

JAERI-Research

JP0050836

2000-045



Mg, Mg-NbおよびTi添加UO₂の
高燃焼度照射挙動

2000年9月

白鳥 徹雄・芹澤 弘幸・福田 幸朔
藤野 威男*・佐藤 修彰*・山田 耕太*

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

本レポートは、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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 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。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

Mg, Mg-Nb および Ti 添加 UO_2 の高燃焼度照射挙動

日本原子力研究所東海研究所エネルギー・システム研究部

白鳥 徹雄 · 芹澤 弘幸 · 福田 幸朔

藤野 威男 · 佐藤 修彰 · 山田 耕太 *

(2000年 9月7日 受理)

軽水炉燃料の高燃焼度におけるスエリングや FPガス放出の増加等を抑制する目的で、添加物入り UO_2 燃料を試作し、その照射挙動を調べた。添加物として、2.5から15 mol% Mg、5mol %Mg-5mol%Nb および 3.5mol%Ti を添加した UO_2 小ペレット試料を比較観察用の無添加 UO_2 小ペレット試料と共に、JRR-3Mにおいて 1000°C 以下の温度と最高94GWd/t(U)までの燃焼度の条件でキャップセル照射した。

照射後試験として試料の外観観察、形状・密度変化測定、熱拡散率測定、光学顕微鏡および EPMAによる観察と分析を行った。その結果、通常の無添加 UO_2 に対して添加物入り UO_2 の顕著な影響は見られなかったが、スエリング率、熱伝導率、組織変化等に関する高燃焼度特性の貴重なデータを得た。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

* 東北大学素材工学研究所

High Burnup Performance of Mg, Mg-Nb and Ti Doped UO_2 Fuels

Tetsuo SHIRATORI, Hiroyuki SERIZAWA, Kousaku FUKUDA
Takeo FUJINO*, Nobuaki SATO* and Kohta YAMADA*

Department of Nuclear Energy System
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gunn, Ibaraki-ken

(Received September 7, 2000)

In order to control irradiation performance of fuel swelling and FP gas release etc. at high burnups of light water reactor fuels, doped UO_2 pellet fuels were prepared and their irradiation behavior was examined. The UO_2 pellets doped 2.5 to 15mol%Mg, 5mol%Mg - 5mol%Nb, and 3.5mol%Ti and undoped UO_2 pellets as a reference fuel were loaded together in a capsule and irradiated to the maximum burnups of 94GWd/t(U) below temperature of 1000°C in the JRR-3M reactor of JAERI.

As results of post-irradiation examinations such as visual inspection, dimensional and density change measurements, thermal diffusivity and ceramography with optical microscope and EPMA, no difference was observed between the doped and the reference UO_2 fuels. And valuable results were obtained on high burnup properties for swelling rates, thermal conductivities, structure changes and so on.

Keywords : UO_2 , Doped UO_2 , Magnecium, Niobium, Titanium, High Burnup Fuel,
Irradiation Behavior, Swelling, Thermal Conductivity, Rim Structure,
FP Release

* Institute for Advanced Materials Processing, Tohoku University

目 次

1. 序 論	1
2. 照射試験	3
2.1 試料の調製	3
2.2 試料の特性	4
2.3 照射キャップセル	5
2.4 照射条件	6
2.4.1 中性子照射量	6
2.4.2 照射温度	6
3. 照射後試験	22
3.1 燃焼度	22
3.2 外観観察	23
3.3 スエリング	25
3.4 熱伝導率	27
3.4.1 熱拡散率の測定	27
3.4.2 熱伝導率の検討	28
3.5 組織変化	29
3.6 F P放出挙動	33
4. 結 論	70
謝 辞	72
参考文献	73

Contents

1. Introduction	1
2. Irradiation Experiment	3
2.1 Preparation of Specimens	3
2.2 Characteristics of Specimens	4
2.3 Irradiation Capsule	5
2.4 Irradiation Conditions	6
2.4.1 Neutron Exposure	6
2.4.2 Irradiation Temperature	6
3. Post-irradiation Examinations	22
3.1 Burnups	22
3.2 Aspects of Visual Inspection	23
3.3 Swelling	25
3.4 Thermal Conductivity	27
3.4.1 Thermal Diffusivity Measurements	27
3.4.2 Examination of Thermal Conductivity	28
3.5 Structure Changes	29
3.6 Fission Product Behaviour	33
4. Conclusions	70
Acknowledgements	72
References	73

1. 序 論

軽水炉の通常の UO_2 燃料は、燃焼度が進むにしたがってスエリング率やFPガス放出率が増加し、かつ、 UO_2 の O/M 比が増加して被覆管内の酸素ポテンシャルを高め、被覆管の内面酸化を促進するなど、高燃焼度において燃料の健全性に影響を受ける。これらの課題に対処した高燃焼度用燃料の一つに、添加物入りの UO_2 燃料が考えられる。

UO_2 に種々な金属酸化物を添加する方法は、それぞれの目的をもってこれまでに多く行われてきた。FPガス放出低減化に関しては、J.A.Turnbull⁽¹⁾が、 UO_2 ペレットの結晶粒径を大きくすることによってFPガスの粒内拡散距離を長くしてガス放出を抑制し、かつ、粒界スエリングも減少することを、燃焼度0.4%FIMA-1750°Cの照射試験で明らかにした。この試料は、無添加の UO_2 を高温・長時間で熱処理することによって得た大粒径の UO_2 ペレットであったが、同じ目的のために TiO_2 , Nb_2O_5 や MgO などの添加が、容易に UO_2 の結晶粒成長を促進させることができる。J.B.Ainscoughら⁽²⁾は、1650°Cの H_2 霧囲気で 0.07~0.13wt % の TiO_2 が UO_2 中に固溶し、同じ焼結条件の無添加 UO_2 の結晶粒径 5μm に対して約 30μm に成長したと報告している。また、G.ArtherとD.Scott⁽³⁾は 0~2.0 wt % TiO_2 添加の UO_2 を 1645°C 以上の H_2 霧囲気で焼結した結果、結晶粒成長に極めて効果的であることを示した。丸谷、高橋ら^(4,5)は、微量の Al_2O_3 、 MgO 、 ZrO_2 、 TiO_2 、 CaO などを添加した UO_2 を霧囲気を変えて焼結し、密度、気孔率、結晶粒径、組織などを調べて、それぞれの生成反応機構と添加物の影響を考察し、結晶粒の成長や焼結性がよく、高密度の焼結体ができる条件を明らかにした。また、P.T.Sawbridge, C.Bakerら⁽⁶⁾は、5mol% MgO を添加した大粒径の UO_2 と無添加の通常の UO_2 を共に 28.5 GWd/t まで照射した。その結果、Mg 添加 UO_2 の FPガス放出は通常の無添加 UO_2 の 40% 以下であった。そして、照射後の試料の結晶粒内に約 0.2μm の核分裂によるガスバブルを観察し、析出している微細な MgO との相互作用による FPガスの拡散の減少を推察している。

一方、中性子吸収断面積が小さく、かつ、低原子価金属の Mg やさらに Nb 等を添加した UO_2 の固溶体が、O/M(M=U+添加金属)比を亜化学量論組成側にシフトさせ、高燃焼度における酸素ポテンシャルの上昇を抑制する効果が期待できることを藤野、佐藤ら⁽⁷⁻⁹⁾は明らかにした。

本研究では、これらの添加物入り UO_2 燃料の実際の効果を調べるために、2.5から 15 mol% Mg 、5 mol % Mg -5 mol % Nb および 3.5 mol % Ti を添加した UO_2 小ペレット試料と比較観察用の無添加 UO_2 小ペレット試料を試作し、ともに高燃焼度での照射試験

を行った。このうち、Mg および Mg-Nb の添加の重要な目的は、一つに、 UO_2 と添加物との固溶体形成による酸素ポテンシャルの上昇抑制であり、これは未照射の試料による研究⁽⁷⁻⁹⁾ でその効果が明らかにされたが、今回の照射試験では、まず、添加物入り UO_2 の基本的な高燃焼度照射挙動の究明という観点から、添加物は、ある程度 UO_2 と固溶体を形成しているが、大部分は UO_2 の結晶粒内あるいは粒界に析出している試料を用いた。従って、照射前・後の試料の酸素ポテンシャルの測定は行っていない。もう一つの目的は、Mg および Mg-Nb による UO_2 の結晶粒大粒径化である。Ti もまた、大粒径の UO_2 試料を調製するために添加した。

これらの試料を JRR-3M において 1000°C 以下の異なった照射温度と最高 94 GWd/t(U) までの高燃焼度の条件で、計装キャップセルによる照射を行なった。照射後の試料は、ホットラボにおいて外観観察、形状・密度変化測定、熱拡散率測定、光学顕微鏡および SEM・EPMA による観察と分析を行い、無添加 UO_2 と比較しながら添加物入り UO_2 試料の健全性、スエリング率、熱伝導率、組織変化と FP 放出挙動などに対する影響を考察した。

2. 照射試験

2.1 試料の調製

照射試験のために、濃縮度、添加物、添加量の異なる16種類の小ペレット形状の試料を調製した。すなわち、比較観察用としてウラン濃縮度が異なる 6、10および 20 wt% の 3 種類の無添加 UO_2 試料、及び同じ 3 種類の濃縮度の UO_2 にそれぞれ 2.5、5 (又は 10)、15 mol% の Mg と 5 mol% Mg-5 mol% Nb の 5 種類の添加物を入れた試料、それにウラン濃縮度 20 wt% の UO_2 に 3.5 wt% Ti を添加した 1 種類の試料からなっている。照射試料の組成の一覧表を Table 2.1 にまとめて示す。これらのうち、高濃縮度の試料は、一定期間の照射で高燃焼度を得ることを目的としている。

試料の調製は粉末冶金法を用いた。組成別的小ペレットの調製工程を Fig. 2.1 に示す。焼結性を良くするために、 UO_2 粉末は、濃縮度別にあらかじめ 14 h 以上のボールミリングを行った。ボールミリング後の粉末のかさ密度は、いずれも 3.0 g/cm^3 程度である。

Mg 添加 UO_2 試料は、添加物として酸化物(MgO)粉末を使用し、 $\text{UO}_2 - \text{MgO} - \text{O}_2$ 系の固溶体を調製する方法^(10, 11)にしたがって、はじめに $\text{UO}_2 : \text{MgO} = 1:1$ および 3:1 の割合(モル比)で、それぞれめのう乳鉢で入念に粉碎・混合させた粉末を電気炉で 850°C - 24 h (空气中)の条件で反応させて、 MgUO_4 と $\text{MgU}_3\text{O}_{10}$ を調製した。この 2 種類のマグネシウムウラネートを所定の割合で再度混合し、2.5~15 mol% Mg 添加 UO_2 組成の原料とした。

Mg-Nb 添加 UO_2 試料用の原料は、 $\text{UO}_2 + \text{MgUO}_4 + \text{Nb}_2\text{O}_5$ のそれぞれの粉末を、U: Mg : Nb が所定のモル比になるように秤量し、めのう乳鉢で粉碎・混合させた。

Ti 添加 UO_2 試料用の粉末は、高純度の Ti 金属の粉末(純度: 99.99%、粒度: 100 メッシュ以下)をめのう乳鉢であらかじめ粉碎しておき、それと UO_2 粉末を再び、めのう乳鉢で粉碎・混合させた。

いずれのペレット調製用粉末にもペレット成形のための粘結剤や潤滑剤は添加していないが、成形ダイスの壁面にのみ潤滑剤としてエタノールで溶かしたステアリン酸を塗布した。

グリーンペレットは、それぞれの組成に調製した粉末を直径 3 mm 用の成形ダイスに充填し、プレス機にかけて 1 個ずつ加圧成形した。グリーンペレットの厚さは、約 1 mm に調整した。ペレット成形圧は、材質、材料の粉末特性(粒度、比表面積等)、組成などによって異なり、高密度の焼結体になるような適切な成形密度をもち、かつ、

割れのないグリーンペレットの調製を目標としたために、一定の圧力での成形となつていなが、大体 0.3 トン以下($4.3\text{ton}/\text{cm}^2$)で行っている。グリーンペレット 1 個当たりの重量は、どれもおよそ 40 ~ 50mg であり、寸法と重量から求めたその密度は、無添加 UO_2 で約 $6.0\text{g}/\text{cm}^3$ (55 %TD)、5 ~ 15% Mg 添加 UO_2 で $5.8 \sim 6.0\text{g}/\text{cm}^3$ 、Ti 添加 UO_2 で約 $6.9\text{g}/\text{cm}^3$ であった。グリーンペレットは、モリブデン製るつぼに入れて電気炉(タンクステン・メッシュヒーター型)で焼結した。焼結温度は試料により異なり、無添加 UO_2 試料と Mg 添加 UO_2 試料が 1710°C - 5h(昇・降温速度 $170^\circ\text{C}/\text{h}$)、Mg-Nb 添加 UO_2 試料が 1500°C - 0.5h(昇・降温速度 $140^\circ\text{C}/\text{h}$)、また、Ti 添加 UO_2 試料が 1550°C - 10h と 20h(昇・降温速度 $170^\circ\text{C}/\text{h}$)で、雰囲気はすべて He - 4% H_2 気流中である。Mg-Nb 添加 UO_2 と Ti 添加 UO_2 は、焼結温度を 1700°C まで上げると、ペレットが部分的に溶融・変形した。そのために最終的に照射用のペレットは、それよりも低い 1500°C 程度の焼結温度とした。焼結後の試料の寸法は、直径 $2.5 \sim 2.6\text{mm} \times$ 厚さ約 1mm で、焼結によるグリーンペレットの収縮率は、いずれも約 15 % である。

2.2 試料の特性

焼結した試料の照射前の特性を調べた。Fig. 2.2 に添加物入り UO_2 試料の外観を示す。いずれも緻密な焼結体となっており、低倍率の顕微鏡で観察すると表面に結晶粒界が見える。特に、Ti 添加 UO_2 試料は、成長した結晶粒の様子が外観写真からも観察される。

研磨断面をエッチングして観察した写真を Fig. 2.3 に示す。エッチングはいずれの試料も、 $\text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{SO}_4 = 8 : 1$ (体積比) のエッチング液を用い、室温で 15 ~ 30 秒の条件で行った。 UO_2 の結晶粒成長に対する添加物の効果が顕著で、かつ、Mg に Nb を添加すると UO_2 の結晶粒が丸みをおびること、Ti 添加 UO_2 の結晶粒径が極端に大きく成長することなどが大きな特徴である。これらを、SEM(Scanning Electron Microscope) および EPMA(Electron Probe Microanalysis) で観察すると Fig. 2.4 (a) に示した 5% Mg 添加 UO_2 試料の EPMA 成分分析のように、Mg が UO_2 とある程度 固溶体を形成しているが、(b) の SEM 写真のように、多くは UO_2 マトリックス中に $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下の MgO 微粒子として分散・析出している。2.5% Mg 添加 UO_2 の観察の結果でも同じ状態で MgO の析出が見られることから、この焼結条件での UO_2 への Mg の固溶度は、2.5% 以下の低い濃度であると推察される。Mg-Nb 添加 UO_2 の EPMA による成分分析の結果は、Fig. 2.5 に見られるように MgO が単独に UO_2 マトリックス中に析出することなく、Nb と共に UO_2 の結晶粒界に析出している。Fig. 2.6 の Ti 添加 UO_2 の EPMA 成分分析と SEM 観察では、

UO_2 の結晶粒がやはり丸みをおびて大きく成長すると共に、チタン酸化物が結晶粒界で共融液相(U-Ti-O系の $\text{UO}_2\text{-Ti}_2\text{O}_3/\text{Ti}_3\text{O}_5$)を形成しているものと推察される⁽²⁻⁴⁾。Fig. 2.2のTi添加 UO_2 試料の外観写真からも、この液相が結晶粒界や自由表面に析出して、いわゆる、液相結晶による緻密化⁽¹²⁾を起こしている様子が観察された。

断面観察写真から各試料の結晶粒径を切片(インターフェト)法で測定した結果をTable 2.2にまとめた。U濃縮度が10 wt%と20 wt%の UO_2 の場合で、平均結晶粒径が異なるのは、焼結条件が同じであるから、用いた粉末の特性の違いによるものと考えられる。無添加 UO_2 結晶粒径は20 - 30 μm で、これは標準的なBWRの UO_2 ペレットの結晶粒径(10 - 15 μm)よりも大きい。 Mg 添加 UO_2 試料は、 Mg の添加量が増すと共に結晶粒径も増大し、15% Mg 添加 UO_2 試料は50 - 70 μm の範囲にあって、無添加 UO_2 試料の約2.5倍の大きさである。また、Ti添加 UO_2 試料は、約150 μm の大粒径になった。 Mg-Nb 添加 UO_2 試料は、無添加 UO_2 試料と同じ程度の26 μm であるが、これは比較的低い温度で、かつ、短時間の焼結条件であったためである。表中のカッコ内の値は、無添加 UO_2 と同じ焼結条件の場合の結晶粒径で、これは、無添加 UO_2 試料よりもかなり大きくなり(68 - 71 μm)、15% Mg 添加 UO_2 試料と同等の値になっている。このことから Mg-Nb も結晶粒径を成長させる添加物として顕著な効果があることがわかる。

浮力による重量差を利用した液中秤量法(置換液：ジヨードメタン= CH_2I_2 (比重 d^{20} =3.3212)を使用)によって測定した試料の密度のうち、無添加 UO_2 と Mg 添加 UO_2 の主な結果をTable 2.3の示す。無添加 UO_2 試料の密度は、10.32 - 10.54 g/cm^3 の範囲にあり、これは94.2 - 96.2%TDに相当する。また、2.5 - 15% Mg 添加 UO_2 の密度は10.52 - 10.19 g/cm^3 の範囲にあり、 Mg 添加量の増加と共に密度は小さくなっている。

その他の添加物入り UO_2 試料については、照射後にその多くが破損するなどして密度測定を行っておらず、照射前・後の変化を検討評価できなかったので省略する。

2.3 照射キャップセル

試料の照射は、JRR-3M(Japan Research Reactor - 3M)用の BRF-13H 照射キャップセルを用いた。照射キャップセルの概略図をFig. 2.7に、燃料ピンの外観写真をFig. 2.8に示す。種々な組成の小ペレット試料は、一個づつモリブデン製の蓋付き試料容器にサンドイッチ状にして入れ、A~Iまでの9本の燃料ピン(直径 8mm×長さ109mm)に密封装荷された。1本当りの試料充填数は17個で、合計153個の試料を照射した。燃料ピン内には1気圧のHe-5%Arガスが充填されている。燃料ピンはモリブデン製のブ

ロック中に上段・中段・下段にわけて3本づつ配置されている。モリブデン製のブロックは、照射中の γ 発熱体として長期にわたり変化が少ない照射温度を確保することと、試料の外側からの一定の発熱源として試料自体の温度勾配を少なくする目的がある。上段と中段は低温照射領域用で、下段は高温照射領域用に設計されている。照射中の試料の温度は、燃料ピンの外表面に計装された5本の熱電対によって連続的に計測された。照射試料の目標の温度制御は、ブロックの外側を流れる He+N₂ガスの混合比を変えることによって行った。照射用キャップセル全体は、ブロックを気密性のキャップセル外筒に収納した構成になっている。なお、キャップセル内には高速および熱中性子照射量を計測するためのフルエンス・モニターが、上段・中段・下段の3ヶ所にそれぞれ2組づつ、合計6個装荷されている。フルエンス・モニターは熱中性子用の⁵⁹Co ワイヤー[(n, γ)反応→⁶⁰Co]と高速中性子用の⁵⁴Fe ワイヤー[(n,p)反応→⁵⁴Mn]を1組にして、石英管に密封されている。フルエンス・モニターは、照射後に回収して放射化分析測定を行い、試料の熱・高速中性子照射量を決定した。

2.4 照射条件

2.4.1 中性子照射量

BRF-13HキャップセルをJRR-3MのBR-4照射孔に装荷し、約1年5ヶ月にわたる11サイクルの運転で、延べ約257日間(6164.3h)の照射を行った。

照射後のフルエンス・モニターの測定結果から得た各位置における熱・高速中性子照射量をTable 2.4にまとめた。表中に中性子照射量と対比させて、濃縮度ごとの試料の燃焼度を記したが、試料の一個ずつの詳細な燃焼度は、次章の照射後試験で述べる。熱・高速中性子照射量の最も高いものは中段の燃料ピンで、最高の熱中性子と高速中性子照射量がそれぞれ $1.7 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ 、 $8.8 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ である。最も低い試料は下段の燃料ピンの下部で、同様に熱中性子照射量が $0.7 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$ 、高速中性子照射量が $0.6 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ である。なお、キャップセルの核設計の結果から、フルエンス・モニターの中性子照射量とディスク試料本体のそれとに、ほとんど差がないものと推察した。

2.4.2 照射温度

照射中の温度は、連続して計測した。全照射サイクルの熱電対の指示値による温度変化をFig. 2.9に示す。JRR-3Mにおける照射温度は、運転サイクルが進むとともに下降して行き、3~4運転サイクル以降はほぼ安定した。また、各運転サイクルでは、基本的に初めが高く、そのサイクルが進むにしたがって、少しずつ下降するのが通

常であるが、熱電対のTC-1とTC-3のみ、照射中の温度が少しづつ上昇するような逆の傾向を示した。これは、JRR-3Mの運転中の制御棒の位置の変化に伴う炉出力分布の変化に起因するものである。高温照射領域のキャップセル下段の燃料ピン(TC-9とTC-10)は、照射が進むにつれて、温度が降下する傾向が強かった。一方、上段・中段の燃料ピンは、照射初期から比較的温度降下は小さく、安定して全サイクルの照射を終了した。

照射試料本体の温度は、照射キャップセルの熱設計計算から燃料ピンの表面に計装した熱電対の指示値より約100°C高いものと推定した。その結果、低温照射領域の試料は照射初期が700-600°Cで、その後は650°C以下で照射された。また、高温照射領域の試料は照射初期が1000-900°Cで、その後は930°C以下で照射された。これらの計測温度から内挿・外挿した温度分布をもとにして、個々の試料の照射温度を推測した。その照射温度のデータを次章の試料の燃焼度と共にTable 2.5に記す。照射温度の範囲のデータが高い方から低い方に記してあるのは、照射中の温度変化の経緯を表わしている。

Table 2.1 Composition of the doped UO_2 specimens for the irradiation test.

Composition	U Enrichment (%)	Aditives (mol %)
UO_2	6, 10, 20	—
$(\text{U}, \text{Mg})\text{O}_2$	6, 10, 20	Mg : 2.5, 5 or 10, 15
$(\text{U}, \text{Mg}, \text{Nb})\text{O}_2$	6, 10, 20	Mb : 5 + Nb : 5
$(\text{U}, \text{Ti})\text{O}_2$	20	3.5

Table 2.2 Grain sizes of the doped UO_2 specimens.

Composition of Specimen	Average Grain Size (μm)	
	10% enriched U	20% enriched U
Undoped UO_2 ¹⁾	30	20
2.5% Mg doped UO_2 ¹⁾	47	28
5% Mg doped UO_2 ¹⁾	50	31
15% Mg doped UO_2 ¹⁾	71	50
5% Mg+5% Nb doped UO_2 ²⁾	26 (71 ¹⁾)	26 (68 ¹⁾)
3.5% Ti doped UO_2 ³⁾	—	~ 150

Sintering conditions : 1) 1710°C -5h in He-4%H₂.2) 1500°C -0.5h in He-4%H₂.3) 1550°C -10 or 20h in He-4%H₂.

Table 2.3 Densities of the Mg doped UO₂ specimens.

Composition	Density (g/cm ³)		
	6% enriched U	10% enriched U	20% enriched U
Undoped UO ₂	10.54 (96.2%TD)	10.51 (95.9%TD)	10.32 (94.2%TD)
2.5% Mg - UO ₂	—	10.52	10.38
5% Mg - UO ₂	—	10.49	—
10% Mg - UO ₂	10.34	—	—
15% Mg - UO ₂	10.38	10.19	—

Table 2.4 Neutron exposures and burnups of the specimens in BRF-13H capsule.

Location in Capsule	Specimen	Max. Neutron Exposure (n/cm ²)		Burnup(GWd/t)
		Thermal (x10 ²¹)	Fast (x10 ²⁰)	
Upper Section	20% enriched U	1.5	7.2	84 ~ 87
	10% enriched U	1.6	7.7	60 ~ 62
	6% enriched U	1.7	8.1	32 ~ 34
Middle Section	20% enriched U	1.7	8.8	85 ~ 94
	10% enriched U	1.7	8.8	51 ~ 55
	6% enriched U	1.6	8.5	34 ~ 35
Lower Section	20% enriched U	1.2	7.5	60 ~ 66
	10% enriched U	1.1	7.3	32 ~ 34
	6% enriched U	1.0	6.9	19 ~ 21

Table 2.5 Burnups and irradiation temperatures of the doped UO_2 specimens (1).

↓ (Specimens)		Upper Section in Capsule								
No.	Fuel Pin A			Fuel Pin B			Fuel Pin C			Irradiation Temp. (°C)
	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	
17	20	3.5%Ti	84	20	3.5%Ti	84	20	3.5%Ti	84	640 - 570
16			84			84			84	
15			84			84			84	
14		5%Mg-5%Nb	84		15%Mg	.84			84	
13			84			85			85	
12		2.5%Mg	84		Undoped	85		5%Mg-5%Nb	85	
11			87			85			85	
10			87			85			Undoped	
9		Undoped	87			86			85	
8			87	10	5%Mg-5%Nb	62			85	
7			61			61			87	
6		15%Mg	61		2.5%Mg	61			87	
5			60			60	10	5%Mg	60	
4		Undoped	60			33			60	
3	6		31		15%Mg	34		5%Mg-5%Nb	34	
2	Undoped	34	34			10%Mg				
1		34	34			34				

Table 2.5 (Continued) Burnups and irradiation temperatures of the doped UO_2 specimens (2).

↓ (Specimens)		Middle Section in Capsule								
No.	Fuel Pin D			Fuel Pin E			Fuel Pin F			Irradiation Temp. (°C)
	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	Enrich. U (wt %)	Composition Additive UO_2	Burnup (GWd/t)	
17	20	3.5%Ti	92	20	3.5%Ti	92	20	3.5%Ti	91	650 - 580
16			92			92			91	
15			92			92			91	
14		5%Mg-5%Nb	92		5%Mg-5%Nb	92			91	
13		2.5%Mg	91		5%Mg	91		15%Mg	91	650 - 600
12			91			91			91	
11		Undoped	92		Undoped	92			91	
10			92			87			90	
9			92			94			87	
8			90			91			88	
7	10	5%Mg-5%Nb	54	10	15%Mg	54			85	600 - 560
6		15%Mg	54		2.5%Mg	53		10	5%Mg-5%Nb	
5		Undoped	52			53			54	
4			51		15%Mg	35			53	
3	6	5%Mg-5%Nb	35			35	6	5%Mg-5%Nb	35	
2		Undoped	35		2.5%Mg	34		10%Mg	34	
1			34			34			34	

Table 2.5(Continued) Burnups and irradiation temperatures of the doped UO_2 specimens(3).

↓ (Specimens)		Lower Section in Capsule								
No.	Fuel Pin G			Fuel Pin H			Fuel Pin I			Irradiation Temp. (°C)
	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	Enrich. U (wt %)	Composition Additive - UO_2	Burnup (GWd/t)	
17	20	3.5%Ti	66	20	3.5%Ti	66	20	3.5%Ti	66	930 - 820
16			66			66			66	
15			66			66			65	
14		5%Mg-5%Nb	66			66			65	
13		2.5%Mg	65		5%Mg	65			65	
12			64			64			64	
11		Undoped	63		Undoped	64		15%Mg	64	
10			63			63			63	
9			62			62			62	
8			61			61			61	
7	10	5%Mg-5%Nb	34			61			61	900 - 800
6		15%Mg	34	10	2.5%Mg	34			60	
5			34			34		5%Mg	33	
4		Undoped	33		15%Mg	21			32	
3			32			21		5%Mg-5%Nb	21	
2	6	Undoped	20		2.5%Mg	20			20	
1			19			19			19	

Powder Preparation :

- UO_2 Powder → Ball Milling(>14h) → Milled UO_2 Powder (Tap Density: 3.0g/cm³)
 - UO_2 Powder + MgO Powder → Milling and Mixing → Heat Treatment → MgUO_4 Powder
(Molar ratio 1:1) (850°C-24h in Air)
 - UO_2 Powder + MgO Powder → Milling and Mixing → Heat Treatment → $\text{MgU}_3\text{O}_{10}$ Powder
(Molar ratio 3:1) (850°C-24h in Air)
 - Ti (metal) Powder (<100 mesh) → Milling → Milled Ti Powder

UO, Pellet Fabrication :

(U,Mg)O_x Pellet Fabrication :

```

    graph LR
      A[Milled UO2 Powder] --> B[MgUO4 Powder]
      A --> C[MgU3O10 Powder]
      B --- D[Milling and Mixing]
      C --- D
      D --> E[Pressing]
      E --> F[Sintering  
1710°C-5h in He-4%H2  
<0.3 tons]
      F --> G[Sintered Pellet]
  
```

The diagram illustrates the synthesis route for UO₂-1-xMg_xO pellets. It begins with three starting materials: Milled UO₂ Powder, MgUO₄ Powder, and MgU₃O₁₀ Powder. These are combined through a process of Milling and Mixing, followed by Pressing at less than 0.3 tons, and finally Sintering at 1710°C for 5 hours in a helium atmosphere containing 4% hydrogen. The final product is a Sintered Pellet.

(U,Mg,Nb)O₂ Pellet Fabrication :

```

    graph LR
      A[Milled UO2 Powder] --> B[MgUO4 Powder]
      A --> C[Nb2O5 Powder]
      B --> D[Milling and Mixing]
      C --> D
      D --> E[Pressing]
      E --> F[Sintering(1500°C-0.5h in He-4%H2)]
      F --> G[Sintered Pellet]
  
```

The diagram illustrates the synthesis route for a sintered pellet. It begins with three starting materials: Milled UO_2 Powder, MgUO_4 Powder, and Nb_2O_5 Powder. The UO_2 and MgUO_4 powders are combined in a 1:1 molar ratio via Milling and Mixing. This mixture is then pressed into a pellet at a pressure of less than 0.3 tons. Finally, the pellet is sintered at 1500°C for 0.5 hours in a helium atmosphere containing 4% hydrogen, resulting in a sintered pellet.

