

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]

UO₂ の高温強度と破壊 (I)

High Temperature Strength & Fracture of UO₂

1973年11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



UO₂ の高温強度と破壊* (I)

実施責任者	小 泉 益 通	プルトニウム 燃料部 開発課
報 告 者	立 花 利 道 (")
	大 内 薫 (")
	古 屋 広 高 (")
	小 松 純 治** (")

期 間 1972年4月～1973年3月

目 的 (U, Pu)O₂ と結晶構造が同じで、かつ動的な機械的性質がほぼ同一と考えられる UO₂ について、その高温変形挙動と破壊強さを正確に測定し、高速炉ならびに軽水炉燃料ピンの非定常解析に必要な物性値を得ることを目的とする。

要 旨 高速変形状態での UO₂ の①応力-ひずみ曲線と②破壊強さを圧縮法によって高温まで測定した。

この結果①については、約 1,800℃以上の高温になると UO₂ のひずみ硬化指数は急激に小さくなった。このことから 1,800℃以上の温度領域での変形は粘性状態で生ずることが判明した。

②については、UO₂ の破壊強さを 1,100～1,600℃まで精度よく測定することができた。この際、荷重作用点の面積と摩擦を有限要素法によるコンピューター解析で考慮し測定上のバラツキを避けた。

* 日本原子力学会 48年会 燃料・材料部門に既に一部発表

** 現在 大洗工学センター A. G. F. 所属

目 次

1. 序	1
2. 試験試料および試験方法	1
3. 測定結果	3
4. 考 察	5
5. 結 論	6
6. あとがき	7
7. 参 考 文 献	8

1. 序

高速増殖炉の経済性確保の要因の一つとして高出力および高燃焼度が安全にえられるような高性能燃料の開発が必要とされている。

このような燃料の開発のため、炉内において高温で生ずる燃料ペレットの塑性変形が基本的な問題の一つとして提起されよう。

燃料ペレットの応力-ひずみの関係^{1,2)}と燃料の破壊強さ^{2,3,4,5,6)}は照射下における燃料-被覆管の機械的相互作用と炉の非定常運転時の燃料の応答性に大きく作用する。

現在まで高速炉燃料として、要求されている $UO_2-20\text{w/o}$ よりもむしろ、 UO_2 が研究されている。プルトニウム混合酸化物での試験は、ウラン酸化物の場合よりはるかに困難であるが、 $UO_2-20\text{w/o PuO}_2$ として UO_2 の製造と機械的性質が利用できるからである³⁾。

多結晶ウラン酸化物の高温変形として、定荷重による試験いわゆるクリープ試験に関する報告は最近多くなってきた。

しかし燃料の高温における応力-ひずみ関係と破壊強度はまだ不明な点が多い。

特に高速変形状態での応力-ひずみ曲線および破壊強度についての報告は殆んどない。

また、中程度でのひずみ速度における UO_2 の破壊強度に関する報告^{4,6)}がみられるが、試験方法としてまげ法¹⁾を採用しているのが殆んどである。

まげ法は高温での測定上のバラツキが特に大きい、簡単であるため一般的に採用されている。

本報では高温での破壊値の測定バラツキをさけるため、 UO_2 ペレットを径方向に圧縮する方法¹¹⁾を採り純粋な引張破壊応力値を 1,600 ψ まで測定した。同時に UO_2 ペレットを軸方向に圧縮することにより応力-ひずみ曲線、降伏強度、弾性限を広い温度範囲にわたり測定した。

2. 試験試料および試験方法

2.1 試料調整

実験に使用した試料は組成および組織的なバラツキを最少限にするため、同じバッチの UO_2 ペレットを使用した。

試料として使用した UO_2 ペレットの組成を表 1 に示す。

試料は微細な UO_2 粉末を加圧成形後高純度 水素-チッ素ガス(H_2 75%- N 25%)中で1,500℃, 約4時間焼結をして, 得た。

試験前の試料の顕微鏡組織を写真1に示す。

試料の腐蝕液は H_2SO_4 と30% H_2O_2 とを1:9の割合の混液で, 腐蝕時間は常温で約1分であった。

使用した試料のO/U, 平均結晶粒径, 密度はそれぞれ201, 17 μ , 94.4%理論密度である。試料の形状は, 直径5.5mm ϕ , 長さ10.0mmである。

2.2 試験方法

試験に使用した試験機はインストロン型の材料試験機である。

応力-ひずみ曲線を測定するための圧縮試験は, 定クロスヘッドスピードにより 10^{-2} /minから 10^1 /minの高ひずみ速度範囲で, 行った。このときの試験温度は800℃から2000℃の間の各温度であった。

一方, 破壊強さ測定試験は, UO_2 ペレットを上下から径方向に圧縮する方法を採った。このときのひずみ速度は 9×10^{-2} /minであった。これをまげ法とともに第1図に示す。応力-ひずみ曲線をえるための試験は800℃から2000℃の温度範囲で行った。

一方, 破壊強度測定のための試験は1100℃から1600℃の間の各温度で行った。

圧縮試験試料加熱炉は, タンタル発熱体による抵抗加熱であり, 試験雰囲気は, 常に約 10^{-5} torrの真空中であった。

1600℃までの温度はPR20-40熱電対で試料を測定し, それ以上の温度は, 光高温計によって観測測定を行った。

加熱炉による試料加熱は, 試料に加熱速度による熱影響をさけるため, 約50℃/minの比較的ゆるやかな昇温速度で行った。

所定の試験温度まで加熱したのち, 試料の温度勾配, 特に上下からの荷重負荷ロッドの接触部分の温度勾配を防止するため約10分間保持し試料の温度が均一になったのを熱膨脹を測定することにより確認し, その後圧縮試験に移った。

圧縮試験に使用したインストロン型高温圧縮試験機の概要図を第2図に示す。

ペレットに作用させた荷重と変位はX-Yレコーダーで記録した。

3. 結 果

3.1 多結晶 UO_2 ペレットの応力-ひずみ挙動

応力-ひずみ関係は一般に次式¹⁰⁾で示される。

$$\sigma = k \epsilon^n \quad (1)$$

ここで σ : 応力 (kg/mm^2)

k : 定数

ϵ : ひずみ ($\Delta l / l$)

n : 加工硬化指数

UO_2 ペレットのひずみ硬化指数 n は、他の報告者に指適されているように、高ひずみ速度範囲に於いてもひずみ速度に大きく影響していた。しかし約 $1800^\circ C$ 以上になると、ひずみ硬化指数 n は急激に小さくなり、加工硬化の寄与が小さかった。

UO_2 ペレットの軸方向圧縮での各温度での応力-ひずみ曲線を第3図に示す。

3.2 UO_2 の降伏強度と弾性限

一般に炭素鋼で代表される降伏現象が $1000 \sim 1400^\circ C$ の温度範囲において、 UO_2 でも観測された。

UO_2 の降伏強度^{7,8,9)}と弾性限は高ひずみ速度においてひずみ速度に敏感¹⁾であった。

降伏強さと弾性限の温度依存性の測定結果を第4, 5図に示す。また、降伏強さのひずみ速度依存性を第6図に示す。

UO_2 の降伏強さと弾性限はひずみ速度の対数に比例していた。

3.3 UO_2 の破壊強さ

径方向圧縮破壊(圧裂破壊)による UO_2 ペレットの引張破壊強さの温度結果を第7図に示す。

径方向圧縮破壊強さは次の理論式で示される。^{11,12)}

$$\sigma_f = \frac{2P}{\pi d \ell}$$

σ_f : 引張破壊強さ (kg/mm²)

P : 破壊したときの荷重 (kg)

d : ペレット直径 (mm)

ℓ : ペレット長さ (mm)

この式が適用できるのは径方向に作用させる荷重が点荷重の場合だけである。

実際の試験では点荷重ではなくある程度巾のある面荷重になっており、(2)式で示される P に対する σ_f (応力) は真の破壊応力値からずれている。

そこで、真の応力値からのずれを考慮して、有限要素法によるコンピューター解析¹⁴⁾によって荷重 P が一定のペレットの面に作用し、しかもまさつ力が働らくとし応力分布を求め真の破壊応力値を見積った。

