

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. -6

[技術情報室]

FBR燃料の温度こう配下における挙動-1

温度こう配下における UO_2 ペレット中のボイドの移動速度について

The Fast Reactor Fuel Behaviour with a Thermal Gradient

Determination of Void Migration Rate in UO_2 pellet
under the Condition of a Thermal Gradient.

1972年6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

FBR燃料の温度こう配下における挙動—1



温度こう配下におけるUO₂ペレット中
のボイドの移動速度について

実施責任者	小 泉 益 通	ブル燃部開発課
報告者	川 又 博	〃
	酒 井 克 己	〃
	金 子 洋 光	〃
	笹 尾 信 之	〃
	小 松 純 治	〃

期 間 1 9 7 1 年 4 月 1 日 ~ 1 9 7 2 年 3 月 1 8 日

目 的 燃料挙動の解析コード「DIRAD」の中に組み込まれている理論式によるボイドの移動速度と炉外実験による測定速度との比較を行ないコードの改良を図る。

要 旨 薄いディスク状のUO₂ペレットを2枚重ねにして焼結しこの境界にボイドを形成した。この試料を高周波加熱炉で約3,000~5,000°C/cmの温度こう配,加熱時間(ボイドの移動時間)1~9時間でそれぞれの試料を加熱した。ボイドの移動距離は金相写真から,またその領域の温度こう配は,実測値をもとに計算した。これらの結果を理論式と比較し次の結果を得ることができた。1) ボイドが移動した距離領域の平均温度と移動速度の関係では理論値に対して平行な直線を得ることができた。2) 理論計算によるとボイド内のガス封入時の温度がボイドの移動速度に大きく影響する。3) ボイドの移動時間 t と移動距離 D の関係は $D(\mu) = -105.65 + 90.55 t(\text{hr})$ の式が得られた。4) ボイドの出発点の温度が約2030°Cの場合移動するまでの潜在時間(Incubation period)は1.16時間を有する。

目 次

要 旨

はじめに	1
I ボイドの移動速度に関する理論式	2
II ボイドの移動速度の測定実験	6
III 結 果	21
IV 考 察	21
V 参考文献	24

はじめに

高速炉燃料の開発において照射による燃料挙動の定量的な解析モデルを確立することが重要になってきている。

現在、われわれは照射による燃料の組織変化を解析する“DIRAD”と言うコードを開発しているがこの中に理論を基にしたボイドの移動速度式が組み込まれている。この速度式はDEHALASが発表し、原研の菊地氏の改良した式を採用しているが、種々の定数や仮定があり、しかもその信頼性についてはまだ確かめられていない。従って実際の燃料ペレットを使用し炉外実験においてできるだけ正確なボイドの移動速度を測定し理論による移動速度と比較して、そこに差異が生じた場合は解析コードを改良しなければならない。

本報告はその第1段階として高密度 UO_2 ペレットを用い炉外においてボイドを移動せしめる実験方法および高精度の移動ボイドの測定技術を確立しさらには実験上で得た移動速度と理論値の比較を行なった。ここにその結果と簡単な考察について述べる。

I ボイドの移動速度に関する理論式

D E H A L A S⁽¹⁾, 菊池⁽²⁾等の理論式は温度こう配を持つボイドの高温側で燃料の分子が蒸発しさらに拡散しながら低温側で凝固する。つまりこの蒸発—凝固機構でボイドが移動するといふ仮定に基づいている。同じ理論でN I C H O L S⁽³⁾の式による比較も同時に行なったがこゝでは前者の式を述べる。

燃料内のボイドはある種の GAS 2 (焼結時のガスなどを考える) で満されて、この中に U O₂ 分子 (GAS 1) が拡散すると仮定する。

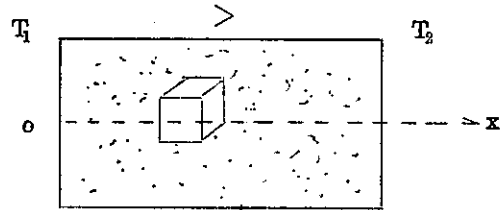


Fig-1

拡散方程式 ; $q = -D_{12} \frac{dn}{dx}$ (1)

q = 単位時間, 単位面積当りに通る GAS 1 の分子数 ($1/cm^2 \cdot sec$)

D_{12} = (GAS 1 + GAS 2) における GAS 1 の拡散定数 (cm^2/sec)

n = 単位体積中の GAS 1 の分子数 ($1/cm^3$)

x = 基点 o からの距離 (cm)

(1)式のうち n は Charles の法則 $P = nK_B T$ より

$$n = \frac{1}{K_B} \cdot \frac{P}{T} \quad (2)$$

K_B = ボル—ノマン定数 ($erg / ^\circ K$)

P = GAS 1 の蒸気圧 ($dyne/cm^2$)

T = 温度 ($^\circ K$)

蒸気圧 (P) については実験式が求められており, その第 2 次近似式を用いると

$$P = A \exp \left(-\frac{K}{T} - \frac{K'}{T^2} \right) \quad (3)$$

P = 蒸気圧 ($mmHg$)

A, K, K' = 定数

T = 温度 ($^\circ K$)

従って

$$n = \frac{A}{K_B} \cdot \frac{1}{T} \exp\left(-\frac{K}{T} + \frac{K'}{T^2}\right) \quad (2')$$

これから(1)式の dn/dx を変形して微分すると

$$\begin{aligned} \frac{dn}{dx} &= \frac{dn}{dT} \cdot \frac{dT}{dx} \\ &= \frac{A}{K_B} \cdot \frac{d}{dT} \left(\frac{e^{-\left(\frac{K}{T} - \frac{K'}{T^2}\right)}}{T} \right) \frac{dT}{dx} \\ &= \frac{A}{K_B} \cdot \left[\frac{e^{-\left(\frac{K}{T} - \frac{K'}{T^2}\right)} \left\{ \left(\frac{K}{T^2} - \frac{2K'}{T^3}\right) T - 1 \right\}}{T^2} \right] \frac{dn}{dx} \\ &\doteq \frac{A}{K_B} \cdot \frac{e^{-\left(\frac{K}{T} - \frac{K'}{T^2}\right)}}{T^2} \left(\frac{K}{T} - 2\frac{K'}{T^2} \right) \frac{dT}{dx} \quad (4) \end{aligned}$$

$$\text{ただし } \left(\frac{K}{T} - \frac{K'}{T^2} \right) \gg 1$$

次に拡散定数 (D_{12}) について述べる。

混合ガス中の GAS 1 の拡散定数は次式で与えられる。

$$= \frac{1}{3} \cdot \frac{n_1 \lambda_2 \bar{v}_2 + n_2 \lambda_1 \bar{v}_1}{n_1 + n_2} \quad (5)$$

λ = 平均自由行路 (cm)

n = ガス分子濃度 ($1/cm^3$)

\bar{v} = ガス分子の平均速度 (cm/sec)

また拡散に関する λ は Stefan & Maxwell により次式で示される。

$$\lambda_2 = \frac{1}{\pi n_2 \delta_{12}^2 \sqrt{1 + \frac{m_1}{m_2}}} \quad (6)$$

$$= \frac{1}{\pi n_1 \delta_{12}^2 \sqrt{1 + \frac{m_2}{m_1}}} \quad (7)$$

$$\delta_{12} = \frac{1}{2} (\delta_1 + \delta_2)$$

δ = 分子直径 (cm)

m = 分子の質量 (g)

また \bar{v} については次式が用いられている。

$$\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{2K_B T}{m}} \quad (8)$$

(6), (7), (8)式を(5)式に代入して整理すると, 拡散定数を求める式が得られる。

$$D_{12} = \frac{1}{3\pi(n_1 + n_2)\delta_{12}^2} \cdot \sqrt{\frac{8}{\pi}} \cdot \sqrt{K_B T} \cdot \sqrt{\frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2}} \quad (9)$$

ところで Q = 単位時間に単位面積を通る分子の質量数は

M = 分子量

A_0 = アボガドロ数

ρ = 拡散分子の固体での密度

R = ボイドの移動速度

と定義すると,

$$Q = q \cdot \frac{M}{A_0} = R \cdot \rho$$

$$\therefore R = \frac{Q}{\rho} = q \cdot \frac{M}{A_0 \rho}$$

従って(4), (9)式より

$$R = \left(\frac{M}{A_0 \rho} \right) D_{12} \left[\frac{A}{K'_B} \cdot \frac{e^{-\left(\frac{K}{T} - \frac{K'}{T^2}\right)}}{T^2} \left(\frac{K}{T} - \frac{2K'}{T^2} \right) \right] \frac{dT}{dx} \quad (10)$$

$$D_{12} = \frac{1}{3\pi(n_1 + n_2)\delta_{12}^2} \sqrt{\frac{8K_B T}{\pi}} \cdot \frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2}$$