(U,Ti)O_x Pellet Fabrication :

```

graph LR
    A[Milled UO2 Powder] --> B[Milling and Mixing]
    B --> C[Pressing]
    C --> D[Sintering  
1550°C > 10h in He-4% H2]
    E[Milled Ti Powder] --> B
    F[<0.3 tons] --> D
    D --> G[Sintered Pellet]
    
```

Fig. 2.1 Fabrication process of the doped UO_2 pellets for the irradiation test.

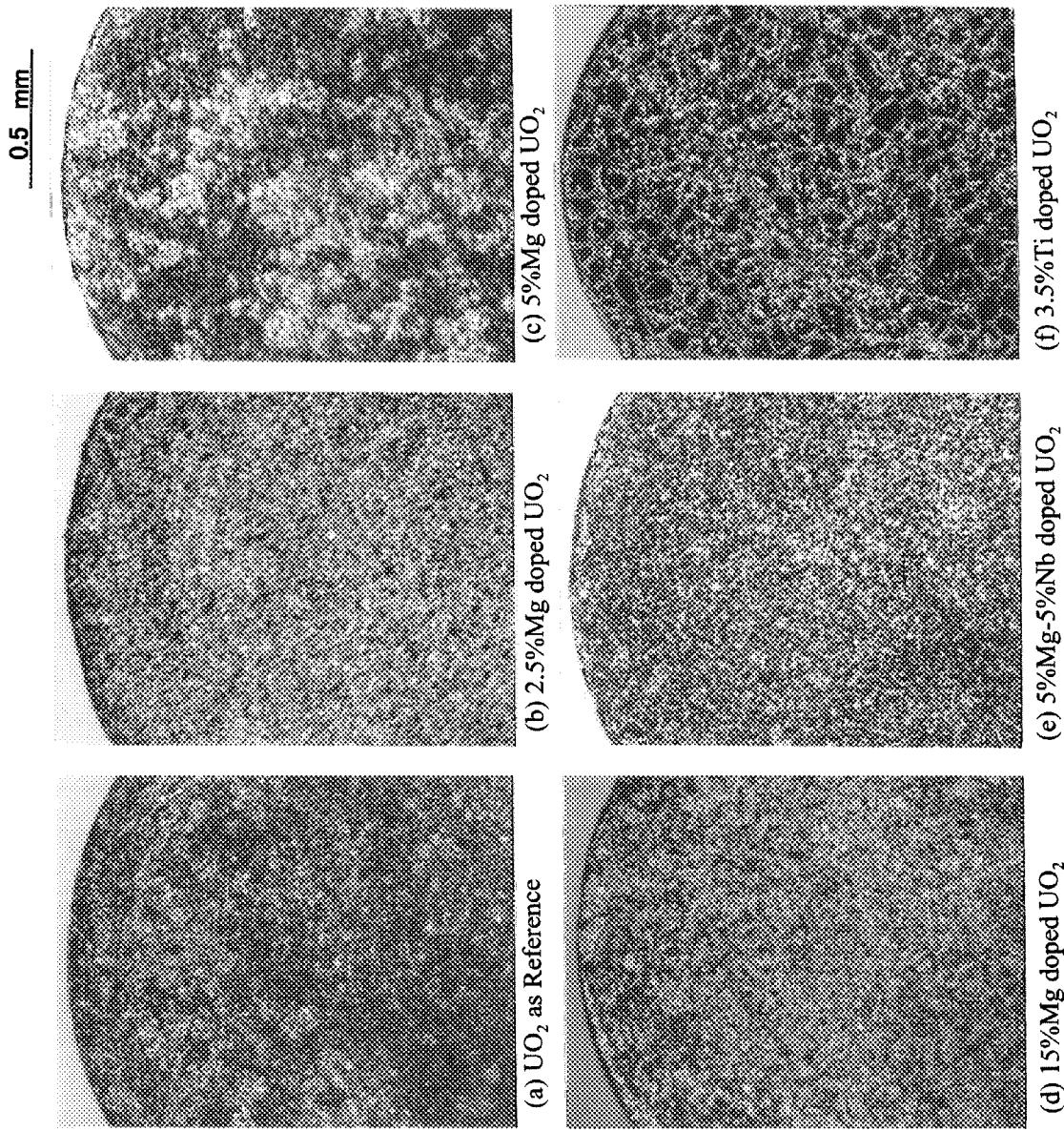


Fig. 2.2 Typical aspects of the doped UO_2 specimens (unirradiated).

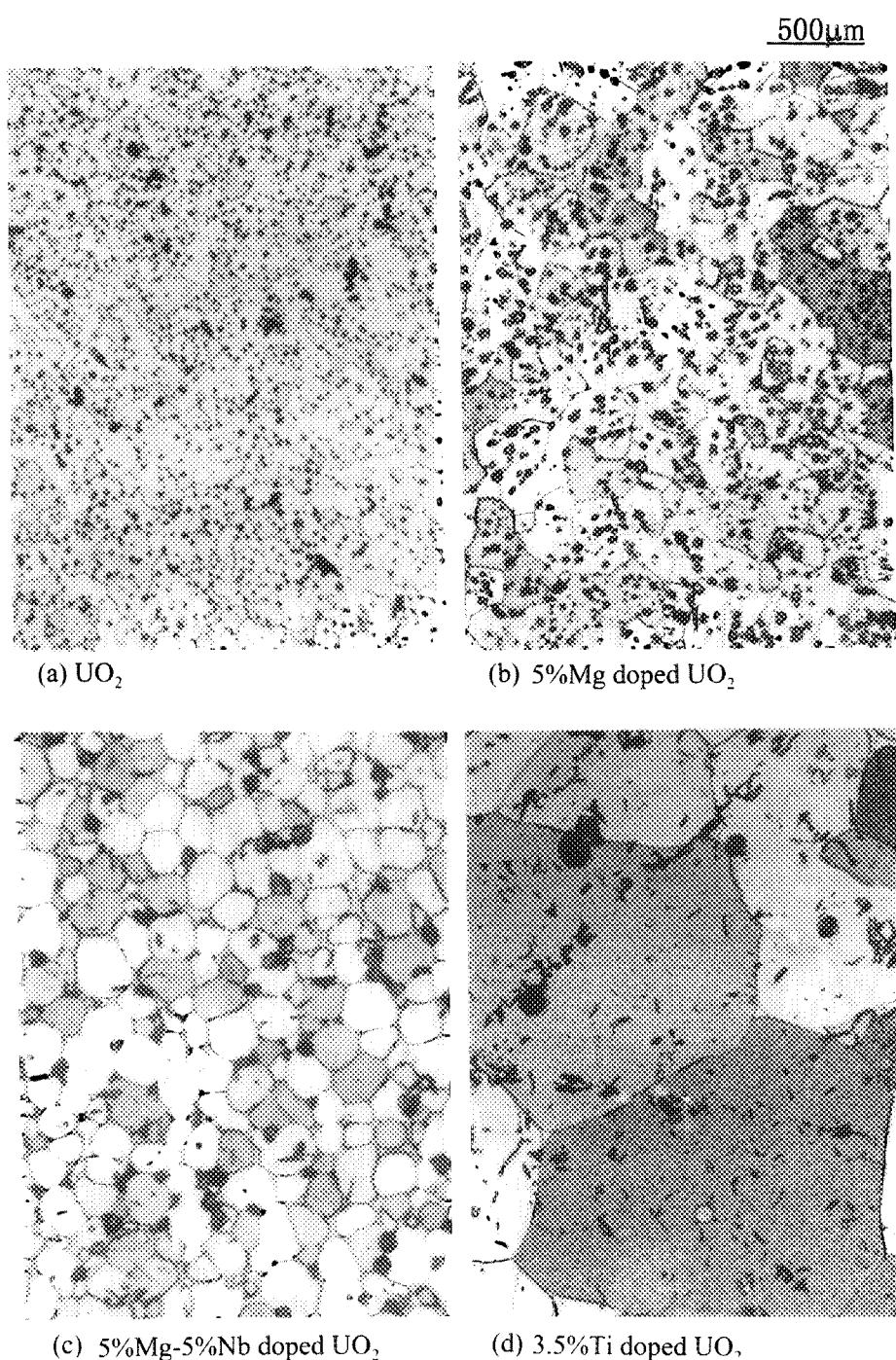


Fig. 2.3 Microstructures of the doped UO₂ (20% enriched U) specimens (unirradiated).

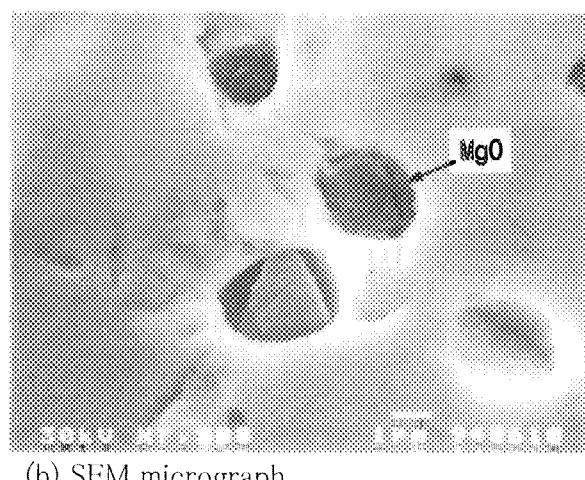
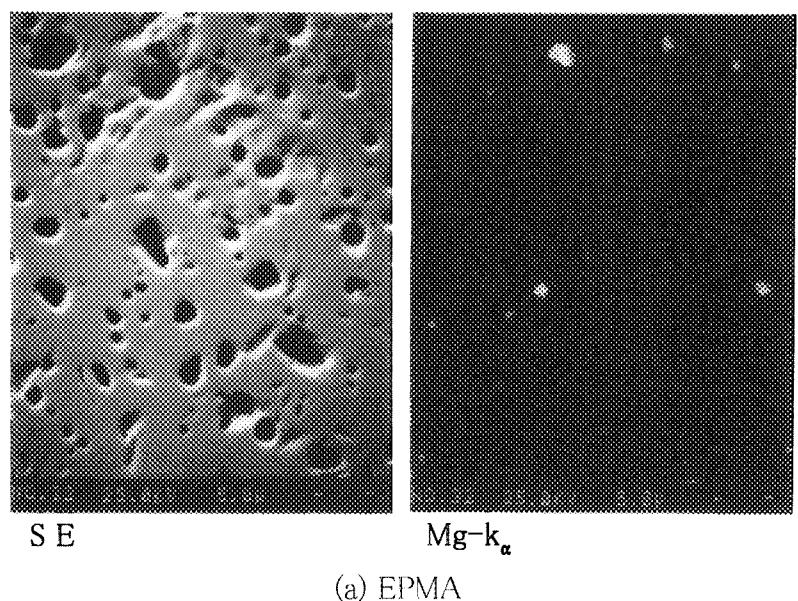


Fig. 2.4 EPMA and SEM of the 5%Mg doped UO_2 (20% enriched U) on polished surface.

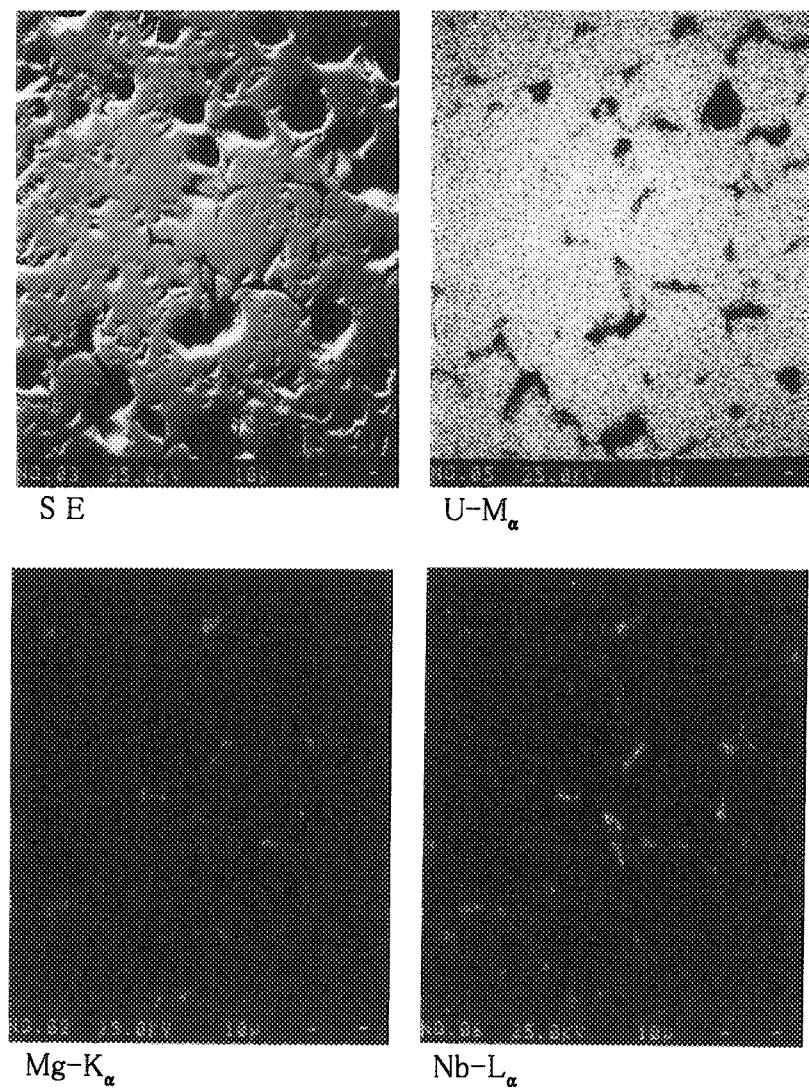
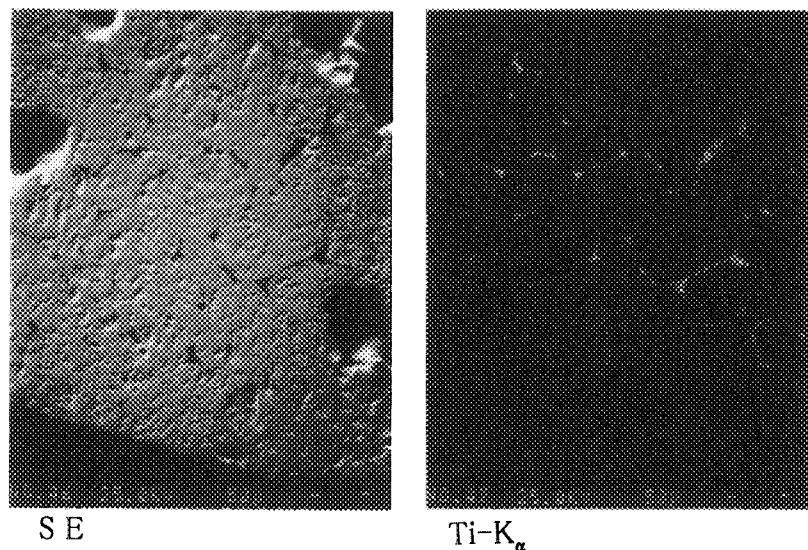
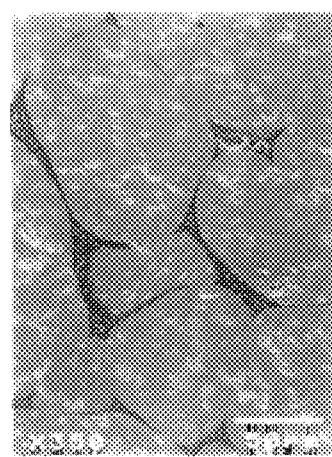


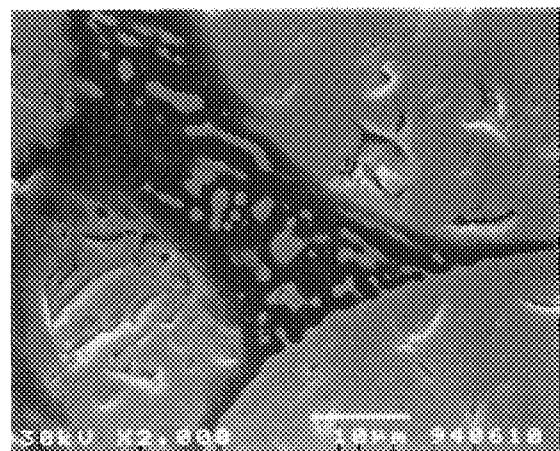
Fig. 2.5 EPMA of the 5%Mg-5%Nb doped UO_2 (20% enriched U) on polished surface.



(a) EPMA



(b) SEM micrograph



(c) Higher magnification of SEM micrograph (b).

Fig. 2.6 EPMA and SEM of the 3.5%Ti doped UO₂ on polished surface.

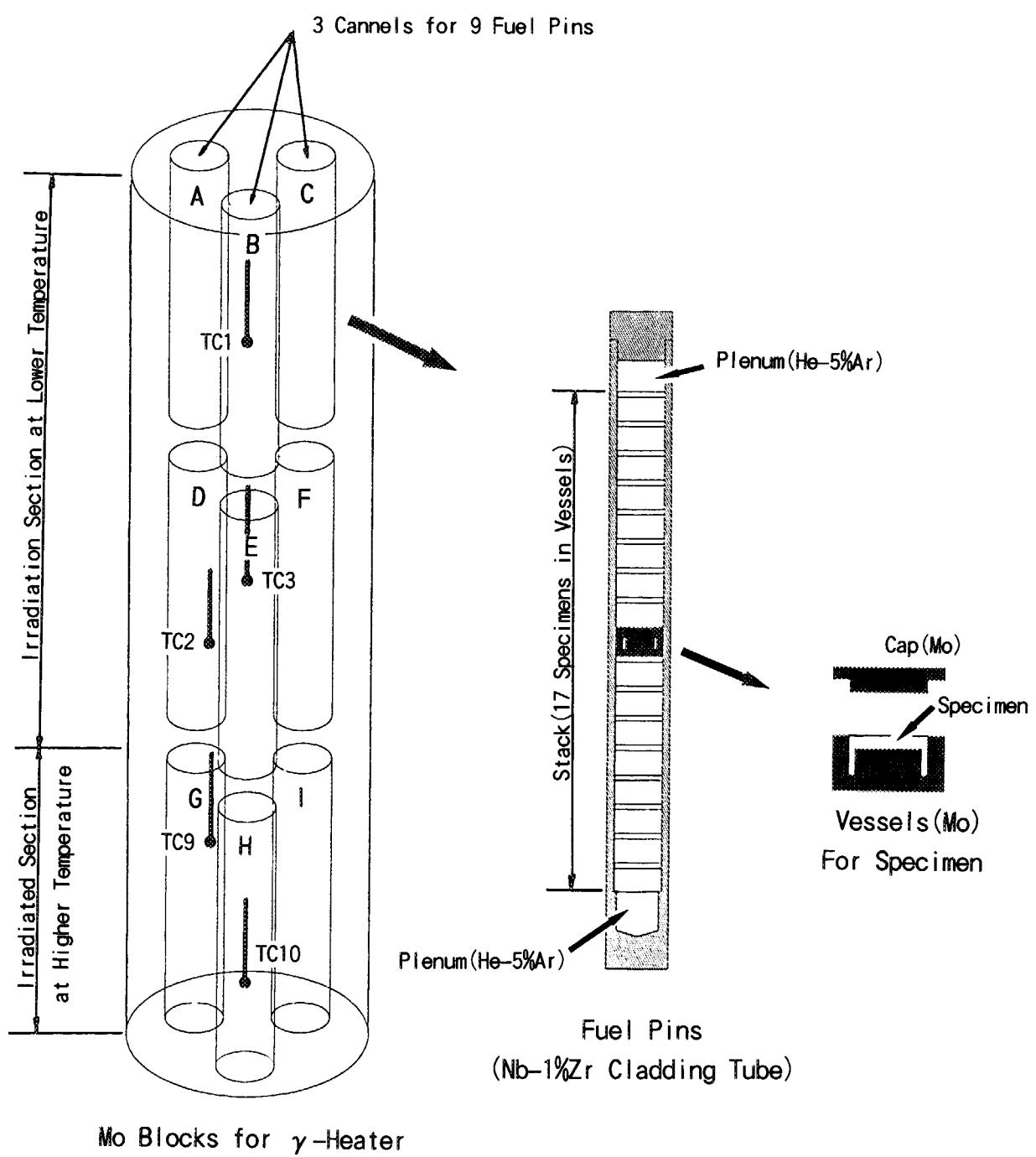


Fig. 2.7 Schematic Drawing of the BRF-13H capsule for Irradiation of the doped UO_2 .

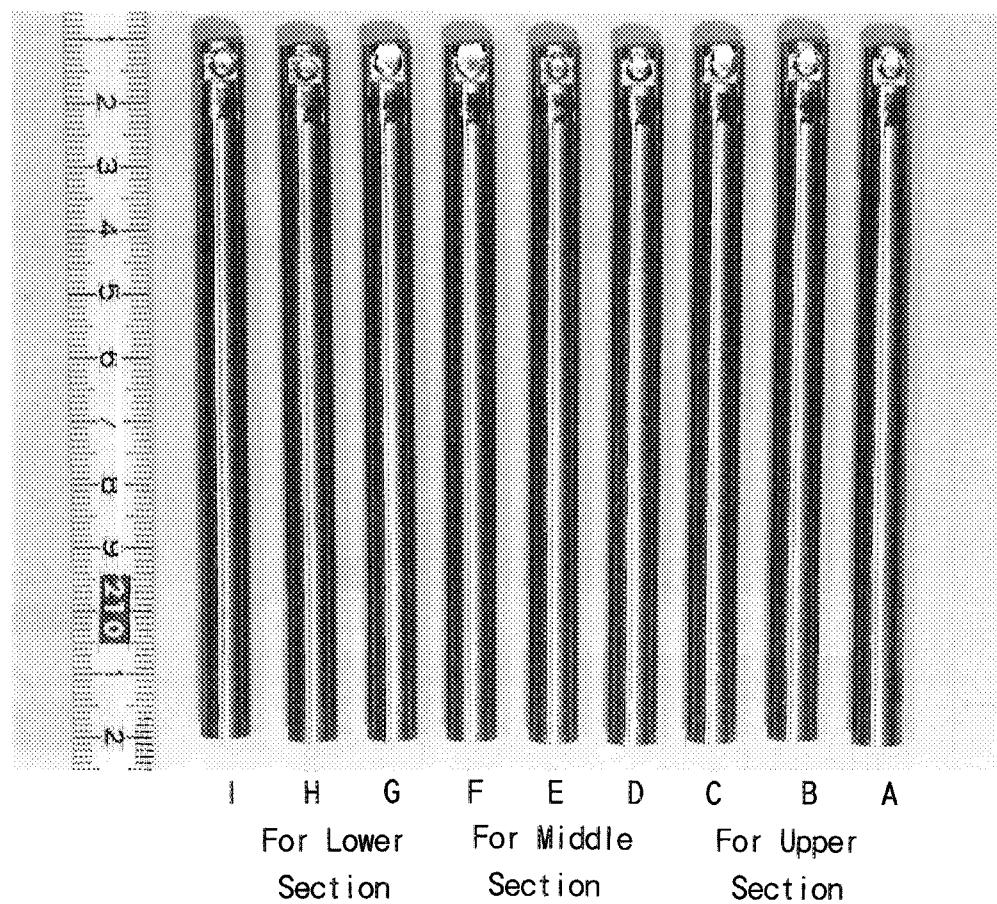


Fig. 2.8 Appearances of the nine fuel pins.

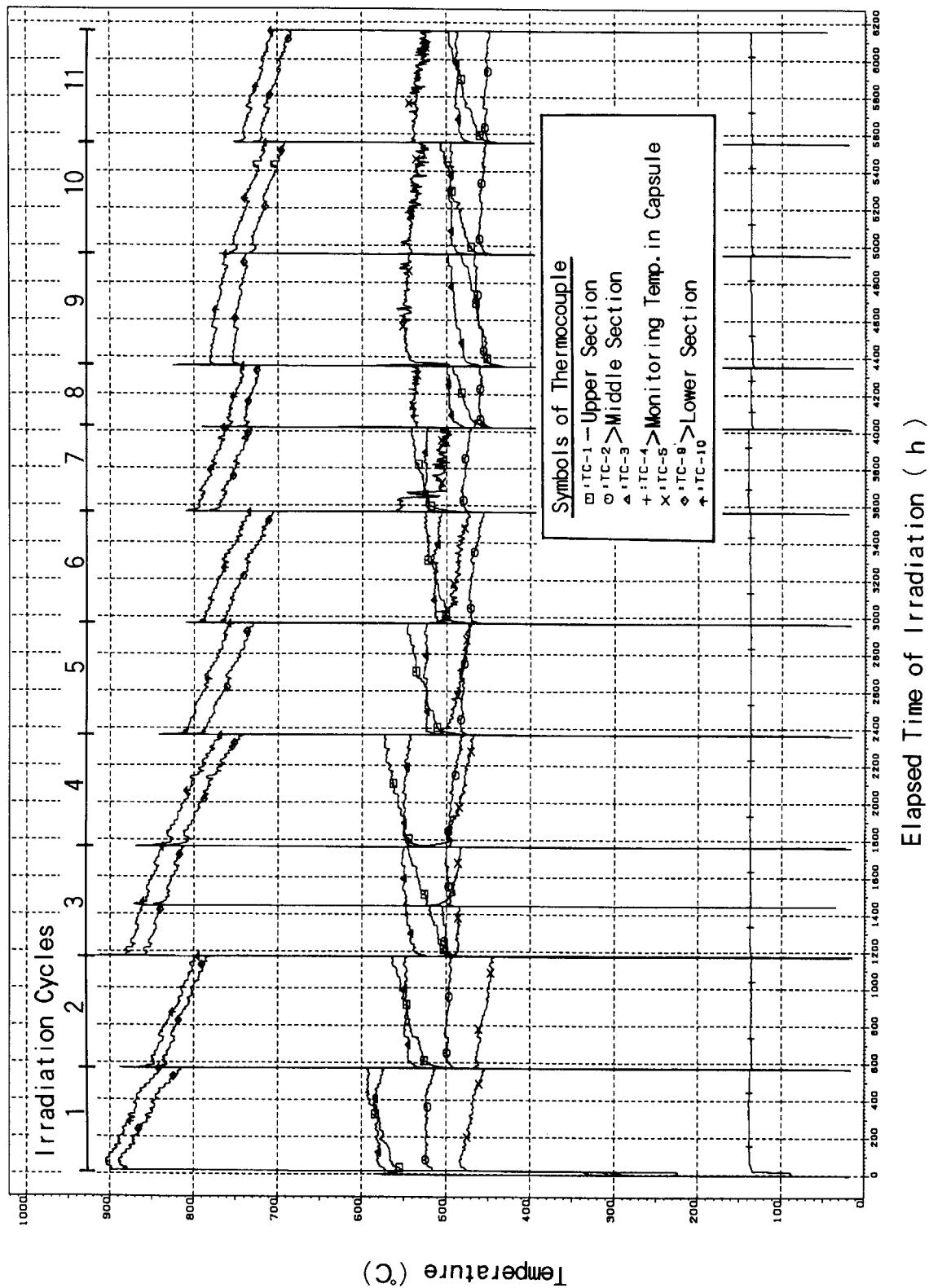


Fig. 2.9 Irradiation temperatures at the fuel pins in the BRF-13H capsule

3. 照射後試験

3.1 燃焼度

照射後のキャップセルは3ヶ月の冷却期間の後、ホットラボにおいて切断解体し、9本の燃料ピンと中性子照射量を測定するために6個のフルエンス・モニターを回収した。

試料の燃焼度は、回収した燃料ピンの γ スキャンから得た核分裂生成物(FP)のCs-137とCe-144(Pr-144)の強度の相対値をあらかじめ求めておき、その後 燃料ピンを切断して取り出した小ペレット試料のうち、代表的なもの12個について1個ずつのCs-137とCe-144(Pr-144)の放射能強度を波高分析器によって測定して核分裂収率との比から燃焼度を求めた。これを基準にして、先の γ スキャンの相対値から全153個の試料の燃焼度を算出した。

Fig. 3.1は、試料の燃焼度を評価するために測定した燃料ピンのCs-137とCe-144(Pr-144)の γ スキャンの結果(例)である。図(a)のD燃料ピンは 中段の低温照射領域、図(b)のH燃料ピンは 高温照射領域の典型的なパターンを示している。A~F燃料ピンは、650 - 550°Cの比較的低い温度の高燃焼度試料で、これらのうち、D燃料ピンに見られるように、Ce-144はUO₂マトリックス中によく保持され、ピン内プレナム部への放出は見られない。Cs-137もまた、わずかに燃料ピン内の上部プレナム部への移行が見られるが、ほとんどは、UO₂マトリックスの外へ移行していない。一方、G~I燃料ピンは930 - 800°Cで照射した試料で、その典型的なH燃料ピンの場合、Ce-144は上・下プレナム部へのわずかな移行がみられるが、個々の試料の相対比は保たれている。しかし、Cs-137は低温照射領域の結果とは対照的に上部プレナム部への移行が顕著であり、20%と10%濃縮度の試料の γ 線強度の差も無くなっている。GおよびI燃料ピンとも同様のパターンになっている。これらの γ 線強度の差のデータからは、相互の燃焼度を比較評価することができなかった。

UO₂マトリックスからCs-137の一部が放出された試料もあるために、個々の試料の燃焼度の評価には、Cs-137とCe-144(Pr-144)の双方のデータを用い、比較検討して結果を得た。Fig. 3.1(a)のD燃料ピンの20%濃縮度試料(10個分)の場合、ほぼ同じ照射量であるにもかかわらず、Cs-137とCe-144の γ 線強度に多少の差がみられる。これは、1個ごとの試料の質量差や添加物の添加量の差が影響したものである。6%と10%濃縮度の試料についても同様である。