UO₂の破壊強度測定結果およびペレット中の応力分布 (有限要素法による解析) をそれぞれ第 7 . 1 0 図に示す。

径方向圧縮において、点荷重と面荷重との場合の差による応力分布のずれを、有限要素法によって、UO₂ペレットについて見積った結果を第 8 図に示す。

試験温度が高い場合ほど接触面積が大きかった。今回の試験では 1 6 0 0 ℃での圧裂試験が最大の接触面積をもっており 5.5 mmφのペレットに対し 0.8 mm の接触巾であった。この場合、点荷重の場合よりも約 2 0 % だけ破壊応力への伝達は少なかった (第 7 図参照)。つまり径方向に荷重を作用させてペレットを破壊させる場合、面接触荷重の場合は点荷重の場合よりも約 2 0 % 多く荷重を加えないと破壊しないことになる。

UO₂の破壊強さの測定結果によると 1 1 0 0 ℃~1 6 0 0 ℃の温度範囲において、約 1 5 0 0 ℃で破壊強さが最大であった。

4. 考 察

4.1 UO_2 の塑性変形

UO_2 の降伏強さと弾性限は温度の増加にともなって、なだらかに減少していた。

UO_2 の応力-ひずみ曲線はひずみ速度に敏感であった。

これは塑性変形が進行するにつれて転位の密度が増大しひずみ硬化が大きくなるためと考えられる。¹³⁾

高温での応力-ひずみ関係は転位の増殖と消滅の兼ねあいによるものである。

UO_2 の場合、ひずみ硬化指数が1800℃付近になると急激に減少していた。

これは UO_2 の場合、1800℃以上の高温になると塑性変形の進行にともない転位は増殖するが同時に転位の消滅速度が大きいため全体として転位密度の増大が殆んど起らないためと考えられる。

従って1800℃以上での UO_2 の変形は粘性的であると云える。

UO_2 の降伏強さと弾性限はひずみ速度の対数と共に減少している。

このことはひずみ速度が速くなるとひずみの進行にともなう転位の増殖が遅れその結果転位密度の増加が相対的に、変形速度に対応した転位密度まで到達できないためと思われる。なぜならば塑性変形は転位による $\dot{\epsilon}$ によって生ずるものであるから。

4.2 UO_2 の高温破壊強さ

ペレットの破壊強さを測定する目的とする試験はペレット中に有効で明確な引張応力成分が発生するような荷重の作用方法をとらなければならない。

今まで報告されているデータはかなりのバラツキがある。これを第2表に示す。

今回使用した径方向圧縮破壊試験は有限要素法によるデータ処理をして、負荷ロッドと試料との接触面とまさつ力を考慮して正確な破壊強さを見積った。

点荷重の場合、理論式によるデータ処理は実際的であるが、点として荷重を作用させることは事実上不可能である。

実際は点荷重ではなく面荷重になっており、理論式によると過大評価する恐れがある。

この点に関し、有限要素法によってコンピューター解析した結果数10%の誤差が生ずるという結果がえられた。

R. F. CANON によると UO_2 の破壊強さは約1400℃で最大を示したとしているが、²⁾本試験によると約1500℃で最大であった。

このことは以下の理由によるものと考えられる。

R. F. CANON によると UO_2 の脆性-延性遷移温度^{2,4)}は1400℃であり、²⁾この温度で破壊強度の最大が観測されている。

ところで UO_2 の脆性-延性遷移温度はひずみ速度の上昇にもなって高くなるといわれている。²⁾

今回はひずみ速度が高いため UO_2 の破壊強度の最大が1500℃で観測されたと思われる。

また、 UO_2 ペレットを径方向に圧縮したときのクラックの発生を、有限要素法によって応力分布を解析し、本実験で測定した破壊応力値を使用することによりコンピューターによるシミュレーションした結果、実験とよい一致がみられた。これを第9～11図に示す。

5. 結 論

UO_2 を高温において高ひずみ速度で圧縮変形および破壊試験を行った結果、結論として以下に要約される。

- (1) UO_2 ペレットの高温での応力-ひずみ曲線は一般的な次式によって示すことができる。

$$\sigma = K \cdot \epsilon^n$$

σ : 応力
 K : 定数
 ϵ : ひずみ
 n : ひずみ硬化指数

- (2) UO_2 のひずみ硬化指数は1800℃以上の温度では殆んど0に近くなり、変形としては粘性状態として取り扱える(第8図参照)。

- (3) UO_2 は約 1800°C 以上の高温状態において転位の消滅速度は急激に速くなる。
- (4) UO_2 の降伏強さと弾性限は温度が上昇するにつれて減少し、 2000°C 付近での値は常温時の値よりもそれぞれ約 $\frac{1}{5}$, $\frac{1}{10}$ に低下する。
- (5) 高ひずみ速度での UO_2 の脆性-延性遷移温度は 1500°C 付近である。
- (6) UO_2 ペレットの高温における単純引張強さを精度よく測定することができた。
 UO_2 の単純引張破壊強さは $1100\sim 1600^\circ\text{C}$ の温度範囲において 1500°C のときが最大を示し、その値は約 3 kg/mm^2 であった。
- (7) 有限要素法によってペレットの圧裂試験でのクラックの発生を模擬した結果は実験とよい一致がみられた。

6. あ と が き

高速炉および軽水炉の急激な出力上昇など非定常状態では燃料に熱応力が急激な速度で発生するため従来の燃料のクリープ(定常)データによる解析は不可能になる。

このため、高温における急速変形状態での燃料の応力-ひずみ挙動が必要とされる。
燃料ピンの応答性が炉の安全性に直接関連するからである。

本試験では高速変形での燃料の応力-ひずみ挙動および破壊強さを測定したがさらに高速な変形状態での塑性変形挙動を UO_2 について測定し燃料ピンの非定常状態での応答性を評価する必要がある。

高ひずみ速度での塑性変形は $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ と UO_2 とでは殆んど差がないと云われているので UO_2 を使用して種々のひずみ速度での応力-ひずみ挙動および破壊強さを一貫して測定する必要がある。

また破壊強さの測定上の技術としての従来のまげ法ではなく圧裂法を今回の実験で採用したが今回のように有限要素法によるコンピューターでのデータ処理を行えば精度のよいデータがえられる。

7. 参 考 文 献

- (1) J. F. BYRON : Journal of Nuclear Materials, $\overline{27}$ (1968) 50
- (2) R. F. CANON, J. T. A. ROBERTS, and R. J. BEALS : Journal of Nuclear Materials, $\overline{54}$ (1971) 108
- (3) J. T. A. ROBERTS and Y. UEDA : Journal of The American Ceramic Society, $\overline{55}$ (1972) 117
- (4) J. T. A. ROBERTS and B. J. WRONA : ANL-7945 (1972)
- (5) A. A. SOLOMON : Journal of The American Ceramic Society, $\overline{55}$ (1972) 622
- (6) A. G. EVANS and R. W. DAVIDGE : Journal of Nuclear Materials, $\overline{33}$ (1969) 249
- (7) R. J. BEALS : ANL-7513 (1968)
- (8) F. P. KNUDSEN, H. S. PARKER, and M. D. BURDICK : Journal of The American Ceramic Society, $\overline{43}$ (1960) 641
- (9) J. S. NADEAU : Journal of The American Ceramic Society, $\overline{52}$ (1969) 1
- (10) J. H. GITTUS, D. A. HOWL, and H. HUGHES : Nuclear Application & Technology, $\overline{9}$ (1970) 43
- (11) 赤沢常雄 : 日本土木学会誌, $\overline{29}$ (1943) 777
- (12) J. N. GOODIER : Trans. ASME, $\overline{54}$ (1932) 173-183
- (13) C. S. YUST and C. J. MCHARGUE : Journal of Nuclear Materials, $\overline{31}$ (1969) 126
- (14) O. C. ツィエンキーヴィツ, Y. K. チューン (吉識唯夫 監訳) : マトリックス有限要素法 (培風館)

