

JAERI - M

87-016

ThO₂系燃料の照射による格子定数変化に
及ぼす照射温度の影響

(JRR-2, VOF-18Hキャプセル)

1987年2月

赤堀 光雄・伊藤 昭憲・白鳥 徹雄
井川 勝市・柴 是行

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

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1987

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 山田軽印刷所

ThO₂ 系燃料の照射による格子定数変化に及ぼす照射温度の影響
(JRR-2, VOF-18H キャップセル)

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
赤堀 光雄・伊藤 昭憲・白鳥 徹雄
井川 勝市・柴 是行

(1987年1月29日受理)

ThO₂系燃料の照射による格子定数変化に及ぼす照射温度の影響について、計装キャップセルを用いた高温照射(300 ~ 500 °C)により調べた。その結果、(Th, U)O₂の照射による格子定数の増加は照射温度が高いほど低くなることが分かった。回復挙動からは、高温での照射により回復開始温度が高くなることが分かった。一方、ThO₂へのCaO, Y₂O₃およびNb₂O₅の添加は、格子定数増加の照射下回復および回復開始温度の増加を促進することが分かった。また、室温照射データとの比較を行い、照射温度の影響について考察した。

Effect of Irradiation Temperature on Irradiation-Induced
Lattice Parameter Change in ThO₂-Base Fuels
(JRR-2, VOF-18H Capsule)

Mitsuo AKABORI, Akinori ITOH, Tetsuo SHIRATORI,
Katsuichi IKAWA and Koreyuki SHIBA

Department of Fuels and Materials Research,
Tokai Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute,
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 29, 1987)

Effect of irradiation temperature on irradiation-induced lattice parameter changes in ThO₂-base fuels was investigated by an instrumented capsule irradiation at high temperatures (300 ~ 500°C). The lattice parameter growth in (Th, U)O₂ decreased with the increase of the irradiation temperature. The behavior of the postirradiation recovery suggested that the starting temperature of the recovery is made higher by the high temperature irradiation. Addition of CaO, Y₂O₃ and Nb₂O₅ in ThO₂ would enhance the irradiation recovery and the increase of the starting temperature. The effect of the irradiation temperature was also discussed by comparing with data for room temperature irradiation.

Keywords : Irradiation, Temperature, Lattice Parameter, ThO₂,
Capsule, Recovery

目 次

1.はじめに.....	1
2.試料および格子定数測定.....	1
3.照 射.....	2
3.1 照射キャップセル.....	2
3.2 照射履歴および照射条件.....	3
4.結 果.....	4
4.1 格子定数変化.....	4
4.1.1 (Th, U) O ₂ 粉末およびペレット.....	4
4.1.2 添加物入り ThO ₂ ペレット.....	4
4.2 回復挙動.....	4
5.考 察.....	5
5.1 格子定数変化.....	5
5.2 回復挙動.....	6
6.結 論.....	7
謝 辞.....	7
参考文献	8

CONTENTS

1.	Introduction	1
2.	Specimens and lattice parameter measurements	1
3.	Irradiation	2
3.1	Irradiation capsule	2
3.2	Irradiation history and conditions	3
4.	Results	4
4.1	Lattice parameter change	4
4.1.1	(Th, U)O ₂ powders and pellets	4
4.1.2	Doped ThO ₂ pellets	4
4.2	Recovery behavior	4
5.	Discussion	5
5.1	Lattice parameter change	5
5.2	Recovery behavior	6
6.	Conclusions	7
	Acknowledgment	7
	References	8

1. はじめに

ThO_2 系燃料の照射による寸法変化挙動の研究では、これまで JRR-2 垂直照射孔および JRR-4 簡易照射孔 (T および S パイプ) 等を利用した室温下軽照射 (約 1×10^{24} fissions / m^3 以下) により、高温ガス炉用燃料核 (ThO_2 ⁽¹⁾⁽²⁾ および $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ⁽³⁾)⁽⁴⁾、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレット⁽⁵⁾、さらに各種添加物入り ThO_2 ペレット⁽⁶⁾ の照射による格子定数および密度変化等の測定を実施してきた。これまでの実験で得られた結果を下に列記する。

- ① 約 10^{24} fissions / m^3 までの照射領域では、照射量とともに格子定数が増加し、その後飽和する。それ以上の照射量では減少する傾向がある。
- ② 照射による格子定数の増加および密度の減少は、主として各々格子間原子型および空孔型欠陥の照射による蓄積に起因する。
- ③ 格子定数変化の照射量依存性は粉末、粒子、ペレット等の燃料形態にあまり依存しないが、結晶粒径等の燃料組織に大きく影響される。

一方、照射により燃料中に生成および蓄積される欠陥の各種挙動、例えば種類、大きさ、移動性、消滅挙動等は照射下の燃料温度に大きく影響されることが予想される。従って、照射温度が照射による寸法変化に影響することが当然考えられ、実際 UO_2 ペレットの高温照射 (約 400 °C) では、照射による格子定数変化⁽⁷⁾ および密度変化⁽⁸⁾ の室温照射との違いが報告されている。

そこで今回、VOF-18H キャップセルを用いた高温照射を JRR-2 で実施することにより、 ThO_2 系燃料 (粉末およびペレット) の照射による格子定数変化を測定し、さらに照射温度との関連について検討した。

今回計画した照射温度は照射生成欠陥の移動性に関連して、300, 500, および 700 °C の 3 点であったが、照射中途での燃料加熱用ヒーター断線による影響で最高温度 (700 °C) は得られず、結果として～350 および～450 °C の 2 点となった。

また、照射試料としては粉末、粒子およびペレットを用いたが、線量と寸法測定手法との関連で、粒子燃料の結果は今回の報告には含まれていない。

2. 試料および格子定数測定

照射および格子定数測定に用いた試料の各種特性を Table 1 に示す。ここで、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレットの原料粉末はトリウム、ウラン混合硝酸塩溶液のアンモニア共沈により得た。粉末試料は Ar - 4 % H_2 気流中で 1500 °C - 4 h 热処理したものを用いた。ペレット試料は粉末を～200 MPa で圧縮成型後、空気中で 1500 °C - 10 h 烧結および He - 4 % H_2 で 1500 °C - 4 h 還元熱処理して得られたペレットを、さらに 10 mm × 3 mm × 0.3 mm の短冊状に切断したものを用いた。一方、 CaO または Y_2O_3 添加 ThO_2 ペレットは混合硝酸塩溶液のシュウ酸共沈により得た粉

1. はじめに

ThO_2 系燃料の照射による寸法変化挙動の研究では、これまで JRR-2 垂直照射孔および JRR-4 簡易照射孔 (T および S パイプ) 等を利用した室温下軽照射 (約 1×10^{24} fissions / m^3 以下) により、高温ガス炉用燃料核 (ThO_2 ⁽¹⁾⁽²⁾ および $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ⁽³⁾)⁽⁴⁾, $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレット⁽⁵⁾, さらに各種添加物入り ThO_2 ペレット⁽⁶⁾ の照射による格子定数および密度変化等の測定を実施してきた。これまでの実験で得られた結果を下に列記する。

- ① 約 10^{24} fissions / m^3 までの照射領域では、照射量とともに格子定数が増加し、その後飽和する。それ以上の照射量では減少する傾向がある。
- ② 照射による格子定数の増加および密度の減少は、主として各々格子間原子型および空孔型欠陥の照射による蓄積に起因する。
- ③ 格子定数変化の照射量依存性は粉末、粒子、ペレット等の燃料形態にあまり依存しないが、結晶粒径等の燃料組織に大きく影響される。

一方、照射により燃料中に生成および蓄積される欠陥の各種挙動、例えば種類、大きさ、移動性、消滅挙動等は照射下の燃料温度に大きく影響されることが予想される。従って、照射温度が照射による寸法変化に影響することが当然考えられ、実際 UO_2 ペレットの高温照射 (約 400 °C) では、照射による格子定数変化⁽⁷⁾ および密度変化⁽⁸⁾ の室温照射との違いが報告されている。

そこで今回、VOF-18H キャップセルを用いた高温照射を JRR-2 で実施することにより, ThO_2 系燃料 (粉末およびペレット) の照射による格子定数変化を測定し、さらに照射温度との関連について検討した。

今回計画した照射温度は照射生成欠陥の移動性に関連して、300, 500, および 700 °C の 3 点であったが、照射中途での燃料加熱用ヒーター断線による影響で最高温度 (700 °C) は得られず、結果として～350 および～450 °C の 2 点となった。