ここに

$M = \text{UO}_2$ の分子量 ; 270

A_0 = アボガドロ数 ; 6.02×10^{23}

ρ = 密度 ; $10.96 \text{ (g/cm}^3\text{)}$

δ_{12} = UO_2 と N_2 の分子直径 ; 3.1×10^{-8} (cm)

n_1 = UO_2 分子濃度 $n_{UO_2} \ll n_{N_2}$

n_2 = N_2 分子濃度 $n_{N_2} = \frac{1}{K_B} \cdot \frac{P}{T}$; $9.656 \times 10^{18} \frac{P}{T}$ (mm Hg/°K)

K_B = ボルツマン定数 ; 1.3803×10^{-16} (erg/°K)

m_1 = UO_2 分子質量 ; 4.5×10^{-22} (g)

m_2 = N_2 分子質量 ; 4.65×10^{-23} (g)

A = 定数 ; 5.49×10^{14}

$\frac{1}{K'_B}$ = P mm Hg 表示におけるボルツマン定数の逆数 ; 9.656×10^{18}

K = 定数 ; 1.0078×10^5

K' = " ; 2.7961×10^7

こゝで先きに述べた2者の基本的な式の違いを述べる。この違いは拡散定数 (D_{12})、と温度こう配 (dT/dx) にある。

拡散定数 (D_{12})

DEHALAS等の式 ; $D_{12} = \frac{2}{3 \pi n_2 \delta_{12}^2} \cdot \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot \sqrt{K_B T \left(\frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2} \right)}$

Stefan & Maxwellの式を採用

NICHOLSの式 ; $D_{12} = \frac{3}{8 \pi n_2 \delta_{12}^2} \cdot \sqrt{\frac{\pi}{2}} \cdot \sqrt{K_B T \left(\frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2} \right)}$

Chapmanの第1近似式を採用

温度勾配 (dT/dx)

DEHALAS等の式 ; $\frac{dT}{dx} \text{ Void} = \frac{dT}{dx} \text{ Fuel}$

レンズ状ポイドに適用

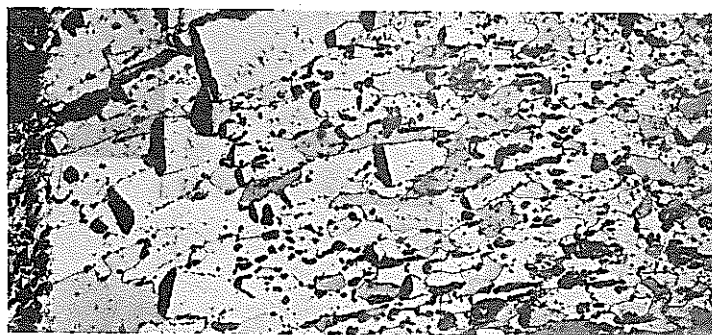
NICHOLSの式 ; $\frac{dT}{dx} \text{ (Void)} = \frac{3}{2} \cdot \frac{dT}{dx} \text{ (Fuel)}$

球状ポイドに適用

次に述べる実験で求めたいのは(10)式の x 、 T から dT/dx および R である。

II ボイドの移動速度の測定実験

これまで国内でもボイドの移動に関するいくつかの報告があるが、いずれもペレット中にはじめから内在するボイドの移動に関する報告が主である。この方法は実験的ではあるが、我々の予備実験によるとPhoto-1で明らかなように、レンズ状ボイドがどの位置から出発したのか不明瞭である。これは小さいボイドが無秩序に内在するためであろうが、この状態では正確な移動距離の測定は不可能である。従って理想的な試料の選定は単結晶もしくは完全結晶体でなくてはならないが、入手が困難であり、現実的な試料としては高密度のものを選ばなくてはならない。



高 温

低 温

P h o t o - 1

UO₂ ペレットにはじめから内在するボイドを
温度こう配下で移動させた例

これらの問題を克服する一方、次の事を考慮して実験方法の検討を行なった。

- a—実際の燃料内に生じる温度こう配に近い条件を炉外で再現する。
- b—解析仕易くするために温度分布を直線に近づける。
- c—高精度の温度測定。
- d—できるだけ正確な移動距離の測定。
- e—ボイドの大きさをそろえる。

1 試料の作成

試料のUO₂ ペレットは動燃プル燃部の第2開発室のウランテストランで製造されたものでその仕様を下記に示めす。

焼結条件 — N₂ + H₂ 5%混合ガス雰囲気

1700°C, 2 hr 保持, (昇温速度 200°C/hr)

O/U — 2 + 0.002
 寸法 — 8.3 φ mm × 1.6 H mm
 密度 — 95% T.D

これを超音波加工機で輪切りにし、さらにアルミナ研磨剤で 15 μ の荒さまで研磨して厚さ 1 mm および 0.5 ~ 0.7 mm に調整した。研磨面を重ね合せて、この境界面の焼結と試料 (UO₂ ペレット) の密度を上げるために再焼結を行なった。

再焼結条件は N₂ + 5% H₂ ガス雰囲気中で 1900 °C, 3 時間で、Fig-2 に示めすようにして高周波加熱炉で再焼結した。また境界面の焼結性を向上させるために、タングステンルツボのキャップ、約 50 g を荷重とした。この条件でボイドを形成し得る良好な焼結状態と試料の密度を 97% T.D に上昇させることができた。補足的に再焼結温度、1600 °C, 2030 °C を各々 3 時間の条件で境界面の焼結状態を調べた結果、前者ではほとんど焼結されず、後者は 1900 °C, 3 時間の時よりさらに良好な焼結状態を示していた。これらを Photo-2 に示めす。

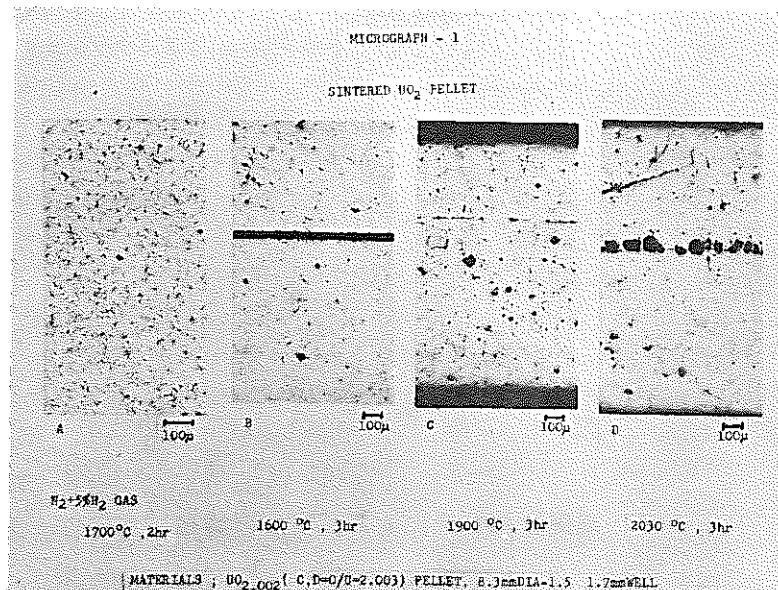


Photo-2 焼結 UO₂ ペレット
 (N₂ + 5% H₂ ガス雰囲気)

- 試料 A : 1700 °C 2 時間, O/U-2.002 95% T.D.
- B : A を 1600 °C, 3 時間, 再焼結
- C : A を 1900 °C, 3 時間, 再焼結, O/U-2.003, 97% T.D.
- D : A を 2030 °C, 3 時間 再焼結, O/U-2.003, >97% T.D