表1 UO₂ 試験試料の分析値

不純物	不純物含有量(重量)
Al	1.3 ppm
B	< 0.1
Ca	1.5
Cr	< 8
Fe	3.5
Mg	< 2
N	< 10
Ni	< 10

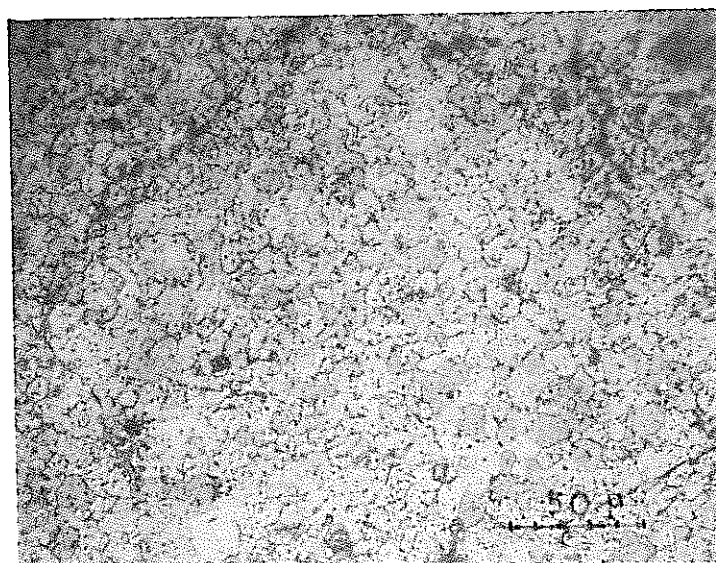
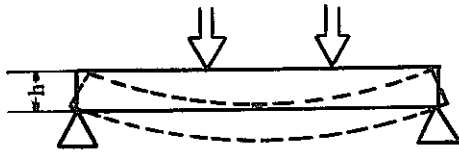


写真1. UO₂ 試験試料の光学顕微鏡写真
(圧縮試験前)

第2表 破壊応力の測定方法と結果

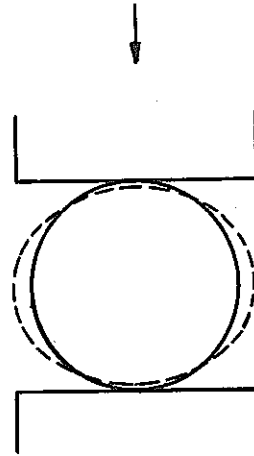
年	測定, 報告者	試料, 方法	密度 (T. D)	粒径 (μ)	温度 ($^{\circ}\text{C}$)	破壊値
1960 (W. H)	F. P. KNUDSEN H. S. PAKER M. D. BURDICK	UO_2 , まげ法	97%	15	1000	42.3 kg/mm ²
1969 (Harwell)	A. G. EVANS R. W. DAVIDGE	UO_2 , まげ法	97%	25	1000	17.4 "
1971 (ANL)	R. F. CANON J. T. A. ROBERTS R. J. BEALS	UO_2 , まげ法	97%	15	1100	132 "
1972 (ANL)	J. T. A. ROBERTS B. J. WRONA	UO_2 - PuO_2 , まげ法	96.3%	10	1000	10 "
1972 (ANL)	J. T. A. ROBERTS Y. UEDA	UO_2 , まげ法	94%	17	1250 1600	10 " 4 "
1973 (PNC)	Present Work.	UO_2 , 圧裂法	94.4%	17	1100 1600	3 " 25 "



$$\sigma = \frac{3 W a}{2 b h^2}$$

- W : 破壊に要した荷重 (Kg)
 a : 荷重点の距離 (mm)
 b : 試料の巾 (mm)
 h : 試料の高さ (mm)