また、照射試料としては粉末、粒子およびペレットを用いたが、線量と寸法測定手法との関連で、粒子燃料の結果は今回の報告には含まれていない。

2. 試料および格子定数測定

照射および格子定数測定に用いた試料の各種特性を Table 1 に示す。ここで、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレットの原料粉末はトリウム、ウラン混合硝酸塩溶液のアンモニア共沈により得た。粉末試料は Ar - 4 % H_2 気流中で 1500 °C - 4 h 熱処理したものを用いた。ペレット試料は粉末を～200 MPa で圧縮成型後、空気中で 1500 °C - 10 h 焼結および He - 4 % H_2 で 1500 °C - 4 h 還元熱処理して得られたペレットを、さらに 10 mm × 3 mm × 0.3 mm の短冊状に切断したものを用いた。一方、 CaO または Y_2O_3 添加 ThO_2 ペレットは混合硝酸塩溶液のシュウ酸共沈により得た粉

末から、また Nb_2O_5 添加 ThO_2 ベレットはショウ酸塩から得た ThO_2 と Nb_2O_5 粉末の機械混合により得た粉末から作成した。粉末を $\sim 200 \text{ MPa}$ で成型後、 $\text{He} - 4\% \text{H}_2$ 気流中で $1750^\circ\text{C} - 4 \text{ h}$ 焼結および $1500^\circ\text{C} - 10 \text{ h}$ 空気中熱処理して得られたベレットを、上述の $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ベレットと同寸法に切断したものを試料とした。

照射に供した試料重量は粉末で約 200 mg 、ベレットで約 100 mg であり、試料発熱による試料温度の上昇はヒータ加熱に比べて無視できると考えられる。

試料の化学量論性は $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびベレットについては O/M 比でほぼ 2.00 であり、一方添加物入り ThO_2 では、 CaO および $\text{Y}_2\text{O}_3 - \text{ThO}_2$ で 1.98 ($\text{Th}_{0.98} \text{Ca}_{0.02} \text{O}_{1.98}$)、および $\text{Th}_{0.98} \text{Y}_{0.04} \text{O}_{1.98}$)、 $\text{Nb}_2\text{O}_5 - \text{ThO}_2$ で 2.02 ($\text{Th}_{0.95} \text{Nb}_{0.04} \text{O}_{2.02}$) を模擬している。

Table 1 中の結晶粒径は、走査電子顕微鏡 (SEM) 観察 (粉末) および光学顕微鏡観察 (ベレット) により測定した。Fig. 1 に $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末試料の SEM 写真およびベレット試料の研磨後エッチング表面の光顕写真を、また Fig. 2 に各種添加物入り ThO_2 ベレットの研磨後エッチング表面を示す。

一方、格子定数は、照射前および照射後試料とともに通常の X 線回折装置により、 $\text{Cu}-\text{K}_{\alpha 1}$ 、 $\text{K}_{\alpha 2}$ 線を用いて測定した。装置の測角精度は $\pm 0.01^\circ$ (2 サイド)、 ThO_2 の格子定数に換算して $\pm 0.000015 \text{ nm}$ 以内である。照射試料は約 2 年冷却した後測定に供した。格子定数は、回折角が $100 \sim 150^\circ$ (2 サイド) の 14 ピークを用いて、Nelson と Riley の補外法により求めた。また、密度は水を用いた液浸法により測定した。

3. 照射

3.1 照射キャプセル

目標の照射条件 (中性子照射量および温度) を得るために JRR-2 用計装照射キャプセルを設計、製作した。その計装照射キャプセル (キャプセル名: VOF-18H) の構造を Fig. 3 に示す。

試料はその種類別に Fig. 4 に示す黒鉛製の容器に各々分類充填 (H 1 ~ H 3) し、この H 1 ~ H 3 を 1 セットとして、3 セット分が照射キャプセル内の上から順に上段、中段および下段として組み込まれている。H 1 容器には今回の報告に含まれていない粒子と $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ベレットの短冊試料を収め、H 2 容器には $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ベレットの短冊試料と $\text{CaO}-\text{ThO}_2$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3-\text{ThO}_2$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_5-\text{ThO}_2$ の短冊試料とを交互に収めてある。また、H 3 容器には石英アンプルに密封された $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末が充填してある。

照射条件のうち、熱中性子照射量が $10^{22} \sim 10^{23} \text{ n/m}^2$ の範囲になるように JRR-2 垂直照射孔の位置を選んで照射し、その結果を確認できるように、キャプセルの 3 カ所にフラックスモニターを内蔵してある。一方、照射温度は、試料中の ^{235}U 量が少ないために核発熱では確保できないのでキャプセル内の試料部外周に電熱ヒーターを巻き、試料部の上段、中段、下段が各々 300°C (T 1)、 500°C (T 2)、 700°C (T 3) になる設計により確保した。温度は、キャプセルに挿

末から、またNb₂O₅添加ThO₂ペレットはショウ酸塩から得たThO₂とNb₂O₅粉末の機械混合により得た粉末から作成した。粉末を～200MPaで成型後、He—4%H₂気流中で1750℃—4h焼結および1500℃—10h空気中熱処理して得られたペレットを、上述の(Th, U)O₂ペレットと同寸法に切断したものを試料とした。

照射に供した試料重量は粉末で約200mg、ペレットで約100mgであり、試料発熱による試料温度の上昇はヒータ加熱に比べて無視できると考えられる。

試料の化学量論性は(Th, U)O₂粉末およびペレットについてはO/M比ではほぼ2.00であり、一方添加物入りThO₂では、CaO—およびY₂O₃—ThO₂で1.98(Th_{0.98}Ca_{0.02}O_{1.98})、およびTh_{0.96}Y_{0.04}O_{1.98})、Nb₂O₅—ThO₂で2.02(Th_{0.96}Nb_{0.04}O_{2.02})を模擬している。

Table 1中の結晶粒径は、走査電子顕微鏡(SEM)観察(粉末)および光学顕微鏡観察(ペレット)により測定した。Fig. 1に(Th, U)O₂粉末試料のSEM写真およびペレット試料の研磨後エッチング表面の光顕写真を、またFig. 2に各種添加物入りThO₂ペレットの研磨後エッチング表面を示す。

一方、格子定数は、照射前および照射後試料とともに通常のX線回折装置により、Cu—K_{α1}、K_{α2}線を用いて測定した。装置の測角精度は±0.01°(2θ)、ThO₂の格子定数に換算して±0.000015nm以内である。照射試料は約2年冷却した後測定に供した。格子定数は、回折角が100～150°(2θ)の14ビーグを用いて、NelsonとRileyの補外法により求めた。また、密度は水を用いた液浸法により測定した。

3. 照射

3.1 照射キャップセル

目標の照射条件(中性子照射量および温度)を得るためにJRR-2用計装照射キャップセルを設計、製作した。その計装照射キャップセル(キャップセル名: VOF-18H)の構造をFig. 3に示す。

試料はその種類別にFig. 4に示す黒鉛製の容器に各々分類充填(H1～H3)し、このH1～H3を1セットとして、3セット分が照射キャップセル内の上から順に上段、中段および下段として組み込まれている。H1容器には今回の報告に含まれていない粒子と(Th, U)O₂ペレットの短冊試料を収め、H2容器には(Th, U)O₂ペレットの短冊試料とCaO—ThO₂、Y₂O₃—ThO₂、Nb₂O₅—ThO₂の短冊試料とを交互に収めてある。また、H3容器には石英アンプルに密封された(Th, U)O₂粉末が充填してある。

照射条件のうち、熱中性子照射量が10²²～10²³n/m²の範囲になるようにJRR-2垂直照射孔の位置を選んで照射し、その結果を確認できるように、キャップセルの3カ所にフラックスモニターを内蔵してある。一方、照射温度は、試料中の²³⁵U量が少ないために核発熱では確保できないのでキャップセル内の試料部外周に電熱ヒーターを巻き、試料部の上段、中段、下段が各々300℃(T1)、500℃(T2)、700℃(T3)になる設計により確保した。温度は、キャップセルに挿

入した4本のCA熱電対によって照射中連続に測定した。

3.2 照射履歴および照射条件

VOF-18Hキャップセルは、JRR-2のVT-10孔で1サイクル照射された。当照射サイクル（1983年4月18日12時～4月29日16時30分）は、8MWで3時間、以後10MWで265.5時間、計画通り運転された。しかし、照射を始めてから186.5時間後（4月26日6時30分）に、キャップセルの試料加熱用ヒーターの一部が断線した。このため、最も高い照射温度を予定した下段試料の照射条件は、所期の目標からはずれた。

熱中性子照射量は、キャップセルの3箇所から回収したモニタ・ワイヤの⁶⁰Co放射能測定値から求めた。測定結果をTable 2に、また、各試料位置と照射量の関係をFig. 5（上図）に示す。

照射中の試料温度は、4箇所に挿入した熱電対により常時記録した。キャップセルの温度分布をFig. 5（下図）に示す。ヒーターの断線に伴い、温度分布は照射前期と後期で大きく変化した。T3試料の照射温度は、後期では200°C以下と常温に近かった。一方、T1, T2試料では、前述の影響が小さく、前・後期の温度変化は50°C以内にとどまった。なお、前後各期間内の温度変化は、各熱電対とも±10°C以内である。

