

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。
2001. 6. - 6

[技術情報室]

過剰酸素を含む酸化ウランの弾性率と破壊強度

Elastic Modulus and Fracture Strength of Uranium
Dioxide Including Excess Oxygen

1972年4月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001

N 841-72-06



過剰酸素を含む酸化ウランの弾性率と破壊強度

実施責任者 宮脇 良夫

プルトニウム燃料部
設 計 課

報告者 堂本 一成

同 上

平沢 正義

同 上

期 間 1970年4月1日～1972年3月31日

目 的 燃料要素内の酸化ウランが膨張による内部応力、熱応力および被覆管と燃料の相互作用による応力を受けたときの燃料の挙動を解明するのに必要な資料とする。

要 旨 室温での UO_2 単結晶の弾性定数を測定して $C_{11} = 37.73$, $C_{12} = 10.61$, $C_{44} = 5.85 \times 10^{11}$ dynes/cm² の値を得た。焼結ペレットについては気孔率、粒径および過剰酸素がヤング率および破壊強度に及ぼす影響を調べた。弾性定数は超音波法でまた破壊強度は圧縮試験により測定した。測定結果は数式で表わされ、著者等の理論および他の研究者の理論によって説明することができた。

目 次

1. 序 言	1
2. 実験方法	1
2.1 試 料	1
2.2 音速の測定	4
2.3 音速と弾性定数との関係	7
2.4 圧縮試験	8
3. 実験結果	11
3.1 弹性定数の測定	11
3.2 圧縮破壊強度の測定	25
4. 考 察	27
4.1 単結晶の弾性定数	27
4.2 気孔率の影響	32
4.3 粒径の影響	34
4.4 過剰酸素の影響	35
5. 要 約	35
付 錄	36
6. 文 獻	45

1. 序 言

酸化ウランが原子燃料として原子炉の中で燃やされているとき、燃料は核分裂生成物によつて生じた膨張による内部応力、熱応力および被覆管と燃料の相互作用による応力を受ける。これらの応力を受けた燃料の挙動が全体の燃料要素の性能に大きな影響を与える。酸化ウランの強度はこの燃料挙動を解明するのに重要な問題である。これまで破壊強度に関しては、圧縮強度が粒径の関数として、また曲げ強度が粒径および気孔率の関数として測定された。¹⁾ 弹性定数の値もまた燃料の理論強度、熱応力、機械的強度や表面エネルギーを計算するのに必要であり、燃料設計に当つてきわめて重要な役割をもつている。²⁾ 弹性定数は、これまで共振法およびバルス法の動的測定法によって、単結晶の方位の関数として、また焼結ペレットの気孔率、や³⁾^{4~9)}^{5, 10)} O/U 比の関数として測定された。しかし、 UO_{2+x} と U_4O_9-y の 2 相を含むペレットの破壊強度に関するデータは全くなく、また強度と弾性定数との間の関係はこれまで明確にされていない。

この研究の目的の 1 つは UO_{2+x} と U_4O_9-y の 2 相を含む焼結ペレットおよび単結晶についての強度と弾性定数のデータを得ることと、他の一つは気孔率、粒径および過剰酸素が弾性率におよぼす影響と破壊強度におよぼす影響との間の相関性を明らかにすることである。

2. 実験方法

2.1 試 料

単結晶試料は Hanford 研究所製のもので、PWR - grade UO_2 粉末を電気アーク炉で溶融し、できたバルクの中から大きな単結晶の塊りを取り出して微量な不純物の除去と、ストイキオメトリックにするために 1750°C の水素雰囲気中で熱処理を行なったものである。Table 1 に単結晶の O/U 比、密度、気孔率、ガス含有量、不純物の化学分析および分光分析の結果を、また Table 2 に試料の大きさを示す。用いた単結晶は全部で 4 個で、方位の測定は背面反射ラウエ法を用いて行なった。試料の軸方向の方位は [001] のものが 1 個、[011] 方向のものが 3 個で misorientation は $2 \sim 10^{\circ}$ であった。

Fig. 1 にこれらの試料の方位を示す。

UO_2 ペレットの試料は、住友電工㈱、三菱原子力㈱、および動燃で製作したもの用いた。ノンストイキオメトリックなペレットは住友電工製のもので、 UO_2 粉末に UO_2 粉末を酸化して作った $UO_2 \sim U_3O_8$ の範囲の粉末を種々な割合で混合してプレス成型を行なった後、約 1300°C の温度の窒素雰囲気中で約 2 時間の焼結を行なって製作したものである。Table 2, 3, 4 にこれらの試料の大きさ、O/U 比、ペレットの粒径、密度および分光分析の結果を示す。

超音波パルス法を用いて弾性定数を測定するときの試料は平坦かつ平行な一対の面をもつ

Table 1. Characterization table of UO_2 single crystal

Property	Determination	
Isotropic composition		Nature
Oxygen to metal ratio (Coulometric titration)	2.0006	
(Gravimetric-oxidation)	2.001	
Density (g cm^{-3})		
Displacement, H_2O	1.094	
Displacement, CCl_4	1.093	
Displacement, Hg	1.094	
Surface area ($\text{m}^2 \text{g}^{-1}$) (B.E.T., N_2)	< 1	
Porosity % open, closed		Nil
Gas content (cc g^{-1})		
Evolved at 1000°C under vacuum	0.05	
Impurities (ppm)		
Al	~10	F <2
Fe	~15	Cl <20
Si	~15	C 44
V	<50	N 50
Zn	<50	
Water (Coulometric - electrolysis)		6

Table 2. Specimen size

	Diameter (mm)	Length (mm)
Fused single crystal	4.80	$\frac{1}{4} 1$ 4.735, 4.760, $\frac{1}{4} 2$ $\frac{1}{4} 3$ $\frac{1}{4} 4$ 4.683, 4.758
Sintered pellet	12.50	10.580 ~ 10.300

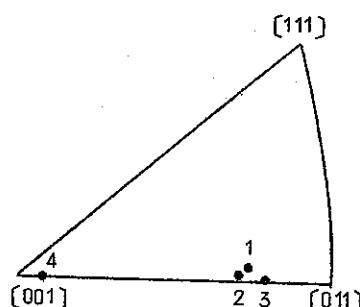
Fig 1 Orientations of UO_2 single crystals

Table 3. Spectrographic analyses (ppm) of sintered pellets made in Sumitomo Denkō Co.

Specimen	O/U ratio Density (g/cm³) Grain size (μm)	2.002 1.044 5.9	2.157 1.075 4.0	2.212 1.059 6.1
Elements	Ag	0.2	0.2	< 0.2
	Al	1.0	1.0	1.0
	B	< 0.1	1.4	0.1
	Cd	< 0.2	< 0.2	< 0.2
	Co	< 5	< 5	< 5
	Cr	< 8	< 8	< 8
	Cu	< 3	< 3	< 3
	Fe	1.3	1.1	1.8
	Mg	< 2	< 2	< 2
	Mn	3	< 3	5
	Ni	< 1.0	< 1.0	< 1.0
	Si	< 1.1	< 1.0	< 1.0
	V	< 1.0	< 1.0	< 1.0
	Zn	< 5.0	3.60	< 5.0
	Ca	< 1	1	< 1
	Mo	1.6	2.5	2.0
	C	1.5	< 1.0	< 1.0
	F	< 5	5	< 5
	Cl	< 5	1.4	6
	N	1.1	1.0	< 1.0

Table 4. Spectrographic analysis (ppm) of sintered pellets made in (A) MAPI and (B) PNC.

Specimen	(A)		(B)	
	O/U ratio Density (g/cm³) Grain size (μm)	2.003 1.052 10	O/U ratio Density (g/cm³) Grain size(μm)	2.005 1.002 15
	Ag	< 0.5	Ag	0.2
Elements	Al	4	Cd	0.2
	Bi	1	Cr	< 8
	Cd	0.6	Cu	< 3
	Cr	7.0	Fe	2.2
	Cl	4.2	Mn	4
	Cu	1.1	Ni	< 1.0
	F	1.20	P	2.4
	Mg	2.0	V	< 1.0
	Mn	1.2	B	0.12
	Mo	2.1		
	N	3.0		
	Ni	1.30		
	Pb	1.0		
	Sr	1		
	V	1.00		
	B	0.3		
	C	8.0		
	Fe	3.6		
	Si	6.0		

ていることが必要である。平坦度は用いる波長の $1/10$ 程度まで、平行度も同程度以上に仕上げることが望ましい。試料の厚さは試料内を往復するエコーが互いに重なりあわないようきめなければならない。超音波パルスの幅を t 、音速を v とすれば、試料の厚さ d は

$$\frac{2d}{v} > t \quad (1)$$

^(11, 12) あることが必要である。この一対の十分な平行度および平坦度をもった試料を作製するに、Fig. 2 のような治具を用いて最初エメリー紙で研摩し、次に 6μ 、 1μ 粒のダイヤモンドベーストで研摩した。圧縮破壊強度測定の試料も一対の平行平面が必要であるので、弹性定数測定の試料と同じく Fig. 2 の治具を用いて、エメリー紙で研摩した後、 1μ 粒のダイヤモンドベーストで研摩した。

2.2 音速の測定

音速の測定には Sperry 社製の "Ultrasonic Attenuation Comparator" を用いた。Fig. 3 にそのブロックダイアグラムを示す。固体中の音速を測定するには 1Mc/sec 以上の超音波パルスを用いる。Fig. 4 に示すように試料に一対の平行面をつくり、その一方に水晶振動子を接着してパルス音波を入射すると、音波はその物質特有の速度で試料中を伝播し、端面で反射され、そのエネルギーが消失するまで何回も試料中を往復する。試料中の音波が減衰しつつ反復往復するたびに送波子の水晶振動子が今度は受波子として働き、エコーパルスを発生する。これをブラウン管の縦軸に取り出し、横軸に時間をとつておけばその映像面には Fig. 5 に示すようなエコーパターンが得られる。この減衰の様子から吸収係数 α が求められる。すなわち、ブラウン管上のエコーのピーク値の変化を

$$A = A_0 e^{-\beta t} \quad (2)$$

とすると、 β は単位時間当たりの吸収係数を表わす。音速を v とすると

$$\alpha = \frac{\beta}{v} \quad (3)$$

である。試料の長さを ℓ 、試料を通過するのに必要な時間を T とすると、音速は次のように、

$$v = \frac{2\ell}{T} \quad (4)$$

であらわされる。これから Fig. 5 で示したようなエコーパルス間の時間を測定することによって音速を求めることができる。音速測定は縦波には X カット、横波には Y カットの水晶振動子を用いる。この実験で用いた水晶振動子の大きさは $3 \sim 10\text{ mm}$ で、X カット、Y カットとも周波数は 10 Mc/sec であった。試料と水晶振動子との接着にはザロールまたは "Nonaq" のシリコングリースを用いた。

Fig. 2.
Polishing tool

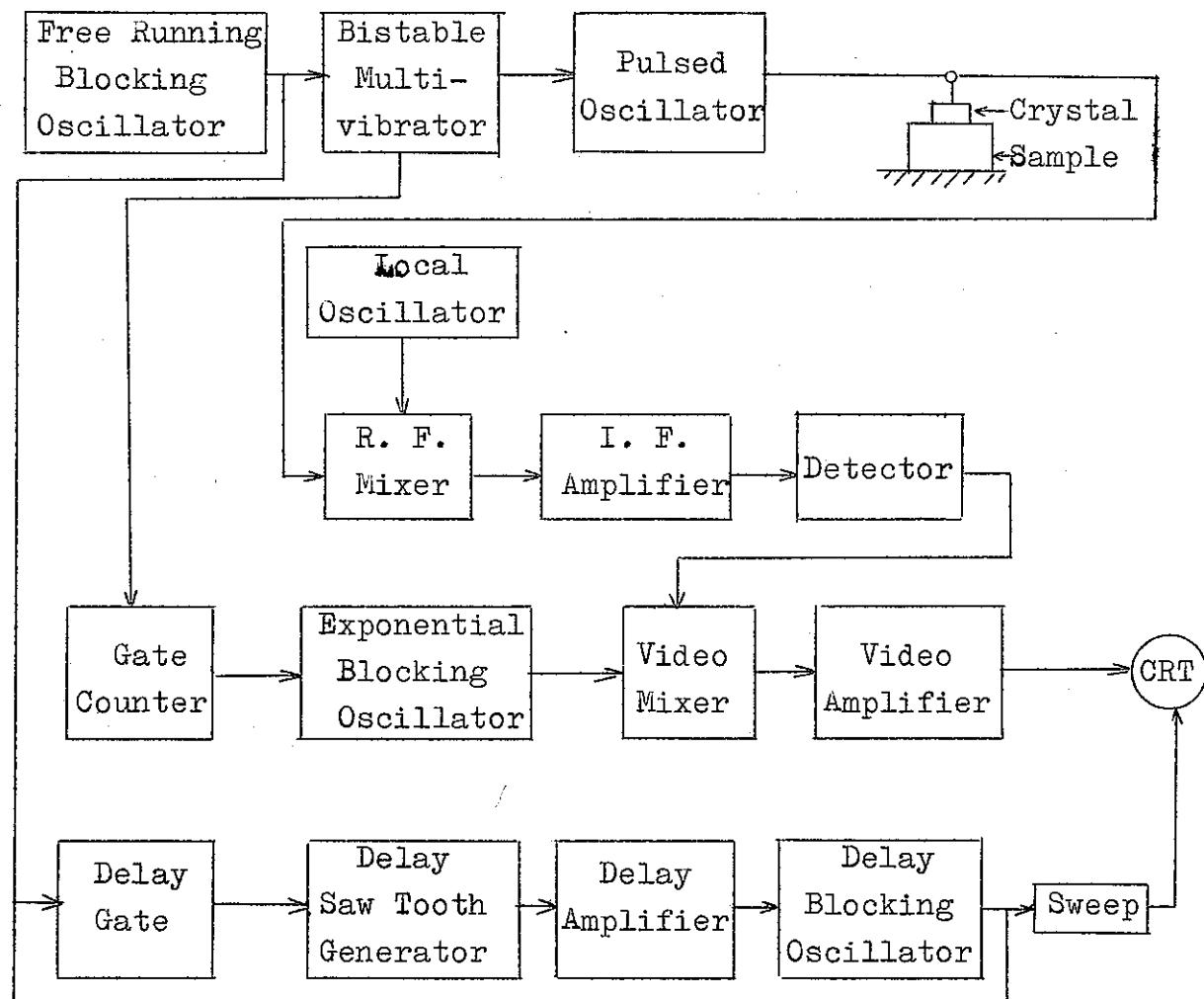
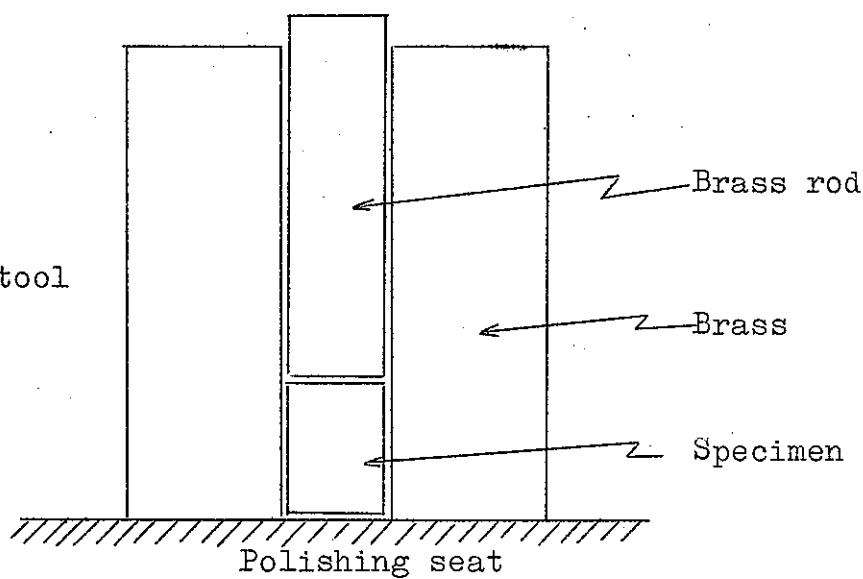


Fig. 3. Block diagram of "Ultrasonic Comparator"