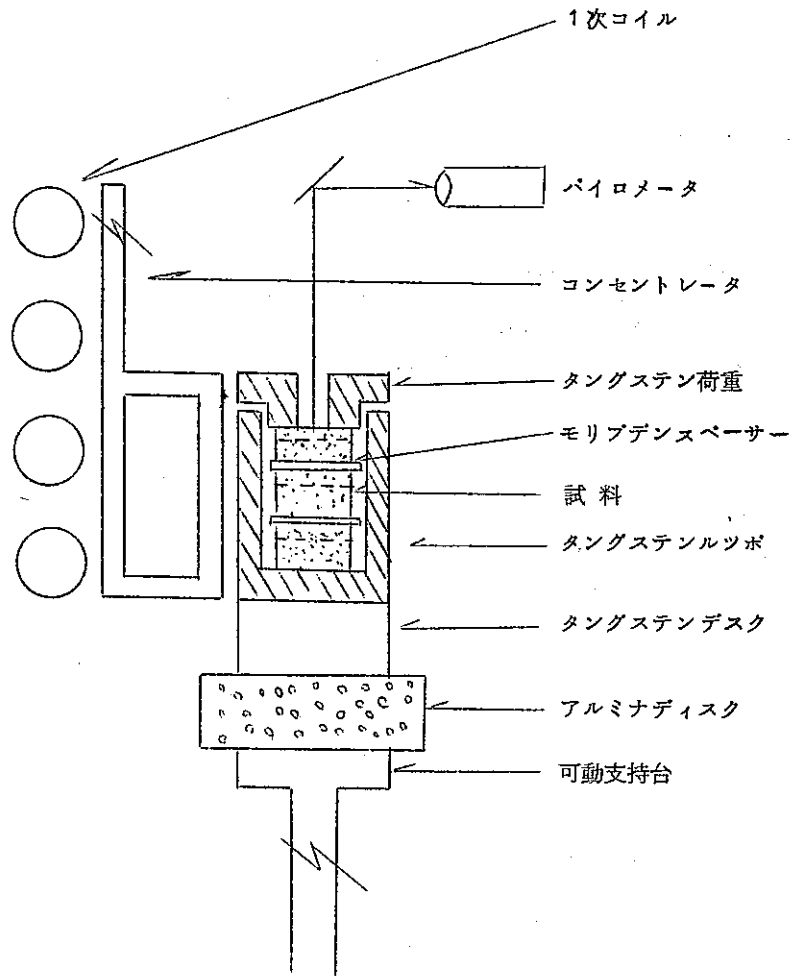


Fig - 2 高周波加熱炉による試料の再焼結

2 試料の温度こう配下による加熱

加熱方法は Fig-3 に示すように、中心に直径 1 mm の测温孔を有するタングステンをコンセントレーター内に挿入し、一次コイルで発生した磁束をコンセントレーターで収束して、このタングステンを発熱するものである。コンセントレーターは無酸素銅で作られており、内部に流れる冷却水に気泡が発生しないように工夫されている。このタングステン発熱体を UO_2 試料の上に乗せ一方熱流が一方向にのみ移行するようにするため試料はさらに可動型水冷支持台および测温孔を有する銅製支持台、モリブデン・ディスクからなる冷却部上に位置するようにした。これにより試料の直径 (8.3 ϕ mm) に対して厚さ (1.5 mm ~ 1.7 mm) の方がはるかに小さくしてあるから半径 2.5 mm 以内の同心円の熱流は軸方向に対して直線であるとみてよい。また温度勾配は試料によって異なるが約 3000 ~ 5000 $^{\circ}C/cm$ であった。これは一般的な高速炉燃料の半径方向の温度勾配にかなり近い状態と言える。高温側および低温側の温度の測定は前者をマイクロ・オブティカル・パイロメータ後者を二色高温で測定した。昇温時から温度こう配を付けると高温部において 1300 $^{\circ}C$ ~ 1500 $^{\circ}C$ 附近で試料が直径方向に割れた。この原因は温度こう配が直接誘起する熱応力によると考えられ本実験の宿命とも言えるが、これをできるだけ緩和するために昇温を下記の条件で行なった。

- ① モリブデンディスクの位置までコンセントレーター内に挿入する (モリブデンディスクも発熱させ試料を上下から加熱し均一加熱する。)
- ② 出力にして 0.1 KV / min の勾配でゆっくり昇温する。
- ③ 高温側が 1300 $^{\circ}C$ ~ 1400 $^{\circ}C$ に達したら 5 分位保持した後、コンセントレーター内にタングステン発熱体のみが位置するように可動支持台によって試料を徐々に下げる。
- ④ 到達温度に達するまで 0.2 KV / min 位で昇温する。

3 温度計の補正

(1) マイクロ・オブティカル・パイロメータ

この温度計は原理的に被测温体の物質およびその形状、あるいは光路におけるガラス、放出ガラスなどに支配される。従って補正する場合は実際の测温条件とまったく同じ状態で補正することが理想的と言える。

我々は J I S 規格に定められている標準電球を光源とし、温度計までの光路にバイレックスガラス、鏡などの実測で障害物となる物体を置いて補正を行なったが、標準電球は 1800 $^{\circ}C$ までの温度しか得られず、また透過も反射もないいわゆる黒体条件下での補正であり実際は 2000 $^{\circ}C$ 以上の温度を必要とし、一方被测温体は黒体ではなく、この補正法は真温度に対する誤差が大きいと予想される。また 1800 $^{\circ}C$ 以上の测温には問題がある。この問題を解決するために Ni (M.P. 1455 $^{\circ}C$), Pt (M.P. 1744 $^{\circ}C$), Al_2O_3 (M.P. 2050 $^{\circ}C$) を試料としサーマルレスト法で補正を行なった。これらの結果を Fig-4 に示す。従って実際の