各試料の核分裂照射量（fissions/m³）は、約1年冷却してから γ 線測定を行い、¹³⁷Csおよび⁹⁵Zr-⁹⁵Nbの放射能から計算した。なお、H2試料は、核分裂片源の(Th, U)O₂と反跳照射を受ける添加物入りThO₂が対になっている（本照射条件では、²³⁵Uの核分裂に比べて²³²Thから生成する²³³Uの核分裂は無視できる）。この場合、核分裂片照射量は反跳損失により表面からその飛程の領域内で減少する。加えて、格子定数測定において、X線は反跳の飛程よりも狭い表面領域で回折される。したがって、H2試料では核分裂片源の照射量からX線回折に寄与する領域の照射量に補正する必要がある。

一般に、核分裂片の電子励起およびはじき出しに伴うエネルギー損失のうち、はじき出しによるエネルギー損失は飛跳の終点付近で特に大きくなると考えられている⁽⁹⁾。そこで、ここでは照射量の補正係数 α_F が試料内部（反跳打込みの場合は、打込み側）に対するX線回折領域の核分裂濃度の比により近似できるとして算出した。この場合の α_F の算出式はすでに報告されている⁽¹⁾⁽⁵⁾。

すなわち、 α_F は次式で表わされる。

$$\alpha_F = \frac{1}{2} \left(1 \pm \frac{X}{R} \right) \quad 0 \leq X \leq R \quad (1)$$

ここで、正負の符号（±）はそれぞれ核分裂源および反跳を受ける側を表わす。

X：表面からの距離、R：反跳の飛程

また、X線回折に関与する平均の $\bar{\alpha}_F$ は次式で表わされる。

$$\bar{\alpha}_F = \int_0^R \alpha_F (I/I_0) dx / \int_0^R (I/I_0) dx \quad (2)$$

ここで $I/I_0 = \exp(-2\mu x/\sin\theta)$

I_0 , I : X線の入射及び回折強度

μ : 線吸収係数

θ : 回折角

ThO_2 中の各FPの平均飛程およびCu K α 線の吸収係数をそれぞれ、 $7.3 \mu\text{m}$ および $2.9 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ 、また、格子定数は回折角 90° に外挿して求めるので θ を 90° として(2)式により $\bar{\alpha}_p$ を求めるとき、核分裂源および反跳を受ける側でそれぞれ 0.62 および 0.38 になる。

このようにして算出した各試料の核分裂照射量を、他の照射条件とまとめてTable 3に示す。

4. 結 果

4.1 格子定数変化

4.1.1 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレット

Fig. 6に各種温度で照射した $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレットの未照射試料に対する格子定数変化率 $\Delta a/a (\%)$ を示した。ここで、実線で示した曲線は同一試料の室温照射($\sim 150^\circ\text{C}$ 以下)での格子定数変化の照射量依存性⁽⁴⁾⁽⁵⁾を示している。試料容器H 3の粉末試料および隣り合った他試料からの核分裂片の反跳による打込みがない試料容器H 2のペレット試料において、照射温度T 1およびT 2の試料では、格子定数増加が室温照射に比べて明らかに低く、その傾向は照射温度が高いほど大きいことが分かる。また、照射途中で温度が低下したT 3の変化率は室温照射の値とほぼ同一であることが分かる。一方、核分裂片の反跳打込みが加わる試料容器H 1のペレット試料では、格子定数増加率がH 2の試料よりも約 0.02% 高く、照射温度T 1では室温照射よりも高くなっている。Table 4には高温照射試料の格子定数変化率および同一照射量の室温照射試料の格子定数変化率に対する割合を示した。これから、核分裂片の反跳打込みのないH 2試料では、室温照射における格子定数変化と比較して、T 1($\sim 350^\circ\text{C}$)照射で約 20% 、T 2($\sim 450^\circ\text{C}$)照射で約 $25\sim 30\%$ 格子定数増加が低いことが分かる。

4.1.2 添加物入り ThO_2 ペレット

Table 5に添加物(CaO , Y_2O_3 , Nb_2O_5)入り ThO_2 ペレットの照射温度T 2($\sim 450^\circ\text{C}$)での格子定数変化率(%)および同一試料の室温照射($\sim 100^\circ\text{C}$)における変化率飽和値に対する割合を示した。これから、室温照射に対する格子定数増加は室温照射に比べて約 $40\sim 50\%$ 低いことが分かる。また、この低下の度合いは添加元素にあまり依存しないが、同一照射温度T 2の $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレットの場合と比較すると約2倍程度大きいことが分かる。

4.2 回復挙動

照射による格子定数増加の回復挙動は、ペレット試料について等時焼鈍法により検討した。条

I_0 , I : X線の入射及び回折強度

μ : 線吸収係数

θ : 回折角

ThO_2 中の各FPの平均飛程および $\text{Cu K}\alpha$ 線の吸収係数をそれぞれ、 $7.3 \mu\text{m}$ および $2.9 \times 10^3 \text{ cm}^4$ 、また、格子定数は回折角 90° に外挿して求めるので θ を 90° として(2)式により $\bar{\alpha}_F$ を求めるとき、核分裂源および反跳を受ける側でそれぞれ 0.62 および 0.38 になる。

このようにして算出した各試料の核分裂照射量を、他の照射条件とまとめてTable 3に示す。

4. 結 果

4.1 格子定数変化

4.1.1 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレット

Fig. 6に各種温度で照射した $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレットの未照射試料に対する格子定数変化率 $\Delta a/a (\%)$ を示した。ここで、実線で示した曲線は同一試料の室温照射($\sim 150^\circ\text{C}$ 以下)での格子定数変化の照射量依存性⁽⁴⁾⁽⁵⁾を示している。試料容器H 3の粉末試料および隣り合った他試料からの核分裂片の反跳による打込みがない試料容器H 2のペレット試料において、照射温度T 1およびT 2の試料では、格子定数增加が室温照射に比べて明らかに低く、その傾向は照射温度が高いほど大きいことが分かる。また、照射途中で温度が低下したT 3の変化率は室温照射の値とほぼ同一であることが分かる。一方、核分裂片の反跳打込みが加わる試料容器H 1のペレット試料では、格子定数増加率がH 2の試料よりも約 0.02% 高く、照射温度T 1では室温照射よりも高くなっている。Table 4には高温照射試料の格子定数変化率および同一照射量の室温照射試料の格子定数変化率に対する割合を示した。これから、核分裂片の反跳打込みのないH 2試料では、室温照射における格子定数変化と比較して、T 1($\sim 350^\circ\text{C}$)照射で約 20% 、T 2($\sim 450^\circ\text{C}$)照射で約 $25\sim 30\%$ 格子定数増加が低いことが分かる。

4.1.2 添加物入り ThO_2 ペレット

Table 5に添加物(CaO , Y_2O_3 , Nb_2O_5)入り ThO_2 ペレットの照射温度T 2($\sim 450^\circ\text{C}$)での格子定数変化率(%)および同一試料の室温照射($\sim 100^\circ\text{C}$)における変化率飽和値に対する割合を示した。これから、室温照射に対する格子定数增加は室温照射に比べて約 $40\sim 50\%$ 低いことが分かる。また、この低下の度合いは添加元素にあまり依存しないが、同一照射温度T 2の $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレットの場合と比較すると約2倍程度大きいことが分かる。

4.2 回復挙動

照射による格子定数增加の回復挙動は、ペレット試料について等時焼鈍法により検討した。条

件は、(Th, U)O₂および添加物入りThO₂ペレットとともに焼鈍温度範囲100～1100℃空気中1hであった。Fig. 7に高温照射した(Th, U)O₂ペレット(H 2T1およびH 2T2)および室温照射したTh_{0.94}U_{0.06}O₂粒子⁽³⁾(4.4×10²³fissions/m³)の等時焼鈍曲線を示す。これから、照射温度T1, T2ともに約600℃以上で急激な回復を示し、室温照射での400℃に比べて回復温度が高いことが分かった。

Fig. 8に各種添加物入りThO₂ペレットの照射後格子定数回復挙動を高温照射T2および室温照射(約1×10²²fissions/m³)⁽⁶⁾について示した。ここで一点鎖線で示した室温照射の回復曲線は各種添加物入りThO₂の平均である。室温照射試料では低温から連続的回復を示すのに対し、高温照射試料では700～800℃まではほとんど回復せず、それ以上で急激な回復を示している。また室温照射の場合と同様に添加物による回復挙動の差異はないようであった。