前章のTable 2.5(1)~(3)に全153個の試料の燃焼度を照射温度とともに一覧表にして示した。試料の燃焼度は、6%濃縮度の試料が最高35GWd/t(U)、10%濃縮度の試料が

最高 62GWd/t(U)、20%濃縮度の試料では 最高94GWd/t(U)に達した。

γ スキャンを終了した燃料ピンは、1本ずつ切断して、合計153個の全試料を個別に1個ずつ回収・分類し、目的にしたがって照射後試験を実施した。Fig. 3.2は、試料取出しのために1本ずつ燃料ピンの上部プレナム部を切断した時に放出されたFPガス(Kr-85)の時間に対する濃度のデータである。図中 A～I燃料ピンのそれぞれのピークが切断直後で、低温照射領域(上段・中段: 650～550°C)のA～CとD～F燃料ピンの最大放射能濃度は、どれもほとんど同じ程度の 6.7×10^3 Bq/cm³ 以下であったのに対して、高温照射領域(下段: 930～800°C)のG, HおよびI燃料ピンでは、それぞれ最大 5.7×10^2 , 7.1×10^2 および 7.4×10^2 Bq/cm³ で、A～F燃料ピンの10倍前後の放射能濃度の放出があった。燃料ピンの中には、ウランの濃縮度と組成の異なるいろいろな試料が充填されたが、その基本的な構成はほとんど同じであるから、高温照射領域の燃料ピンの方が Kr-85 ガスの放出は、かなり多いことになる。Table 2.5 に示したように、試料の燃焼度(あるいは線出力密度)は、低温照射領域の方が高く、FPの生成量も多いにもかかわらず、FPガス放出量(すなわち放出率)は高温照射領域の方が多いということは、照射温度と試料の破損(破損状態や破損数の割合については次節で述べる)の差によるものと考えられる。

3.2 外観観察

試料の形状破損等に関する外観を低倍率の光学顕微鏡で観察した。全153個の試料の観察結果を一覧表にまとめてTable 3.1 に示す。◎印は、照射前と同様に照射後も健全な形状を保っていた試料であり、△と*印は、何らかの形状破損をおこした試料である。添加物の有無にかかわらず、20%の高濃縮度の試料のすべて(153個の試料中の95個)に数片に分離した大きな割れや、原形をとどめない粉碎状態の破損が生じている。Fig. 3.3には照射後に健全だった試料と破損した試料の外観の典型的な例を未照射の試料と比較して示した。Fig.3.3の(a.2),(c.2),(d.2)は、無添加UO₂試料とMg添加UO₂試料の照射後の外観観察写真である。照射前の同組成の試料の外観 (a.1), (c.1), (d.1)と比べて、ほとんど変わらない。その写真(d.2)のように、濃縮度が10%の15%Mg添加UO₂の試料(A⑥⑦, B⑥⑦など)は、燃焼度が61GWd/tでも照射前と同じ健全な形状を保っている一方で、ほとんど同じ燃焼度(60～61GWd/t)の20% 濃縮度の無添加UO₂の試料(I⑥⑧など)は破損している。

この度の照射試料は、軽水炉燃料のペレット充填状態とは異なり、モリブデン製の蓋付き試料容器に1個ずつ収納し、非拘束のサンドイッチ状態で燃料ピンに充填され

た。試料自体も軽水炉燃料ペレットに比べれば、ディスク状の小ペレットで、試料内の温度分布や温度勾配も全く異なる。したがって、軽水炉燃料の照射状態と直接には比較することができないし、試料の破損が照射中のいつの時点で、なぜ起きたのかは正確には把握できない。写真(b.2)は、E⑧(20%濃縮度, 91GWd/t, 600 - 560°C)の高燃焼度照射試料で、ほとんど真中から一直線に割れている。Table 3.1 に△印で記した破損試料は、このような形状で2~5片程度に割れたものである。細かく割れた試料は、後節の組織観察のところで、樹脂に埋め込み、研磨した断面観察写真にして示すが、これらの試料の破面は直線的で、あまり結晶粒界では分離していないので、破損断面を観察するかぎりは、FPの生成やFPガス圧上昇などによるよりも、熱応力が主な原因であると推察される。

結果としては、50-60GWd/t 以上の 20 % の高濃縮度の試料は全部破損した。特に、Ti添加UO₂ 試料は、高温照射領域にかかわらず低温照射領域の試料もほとんどが粉碎破損をしていた。他の試料を含めて全般的には、低温照射領域の試料よりも高温照射領域の試料の方が破損の程度はひどい。6%と10%濃縮度の試料にもいくつか破損が見られたが、同じ照射条件の他の試料のほとんどが破損していないことから、これらは例外で、照射前の試料調製条件(すでに試料に細かい割れがあった等)に起因していることが考えられる。一方、20 % の高濃縮度の試料は、6%あるいは10%濃縮度の試料に較べて照射中の線出力が高くなり、かつ、各照射サイクルの原子炉運転出力過渡時の温度勾配や変化も大きいので、試料に熱応力が発生しやすくなる。発生した熱応力を定量的には検討していないが、観察した状況から、これが破損の原因になったものと考えられる。

破損しなかった試料のうち、38個について重量測定を行った結果、最高 約60GWd/t の燃焼度の試料(A④~⑥)を含む30個は、照射前・後で重量の変化がない(変化量が測定限界の ±0.1 mg のオーダー以下の) 状態で、小さな欠損も生じていないことがわかった。残りの 8 個も、1 個 40~50mg の重量に対して 3mg 差の範囲内にあった。試料のどこかに外観観察からは確認できなかった微小なかけらの欠落が、生じたのであろう。

以上の外観観察の結果、試料の破損以外に照射による外観上の変化は見られず、また、無添加UO₂ 試料およびMgとMg-Nb添加UO₂試料とで、破損等の健全性についても顕著な違いは見られなかった。高濃縮度のウランを用い、結果的に高出力・高燃焼度の照射条件になり、かつ、Ti添加によって結晶粒径が極端に大きかったUO₂試料は、ほとんどが粉碎状態で、破損しやすいという結果となった。

3.3 スエリング

試料の燃焼に伴うスエリングは、液中秤量法によって試料の照射前・後の密度を求め、その密度差から体積変化率としてスエリング率(% $\Delta V/V$)を求めた。なお、もう1つの方法で、照射前・後の個々の試料の寸法を直接測定して、その寸法変化量から体積変化率(スエリング率)を求め、液中秤量法の結果と比較検討した。

通常、 UO_2 燃料は、照射初期に焼きしまりを起こして収縮し、その後、燃焼度が進むに従ってスエリングにより体積膨張していく⁽¹³⁾。今回の体積変化率の測定では、焼きしまりやスエリングにかかわらず、試料の燃焼度と照射温度に対する体積変化率として測定した。結果としては、照射後の試料は体積膨張しており、スエリングを起こしているものと結論した。なお、Mg-NbおよびTi添加 UO_2 試料がほとんど破損したために、体積変化率の測定が可能だった試料は、Mg添加 UO_2 試料と比較観察用の無添加 UO_2 試料に限られた。

まず、液中秤量法では、照射によって粉碎状態に破損した試料の密度測定が出来ないことと、1個の試料がもともと小さいために重量差に精度上の限界があることなどのために、同じ組成で同じ照射条件の複数個を1組にして測定試料とした。試料の種類と個数は、Mg添加量の異なる10個の試料と、燃焼度の異なる5個の無添加 UO_2 試料とした。液中秤量法は、未照射の試料の密度測定の場合と同様で、置換液はジヨードメタンを使用した。Table 3.2に測定によって求めた密度とスエリング率の値を示し、Fig. 3.4に燃焼度に対するスエリング率をプロットして示した。それぞれの組成の試料の製造条件が同じで、しかも同一バッチで焼結調製したことから、照射前試料の測定密度は、同一組成ごとの試料について1点の代表値を使った。一方、照射後の密度は、すべて個々の実測値から得た。そのうち1点の試料は、2分割程度に大きく割れていて密度測定が可能なD⑧⑨⑩とE⑧⑨⑩の6個分を1組にした燃焼度 87-94GWd/t(照射温度 600 - 560°C)の試料であり、試料には全面に一様なリム組織ができていた。その他は、61 GWd/tまでの健全だった2個1組の14点の試料である。61GWd/tまでの試料のスエリング率の値は、53-54GWd/t(600-560°C)の5%Mg添加 UO_2 試料が4.25%で最も大きい値を示した。また、約60GWd/tでは、無添加 UO_2 試料が1.04%であったのに対して、2.5%Mg添加 UO_2 試料が3.73%で、3.6倍になっている。全体的に無添加 UO_2 のスエリング率が小さいように見えるがデータ数が少なく、バラツキもあって、Mg添加 UO_2 との差を定量的には評価できない。図中には、 UO_2 の板状燃料を用いて行われたスエリングの膨大な実験(96%TDの UO_2 、照射温度 1760°C以下)をまとめたM.L.Bleibergらのデータ⁽¹⁴⁾からスエリング率を線で示した。それによれば、燃焼度が50GWd/tまでは1GWd/tあたり0.081% $\Delta V/V$ で、それ以上の燃焼度では0.31% $\Delta V/V$ に

なっている。このデータに比べれば、今回のスエリング率は、ほとんどが添加物の有無にかかわらず、それ以下の値をとっている。なお、87 - 94 GWd/tの20%濃縮度の無添加UO₂試料のスエリング率は14.4%ΔV/Vで、図中の線と同程度の値であり、測定値は1点のみであるが高燃焼度のリム組織の試料のスエリング率を予想し得るデータである。これらのリム組織のある試料の組織観察の結果は、後述の組織変化の節で示す。

寸法測定によるスエリング率は、8個の無添加UO₂試料と22個の2.5~15%Mg添加UO₂試料に対する個々の照射前・後の外径と厚さを測定した結果から得た。照射前に予め1個づつ試料の重量を電子天秤(測定精度：0.1mg)で、直径と厚さを通常のマイクロメータ(測定精度：1 μm)を用いて測定して燃料ピンに充填し、照射後は重量を同様に電子天秤で、寸法をホットラボのケーブ内で遠隔操作で取り扱えるように特別に製作した装置(電子マイクロメータ：ユニオンツール社製「ミクロファイン S1M-10型」、測定精度：1 μm)を用いて測定した。マイクロメータの測定端子の直径は5mm以上あって、試料(直径2.5~2.6 mm)を挟み込むかたちで完全に覆い、厚さの最高値として検出した。スエリング率は、照射前・後の外径と厚さの差を体積変化率として%ΔV/Vで表わした。したがって、1個の試料が全体的に均一にスエリングを起こしていることを前提とした測定データであり、そうでない場合、厳密には測定寸法で体積変化率を求められない。寸法測定によるスエリング率は、比較検討のためのデータとしてTable 3.3に示す。測定した試料は、表中の「照射後の重量変化」の欄にあるとおり、照射後の試料の重量は、照射前の重量に対して±0.1mgのオーダー以下であり、かつ、外観観察から試料が全く欠割れも生じていないことを確認した。表中に見られるように、10%Mg添加UO₂試料のスエリング率は比較的大きく、低燃焼度の19-20GWd/t(900-800°C)で4.92と3.92%ΔV/Vと、他に比べて異常に大きい。15%Mg添加UO₂試料の34GWd/tの場合も比較的大きい値になっているが、これらは、Mg添加量が多く、かつ、高温照射領域で温度が高かった試料である。高温照射領域の試料でも、無添加UO₂および2.5%Mg添加UO₂のスエリング率は小さい。

液中秤量法と寸法測定法によるスエリングの総合的な結果では、燃焼度が60GWd/tの範囲内でMg添加と無添加UO₂とに顕著な違いはなく、スエリング率は約5%ΔV/V以内である。

3.4 热伝導率

添加入り UO_2 の照射前・後の热伝導率の变化を調べるために、レーザーフラッシュ法による热拡散率の测定を行った。試料は、照射後も健全で形状破損せず、热拡散率の测定が可能なMg添加 UO_2 試料と無添加 UO_2 試料、およびそれぞれ同じ組成(同じ製造条件)の未照射試料である。Mg-Nb添加 UO_2 およびTi添加 UO_2 試料は、照射後の形状破損等で測定可能な試料がなく、測定できなかった。

3.4.1 热拡散率の測定

热拡散率測定には、照射後の高放射性物質の取扱いが可能な遮蔽体付き特別仕様のレーザーフラッシュ法の装置(ULVAC TC-7000型)を使用した。

測定試料は、照射前と照射後のそれぞれ無添加 UO_2 、5%および15%Mg添加 UO_2 の3種類(合計6個)で、照射後試料の燃焼度(照射温度)は、それぞれ 60GWd/t(640-550°C)、32GWd/t(900-800°C)、35GWd/t(600-560°C)である。Fig. 3.5に照射後の熱拡散率測定用試料の外観を示す。拡大写真で見る試料表面は、平らではない。照射前の試料の表面も同様(Fig. 2.2参照)で、この表面粗さが熱拡散率の測定値に影響するかどうか、予め照射前の試料を用い、写真のような焼結したままの試料と表・裏面とも平らに研磨した試料とで測定した。結果は有意な差がなかった。従って、この程度の表面粗さでは、熱拡散率測定値に影響しないと判断し、未照射試料のみ表・裏面とも平滑に研磨した。照射後の試料は研磨せず、Fig. 3.5に見られるような表面のままで熱拡散率測定を行った。温度が約20(室温)～1400°Cの範囲の200°C間隔で測定し、測定値の解析には対数法を用いた。測定の結果をTable 3.4とFig.3.6に示す。密度は、スエリング率を調べた時と同じ液中秤量法による実測値である。その結果もTable 3.4に併記した。未照射試料の熱拡散率は、Mg添加が無添加の場合よりも室温～400°Cの間でわずかに低い値になっているが、高温になると共に差はなくなり、1400°Cではほとんど同じ値($0.0075\text{cm}^2/\text{sec}$ 程度)になった。15%Mg添加 UO_2 の室温(20°C前後)の値は下がる傾向に見えるが、これは、熱拡散率測定装置の温度計測部の温度センサー(In-Sb赤外線検出器測定範囲：室温～1800°C)の室温近辺の精度限界の影響していて、実際には下がることないと推察される。

一方、照射後には、Mg添加の有無にかかわらず燃焼度が進むにしたがって熱拡散率の値は大きく低下し、60GWd/tの高燃焼度の無添加 UO_2 試料の場合、 0.0139 (18°C) - $0.0060\text{cm}^2/\text{sec}$ (1384°C)となった。同程度の照射温度で燃焼度がおよそ半分(35GWd/t)の15%Mg添加 UO_2 も、全温度領域にわたって無添加 UO_2 試料の値とほとんど同じである。5%Mg添加 UO_2 は、それよりも多少大きい熱拡散率の値を示した。

高燃焼度のUO₂試料の熱拡散率を高温域で測定すると、試料の加熱によって熱拡散率を低下させていた照射欠陥が回復して、再度の熱拡散率の測定では、その値も回復してくることが知られている^(15,16)。1400℃までの回復の程度をみるために、高燃焼度の無添加UO₂試料について2回の測定を行った。その結果、Fig.3.6に見られるように室温では未照射試料の値の42%(第1回測定)から50%(第2回測定)に、同様に約1400℃では、80%から84%に回復した。

3.4.2 热伝導率の検討

熱拡散率の測定値を基にして熱伝導率の変化を調べた。(熱拡散率のデータがすべて摂氏温度[℃]で測定・解析なされたが、熱伝導率については、他の研究データとの関連から絶対温度[K]で検討する)。

熱伝導率(λ : W/cm·K)の値は、熱拡散率(α : cm²/sec)の測定値を使って次の式から求めた。

$$\lambda = \alpha \cdot \rho_t \cdot Cp$$

室温以上の任意の温度における試料の密度(ρ_t : g/cm³)は、UO₂とMgOの線熱膨張率がほぼ同じ(1400℃で1.6%)^(17,18)であることから、Mg添加UO₂についてもUO₂の膨張率(文献値)を用い、Table 3.4に示した密度の実測値(室温)を基準にして高温における密度の補正を行った。また、Mg添加UO₂の定圧比熱容量(Cp: cal/g·K)の値は、燃焼した試料のデータが不確定であるために、任意の温度における未照射のMgOとUO₂のそれぞれの値⁽¹⁹⁾からコップの法則 $Cp = yCp(MgO) + (1-y)Cp(UO_2)$ にしたがってモル比の混合割合で求めた計算値を使った。熱伝導率の結果は、熱拡散率のデータと共にTable 3.4に併記し、Fig. 3.7にプロットして示した。なお、通常のLWRの燃料ペレットの熱伝導率のデータ(MA-TPRO95%T.D UO₂)⁽²⁰⁾を図中に比較して示した。熱拡散率の測定のところで述べたように、In-Sb赤外線温度検出器の影響で室温における値が低目になるために、図中の室温の値は、照射前と照射後の試料とも熱拡散率測定値による計算値を用いず、すべて外挿した。

照射前の試料は、まずMATPRO(95%TD UO₂)のデータと比べて無添加UO₂(96%TD)試料が、全温度領域にわたってそれよりも大き目の値になった。Mg添加UO₂は、Mg添加量が5%から15%へと多くなるにしたがって熱伝導率が無添加UO₂よりもさらに大きくなる傾向を示している。これに対して、照射後の試料では60GWd/tの高燃焼度の無添加UO₂試料の密度がわずかに下がって10.40g/cm²(95%TD)となり、室温から1673Kまでの第1回の熱拡散率測定値から得られた熱伝導率は3.5(450K)-2.0 W/m·K

(1660K)と著しく低下した。これは、照射欠陥等によるものと考えられ、熱拡散率測定値にすでに現れていて予想されたものである。高温域までの熱拡散率測定を行うと、この現象はある程度加熱することによって回復する。再度の熱拡散率測定値から得られた熱伝導率は、図に見られるとおり低温域で4.8W/m·K(450K)まで回復した。高温域での回復は小さく、2.1W/m·K(1660K)程度である。

照射後のMg添加 UO_2 試料は、いずれも燃焼度が30-40Gwd/tの低温照射領域と高温照射領域の各1個づつの結果である。なお、これらは再度の熱拡散率の測定を実施しなかった。熱伝導率は、無添加 UO_2 よりも大きい値で、燃焼度と照射温度に対応した傾向を示し、35 Gwd/tの15%Mg添加 UO_2 試料(照射後の密度10.13g/cm³)で3.7(450K)-2.1W/m·K(1660K)であった。照射後の試料の1500Kを超える高温部の熱伝導率は、いずれも2.0-2.3W/m·Kの範囲にある。

UO_2 とMgOの熱伝導率を比較すると、MgOの方⁽¹²⁾が UO_2 よりもおよそ4倍(300K)から2倍(1800K)大きい値で、 UO_2 へのMg添加は熱伝導率がよくなる方向に作用するものと考えられる。上記の結果では、未照射の試料でその傾向が見られたが、照射後の試料については、Mg添加量よりも燃焼度と照射温度が熱伝導率特性に影響したものと考察される。

なお、高燃焼度の UO_2 とMg添加 UO_2 の熱伝導率のデータはこれまでに少なく、特に、60GWd/tに達する無添加 UO_2 の熱伝導率は、中村等のデータ^(15,16)と共に高燃焼度の UO_2 の物性を知る上で貴重なデータである。

3.5 組織変化

添加物入り UO_2 試料の照射後の組織変化をホット・ラボにおいて光学顕微鏡とEPMA(Shimadzu EPMA-810Q型)によって観察した。はじめに、無添加 UO_2 試料の断面組織を観察し、それらと比較しながら添加物入り UO_2 の組織変化と照射挙動を考察する。

無添加 UO_2 試料の観察 (Fig. 3.8 参照) :

Fig. 3.8(a)に無添加 UO_2 試料の未照射試料のSEM観察写真を示す(エッティングによる組織観察結果はFig. 2.3に示した)。また、写真(b.1)と(b.2)には、51GWd/t(600-560°C)で照射された試料(試料No.D④)のSEM観察の結果を示した。この試料は、照射後も割れることなく照射前と同様に健全な形状を保っていた。照射後の気孔率も未照射の試料とあまりかわらないが、拡大して気泡の中を観察すると写真(b.2)のように、細粒化になりつつある様子が見られる。通常、軽水炉では、燃料ペレット外周の数百

ミクロンの幅に局所的な高燃焼度の部分ができ、結晶粒が細粒化し、粗大気泡が形成して気孔率の増加による多孔質な組織を形成する。リム状に形成したこの組織を「リム組織」と呼んでおり、細粒化現象はリム組織に至る一過程の現象と考えられる⁽²¹⁻²³⁾。また、EPMAによるこの試料のマトリックスの組成分析の結果、生成した金属FPの5元素(Mo,Tc,Ru,Rh,Pd)が全面に均一に分布していた。いずれにしても、比較的に変化の少ない照射挙動が観察された。

次の写真(c.1)～(c.3)は、高燃焼度87-94GWd/tで低温照射領域(600-560°C)の試料(試料No.D⑨⑩,E⑨⑩のうちの一部)の状態である。写真(c.1)に見られるとおり、破損形状は直線状で結晶粒界に沿っているとはかぎらず、照射中の熱応力が破損の主な原因であることを示唆している。(c.2)と(c.3)の写真には全面に粗大気泡が発生しており、これは高燃焼度の試料に見られる典型的なリム組織である。今回の照射キャップセルによる高燃焼度試料は、試料全面にいわゆる「リム組織」ができているのが特徴である。拡大写真(b.3)の気泡の中には典型的な細粒化も起きている。

さらに、写真(d.1)～(d.4)は、燃焼度62GWd/tで高温照射領域(930-820°C)の試料(試料No.G⑨)の状態である。この試料は(d.1)の写真に見られるように、粉碎状態に破損し、破損形状は直線状で、かつ、鋭角な破片になっており、より高温の照射による熱応力で破損したものと考えられる。この試料には写真(c.3)に示したような細粒化現象も見られないし、リム組織もできていない。破片を光学顕微鏡で拡大して観察した写真(d.2)では、マトリックス中のあちこちに小さな白色析出物が見られる。これをEPMAで分析した結果を(d.4)に示した。結局、白色析出物は金属FPのMo, Tc, Ru, Rh, Pdであることが判った。この5元素の金属FPがスポット状に析出したということは、照射温度が高かったことを意味しており、それらが均一に分布していた前述の低温照射領域の試料の場合(写真(b),(c))とは対称的である。特に、約90GWd/tもの高燃焼度の試料No.D⑨⑩, E⑨⑩では、かなりの金属FPの生成があるはずであるにもかかわらず、照射温度が700°C以下では、マトリックス中に均一に存在していて、スポット状の析出に至らない。

Mg添加UO₂試料の観察(Fig. 3.9 参照)：

5%Mg-UO₂の未照射試料の研磨断面の観察は、「2.2 試料の特性」の節で述べ、その様子をFig. 2.3に示した。今回の試料はUO₂へのMgの固溶度が低く、2.5%添加Mg試料でもMgOが析出している。Fig. 3.9(a.1)～(a.3)は、5%Mg-UO₂の燃焼度53GWd/t(600-650°C)の試料(試料No.F④)の断面観察の結果である。試料形状は照射後もほとんど健全に保たれ、写真(a.3)に見られるようにMgOが析出したまま組織もあまり変化がな

い。ただし、(a.2)のSEM観察に見られるように気泡のなかに結晶粒の細粒化が起っている。同じ 5%Mg-UO₂の組成でさらに燃焼度が進んだ 91GWd/t(650 - 600°C)の試料(試料No.E⑬)の例をFig. 3.9(b.1)~(b.3)に示す。写真(b.1)のように照射後には、試料は直線状の破片となって破損した。写真(b.2)は、その破片のうち、厚さ約1mm の試料の厚さ方向の断面の様子である。全面にリム組織特有の粗大気泡ができ、中心部には気泡が集積して、さらに大きな気泡を形成している。この部分を EPMAで観察すると、(b.3)のように、大きな気泡の中に結晶粒の細粒化が見られ、Uマトリックス全面にMgの存在も確認できる。ここでは、Mgは均一に分散しているが、別の部分ではMgOとしてスポット状に析出している。また、5元素の金属FPは、マトリックス中に析出することなく、均一に分布していた。(分析写真は省略する)。

2.5%Mg添加の試料の組織変化は、基本的に無添加 UO₂とあまりかわらず、5%Mg添加の照射挙動の観察から推察できるので、次に、15%Mg-UO₂試料の場合について考察する。Fig.3.10(a.1)と(a.2) に未照射試料のエッチング組織とSEM観察の結果を示し、(b.1)~(b.3)の燃焼度61GWd/t(640-550°C)の試料(試料No. A⑥)の SEM による観察結果と比較した。照射後の試料は、形状破損が全くななく、スエリング率が2.3 %ΔV/V(重量/寸法の測定結果)程度で、高燃焼度においても健全な挙動を示した。写真(b.1)は人工的な破面の様子であり、写真 (b.2)と(b.3)には EPMA による研磨断面の様子とUO₂マトリックス中のMgの分散状態を示した。照射後の気孔率は変らず、照射前と同様に MgO がスポット状に析出したままである。リム組織はまだ形成されていないが、気泡の中に結晶粒の細粒化らしいものが観察された。また、この試料も 5 元素の金属FPはマトリックス中に析出することなく、均一に分布していた。(分析写真は省略した)。

15%Mg添加でさらに燃焼度の高かった試料と照射温度が高かった試料の場合を次に挙げる。Fig.3.10(c.1)と(c.2) には、SEMとEPMAで観察した未照射試料の断面の様子とMgの状態を示した。Mgは 5 μm以下の大きさのMgOとしてスポット状に分散析出している。それに対して、(d.1)と(d.2)は 照射後に燃焼度が 91GWd/t(650-600°C)であった試料(試料No. F ⑯)の観察結果である。(d.1)の外観写真に見られるように、試料はひび割れを生じた上、ほとんど直線状に二分割に破損した。(d.2)のEPMAの結果では、リム組織特有の全面的な粗大気泡の発生と、照射前と同様のMgOの存在が見られる。また、照射前に析出していた添加Mgが 高燃焼度においてUO₂マトリックス中に多少拡散した様子がうかがえる。こうした傾向は同組成で同じ照射条件の他の試料にもみられた。写真(d.3)は、マトリックス中の大きな気泡の部分のSEMによるリム組織の観察結果で、典型的なリム組織が見られる。すなわち、大きな気泡中の決

定的な結晶粒の細粒化と数ミクロンの無数の粗大気泡の生成が特徴である。こうした試料のFP(Xe,Cs,Ce)の放出挙動については、次節で検討する。

15%Mg添加で照射温度が比較的に高かった試料(試料No. I ⑩⑪)の例を次のFig.3.10 (e.1)と(e.2)に挙げた。燃焼度が63-64GWd/tで照射温度が930-820℃では、試料は粉末状に破損した。SEMにより破損試料中にあった直径120~180μmの大きな気泡の部分を観察すると、写真(e.1)のように照射前とあまり変わらない結晶粒があって、細粒化は見られない。粗大気泡による気孔率の増加もない。写真(e.2)のEPMAによるマトリックスの組成分析では、未照射試料にあったMgOの析出がなくなり、Mgは拡散して粒界に蓄積した状態であり(写真(Mg-Kα))、また、5元素の金属FPは、Mo-Lαに見られるように高い照射温度の影響によるスポット状に白色析出物として存在する。(Mo以外のRu,Tc,Rh,Pdの写真は、省略した)。

Mg-Nb添加UO₂試料の観察(Fig. 3.11参照)：

5%Mg - 5%Nb 添加UO₂試料の照射後の断面観察は、燃焼度55GWd/t,(600-560℃)の試料(試料No. F⑥)1点のみである。未照射試料の特性は、「2.2節 試料の特性」とFig. 2.5に記したとおり、MgとNbがUO₂マトリックス中に多少固溶し、大部分はUO₂結晶粒界に析出している。Mgのみの添加の場合のように結晶粒内にスポット状には析出しない。Fig. 3.11(a.1)に未照射試料のSEM観察の結果を示し、(b.1)の照射後のSEM観察の結果と比較した。照射後の試料自体は、直線状に二分割破損していた。気孔率が高いのは、試料の調製条件によって、照射前にすでにできていたもので照射によるものではなく、比較的変化の少ない照射挙動を示している。写真(b.2)は、気泡内を拡大して観察したもので、20~30μm程度の結晶粒とその結晶粒の表面が細粒化しつつある様子を見ることができる。また、写真(b.3)は、EPMAによる定性分析の結果である。結晶粒界にMgとNbが析出しているのは、未照射試料と変わらない(Fig. 2.5 参照)が、結晶粒内にも存在することが観察できる。これは、試料の燃焼とともに結晶粒内に拡散して濃度が増しているものと考えられる。また、金属FP(Mo,Tc,Ru,Rh,Pd)の分析では、マトリックスに均一に分布して存在することが確認された。この試料についても次節でFP(Xe,Cs,Ce)の放出挙動を他の試料と比較検討する。

Ti添加UO₂試料の観察(Fig. 3.12 参照)：

Ti添加UO₂の未照射試料の組織は、Fig. 2.6に示した。Ti添加UO₂試料は照射後に全数が粉碎状に破損したが、ここでは破損形状と組織の状態について高温照射領域の試料と高燃焼度の試料各1点を観察した。Fig.3.12 (a.1)と(a.2)は、燃焼度66GWd/t,

(930-820°C)の試料(試料No. H⑯～⑰のうちの一部)である。写真(a.1)に見られる破損の試料片を拡大して観察すると、写真(a.2)のように高温の照射を裏付ける金属FP(Mo,Tc,Ru,Rh,Pd)が白色析出物となって見られる。その他に未照射試料の組織と比較して、照射後の試料の結晶粒界に気泡の生成がある以外は大きな変化は観察されない。