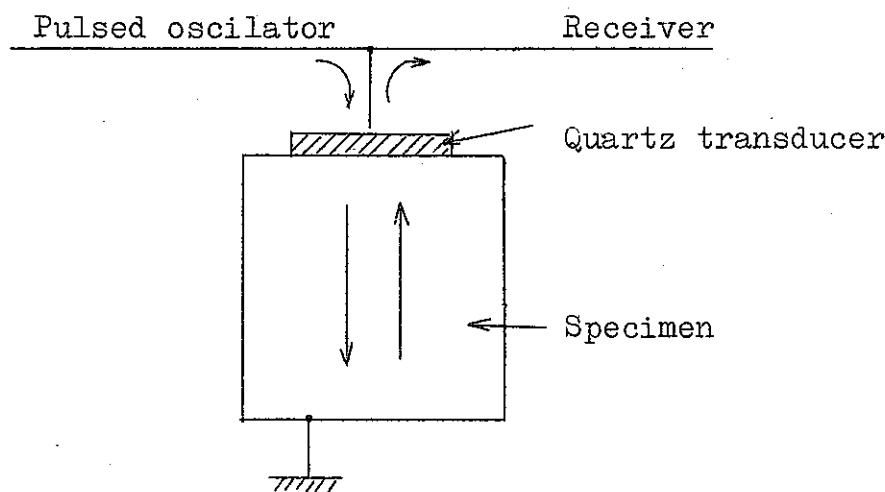


Fig. 4. Pulse reflection on the specimen

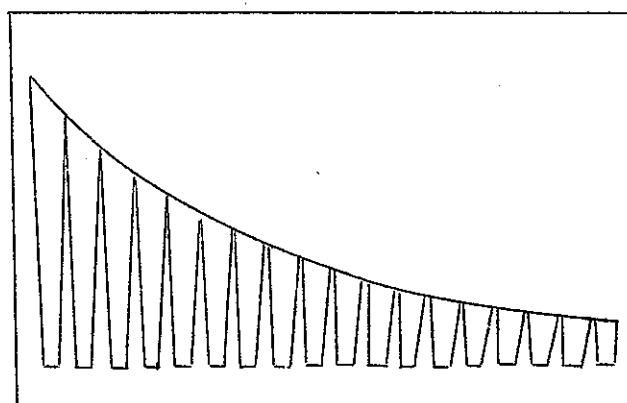


Fig. 5. Exponential pulse echo pattern on oscilloscope

2.3 音速と弾性定数との関係

超音波パルスが物質内を通過する音速を測定して、音速から弾性定数を求めることができる。単結晶の場合は、1つの純粋な縦波と2つの純粋な横波の弾性波が3個あり、その振動方向は互いに垂直である。単結晶の弾性定数は結晶方向に依存する。弾性定数は応力(T)と歪(ϵ)との間に線型関係を示すもので、4階のテンソル量であるが次のようにな書かれる。

$$\begin{aligned} T_{11} &= C_{11} \epsilon_{11} + C_{12} \epsilon_{22} + C_{13} \epsilon_{33} + C_{14} \epsilon_{23} + C_{15} \epsilon_{31} + C_{16} \epsilon_{12} \\ T_{22} &= C_{21} \epsilon_{11} + C_{22} \epsilon_{22} + C_{23} \epsilon_{33} + C_{24} \epsilon_{23} + C_{25} \epsilon_{31} + C_{26} \epsilon_{12} \\ T_{33} &= C_{31} \epsilon_{11} + C_{32} \epsilon_{22} + C_{33} \epsilon_{33} + C_{34} \epsilon_{23} + C_{35} \epsilon_{31} + C_{36} \epsilon_{12} \\ T_{23} &= C_{41} \epsilon_{11} + C_{42} \epsilon_{22} + C_{43} \epsilon_{33} + C_{44} \epsilon_{23} + C_{45} \epsilon_{31} + C_{46} \epsilon_{12} \\ T_{31} &= C_{51} \epsilon_{11} + C_{52} \epsilon_{22} + C_{53} \epsilon_{33} + C_{54} \epsilon_{23} + C_{55} \epsilon_{31} + C_{56} \epsilon_{12} \\ T_{12} &= C_{61} \epsilon_{11} + C_{62} \epsilon_{22} + C_{63} \epsilon_{33} + C_{64} \epsilon_{23} + C_{65} \epsilon_{31} + C_{66} \epsilon_{12} \end{aligned} \quad (5)$$

ここで C_{11} , C_{12} ……は弾性定数である。一般に独立な弾性定数は結晶の対称性によってその数は減って、例えば立方晶系の場合の弾性定数テンソルは

$$\left[\begin{array}{cccccc} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{array} \right] \quad (6)$$

となり、独立な成分は C_{11} , C_{12} , C_{44} の3個である。弾性定数テンソルの逆テンソルをコンプライアンス(Compliance)といい、立方晶系の弾性コンプライアンスは3つの独立な成分をもつ。弾性定数と弾性コンプライアンスとの間には

$$\begin{aligned} S_{11} &= \frac{C_{11} + C_{12}}{(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12})} \\ S_{12} &= \frac{-C_{12}}{(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12})} \\ S_{44} &= \frac{1}{C_{44}} \end{aligned} \quad (7)$$

の関係がある。Table 5に立方晶系における音速、波の伝播方向および波の偏り方向を示す。立方晶では C_{11} , C_{12} , C_{44} の弾性定数を求めるには、例えば [100] 方向の縦波、同方向の横波、[110] 方向の縦波の音速を測定すればよい。単結晶の弾性定数を実験的に決める場合、音波の純粋な軸方向 [100], [110], [111] が、機械的に仕上げた試料

表面に垂直であることが望ましいが、試料の作製上、純粋な軸方向に対して、音波の入射方向はある程度の misorientation を生ずる。その時は音波は純粋な縦波、あるいは横波ではなく、音速と振動方向は misorientation に依存する。この misorientation¹³⁾による音速の変化については Waterman によって各結晶系について詳しく計算されている。立方晶系についての misorientation にもとづく音速の変化は Table 6 のようになる。Fig. 6 に純粋な軸方向に對して音波の入射方向がずれている場合の座標変換を示す。また Wachtman, Wheat および Marjullio¹⁴⁾ は [100] と [111] 方向に一致または非常に近い場合を除いて、立方結晶のある進行方向に沿って 3 個の独立な音速を測定することによって立方晶の 3 個の弾性定数を決めることができることを示した。彼等が示した弾性定数の計算方法を付録 1 に示す。

多結晶の場合、音速と弾性定数との間には次のような関係がある。

$$\begin{aligned} V_\ell &= \left[\frac{E}{\rho} \frac{1-\sigma}{(1+\sigma)(1-2\sigma)} \right]^{1/2} \\ V_t &= \left[\frac{G}{\rho} \right]^{1/2} = \left[\frac{E}{2(1+\sigma)\rho} \right]^{1/2} \\ \text{あるいは } \frac{V_\ell}{V_t} &= \left[\frac{\frac{1-\sigma}{2}}{\frac{1}{2}-\sigma} \right]^{1/2} \end{aligned} \quad (8)$$

ここに V_ℓ は縦波の速度、 V_t は横波の速度、 σ はボアソン比、 E はヤング率、 G は剛性率、 ρ は密度である。これらの式は物質が等方性媒質で、媒質中に境界がないこと、また結晶粒が細まかく異方性または組織をもたないものに適用できる。 UO_2 ベレットの弾性定数はこの式を用いて計算することができる。また等方性物質の場合、ヤング率 E 、剛性率 G 、体積弾性率 K およびボアソン比 σ との間には次のような関係がある。

$$\begin{aligned} E &= \frac{9KG}{3K+G} \\ K &= \frac{E}{3(1-2\sigma)} \\ \sigma &= \frac{E}{2G} - 1 \end{aligned} \quad (9)$$

2.4 圧縮試験

UO_2 ベレットおよび単結晶の圧縮破壊強度の測定は 10 ton と 50 ton の万能試験機を用いて行なった。試験片を常に正しく軸方向に圧縮するために、その取付には Fig. 7 のように炭素鋼の硬い材料で作った圧縮台、押し棒および鋼球を用いた。荷重速度は溶融单

Table 5. Velocities of a single crystal for propagation direction [100], [110], [111] in the cubic system

Propagation direction	Polarization diection	Velocity
[100]	[100]	$\sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}}$
[100]	[010], [001]	$\sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$
[110]	[110]	$\sqrt{\frac{C_{11}+C_{12}+2C_{44}}{2\rho}}$
[110]	[001]	$\sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$
[110]	(110)	$\sqrt{\frac{C_{11}-C_{12}}{2\rho}}$
[111]	(111)	$\sqrt{\frac{C_{11}+2C_{12}+4C_{44}}{3\rho}}$
[111]	(111)*	$\sqrt{\frac{C_{11}-C_{12}+C_{44}}{3\rho}}$

* Arbitrary direction in the (111) plans.

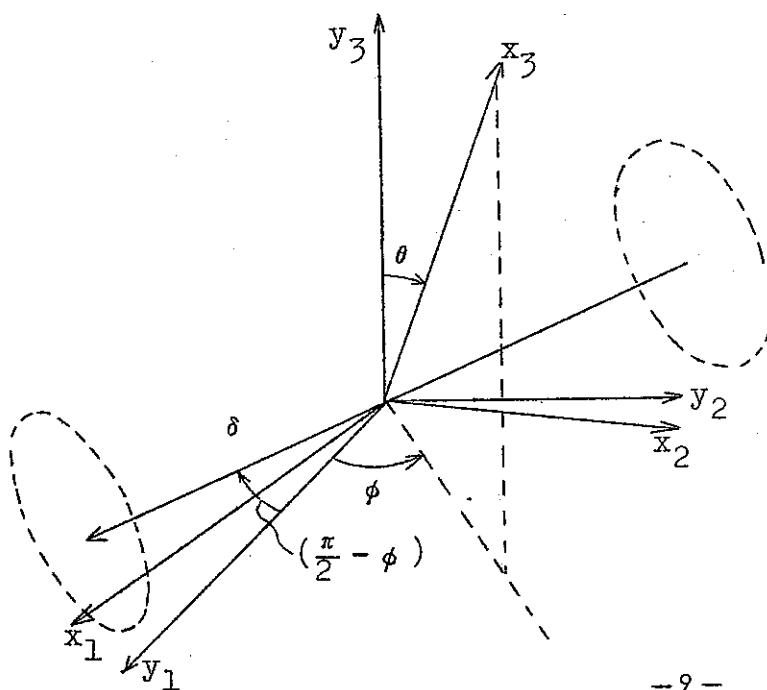


Fig. 6. The transformation from pure mode coordinates $\{y_i\}$ to the misoriented coridnates $\{x_i\}$ accomplished by means of a single rotation through the angle θ about the axis δ (Waterman¹³⁾)

Table 6. Variation of velocity due to misorientation
for the cubic system

Propagation direction	Variation of velocity
[001]	$\frac{\Delta v_1}{v_1} = \frac{-K_1 K_2}{2C_{11}} \theta^2$ $\frac{\Delta v_2}{v_2} = \frac{K_1 \theta^2}{4C_{44}} \{ K_3 + [K_2^2 - \sin^2 2\phi (2K_2 - 1)]^{1/2} \}$ $\frac{\Delta v_3}{v_3} = \frac{K_1 \theta^2}{4C_{44}} \{ K_2 - [K_2^2 - \sin^2 2\phi (2K_2 - 1)]^{1/2} \}$
[101]	$\frac{\Delta v_1}{v_1} = \frac{K_1 \theta^2 [(2K_2 + 1) \cos^2 \phi + (2K_4 - 5) \sin^2 \phi]}{2(C_{11} + C_{12} + 2C_{44})}$ $\frac{\Delta v_2}{v_2} = \frac{K_1 (3 - K_4)}{2C_{44}} \theta^2 \sin^2 \phi$ $\frac{\Delta v_3}{v_3} = \frac{-K_1 \theta^2}{2(C_{11} - C_{12})} [2K_3 \cos^2 \phi + 1]$
[111]	$\frac{\Delta v_1}{v_1} = \frac{K_1 [2K_3 + 3] \theta^2}{3(C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44})}$ $\frac{\Delta v_2}{v_2} = \frac{+K_1 \theta}{2(C_{11} - C_{12} + C_{44})}$ $\frac{\Delta v_3}{v_3} = \frac{-K_1 \theta}{2(C_{11} - C_{12} + C_{44})}$

where, v_1 = longitudinal velocity,

v_2 , v_3 = transverse velocity,

$$K_1 = C_{11} - C_{12} - 2C_{44},$$

$$K_2 = K_1 / (C_{44} - C_{11}) + 2,$$

$$K_3 = K_1 / (C_{12} + C_{44}) + 3/2$$

$$K_4 = K_1 / 2(C_{11} + C_{12}) + 3/2.$$

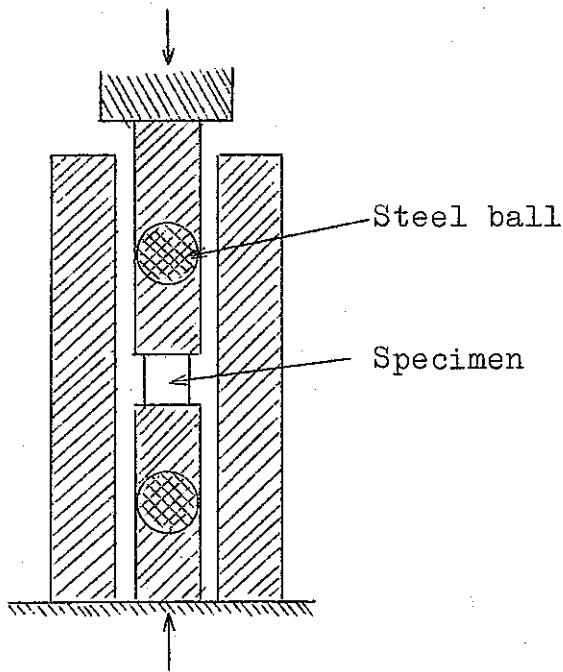


Fig. 7. Apparatus for compression test

結晶の場合 $37.5 \text{ Kg}/\text{min}$ 、焼結ペレットの場合には $200 \text{ Kg}/\text{min}$ で、それぞれ数%以内の誤差に制御した。

3. 実験結果

3.1 弹性定数の測定

測定に用いた単結晶のmisorientationは背面反射ラウエ写真の指数付けを行なって求めた。Fig.6 の座標の θ , ϕ で示すと, $\theta=8\sim10^\circ$, $\phi=88\sim90^\circ$ であった。単結晶の弾性定数はmisorientationを考慮しない場合、Table 5の式を用いて音速測定の結果から求めることができる。音速の測定は直径3 mmのXカットおよびYカットの 10 Mc/sec の水晶振動子を用いて室温で行なった。Table 7に測定結果を示す。この音速測定からTable 5および(7)式を用いて求めた室温での弾性定数と弾性コンプライアンスをTable 8, 9に示す。

Table 8でAは異方性因子で[001]方向と[011]方向に伝播する横波の速度比の平方、すなわち、

$$A = \frac{2 C_{44}}{C_{11} - C_{12}} \quad (10)$$

で定義され、等方性物質では1であるが、ここでは約0.5と非常に小さくなっている。音波の入射方向に對して $\theta=10^\circ$, $\phi=88^\circ$ のmisorientationがあったとき、

Table 7. Velocities of longitudinal and transverse waves
for [011]^{*} and [001]^{**} directions of UO₂ single
crystals

Crystal	Crystal axial direction	Longitudinal velocity v_1 (m/sec)	Transverse velocity v_2 (m/sec)	Transverse velocity v_3 (m/sec)
No. 1	[011]	5315	2294	3423
No. 2	[011]	5330	2333	3333
No. 3	[011]	5353	2323	3367
No. 4	[001]	5873	2309	2309

* Propagation [011], $v_1 = \sqrt{\frac{C_{11} + C_{12} + 2C_{44}}{2\rho}}$ [011]

$$v_2 = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$$
 [100]

$$v_3 = \sqrt{\frac{C_{11} - C_{12}}{2\rho}}$$
 [011̄]

** Propagation [001] $v_1 = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}}$ [001]

$$v_2 = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$$
 [010]

$$v_3 = \sqrt{\frac{C_{44}}{\rho}}$$
 [100]

Table 8. Elastic constants of UO₂ single crystals
(in 10¹¹ dynes/cm²)

Crystal	C_{11}	C_{12}	C_{44}	Anisotropy factor*
No. 1	37.96	12.33	5.757	0.45
No. 2	36.47	13.79	5.954	0.50
No. 3	37.85	13.03	5.903	0.48
No. 4	37.73		5.832	

* Anisotropy factor, $A = \frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}} = 1.0$ for

isotropic crystal.

table 9. Elastic compliances of UO_2 single crystals (in $10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dynes}$)

Crystal	S_{11}	S_{12}	S_{44}
No. 1	3.133	-0.7682	17.54
No. 2	3.460	-0.9492	16.79
No. 3	3.207	-0.8214	16.91

Table 10. Elastic constants of UO_2 single crystals computed from the correction of the velocities due to misorientation (in $10^{11} \text{ dynes/cm}^2$)

Crystal	C_{11}	C_{12}	C_{44}	Anisotropy factor
No. 1	38.01 ± 0.29	9.51 ± 0.46	5.73 ± 0.24	0.40
No. 2	37.31 ± 0.34	10.80 ± 0.43	5.94 ± 0.26	0.45
No. 3	37.88 ± 0.24	11.52 ± 0.30	5.88 ± 0.21	0.45
Mean value	37.73 ± 0.17	10.61 ± 0.23	5.85 ± 0.14	0.43

Table 11. Elastic compliances of UO_2 single crystals computed from the correction of the velocities due to misorientation (in $10^{-13} \text{ cm}^2/\text{dynes}$).