5. 考察

5.1 格子定数変化

軽照射における燃料の寸法変化、特に格子定数増加は照射により生成し、さらに生き残った格子間原子型欠陥、おそらく格子間原子の小さな集合体に主として起因すると考えられ、これは軽照射UO₂の透過電顕観察結果⁽¹⁰⁾等により支持されている。今回の実験では、(Th, U)O₂粉末およびペレット、さらに各種添加物入りThO₂ペレットの照射による格子定数の増加が、高温照射ほど低下することを前章において示した。すなわち、この結果は照射により生成される格子間原子型および空孔型欠陥の高温照射下での挙動が、室温照射下での挙動と異なっていることを示している。一般に、格子間原子は空孔に比べて移動度が高く、室温下でもある程度の移動度を持っていることから考えると、今回の照射温度下ではさらに移動度が増すと予想される。その結果、空孔との結合および消滅源(気孔、結晶粒界、表面、転位など)での消滅による格子間原子濃度の減少、および格子膨張に寄与しない比較的大きな格子間原子集合体への成長などにより、格子定数増加が低下すると考えられる。さらに、500℃前後の温度では空孔も移動度を持ち始めるため、空孔もまた集合体を形成し、その結果、相対的格子間原子濃度が高まり、格子間原子の集合体形成および成長がさらに促進されることも予想される。

加えて、欠陥移動度に対する照射促進効果も格子定数増加に大きく影響していると考えられる。この照射促進効果は、照射下におけるクリープ⁽¹¹⁾、燃料元素の相互拡散⁽¹²⁾、希ガス放出⁽¹³⁾等の実験により、約1000℃以下の照射温度で確認されている。そこで、高温照射(~450℃)での格子定数変化率と、照射後加熱した室温照射試料の格子定数変化率とを比較してみた。室温照射試料の500℃-3hでの照射後回復率は、今回と同一(Th, U)O₂粉末(1.9×10²³fissions/m³)⁽¹⁴⁾で約17%、Th_{0.94}U_{0.06}O₂粒子(4.4×10²³fissions/m³)⁽³⁾で約13%であった。この値とTable 4中の室温照射試料の格子定数増加に対する割合とを比較してみた。ここで、ペレット試料の比較においては、室温照射試料と同様に他試料からの核分裂片の打込みのないH 2の値

件は、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ および添加物入り ThO_2 ペレットとともに焼鈍温度範囲 $100 \sim 1100^\circ\text{C}$ 空気中 1 h であった。Fig. 7に高温照射した $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ペレット(H 2T1およびH 2T2)および室温照射した $\text{Th}_{0.94}\text{U}_{0.06}\text{O}_2$ 粒子⁽³⁾ (4.4×10^{23} fissions/m³)の等時焼鈍曲線を示す。これから、照射温度T1, T2ともに約 600°C 以上で急激な回復を示し、室温照射での 400°C に比べて回復温度が高いことが分かった。

Fig. 8に各種添加物入り ThO_2 ペレットの照射後格子定数回復挙動を高温照射T2および室温照射(約 1×10^{22} fissions/m³)⁽⁶⁾について示した。ここで一点鎖線で示した室温照射の回復曲線は各種添加物入り ThO_2 の平均である。室温照射試料では低温から連続的回復を示すのに対し、高温照射試料では $700 \sim 800^\circ\text{C}$ まではほとんど回復せず、それ以上で急激な回復を示している。また室温照射の場合と同様に添加物による回復挙動の差異はないようであった。

5. 考察

5.1 格子定数変化

軽照射における燃料の寸法変化、特に格子定数增加は照射により生成し、さらに生き残った格子間原子型欠陥、おそらく格子間原子の小さな集合体に主として起因すると考えられ、これは軽照射 UO_2 の透過電顕観察結果⁽¹⁰⁾等により支持されている。今回の実験では、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末およびペレット、さらに各種添加物入り ThO_2 ペレットの照射による格子定数の増加が、高温照射ほど低下することを前章において示した。すなわち、この結果は照射により生成される格子間原子型および空孔型欠陥の高温照射下での挙動が、室温照射下での挙動と異なっていることを示している。一般に、格子間原子は空孔に比べて移動度が高く、室温下でもある程度の移動度を持っていることから考えると、今回の照射温度下ではさらに移動度が増すと予想される。その結果、空孔との結合および消滅源(気孔、結晶粒界、表面、転位など)での消滅による格子間原子濃度の減少、および格子膨張に寄与しない比較的大きな格子間原子集合体への成長などにより、格子定数增加が低下すると考えられる。さらに、 500°C 前後の温度では空孔も移動度を持ち始めるため、空孔もまた集合体を形成し、その結果、相対的格子間原子濃度が高まり、格子間原子の集合体形成および成長がさらに促進されることも予想される。

加えて、欠陥移動度に対する照射促進効果も格子定数增加に大きく影響していると考えられる。この照射促進効果は、照射下におけるクリープ⁽¹¹⁾、燃料元素の相互拡散⁽¹²⁾、希ガス放出⁽¹³⁾等の実験により、約 1000°C 以下の照射温度で確認されている。そこで、高温照射($\sim 450^\circ\text{C}$)での格子定数変化率と、照射後加熱した室温照射試料の格子定数変化率とを比較してみた。室温照射試料の $500^\circ\text{C} - 3\text{ h}$ での照射後回復率は、今回と同一 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ 粉末(1.9×10^{23} fissions/m³)⁽¹⁴⁾で約17%、 $\text{Th}_{0.94}\text{U}_{0.06}\text{O}_2$ 粒子(4.4×10^{23} fissions/m³)⁽³⁾で約13%であった。この値とTable 4中の室温照射試料の格子定数增加に対する割合とを比較してみた。ここで、ペレット試料の比較においては、室温照射試料と同様に他試料からの核分裂片の打込みのないH 2の値

を用いた。照射後 500 ℃加熱による回復量は、温度の近い～450 ℃照射での低下量よりも小さく、むしろ～350 ℃照射での低下量にはほぼ等しくなっている。つまり、照射下の方が照射後加熱よりも回復率が高いことを示している。このことから、同じ温度では照射下の方が欠陥移動度が高く、格子定数增加に寄与する格子間原子型欠陥の各種回復機構が促進されると考えられる。また、一般に、欠陥移動度に対する照射促進効果には温度依存性がないと考えられているが、ここで示した照射による格子定数增加には明らかに温度依存性が認められている。

さらに、各種添加物入り模擬 ThO_{2+x} ペレットでの～450 ℃照射による格子定数增加の室温照射に対する低下が $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ に比べて大きい原因是、照射前に存在する空孔濃度が高いことにあると考えられる。酸素不足を模擬した CaO および Y_2O_3 添加 ThO_2 では酸素空孔が、一方、酸素過剰を模擬した Nb_2O_5 添加 ThO_2 では金属（Th）空孔が ThO_2 結晶格子中に導入されていると予想される。ここで、添加物入り ThO_2 で空孔濃度が高いことと、～450 ℃という照射温度が空孔移動可能な温度であることを考えると、格子定数增加の低下が大きくなる原因として次のようなことが考えられる。*i)* 照射下における格子間原子と空孔との合体消滅が促進される。*ii)* 空孔集合体の形成により相対的格子間原子濃度が高くなり、格子間原子集合体の成長が促進される。一般に、核分裂片のような重元素の照射によって生ずる損傷は、金属の重粒子照射の場合と同様にカスケード的であると考えられる。つまり、格子間原子はカスケードの周辺部に多く、空孔はカスケードの中心部に密集して原子密度の低い欠乏領域を形成する。従って、*i)* の格子間原子一空孔の対消滅は起こりにくいと考えられる。

一方、試料容器H 1 の $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ペレットでは、Fig. 6 と Table 4 に示した様に H 2 の同一試料の格子定数増加率と比べて 0.02%ほど高い変化率となっている。明確ではないが、この挙動には 3.2 節で触れた照射条件の違いが関与していることが予想される。つまり、H 1 の場合は隣り合った同種の試料からの反跳による核分裂片の打込みが加わることから、この核分裂片打込みによってより効果的に照射欠陥が生成され、結果として高い格子定数増加を示すと考えられる。しかし、試料の照射量が格子定数変化の飽和領域内であることから、核分裂片打込みによる多少の照射量の増加は格子定数変化率の増大をもたらさないと考えられる。従って、低運動エネルギー（約数百 keV 以下）を持つノックアウト原子（特に酸素）の打込みによる極表面領域（約 $1\mu\text{m}$ 以下）での効果的な照射欠陥生成など、他の現象が複雑に影響していると予想される。

照射下における温度（T 3）低下（～600 ℃→～150 ℃）の格子定数変化に対する影響については、4.1 節で触れたようにその格子定数変化が室温照射と比べて変わらないことから、照射履歴前半（186.5 時間）の高温照射による影響がほとんどなく、後半（79 時間）のほぼ室温における照射による格子定数増加の寄与が主であると考えられる。これは、照射温度の低い照射履歴後半における照射量が $0.5 \sim 1.3 \times 10^{23} \text{ fissions/m}^3$ で室温照射での飽和領域内にあることによる。

5.2 回復挙動

高温照射試料の照射後回復挙動では室温照射試料に比べて、 $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ペレットで～400 ℃→～600 ℃、添加物入り ThO_2 で～200 ℃→～700 ℃と回復開始温度が高温側に移行していることが示された。一般に、酸化物燃料における照射後加熱での格子定数の回復過程は、約 500 ℃まで

