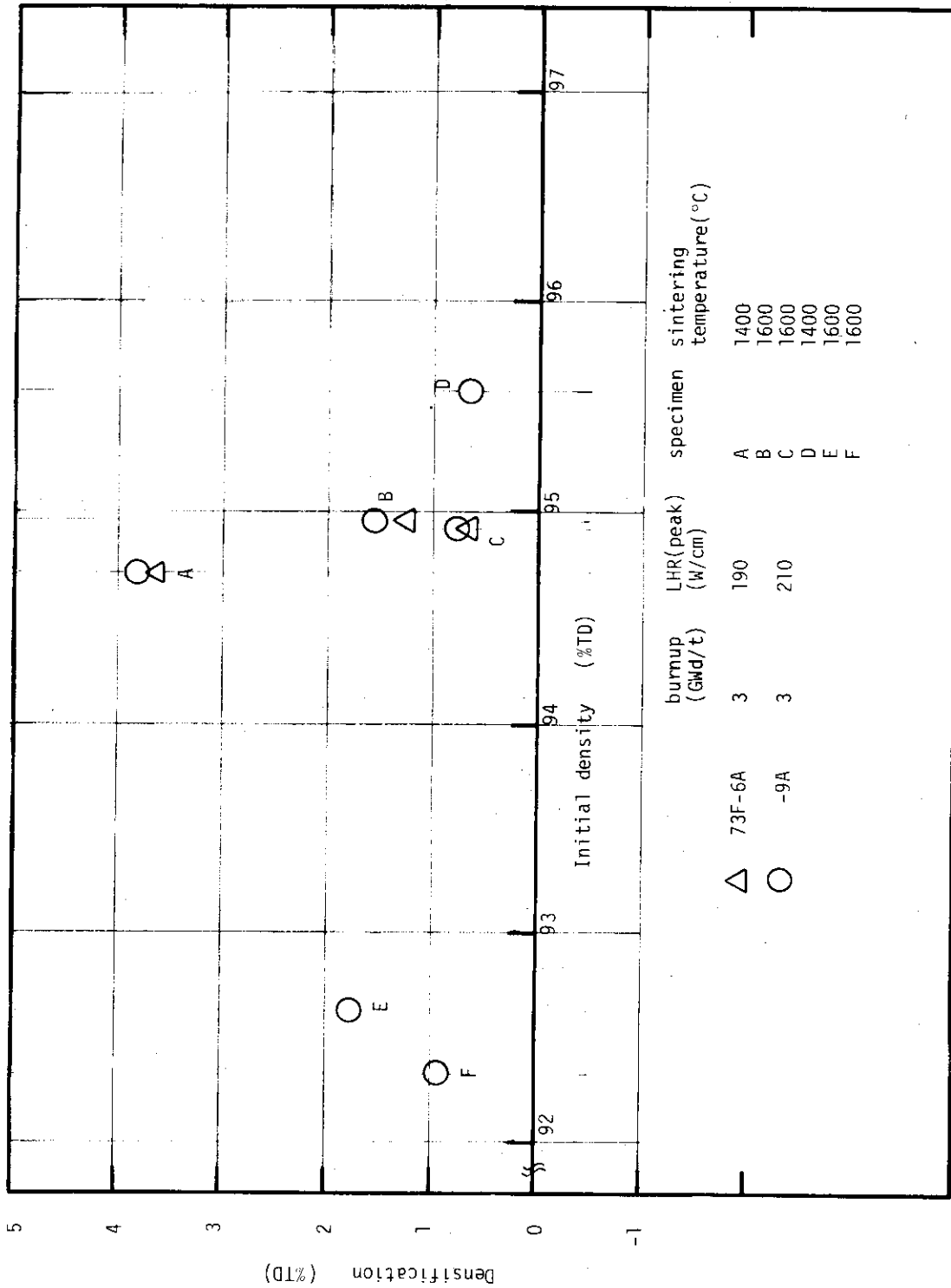


Fig. 21 Densification vs initial density under the axially restrained conditions; where 73F6A is restrained by the spring force in the bellows system.