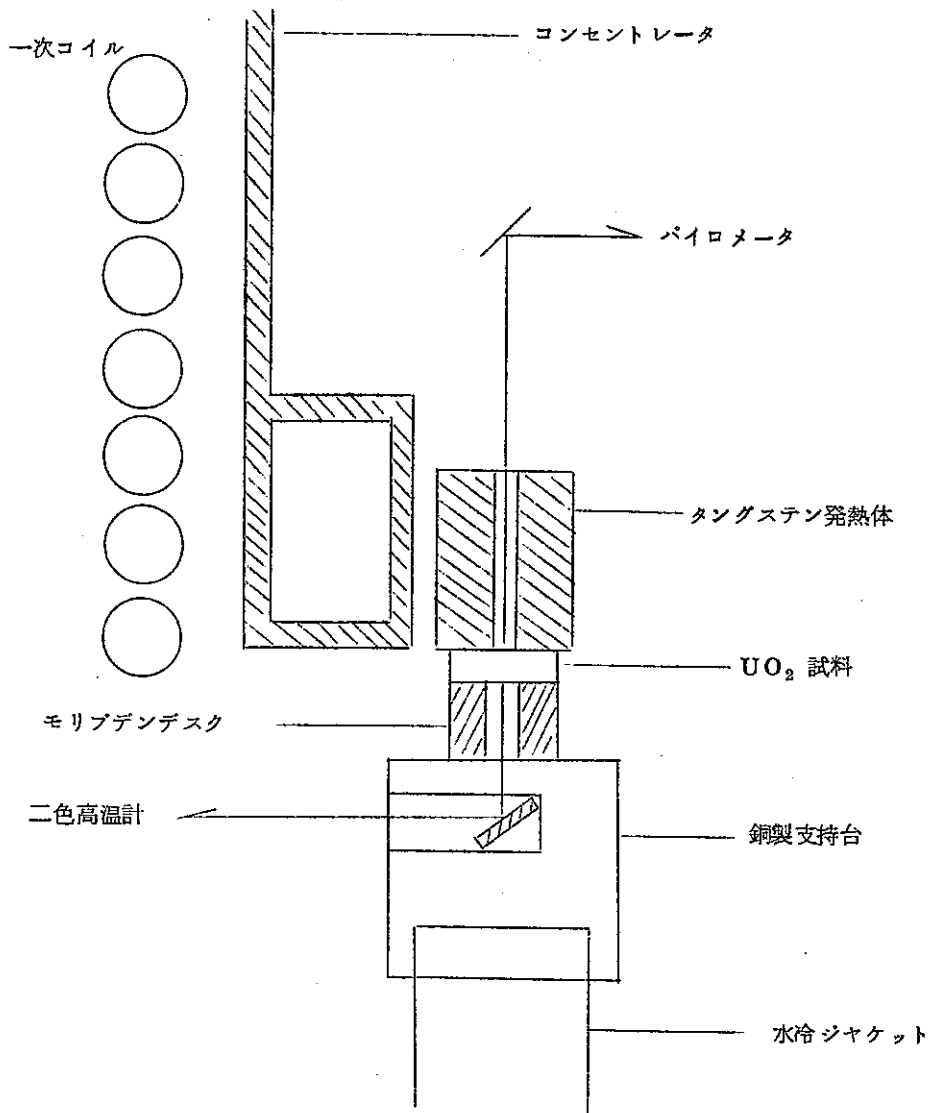


Fig-3 高周波加熱炉による温度こう配下加熱

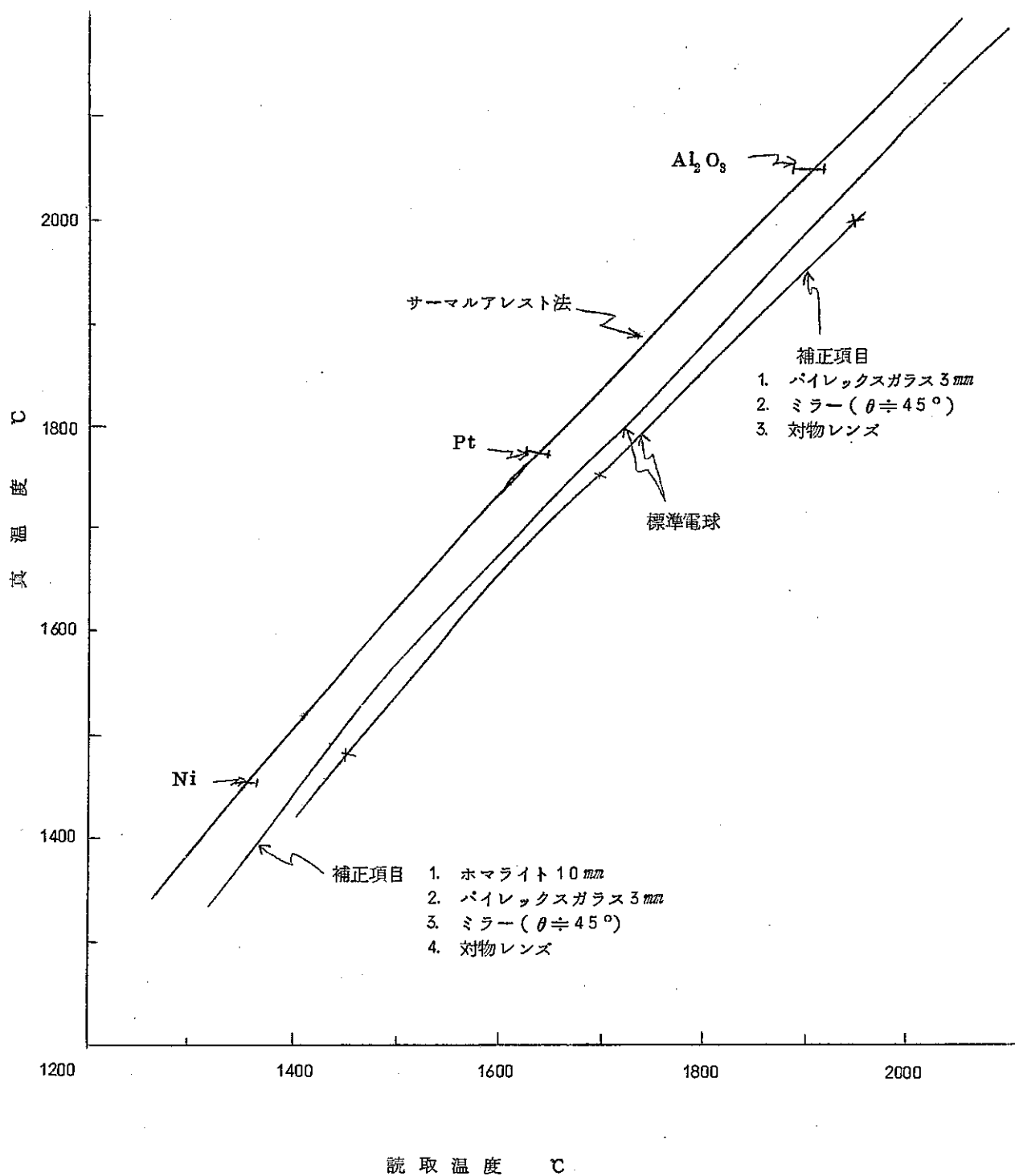


Fig-4 マイクロ・オブティカル・パイロメーターの補正曲線

補正はサーマル・アレスト法による曲線で行なった。

(2) 二色高温計

この温度計は原理的にパイレックスガラスなどの光の吸収、散乱を考慮しなくてもよいが、被測温体の温度より強いエネルギーを持つ外来光が光路に入った場合強いエネルギーを持つ温度を指示する心配があるので光路にはフードを設けて外来光の乱入を防止した。また二色温度計は一応標準試料をTa, UO₂, Tr, Zr, Al₂O₃とし、やはりサーマルアレスト法で補正されたものを使用した。

4 試料の温度分布

先にも述べたようにボイドの移動速度の解析を簡素化するために円柱状のUO₂ペレットの軸方向に温度勾配をつけて温度分布が直線になるように工夫したが、これはFig-6に示すように計算では直線の温度分布を求めることができた。これをさらに実証するために、Fig-7に示すように3189°C/cmの温度こう配下で2時間加熱後に測定したA, B, C, Dの4点の温度は測定誤差範囲の中で直線で結ぶことができたがFig-5に示すようにむしろ時間の経緯と共に温度こう配の変化の方が大きい。これは時間と共に焼結が進行していくためと考えられる。