は近距離にある原子空孔と格子間原子との合体消滅さらに酸素の欠陥（格子間原子および空孔）の移動により、そして 500 °C 以上では金属（U, Pu, Th）欠陥、特に空孔の移動によると考えられている。従って、低温での回復がなく回復温度が高いということは、高温照射後存在する欠陥が回復し易い単純な欠陥でなく、回復が困難で高温まで安定である複雑な欠陥であることを示している。つまり、高温での照射によって、移動度の大きい格子間原子のみでなく、原子空孔もまた集合体を形成していると考えられる。照射温度が低い場合、空孔は移動度がないため原子空孔あるいは比較的小さな集合体（多分、 $V_o - V_m - V_o$ ）で存在しているのに対し、空孔が移動度を持つ照射温度の場合では、より大きな集合体を形成して安定化していることが考えられる。その結果、高温照射試料では空孔の移動度が低いため、回復温度が室温照射試料に比べて高くなると考えられる。添加物入り ThO_2 でその傾向が顕著になるのは、空孔濃度が高いため、照射下での空孔の集合体形成が促進されるためと考えられる。

6. 結論

ThO_2 系燃料 (ThO_2 , $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ および非化学量論組成模擬添加物 (CaO , Y_2O_3 および Nb_2O_5) 入り ThO_2) の照射による格子定数変化に対する照射温度の影響について、JRR-2 キャップセル (VOF-18H) により高温照射を行い調べた。照射による格子定数変化および回復挙動から、以下の結論を得た。

① 照射温度が高くなると、格子定数增加が小さくなる。また、添加物入り ThO_2 では室温照射に対する格子定数增加が $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ よりも小さくなる。

このことから、照射温度の増加が、照射下の各種欠陥移動度を増加させることにより、格子定数增加に寄与する格子間原子型欠陥（多分、小さな集合体）の照射下回復を促進させ、さらに、試料の空孔濃度の増加もまたその回復を助長すると考えられる。

② 高温照射後格子定数の回復挙動からは、その回復開始温度が室温照射試料の回復温度よりも高くなった。これは、照射温度および照射促進効果による空孔移動度の増加とそれに伴う空孔集合体形成に起因すると考えられる。

謝辞

本研究を遂行するに当り、キャップセル設計・製作および照射・照射後試験は東海研究所技術部工作課、研究炉管理部研究炉利用課およびホットラボ管理室の協力により実施された。これらの方々に深い感謝の意を表します。

また、本報告をまとめるにあたり、御支援を頂いた燃料工学部近藤達男部長に感謝の意を表します。

は近距離にある原子空孔と格子間原子との合体消滅さらに酸素の欠陥（格子間原子および空孔）の移動により、そして 500 °C 以上では金属（U, Pu, Th）欠陥、特に空孔の移動によると考えられている。従って、低温での回復がなく回復温度が高いということは、高温照射後存在する欠陥が回復し易い単純な欠陥でなく、回復が困難で高温まで安定である複雑な欠陥であることを示している。つまり、高温での照射によって、移動度の大きい格子間原子のみでなく、原子空孔もまた集合体を形成していると考えられる。照射温度が低い場合、空孔は移動度がないため原子空孔あるいは比較的小さな集合体（多分、 $V_o - V_m - V_o$ ）で存在しているのに対し、空孔が移動度を持つ照射温度の場合では、より大きな集合体を形成して安定化していると考えられる。その結果、高温照射試料では空孔の移動度が低いため、回復温度が室温照射試料に比べて高くなると考えられる。添加物入り ThO_2 でその傾向が顕著になるのは、空孔濃度が高いため、照射下での空孔の集合体形成が促進されるためと考えられる。

6. 結論

ThO_2 系燃料 (ThO_2 , $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ および非化学量論組成模擬添加物 (CaO , Y_2O_3 および Nb_2O_5) 入り ThO_2) の照射による格子定数変化に対する照射温度の影響について、JRR-2 キャップセル (VOF-18H) により高温照射を行い調べた。照射による格子定数変化および回復挙動から、以下の結論を得た。

- ① 照射温度が高くなると、格子定数增加が小さくなる。また、添加物入り ThO_2 では室温照射に対する格子定数增加が $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ よりも小さくなる。

このことから、照射温度の増加が、照射下の各種欠陥移動度を増加させることにより、格子定数增加に寄与する格子間原子型欠陥（多分、小さな集合体）の照射下回復を促進させ、さらに、試料の空孔濃度の増加もまたその回復を助長すると考えられる。

- ② 高温照射後格子定数の回復挙動からは、その回復開始温度が室温照射試料の回復温度よりも高くなった。これは、照射温度および照射促進効果による空孔移動度の増加とそれに伴う空孔集合体形成に起因すると考えられる。

謝辞

本研究を遂行するに当り、キャップセル設計・製作および照射・照射後試験は東海研究所技術部工作課、研究炉管理部研究炉利用課およびホットラボ管理室の協力により実施された。これらの方々に深い感謝の意を表します。

また、本報告をまとめるにあたり、御支援を頂いた燃料工学部近藤達男部長に感謝の意を表します。

は近距離にある原子空孔と格子間原子との合体消滅さらに酸素の欠陥（格子間原子および空孔）の移動により、そして 500 °C 以上では金属（U, Pu, Th）欠陥、特に空孔の移動によると考えられている。従って、低温での回復がなく回復温度が高いということは、高温照射後存在する欠陥が回復し易い単純な欠陥でなく、回復が困難で高温まで安定である複雑な欠陥であることを示している。つまり、高温での照射によって、移動度の大きい格子間原子のみでなく、原子空孔もまた集合体を形成していると考えられる。照射温度が低い場合、空孔は移動度がないため原子空孔あるいは比較的小さな集合体（多分、 $V_o - V_m - V_o$ ）で存在しているのに対し、空孔が移動度を持つ照射温度の場合では、より大きな集合体を形成して安定化していると考えられる。その結果、高温照射試料では空孔の移動度が低いため、回復温度が室温照射試料に比べて高くなると考えられる。添加物入り ThO_2 でその傾向が顕著になるのは、空孔濃度が高いため、照射下での空孔の集合体形成が促進されるためと考えられる。

6. 結論

ThO_2 系燃料 (ThO_2 , $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ および非化学量論組成模擬添加物 (CaO , Y_2O_3 および Nb_2O_5) 入り ThO_2) の照射による格子定数変化に対する照射温度の影響について、JRR-2 キャップセル (VOF-18H) により高温照射を行い調べた。照射による格子定数変化および回復挙動から、以下の結論を得た。

- ① 照射温度が高くなると、格子定数增加が小さくなる。また、添加物入り ThO_2 では室温照射に対する格子定数增加が $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ よりも小さくなる。

このことから、照射温度の増加が、照射下の各種欠陥移動度を増加させることにより、格子定数增加に寄与する格子間原子型欠陥（多分、小さな集合体）の照射下回復を促進させ、さらに、試料の空孔濃度の増加もまたその回復を助長すると考えられる。

- ② 高温照射後格子定数の回復挙動からは、その回復開始温度が室温照射試料の回復温度よりも高くなった。これは、照射温度および照射促進効果による空孔移動度の増加とそれに伴う空孔集合体形成に起因すると考えられる。

謝辞

本研究を遂行するに当り、キャップセル設計・製作および照射・照射後試験は東海研究所技術部工作課、研究炉管理部研究炉利用課およびホットラボ管理室の協力により実施された。これらの方々に深い感謝の意を表します。

また、本報告をまとめるにあたり、御支援を頂いた燃料工学部近藤達男部長に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) 鈴木, 赤堀, 柴, 粉末および粉末冶金, 29 (1982) 187.
- (2) 鈴木, 赤堀, 柴, 粉末および粉末冶金, 30 (1983) 178.
- (3) M. Akabori and K. Shiba, J. Nucl. Mater. 101 (1981) 184.
- (4) K. Shiba, A. Itoh and M. Akabori, J. Nucl. Mater. 126 (1984) 18.
- (5) M. Akabori and K. Shiba, J. Nucl. Sci. Technol. 23 (1986) 594.
- (6) 赤堀, 未公開資料.
- (7) L. E. Roberts et al., Conf. Int. Geneva (1964) P/ 155.
- (8) W. D. Kingery et al., J. Nucl. Mater. 26 (1968) 204.
- (9) J. Souillard, French Report CER-R 4882, (1972).
- (10) A. D. Whapham and B. E. Sheldon, Phil. Mag. 31 (1965) 1179.
- (11) D. Brucklacher and W. Dienst, J. Nucl. Mater. 42 (1972) 285.
- (12) A. Hoh and H. J. Matzke, J. Nucl. Mater. 48 (1973) 157.
- (13) J. A. Turnbull et al., J. Nucl. Mater. 107 (1982) 168.
- (14) 伊藤, 未公開資料.