次の燃焼度84GWd/t,(640-570°C)の試料(B⑯～⑰のうちの一部)についてFig.3.12(b.1)～(b.3)に示す。写真(b.1)に試料の破損状態を示した。この試料は前出の高温照射領域の試料より温度は低く、燃焼度ははるかに高い。そして、破片の形状は、直線状で大き目の破片となっている。写真(b.2)と(b.3)のSEMによる拡大観察では、リム組織の粗大気泡が一面にでき、30-40μmのさらに大きな気泡の中(写真(b.3))には、典型的な細粒化の生成が見られる。次の写真(b.4)は、リム組織ができている結晶粒界の部分のEPMAによる定性分析の結果である。結晶粒界に析出したTiは、照射前の様子(Fig.2.6)とあまりかわらないが、粒界には蓄積した大きな気泡が見られる。また、金属FP(Mo,Tc,Ru,Rh,Pd)はマトリックス中に均一に分布していて、スポット状には析出していない。

3.6 FP放出挙動

FP挙動については、試料の組成、燃焼度および照射温度をパラメータにして、照射後の試料中のXe,CeおよびCsの分布をEPMAによる分析で調べた。試料の分析面は、厚さ約1mmの試料を研磨した任意の深さの断面で、照射後も大きな破片として原形を留めていた試料を含めて、FP濃度は、直径約2.5～2.6mmの試料の外周から中心まで250μm毎の位置における5ヶ所のUの特性X線強度を基準として、そのUに対するXe,CeおよびCsのそれぞれの特性X線強度の相対比(FP/U)で表した。従って、FPの相互の濃度の差を相対比から比較することを目的としており、照射によって生成したFPがマトリックスから放出されることなく全量存在しても、相対比は100%になるわけではない。試料測定部のEPMAによる分析点の面積は、スポット直径で約5～6μm相当である。なお、粉碎破損した試料のFP分析も2点ほど行なったが、位置は特定できず、試料マトリックス中の任意の位置として他の試料のデータと比較した。Fig.3.13は、無添加UO₂試料(試料No.D④)の中間部(外周から750μmの位置)の分析結果のチャート(例)である。U,Xe,CeおよびCsの特性X線強度は、このようなピークとなって現われ、他の分析チャートも大体同じようなパターンとして得られた。

まず、51-62GWd/t の燃焼度の範囲について無添加UO₂試料と添加物入りUO₂ 試料のFP分布を比較してFig. 3.14(a)~(c)とFig. 3.15にまとめた。Fig. 3.14には、試料の分析面の状態と 5点の分析位置(A- E点)を示した。図中の試料全体の写真の矢印は、測定位置の方向を表している。写真(a)は、燃焼度51GWd/t の低温照射領域(600-560°C)の無添加UO₂の試料(試料No.D④)で、組織変化の観察(Fig. 3.8(b.1)と(b.2))に示したように、形状破損もなく、細粒化組織ができている以外には 变化の少なかった試料である。その分析結果をFig. 3.15にプロット(太実線)した。FPとして生成したCeは、通常、UO₂マトリックス中にあって移行しないから、試料の燃焼が均一であれば Ce濃度分布も均一になる。この試料の場合、Ce/U 相対濃度比は 42~51%の間の値をとっている。一方、XeとCsは、照射温度や組成、組織変化によって結晶粒内から粒界に移行したり、マトリックスから放出されたりして、濃度分布は変化する。しかし、Xe/U とCs/Uの相対濃度比の分布は、それぞれ 42~55 %と42~51%で比較的変化が小さい。燃焼度51GWd/t 程度の場合の Xe生成量に対する特性X線強度による Xe/U相対濃度比は 経験的に約 55%と推定され、Xe/U相対濃度比42~55%は、生成Xeの76 ~100 %がマトリックス中に存在していることになる。

Fig. 3.14の写真(b) は 5%Mg-UO₂試料で、前述の無添加UO₂試料(試料No.D④)とほとんど同じ照射条件の燃焼度53GWd/t, (650 - 600°C)の試料(試料No.F④)の場合である。この試料も組織変化の観察(Fig.3.9(a.1)~(a.3))により、照射後の状態は無添加UO₂の挙動とあまり変わなかったものである。そのFPの分布をFig. 3.15(点線)で見ると、Xe の濃度が、無添加UO₂の試料よりも低目であるように見える。しかし、A点(試料の外周から250 μm)、C点(同750 μm) およびE点(同1250 μm)の37~39%の大きい値を考慮すると、B点とD点の分析点における添加Mgの不均質の濃度が、結果的に Xeの生成に影響していることなどが考えられる。いずれにしても無添加UO₂ のデータと大差はないと考えられる。

Fig. 3.14の写真(c)は、燃焼度55GWd/t ,(600-560°C)の5%Mg-5%Nb添加UO₂試料(試料No. F⑥)の形状とFP濃度の測定位置を示している。試料は、照射後に二分割に破損していたもので、組織変化の観察結果は、前節のFig. 3.11で述べた。照射前から試料の中心部よりも外周部の方に大きな気泡が多い試料であった。Fig. 3.14のFP分布(細実線)は、Xe、CsおよびCe共ほとんど無添加UO₂ のデータと重なるような状態で、試料が多孔質であったわりには、FP挙動に対して劣るような結果とはなっていない。

以上の 3 点の分析データに対して、燃焼度62GWd/tで 高温照射領域(930-820°C)の無添加UO₂試料(試料No.G⑨)の分析を行って比較検討した。この試料は、Fig. 3.8(d.1)~(d.3)の組織観察に示したように粉碎破損していたものである。分析個所は、これら

の破片の任意の2ヶ所を選んだ。分析の結果は、図の右端に任意の場所の意として2点ずつプロットした。燃焼度が51GWd/tの試料よりもおよそ10GWd/tさらに高いために、Ce/Uの相対濃度比も49%と56%で多少高く妥当な値となっている。しかし、CsとXeの結果はそれぞれ低い値になっており、これはマトリックスからの放出が大きいことを示唆している。燃焼度が60GWd/t程度の場合のXe生成量のXe/U相対濃度比は約65%と推定され、図のXe/U相対濃度比が10~12%であるということは、生成Xeの15~18%(=10/65~12/65)に相当する。

次に、84-94GWd/tの高燃焼度の場合の試料のFP分布についてFig. 3.14(d)~(f)とFig. 3.16に示す。Fig. 3.14(d)~(f)には、試料の分析面の状態と分析位置(A-E点の5ヶ所)を示した。写真(d)は、燃焼度87-94GWd/tの低温照射領域(600-560°C)の無添加UO₂の試料(試料No.D⑨,⑩, E⑨, ⑩のうちの一部)である。これらは、Fig. 3.8(c.1)~(c.3)の組織変化の観察で示したように、全面が典型的なリム組織になっている試料である。FP分析は、このうちの2個(Fig. 3.14(d))の試料全体の写真に記したIとIIの試料)について行った。試料Iの粗大気泡の大きさと分布は、他の試料とは多少異質で、試料外周部の通常の大きさの粗大気泡に対して、それより内部のほうにさらに大きな気泡が分布している。試料IIの方は、外周から中心部まで5μm以下の大さの一様な気泡が均一に分布した通常のリム組織を形成している。その2つの試料のFP分析の結果をFig. 3.16にプロット(太実線)した。CsとCeの値は、試料I, IIともほとんど同じであったために、試料IIのデータのみプロットし、試料Iの結果は図中から省略した。Ce/Uの相対濃度比は62~74%で、前出の51-62GWd/tの試料の場合より燃焼度が高い分だけCeの生成も多いが、UO₂マトリックス中におおよそ均一な濃度で分布している。Csの濃度も同様に試料外周から中心にわたって変化は少ない。それに対してXeは、Xe/Uの相対濃度比が17~44%の範囲にあって変化は大きい。試料Iの外周が約40%であるのに対して、内部のより大きい気泡の部分は20%前後である。また、試料IIは均一のリム組織の場合で、試料の外周が20%程度であるのに対して、中心に行くほど濃度が高くなって44%に達する。試料IとIIでは、ほぼ同じ範囲内で逆の傾向を示している。燃焼度90GWd/t程度の場合のXe生成量のXe/U相対濃度比は、約90%と推定され、Xe/U相対濃度比17~44%は、生成Xeの19~49%がマトリックス中に存在することになる。

高燃焼度の無添加UO₂試料に対して、燃焼度91GWd/t(600-650°C)の5%Mg添加UO₂試料(試料No.E⑬)の場合の形状とFP濃度の測定位置をFig. 3.14写真(e)に示す。試料は、照射によって多数の破片になった。この組織変化の観察結果は、Fig. 3.9(b.1)

～(b.3)で述べた。Mgが5%添加されたており、リム組織が全面に生成しているだけではなく、試料中心には大きな気泡の集積も発生しているような試料である。Fig. 3.16のFP分布(点線)は、CsおよびCeとも無添加UO₂試料とほぼ同じ程度であり、Xe/U相対濃度比の方は18～28%で、無添加UO₂試料の低い濃度とほぼ同程度(約20%前後)である。

さらに、Mgが15%添加されたUO₂試料(試料No.F⑬)の燃焼度91GWd/t,(650-600°C)の場合をFig. 3.14(f)に示した。試料は、照射後に二分割に破損していた。また、組織変化の観察結果は、Fig. 3.10(d.1)～(d.3)で詳細に述べた。全面的にリム組織になっている試料で、特にFP分析のD点(試料外周から1000μmの位置)は、細粒化した結晶粒そのものの個所で興味深い。それらのFP分布(細実線)をFig. 3.16に示した。Ce/U相対濃度比は、試料外周(A点)で67%、中心付近(E点)で59%である。中間の濃度が多少変動しているが、無添加UO₂試料と大差なく試料中に一様に分布していると考えられる。Csの濃度分布も他の試料と相対的に変わらない。また、Xe/U相対濃度比の方は11～19%で、無添加UO₂試料の低い濃度かそれよりも多少低い値になっている。これは、燃焼度90GWd/tの場合のXe生成量のわずか12～21%であると推定される。細粒化した結晶粒上(D点)のXe濃度は、生成量の12%と推定され、他の個所の濃度と変らず、試料中にはほぼ均一に分布(あるいは放出)していると考えられる。

以上の3点の分析データに対して、燃焼度84GWd/t,(640-570°C)のTi添加UO₂試料(試料No.B⑯～⑰のうちの一部)の分析を行って比較検討した。この試料は、Fig. 3.12(b.1)～(b.4)の組織観察で示したように小片に破損し、かつ、他の試料同様に全面的なリム組織ができていたものである。分析個所は、これらの破片の任意の1ヶ所のみで、試料の内部なのか周辺部分なのかは特定できない。分析の結果はFig. 3.16の図の右端に任意の場所の意としてプロットした。Ti添加試料の高燃焼度のCeとCsのU相対濃度比は、それぞれ74%と67%で、他の試料と比較してほとんど同じ程度の値である。また、他の試料よりも形状破損がひどいわりには、Xeの濃度についても著しい相違を生じていない。すなわち、無添加UO₂試料のデータと大差はないという結果であった。

添加物入りUO₂のFP放出挙動をまとめると、同じ照射条件(燃焼度、照射温度等)では、90GWd/tに達する高燃焼度まで、無添加UO₂と顕著な違いがないという結果になった。添加物のうち、Mg添加UO₂に関してもSawbridgeら⁽⁶⁾のようなFPガス放出低減化への影響は見られない。

添加物の有無にかかわらず、照射温度の差がUO₂マトリックスからのCsとXe放出

率に大きく影響した。すなわち、高温照射領域(930 - 800°C)と低温照射領域(650 - 550°C)では、高温照射領域の試料の方が Cs と Xe 放出率は大きい。これは、燃料ピンの γ スキャンと燃料ピンからの FP ガス放出量の結果とも一致している。高温照射領域では、多くの試料が破損したこと、温度の高い方が FP ガスの拡散も促進されることなどに起因した結果と考えられる。

低温領域の照射の場合で、燃焼度が 60GWd/t 程度では Cs、Xe 共 UO_2 マトリックス中に比較的よく保持されて、放出率は低いが、燃焼度がさらに高い 90GWd/t 前後になると、Cs はあまり変わらないが、Xe の放出率は高くなる。これは、高燃焼度におけるリム組織の生成によるものであろう。

Table 3.1 Appearances of the doped UO_2 specimens after irradiation .

Capsule		Upper Section			Middle Section			Lower Section			Total	
Burnup (GWd/t)	20 %eU 6 & 10% eU	84 - 87 32 - 34 , 60 - 62			85 - 94 34 - 35 , 51 - 55			60 - 66 19 - 21 , 32 - 34				
Temperature (°C)		640 - 550			650 - 560			930 - 800				
Specimen \ Fuel Pin		A	B	C	D	E	F	G	H	I		
20 %eU	3.5%Ti	⑯*	⑯△	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	34	
		⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*		
		⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*	⑯*		
			⑯*			⑯*			⑯*	⑯*		
			⑯*			⑯*			⑯*	⑯*		
			⑯*			⑯*			⑯*	⑯*		
	5%Nb-5%Nb	⑯△		⑯△	⑯△	⑯△		⑯△			5	
			⑯△	⑯△			⑯△			⑯*	6	
	15%Mg		⑯△	⑯△			⑯△			⑯*	6	
							⑯*			⑯*		
Undoped	5%Mg		⑯△			⑯*			⑯*		6	
			⑯△			⑯*			⑯*			
						⑯*			⑯*			
							⑯*			⑯*		
								⑯*				
	2.5%Mg	⑯*			⑯*			⑯*			6	
					⑯△			⑯*				
						⑯△			⑯*			
							⑯△			⑯*		
								⑯△				
10 %eU	5%Nb-5%Nb	⑦◎	⑧◎		⑦◎		⑥△	⑦*			5	
		⑥◎	⑦◎		⑥◎	⑦◎		⑥◎			6	
							⑤◎				6	
	5%Mg			⑤△			⑤◎			⑤◎	6	
				④△			④◎			④◎		
					⑥△		⑥◎		⑥◎			
	2.5%Mg		⑤◎			⑤◎			⑤△		6	
					⑥△		⑥◎		⑥◎			
						⑤◎			⑤△			
6 %eU	Undoped	⑤◎			⑤◎			④◎			6	
		④◎			④◎			③◎			6	
	5%Nb-5%Nb	③◎		③◎	③◎		③◎			③*	5	
						④◎			④◎		6	
				③◎		③◎			③◎		6	
	10%Mg			②◎			②◎			②◎	6	
				①◎			①◎			①◎		
	2.5%Mg		②◎			②◎			②◎		6	
			①◎			①◎			①◎			
	Undoped	②◎			②◎			②◎			6	
		①◎			①◎			①◎			6	

Notes ; 1) Total numbers of specimens. ①~⑯ : Specimen's No..

Appearances of the specimens after irradiation :

◎ No failure, △ A few fragments,

* A lot of fragments like powder.

Table 3.2 Swelling rates of the doped UO_2 specimens .
by a method measured density

Composition of Specimens	Unirradiated	Irradiated				Swelling Rate (% $\Delta V/V$)
	Density (g/cm ³) Weight / Pieces of Specimens	Specimen No. (Pieces of Specimens)	Burnup (GWd/t)	Temperature (°C)	Density (g/cm ³)	
Undoped UO_2 (6% enriched U)	10.542 (96.2%TD) 0.0806g / 2 p.	A①② (2 p.)	34	640 - 550	10.5691	0.0
		D①② (2 p.)	34 - 35	600 - 560	10.3649	1.71
		G①② (2 p.)	19 - 20	900 - 800	10.4750	0.64
10%Mg - UO_2 (6% enriched U)	10.340 0.0847g / 2 p.	C①② (2 p.)	34	640 - 550	10.2008	1.36
		F①② (2 p.)	34	600 - 560	10.1014	2.36
		I①② (2 p.)	19 - 20	900 - 800	10.2683	0.70
15%Mg - UO_2 (6% enriched U)	10.380 0.0844g / 2 p.	B③④ (2 p.)	33 - 34	640 - 550	10.2128	1.64
		E③④ (2 p.)	35	600 - 560	10.1325	2.44
		H③④ (2 p.)	21	900 - 800	10.1144	2.63
Undoped UO_2 (10% enriched U)	10.507 (95.9%TD) 0.1340g / 3 p.	A④⑤ (2 p.)	60	640 - 550	10.3979	1.04
2.5%Mg - 10%e UO_2 (10% enriched U)	10.520 0.1546g / 3 p.	B⑤⑥ (2 p.)	60 - 61	640 - 550	10.1413	3.73
		E⑤⑥ (2 p.)	53	600 - 560	10.2582	2.55
5%Mg - UO_2 (10% enriched U)	10.490 0.0456g / 1 p.	F④⑤ (2 p.)	53 - 54	600 - 560	10.0622	4.25
		I④⑤ (2 p.)	32 - 33	900 - 800	10.2282	2.56
Undoped UO_2 (20% enriched U)	10.322 (94.2%TD) 0.1941g / 4 p.	D⑧⑨⑩ (3p.)	87 - 94	600 - 560	9.0227	14.40
		E⑧⑨⑩ (3p.) (Tot. 6 p.)				

Table 3.3 Swelling rates of the doped UO_2 specimens by a method measured dimensions.

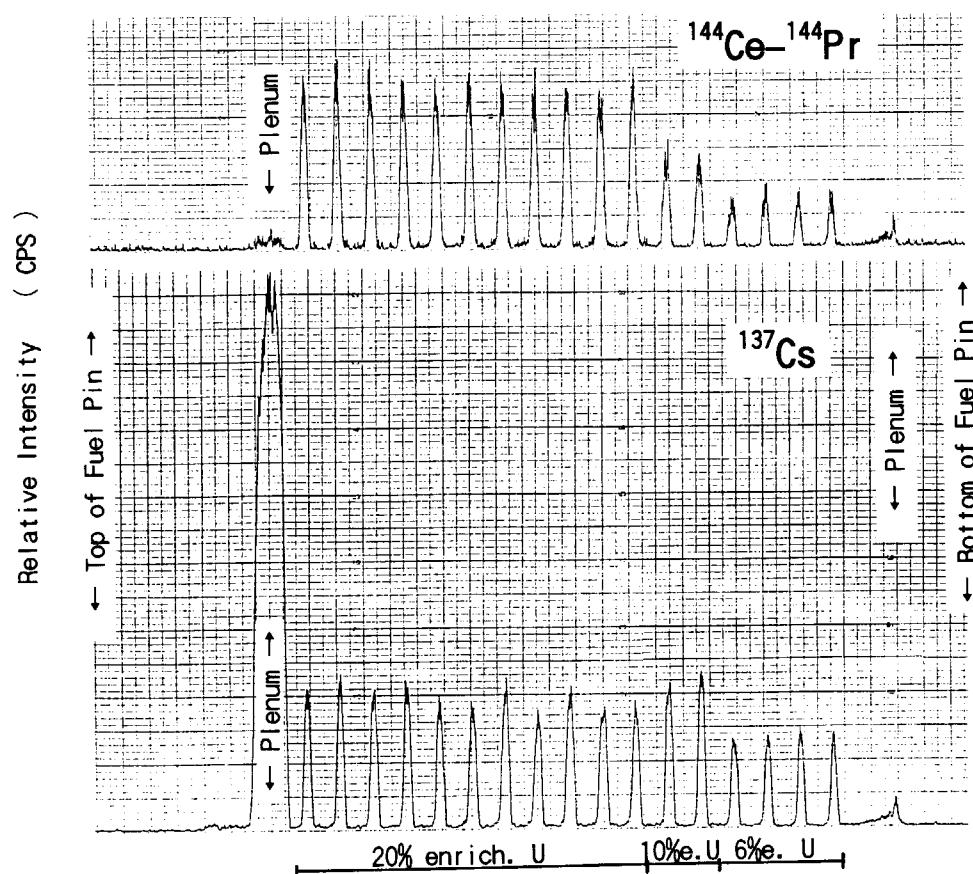
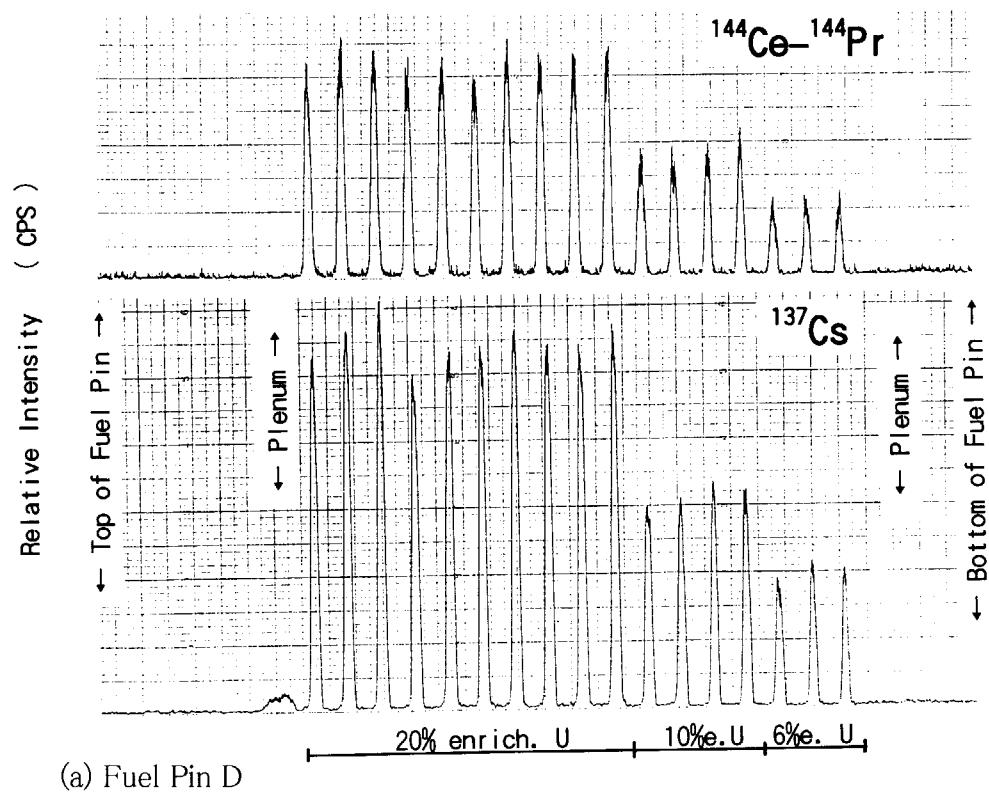
Specimens		Burnup (GWd/t)	Temp. (°C)	Diameter		Thickness		Weight Change after Irradiation (mg)	Swelling Rate ($\Delta V/V\%$)
Composition	No.			Unirrad. (mm)	Irrad. (μm)	Unirrad. (mm)	Irrad. (μm)		
Undoped UO_2	A②	34	640 - 550	2.503	+16	0.800	+ 3	- 0.1	1.66
	A④	60		2.596	+17	0.908	+ 3	+ 0.1	1.65
	A⑤			2.587	+18	0.831	+ 0	- 0.1	1.40
	D①	34	600 - 560	2.495	+18	0.789	+ 4	0.0	1.96
	D④	51		2.601	+27	0.920	+14	- 0.1	3.64
	G①	19	900 - 800	2.487	+13	0.861	+ 4	+ 0.2	1.52
	G②	20		2.488	+16	0.917	+ 3	+ 0.1	1.62
	G③	32		2.593	+13	0.929	+28	+ 0.1	4.05
2.5%Mg- UO_2	B②	34	640 - 550	2.495	+20	0.857	+ 3	+ 0.2	1.97
	E①	34	600 - 560	2.514	+ 2	0.829	+ 2	+ 0.1	0.40
	E②			2.518	+ 1	0.831	+ 2	+ 0.2	0.30
	E⑥	53		2.586	+ 9	0.908	+ 6	- 0.1	1.36
	H①	19	900 - 800	2.513	+ 4	0.839	+ 4	0.0	0.80
	H②	20		2.506	+11	0.869	+ 3	- 0.1	1.22
5%Mg- UO_2	F④	53	600 - 560	2.527	+31	0.938	+ 9	+ 0.2	3.45
	F⑤	54		2.519	+32	0.895	+19	+ 0.1	4.73
	I④	32	900 - 800	2.514	+22	0.959	+ 7	0.0	2.50
10%Mg- UO_2	C②	34	640 - 550	2.504	+18	0.778	+ 4	+ 0.1	1.83
	F①	34	600 - 560	2.490	+19	0.847	+19	0.0	3.81
	F②	34		2.481	+16	0.882	+12	+ 0.1	2.67
	I①	19	900 - 800	2.481	+28	0.927	+24	+ 0.3	4.92
	I②	20		2.472	+35	0.864	+ 9	- 0.4	3.92
15%Mg- UO_2	A⑥	61	640 - 550	2.501	+25	0.973	+ 3	- 0.1	2.32
	B④	33		2.417	+22	0.849	+ 4	- 0.1	2.31
	D⑥	54	600 - 560	2.495	+33	0.900	+ 9	0.0	3.69
	E③	35		2.428	+13	0.851	+ 9	- 0.1	2.14
	E④			2.428	+13	0.864	+ 8	+ 0.1	2.01
	E⑦	54		2.514	+15	0.933	+ 7	- 0.1	1.96
	G⑤	34	900 - 800	2.493	+31	0.919	+ 7	- 0.1	3.28
	G⑥			2.504	+29	0.935	+11	+ 0.1	3.53

Table 3.4 Thermal diffusivities and thermal conductivities calculated from the diffusivities of the specimens .

Specimen	Undoped UO ₂ (10% enriched U)		5%Mg-UO ₂ (10% enrich.U)		15%Mg-UO ₂ (6% enrich.U)				
Nominal Temp Measured	Unirrad.	[Specimen No. A-④] Irradiated (60GWd/t)		Unirrad.	[No. I-④] Irradiated (32GWd/t)		Unirrad.	[No. E-③] Irradiated (35GWd/t)	
		1st Run	2nd Run						
20°C	0.0334 (18°C)	0.0139 (18°C)	0.0168 (19°C)	0.0299 (19°C)	0.0166 (20°C)	0.0284 (20°C)	0.0145 (18°C)		
	0.0816 (291 K)	0.0336 (291 K)	0.0406 (292 K)	0.0817 (292 K)	0.0442 (293 K)	0.0745 (293 K)	0.0371 (291 K)		
200°C	0.0270 (179°C)	0.0117 (188°C)	0.0164 (177°C)	0.0236 (182°C)	0.0138 (175°C)	0.0263 (181°C)	0.0121 (172°C)		
	0.0790 (452 K)	0.0340 (461 K)	0.0475 (450 K)	0.0767 (455 K)	0.0435 (448 K)	0.0820 (454 K)	0.0367 (445 K)		
400°C	0.0175 (401°C)	0.0092 (411°C)	0.0118 (400°C)	0.0166 (401°C)	0.0105 (397°C)	0.0187 (399°C)	0.0093 (397°C)		
	0.0547 (674 K)	0.0285 (684 K)	0.0365 (673 K)	0.0576 (674 K)	0.0355 (670 K)	0.0624 (672 K)	0.0306 (670 K)		
600°C	0.0138 (585°C)	0.0078 (599°C)	0.0097 (585°C)	0.0128 (589°C)	0.0088 (587°C)	0.0140 (586°C)	0.0080 (591°C)		
	0.0444 (858 K)	0.0248 (872 K)	0.0309 (858 K)	0.0455 (862 K)	0.0306 (860 K)	0.0480 (859 K)	0.0268 (864 K)		
800°C	0.0114 (793°C)	0.0073 (800°C)	0.0083 (795°C)	0.0107 (796°C)	0.0077 (796°C)	0.0116 (796°C)	0.0073 (797°C)		
	0.0373 (1066 K)	0.0236 (1073 K)	0.0269 (1068 K)	0.0389 (1069 K)	0.0273 (1069 K)	0.0404 (1069 K)	0.0248 (1070 K)		
1000°C	0.0096 (990°C)	0.0065 (993°C)	0.0073 (993°C)	0.0093 (993°C)	0.0073 (993°C)	0.0100 (993°C)	0.0069 (994°C)		
	0.0319 (1263 K)	0.0214 (1266 K)	0.0240 (1266 K)	0.0343 (1266 K)	0.0262 (1266 K)	0.0354 (1266 K)	0.0238 (1267 K)		
1200°C	0.0083 (1198°C)	0.0064 (1200°C)	0.0068 (1201°C)	0.0081 (1202°C)	0.0068 (1199°C)	0.0087 (1201°C)	0.0067 (1200°C)		
	0.0279 (1471 K)	0.0213 (1473 K)	0.0226 (1474 K)	0.0302 (1475 K)	0.0247 (1472 K)	0.0311 (1474 K)	0.0234 (1473 K)		
1400°C	0.0075 (1382°C)	0.0060 (1384°C)	0.0063 (1385°C)	0.0073 (1384°C)	0.0062 (1384°C)	0.0078 (1384°C)	0.0062 (1385°C)		
	0.0255 (1655 K)	0.0202 (1657 K)	0.0212 (1658 K)	0.0276 (1657 K)	0.0228 (1657 K)	0.0282 (1657 K)	0.0219 (1658 K)		
Density (ρ; g/cm ³)	10.51	10.398		10.49	10.228	10.38	10.133		

[Notes] Upper: Measured Thermal Diffusivity α (cm²/sec).Lower: Calculated Thermal Conductivity λ (W/cm K).

(°C)or(K) : Real temperatures measured thermal diffusivity .



(b) Fuel Pin H

Fig. 3.1 Gamma scanning of the fuel pins .