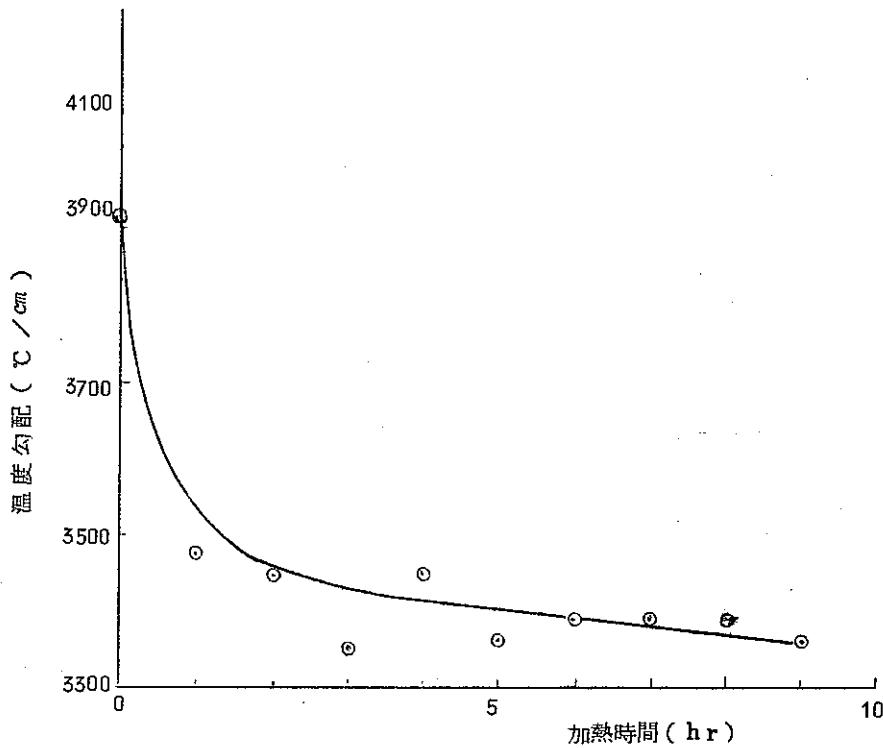


Fig-5 試料TG-T-49

到着温度に達してからの温度勾配の変化

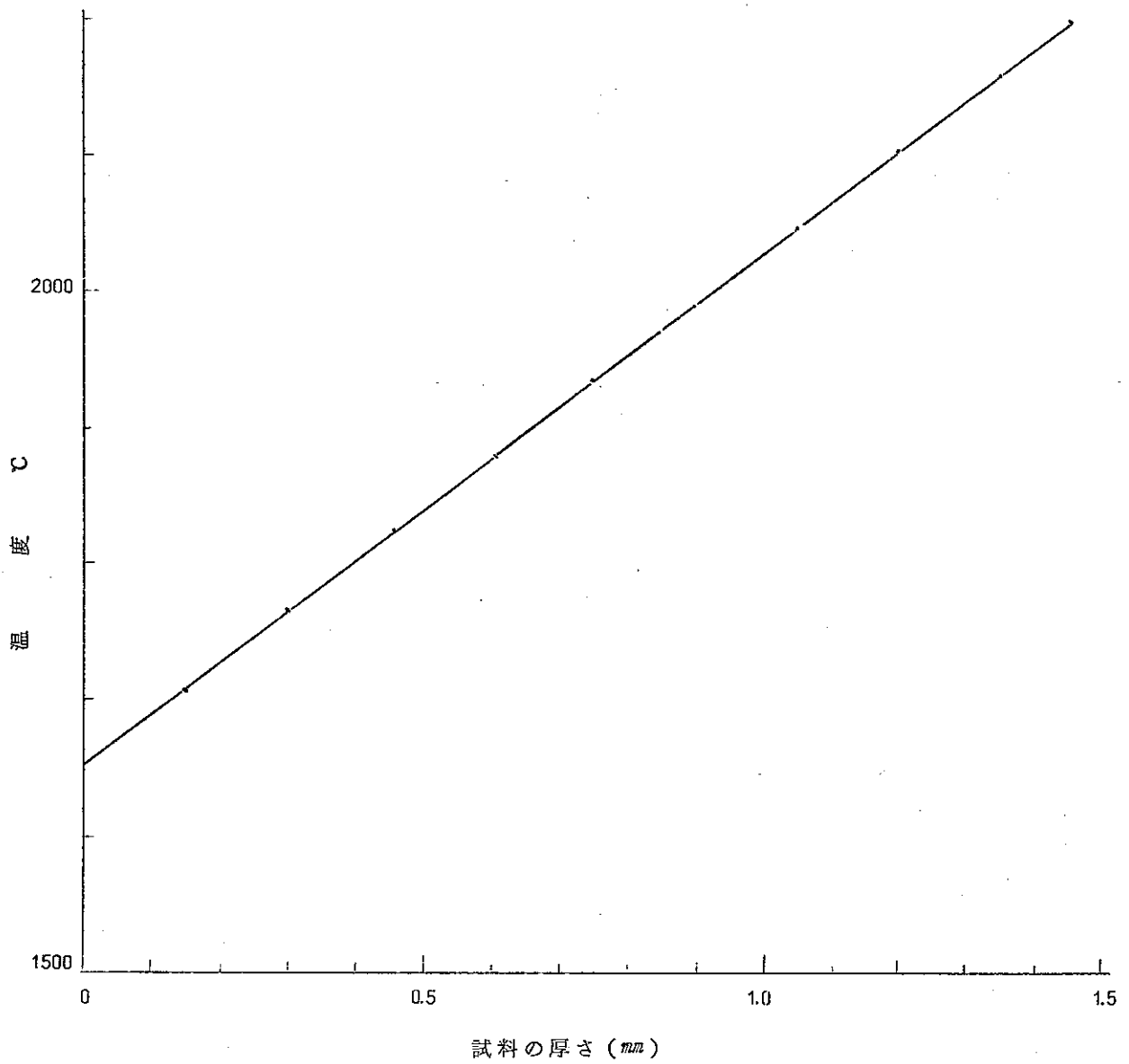


Fig - 6 計算によるUO₂ ペレット試料の温度分布
温度勾配 3633°C/cm

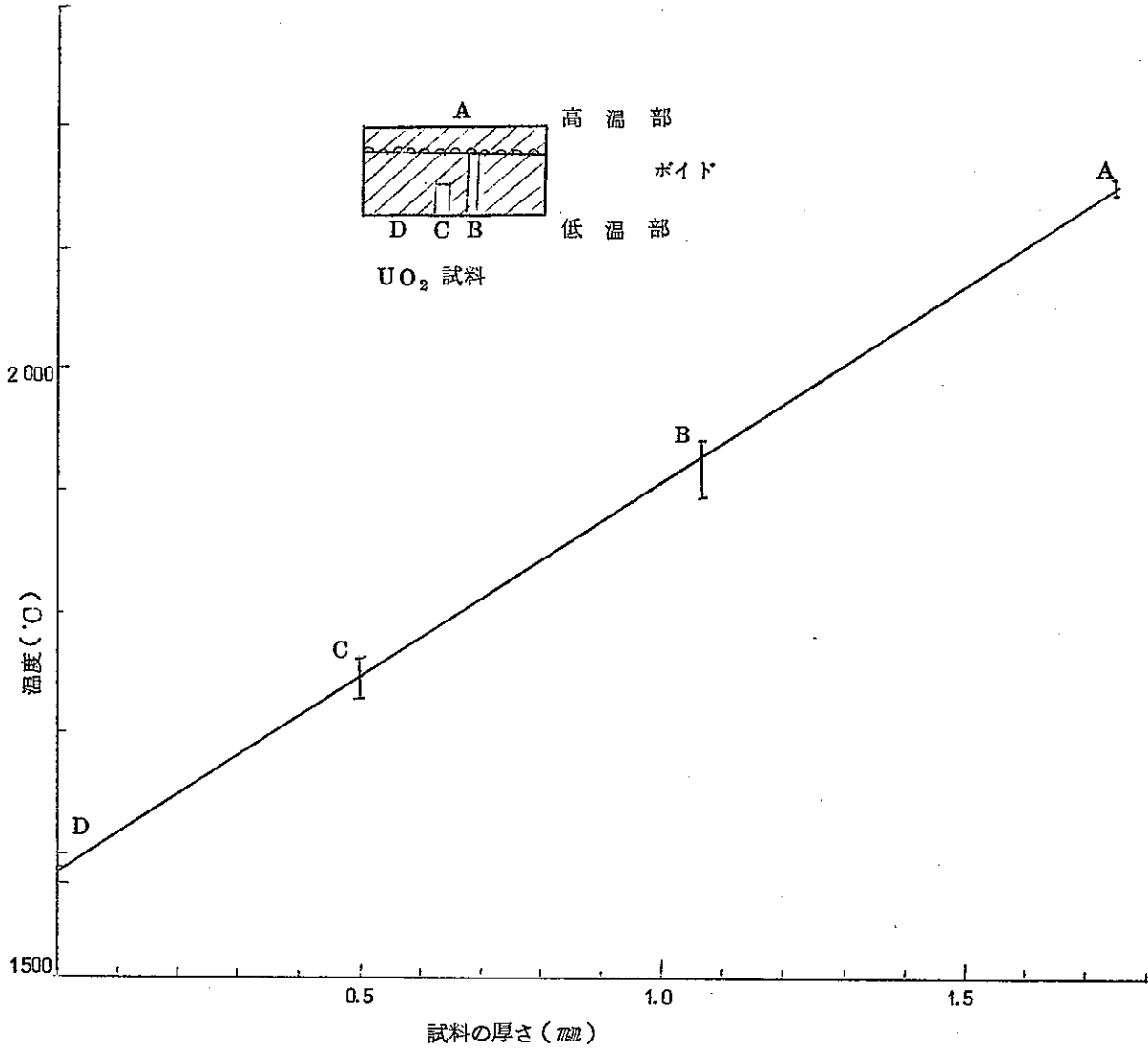
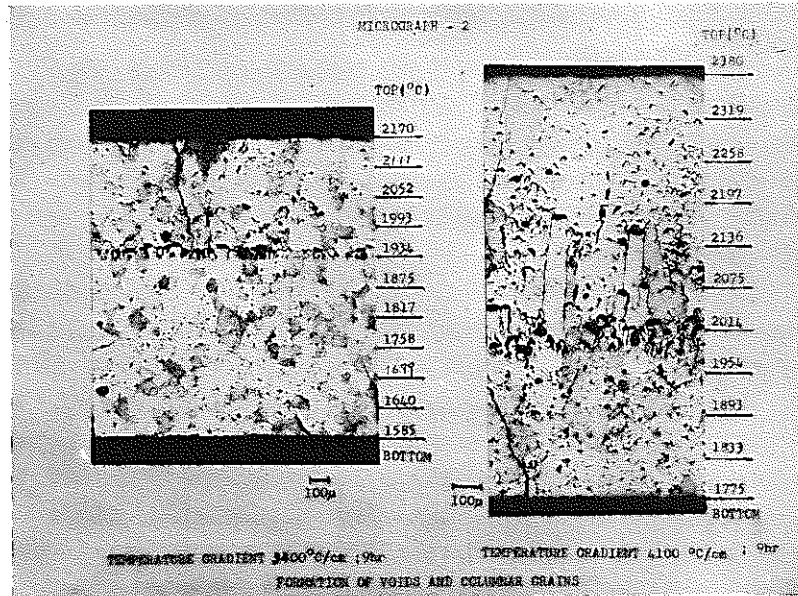


Fig- 7 UO₂ 試料を 3189 °C/cm の温度勾配で 2 時間加熱後の温度分布, 測定位置は A. B. C. D. の 4 点

5 ボイドの移動解析

以上述べた諸条件下で時間および温度を変えて加熱した後、試料 樹脂に埋込んで研磨し、光学顕微鏡写真によってPhoto-3 に示めすような温度こう配下で移動した柱状晶を伴なり典型的なレンズ状ボイドを確認することができた。また、Photo-4のように走査型電顕による破面の観察でも同様の状態を確認することができた。



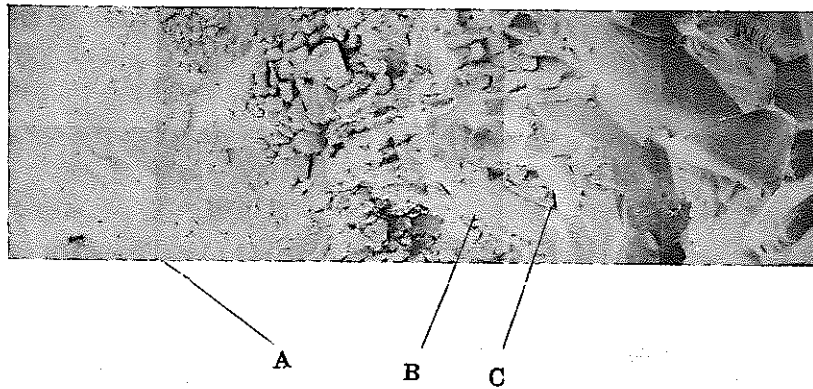
TG-T-49

TG-T-45

Photo-3 温度こう配下加熱による柱状晶を伴なり典型的なレンズ状ボイド

TG-T-49 温度こう配—3400°C/cm, 加熱時間—9hr,
ボイドの出発点の温度—1930°C

TG-T-45 温度こう配—4100°C/cm, 加熱時間9hr,
ボイドの出発点の温度—1970°C



低温部

高温部

Photo-4 走査型電顕による試料TG-T-49の破面

A：等軸晶， B：柱状晶

C：レンズ状ボイド

ボイドの移動距離，ボイドの出発点の温度および到達点の温度は金相写真から求め，またボイドの移動時間は到達温度での加熱時間とした。

なお温度こう配が経時変化を生ずるため，前述の温度は時間に対する平均から求めた。

これらを同じ値としてインプットし電子計算機で実験値からのボイドの移動速度と DEHALAS 等の理論式および NICHOLS の理論式によるボイドの移動速度を同時に求めて比較検討を行なった。これらの計算結果を Table-1 ~ 4 に示す。