Table 1 Characteristics of the specimens investigated

Sample form	Composition (^{235}U enrichment)	Grain radius (μm)	Density (%TD)	Lattice parameter (nm)
Powder	• $\text{Th}_{0.94} \text{U}_{0.06} \text{O}_2$ (2.3 %)	~ 0.5 (2.8*)	—	0.55894 ± 0.00002
Pellet	• $\text{Th}_{0.995} \text{U}_{0.005} \text{O}_2$ (93 %)	~ 23	95	0.55961 ± 0.00003
	• 2 mol % $\text{CaO}-\text{ThO}_2$	~ 17	98	0.55869 ± 0.00002
	• 2 mol % $\text{Y}_2\text{O}_3-\text{ThO}_2$	~ 14	98	$0.55976 \pm "$
	• 2 mol % $\text{Nb}_2\text{O}_5-\text{ThO}_2$	~ 46	92	$0.55975 \pm "$

* Equivalent sphere radius estimated from data of Kr specific surface area

Table 2 Thermal neutron exposure in VOF-18 H capsule

Flux monitor			^{60}Co Activity on Feb. 7. 1985	Neutron exposure	Neutron flux at 10 MW
Position	Composition	Weight (mg)	(μCi)	(n/m^2)	($\text{n}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$)
Upper	0.024 w/o Co-Al	5.159	0.147	4.11×10^{22}	4.26×10^{16}
Middle		5.126	0.244	6.85×10^{22}	7.10×10^{16}
Lower		4.958	0.382	1.11×10^{23}	1.15×10^{17}

The activation cross section of ^{59}Co : $36 \frac{\sqrt{\pi}}{2}$ (barn)

Table 3 Irradiation conditions in VOF-18H test samples

Position	Holder No.	Fission dose (fissions/m ³)	Irradiation temperature ^{a)} (°C)	Thermal neutron exposure (n/m ²)
Upper (T 1)	H 1	1.45×10^{23}	335 (290)	3.6×10^{22}
	H 2	1.02×10^{23}	350 (310)	4.1×10^{22}
	H 3	6.00×10^{22}	395 (375)	5.1×10^{22}
Middle (T 2)	H 1	2.62×10^{23}	450 (440)	6.5×10^{22}
	H 2	1.71×10^{23} 1.05×10^{23} ^{b)}	460 (460)	6.9×10^{22}
	H 3	9.98×10^{22}	~ 480 (525)	8.4×10^{22}
Lower (T 3)	H 1	4.34×10^{23}	~ 190 (600)	1.05×10^{23}
	H 2	2.85×10^{23}	160 (610)	1.11×10^{23}
	H 3	1.68×10^{23}	130 (610)	1.30×10^{23}

a) The values in parenthesis are the irradiation temperature before the heater trouble

b) For doped ThO₂

Table 4 Lattice parameter change of $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ powder and pellets
irradiated at high temperature

Sample holder No.	Sample	Lattice parameter change (%)		
		T 1 ($\sim 350^\circ\text{C}$)	T 2 ($\sim 450^\circ\text{C}$)	T 3
H 1	Pellet	0.0908 \pm 0.0041 (1.056)*	0.0798 \pm 0.0016 (0.928)	0.1130 \pm 0.0038 (1.314)
		0.0685 \pm 0.0101 (0.796)	0.063 \pm 0.0094 (0.713)	0.0883 (1.027)
H 3	Powder	0.0816 (0.824)	0.0762 (0.770)	0.1014 (1.024)

* Values in parenthesis show the ratio to data for room temperature irradiation

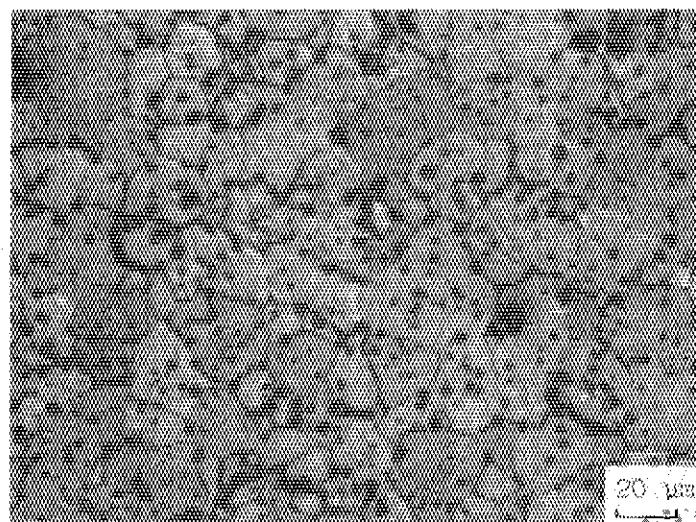
Table 5 Lattice parameter change of doped ThO_2 pellets irradiated at high temperature

Sample composition	Lattice parameter change (%)	
	T 2 ($\sim 450^\circ\text{C}$)	$\sim 100^\circ\text{C}$
$\text{CaO}-\text{ThO}_2$	0.149 (0.594)*	0.251
$\text{Y}_2\text{O}_3-\text{ThO}_2$	0.153 (0.538)	0.285
$\text{Nb}_2\text{O}_5-\text{ThO}_2$	0.136 (0.474)	0.288

* Values in parenthesis show the ratio to data for room temperature irradiation

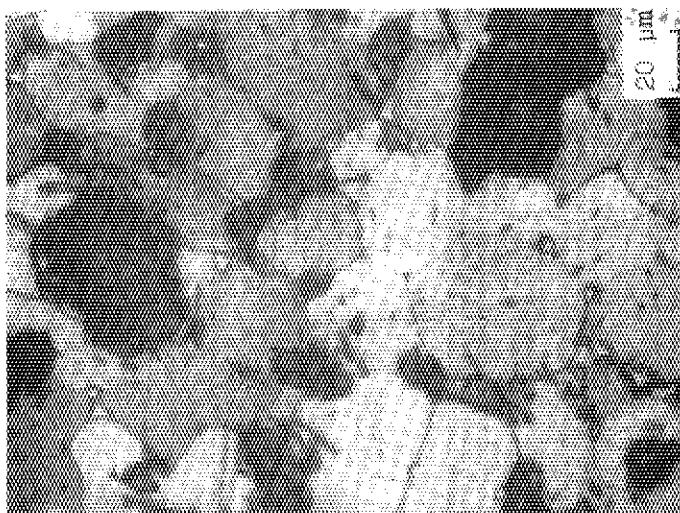


(a) Scanning electron micrograph of Th_{0.94}U_{0.06}O₂ powder

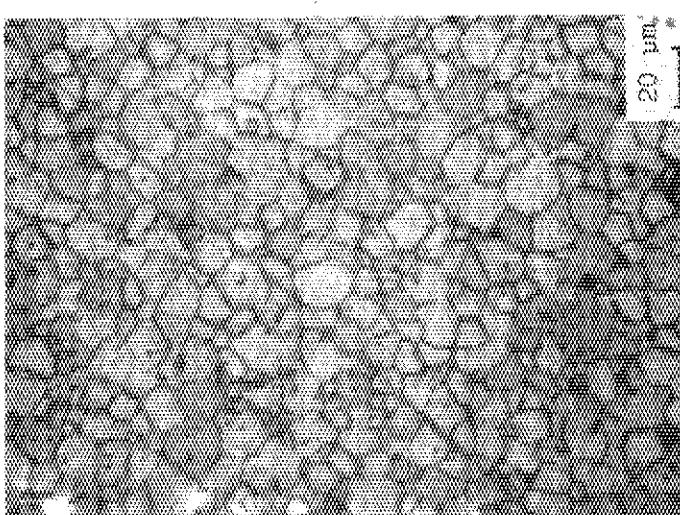


(b) Ceramograph of etched Th_{0.995}U_{0.005}O₂ pellet

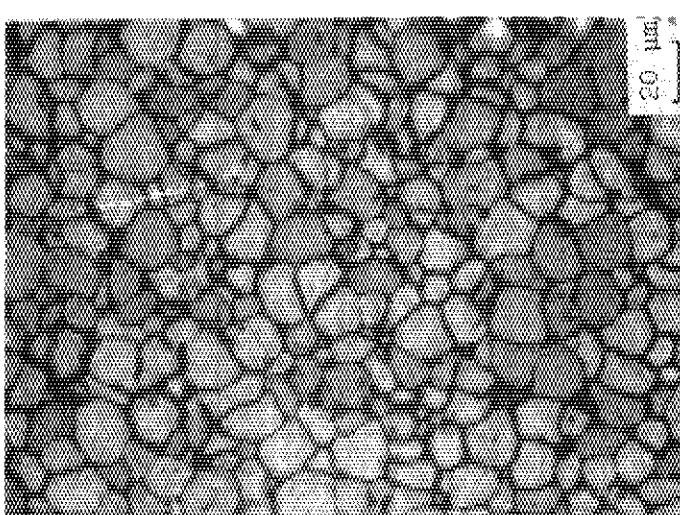
Fig. 1 Micrographs of (Th, U)O₂ powder and pellet