(1) まげ法

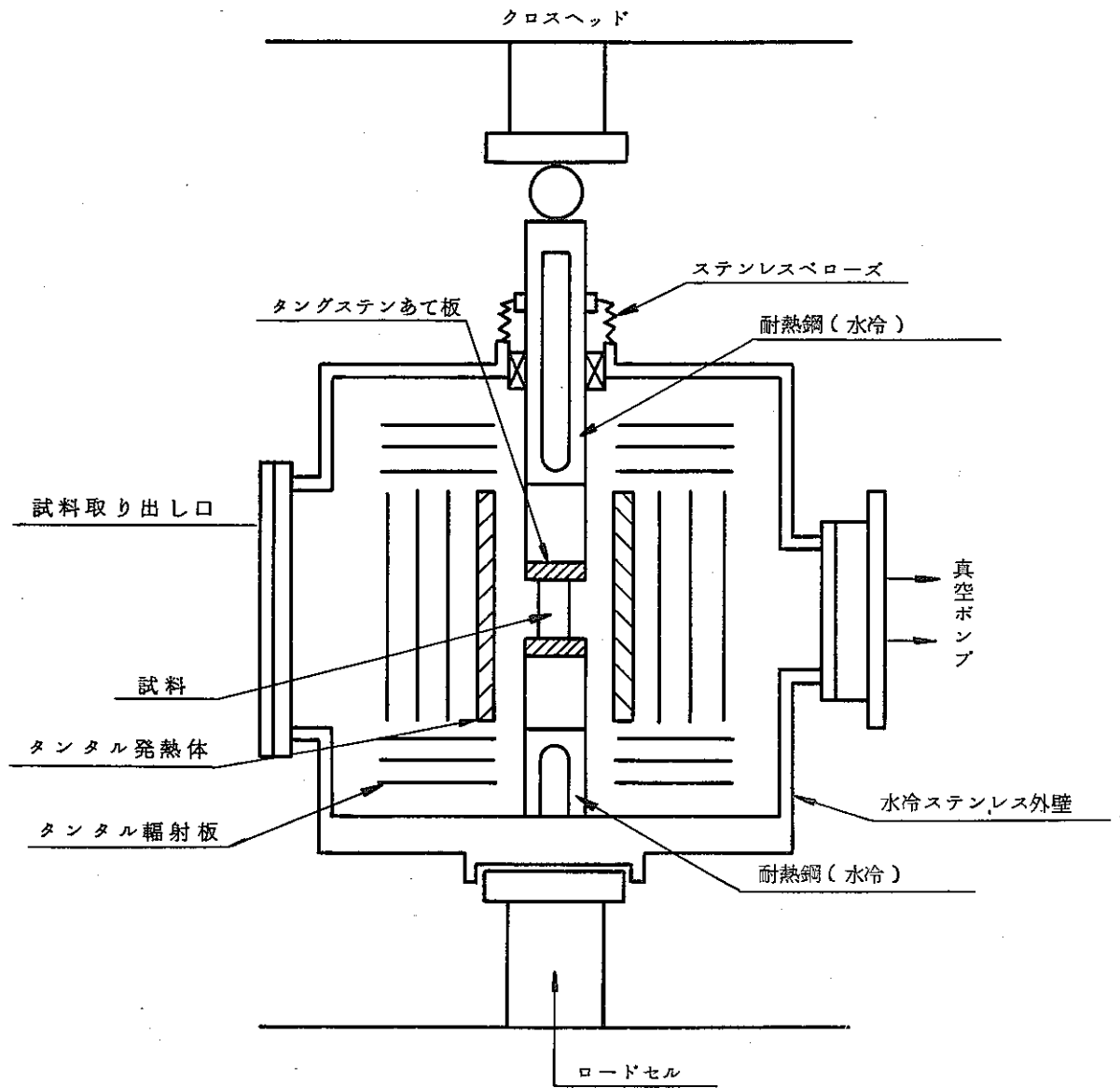


$$\sigma = \frac{2 W}{\pi d l}$$

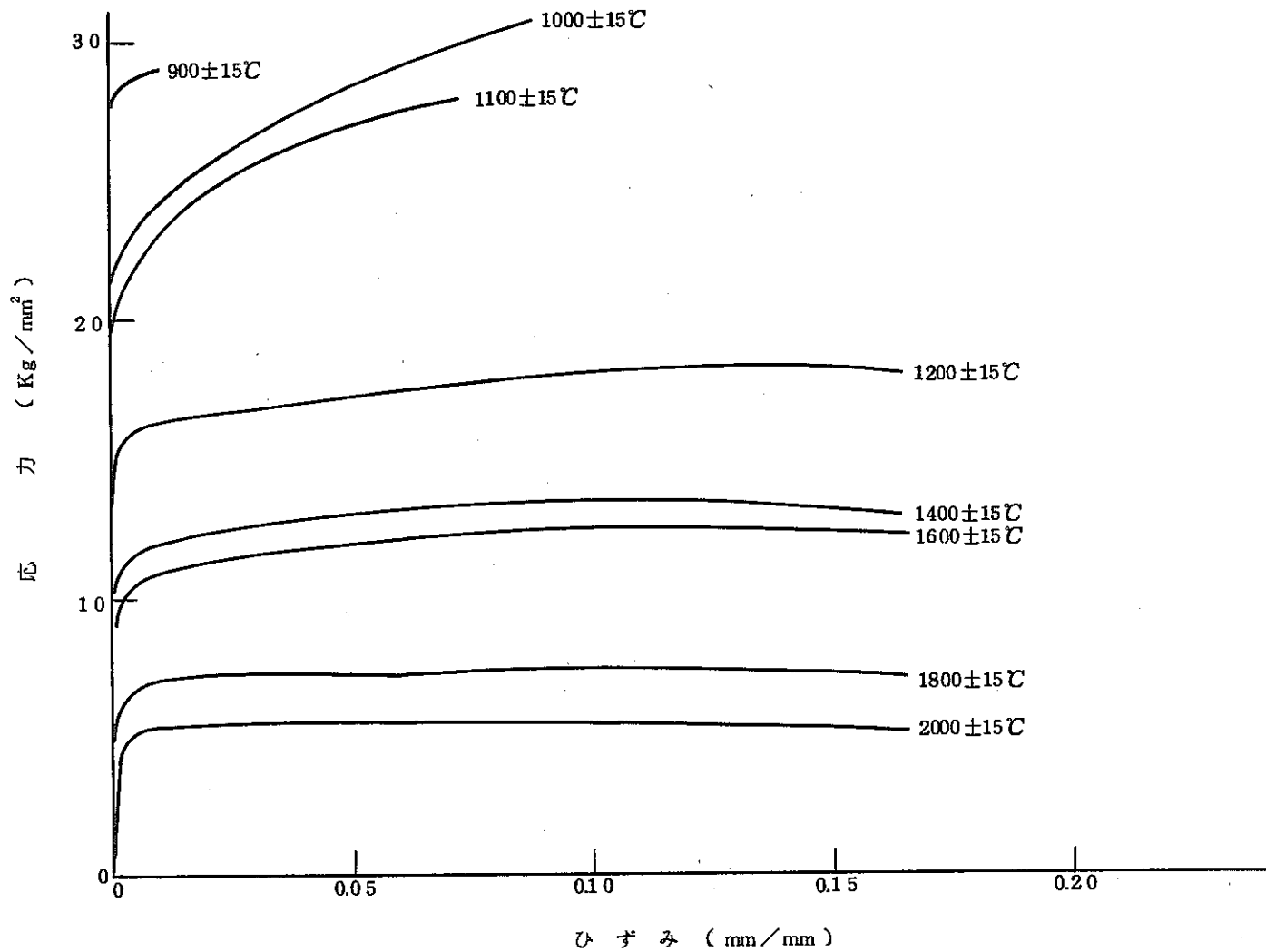
- W : 破壊に要した荷重 (Kg)
 d : ベレットの直径 (mm)
 l : ベレットの長さ (mm)