Table - 1 VOID JIKKEN-HEIKIN ONDO TO SOKUDO

DEHALAS-KIKUCHI NO SHIKI			
LDIFF= 1	LTG= 1	LPORE= 1	
PA(1)= 0.50120E 11	AK(1)= 0.68386E 05	BK(1)= 0.00000E 00	
PA(2)= 0.54900E 15	AK(2)= 0.10678E 06	BK(2)= 0.27961E 08	
DIA. OF GAS	MASS OF GAS	PRESS.	TEMP AT GAS FILLING
0.318E-07	28.000	760.000	1900.000
XPU= 0.0000000			

TEION (DEG.C)	KOON (DEG.C)	IDO KYORI (MICRON)	JIKAN (HOUR)	ONDO KOBAI (DEG/CM)	HEIKIN ONDO (DEG.C)	RIRON SOKUDO (MICRON/HOUR)	SOKUYEI SOKUDO (MICRON/HOUR)
1970.00	2018.00	172.00	2.000	2790.70	1992.60	0.67931E 01	0.86000E 02
2030.00	2090.00	198.00	2.000	3030.30	2057.92	0.17846E 02	0.99000E 02
2040.00	2089.00	144.00	2.000	3402.78	2063.12	0.21459E 02	0.72000E 02
2005.00	2060.00	147.00	2.000	3741.50	2030.72	0.15332E 02	0.73500E 02
1940.00	2101.00	438.00	2.000	3675.80	2005.51	0.10692E 02	0.21900E 03
2016.00	2071.00	149.00	3.000	3691.27	2041.73	0.17534E 02	0.49667E 02
2022.00	2089.00	189.00	3.000	3544.97	2052.90	0.19537E 02	0.63000E 02
2024.00	2088.00	179.00	4.000	3575.42	2053.63	0.19895E 02	0.44750E 02
1990.00	2088.00	275.00	4.000	3563.64	2033.41	0.15142E 02	0.68750E 02
1982.00	2128.00	412.00	4.000	3543.69	2042.90	0.17098E 02	0.10300E 03
2034.00	2058.00	63.00	4.000	3809.52	2045.66	0.19070E 02	0.15750E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.17739E 02	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.24897E 02	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.10670E 02	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.88697E 01	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.88	0.16697E 02	0.14850E 03
1988.00	2120.00	253.00	4.000	5217.39	2044.06	0.25565E 02	0.63250E 02
2005.00	2074.00	125.00	4.000	5520.00	2036.71	0.24519E 02	0.31250E 02
1990.00	2105.00	289.00	9.000	3979.24	2039.88	0.18441E 02	0.32111E 02
1987.00	2025.00	114.00	9.000	3333.33	2005.13	0.96453E 01	0.12667E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.17739E 02	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.24897E 02	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.10670E 02	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.88697E 01	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.88	0.16697E 02	0.14850E 03
2026.00	2106.00	150.00	3.000	5333.33	2062.33	0.33288E 02	0.50000E 02
2022.00	2117.00	234.00	4.000	4059.63	2064.36	0.26023E 02	0.58500E 02
1974.00	2065.00	205.00	9.000	4439.02	2014.60	0.14623E 02	0.22778E 02
1936.00	1960.00	77.00	9.000	3116.88	1947.64	0.40234E 01	0.85556E 01
1974.00	2166.00	455.00	9.000	4219.78	2049.64	0.22271E 02	0.50556E 02
1974.00	2022.00	103.00	9.000	4660.19	1996.60	0.11990E 02	0.11444E 02

Table-2 VOID IDO JIKKEN-HEIKIN ONDO TO SOKUDO

NICHOLS NO SHIKI			
LDIFF= 2	LTG= 2	LPORE= 1	
PA(1)= 0.50120E 11	AK(1)= 0.66386E 05	BK(1)= 0.00000E 00	
PA(2)= 0.54900E 15	AK(2)= 0.10078E 06	BK(2)= 0.27961E 08	
DIA. OF GAS	MASS OF GAS	PRESS.	TEMP AT GAS FILLING
0.318E-07	28.000	760.000	1900.000
XPU= 0.000000			

TEION (DEG.C)	KOON (DEG.C)	IDO KYORI (MICRON)	JIKAN (HOUR)	ONDO KOBAI (DEG/CM)	HEIKIN ONDO (DEG.C)	RTRON SOKUDO (MICRON/HOUR)	SOKUTET SOKUDO (MICRON/HOUR)
1970.00	2018.00	172.00	2.000	2790.70	1992.60	0.90033E 01	0.86000E 02
2030.00	2090.00	198.00	2.000	3030.30	2057.92	0.23653E 02	0.99000E 02
2040.00	2089.00	144.00	2.000	3402.78	2063.12	0.28440E 02	0.72000E 02
2005.00	2060.00	147.00	2.000	3741.50	2030.72	0.20321E 02	0.73500E 02
1940.00	2101.00	438.00	2.000	3675.80	2005.51	0.14171E 02	0.21900E 03
2016.00	2071.00	149.00	3.000	3691.27	2041.73	0.23239E 02	0.49667E 02
2022.00	2089.00	189.00	3.000	3544.97	2052.90	0.25893E 02	0.63000E 02
2024.00	2088.00	179.00	4.000	3575.42	2053.63	0.26368E 02	0.44750E 02
1990.00	2088.00	275.00	4.000	3563.64	2033.41	0.20069E 02	0.68750E 02
1982.00	2128.00	412.00	4.000	3543.69	2042.90	0.22661E 02	0.10300E 03
2034.00	2058.00	63.00	4.000	3809.52	2045.66	0.25275E 02	0.15750E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.23510E 02	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.32998E 02	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.14141E 02	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.11756E 02	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.89	0.22129E 02	0.14850E 03
1988.00	2120.00	253.00	4.000	5217.39	2044.06	0.33883E 02	0.63250E 02
2005.00	2074.00	125.00	4.000	5520.00	2036.71	0.32496E 02	0.31250E 02
1990.00	2105.00	289.00	9.000	3979.24	2039.88	0.24441E 02	0.32111E 02
1987.00	2025.00	114.00	9.000	3333.33	2005.13	0.12784E 02	0.12667E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.23510E 02	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.32998E 02	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.14141E 02	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.11756E 02	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.89	0.22129E 02	0.14850E 03
2026.00	2106.00	150.00	3.000	5333.33	2062.33	0.44119E 02	0.50000E 02
2022.00	2117.00	234.00	4.000	4059.83	2064.36	0.34490E 02	0.58500E 02
1974.00	2065.00	205.00	9.000	4439.02	2014.60	0.19380E 02	0.22778E 02
1936.00	1960.00	77.00	9.000	3116.88	1947.64	0.53324E 01	0.85556E 01
1974.00	2166.00	455.00	9.000	4219.78	2049.64	0.29516E 02	0.50556E 02
1974.00	2022.00	103.00	9.000	4660.19	1996.60	0.15892E 02	0.11444E 02

Table-3 VOID IDO JIKKEN-HEIKIN ONDO TO SOKUDO

DEHALAS-KIKUCHI NO SHIKI			
LDIFF= 1	LTG= 1	LPORE= 2	
PA(1)= 0.50120E 11	AK(1)= 0.68386E 05	BK(1)= 0.00000E 00	
PA(2)= 0.54900E 15	AK(2)= 0.10078E 06	BK(2)= 0.27961E 08	
DIA. OF GAS	MASS OF GAS	PRESS.	TEMP
0.318E-07	28.000	76.000	2030.000
XPU= 0.0000000			