Crystal	S_{11}	S_{12}	S_{44}
No. 1	2.924 ± 0.067	-0.585 ± 0.024	17.45 ± 0.11
No. 2	3.081 ± 0.089	-0.691 ± 0.027	16.83 ± 0.10
No. 3	3.076 ± 0.067	-0.717 ± 0.020	17.01 ± 0.10
Mean value	3.027 ± 0.043	-0.664 ± 0.014	17.10 ± 0.06

Waterman が示した式 (Table 6) を用いて音速の変化を計算すると

$$\begin{aligned}\frac{\Delta v_1}{v_1} &= -5.25 \times 10^{-3} \\ \frac{\Delta v_2}{v_2} &= 5.24 \times 10^{-2} \\ \frac{\Delta v_3}{v_3} &= -0.903 \times 10^{-2}\end{aligned}\quad (11)$$

となる。また [001] 方向に對して $\theta = 3^\circ$, $\phi = 90^\circ$ のとき,

$$\begin{aligned}\frac{\Delta v_1}{v_1} &= -0.844 \times 10^{-3} \\ \frac{\Delta v_2}{v_2} &= \frac{\Delta v_3}{v_3} = 6.16 \times 10^{-3}\end{aligned}\quad (12)$$

程度の音速の変化を生ずることになる。misorientation を考慮した場合の弾性定数は Wachtman et al.¹⁴⁾ の示した計算方法 (付録 1) を用いて計算した結果を Table 10,¹⁵⁾ 11 に示す。これらの値は Wachtman, Wheat, Anderson および Bates の値とかなりよく一致している。

焼結ペレットの弾性定数は O/U 比が 2.002 ~ 2.22, 密度が 1.002 ~ 1.080 g/cm³ のものについて室温で測定した。式(8)と(9)を用いて求めたヤング率, 剛性率, 体積弾性率およびボアソン比を Table 12 に示す。Fig. 8 ~ 11 に O/U 比 (2.002 ~ 2.016) と粒径 (5 ~ 10 μm) を一定にしたときの, ヤング率, 剛性率, 体積弾性率およびボアソン比を気孔率の関数として示す。気孔率の範囲は 1 ~ 9 % であるが, 気孔率が増すにつれて, これらの弾性定数はそれぞれ, 大きく減少しているのがみられる。Springgs^{16, 17)} は内部に気孔を含んでいるアルミナ (Al_2O_3) および酸化マグネシウム (MgO) のヤング率 E と剛性率 G を実験的に次のように表わした。

$$E = E_0 e^{-b_E P} \quad (13)$$

$$G = G_0 e^{-b_G P} \quad (14)$$

ここに E_0 および G_0 は内部に気孔を含んでいない場合のヤング率と剛性率, b_E および b_G は実験的できまる定数, P は気孔率で次のように定数される。

$$P = \frac{\text{void volume}}{\text{total specimen volume}} \quad (15)$$

Table 12. Isotropic elastic constants for sintered
 $\text{UO}_2\text{-U}_4\text{O}_9$ pellets at room temperature

Specimen	O/U ratio	Density (g/cm ³)	Grain size (μ)	Young's modulus ($\times 10^{11}$ dynes/cm ²)	Shear modulus ($\times 10^{11}$ dynes/cm ²)	Bulk modulus ($\times 10^{11}$ dynes/cm ²)	Poisson's ratio
No. 1	2.002	10.55	6.0	19.58	7.45	17.64	0.315
No. 2	2.002	10.55	6.0	19.65	7.48	17.51	0.313
No. 3	2.002	10.55	6.0	19.44	7.38	17.70	0.317
No. 4	2.002	10.55	6.0	19.47	7.39	17.83	0.318
No. 5	2.002	10.55	6.0	19.83	7.57	17.39	0.310
No. 6	2.002	10.79	8.1	20.84	7.87	19.73	0.324
No. 7	2.002	10.80	8.1	20.88	7.86	20.23	0.328
No. 8	2.002	10.78	8.1	20.78	7.85	19.68	0.324
No. 9	2.002	10.79	8.1	20.92	7.91	19.70	0.323
No. 10	2.002	10.79	8.1	20.82	7.84	20.18	0.328
No. 11	2.002	10.55	5.9	19.56	7.46	17.34	0.312
No. 12	2.002	10.55	5.9	19.61	7.46	17.57	0.314
No. 13	2.002	10.55	5.0	20.23	7.72	18.42	0.317
No. 14	2.003	10.52	10.0	19.71	7.47	18.15	0.319
No. 15	2.003	10.45	15.0	19.24	7.31	17.43	0.316
No. 16	2.003	10.52	15.0	19.63	7.44	18.08	0.319
No. 17	2.003	10.55	19.6	19.36	7.38	17.17	0.312
No. 18	2.003	10.55	35.0	18.42	7.12	14.76	0.292
No. 19	2.003	10.55	19.6	18.74	7.13	16.80	0.314
No. 20	2.005	10.02	10.0	17.35	6.70	14.14	0.295

Specimen	O/U ratio	Density (g/cm ³)	Grain size ()	Young's modulus (X10 ¹¹ dynes/cm ²)	Shear modulus (X10 ¹¹ dynes/cm ²)	Bulk modulus (X10 ¹¹ dynes/cm ²)	Poissn's ratio
No.21	2.005	10.02	10.0	16.31	6.27	13.66	0.301
No.22	2.016	10.55	6.0	19.35	7.34	17.62	0.317
No.23	2.016	10.55	6.0	19.47	7.41	17.45	0.314
No.24	2.016	10.55	6.0	19.55	7.42	17.80	0.317
No.25	2.016	10.55	6.0	19.62	7.44	17.97	0.318
No.26	2.016	10.55	6.0	19.46	7.38	17.82	0.318
No.27	2.016	10.55	6.0	19.66	7.49	17.52	0.313
No.28	2.016	10.55	6.0	19.83	7.57	17.39	0.310
No.29	2.14	10.64	6.0	15.13	5.62	16.27	0.345
No.30	2.15	10.70	4.1	15.68	5.86	16.44	0.341
No.31	2.18	10.75	4.0	15.99	5.99	16.25	0.336
No.32	2.20	10.59	6.1	14.82	5.55	14.97	0.335
No.33	2.20	10.59	6.1	14.40	5.37	15.09	0.341
No.34	2.20	10.59	6.1	14.35	5.33	15.14	0.342
No.35	2.22	10.60	5.5	14.95	5.60	14.92	0.333

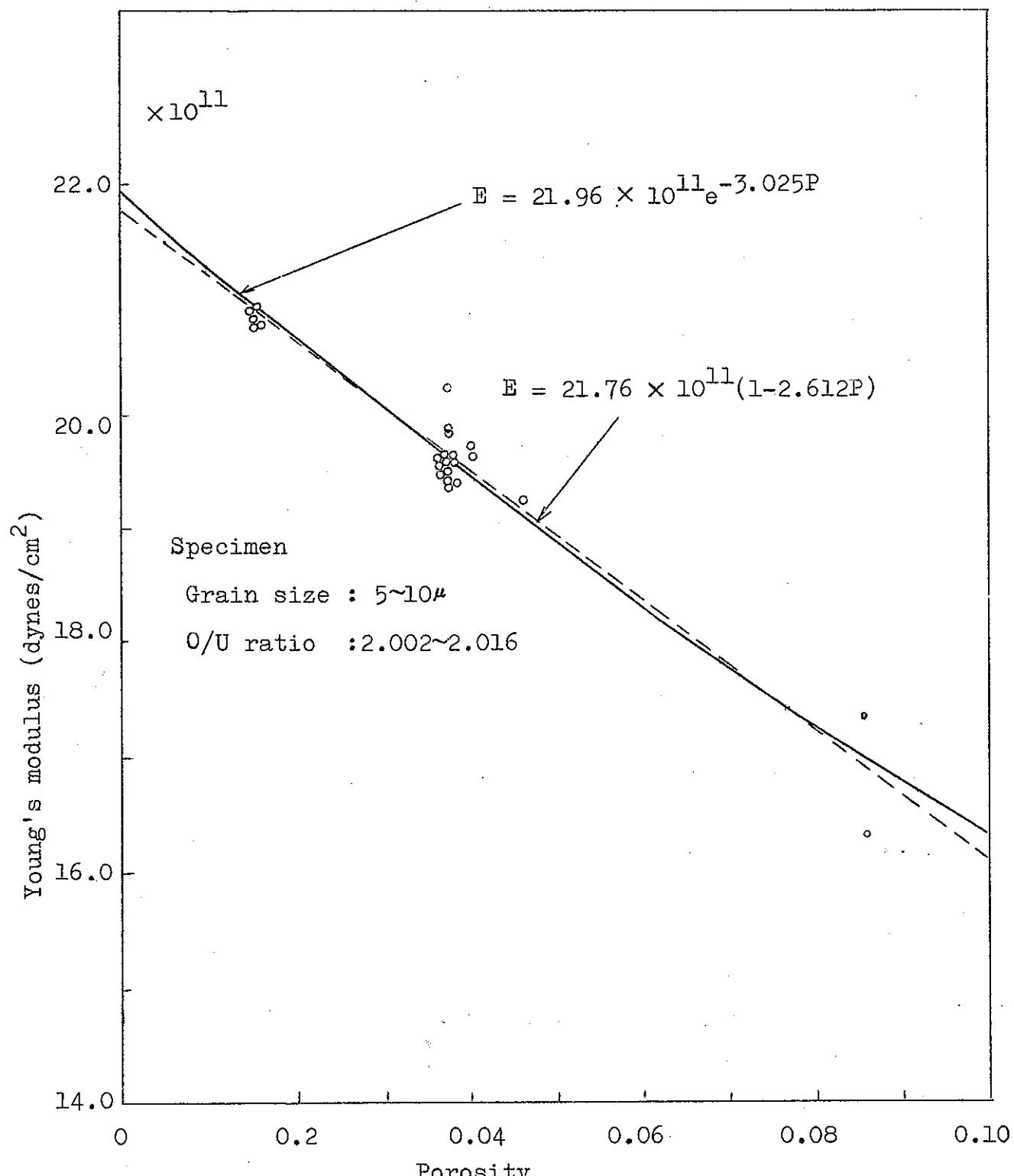
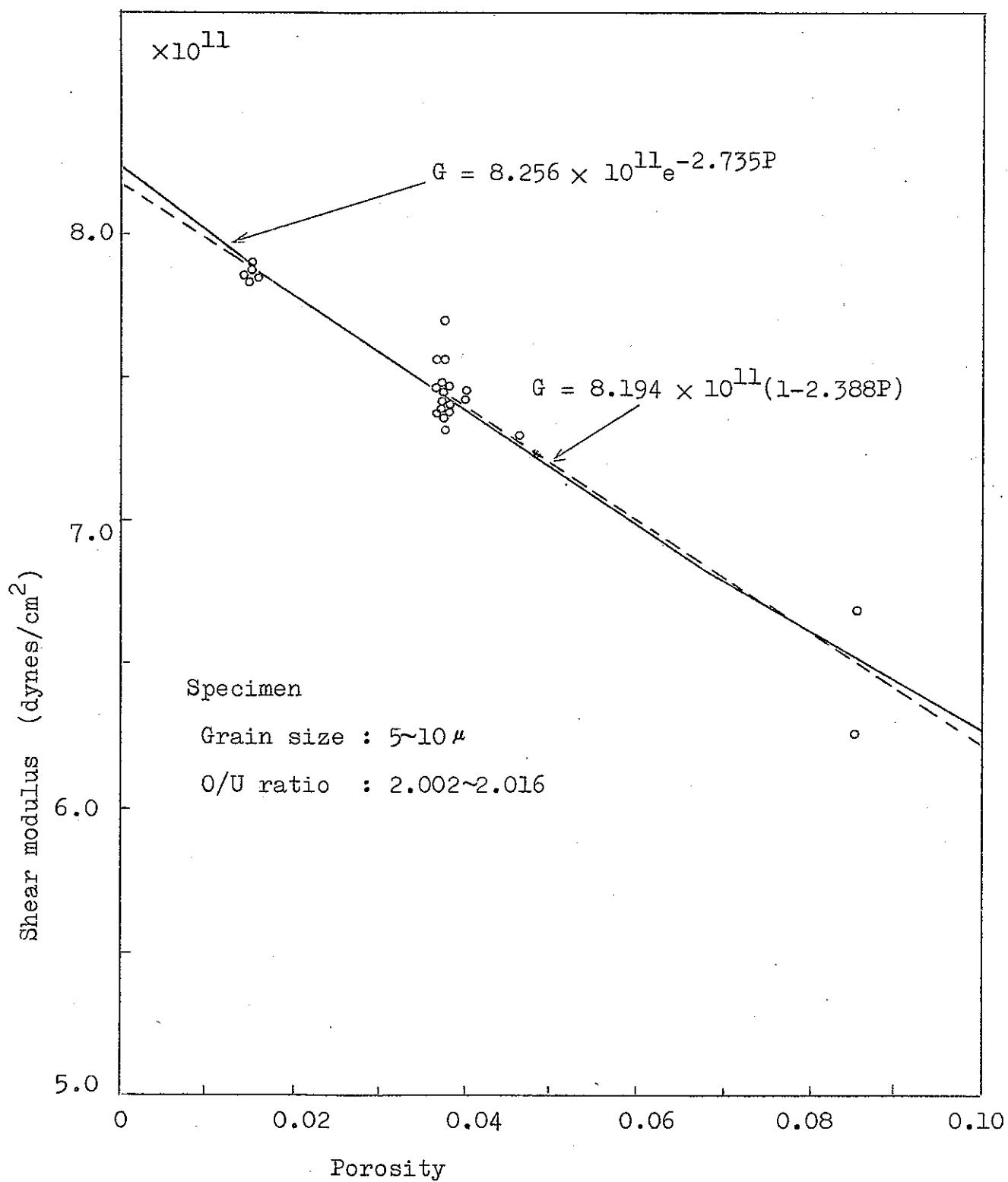


Fig. 8. Effect of porosity on Young's modulus of sintered UO₂ pellets.



Fif. 9. Effect of porosity on shear modulus of sintered UO_2 pellets.