(2) 圧裂法

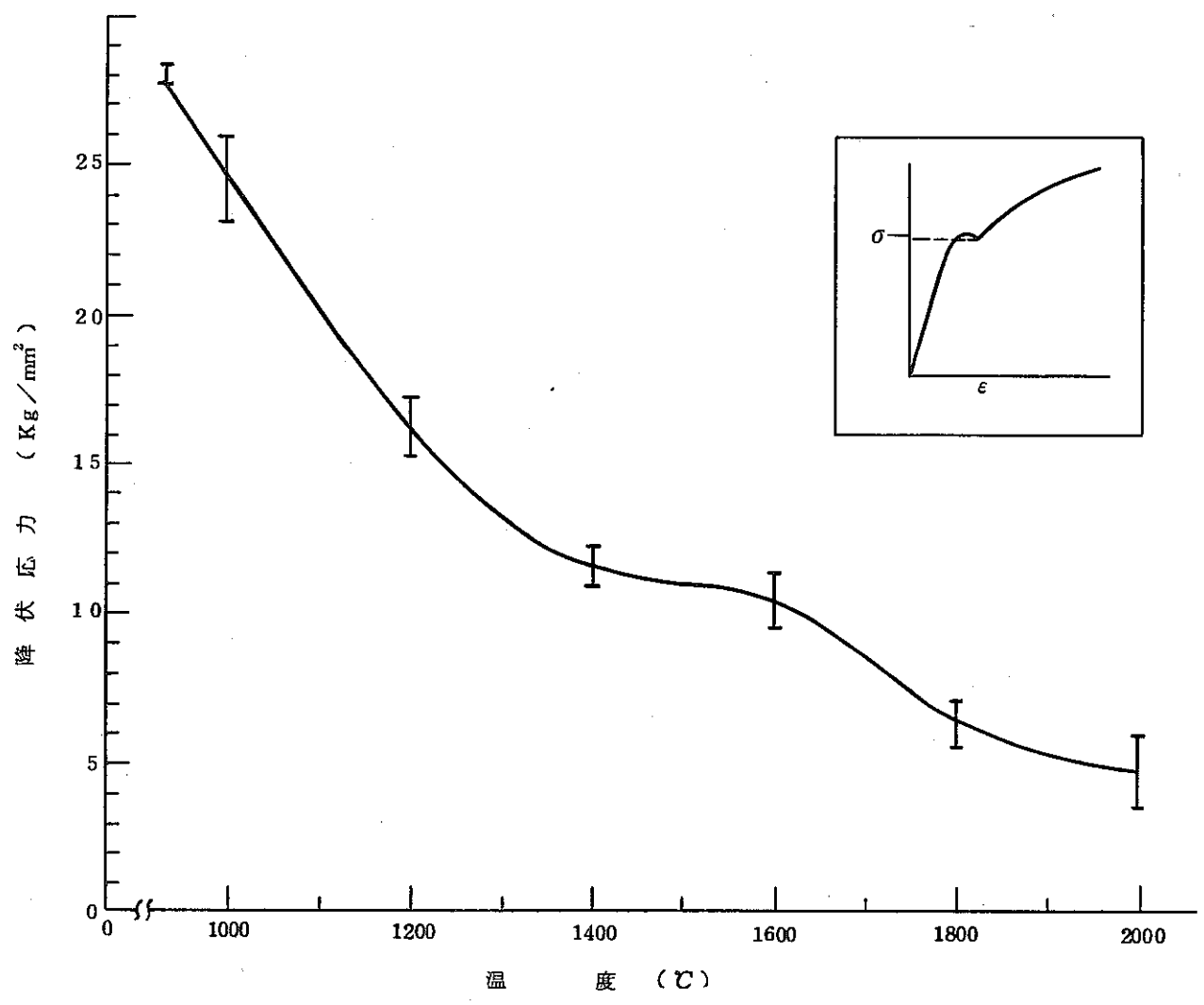
第1図 破壊応力値測定のための方法



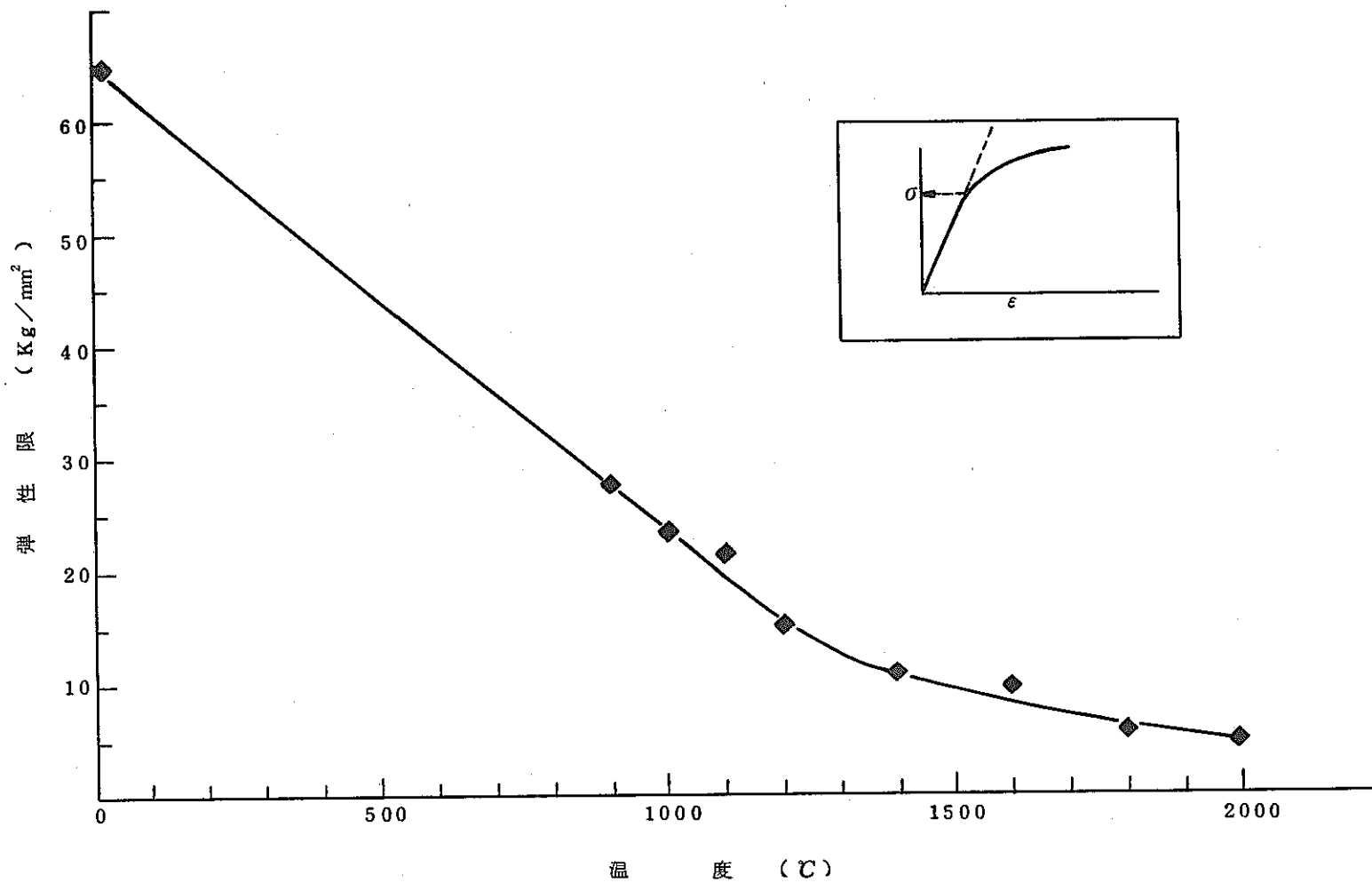
第2図 高温圧縮試験炉の概略図(インストロン型)



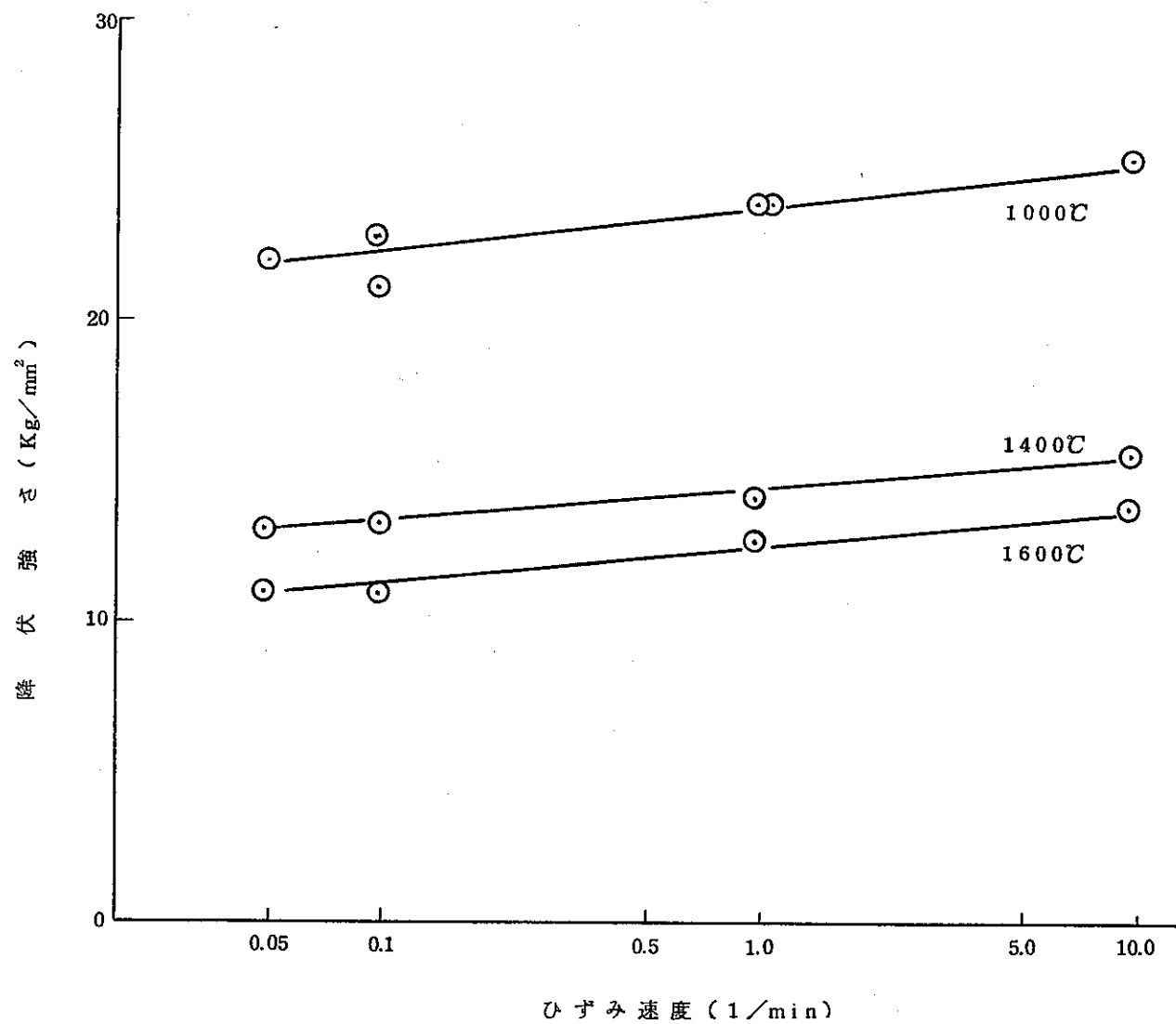
第3図 $\text{UO}_{2.01}$ ペレットの真の応力-ひずみ曲線(ひずみ速度 $\dot{\epsilon} = 0.1/\text{min}$)