TEION (DEG.C)	KOON (DEG.C)	IDO KYORI (MICRON)	JIKAN (HOUR)	ONDO KOBAI (DEG/CM)	HEIKIN ONDO (DEG.C)	RIRON SOKUDO (MICRON/HOUR)	SOKUTEI SOKUDO (MICRON/HOUR)
1970.00	2018.00	172.00	2.000	2790.70	1992.60	0.70120E 02	0.86000E 02
2030.00	2090.00	198.00	2.000	3030.30	2057.92	0.18914E 03	0.99000E 02
2040.00	2089.00	144.00	2.000	3402.78	2063.12	0.22841E 03	0.72000E 02
2005.00	2060.00	147.00	2.000	3741.50	2030.72	0.16073E 03	0.73500E 02
1940.00	2101.00	438.00	2.000	3675.80	2005.51	0.10889E 03	0.21900E 03
2016.00	2071.00	149.00	3.000	3691.27	2041.73	0.18470E 03	0.49667E 02
2022.00	2089.00	189.00	3.000	3544.97	2052.90	0.20634E 03	0.63000E 02
2024.00	2088.00	179.00	4.000	3575.42	2053.63	0.21031E 03	0.44750E 02
1990.00	2088.00	275.00	4.000	3563.64	2033.41	0.15769E 03	0.68750E 02
1982.00	2128.00	412.00	4.000	3543.69	2042.90	0.17743E 03	0.10300E 03
2034.00	2058.00	63.00	4.000	3809.52	2045.66	0.20246E 03	0.15750E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.18661E 03	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.26192E 03	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.11126E 03	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.92493E 02	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.88	0.17411E 03	0.14850E 03
1988.00	2120.00	253.00	4.000	5217.39	2044.06	0.26601E 03	0.63250E 02
2005.00	2074.00	125.00	4.000	5520.00	2036.71	0.25703E 03	0.31250E 02
1990.00	2105.00	289.00	9.000	3979.24	2039.88	0.19205E 03	0.32111E 02
1987.00	2025.00	114.00	9.000	3333.33	2005.13	0.10032E 03	0.12667E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.18661E 03	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.26192E 03	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.11126E 03	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.92493E 02	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.88	0.17411E 03	0.14850E 03
2026.00	2106.00	150.00	3.000	5335.53	2062.33	0.35219E 03	0.50000E 02
2022.00	2117.00	234.00	4.000	4059.83	2064.36	0.27484E 03	0.58500E 02
1974.00	2065.00	205.00	9.000	4439.02	2014.60	0.15121E 03	0.22778E 02
1936.00	1960.00	77.00	9.000	3116.88	1947.64	0.40900E 02	0.85556E 01
1974.00	2166.00	455.00	9.000	4219.78	2049.64	0.23029E 03	0.50556E 02
1974.00	2022.00	103.00	9.000	4660.19	1996.61	0.12399E 03	0.11444E 02

Table-4 VOID IDO JIKKEN-HEIKIN ONDO TO SOKUDO

NICHOLS NO SHIKI							
LDIFF= 2		LTG= 2		LPORE= 2			
PA(1)= 0.50120E 11		AK(1)= 0.68366E 05		BK(1)= 0.00000E 00			
PA(2)= 0.54900E 15		AK(2)= 0.10078E 06		BK(2)= 0.27961E 08			
DIA. OF GAS		MASS OF GAS		PRESS.		TEMP. AT GAS FILLING	
0.318E-07		28.000		76.000		2030.000	
XPU= 0.0000000							
TEION (DEG.C)	KOON (DEG.C)	IDO KYORI (MICRON)	JIKAN (HOUR)	ONDO KOBAI (DEG/CM)	HEIKIN ONDO (DEG.C)	RIRON SOKUDO (MICRON/HOUR)	SOKUTEI SOKUDO (MICRON/HOUR)
1970.00	2018.00	172.00	2.000	2790.70	1992.60	0.92934E 02	0.86000E 02
2030.00	2090.00	198.00	2.000	3030.30	2057.92	0.25068E 03	0.99000E 02
2040.00	2089.00	144.00	2.000	3402.78	2063.12	0.30273E 03	0.72000E 02
2005.00	2060.00	147.00	2.000	3741.50	2030.72	0.21303E 03	0.73500E 02
1940.00	2101.00	438.00	2.000	3675.80	2005.51	0.14432E 03	0.21900E 03
2016.00	2071.00	149.00	3.000	3691.27	2041.73	0.24480E 03	0.49667E 02
2022.00	2089.00	189.00	3.000	3544.97	2052.90	0.27347E 03	0.63000E 02
2024.00	2088.00	179.00	4.000	3575.42	2053.63	0.27873E 03	0.44750E 02
1990.00	2088.00	275.00	4.000	3563.64	2033.41	0.20900E 03	0.68750E 02
1982.00	2128.00	412.00	4.000	3543.69	2042.90	0.23516E 03	0.10300E 03
2034.00	2058.00	63.00	4.000	3809.52	2045.66	0.26834E 03	0.15750E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.24733E 03	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.34714E 03	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.14746E 03	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.12259E 03	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.89	0.23076E 03	0.14850E 03
1988.00	2120.00	253.00	4.000	5217.39	2044.06	0.35255E 03	0.63250E 02
2005.00	2074.00	125.00	4.000	5520.00	2036.71	0.34066E 03	0.31250E 02
1990.00	2105.00	289.00	9.000	3979.24	2039.88	0.25453E 03	0.32111E 02
1987.00	2025.00	114.00	9.000	3333.33	2005.13	0.13295E 03	0.12667E 02
2013.00	2055.00	100.00	3.000	4200.00	2032.96	0.24733E 03	0.33333E 02
2013.00	2133.00	311.00	3.000	3858.52	2064.86	0.34714E 03	0.10367E 03
1993.00	2023.00	84.00	2.000	3571.43	2007.46	0.14746E 03	0.42000E 02
1993.00	2032.00	139.00	2.000	2805.76	2011.59	0.12259E 03	0.69500E 02
1993.00	2100.00	297.00	2.000	3602.69	2039.89	0.23076E 03	0.14850E 03
2026.00	2106.00	150.00	3.000	5333.33	2062.33	0.46677E 03	0.50000E 02
2022.00	2117.00	234.00	4.000	4059.83	2064.36	0.36426E 03	0.58500E 02
1974.00	2065.00	205.00	9.000	4439.02	2014.60	0.20040E 03	0.22778E 02
1936.00	1960.00	77.00	9.000	3116.88	1947.64	0.54208E 02	0.85556E 01
1974.00	2166.00	455.00	9.000	4219.78	2049.64	0.30522E 03	0.50556E 02
1974.00	2022.00	103.00	9.000	4660.19	1996.60	0.16433E 03	0.11444E 02

III 結 果

以上に述べた実験および計算によるボイドの移動速度から次のような結果を得ることができた。

- (1) 測定値にかなりのバラツキがあつたが一応ボイドの移動した距離領域の平均温度と移動速度の関係では理論値に対して平行な直線を得ることができた。しかし移動速度に対する平均温度と温度勾配との相関関係は求めることができなかった。バラツキの主な原因は温度勾配の不均一にあると考えられるが、これはボイドの移動という原子論的現象をとらえるのに焼結体という非常にマクロな試料を使わざるを得ないという本質的な問題から生じたものである。
- (2) 理論計算においては、ガス封入時の温度がボイドの移動速度に大きく影響している。実験によるガス封入温度を $1,900^{\circ}\text{C}$ としているが、この場合実験測定値の方が約5倍早く、 $2,030^{\circ}\text{C}$ では逆に理論値の方が5倍位早い。
- (3) 二者の理論式間の差は若干あるが移動速度値からの比較では優位差がないとみてよい。これらの結果については Fig-8 に示す。また Fig-9 から次のような結果を得た。
- (4) 加熱時間つまりボイドの移動時間 t と移動距離 D の関係は良い一致がみられ、最小二乗法によって下記のような式が得られた。

$$D(u) = -105.65 + 90.55t \text{ (hr)}$$

- (5) 理論式ではボイドの移動開始点を原点としているが、実験値では移動開始点の温度約 $2,060^{\circ}\text{C}$ で1.16時間の潜在時間 (Incubation period) を有している。従つて実験による測定速度は見掛速度であり真速度の値は混在時間を考慮して求めなければならない。

IV 考 察

これらの結果を実際の高速炉中の燃料挙動の解析にどのように結び付けるかは $(U + Pu)O_2$ 混合酸化物試料を基にする実験報告にゆずることとし、ここでは本実験から推察される燃料挙動についての一考察を述べる。

- (1) ガス封入時の温度、すなわちボイド中のガス分子濃度がボイドの移動速度に大きく影響する。ガス封入時の温度とは理論式(2)の T に相当し蒸気圧 P が一定とすると分子濃度 n は温度に支配されることになる。この n はさらに速度式(10)でガス分子濃度 n_2 として影響することになる。これを実験から定性的に推察すると、焼結温度 $1,600^{\circ}\text{C}$ をガス封入時の温度とした場合、理論式ではかなり遅い移動速度となる。また逆に実際の照射中に生ずると考えられるがクラックなどが $2,000^{\circ}\text{C}$ 位の比較的高温で密閉ボイドが形成されたとするとこのボイドの移動速度は可成り早いということになる。
- (2) ボイド内の圧力を大気圧 (760 mm Hg) で一定とした場合、ボイドの出発温度 $2,000^{\circ}\text{C}$ 以