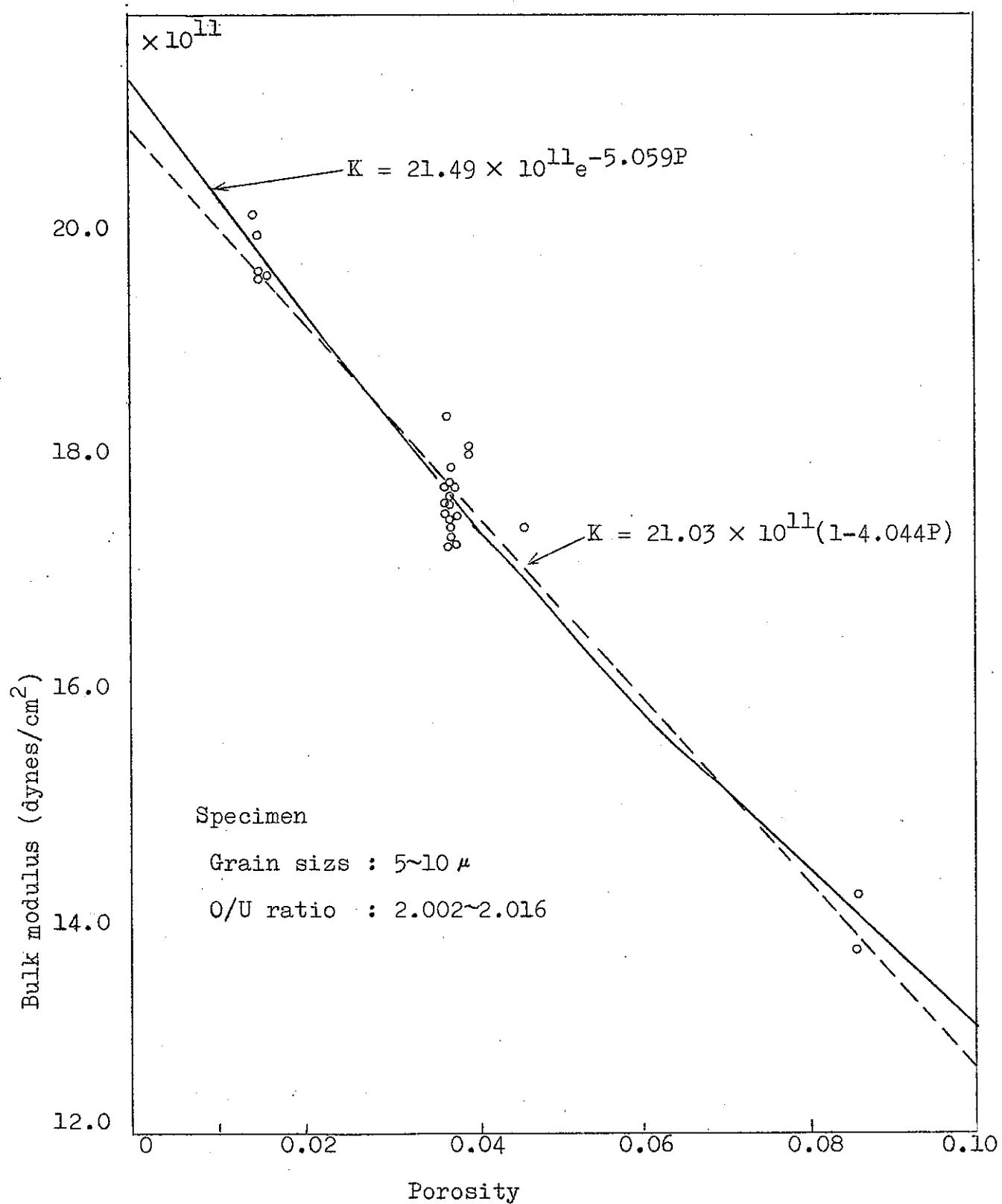


Fig. 10. Effect of porosity on bulk modulus of sintered UO_2 pellets.

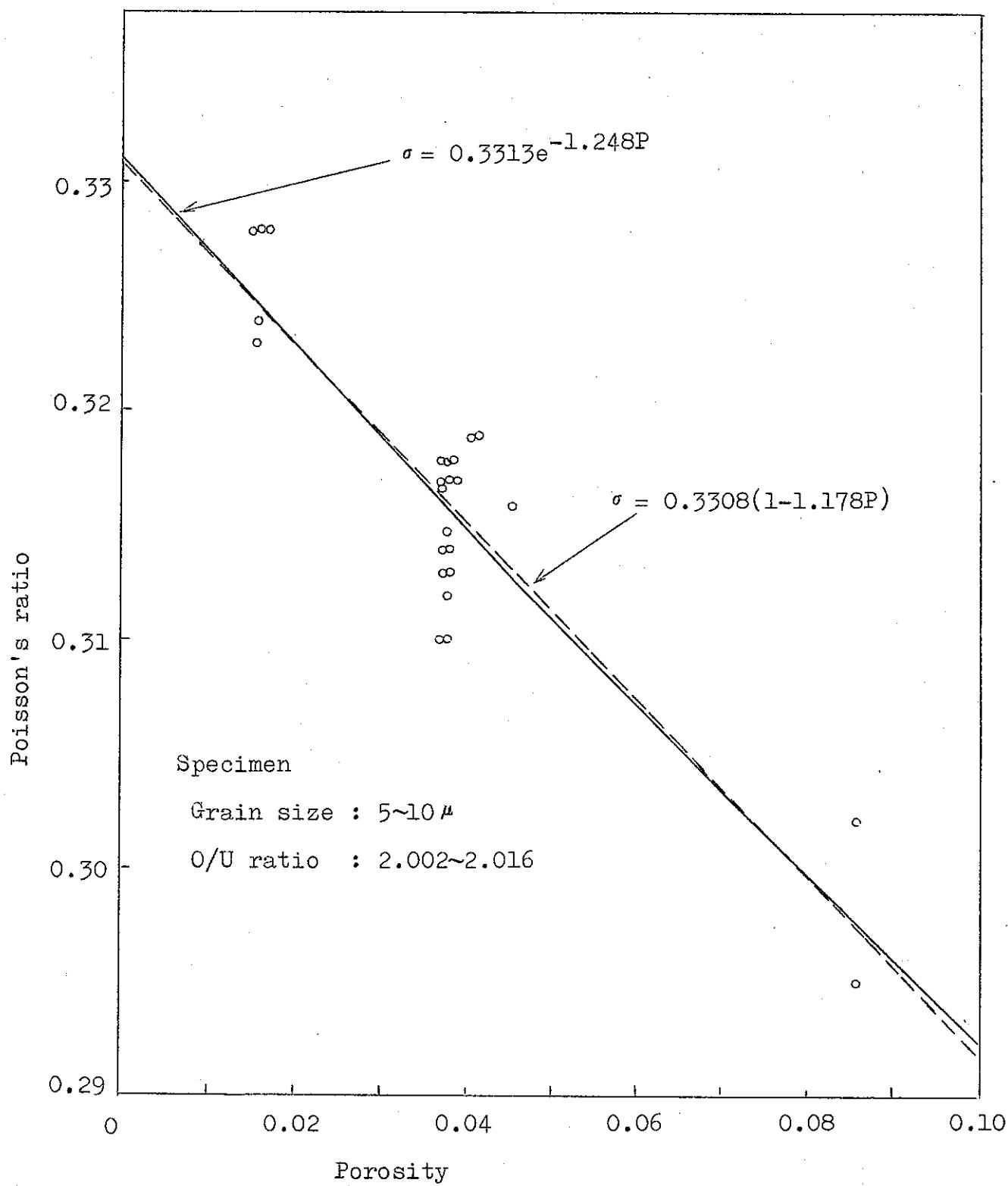


Fig. 11. Effect of porosity on Poisson's ratio of sintered UO_2 pellets.

気孔率 P が小さいとき(13), (14)は次のように書き直すことができる。¹⁸⁾

$$E = E_0 (1 - b_E P) \quad (16)$$

$$G = G_0 (1 - b_G P) \quad (17)$$

(13), (14)は次のようにも書き直すことができ、最小二乗法を用いて解くのに容易である。

$$\ell_n E = \ell_n E_0 - b_E P \quad (18)$$

$$\ell_n G = \ell_n G_0 - b_G P \quad (19)$$

また、体積弾性率 K およびボアソン比 σ についても上と同じように書くことができるだろう。すなわち、

$$K = K_0 e^{-b_K P} \quad (20)$$

$$\sigma = \sigma_0 e^{-b_\sigma P} \quad (21)$$

気孔率 P が小さいとき、

$$K = K_0 (1 - b_K P) \quad (22)$$

$$\sigma = \sigma_0 (1 - b_\sigma P) \quad (23)$$

となる。ここに、 K_0 、および σ_0 は気孔がない場合の体積弾性率およびボアソン比。 b_K と b_σ は定数である。式(13)～(17), (20)～(23)の定数を最小二乗法で求めた結果を Table 13 に示す。Fig. 8～11 の曲線はこれらの結果を示したもので、実験データとよく一致する。また Table 13 のヤング率および剛性率は Forlano et al.⁹⁾ や Marlowe および Kajnoff¹⁹⁾ の結果とかなりよく一致する。

密度 ($10.50 \sim 10.60 \text{ g/cm}^3$) と O/U 比 ($2.002 \sim 2.016$) を一定にしたときのヤング率を粒径の関数として Fig. 12 に示す。最小二乗法を用いて Knudsen の式に適用すると次式が得られる。

$$E = 2.049 \times 10^{12} G^{-0.02336} \text{ dynes/cm}^2 \quad (24)$$

ここに、 G は粒径 (μm) である。この結果からヤング率は粒径によってほとんど影響されないことがわかる。

密度 ($10.50 \sim 10.70 \text{ g/cm}^3$) と粒径 ($4 \sim 10 \mu\text{m}$) を一定にしたときのヤング率を O/U 比または $U_4 O_{9-y}$ 相の体積比の関数として測定した。 $U_4 O_{9-y}$ の体積比は X 線回折から (531) 指数面の UO_{2+x} と $U_4 O_{9-y}$ の 2 相の相対積分強度を測定して求めた。Fig. 13 はヤング率を過剰酸素の関数としてプロットしたものである。ヤング率は O/U 比が増すとともに減少しているのがみられる。最小二乗法を用いて指数関数の式で表わすと、次式が得られる。

$$E = 1.983 \times 10^{12} e^{-1.527 X} \text{ dynes/cm}^2 \quad (25)$$

ここに X は過剰酸素の量を示す。Fig. 14 はヤング率を第 2 相の $U_4 O_{9-y}$ の体積比でプロットしたものである。

Table 13. Values of empirical constant for Young's modulus, shear modulus, bulk modulus and Poisson's ratio obtained by least-squares fitting of exponential and linear equations.

Equation (dynes/cm ²)	E_0	b_E
$E = E_0 e^{-b_E P}$	21.96×10^{11}	3.025
$E = E_0 (1 - b_E P)$	21.76×10^{11}	2.612
Equation (dynes/cm ²)	G_0	b_G
$G = G_0 e^{-b_G P}$	8.256×10^{11}	2.735
$G = G_0 (1 - b_G P)$	8.194×10^{11}	2.388
Equation (dynes/cm ²)	K_0	b_K
$K = K_0 e^{-b_K P}$	21.49×10^{11}	5.059
$K = K_0 (1 - b_K P)$	21.03×10	4.044
Equation	σ_0	b_σ
$\sigma = \sigma_0 e^{-b_\sigma P}$	0.3313	1.248
$\sigma = \sigma_0 (1 - b_\sigma P)$	0.3308	1.178

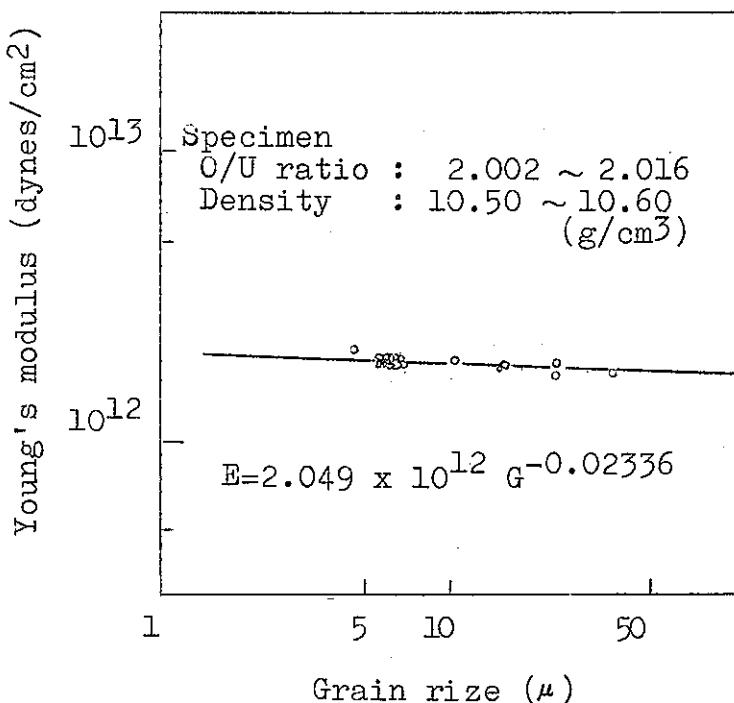


Fig. 12. Effect of grain size on Young's modulus of sintered pellets.

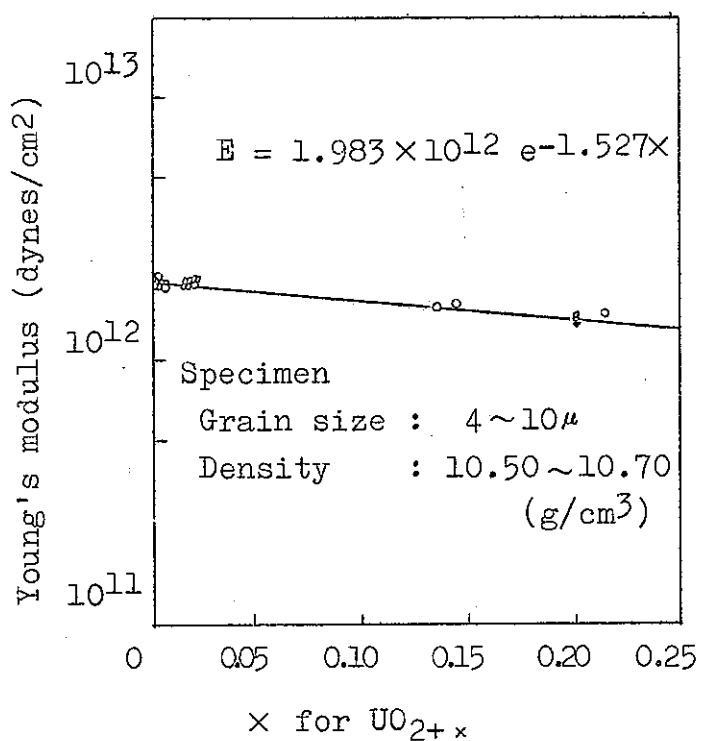


Fig. 13. Effect of excess oxygen on Young's modulus of sintered pellets.

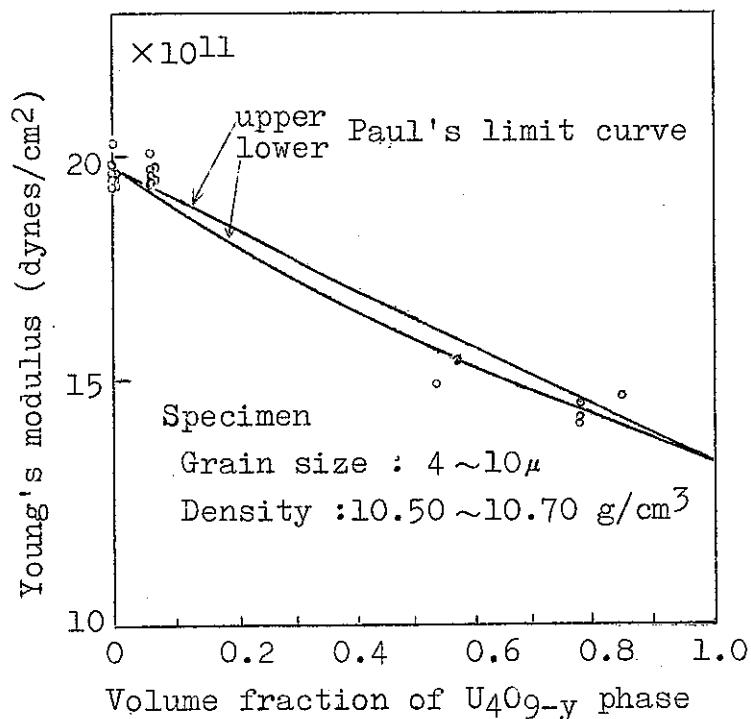


Fig. 14. Young's modulus for UO_{2+x}-U₄O_{9-y} against volume fraction of the second U₄O_{9-y} phase.