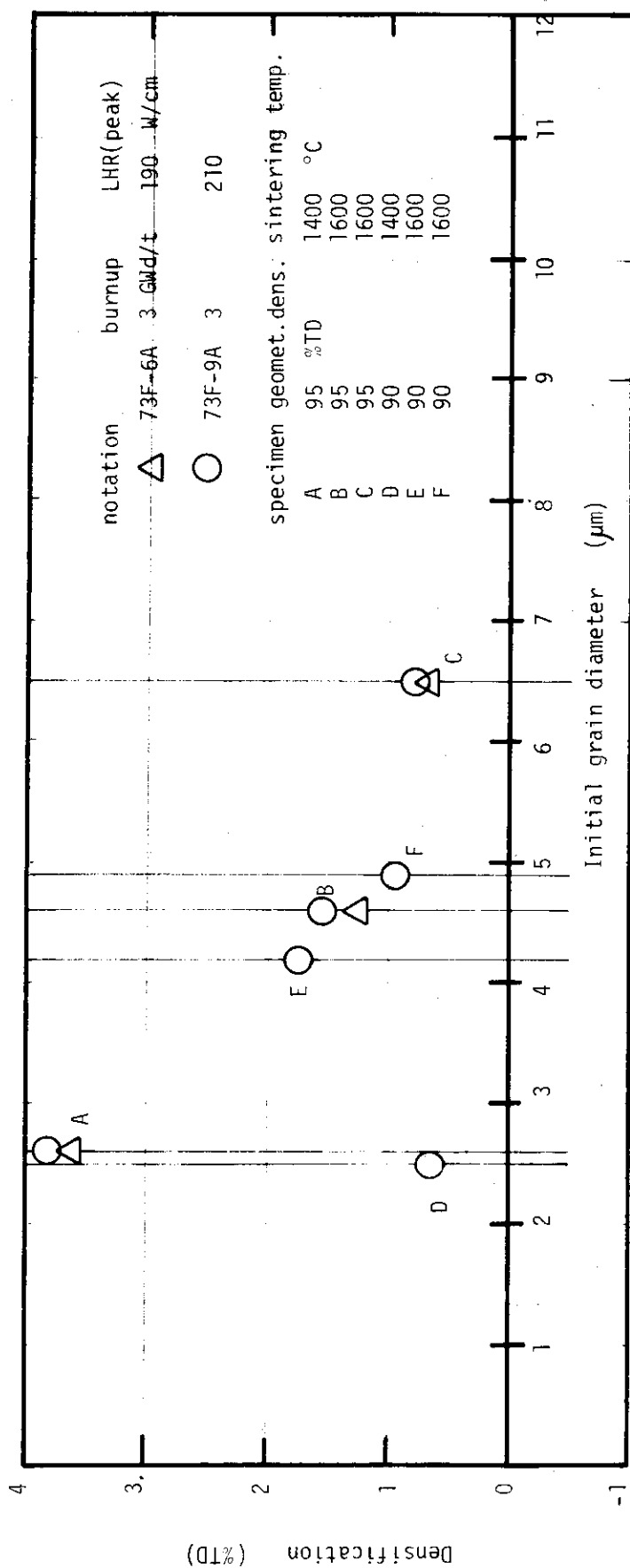


Fig. 22 Densification vs initial grain size under the axially restrained conditions; where 73F6A is restrained by the spring force in the bellows system