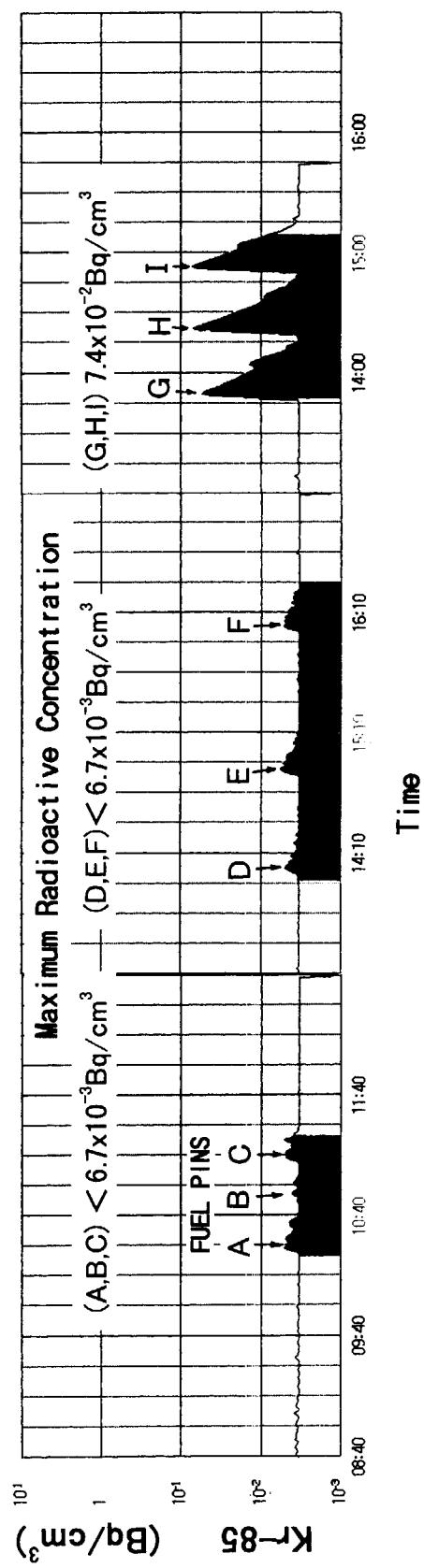
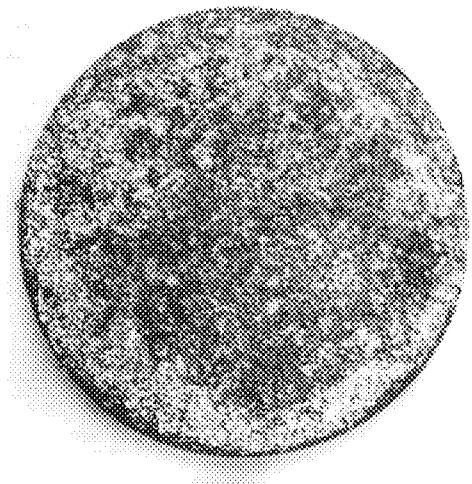
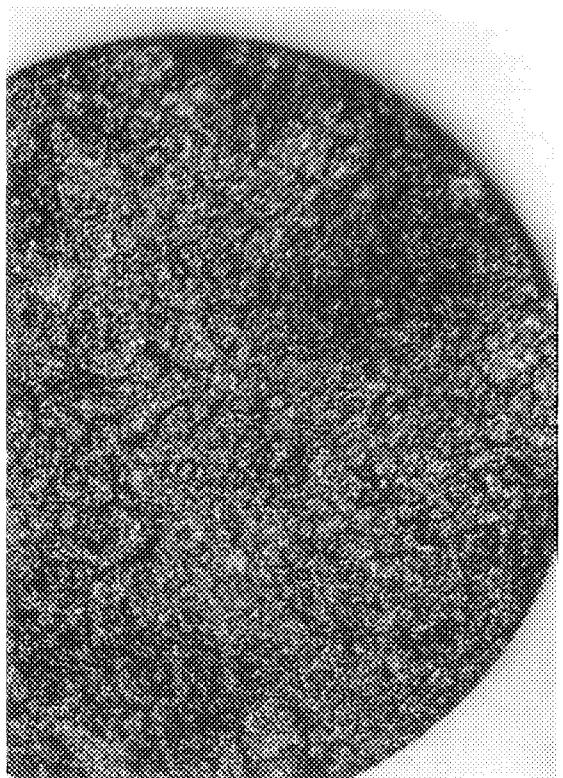


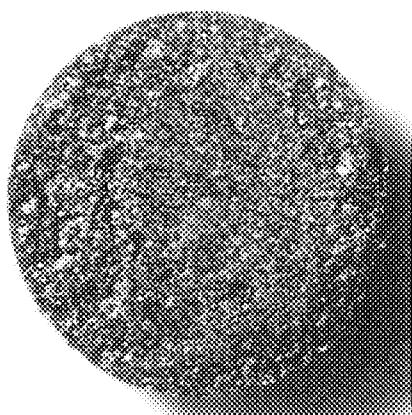
Fig. 3.2 FP gas (Kr-85) release from the fuel pins .



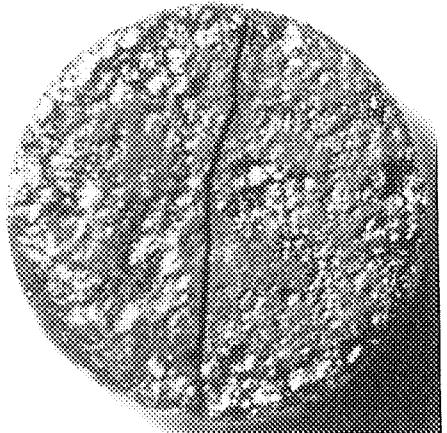
(a1) Unirradiated UO_2
(6% enriched U)



(b1) Unirradiated UO_2
(20% enriched U)

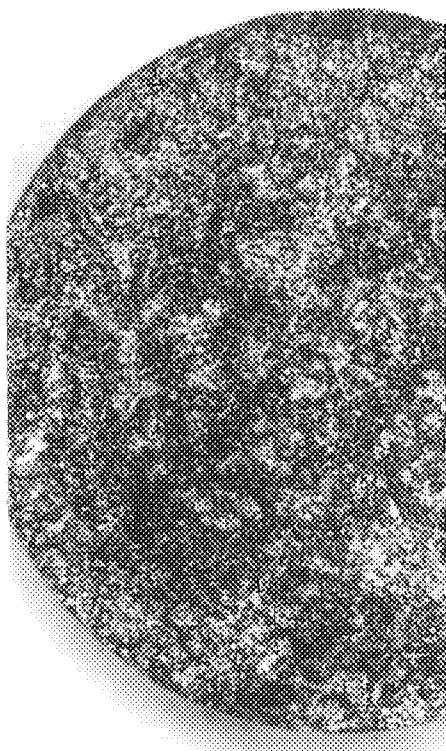


(a2) UO_2 (G ①)
Irradiated at 19GWd/t



(b2) UO_2 (E ⑧)
Irradiated at 91GWd/t

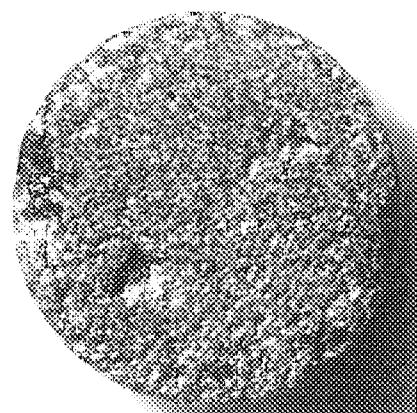
Fig. 3.3 Typical aspects of the irradiated specimens compared with unirradiated ones.



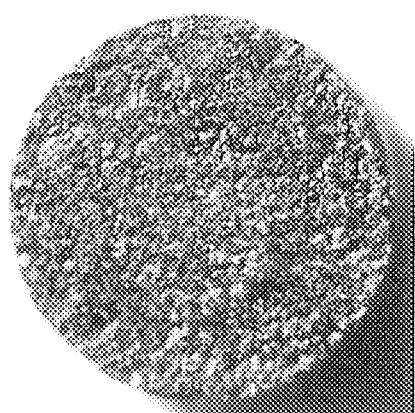
(c,l) Unirradiated 5%Mg-UO₂
(10% enriched U)



(d,l) Unirradiated 15%Mg-UO₂
(10% enriched U)

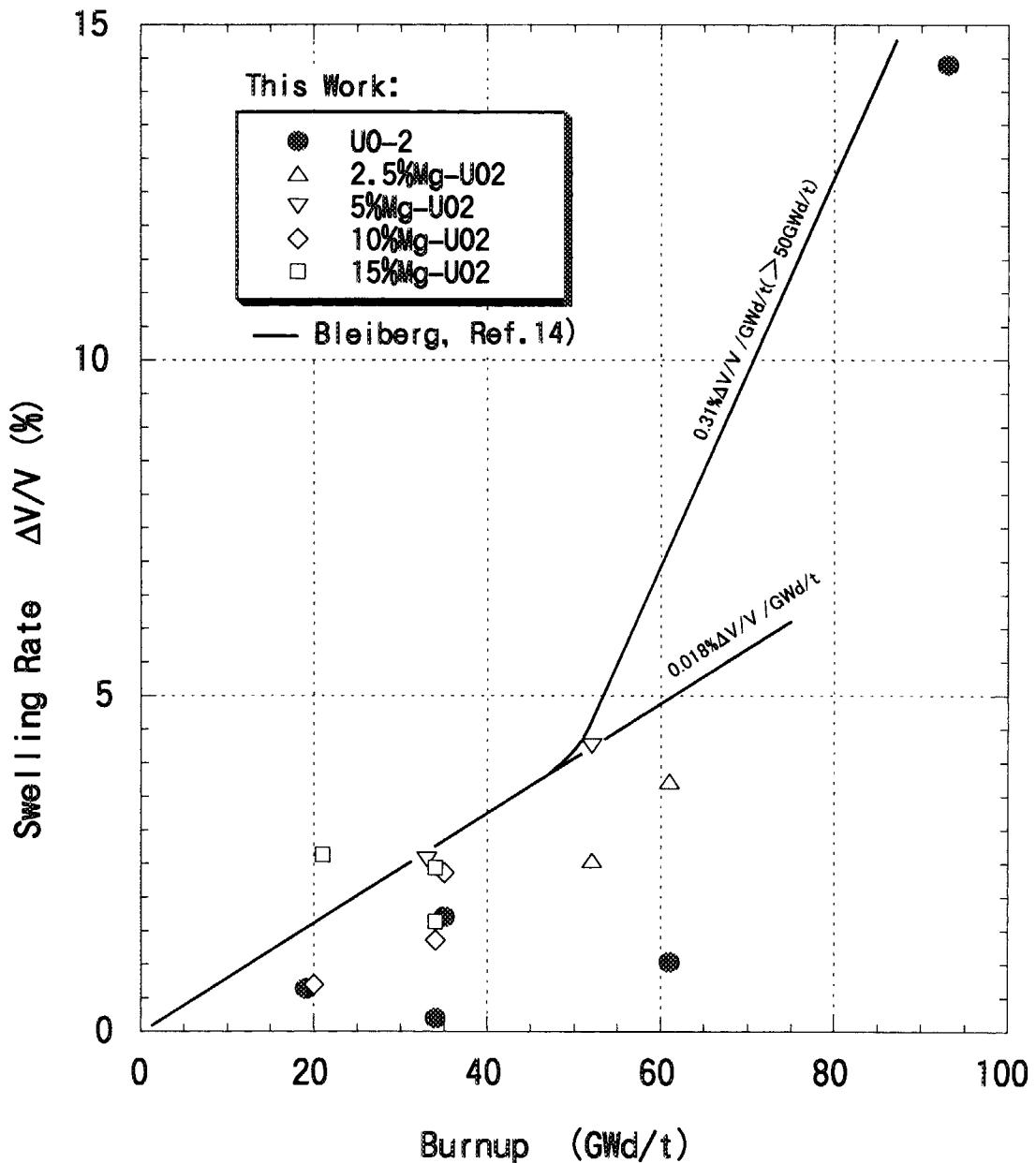


(c2) 5%Mg-UO₂ (F ④)
Irradiated at 53GWd/t



(d2) 15%Mg-UO₂ (A ⑥)
Irradiated at 61GWd/t

Fig. 3.3 (continued) Typical aspects of the irradiated specimens compared with unirradiated ones.

Fig. 3.4 Swelling rates of the doped UO_2 specimens vs. burnup .

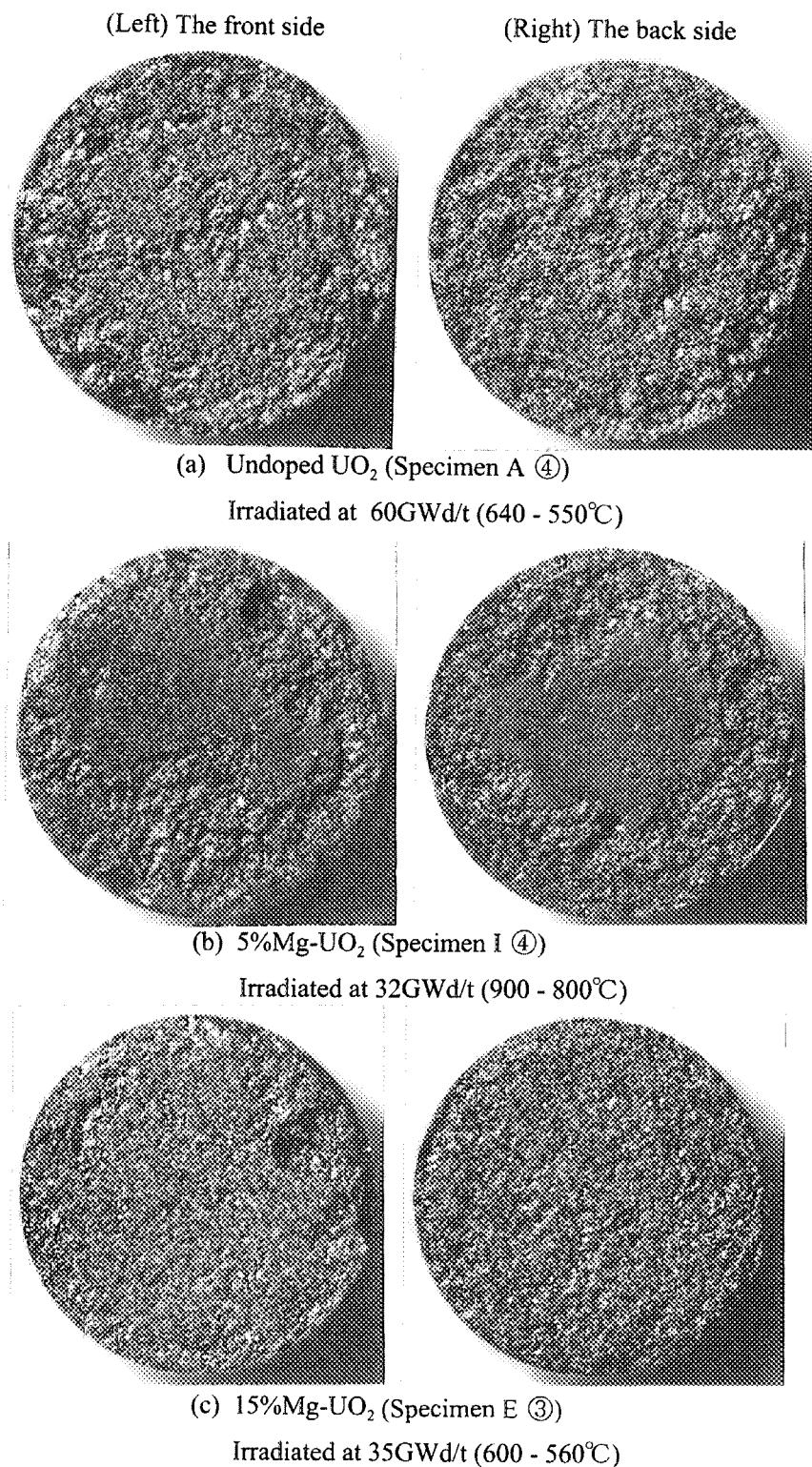


Fig. 3.5 Appearances of the specimens measured thermal diffusivity.

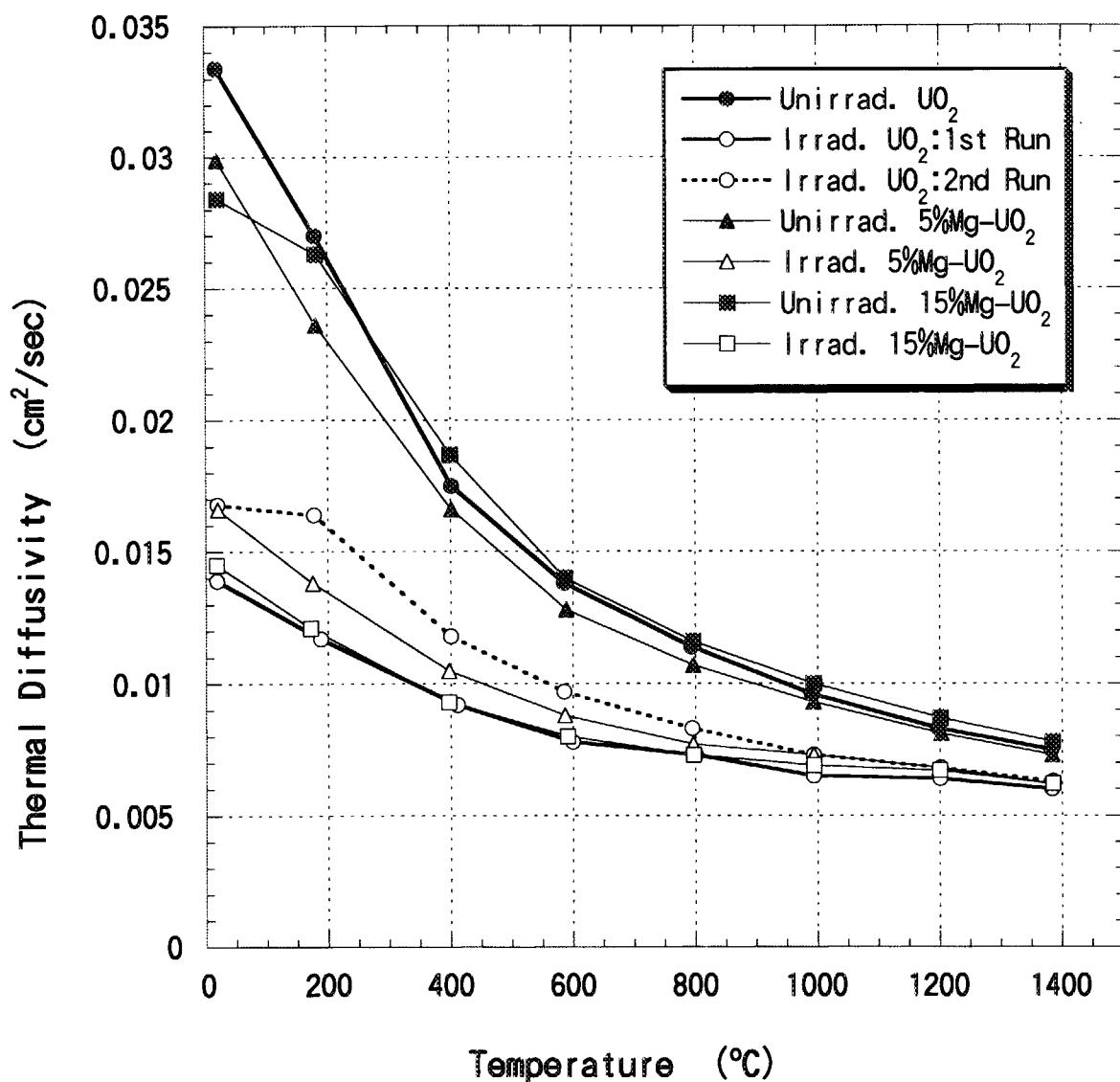


Fig. 3.6 Thermal diffusivities of the unirradiated and irradiated specimens .

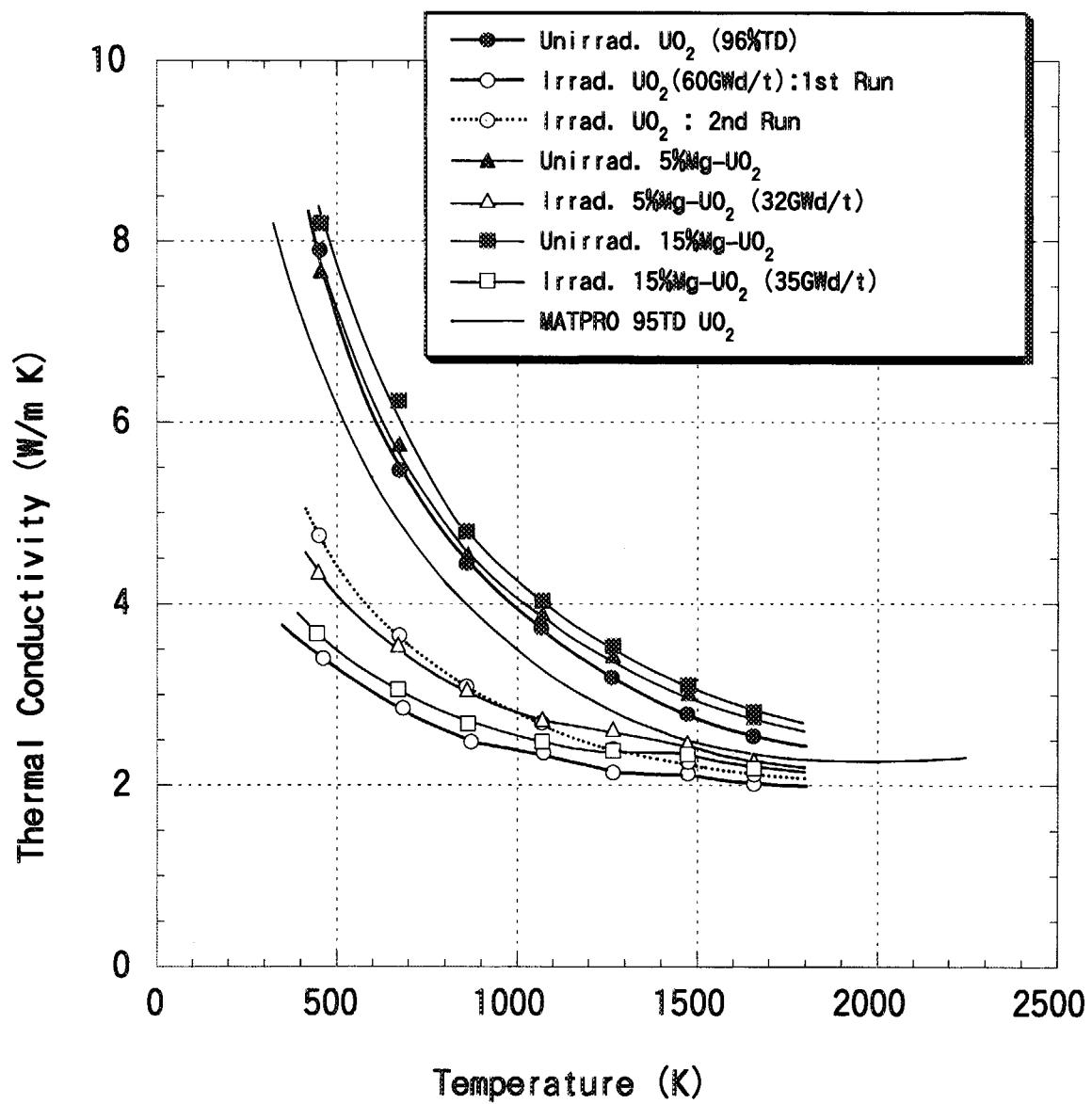
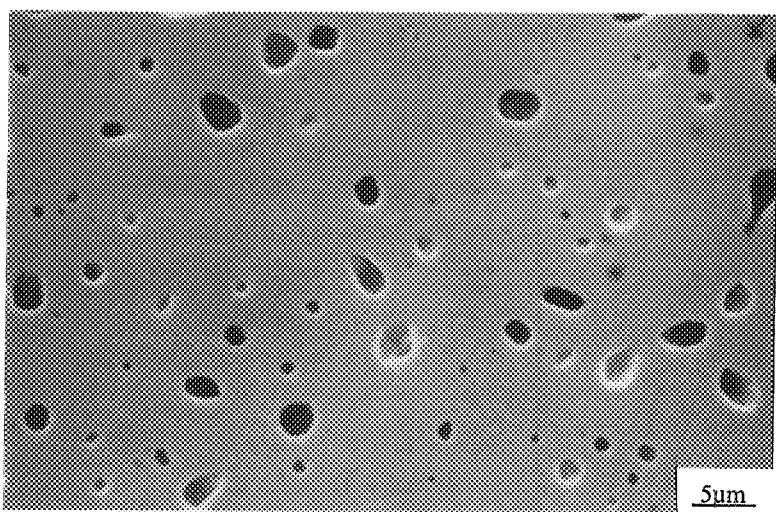
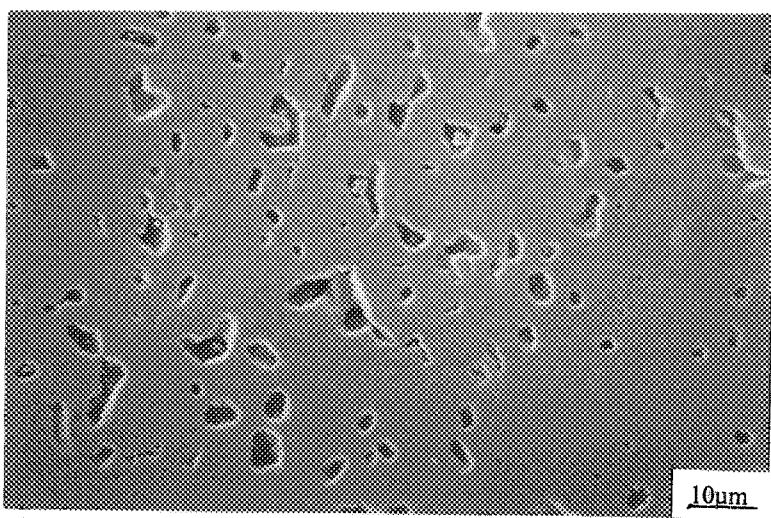


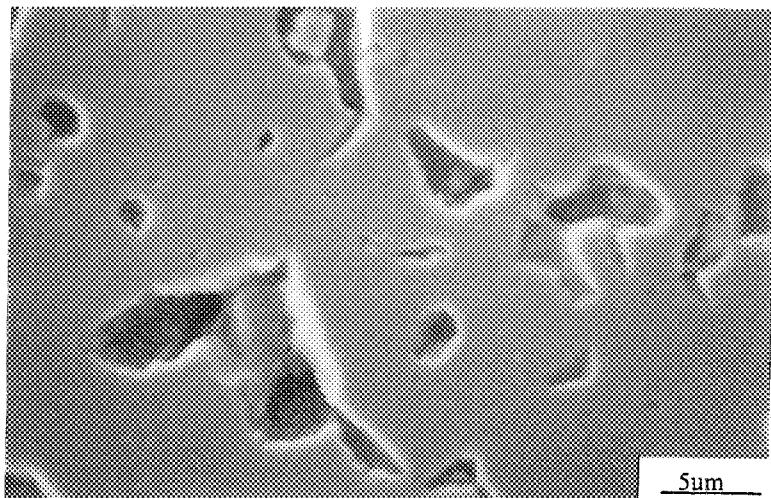
Fig. 3.7 Thermal conductivities of the unirradiated and irradiated specimens .



(a) SEM micrograph of unirradiated specimen .

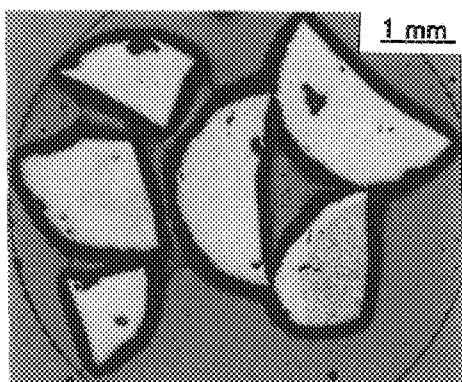


(b.1) SEM micrograph of Specimen D (4),
irradiated at 51GWd/t , (600-560°C).

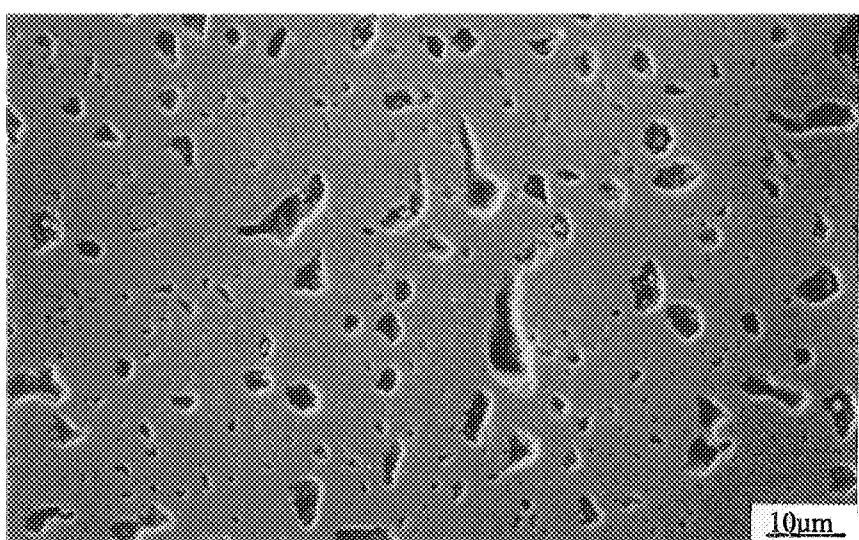


(b.2) Higher magnification of SEM micrograph (b.1) .

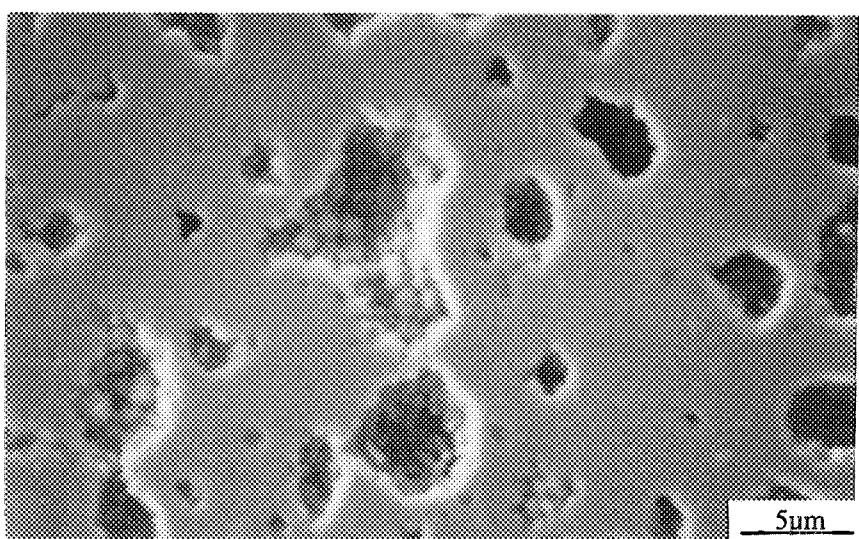
Fig. 3.8 Ceramographs of the undoped UO₂ specimens .