Table 14. Fracture strength for sintered pellets of various O/U ratios and a fused single crystal at room temperature.

Material	O/U ratio	Density (g/cm ³)	Grain size (μ m)	Specimen size length diameter (mm) (mm)	Fracture strength (kg/mm ²)
Sintered pellets	2.002	10.80	8.1	10.580×12.50	106.0
	2.002	10.79	8.1	10.508×12.50	97.6
	2.002	10.80	8.1	10.578×12.50	102.0
	2.002	10.80	15.7	10.510×12.50	95.1
	2.003	10.55	5.9	10.480×12.50	101.0
	2.003	10.55	5.9	10.490×12.50	98.5
	2.003	10.55	5.9	10.460×12.50	95.0
	2.003	10.55	8.5	10.440×12.50	93.5
	2.003	10.55	19.6	10.430×12.50	90.0
	2.003	10.55	19.6	10.420×12.50	86.0
	2.003	10.55	35.0	10.330×12.50	80.0
	2.005	10.32	17.0	10.350×12.50	85.6
	2.005	10.02	10.0	10.250×12.50	78.5
	2.005	10.02	10.0	10.220×12.50	74.5
	2.016	10.55	6.0	10.438×12.50	101.0
	2.016	10.55	6.0	10.300×12.50	96.0
	2.016	10.50	6.0	10.350×12.50	100.0
Fused single crystal	2.15	10.64	4.1	10.480×12.50	65.3
	2.15	10.64	4.1	10.400×12.50	61.1
	2.18	10.70	4.0	10.410×12.50	61.8
	2.20	10.59	6.1	10.450×12.50	65.3
	2.20	10.59	6.1	10.450×12.50	73.5
	2.23	10.60	5.5	10.430×12.50	73.5
	2.001	10.94	-	4.748×4.80	69.8*

* Direction of compression : [110]

3.2 圧縮破壊強度の測定

圧縮試験で重要なことは、特に UO_2 のように脆い物質では試料面が圧縮治具面とぴったり接触するように滑らかで十分な平行度をもつことである。試料面の平坦度や平行度の悪いものは、荷重が均等に加わらず破壊する前に chipping を起こして短冊状に割れてしまう。十分注意して作製した試料は chipping を起こさず破壊と同時にほとんど粉末になってしまった。この実験では試験中に chipping を起こして途中で割れたものは除外した。Table 14 に O/U 比、密度、粒径を種々変えたときの焼結ペレットと溶融単結晶の圧縮破壊強度を示す。 O/U 比 ($2.002 \sim 2.016$) と粒径 ($5 \sim 10 \mu\text{m}$) を一定にしたときの破壊強度を気孔率の関数として表わしたもののが Fig. 15 である。破壊強度は気孔率が増すにつれて減少しているのがみられる。破壊強度 S も弾性定数の場合と同じく気孔率 ²⁰⁾ P の関数として次のように表わすことができる。

$$S = S_0 e^{-bP} \quad (26)$$

ここに S_0 は気孔のない場合の強度、 b は定数である。 S_0, b を Fig. 15 の結果から最小二乗法を用いて求めると次のようになる。

$$S = 1.067 \times 10^0 e^{-3.505P} \text{ dynes/cm}^2 \quad (27)$$

UO_2 の破壊強度に関しては、Knudsen, Parker および Burdick ²¹⁾ の曲げ試験による強度と気孔率および粒径との関係を表わしたものがあるが、圧縮試験によるデータはほとんどなくわずかに Burdick および Parker ²²⁾ のデータがあるのみである。圧縮試験の場合、強度は試料の長さと直径との比によってかなり違ってくるが、この実験では試料の長さと直径の比はほぼ 1 である。Burdick および Parker の同じ割合のものに比較すると圧縮破壊強度はよく一致している。

密度 ($10.50 \sim 10.60 \text{ g/cm}^3$) と O/U 比 ($2.002 \sim 2.016$) を一定にしたときの破壊強度と粒径との関係を Fig. 16 に示す。破壊強度は粒径が増すにつれて減少し、 $d^{\frac{1}{2}}$ 則の粒度依存性を示した。また $d^{\frac{1}{2}} \approx 0$ に外挿したときの破壊強度は単結晶の圧縮破壊強度に ²³⁾ 一致した。圧縮破壊強度 S と粒度 d との間の関係を次のように Petch の式を用いて表わすことができる。

$$S = S_1 + K_1 d^{\frac{1}{2}} \quad (28)$$

ここに S_1, K_1 は物質定数である。Fig. 16 のデータを最小二乗法を用いて S_1, K_1 を求めると次のようになる。

$$S = 6.92 \times 10^9 + 6.60 \times 10^7 d^{\frac{1}{2}} \text{ dynes/cm}^2 \quad (29)$$

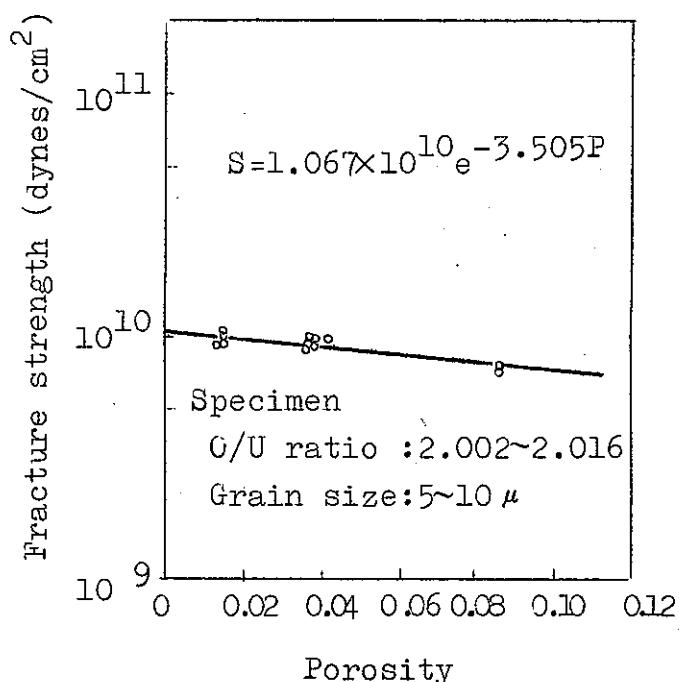


Fig. 15. Effect of porosity on fracture strength of sintered pellets.

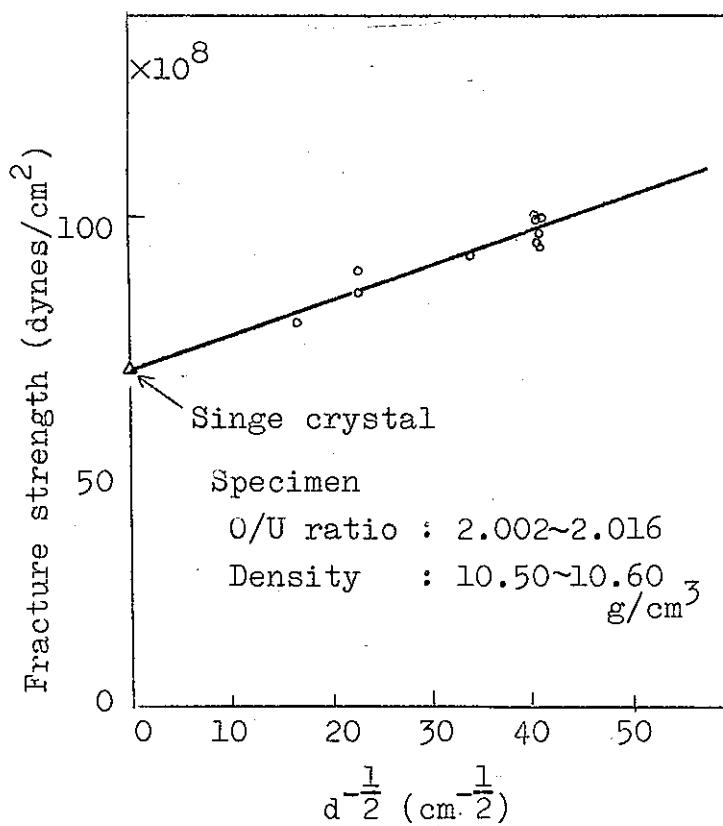


Fig. 16. Relation between the fracture strength and the grain size for sintered UU_2 pellets.

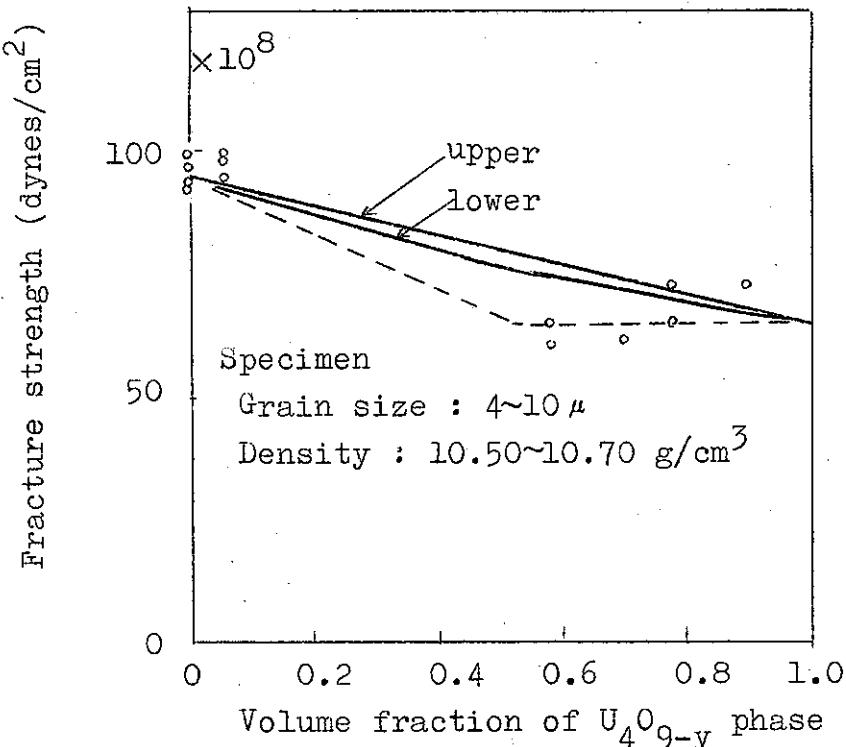


Fig. 17. Fracture strength for $UO_2+x-U_4O_{9-y}$ against volume fraction of the second U_4O_{9-y} phase.

密度(10.50~10.70 g/cm³)と粒径(4~10 μ m)を一定にしたときの破壊強度をO/U比または U_4O_{9-y} 相の体積比の関数として測定した。Fig. 17にこの結果を示す。破壊強度は U_4O_{9-y} の体積比が増すにつれて減少しているのがみられる。

4. 考 察

4.1 単結晶の弾性定数

UO_2 単結晶はTable 10でみられるように大きな異方性を示している。立方結晶の方位²⁴⁾と弾性定数との間には次のような関係がある。

$$\frac{1}{E} (\text{dyn}/\text{cm}^2) = S_{11} - 2 [(S_{11} - S_{12}) - \frac{1}{2} S_{44}] \cdot \Gamma \quad (30)$$

$$\frac{1}{G} (\text{dyn}/\text{cm}^2) = S_{44} + 4 [(S_{11} - S_{12}) - \frac{1}{2} S_{44}] \cdot \Gamma \quad (31)$$

$$\Gamma = \alpha^2 \beta^2 + \alpha^2 r^2 + \beta^2 r^2 \quad (32)$$

ここで α , β , r は方向余弦で $\alpha^2 + \beta^2 + r^2 = 1$ である。Table 10, 11の弾性定数と弾性コンプライアンスを用いて(30), (31)式の E dyn/cm^2 と G dyn/cm^2 を計算した結果をTable 15に示す。理論解析の特長はFig. 18(A)で示される立方晶内のどの点の弾性定数でも計算することができるることである。例えは、Fig. 18(B)に示されるように[120]のヤング率と剛性率は(30), (31)式の S_{ij} と $\Gamma(120) = 0.16$ を用いて $E_{120} = 21.82 \times 10^{11}$,

Table 15. Technical elastic moduli of UO_2 single crystal as a function of crystal orientation.

Value of the function of orientation (Γ)	$E_{\ell km}$ ($\times 10^{11}$ dynes/cm 2)	$G_{\ell km}$ ($\times 10^{11}$ dynes/cm 2)
0.00	33.04 (E_{100})	5.848 (G_{100})
0.05	28.47	5.686
0.10	25.01	5.533
0.14	22.79	5.417
0.16	21.82	5.360
0.17	21.37	5.333
0.20	20.12	5.251
0.23	19.00	5.172
0.25	18.33 (E_{110})	5.121 (G_{110})
0.26	18.00	5.095
0.27	17.70	5.070
0.28	17.40	5.045
0.29	17.11	5.020
0.30	16.83	4.996
0.31	16.56	4.972
0.32	16.29	4.948
0.33	16.04	4.924
0.333	16.03 (E_{111})	4.917 (G_{111})

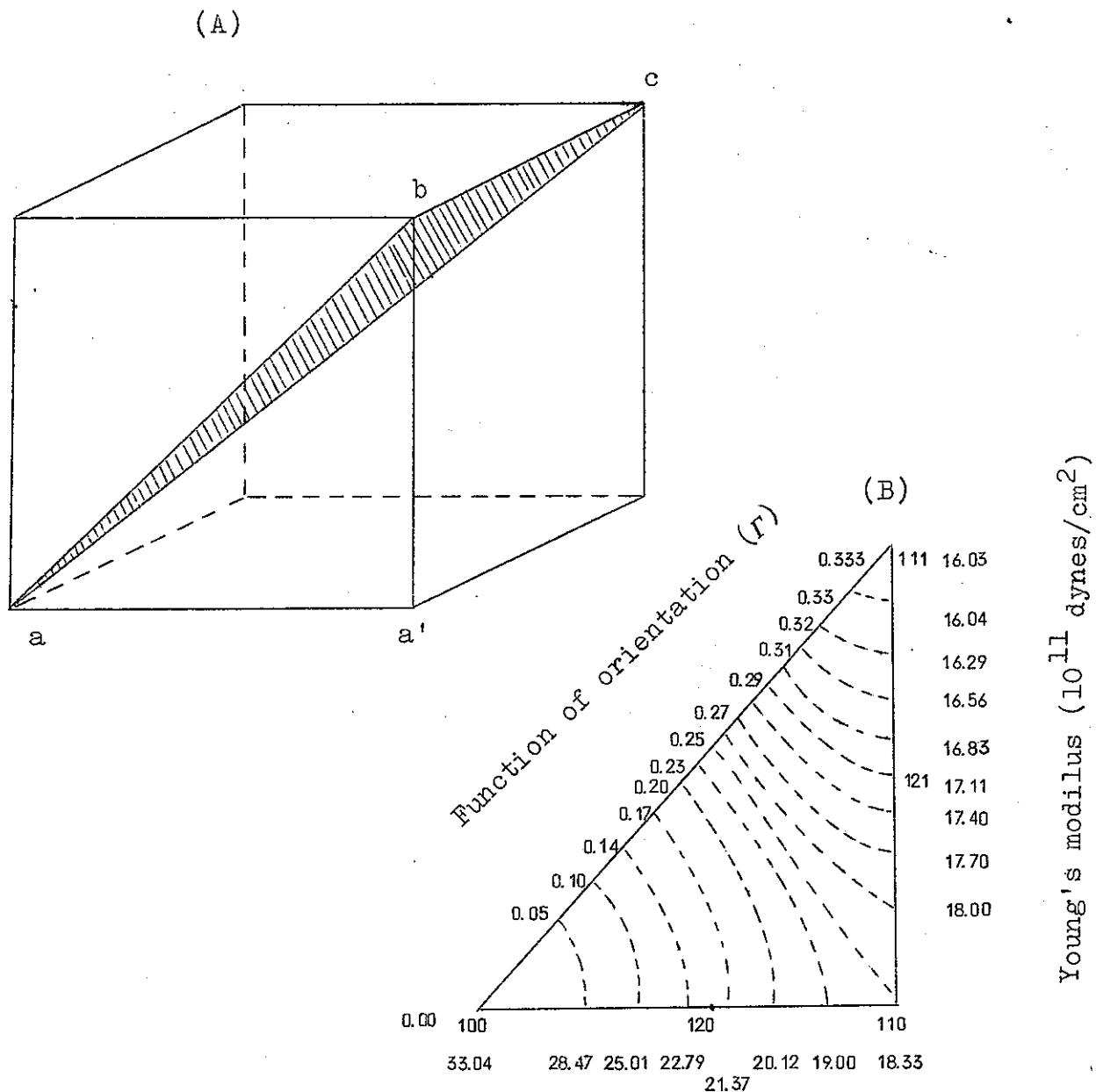


Fig. 18. (A) Cube of UO_2 single crystal illustrating three crystal orientations. $\overline{aa'}=[100]$, $\overline{ab}=[110]$, and $\overline{ac}=[111]$.
 (B) Two-dimensional stereogram illustrating E_{akm} as the function of crystal orientation. Triangle a b c is the hatched plane of (A).