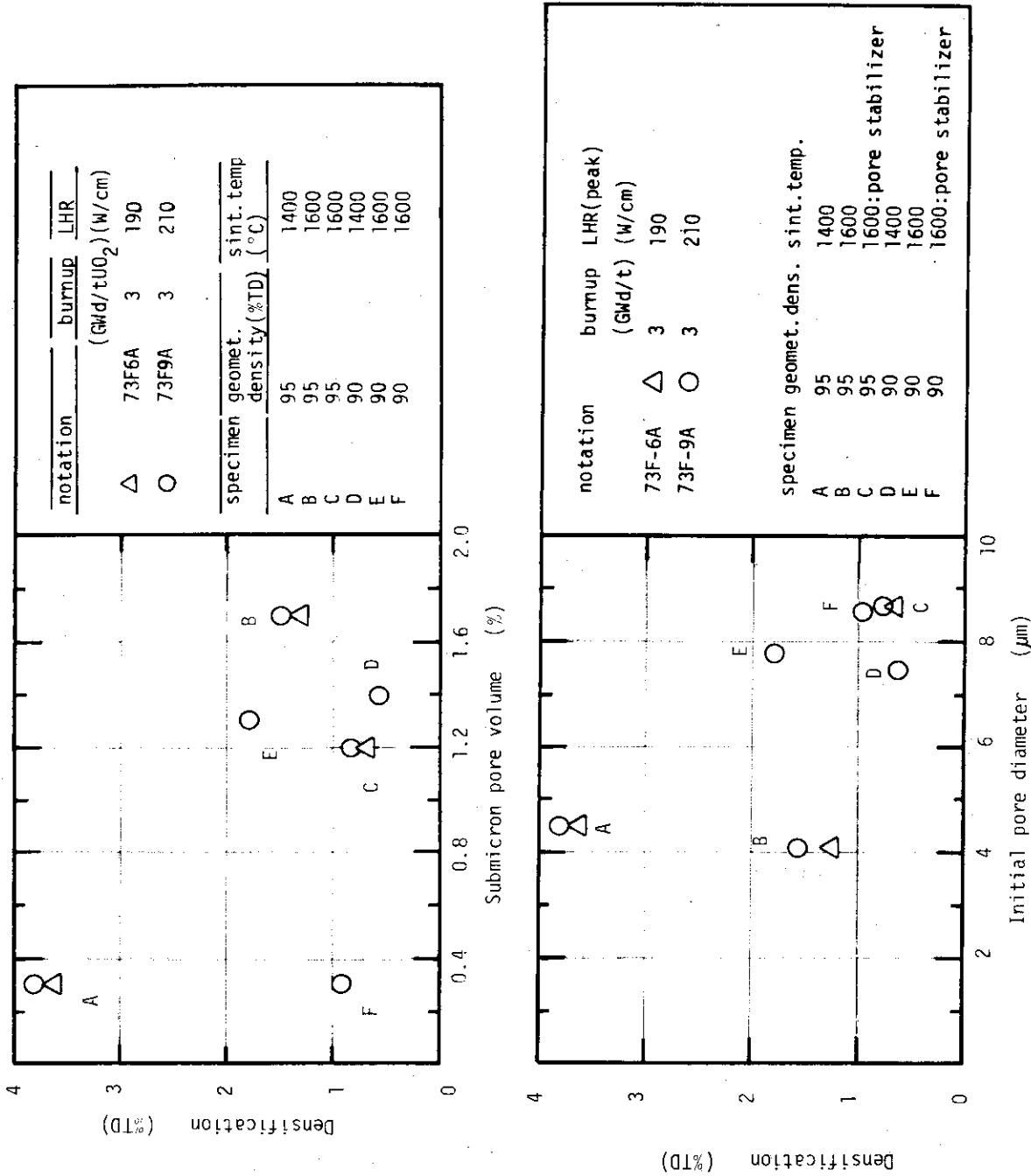


Fig. 23 Densification vs initial pore diameter and vs submicron pore volume under the axially restrained conditions; where 73F6A is restrained by the spring force in the bellows system.