(c.1) Fragments of specimens D ⑨,⑩,E ⑨,⑩ ,
Irradiated at 87-94GWd/t ,(600-560°C) .

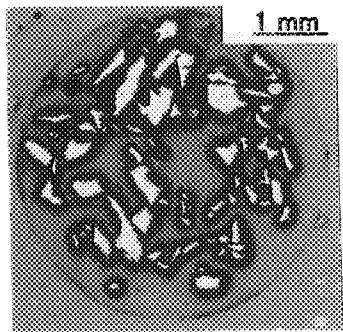


(c.2) SEM micrograph of part of specimens D ⑨,⑩,E ⑨,⑩ .

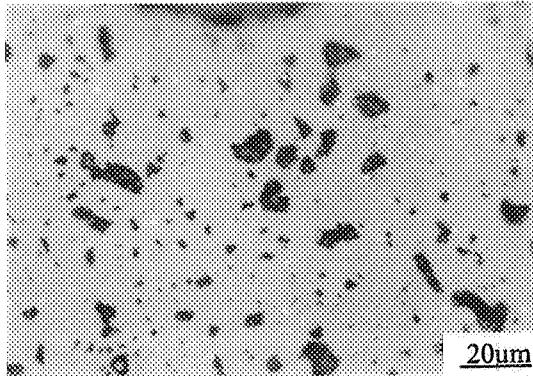


(c.3) Higher magnification of SEM micrograph (c.2) .

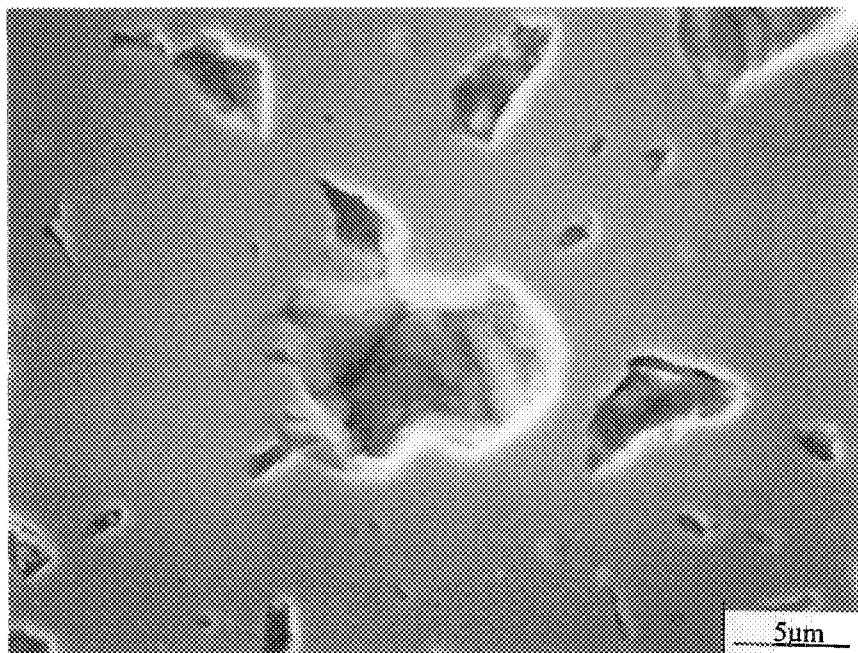
Fig. 3.8 (continued) Ceramographs of the undoped UO_2 specimens .



(d.1) Fragments of specimens G ⑨ ,
Irradiated at 62 GWd/t ,(930-820°C) .

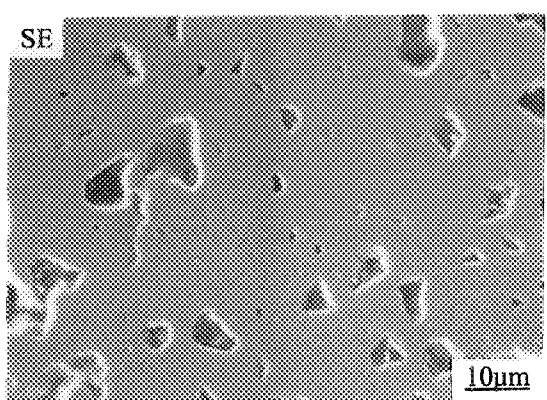


(d.2) Ceramograph of specimen G ⑨



(d.3) SEM micrograph of specimen G ⑨ .

Fig. 3.8 (continued) Ceramographs of the undoped UO_2 specimens .



(d.4) EPMA of specimen G ⑨ ,
Irradiated at 62GWd/t ,(930-820°C) .

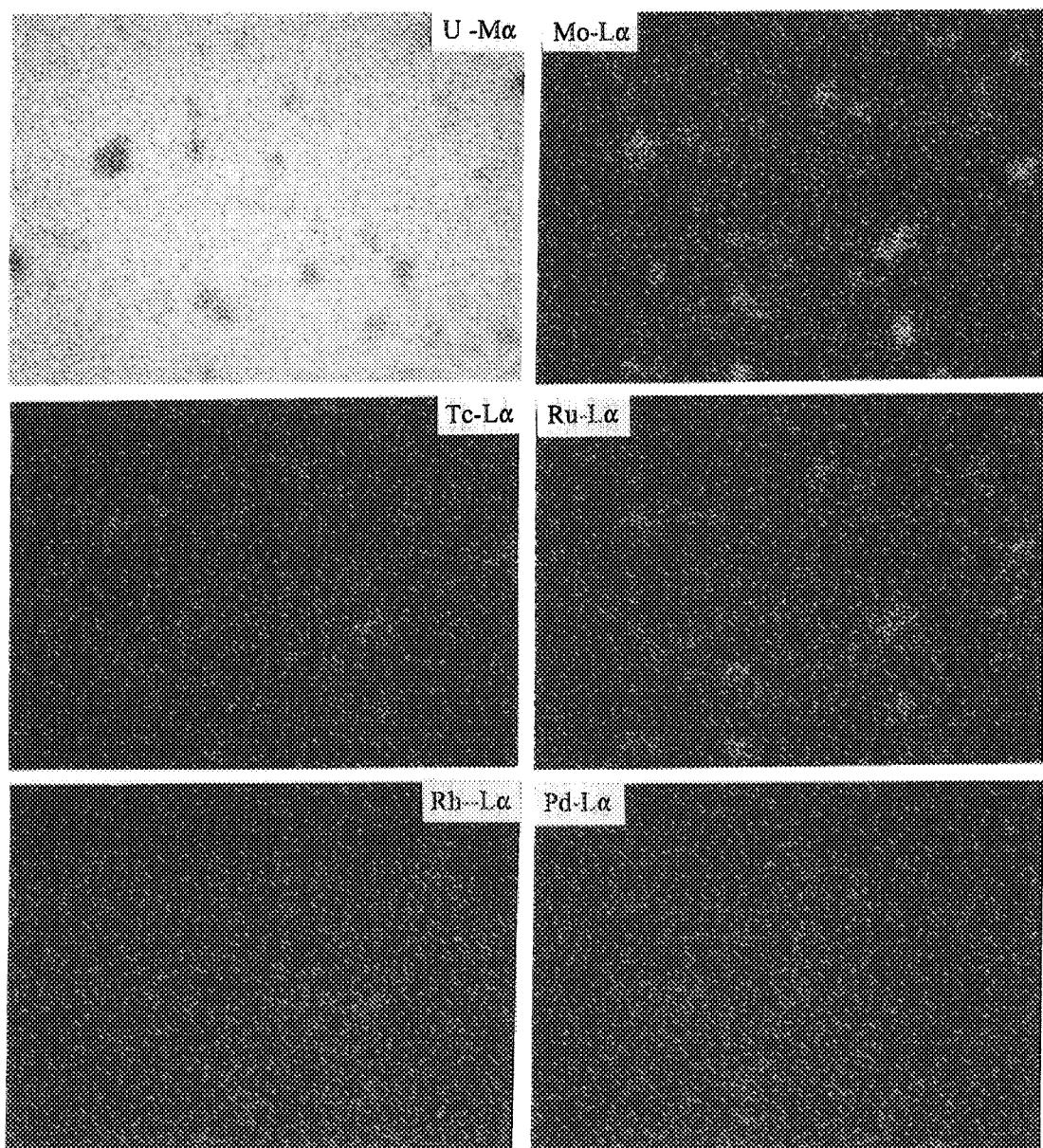
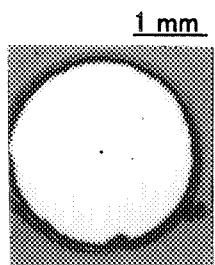
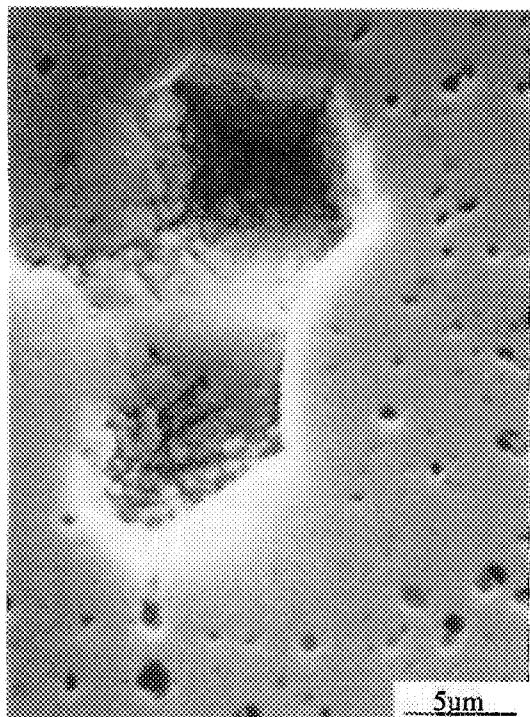


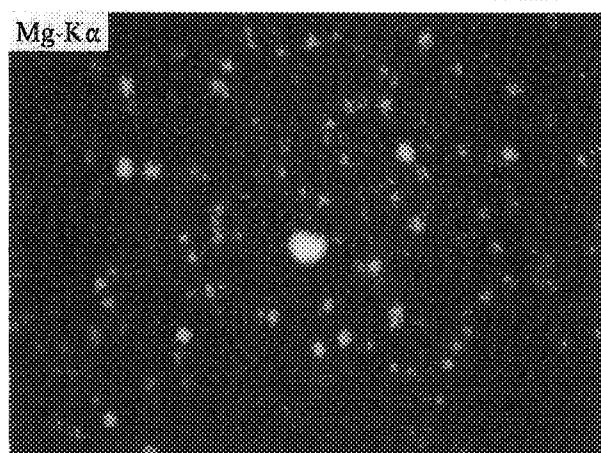
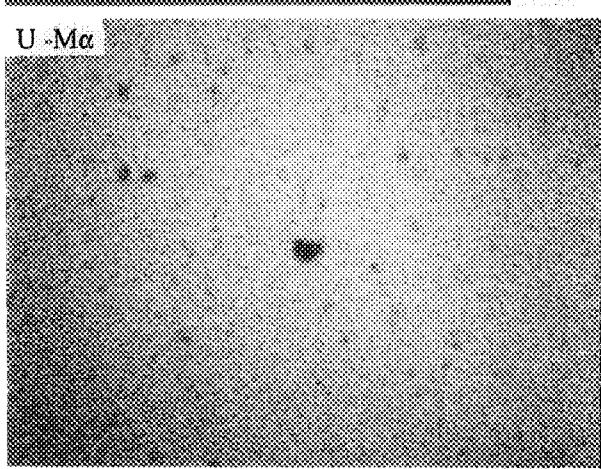
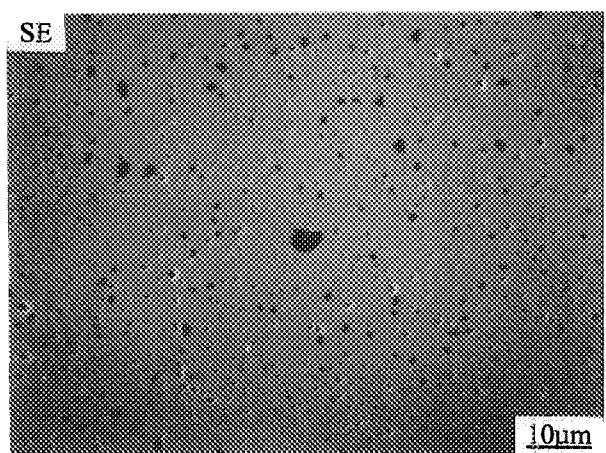
Fig. 3.8 (continued) Ceramographs of the undoped UO_2 specimens .



(a.1) Ceramograph of specimen F ④ ,
Irradiated at 53 GWd/t ,(600-560°C) .

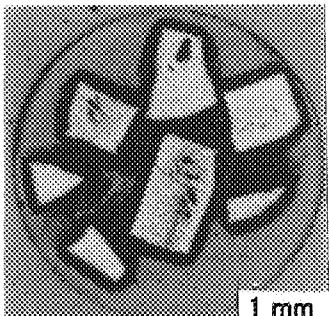


(a.2) SEM micrograph of specimen F ④ .

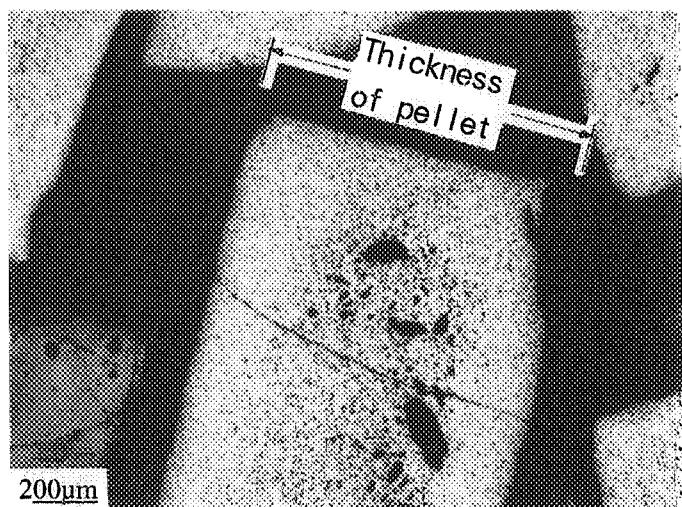


(a.3) EPMA of specimen F ④ .

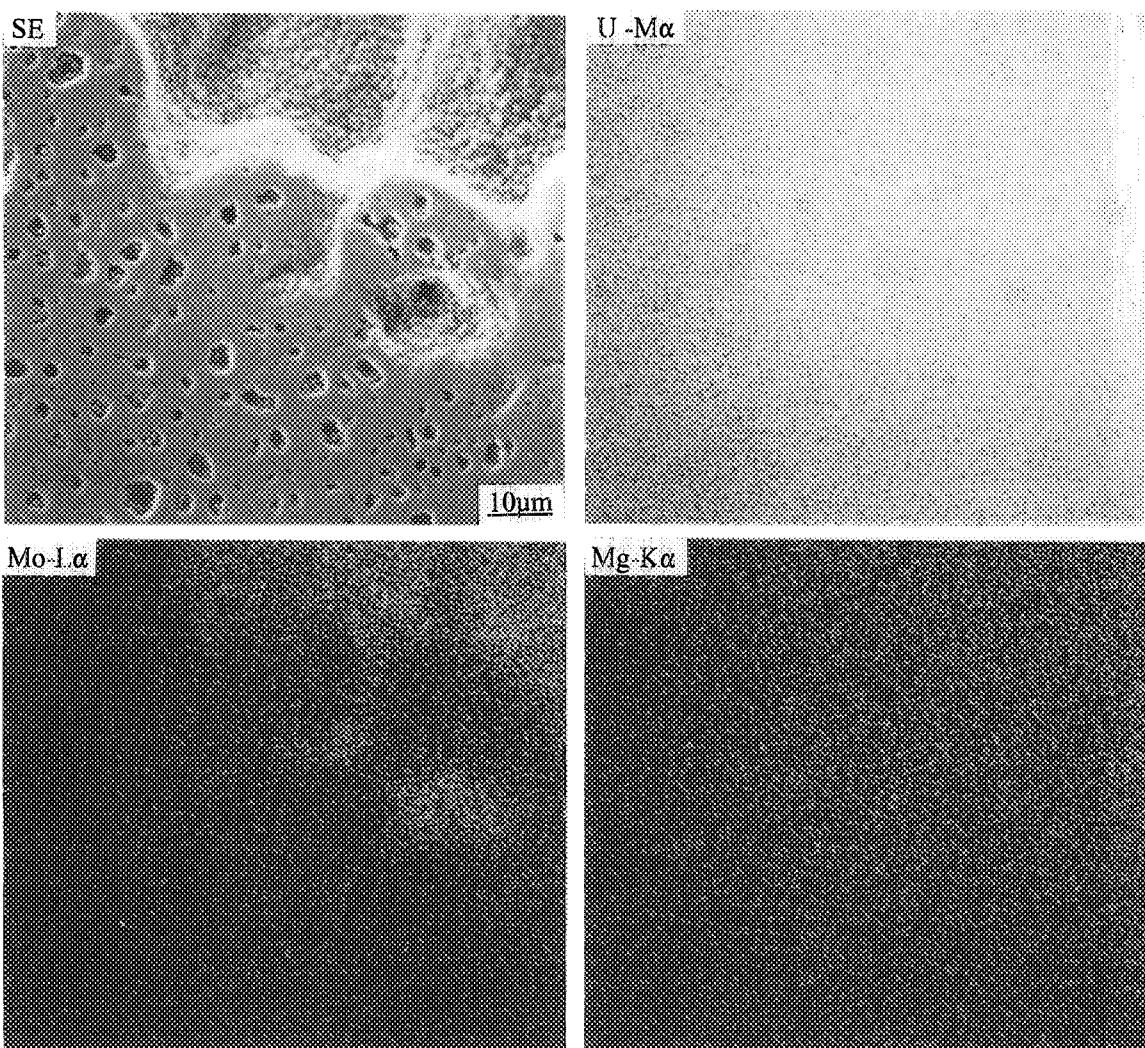
Fig. 3.9 Ceramographs of the 5%Mg doped UO_2 specimens .



(b.1) Fragments of specimen E ⑬,
Irradiated at 91 GWd/t ,
(650–600°C) .



(b.2) Higher magnification of ceramograph (b.1) .



(b.3) EPMA of specimen E ⑬ .

Fig. 3.9 (continued) Ceramographs of the 5%Mg doped UO_2 specimens .

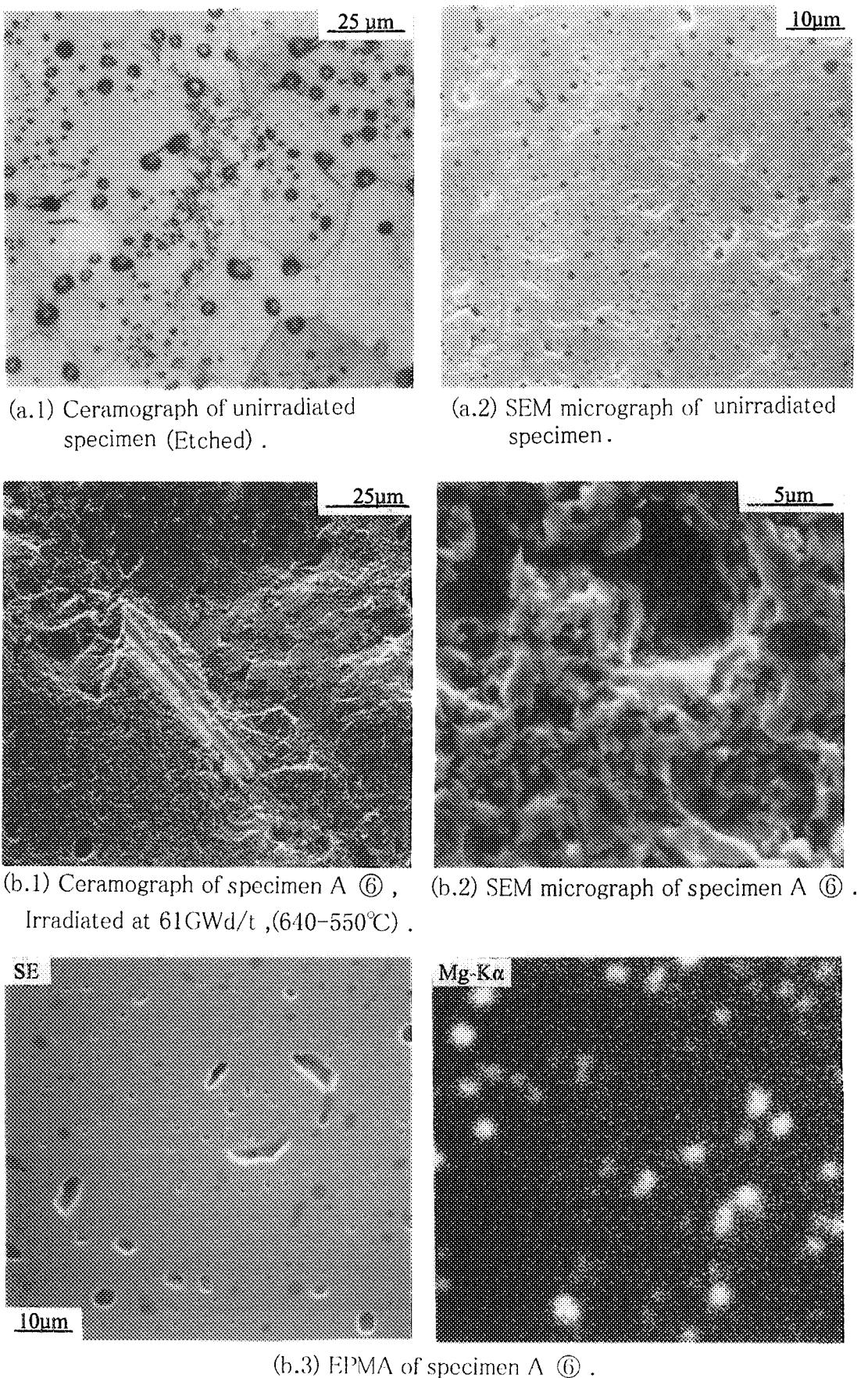
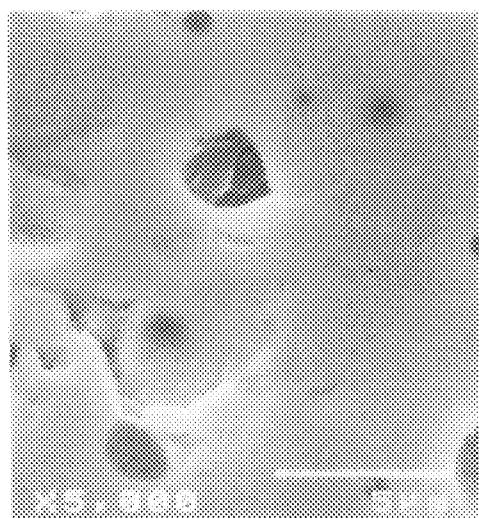
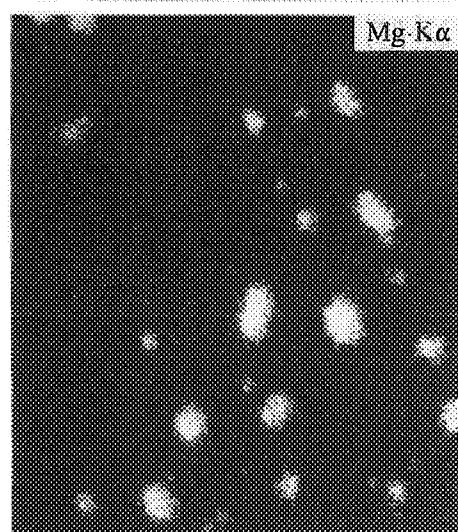
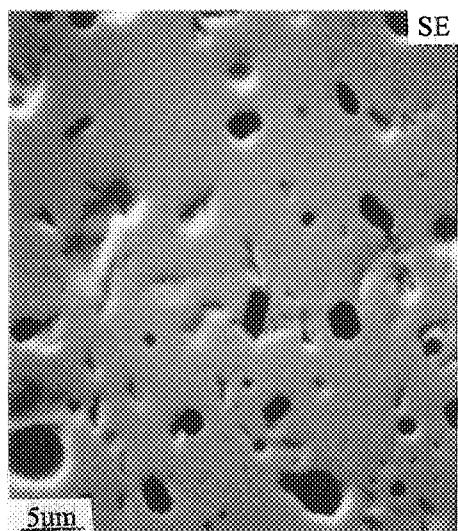


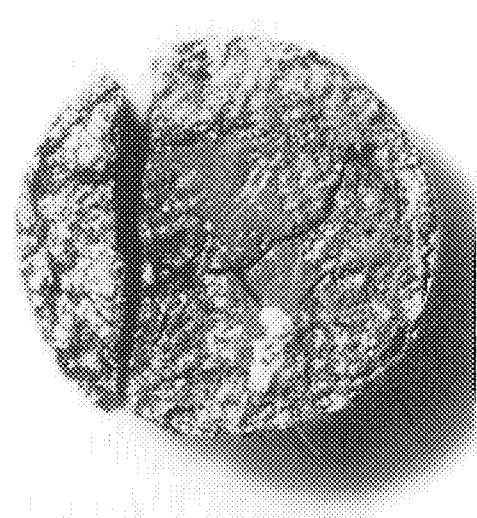
Fig. 3.10 Ceramographs of the 15%Mg doped UO_2 specimens .



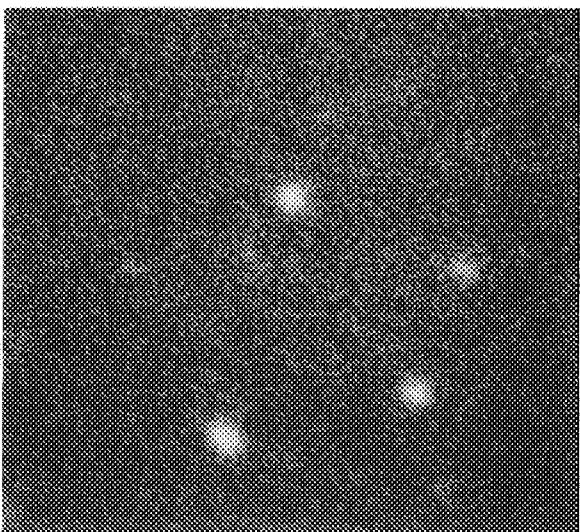
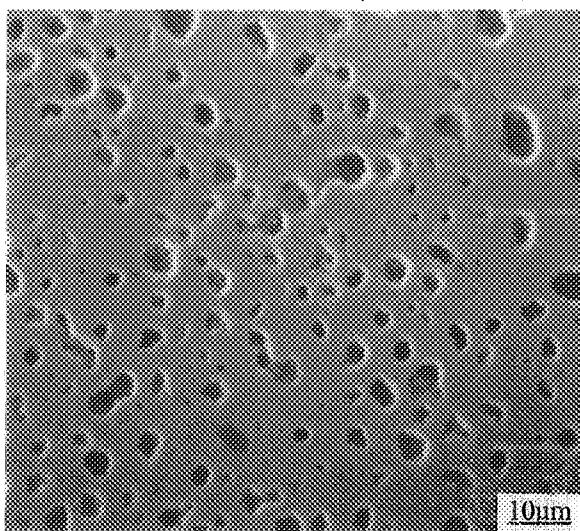
(c.1) SEM micrograph of unirradiated specimen .



(c.2) EPMA of unirradiated specimen .

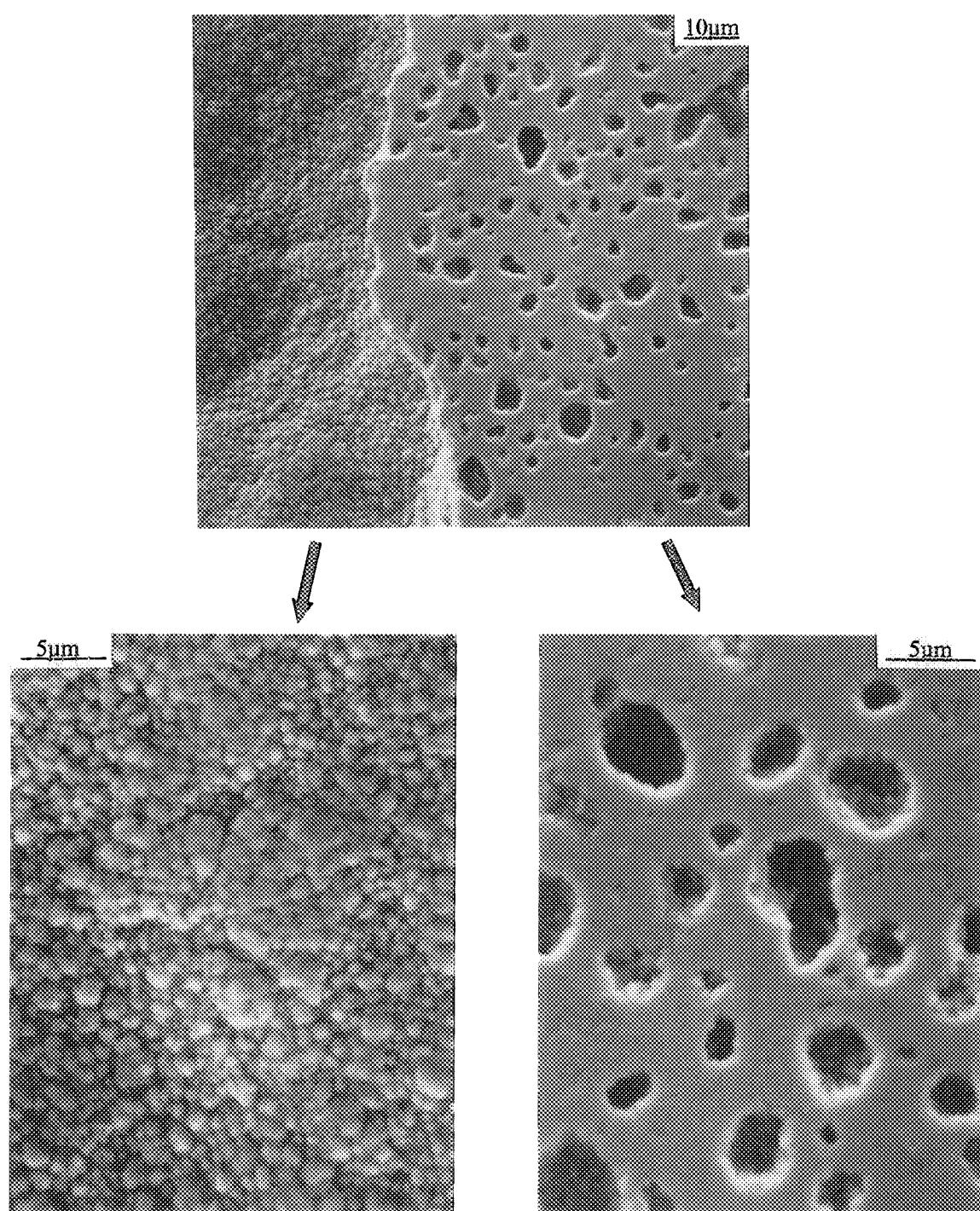


(d.1) Ceramograph of specimen F ⑬ , irradiated at 91GWd/t ,(650–600°C) .