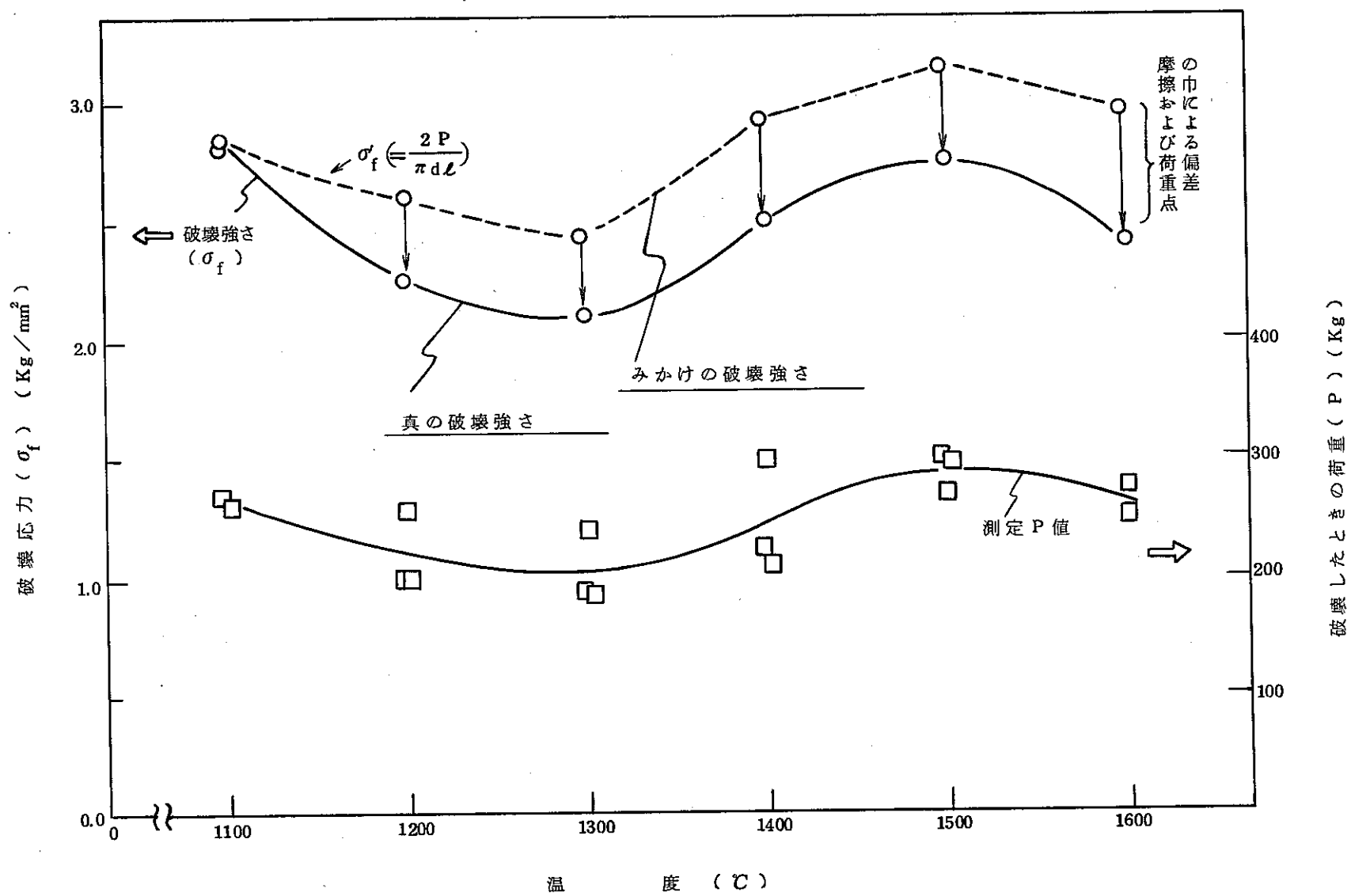
第4図 UO₂ の降伏応力値の温度依存性 (ひずみ速度 $\dot{\epsilon} = 0.1 \text{ min}^{-1}$)



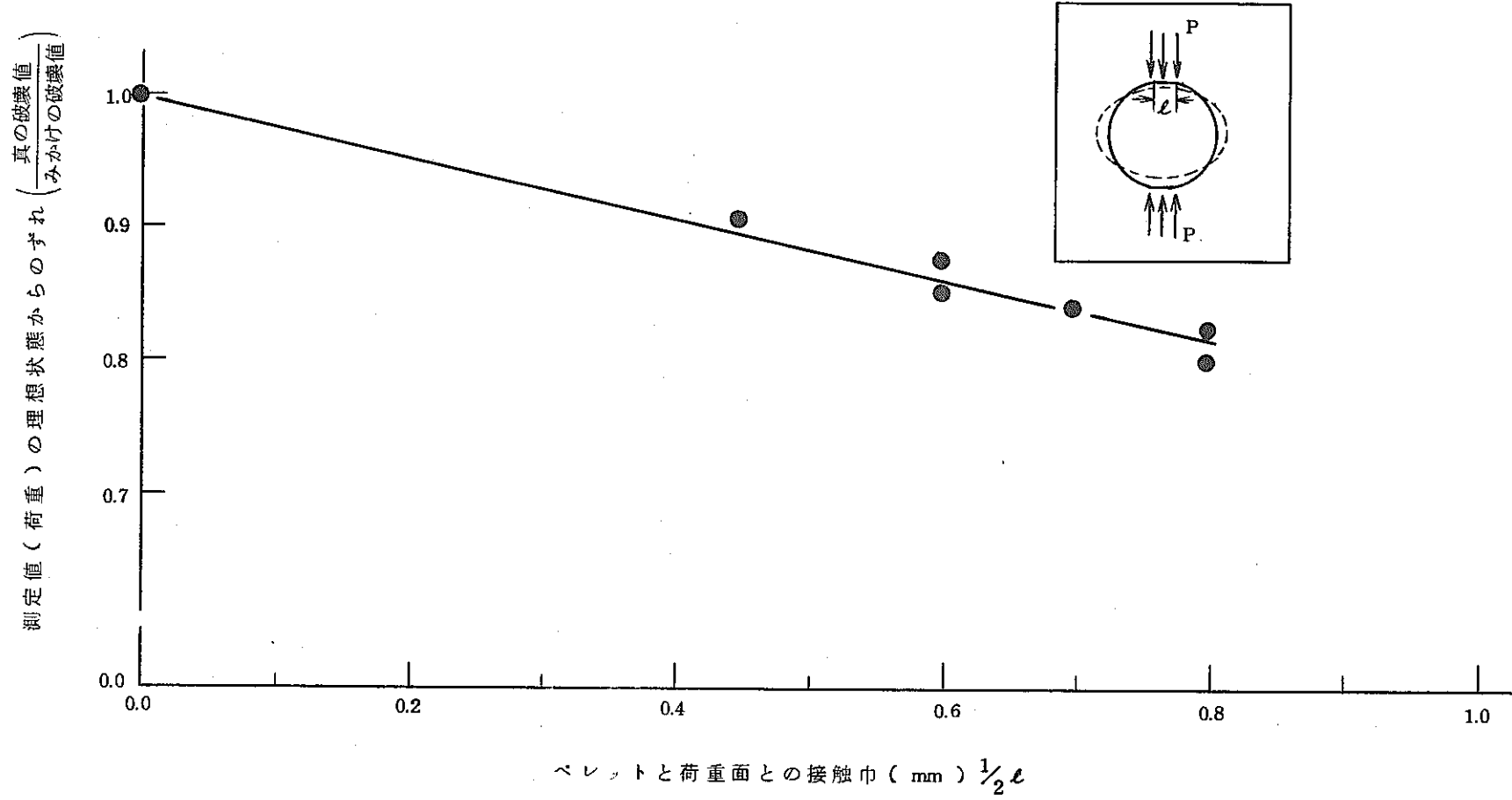
第5図 UO_2 の弾性限の温度依存性 (ひずみ速度 $\dot{\epsilon} = 0.1 \text{ min}^{-1}$)