(c) 2 mol% Nb_2O_5 - ThO_2



(b) 2 mol% Y_2O_3 - ThO_2



(a) 2 mol% CaO - ThO_2

Fig. 2 Ceramographs of doped ThO_2 pellets

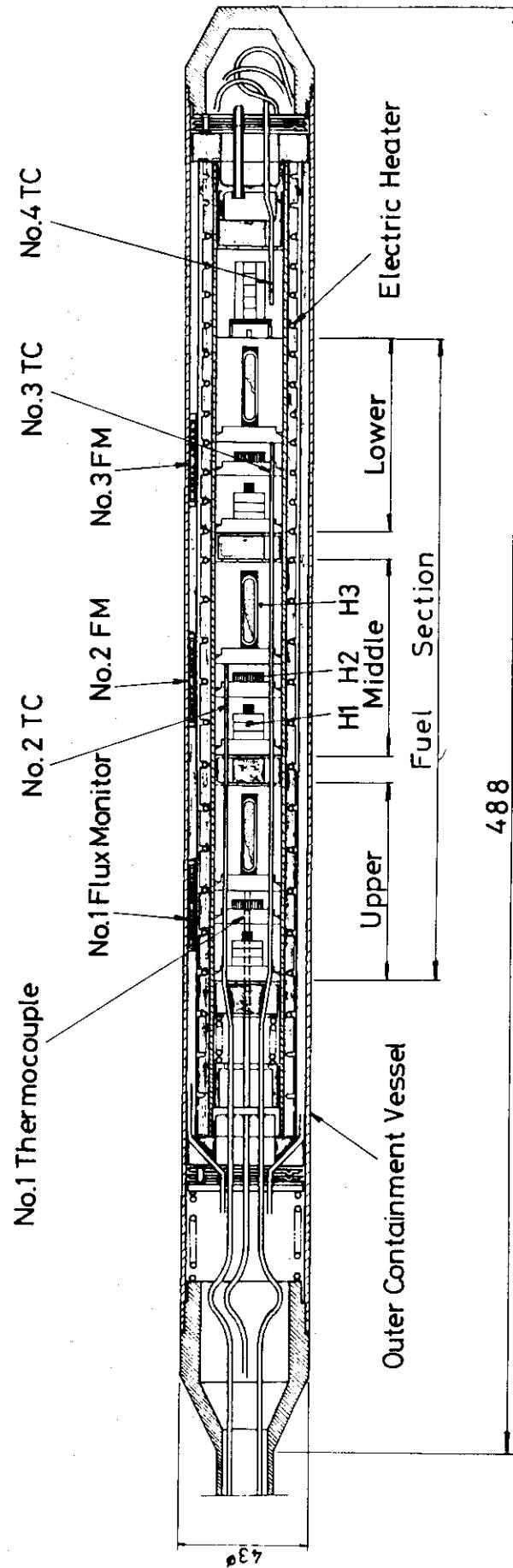


Fig. 3 : Schematic drawing of VOF-18H capsule

488

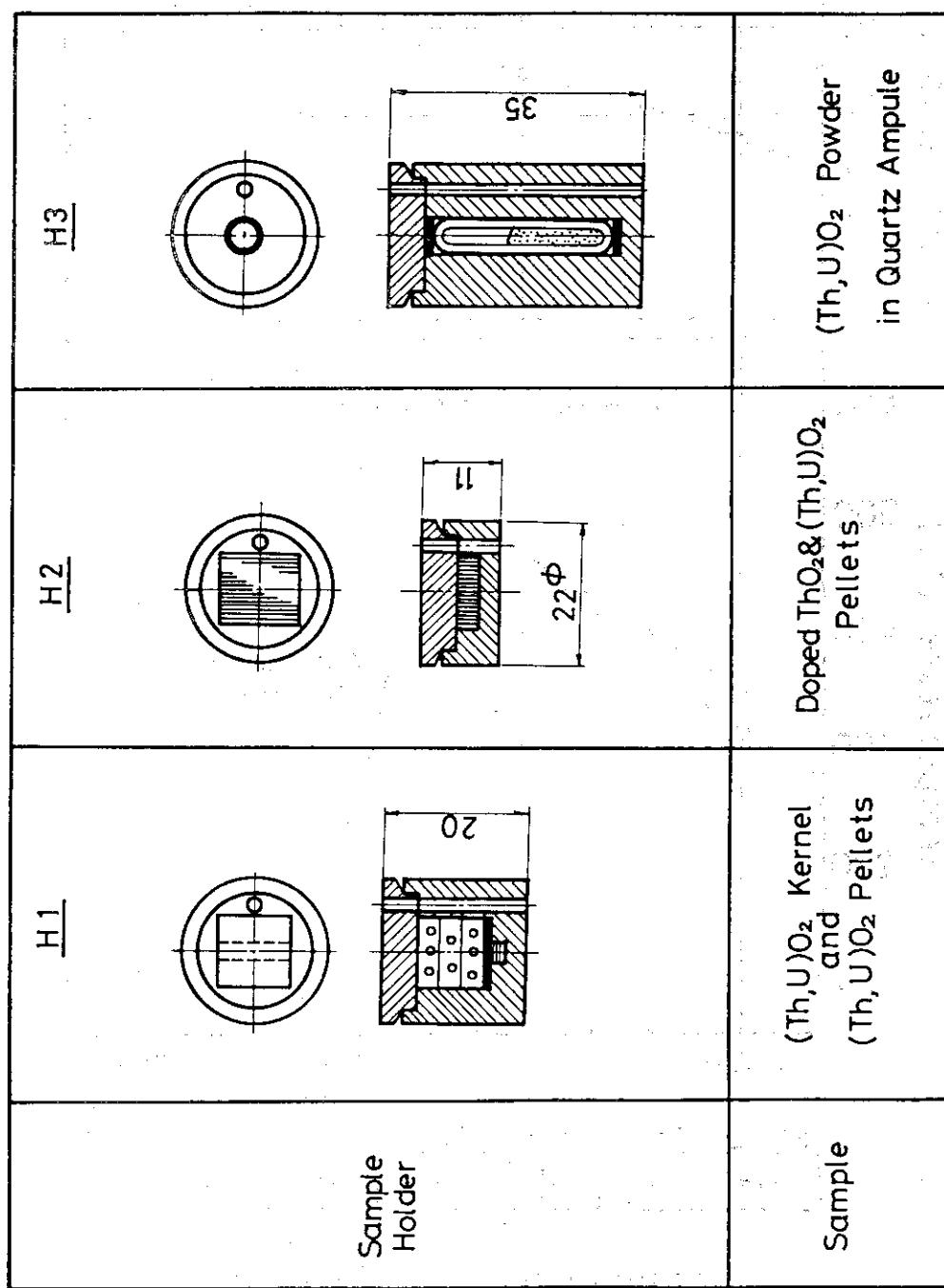


Fig. 4 : Configuration of the samples in the holders

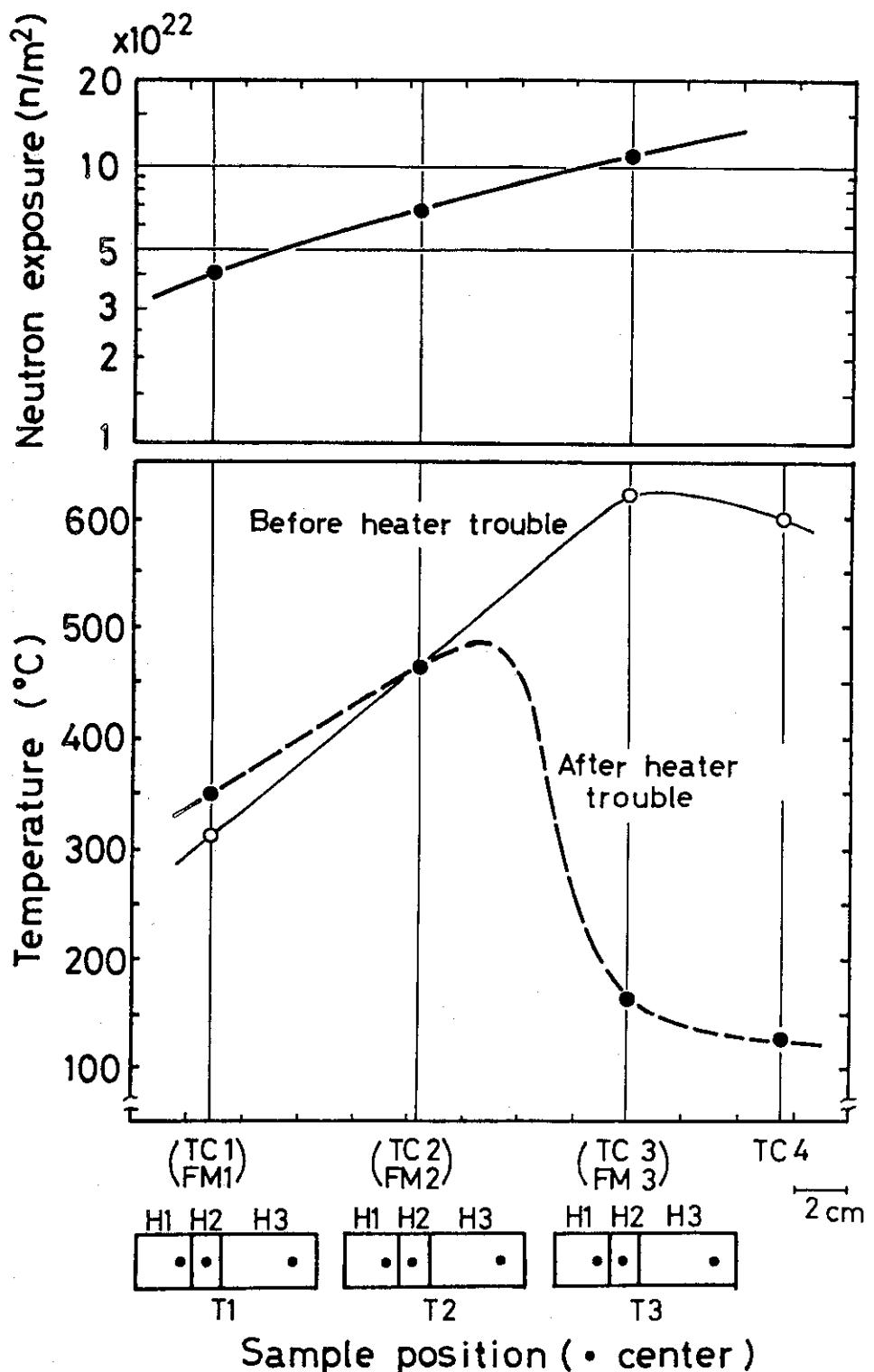


Fig. 5 : Distributions of thermal neutron exposure and temperature in VOF-18H capsule