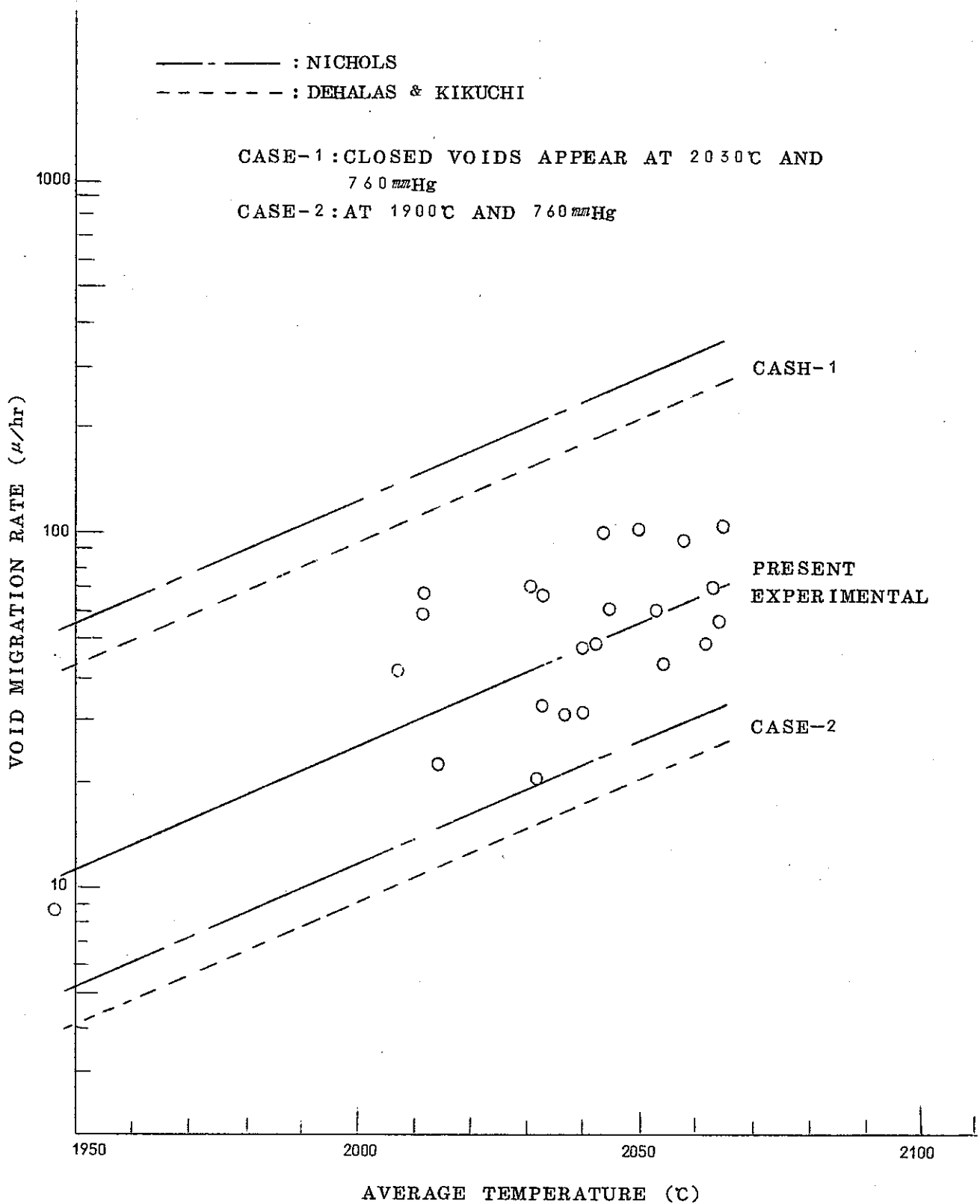


Fig - 8 MIGRATION RATE OF VOID IN UO_2 UNDER THE CONDITION OF $N_2-5\%H_2$ ATMOSPHERE, TEMPERATURE GRADIENT $2790 \sim 5520^{\circ}C/cm$, UPPER SURFACE TEMPERATURE OF A SPECIMEN $1936 \sim 2040^{\circ}C$ AND BOTTOM TEMPERATURE $1960 \sim 2166^{\circ}C$

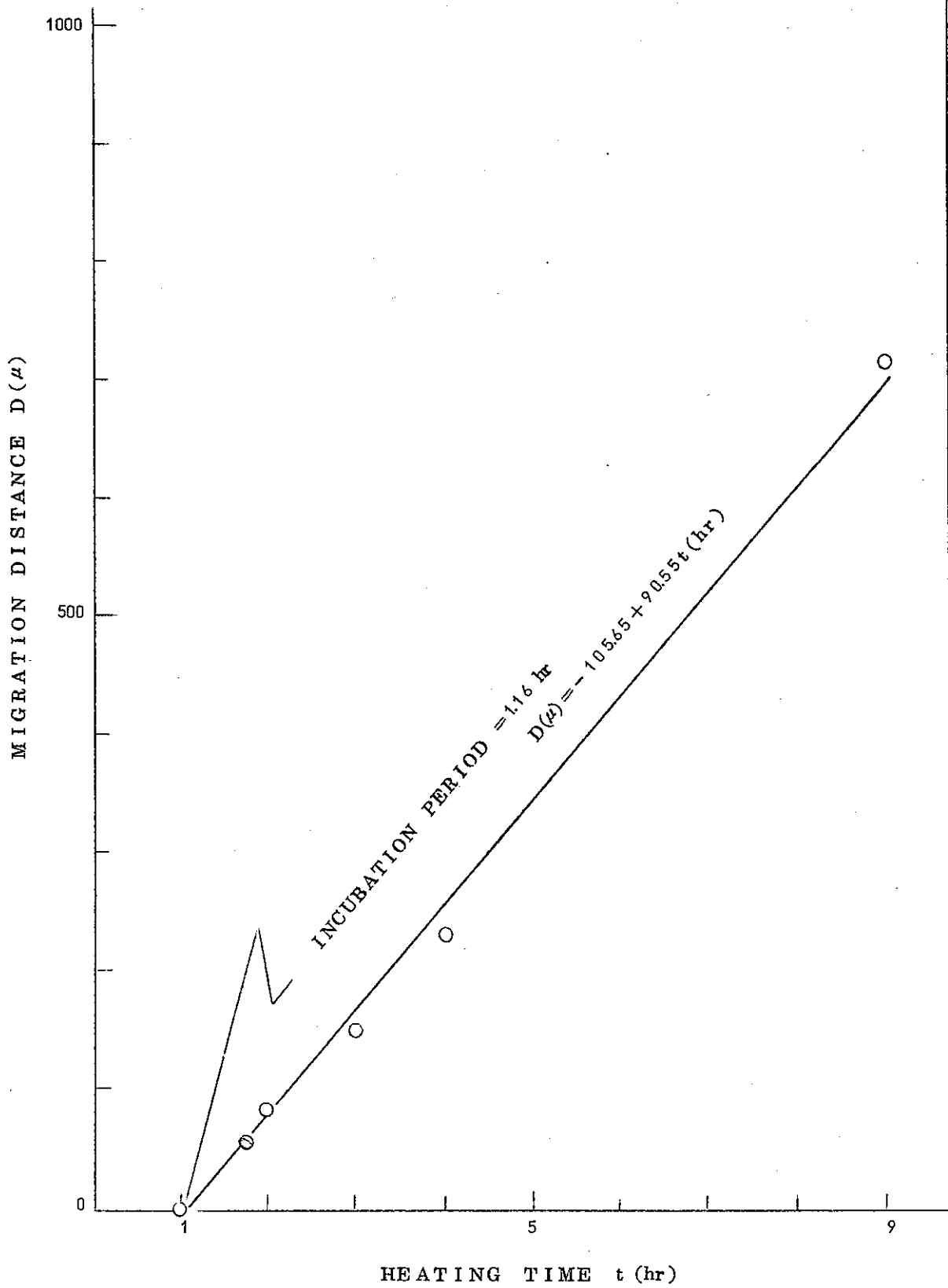


Fig - 9 MIGRATION DISTANCE OF A VOID (VOID MIGRATION STARTING TEMPERATURE $2026 \pm 5^\circ\text{C}$, TEMPERATURE GRADIENT $3510^\circ\text{C}/\text{cm} \sim 5500^\circ\text{C}/\text{cm}$)

下では1時間以上の潜在時間 (Incubation period) を有する。

- (3) 高速炉心用燃料ペレットの一般的な温度分布から UO_2 ペレット中のボイドの移動を推察するとボイドの出発温度 $2,030^\circ C$ は燃料ペレットの半径 (真径 5.5 mm) の $\frac{1}{2}$ の所に相当する。これを同心円とするとところに位置するボイドは1時間位の比較的早い時期に中心へ到達する。

参 考 文 献

- (1) J. Nuc. Mater 8 (1963) 207-220 D. R. Dehalas Evolution of uranium dioxide structure during irradiation of fuel rods.
- (2) JAERI-Memo No 1686, 1764. 9. Appendix.
- (3) J. Nuc. Mater 22 (1967) 214-222 F. A. Nichols Theory of columnar grain growth and central void formation in oxide fuel rods.
- (4) ANL-5482 Sept 14, 1955 By Raymond J Ackerman (UO_2 の蒸気圧の式)
- (5) ANL 7776 Jan, 1971
Reactor development program progress report.