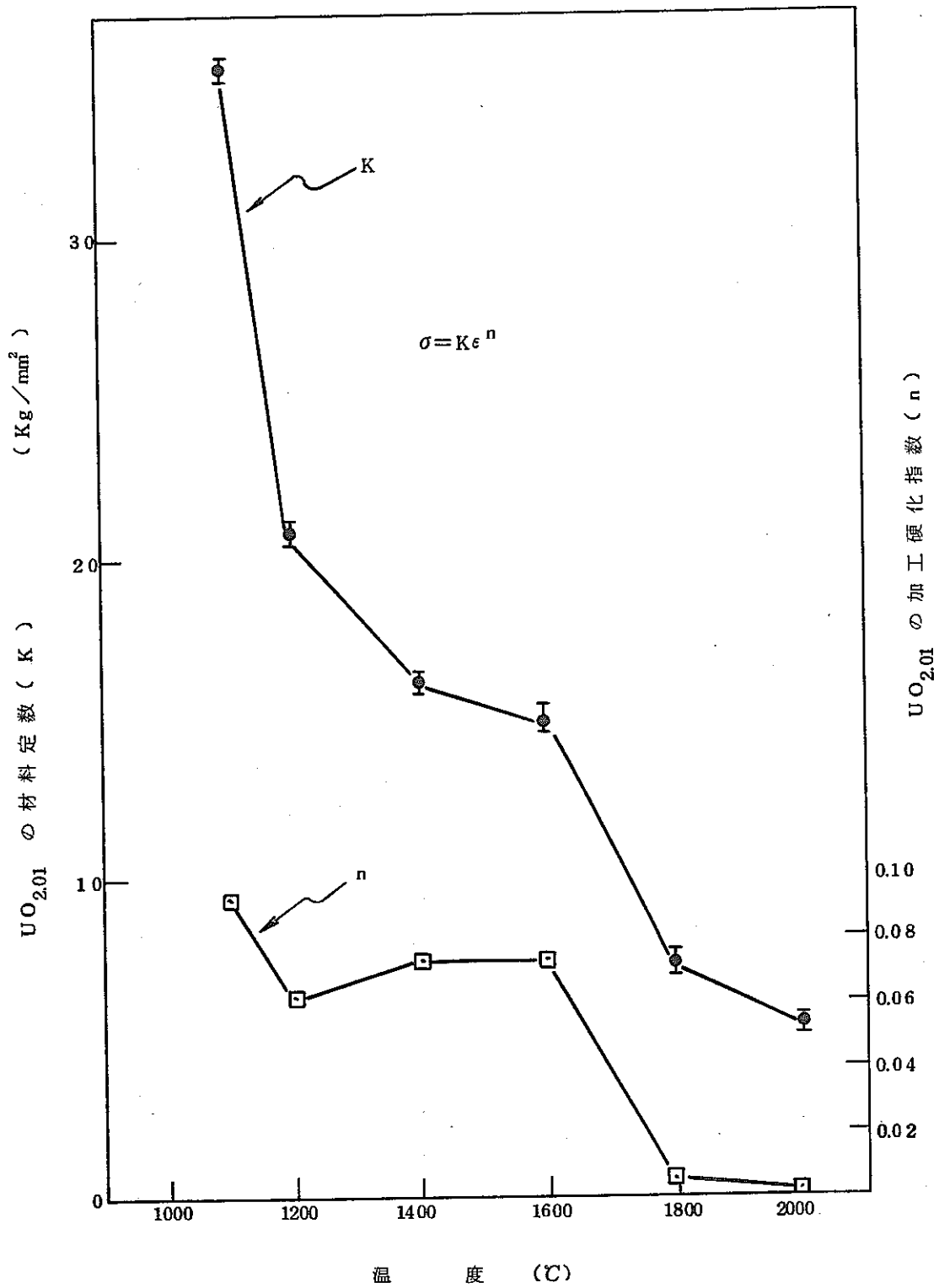
第6図 UO_2 の降伏強さのひずみ速度依存性



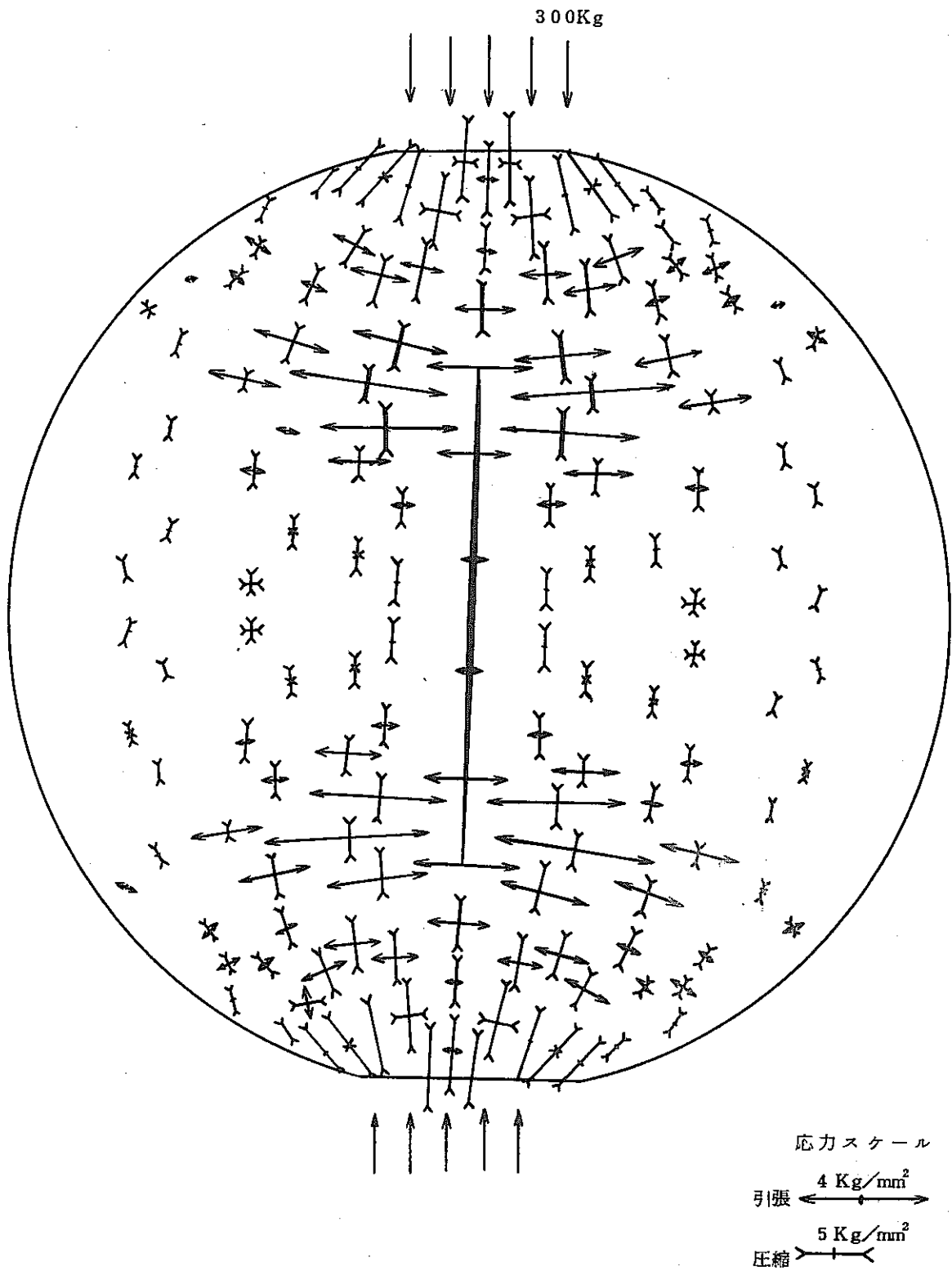
第7図 $\text{UO}_{2.01}$ ペレットの高温における引張破壊値
(ひずみ速度 0.2 min^{-1})