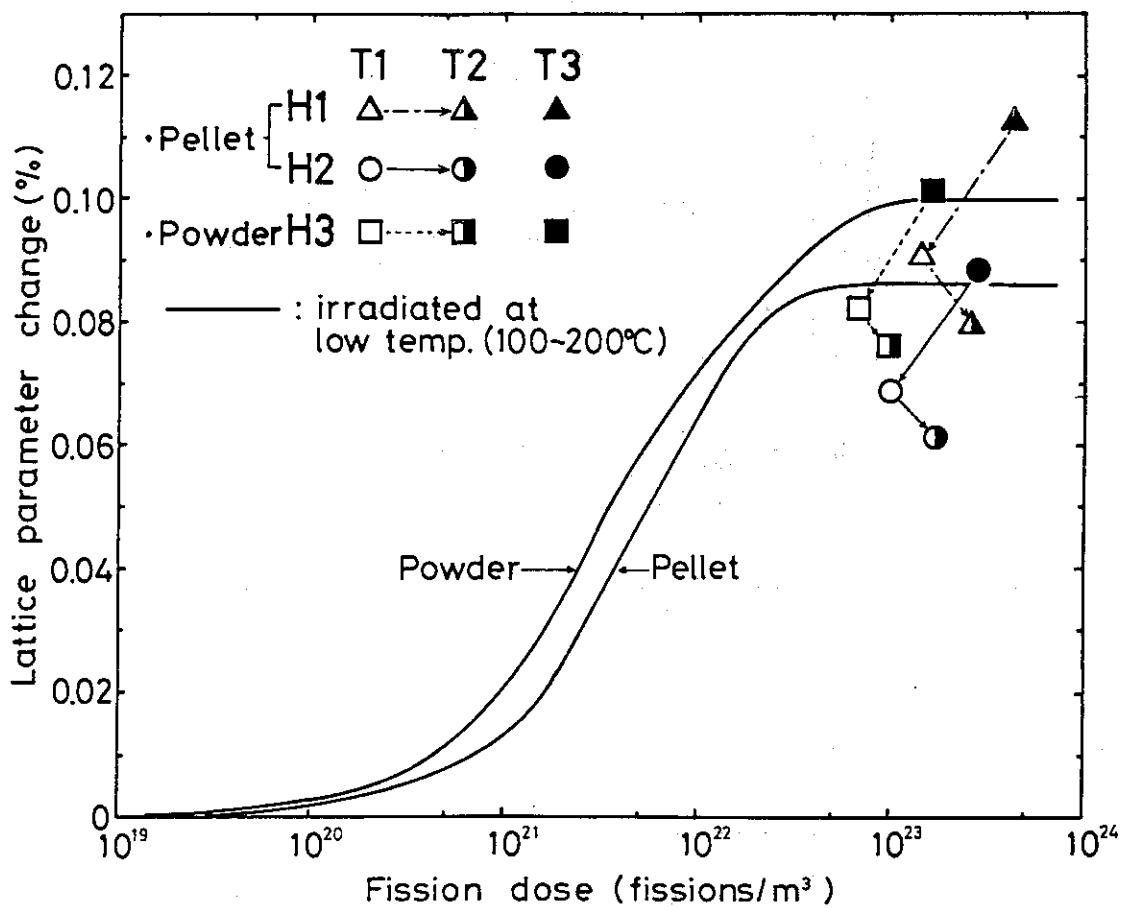


Fig. 6 : Fractional lattice parameter changes in $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ powders and pellets irradiated at high temperature

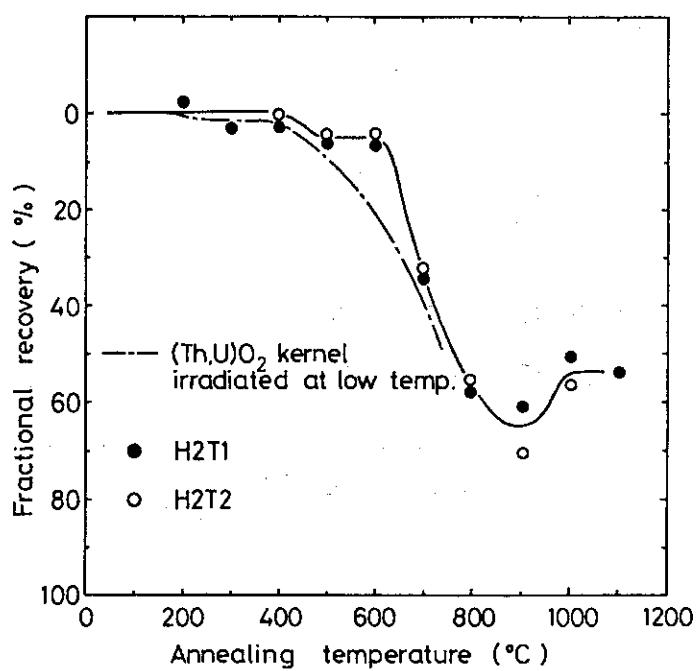


Fig. 7 : Recovery behavior of $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ pellets irradiated at high temperature

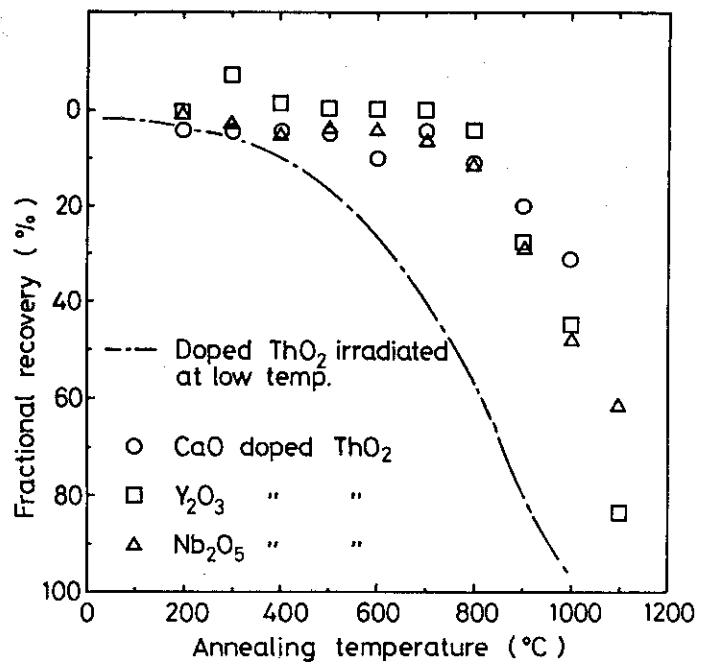


Fig. 8 : Recovery behavior of doped ThO_2 pellets irradiated at high temperature