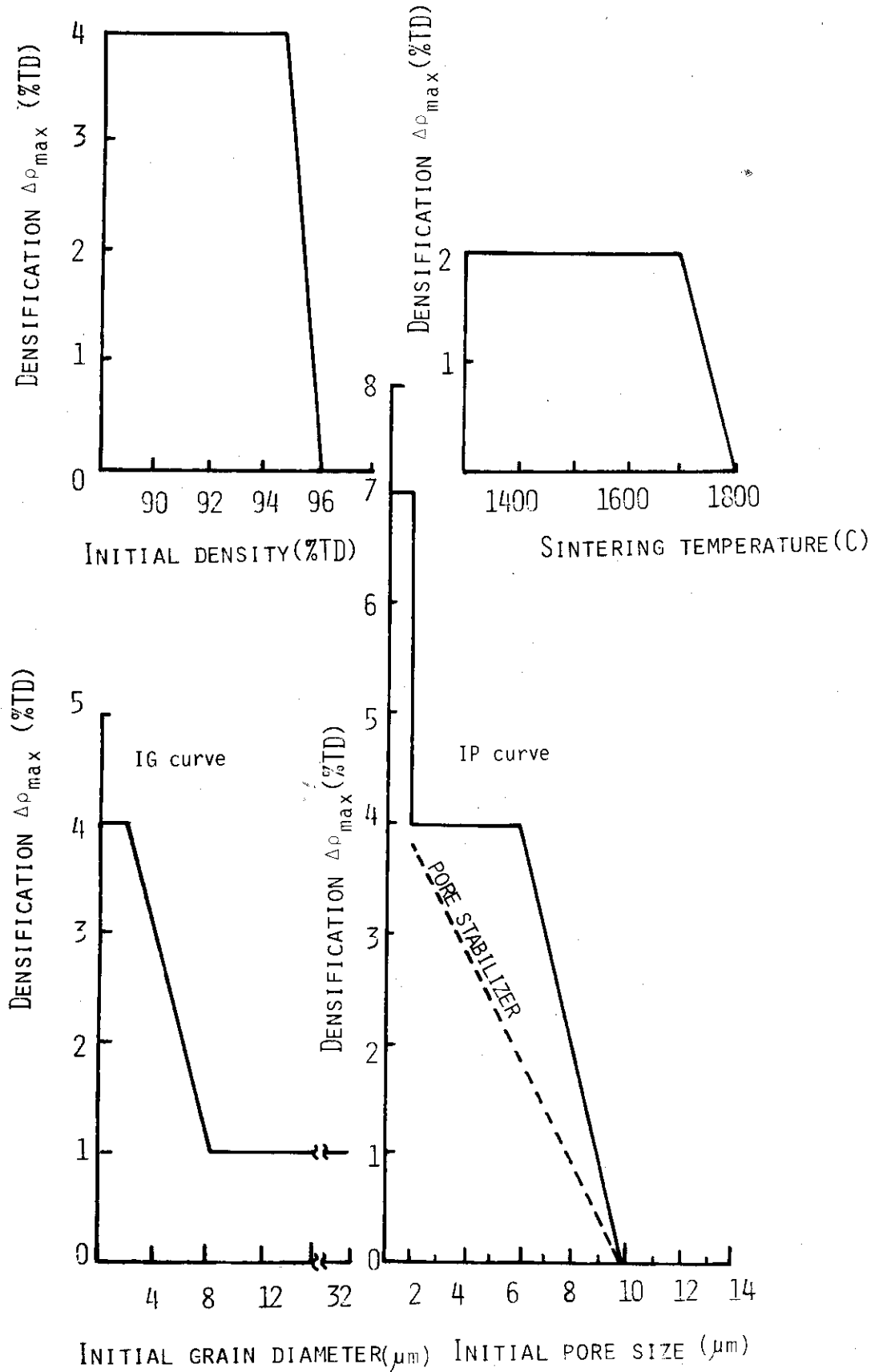


Fig. 24 Densification as a function of the modelled fabrication factors (initial grain size (left) and initial pore size (right), where broken lines is applied for the case of pore stabilizer adding to the specimen.