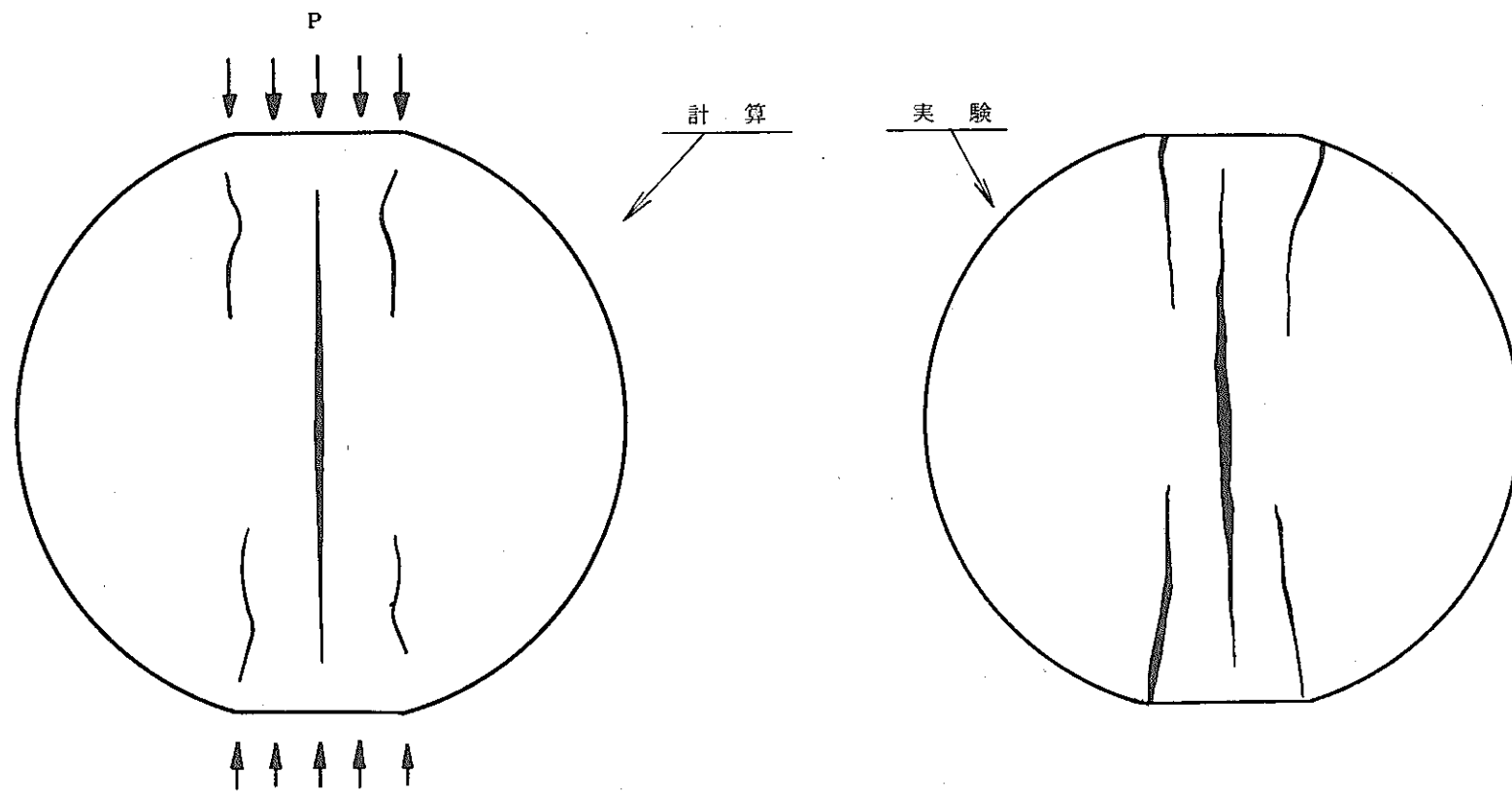
第8図 理論式による圧裂強度の真の値からのずれ



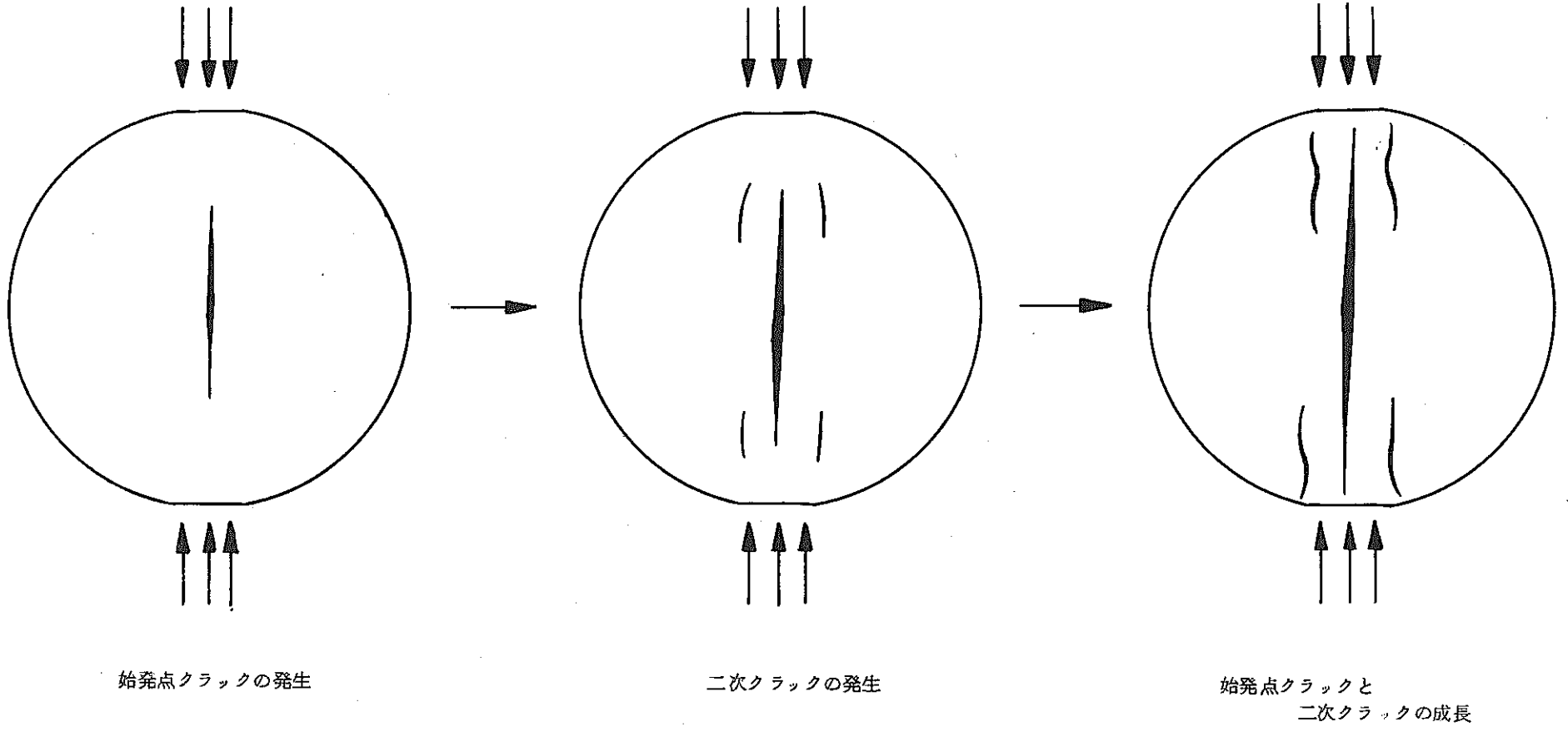
第9図 $\text{UO}_{2.01}$ の塑性域での応力-ひずみ関係
 (ひずみ速度 $\dot{\epsilon} = 0.1 \text{ min}^{-1}$)



第10図 UO_2 ベレットの一次クラック発生後の応力分布
 (有限要素法による計算結果)



第11図 計算によるクラックの発生の推測と実験との比較



第 1 2 図 計算によるクラックの発生と成長