$G_{120} = 5.360 \times 10^{11}$ dynes/cm² と計算することができる。Table 15 または Fig. 18(B) でみられるようにヤング率は [100] 方向で最大、[111] 方向で最小になつてゐる。一方焼結 UO₂ ベレットは多結晶で、方位はランダムであるが、原子炉内の燃焼に伴なつて、粒成長が起つて、優越方位をもつてくる。例えばベレットの中心近くの高温度のところでは、熱勾配によりボイドの移動が起つて優越方位をもつた柱状晶が形成される。²⁵⁾ この柱状晶の長軸または成長方向は [111] 方向であることが報告されている。このような個々の粒の異方性は燃料要素の物性に影響を与えることが考えられる。しかし、Table 10 の異方性は室温で測定されたものであるが、一方柱状晶は高温領域で形成されるものである。UO₂ については異方性におよぼす温度の影響についてはこれまでに調べられていない。しかし NaCl や KI のようなイオン結晶については、異方性は温度が増すにつれて減少し、ある温度では等方性になり、さらに温度が増すにつれて逆の異方性を示すことが見出されて²⁶⁾ いる。このことから UO₂ の異方性因子は高温では 1 よりも大きくなつて、ヤング率は [100] 方向で最小、[111] 方向で最大になる可能性も考えられる。

単結晶の弾性定数から多結晶の弾性定数の平均のとり方に Voigt,²⁷⁾ Reuss²⁸⁾ および Hashin と Shtrikman²⁹⁾ の理論がある。これらの関係を Table 16 に、またこの関係を用いてヤング率と剛性率を計算した結果を Table 17 に示す。UO₂ 多結晶の気孔率 P=0 の場合のヤング率は Table 13 から直線の式で求めたとき 21.76×10^{11} dynes/cm²、指数関数の式で 21.96×10^{11} dynes/cm² である。これらの値は単結晶の測定結果から計算した値 (Table 17) に非常によく一致する。

Table 17. Elastic constants of polycrystalline UO₂ from single crystal data (in 10^{11} dynes/cm²)

Calculation	Young's modulus	Shear modulus
Voight	23.27	8.934
H. and S. upper bound	21.94	8.348
Mean	21.68	8.241
H. and S. lower bound	21.40	8.156
Reuss	20.12	7.568

Table 16. Equations for calculating elastic constants of polycrystalline oxides from single crystal constants

Voight ²⁷⁾ Reuss ²⁸⁾ Hashin and shtrikman ²⁹⁾	$K_V = \frac{1}{3}(C_{11} + 2C_{12})$ $G_V = \frac{1}{5}(C_{11} - C_{12}) + \frac{3}{5}C_{44}$ $K_R = \frac{1}{3}(C_{11} + 2C_{12})$ $G_R^{-1} = \frac{4}{5}(S_{11} - S_{12}) + \frac{3}{5}S_{44}$ $G_1^* = G_1 + 3 \left(\frac{5}{G_2 - G_1} - 4\beta_1 \right)^{-1}$ $G_2^* = G_2 + 2 \left(\frac{5}{G_1 - G_2} - 6\beta_2 \right)^{-1}$ $\beta_1 = -\frac{3(K+2G_1)}{5G_1(3K+4G_1)}$ $\beta_2 = -\frac{3(K+2G_2)}{5G_2(3K+4G_2)}$ $G_1 = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12})$ $G_2 = C_{44}$ $K = \frac{1}{3}(C_{11} + 2C_{12})$ $G_1^* > G^* > G_2$
---	---

If anisotropy factor is less than one, where G^* is true value.

E = Young's modulus, K = Bulk modulus,

G = Shear modulus.

4.2 気孔率の影響

気孔率が増すと弾性定数および破壊強度はどちらも減少する (Fig. 19)。気孔率 P が 0.10 以下のとき, Table 13 と (33) 式から次のように書き表わすことができる。

$$E = 2.176 \times 10^{12} (1 - 2.612P) \text{ dynes/cm}^2 \quad (33)$$

$$S = 1.054 \times 10^{10} (1 - 2.896P) \text{ dynes/cm}^2 \quad (34)$$

(33), (34) の右辺の気孔率 P の係数を比較すると, ほぼ等しくなっている。Griffith³⁰⁾によると破壊強度 σ_f は 2C の長さのクラックがあるとき次のように表わされる。

$$\sigma_f \simeq \left(\frac{Er}{C} \right)^{1/2} \quad (35)$$

ここに r は表面エネルギーである。いま表面エネルギーがヤング率 E に比例するならば, 破壊強度 σ_f は $(Er)^{1/2}$ に比例することから, σ_f は E に比例することになり, 上の結果を説明することができる。Rossi³¹⁾ の計算によると応力集中係数 κ は気孔の形状に依存する。気孔が球状のとき κ の値は 2 であるが, 加えられた応力に対して垂直な橈円体のときは 2 よりも大きく, また応力に対して平行な橈円体のときは 2 よりも小さくなっている (Fig. 20)。Rossi はヤング率を気孔率の関数として次のように表わした。

$$\kappa = \frac{5a}{4c} + \frac{3}{4} \quad (36)$$

$$E = E_0 [1 - (\frac{5a}{4c} + \frac{3}{4}) P] \quad (37)$$

ここで $\frac{a}{c}$ は橈円体の軸比を示す。気孔の形状が $\frac{a}{c} \simeq 1.5$ の偏平な橈円体と仮定すれば, Fig. 8 または (33) 式で示される実験結果をよく説明することができる。

Hasselmann³²⁾ は気孔の強度におよぼす影響とヤング率に及ぼす影響との間の関係を次のように表わした。

$$S = S_0 (1 - A_s P) \quad (38)$$

$$E = E_0 (1 - A_m P) \quad (39)$$

$$\text{ここで } A_s = k A_m \quad (40)$$

で表わされると仮定した。 k は定数であるが, 気孔の形状とか分布に依存する。これから破壊強度は

$$S = S_0 (1 - k A_m P) \quad (41)$$

で表わされる。 k の値は気孔が球状のときは 1.5 であるが, 外応力に対して垂直な円柱形のときは 1.28 になる。これから気孔が橈円体のときは k の値は 1.28 に近くなり, Fig. 19 または式 (33), (34) の実験結果とかなりよく一致する。

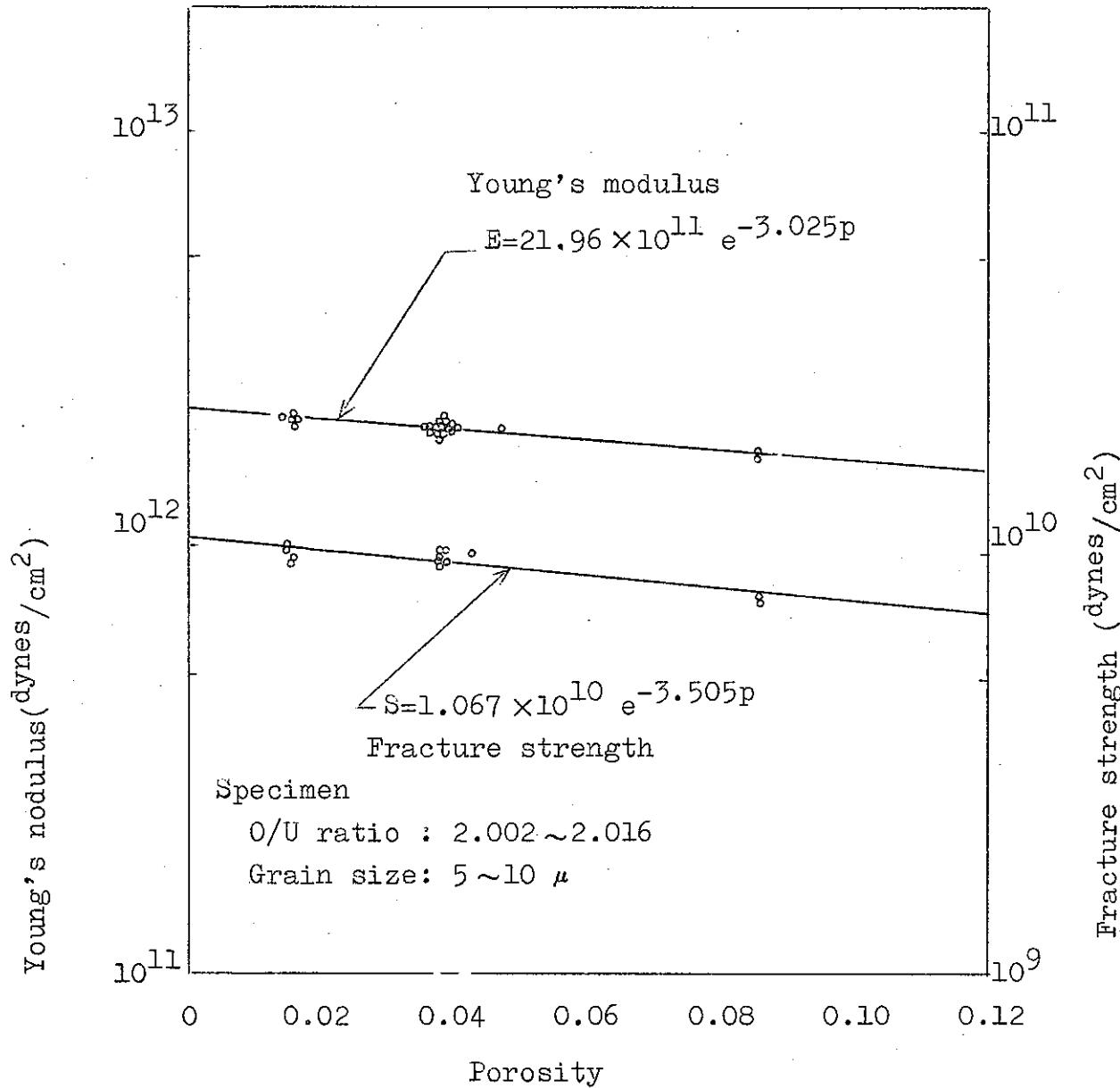


Fig. 19. Effects of porosity on Young's modulus and fracture strength of sintered UO₂ pellets.

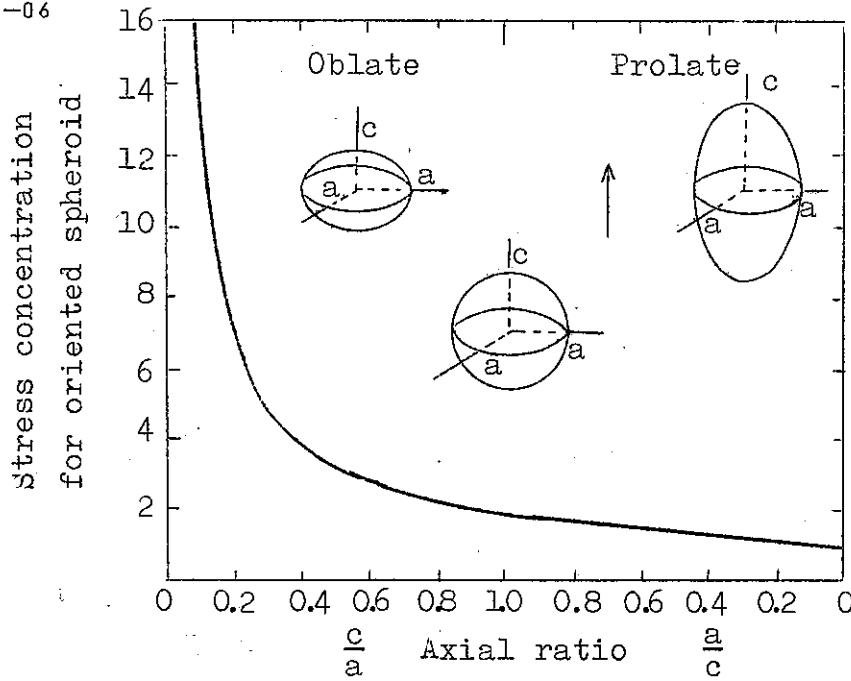


Fig. 20. Stress concentration about an oriented spheroidal cavity as a function of axial ratio(after Rossi³¹))

4.3 粒径の影響

粒径のヤング率によよぼす影響は室温では Fig. 12 に示されるようほとんどない。このことは Stokes³³⁾も報告している。粒界緩和が起こつくるのは高温で、この時ヤング率は温度とともに急速に減少し、減少の割合はより小さな粒径のものに対して大きくなる。粒径の破壊強度によよぼす影響は式(29)で示されるように $d^{-\frac{1}{2}}$ 則の粒度依存性を示す。室温で破壊前に微小塑性変形が存在するのが見出されているので、クラックが粒界に形成される前に 1 個の粒内に閉じ込められる臨界の転位密度 ρ_c を考える。この場合、半径 r の粒内に閉じ込められた転位のエネルギーと表面エネルギーの間には次の関係がある。

$$\frac{4}{3} \pi r^3 \rho_c \left(\frac{1}{2} \mu b^2 \right) = 4 \pi r^2 \left(r - \frac{1}{2} r_B \right) \quad (42)$$

ここに μ は剛性率、 b は Burgers ベクトルの大きさ、 r は粒界でクラックを形成するときの表面エネルギー、 r_B は粒界エネルギーである。これから破壊時における臨界転位密度 ρ_c は $r_B \ll r$ の場合次のように表わされる。

$$\rho_c = \frac{12r}{\mu b^2 d} \quad (2r = d) \quad (43)$$

ここに d は粒径である。一方破壊応力 σ_f と転位密度 ρ_c との間には次の関係がある。

$$\sigma_f = \sigma_0 + \alpha \mu b \rho_c^{\frac{1}{2}} \quad (44)$$

ここに σ_0 は動的な摩擦応力、 α は定数である。(33), (44)式に、 $\alpha = 1$, $\mu = 7.46 \times 10^{11}$ dynes/cm², $r = 1030$ erg/cm²³⁵⁾ を代入すると σ_f は次のようになる。

$$\sigma_f = \sigma_0 + 960 \times 10^7 d^{-\frac{1}{2}} \text{ dynes/cm}^2 \quad (45)$$

この関係は Fig. 16 または(29)式の結果とよく一致している。 σ_0 は転位の運動に対する抵抗力で、Fig. 16 でみられるように $d^{-\frac{1}{2}} = 0$ に外挿したときの値である。この外挿値は単結晶の破壊強度と非常によく一致している。