(d.2) EPMA of specimen F ⑬ .

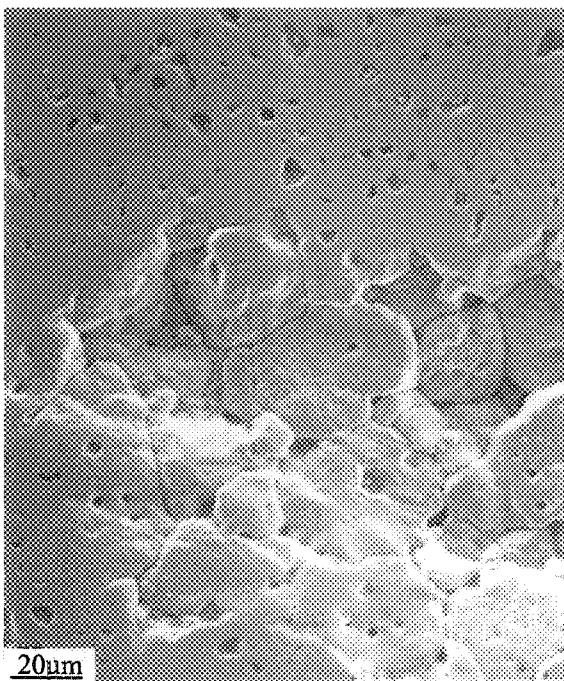
Fig. 3.10 (continued) Ceramographs of the 15%Mg doped UO₂ specimens .



(d.3) SEM of specimen F (13),
irradiated at 91GWd/t , (650-600°C) .

Fig. 3.10 (continued) Ceramographs of the 15%Mg doped UO_2 specimens .

(e.1) SEM micrograph of specimens I ⑩,⑪ ,
irradiated at 63-64GWd/t ,(930-820°C) .



(e.2) EPMA of specimens I ⑩,⑪ .

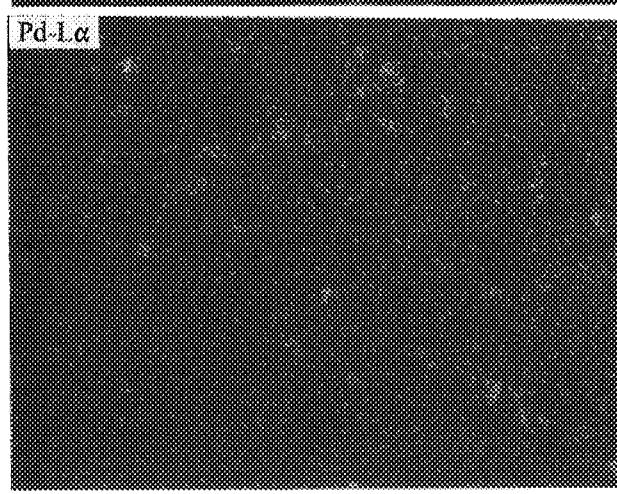
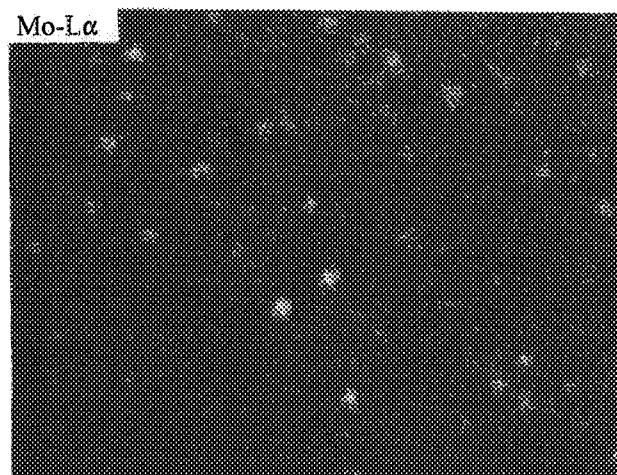
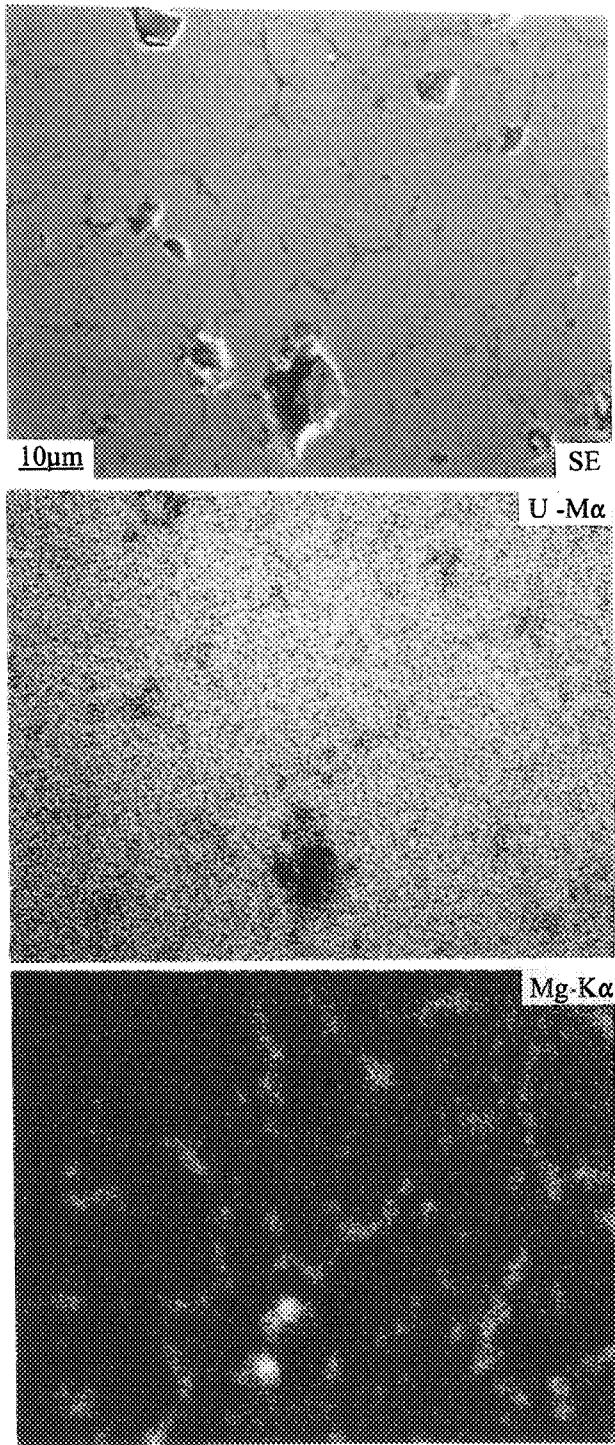
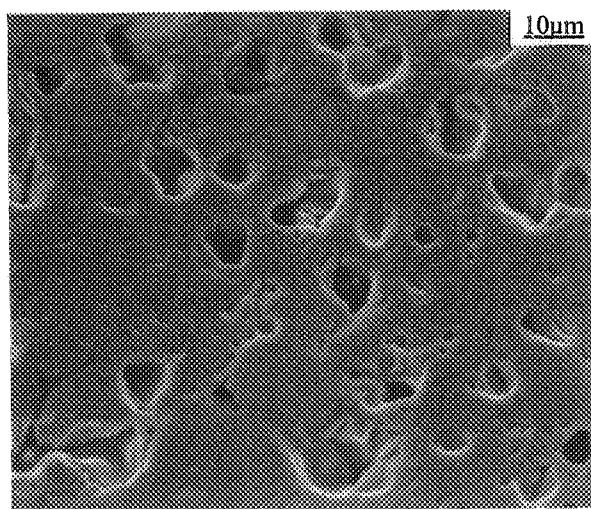
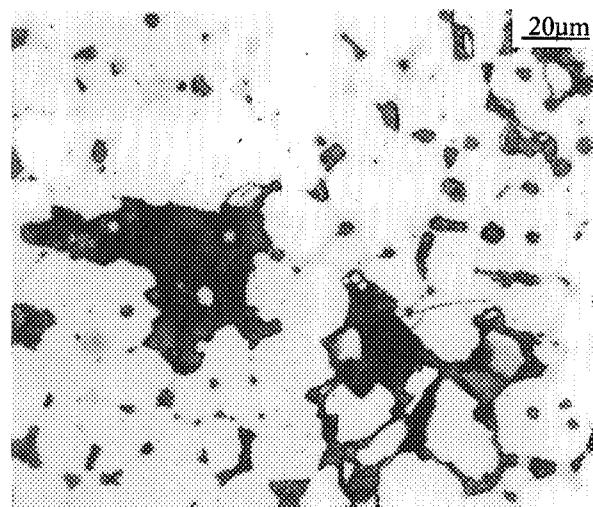


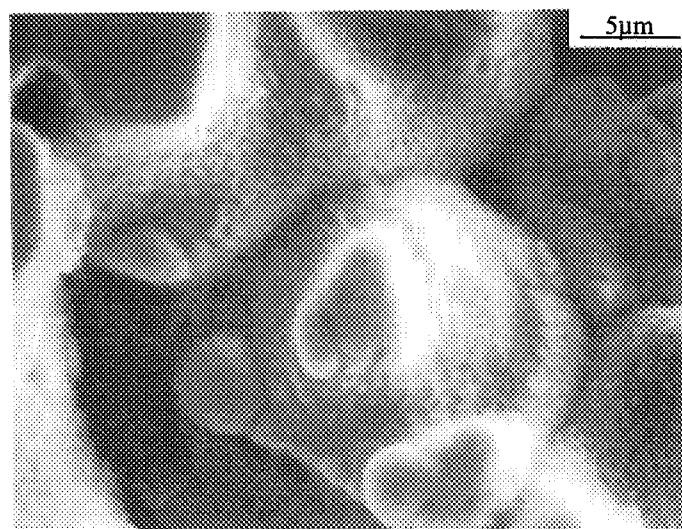
Fig. 3.10 (continued) Ceramographs of the 15%Mg doped UO₂ specimens .



(a) SEM micrograph of unirradiated specimen .

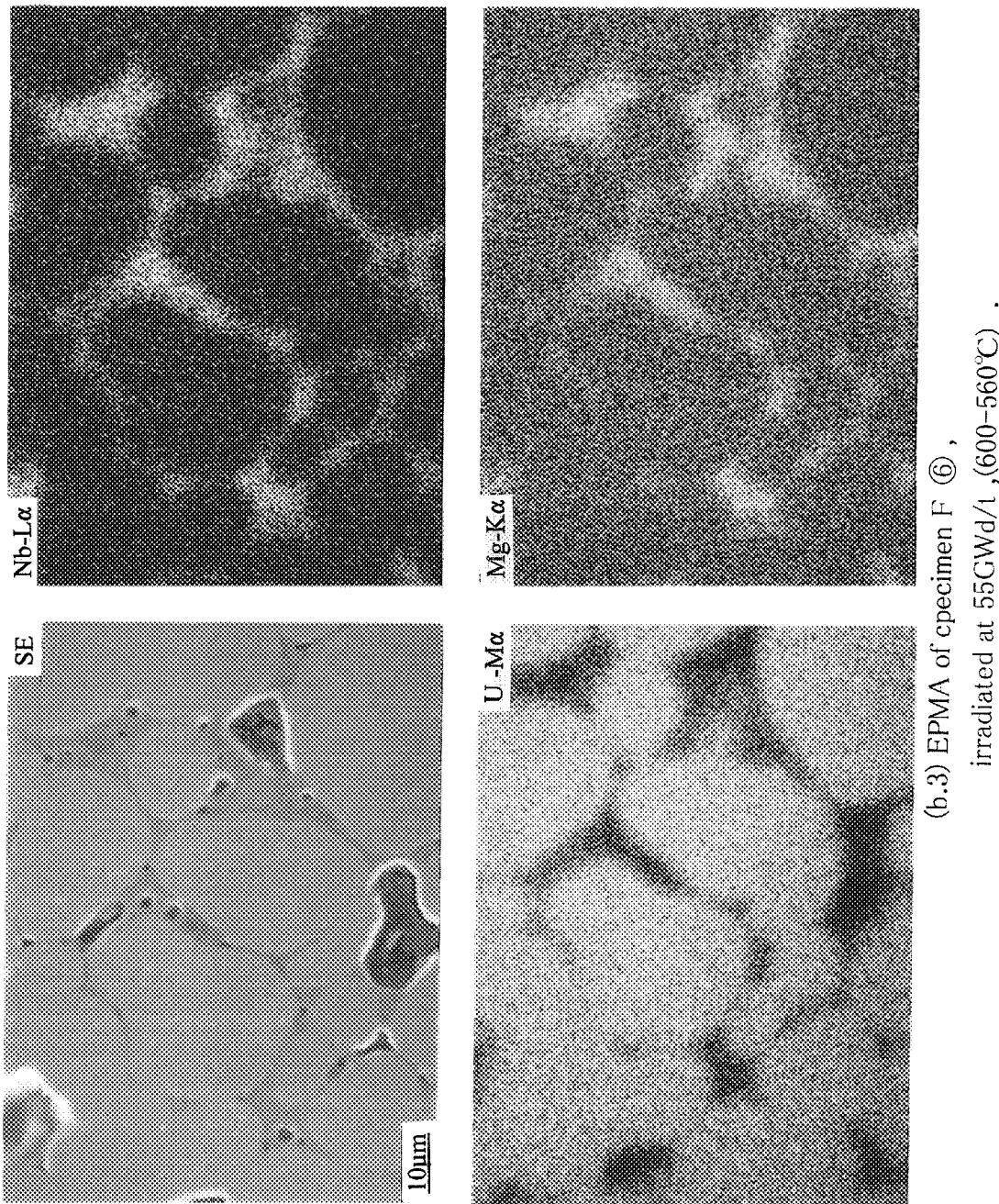


(b.1) SEM micrograph of specimen F ⑥ ,
irradiated at 55GWd/t ,(600-560°C) .



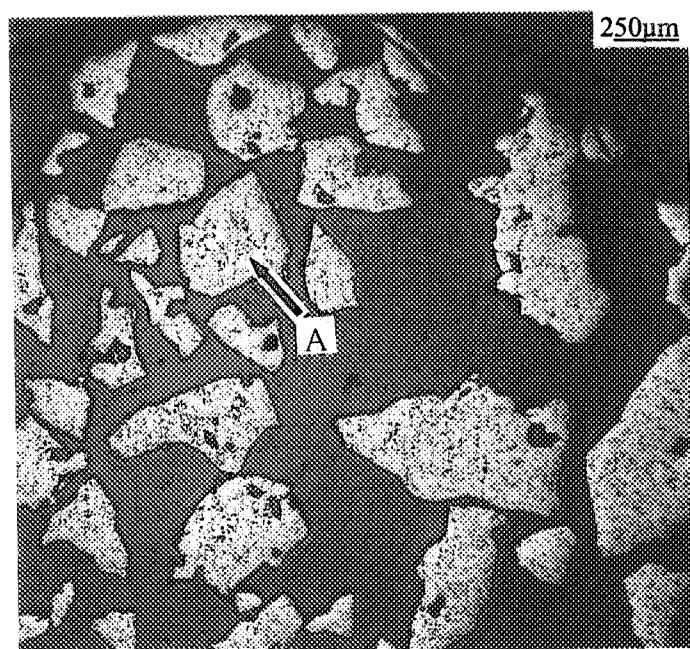
(b.2) SEM micrograph of specimen F ⑥ .

Fig. 3.11 Ceramographs of the 5%Mg-5%Nb doped UO₂ specimens .

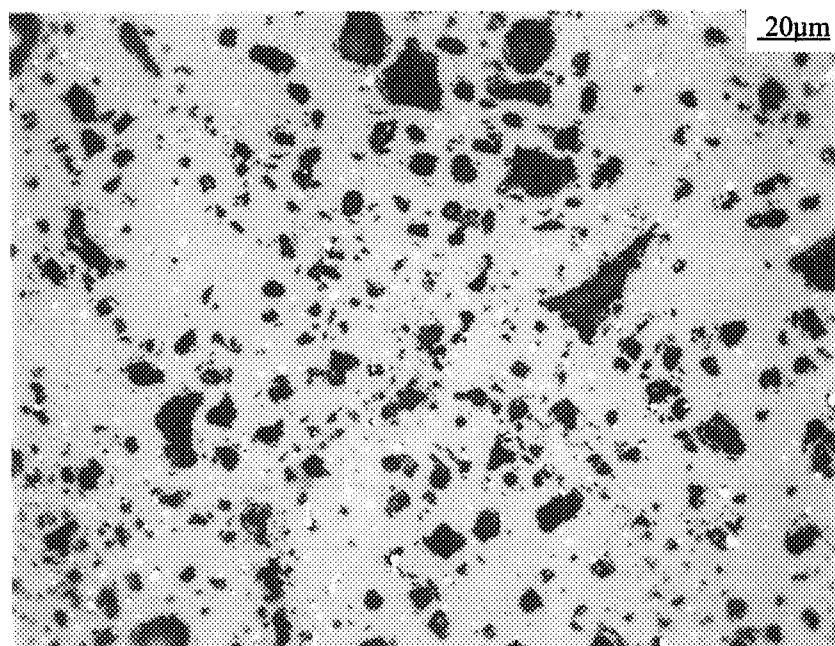


(b.3) EPMA of specimen F (⑥),
irradiated at 55Gwd/t (600–560°C).

Fig. 3.11 (continued) Ceramographs of the 5%Mg–5%Nb doped UO_2 specimens .

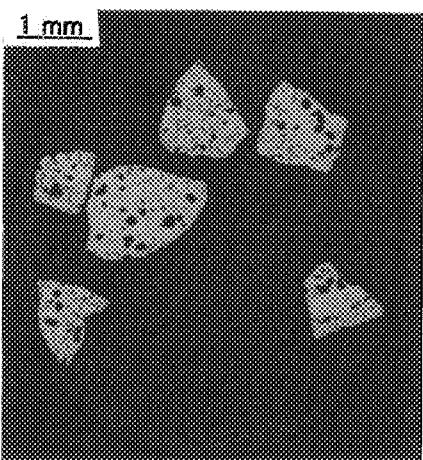


(a.1) Fragments of specimens H ⑯,⑰,⑱,⑲ ,
irradiated at 66GWd/t ,(930-820°C) .

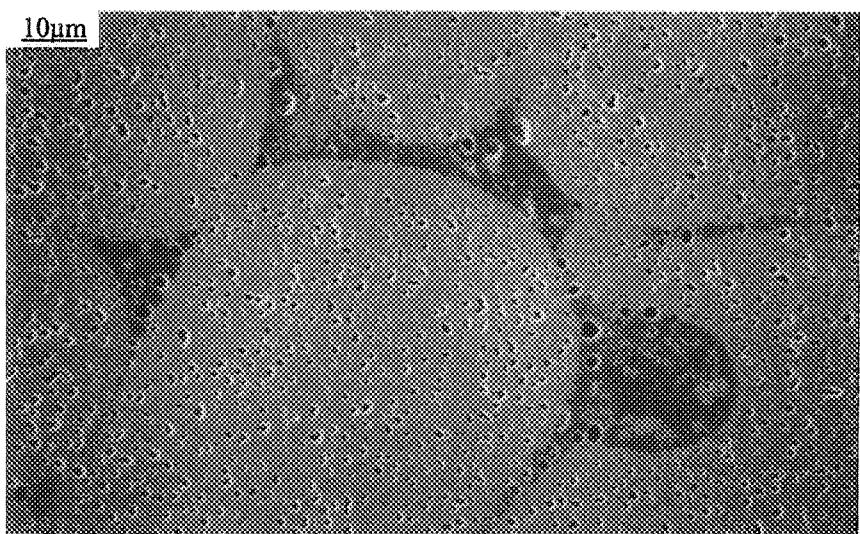


(a.2) Higher magnification at place A of ceramograph (a.1) .

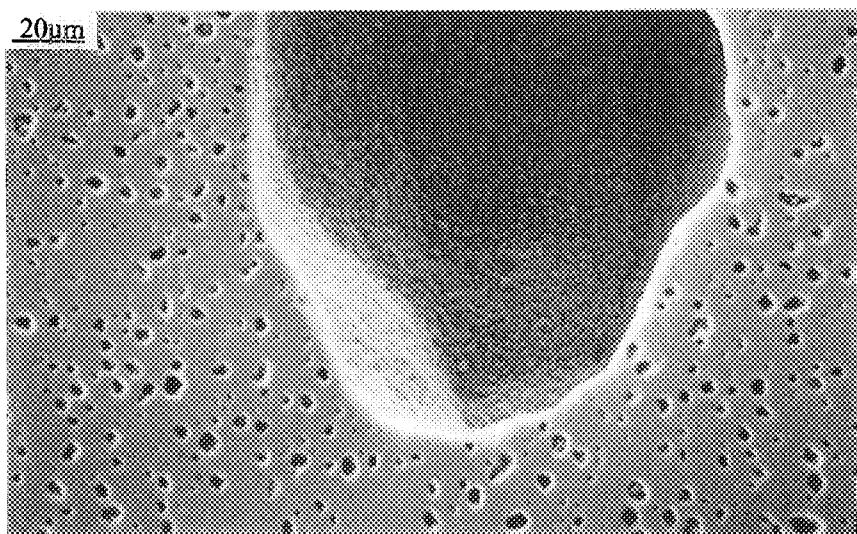
Fig. 3.12 Ceramographs of the 3.5%Ti doped UO₂ specimens .



(b.1) Fragments of specimens B ⑯,⑰,⑱ ,
irradiated at 84GWd/t ,(640–570°C) .

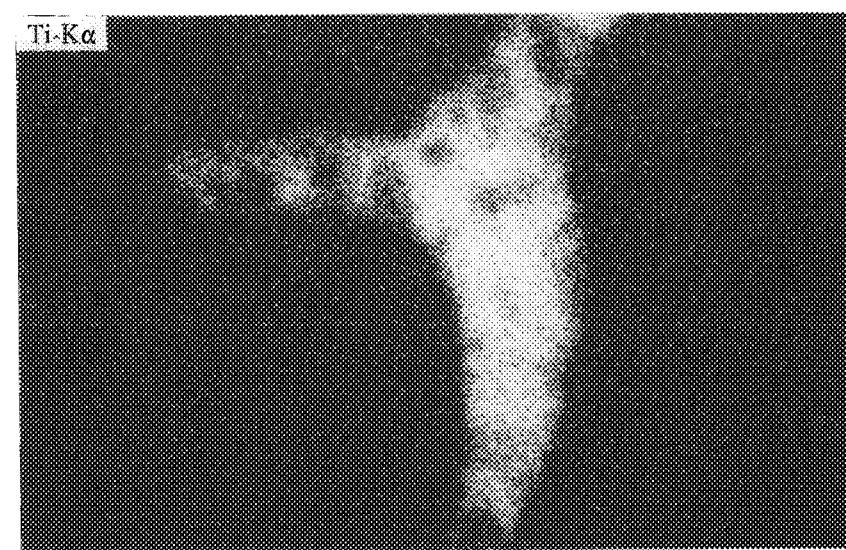
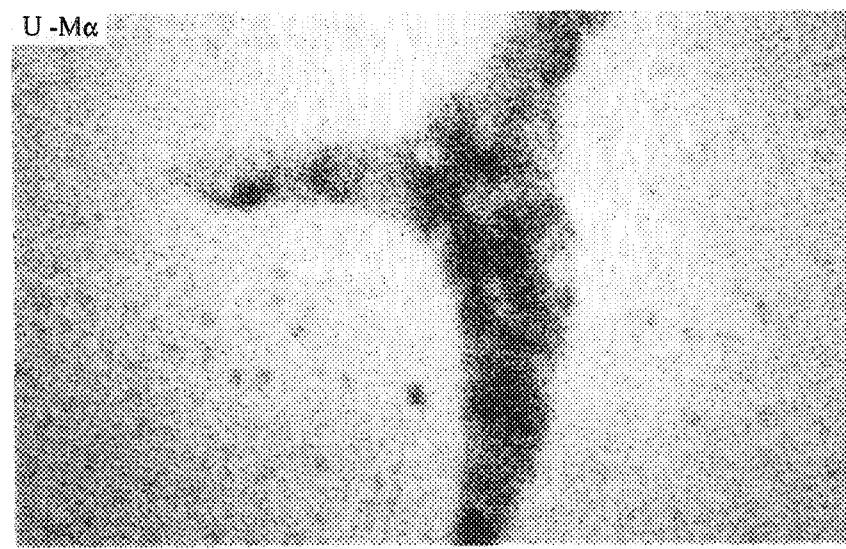
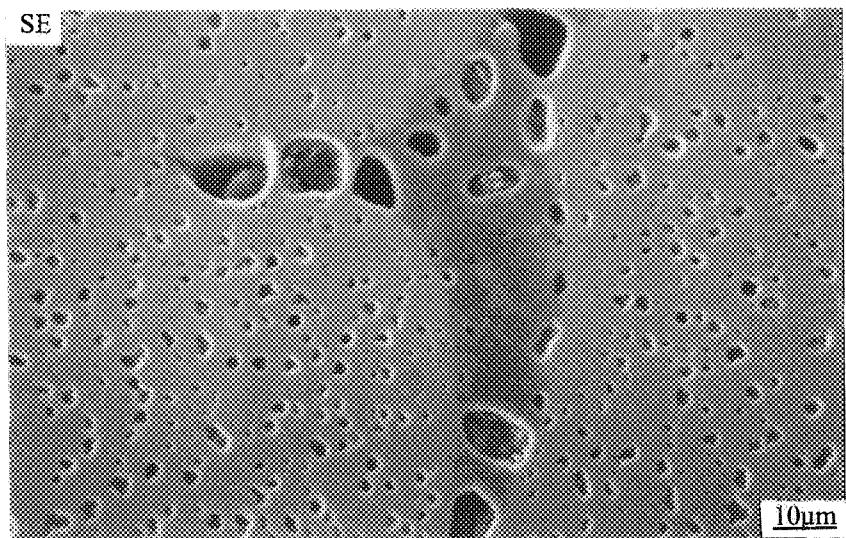


(b.2) SEM micrograph of specimens B ⑯,⑰,⑱ .



(b.3) SEM micrograph of specimens B ⑯,⑰,⑱ .

Fig. 3.12 (continued) Ceramographs of the 3.5%Ti doped UO_2 specimens .



(b.4) EPMA of specimens B ⑯,⑰,⑱ ,
irradiated at 84GWd/t ,(640–570 °C) .

Fig. 3.12 (continued) Ceramographs of the 3.5%Ti doped UO_2 specimens .