4.4 過剰酸素の影響

Paul³⁶⁾ は弾性エネルギー理論から 2 相を含む物質のヤング率を次のように表わした。

$$E_U = v_1 E_1 + v_2 E_2 \quad (46)$$

$$\frac{1}{E_L} = \frac{v_1}{E_1} + \frac{v_2}{E_2} \quad (47)$$

ここで E_U , E_L は上限と下限のヤング率, v_1 , E_1 と v_2 , E_2 はそれぞれ、第 1 相および第 2 相の体積比とヤング率, $v_1 + v_2 = 1$ である。 E_1 , E_2 の値は(25)式から, $x = 0, 0.25$ のときの値 $E_1 = 1.967 \times 10^{12}$ dynes/cm², $E_2 = 1.360 \times 10^{12}$ dynes/cm² を用いた。Fig. 14 でみられるように実験結果は Paul の理論曲線によく一致している。破壊強度についても Paul の理論を適用した。この場合、破壊強度 σ_f は $(E_r)^{\frac{1}{2}}$ に比例し、 r はヤング率 E に比例するとして、 $\sigma_f \propto E$ となることから、第 1 相、および第 2 相の強度をそれぞれ、 $S_1 = 95.1 \times 10^8$ dynes/cm², $S_2 = 66.1 \times 10^8$ dynes/cm² とした。Fig. 17 でみられるように破壊強度については、Paul の理論では説明できず、第 2 相の $U_4 O_{9-y}$ の体積比が 0.5 以上になると破壊強度はほぼ一定になり $U_4 O_{9-y}$ 相の強度と大体同じになった。このことは、過剰酸素を含んだ酸化ウランは析出の際、第 2 相の $U_4 O_{9-y}$ が第 1 相の UO_2+x を取り囲むために^{37, 38)} 第 2 相を占める割合が重要な因子となり、第 2 相の体積比が 0.5 以上になると、破壊強度は $U_4 O_{9-y}$ の強度に支配されることを示唆するものである。

5. 要 約

- 1) 溶融 UO_2 単結晶の室温での弾性定数を測定して、 $C_{11} = 37.73$, $C_{12} = 10.61$, $C_{44} = 5.85 \times 10^{11}$ dynes/cm² の値を得た。
- 2) 焼結ペレットの弾性定数および破壊強度を気孔率、粒径、過剰酸素の関数として求めた。
- 3) 気孔率のヤング率における影響は Rossi の計算によって説明することができた。また気孔率の破壊強度における影響は Hasselman の説明から理解することができた。
- 4) 粒径のヤング率における影響はほとんどなかった。粒径の破壊強度における影響は Petch の関係式と同じであり、これは破壊応力が臨界の転位密度で支配されるという著

者等の理論で説明することができた。

5) 過剰酸素のヤンク率におよぼす影響は Paul の理論で説明された。過剰酸素の破壊強度におよぼす影響は Paul の理論では説明できず、体積比が 0.5 以上になると第 2 相の強度と同じになった。これは $U_2O_2 + x$ が $U_4O_9 - y$ に取り囲まれていることによって理解することができた。

最後に本研究を遂行するに当って種々討論して下さった東大井形形助教授に感謝の意を表する。

付録

1 単結晶の任意の方向の速度から立方晶の弾性定数を決める方法³⁹⁾

1-1 弹性定数の計算式

音速と弾性定数との関係は Farneill の記号を用いて永年方程式 (secular equation) は 3×3 determinant を含む式として次のように表わされる。⁴⁰⁾

$$|\Gamma_{jk} - \delta_{jk} x| = 0 \quad (1)$$

$$\text{ここで } x = \rho v^2 \quad (2)$$

ρ : 密度

v : 速度

$$\text{および } \Gamma_{jk} = \frac{1}{2} \sum \alpha_i \alpha_\ell (C_{ijk\ell} + C_{ij\ell k}) \quad (3)$$

である。(3)式で α_i は進行方向に對する方向余弦、 $C_{ijk\ell}$ は弾性定数で、両者とも結晶軸に關係する。方向余弦を ℓ, m, n として立方晶系の対称性から Γ_{jk} は次のようになる。

$$\Gamma_{11} = C_{11} \ell^2 + C_{44} (m^2 + n^2) \quad (4)$$

$$\Gamma_{22} = C_{11} m^2 + C_{44} (\ell^2 + n^2) \quad (5)$$

$$\Gamma_{33} = C_{11} n^2 + C_{44} (\ell^2 + m^2) \quad (6)$$

$$\Gamma_{12} = \Gamma_{21} = (C_{12} + C_{44}) \ell m \quad (7)$$

$$\Gamma_{13} = \Gamma_{31} = (C_{12} + C_{44}) \ell n \quad (8)$$

$$\Gamma_{23} = \Gamma_{32} = (C_{12} + C_{44}) m n \quad (9)$$

これらの値を永年方程式に代入して x の立方式を得る。ここである与えられた方向 (ℓ, m, n) に対して 3 個の音速が測定されて、 x_1, x_2, x_3 が計算されたとすると、この方向に対して、永年方程式から得られた立方方程式は次のように因数分解される。

$$(x - x_1)(x - x_2)(x - x_3) = 0 \quad (10)$$

この因数分解の式を展開して、 x の各巾乗の係数と永年方程式の同じ巾乗の係数を比較する

ことによって、3つの連立方程式が得られる。これらを簡単化するために

$$\alpha = C_{11}, \quad (11)$$

$$\beta = C_{44}, \quad (12)$$

$$\gamma = C_{12} + C_{44}, \quad (13)$$

$$u = x_1 + x_2 + x_3, \quad (14)$$

$$v = x_1 x_2 + x_1 x_3 + x_2 x_3, \quad (15)$$

$$w = x_1 x_2 x_3. \quad (16)$$

とする。3つの連立方程式は次のようになる。

$$u = \alpha + 2\beta \quad (17)$$

$$\begin{aligned} v = & [\alpha \ell^2 + \beta (m^2 + n^2)] [\alpha m^2 + \beta (\ell^2 + n^2)] \\ & + [\alpha \ell^2 + \beta (m^2 + n^2)] [\alpha n^2 + \beta (\ell^2 + m^2)] \\ & + [\alpha m^2 + \beta (\ell^2 + n^2)] [\alpha n^2 + \beta (\ell^2 + m^2)] \\ & - r^2 (\ell^2 m^2 + \ell^2 n^2 + m^2 n^2), \end{aligned} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} w = & [\alpha \ell^2 + \beta (m^2 + n^2)] [\alpha m^2 + \beta (\ell^2 + n^2)] [\alpha n^2 + \beta (\ell^2 + m^2)] \\ & + 2r^3 \ell^2 m^2 n^2 - r^2 \{\ell^2 m^2 [\alpha n^2 + \beta (\ell^2 + m^2)] \\ & + \ell^2 n^2 [\alpha m^2 + \beta (\ell^2 + n^2)] + m^2 n^2 [\alpha \ell^2 + \beta (m^2 + n^2)]\} \end{aligned} \quad (19)$$

問題は与えられた値、 u, v, w, ℓ, m, n から α, β, γ を求める事である。計算方法としてはまず(17)式を(18)と(19)式に代入して β を消去し、それから(18)式を用いて(19)式から r^2 の項を消去する。次に(18)式から r^2 の式と(19)式から r^3 の式が得られるので各々を3乗および2乗して r を消去すると、 α の6次方程式が得られる。この方程式の係数は非常に複雑になるので次のように簡単化する。

$$\ell_1 = 1 - \ell^2, \quad (20)$$

$$m_1 = 1 - m^2, \quad (21)$$

$$n_1 = 1 - n^2, \quad (22)$$

$$\ell_2 = 3\ell^2 - 1, \quad (23)$$

$$m_2 = 3m^2 - 1, \quad (24)$$

$$n^2 = 3n^2 - 1, \quad (25)$$

$$e = \ell^2 m^2 + \ell^2 n^2 + m^2 n^2, \quad (26)$$

$$f = \ell^2 m^2 n_2 + \ell^2 n^2 m_2 + m^2 n^2 \ell_2, \quad (27)$$

$$g = \ell_2 m_2 + \ell_2 n_2 + m_2 n_2, \quad (28)$$

$$h = \ell_2 m_2 n_1 + \ell_2 n_2 m_1 + m_2 n_2 \ell_1, \quad (29)$$

$$j = \ell_2 m_1 + \ell_1 m_2 + \ell_2 n_1 + \ell_1 n_2 + m_2 n_1 + m_1 n_2, \quad (30)$$

$$k = \ell^2 m^2 n_1 + \ell^2 n^2 m_1 + m^2 n^2 \ell_1, \quad (31)$$

$$p = \ell_2 m_1 n_1 + \ell_1 m_2 n_1 + \ell_1 m_1 n_2, \quad (32)$$

$$q = \ell_1 m_1 + \ell_1 n_1 + m_1 n_1, \quad (33)$$

$$r = 2\ell^2 m^2 n^2, \quad (34)$$

$$s = \ell_1 m_1 n_1, \quad (35)$$

$$s_1 = \ell_2 m_2 n_2, \quad (36)$$

$$g_1 = g f / e - s_1, \quad (37)$$

$$h_1 = (u g k + u j f) / e - h u, \quad (38)$$

$$j_1 = (u^2 j k + u^2 q f - 4 v f) / e - u^2 p, \quad (39)$$

$$k_1 = u k (u^2 q - 4 v) / e - u^3 s + 8 w, \quad (40)$$

$$P = u^2 q - 4 v, \quad (41)$$

(17)式の β を(18)式に代入すると、式(18)は

$$v = \alpha^2 g / 4 + \alpha u j / 4 + u^2 q / 4 - r^2 e, \quad (42)$$

式(19)は $w = \alpha^3 s_1 / 8 + \alpha^2 u h / 8 + \alpha u^2 p / 8 + u^3 s / 8 + r^3 - r^2 (\alpha f + u k) / 2 \quad (43)$

(42)から r^2 を(43)に代入すると

$$\begin{aligned} w = & \alpha^3 (s_1 e - g f) / 8 e + \alpha^2 (u e h - u g k - u j f) / 8 e \\ & + \alpha (u^2 e p - u^2 j k - u^2 q f + 4 v f) / 8 e \\ & + (u^3 e s - u^3 k q + 4 u v k) / 8 e + r r^3 \end{aligned} \quad (44)$$

(42), (44)式をそれぞれ3乗、2乗して r の項を消去すると次のようになり α の6次の方程式となる。

$$a_6 \alpha^6 + a_5 \alpha^5 + a_4 \alpha^4 + a_3 \alpha^3 + a_2 \alpha^2 + a_1 \alpha + a_0 = 0 \quad (45)$$

ここで $a_0 = r^2 p_1^3 / e^3 - k_1^2, \quad (46)$

$$a_1 = 3 u r^2 j p^2 / e^3 - 2 j_1 k_1, \quad (47)$$

$$a_2 = 3 r^2 (g p_1^2 + u^2 j^2 p_1) / e^3 - 2 h_1 k_1 - j_1^2, \quad (48)$$

$$a_3 = r^2 (6 u g j p_1 + u^3 j^3) / e^3 - (g_1 k_1 + h_1 j_1), \quad (49)$$

$$a_4 = 3 r^2 (u^2 g j^2 + g^2 p_1) / e^3 - (2 g_1 j_1 + h_1^2), \quad (50)$$

$$a_5 = 3 u r^2 g^2 j / e^3 - 2 g_1 h_1, \quad (51)$$

$$a_6 = r^2 g^3 / e^3 - g_1^2, \quad (52)$$

以上から、弾性定数を決定する手順は次の通りである。

まず、密度 ρ 、速度 v_1, v_2, v_3 と方向余弦 ℓ, m, n から(2)式を用いて x_1, x_2, x_3 を計算する。次に(14)～(16)式から u, v, w を計算する。次に(20)～(41)式で定義した量を計算する。それから(46)～(52)式によって与えられた係数を計算する。これらの係数を用いて、(45)式をプロットして、物理的に意味のある範囲での正の実数の根を決定する。根が1つ以上ある時はその中から正しいものを1つ選び $\alpha = C_{11}$ とする。それから C_{44} を

$$C_{44} = (u - C_{11})/2 \quad (53)$$

から計算する。式を用いて $r^2 = (C_{12} + C_{44})^2$ を計算して r を求める。これから

$$C_{12} = r - C_{44} \quad (54)$$

が求められる。

1-2 弹性定数の標準偏差 (Standard deviation)を求める計算式

弹性定数の標準偏差を計算するのに、ここでは、密度および方向余弦の不確かさは無視してデータの主な不確かさは速度 v_1, v_2, v_3 の統計的に独立な3個の標準偏差 $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$ によってあらわされるとする。簡単のために弹性定数 C_{11}, C_{12}, C_{44} の標準偏差 $\sigma_{11}, \sigma_{12}, \sigma_{44}$ の計算を2つの部分に分ける。最初に、伝播の誤差理論を用いて分散量 (variance) を計算し、次にこれらの結果を用いて $\sigma_{11}, \sigma_{12}, \sigma_{44}$ を計算する。伝播の誤差理論から、いま x, y を既知の分散量 (標準偏差の2乗) をもつ統計的に独立な変数とする。 u, v を x, y の関数とし、 F を u, v の関数として定義する。そうすると

$$\sigma_F^2 = \left(\frac{\partial F}{\partial u}\right)^2 \sigma_u^2 + \left(\frac{\partial F}{\partial v}\right)^2 \sigma_v^2 + 2 \left(\frac{\partial F}{\partial u}\right) \left(\frac{\partial F}{\partial v}\right) \text{cov}(u, v), \quad (55)$$

ここで

$$\sigma_u^2 = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2, \quad (56)$$

$$\sigma_v^2 = \left(\frac{\partial v}{\partial x}\right)^2 \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial v}{\partial y}\right)^2 \sigma_y^2, \quad (57)$$

$$\text{cov}(u, v) = \left(\frac{\partial u}{\partial x}\right) \left(\frac{\partial v}{\partial x}\right) \sigma_x^2 + \left(\frac{\partial u}{\partial y}\right) \left(\frac{\partial v}{\partial y}\right) \sigma_y^2. \quad (58)$$

ここで、式(56)～(58)を用いて2つの変数を3つに拡張すると次のようになる。

$$\sigma_u^2 = \sigma_{x_1}^2 + \sigma_{x_2}^2 + \sigma_{x_3}^2, \quad (59)$$

$$\sigma_v^2 = (x_2 + x_3)^2 \sigma_{x_1}^2 + (x_1 + x_3)^2 \sigma_{x_2}^2 + (x_1 + x_2)^2 \sigma_{x_3}^2, \quad (60)$$

$$\sigma_w^2 = (x_2 x_3)^2 \sigma_{x_1}^2 + (x_1 x_3)^2 \sigma_{x_2}^2 + (x_1 x_2)^2 \sigma_{x_3}^2, \quad (61)$$

$$\text{cov}(u, v) = (x_2 + x_3) \sigma_{x_1}^2 + (x_1 + x_3) \sigma_{x_2}^2 + (x_1 + x_2) \sigma_{x_3}^2, \quad (62)$$

$$\text{cov}(u, w) = x_2 x_3 \sigma_{x_1}^2 + x_1 x_3 \sigma_{x_2}^2 + x_1 x_2 \sigma_{x_3}^2, \quad (63)$$

$$\begin{aligned} \text{cov}(v, w) = & (x_2 + x_3) x_2 x_3 \sigma_{x_1}^2 + (x_1 + x_3) x_1 x_3 \sigma_{x_2}^2 \\ & + (x_1 + x_2) x_1 x_2 \sigma_{x_3}^2. \end{aligned} \quad (64)$$

ここで、 $\sigma_{x_1} = 2\rho v_1 \sigma_1, \sigma_{x_2} = 2\rho v_2 \sigma_2, \sigma_{x_3} = 2\rho v_3 \sigma_3$ である。弹性定数の標準偏差の式(59)を用いるために、 u, v, w に関するこれらの定数の偏微分係数を計算する。

C_{11} のこれらの偏微分係数については式(46)を偏微分することで得られる。これは係数 a_i の偏微分を含むが、代りに式(38)～(41)で定義した偏微分を含むようにする。

いま、 u, v, w に関する偏微分したものと記号の下にそれぞれ u, v, w で表わすものとする。式(38)～(41)から

$$h_{1u} = (gh + jf)/e - h, \quad (65)$$

$$j_{1u} = 2u[(jk + qf)/e - p], \quad (66)$$

$$k_{1u} = k(3u^2q - 4v)/e - 3u^2s, \quad (67)$$

$$p_{1u} = 2uq, \quad (68)$$

$$j_{1v} = -4f/e, \quad (69)$$

$$k_{1v} = -4uk/e, \quad (70)$$

$$p_{1v} = -4 \quad (71)$$

$$k_{1w} = 8 \quad (72)$$

ここで h_{1v}, h_{1w}, j_{1w} および p_{1w} は零である。

次に式(46)～(52)を u, v, w で微分して a_i の偏微分係数を計算する。 u の導関数に関しては、

$$a_{0u} = 3r^2 p_1^2 p_{1u}/e^3 - 2k_1 k_{1u}, \quad (73)$$

$$a_{1u} = 3r^2 (j p_1^2 + 2uj p_1 p_{1u})/e^3 - 2j_1 k_{1u} - 2j_1 j_{1u}, \quad (74)$$

$$a_{2u} = 3r^2 (2gp_1 p_{1u} + 2u^2 p_1 + u^2 j^2 p_{1u})/e^3 \\ - 2h_1 k_{1u} - 2k_1 h_{1u} - 2j_1 j_{1u} \quad (75)$$

$$a_{3u} = r^2 (6gjp_1 + 6ujgjp_{1u} + 3u^2 j^3)/e^3 - 2(g_1 k_{1u} \\ + h_1 j_{1u} + j_1 h_{1u}), \quad (76)$$

$$a_{4u} = 3r^2 (2ugj^2 + g^2 p_{1u})/e^3 - 2g_1 j_{1u} - 2h_1 h_{1u}, \quad (77)$$

$$a_{5u} = 3r^2 g^2 j/e^3 - 2g_1 h_{1u}, \quad (78)$$

a_{6u} は零である。

v の導関数に関しては

$$a_{0v} = -12r^2 p_1^2/e^3 - 2k_1 k_{1v}, \quad (79)$$

$$a_{1v} = -24r^2 u j p_1/e^3 - 2j_1 k_{1v} - 2k_1 j_{1v}, \quad (80)$$

$$a_{2v} = -12r^2 (2gp_1 + u^2 j^2)/e^3 - 2h_1 k_{1v} - 2j_1 j_{1v}, \quad (81)$$

$$a_{3v} = 24r^2 ugj/e^3 - 2(g_1 k_{1v} + h_1 j_{1v}), \quad (82)$$

$$a_{4v} = -12r^2 g^2/e^3 - 2g_1 j_{1v}, \quad (83)$$

a_{5v}, a_{6v} は零である。

w の導関数に関しては

$$a_{0w} = -16k_1, \quad (84)$$

$$a_{1w} = -16j_1, \quad (85)$$

$$a_{2w} = -16h_1, \quad (86)$$

$$a_{3w} = -16g_1, \quad (87)$$

a_{4w}, a_{5w}, a_{6w} は零である。

$$D = 6a_6 C_{11}^5 + 5a_5 C_{11}^3 + 3a_3 C_{11}^2 + 2a_2 C_{11} + a_1 \quad (88)$$

と定義すると、式(4)の微分は次のようになる。

$$C_{11u} = -(a_{5u} C_{11}^5 + a_{4u} C_{11}^4 + a_{3u} C_{11}^3 + a_{2u} C_{11}^2 + a_{1u} C_{11} + a_{0u}) / D, \quad (89)$$

$$C_{11v} = -(a_{4v} C_{11}^4 + a_{3v} C_{11}^3 + a_{2v} C_{11}^2 + a_{1v} C_{11} + a_{0v}) / D, \quad (90)$$

$$C_{11w} = -(a_{3w} C_{11}^3 + a_{2w} C_{11}^2 + a_{1w} C_{11} + a_{0w}) / D. \quad (91)$$

ここで $D = 0$ と仮定している。 $[110]$ 方向に対しても $D = 0$ で後に述べるように別の取扱いが必要である。

C_{44} の導関数は式(53)から次のようになる。

$$C_{44u} = (1 - C_{11u}) / 2, \quad (92)$$

$$C_{44v} = -C_{11v} / 2, \quad (93)$$

$$C_{44w} = -C_{11w} / 2, \quad (94)$$

C_{12} の導関数は式(54)から得られるが、 r の導関数を含んでいる。式(4)から

$$r^2 = (g C_{11}^2 + u j C_{11} + p_1) / 4e, \quad (95)$$

$$(r^2)_u = (2 C_{11} g C_{11u} + j C_{11} + u j C_{11u} + p_{1u}) / 4e, \quad (96)$$

$$(r^2)_v = (2 C_{11} g C_{11v} + u j C_{11v} - 4) / 4e, \quad (97)$$

$$(r^2)_w = (2 C_{11} g + u j) C_{11w} / 4e, \quad (98)$$

いま $r_u = (r^2)_u / 2r$ と式(54)を用いて

$$C_{12u} = (r^2)_u / 2r - C_{44u}, \quad (99)$$

$$C_{12v} = (r^2)_v / 2r - C_{44v}, \quad (100)$$

$$C_{12w} = (r^2)_w / 2r - C_{44w}. \quad (101)$$

これから σ_{11}^2 は

$$\begin{aligned} \sigma_{11}^2 &= C_{11u}^2 \sigma_u^2 + C_{11v}^2 \sigma_v^2 + C_{11w}^2 \sigma_w^2 + 2 C_{11u} C_{11v} C_{11w} \sigma_u \sigma_v (u, v) \\ &\quad + 2 C_{11u} C_{11w} C_{11v} \sigma_u \sigma_w (u, w) + 2 C_{11v} C_{11w} C_{11u} \sigma_v \sigma_w (v, w). \end{aligned} \quad (102)$$

σ_{44}^2 , σ_{12}^2 に対する式は C_{11} の下に書いてある 11 を 44, 12 にそれぞれ書き換えたものと同じである。

このようにして、式(59)～(64)から u , v , w の分散 (variance) および共分散 (covariance) を計算し、次に式(65)～(102) を計算することによって標準偏差 σ_{11} , σ_{12} , σ_{44} を求めることができる。

式(9)で [110] 方向に対して $D = 0$ であることを述べたが、これは次のことから示される。[110] 方向に対して式(34)から $r = 0$ で式(43)から r^3 の項が消える。従って式(45)は(43)の r^3 を除いたものを 2乗したものになる。

いま、

$$B = \alpha^3 s_1 / 8 + \alpha^2 u h / 8 + \alpha u^2 p / 8 + u^3 s / 8 - r^2 (\alpha f + u k) / 2 - w. \quad (103)$$

とすると、[110] 方向に対して式(45)は $B^2 = 0$ である。D は $D = 2 B \frac{d B}{d \alpha}$ となり、従って $D = 0$ となる。

[110] 方向に対しては、Kolsky の取扱いから、次のような結果が得られる。 x_1 が縦波とすると x_2 は [001] 方向に変位する横波、 x_3 をは [110] 方向に変位する横波となる。これから

$$C_{11} = x_1 - x_2 + x_3, \quad (104)$$

$$C_{12} = x_1 - x_2 - x_3, \quad (105)$$

$$C_{44} = x_2. \quad (106)$$

標準偏差は

$$\sigma_{11}^2 = \sigma_{12}^2 = \sigma_{x_1}^2 + \sigma_{x_2}^2 + \sigma_{x_3}^2, \quad (107)$$

$$\sigma_{44}^2 = \sigma_{x_2}^2. \quad (108)$$

となる。

ここでは試料の厚さと密度の誤差を音速の伝播時間 t に比べて無視しているが、これらの誤差を考慮するならば、式(66)～(68)で、 u , v , w の分散および共分散を与える独立な変数として厚さ、密度、伝播時間を用いて式(65)～(102) を前と同じように計算すればよい、次に式(107) と (108) では、標準偏差を厚さ、密度、伝播時間の関係であらわして式(56)～(58), (104)～(106) の計算を行なえばよい。

1-3 弾性コンプライアンス (Elastic compliance) とその標準偏差を求める方法

立方晶系の弾性コンプライアンスと弾性定数との関係は次のようにあらわされる。

$$S_{11} = (C_{11} + C_{12})/C, \quad (109)$$

$$S_{12} = -C_{12}/C, \quad (110)$$

$$S_{44} = 1/C_{44}, \quad (111)$$

$$\text{ここで } C = (C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12}). \quad (112)$$

S_{ij} の標準偏差を計算するのに、 C_{ij} の共分散を求める式(55)を適用することができる。
式(58)を一般化して

$$\begin{aligned} \text{Cov}(F, G) &= \frac{\partial F}{\partial u} \frac{\partial G}{\partial u} \sigma_u^2 + \frac{\partial F}{\partial v} \frac{\partial G}{\partial v} \sigma_v^2 \\ &+ \left(\frac{\partial F}{\partial u} \frac{\partial G}{\partial v} + \frac{\partial F}{\partial v} \frac{\partial G}{\partial u} \right) \text{Cov}(u, v) \end{aligned} \quad (113)$$

F, G の共変は u, v の関係で定義されるが、u, v は統計的に独立ではない。 C_{11} , C_{12} の共変を $\text{Cov}(11, 12)$ と書くと、

$$\begin{aligned} \text{Cov}(11, 12) &= C_{11u} C_{12u} \sigma_u^2 + C_{11v} C_{12v} \sigma_v^2 + C_{11w} C_{12w} \sigma_w^2 \\ &+ (C_{11u} C_{12v} + C_{11v} C_{12u}) \text{Cov}(u, v) \\ &+ (C_{11u} C_{12w} + C_{11w} C_{12u}) \text{Cov}(u, w) \\ &+ (C_{11v} C_{12w} + C_{11w} C_{12v}) \text{Cov}(v, w) \end{aligned} \quad (114)$$

$\text{Cov}(11, 44)$ と $\text{Cov}(12, 44)$ は (114)式の文字の下に書いた数字を書き換えれば
よいが、これらの2つの共変は計算する必要がない。 $\frac{\partial S_{11}}{\partial C_{11}}$ を $S_{11,11}$ 他の偏微分も同様に
書きあらわすと

$$S_{11,11} = \frac{C - (C_{11} + C_{12})(2C_{11} + C_{12})}{C^2}, \quad (115)$$

$$S_{11,12} = \frac{C + (C_{11} + C_{12})(4C_{12} + C_{11})}{C^2}, \quad (116)$$

$$S_{12,11} = \frac{C_{12}(2C_{11} + C_{12})}{C^2}, \quad (117)$$

$$S_{12,12} = \frac{-C + C_{12}(4C_{12} - C_{11})}{C^2}, \quad (118)$$

$$S_{44,44} = -\frac{1}{C_{44}^2}, \quad (119)$$

となる。

$S_{11,44}$, $S_{12,44}$, $S_{44,11}$, $S_{44,12}$ はすべて零になる。

$\sigma_{S_{ij}}$ の標準偏差を S_{11} , 他の S_{ij} についても同様にあらわすと

$$\sigma_{S_{11}}^2 = S_{11,11}^2 \sigma_{11}^2 + S_{11,12}^2 \sigma_{12}^2 + 2 S_{11,11} S_{11,12} \text{Cov}(11, 12), \quad (120)$$

$$\sigma_{S_{12}}^2 = S_{12,11}^2 \sigma_{11}^2 + S_{12,12}^2 \sigma_{12}^2 + 2 S_{12,11} S_{12,12} \text{Cov}(11, 12), \quad (121)$$

$$\sigma_{S_{44}} = \frac{\sigma_{44}}{C_{44}^2}. \quad (122)$$

となる。

[110]方向に對しては C_{11} , C_{12} の共変は(58)を用いて (104), (105) から直接計算されて

$$\text{Cov}(11, 12) = \sigma_{x_1}^2 + \sigma_{x_2}^2 + \sigma_{x_3}^2. \quad (123)$$

となる。

このようにして [100], [111] 方向を含む任意の方向に對する S_{ij} の標準偏差は式 (115)～(119) の偏微分係数を用いて式 (120)～(122) から計算することができる。

6. 文 献

- 1) M.D.Burdick and H.S.Parker, J.Am.Ceram.Soc. 39 (1956) 181.
- 2) F.P.Knudsen, H.S.Parker and M.D.Burdick, J.Am.Ceram.Soc. 43 (1960) 641.
- 3) J.B.Wachtman, Jr.M.L.Wheat, H.J.Anderson and J.L.Bates, J.Nucl.Mat. 16 (1965) 39.
- 4) D.J.Bowers, W.A.Hedden, J.M.Snyder and W.H.Duckworth, BMI-1117 (1956)
- 5) R.Scott, A.R.Hall and J.Williams, J.Nucl.Mat. 1 (1959) 39
- 6) J.B.Wachtmen, W.E.Tefft, Jr., D.G.Lam.Jr., and R.P.Stinchfield, WADC-TR-59-278 (1959).
- 7) J.Belle and B.Lustman, TID-7546 (1958).
- 8) S.M.Lang, U.S.Natl.Bur.Stand.Monograph No.6 (1960).
- 9) R.J.Forlano, A.W.Allen and R.J.Beals, J.Am.Ceram.Ceram.Soc. 50 (1967) 93.
- 10) R.J.Forlano, A.W.Allen and R.J.Beals, J.Am.Ceram.Soc. 51 (1968) 192.
- 11) P.N.Roderick and R.Truell, J.Appl.Phys, 23 (1952) 267.
- 12) 生嶋, 梶村, 物性 7, (1966) 626.
- 13) P.C.Waterman, Phys.Rev., 113 (1959) 1240.
- 14) J.B.Wachtmen, Jr., M.L.Wheat and S.Marzullo, J.Res.NBS 67A (1963) 193.
- 15) J.B.Wachtman,Jr., M.L.Wheat, H.J.Anderson and J.L.Bates, J.Nucl.Mat. 16 (1965) 39.
- 16) R.M.Spriggs, J.Am. Ceram.Soc.44 (1961) 628.
- 17) R.M.Spriggs, L.A.Brissette and T.Vasilos, J.Am.Ceram.Soc. 45 (1962) 400.
- 18) D.P.H.Hasselman, J.Am.Ceram.Soc. 46 (1963) 564.

- 19) M.O.Marlowe and A.I.Kaznoff, P.90 in Ceramic Nuclear Fuels. The Amer. Ceram. Soc., Columbus, Ohio, 1969.
- 20) F.P.Knudsen, J.Am.Ceram.Soc. 42 (1959) 376.
- 21) F.P.Knudsen, H.S.Parker and M.D.Burdick, J.Am.Ceram.Soc. 43 (1960) 641.
- 22) M.D.Burdick and H.S.Parker, J.Am.Ceram.Soc. 39 (1956) 181.
- 23) N.J.Petch, J.Iron Steel Inst. (London), 174, Part I.(1953) 25.
- 24) E.Schmid and W.Boas, Plasticity of Crystal, P.21. Verlag Springer, Berlin, 1935. Translation by F.A.Hughes & Co., Inc., London, 1950.)
- 25) J.R.MacEvan and V.B.Lawson, J.Am.Ceram.Soc. 45, (1962) 42.
- 26) K.S.Aleksandrov and T.V.Ryzhova, Soviet Physics-Crystallography 6 (1961) 228.
- 27) W.Voigt, Lehrbuch der Kristallphysik, (Leipzig:Teubner 1928) P.739.
- 28) A.Reuss, Z.Angew.Math. Mech., 2 (1929) 49.
- 29) Z.Hashin and S.Shtrikman, J.Mech.Phys.Solids, 10 (1962) 343.
- 30) A.A.Griffith, Phil.Trans.Roy.Soc., A221 (1920) 163.
- 31) R.C.Rossi, J.Am.Ceram.Soc., 51 (1968) 433.
- 32) D.P.H.Hasselman, J.Am.Ceram.Soc., 46 (1963) 564.
- 33) R.J.Stokes, U.S.Nat.Bur. Standards Miscellaneous Publication 257, P.41 (1964).
- 34) N.Igata, R.R.Hasiguti and K.Domoto, The First International Conf. on Fracture 2 (1965) 883.
- 35) G.C. Benson, P.I.Freeman and E.Dempsey, J.Am.Ceram.Soc., 46 (1963) 43.
- 36) B.Paul, Trans. TMS-AIME, 218 (1960) 36.
- 37) B.E.Schaner, J.Nucl.Mat. 2 (1960) 110.

- 38) W.van.Lierde, J.Pelsmaekers and A.Lecocq-rovert, J.Nucl.Mat. 37 (1970) 276.
- 39) J.B.Wachtman, Tr., M.L.Wheat and S.Mazullo, J.Res. NBS 67A (1963) 193.
- 40) G.W.Farnell, Canadian J.phys. 39 (1960) 65.
- 41) O.L.Davies, Statistical Methods in Research and Production, (Oliver and Boyd, London, 1957).
- 42) H.Kolsky, Stress Waves in Solids (Oxford Univ. Press., London, England, 1953).