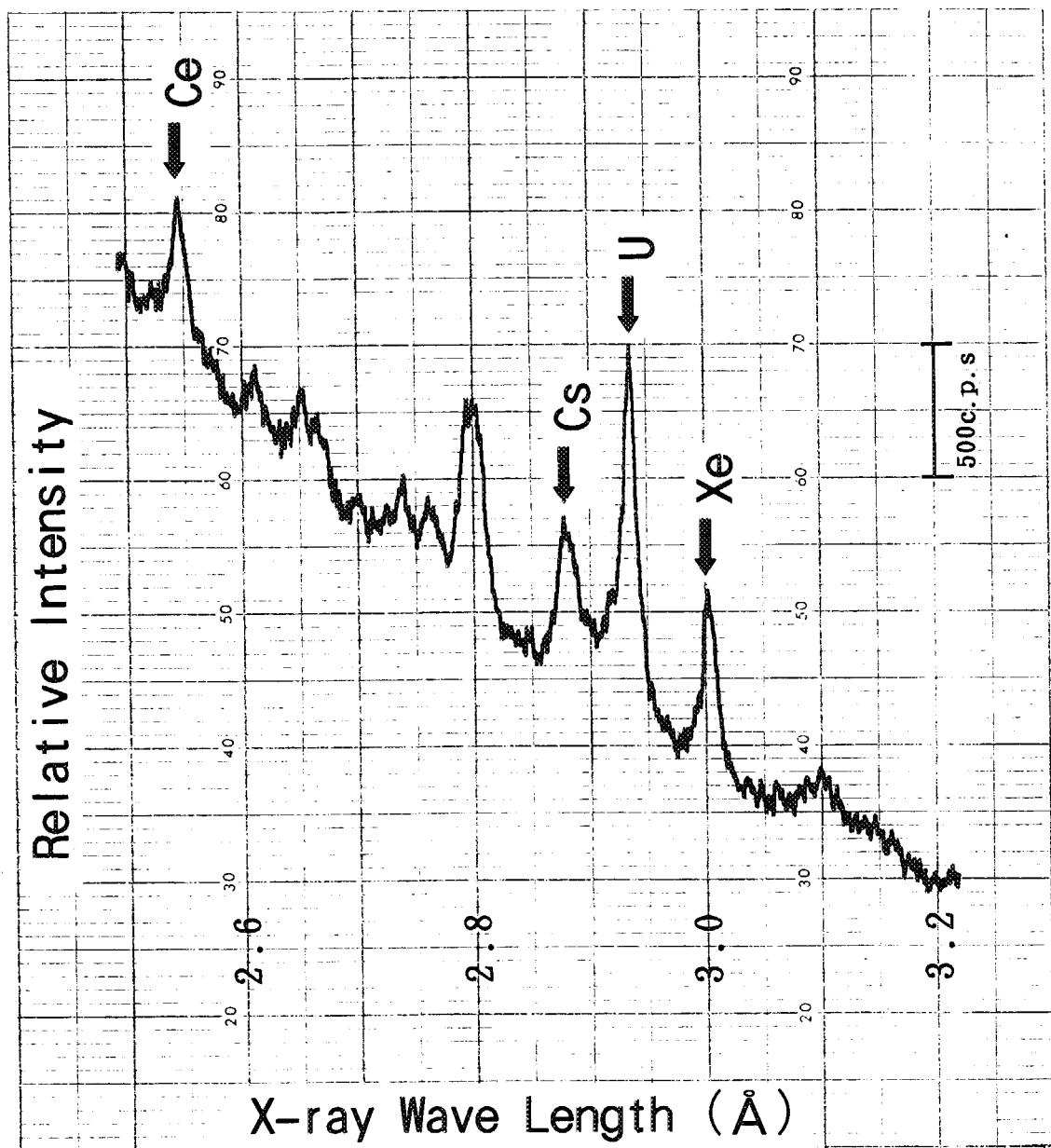
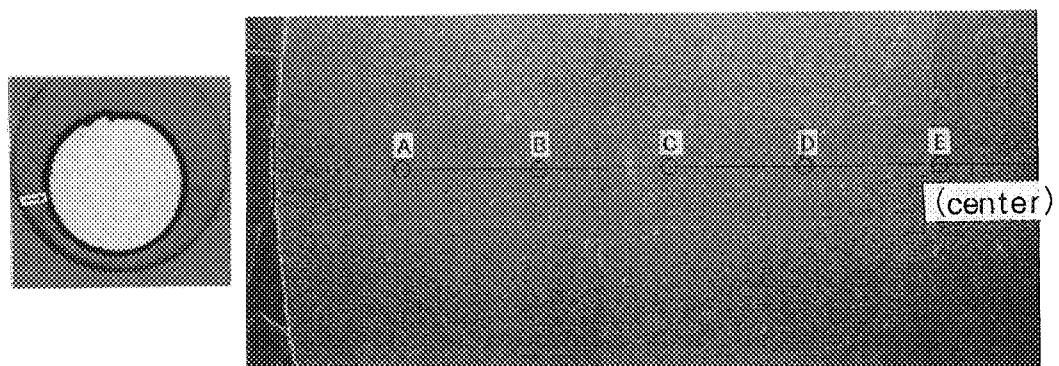
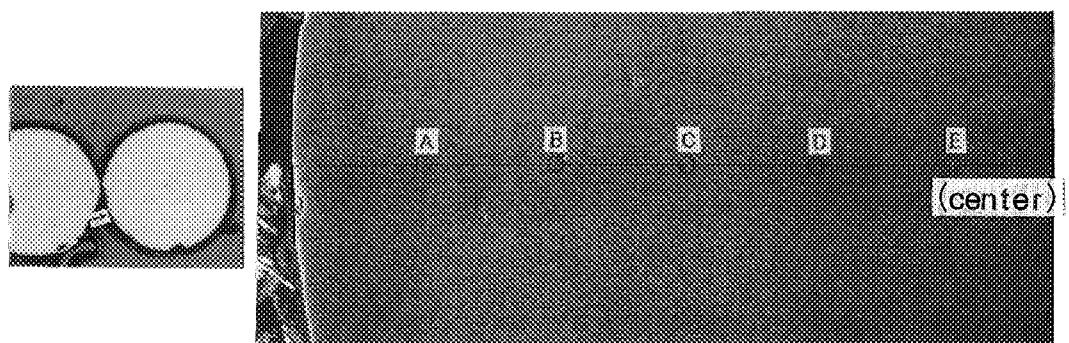


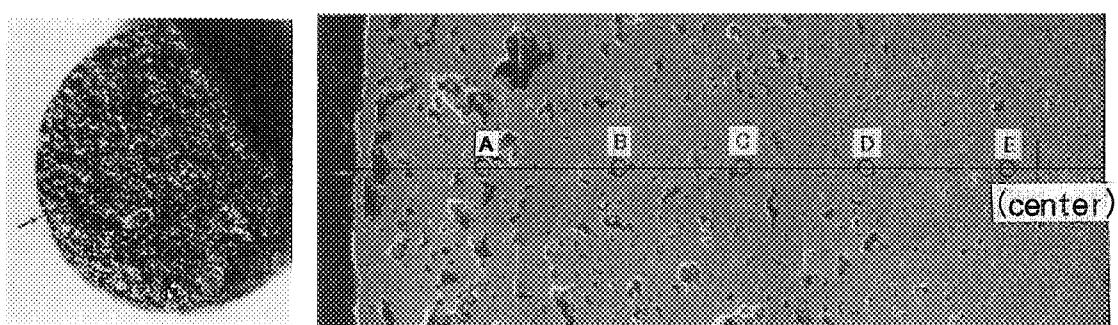
Fig. 3.13 Characteristic X-ray pattern of fission products by EPMA,
(a case at the middle spot on the irradiated specimen D(4)).



(a) Undoped UO_2 (Specimen D ④),
irradiated at 51GWd/t,(600–560°C) .



(b) 5%Mg doped UO_2 (Specimen F ④),
irradiated at 53GWd/t,(600–560°C) .



(c) 5%Mg–5%Nb doped UO_2 (Specimen F ⑥),
irradiated at 55GWd/t,(600–560°C) .

Fig. 3.14 Ceramographs and locations(A-E) for FP concentration analysis
of the irradiated specimens .

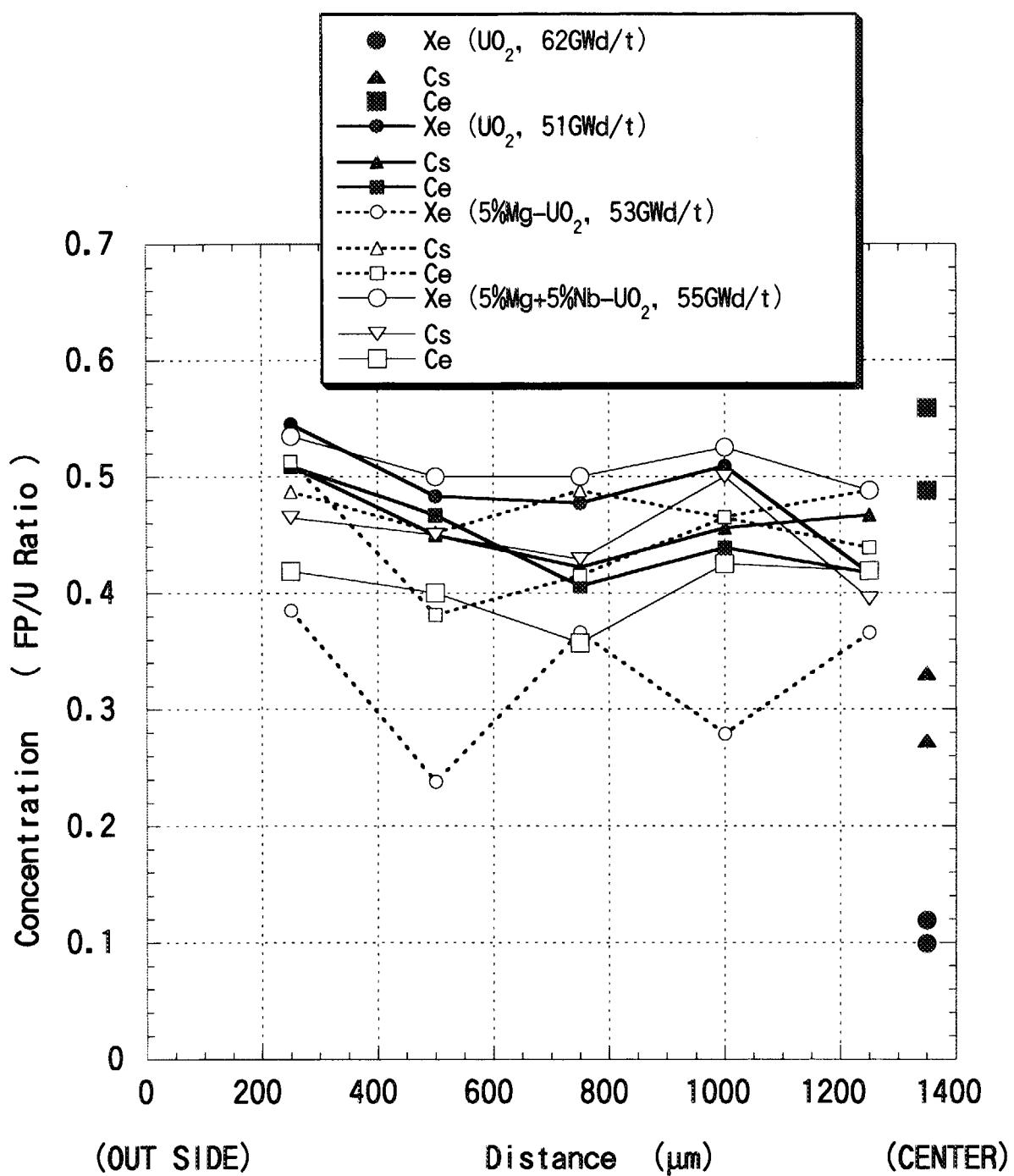
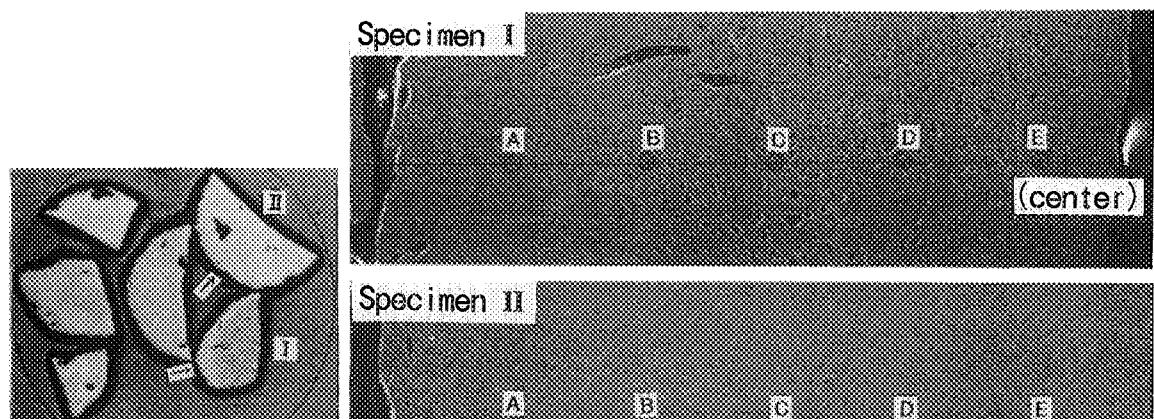
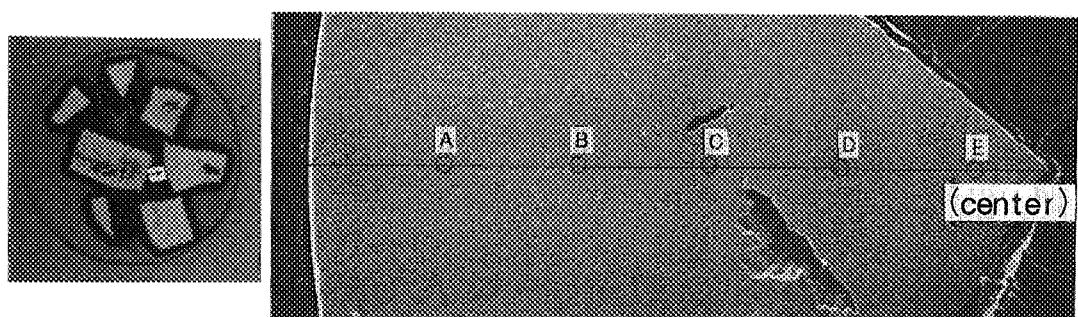


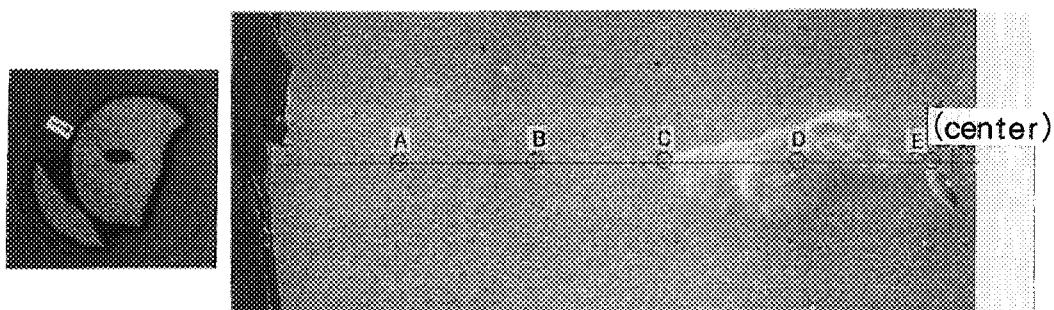
Fig. 3.15 Distribution of FP concentration for the irradiated specimens among 51–62 GWd/t of burnups.



(d) Undoped UO_2 (Specimens D ⑨,⑩,E ⑨,⑩),
irradiated at 87–94GWd/t,(600–560°C) .



(e) 5%Mg doped UO_2 (Specimen E ⑬),
irradiated at 91GWd/t,(650–600°C) .



(f) 15%Mg doped UO_2 (Specimen F ⑬),
irradiated at 91GWd/t,(650–600°C) .

Fig. 3.14 (continued) Ceramographs and locations(A-E) for FP concentration analysis of the irradiated specimens .

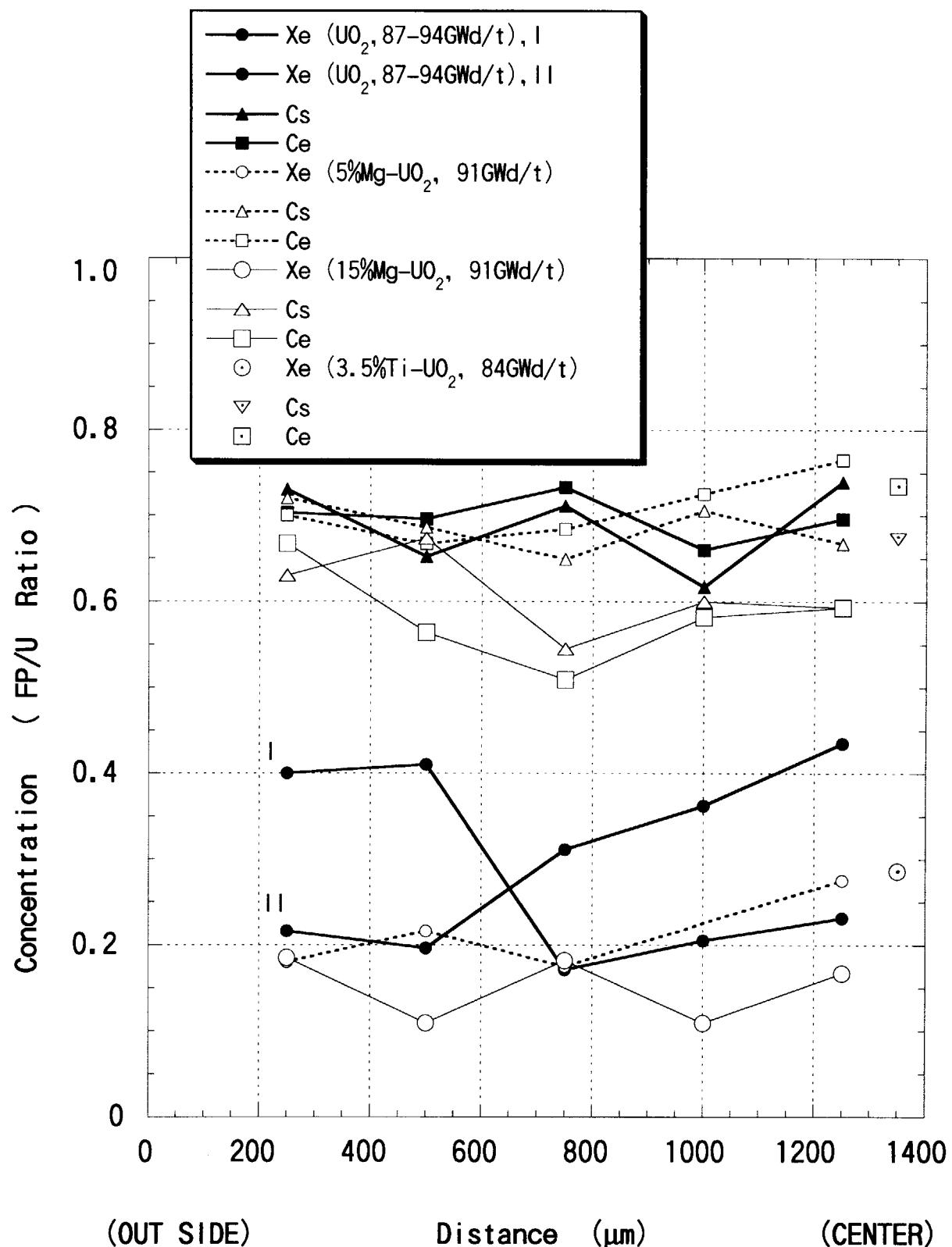


Fig. 3.16 Distribution of FP concentration for the irradiated specimens among 84–94 GWd/t of burnups.

4. 結 論

Mg、Mg-NbおよびTi添加UO₂試料の高燃焼度挙動を無添加UO₂と比較しながら調べるために、最高35GWd/t(6%濃縮度U試料)～94GWd/t(20%濃縮度U試料)の燃焼度で、照射温度が低温照射領域650-550°Cと高温照射領域930-800°Cとの条件で照射した。

照射後試験の結果は、以下のとおりである；

Mo製の試料容器に1個ずつサンドイッチ状に無拘束で充填して照射したディスク状の小ペレット試料(全153個)の外観観察では、いずれも表面の変化はあまり認められない。しかし、添加物の有無にかかわらず、20%濃縮度の試料は、相対的に高燃焼度・高線出力の過酷な照射条件となり照射温度に関係なく破損した。燃焼度では50-60 GWd/t以上の試料は全部破損しており、特にTi添加UO₂試料(34個)は、すべて60GWd/t以上の燃焼度に達し、ほとんどが粉碎状態で破損した。

燃焼度に対するスエリング率は、添加物の有無に顕著な差なく5%ΔV/V/(60GWd/t)以内である。また1試料の測定のみであるが、リム組織のある高燃焼度(約90GWd/t)の無添加UO₂試料のスエリング率が14.4%ΔV/Vというデータを得た。

Mg添加UO₂と比較用の無添加UO₂の試料について熱拡散率の測定を行ない、熱伝導率を求めた。その結果、UO₂へのMgOの添加は、熱伝導率がよくなる方向に作用し、未照射の試料でその傾向が見られた。照射後の試料の熱伝導率は、60GWd/tの無添加UO₂試料で3.5(450K)-2.0W/m·K(1660K)となり、同試料の再度の測定では、高温加熱により照射欠陥が回復して熱伝導率も4.8(450K)-2.1W/m·K(1660K)まで回復した。一方、35GWd/tの15%Mg添加UO₂試料では、3.7(450K)-2.1W/m·K(1660K)の結果を得た。照射後の試料は、Mg添加量のよりも、燃焼度と照射温度の熱伝導率特性への影響のほうが大きいものと考えられる。

なお、高燃焼度のUO₂とMg添加UO₂の熱伝導率のデータはこれまでに少なく、特に、60GWd/tに達するUO₂の熱伝導率は、高燃焼度のUO₂の物性を知る上で貴重なデータである。

光学顕微鏡およびEPMAによる組織変化の観察では、添加物の有無にかかわらず低温照射領域(650-550°C)の燃焼度51-62GWd/tの試料は、リム組織の前提となる細粒化がすでに起きていた。また、金属FP(Mo,Tc,Ru,Rh,Pd)はマトリックス中に均一に分布して存在する。同じ低温照射領域で燃焼度が84-94GWd/tの試料は、全面的に

リム組織になっている。したがって650℃以下の温度で、燃焼度が60 - 80GWd/tを超える範囲に、リム組織の発生条件があるものと推察される。また、高燃焼度においても低温照射領域の試料では、金属FPがマトリックス中に均一に分布して存在し、スポット状には析出していない。リム組織ができているような80GWd/tをこえる高燃焼度の試料のマトリックス中の気泡は、集積してさらに大きな気泡を形成する。この挙動は、特に今回の添加物入りの試料に顕著で、直径が数百ミクロンにも達する大きな気泡が観察された。その気泡の中には、典型的な細粒化も見られる。

一方、高温照射領域(930-800℃)の燃焼度62-66GWd/tの試料には、低温照射領域の試料ではすでにできていた細粒化が起きていないし、リム組織も見られない。また、金属FPは、マトリックス中にスポット状の白色析出物となって存在する。

FP放出挙動に関しては、同じ照射条件(燃焼度、照射温度等)では、90GWd/tに達する高燃焼度まで、添加物入りUO₂と無添加UO₂とで顕著な違いがないという結果になった。ただし、γスキャンとEPMAによる分析では照射温度の差がUO₂マトリックスからのCsとXe放出率に大きく影響し、高温照射領域(930 - 800℃)と低温照射領域(650 - 550℃)では、高温照射領域の試料の方がCsとXe放出率は大きい。高温照射領域で、多くの試料が破損したことと、FPガスの拡散もより促進されることなどに起因した結果と考えられる。低温領域の照射の場合で、燃焼度が60GWd/t程度ではCs、Xe共UO₂マトリックス中に比較的よく保持されて、放出率は低いが、燃焼度が高い90GWd/t前後になると、Csの放出挙動はあまり変わらないのに対して、Xeの放出率は高くなる。これは、高燃焼度におけるリム組織の生成に関連するものであろう。

今回の照射後試験データの総合的な結果から、添加物入りUO₂の高燃焼度の照射挙動と無添加UO₂とに顕著な差を見出せなかった。MgまたはMg-NbとUO₂との完全な固溶体の場合の照射特性を調べることが、今後の課題である。

謝　　辞

本報は、平成5年4月から平成11年3月に、日本原子力研究所(前・燃料研究部 燃料照射研究室)と東北大学・素材工学研究所との間で「添加物入り酸化物燃料の化学的性質に関する研究」をテーマとして行われた共同研究の貴重な成果の一部である。

核燃料の照射試験は、長い時間を要し、かつ、多くの関連課室の協力と努力によって成し遂げられた。本研究を実施担当された次の方々に謝意を表す。

照射前の試料の組織観察等の特性については、伊藤昭憲氏、
キャプセルの核・熱設計とJRR-3Mにおける照射については、相沢雅夫氏、菊地泰二氏他。
照射後試験全体は、計画調整担当者の協力に負うところが大きい、それとともに、
153個の貴重な試料の回収と区分、非破壊検査、 γ スキャン等については、飯田省三氏、
福田秀次氏、菅野義夫氏、喜多川勇氏、関野 甫氏、高野利夫氏 他、
高燃焼度の試料の貴重な熱拡散率測定については、長島久雄氏、小野澤 淳氏 他、
EPMAと顕微鏡による見事な組織観察・FP分析については、大枝悦郎氏、石川明義氏、
富田 健氏 他。

照射後試験の結果の解析とまとめには、林 君夫氏(現・高温照射研究室長)の多大な御尽力をいただいた。

UO_2 系燃料の高燃焼度の照射挙動を観察した数少ないこれらの結果が、今後、有効に役立てられることを期待する。

参考文献

- (1) J.A.Turnbull, "The Effect of Grain Size on the Swelling and Gas Release Properties of UO₂ during Irradiation", J. Nucl. Mater., 50 (1974) 62-68.
- (2) J.B.Ainscough, F.Rigby and S.C.Osborn, "The Effect of Titania on Grain Growth and Densification of Sintered UO₂", J. Nucl. Mater., 52 (1974) 191-203.
- (3) G.Arthur and D.Scott, "The Effect of TiO₂ Additions on the Sintering of UO₂", Trans. Brit. Ceram. Soc., 63 (1964) 417.
- (4) 丸谷和夫、高橋修一郎、渡辺孝章、小倉正士、「二酸化ウラン燃料の活性化焼結(Ⅰ)」、日本原子力学会誌、4 (1962) 845.
- (5) 丸谷和夫、高橋修一郎、山本一雄、本田 裕、「二酸化ウラン燃料の活性化焼結(Ⅱ)」、日本原子力学会誌、4 (1963) 595.
- (6) P.T.Sawbridge, C.Baker, R.M.Cornell, K.W.Jones and D.Reed, "The Irradiation Performance of Magnesia-doped UO₂ Fuel", J. Nucl. Mater., 95 (1980) 119-128.
- (7) 藤野威男、佐藤修彰、「+2あるいは+3価金属添加による二酸化ウランおよびMOX燃料の低酸素ポテンシャル領域拡大化の推算」、日本原子力学会、1992春の年会要旨集(K46).
- (8) Takeo Fujino, Nobuaki Sato and Kohta Yamada, "A Refined Analysis of Oxygen Potential of M_yU_{1-y}O_{2+x} (M=M³⁺ and M²⁺) by Lattice Statistics based on the Grand Partition Function and Flory Methods", J. Nucl. Mater., 223 (1995) 6-19.
- (9) Takeo Fujino, Nobuaki Sato and Kousaku Fukuda, "Change of Thermodynamic Properties of UO₂ Fuel Doped with Magnesium and Other Metals", Proc. Int. Topical Mtg. on LWR Fuel Perform., Portland, Oregon, Mar. 1997, 565-575.
- (10) J.S.Anderson and K.D.B.Johnson, "The Oxides of Uranium. Part III. The System UO₂ - MgO - O", J. Chem. Soc., (June 1953) 1731-1737.
- (11) T.Fujino and K.Naito, "Studies on Cubic Magnesium Uranate, Mg_yU_{1-y}O_{2+x}, I - Phase Relations and Crystal Chemistry", J. Inorg. Nucl. Chem., 32 (1970) 627-636.
- (12) W.D.Kingery, "Introduction to Ceramics", John Wiley & Sons, Inc., (1960) 261,490.
- (13) Regulatory Guide 1.126, "An Acceptable Model and Related Statistical Methods for the Analysis of Fuel Densification", March 1978.
- (14) M.L.Bleiberg, R.M.Berman and B.Lustman, "Effect of High Burnup on Oxide Ceramic Fuels", AEC Report, WAPD-T-1455(1962).
- (15) 中村仁一、大和田 功、宮田精一、古田照夫、「高燃焼度UO₂ペレットの熱拡散率」、日本原子力学会、1995秋の大会要旨集(H14).

- (16) M.Amaya and M.Hirai, "Recovery Behavior of Thermal Conductivity in Irradiated UO₂ Pellets", J. Nucl. Mater., 247 (1997) 76.
- (17) J.B.Conway, R.M.Fincel Jr. And R.A.Hein, "The Thermal Expansion and Heat Capasity of UO₂ to 2200°C ", Trans. ANS, 6 (1963) 153.
- (18) "Thermal Expansion : Nonmetallic Solids", Thermophysical Properties of Matter, Vol.13 (1977) 288-301.
- (19) I. Barin and O. Knacke, "Thermochemical Properties of Inorganic Substances", Verlag Stahleisen m. B. H. Düsseldorf (1973) 441, 813.
- (20) "MATPRO-Version 11: A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior", NUREG / CR - 0497 (1979).
- (21) 野北和宏、宇根勝己、「高燃焼度UO₂ペレットにおける再結晶組織の形成機構」、日本原子力学会、1994秋の大会要旨集(J19).
- (22) K.Nogita, K.Une, M.Hirai, K.Ito and Y.Shirai, "Effect of Size on Recrystallization in High Burnup Fuel Pellets", J. Nucl. Mater., 248 (1997) 196.
- (23) N.Lozano, L.Desgranges, D.Aymes and J.C.Niepce, "High Magnification SEM Observations for Two Types of Granularity in a High Burnup PWR Fuel Rim", J. Nucl. Mater., 257 (1998) 78.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg/s^2$
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	$A \cdot s$
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照度	ルクス	lx	lm/m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリに分類されている。
- EC関係理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリに入れている。

換 算 表

力	$N(=10^5 \text{ dyn})$	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (\text{N} \cdot \text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P} (\text{ポアズ})(\text{g}/(\text{cm} \cdot \text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St} (\text{ストークス})(\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa($=10 \text{ bar}$)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	$J(=10^7 \text{ erg})$	kgf·m		kW·h		cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
		1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889				
	9.80665	1	2.72407 $\times 10^{-6}$	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{19}		
	3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}		
	4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}		
	1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}		
	1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}		
	1.60218×10^{19}	1.63377×10^{-26}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1		

放射能	Bq		Ci	
	1	2.70270×10^{-11}	1	100
	3.7×10^{10}	1	0.01	1

照射線量	Gy		rad	
	1	100	1	3876
	2.58×10^{-4}	1	2.58×10^{-4}	1

線量当量	Sv		rem	
	1	100	1	1
	0.01		0.01	1

(86年12月26日現在)

Mg,
Mg-Nb
およびTi添加UO₂の高燃焼度照射挙動