PNC TN841—82—58

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]

社内一般

核燃料物性データ集（II）

Physical and Chemical Properties of Nuclear Fuels(II)

１９８２年１０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

Ⓐ

社　内　一　般
PNCTN841-82-58
１９８２年　１０月

登録区分
2001. 6. 6
変更表示

核燃料物性データ集（II）

Physical and Chemical Properties of Nuclear Fuels(II)

実施責任者　金子　洋光*
報　告　者　長井修一朗**，立花　利道**
山口　俊弘***，八登　唯夫****
小無　健司*****

目　的　ＦＢＲ，ＡＴＲの設計および燃料照射挙動解析のため，必要とする国内外の燃料物性に関するデータの整理，評価

要　旨　核燃料物性データ集（ＰＮＣＴ８４１－７９－１５）に報告されている物性データの内で，特に，重要と考えられる項目について，データの整理，評価を行い，推奨値，推奨式を決定した。

＊　東海事業所プル燃部製造１課
＊＊　大洗工学センター燃材部ＡＧＳ
＊＊＊　東海事業所プル燃部品質管理課
＊＊＊＊　三菱金属
＊＊＊＊＊　東海事業所プル燃部設計・開発課

目　　次

序 …… 1

第Ⅰ章 推奨値及び推奨式 …… 2

Ⅰ-1 FUEL

Ⅰ-1.1 Physical and Thermal Properties

Ⅰ-1.1.1 Density …… 3

Ⅰ-1.1.2 Melting Point …… 5

Ⅰ-1.1.3 Specific Heat Capacity …… 8

Ⅰ-1.1.4 Thermal Conductirity …… 14

Ⅰ-1.1.5 Thermal Expansion …… 18

Ⅰ-1.2 Metallugical Properties

Ⅰ-1.2.1 Deneification …… 21

Ⅰ-1.3 Mechanical Properties

Ⅰ-1.3.1 Creep …… 23

Ⅰ-1.3.2 Young's Modulus …… 27

Ⅰ-1.3.3 Poisson's Ratio …… 31

Ⅰ-2 FUEL-CLADDING

Ⅰ-2.1 FCCI (Fuel-Cladding Chenrical Interaction) …… 33

第Ⅱ章 選定理由 …… 36

Ⅱ-1 FUEL

Ⅱ-1.1 Physical and Thermal Properties

Ⅱ-1.1.1 Density …… 37

Ⅱ-1.1.2 Melting Point …… 41

Ⅱ-1.1.3 Specific Heat Capacity …… 45

Ⅱ-1.1.4 Thermal Conductivity …… 59

Ⅱ-1.1.5 Thermal Expansion …… 70

Ⅱ-1.2 Metallugical Properties

Ⅱ-1.2.1 Densification …… 77

Ⅱ-1.3 Mechanical Properties

Ⅱ-1.3.1 Creep …… 83

Ⅱ-1.3.2 Young's Modulus …… 89

Ⅱ-1.3.3 Poisson's Ratio …… 94

Ⅱ-2 FUEL-CLADDING

Ⅱ-2.1 FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interaction) 96

序

核燃料物性データ集（PNCT 841−79−15）では，現在，報告されている国内外の物性データについて，収集及び整理を行った。ここでは，そのデータの中でＦＢＲ，ＡＴＲの設計及び燃料照射挙動解析上特に，重要と考えられる項目について，検討，評価を行った。

第Ⅰ章では，各項目ごとに推奨値，推奨式を示し，第Ⅱ章では，それらの選定理由を示す。

第Ⅰ章　推奨値及び推奨式

I−1.1.1

項　目　Density　（1／1）

対　象　Mixed Oxide

$$D\,(g/cm^3) = \frac{4}{NA^3}\left\{(1-x)M_{UO_2} + x \cdot M_{PuO_2}\right\}$$

Where

N：Avogadro Number（6.022×10^{23}）

x：Mole fraction of PuO_2

M_{UO_2}，M_{PuO_2}：Molecular weight of UO_2 and PuO_2（g／mole）

A：Lattice constant of $(Pux\ U_{1-x})O_2$ system

$=(5.470-0.074\cdot x)\times10^{-8}$ cm

担 当 者　長井修一朗

作成年月日　S．55.1.31

I−1.1.1

項　目　Density	(1／1)

対　象　Uranium Oxide

$D\,(g/cm^3) = M_{UO_2} / 24.640$

Where

M_{UO_2} : Molecular weight of UO_2 (g／mole)

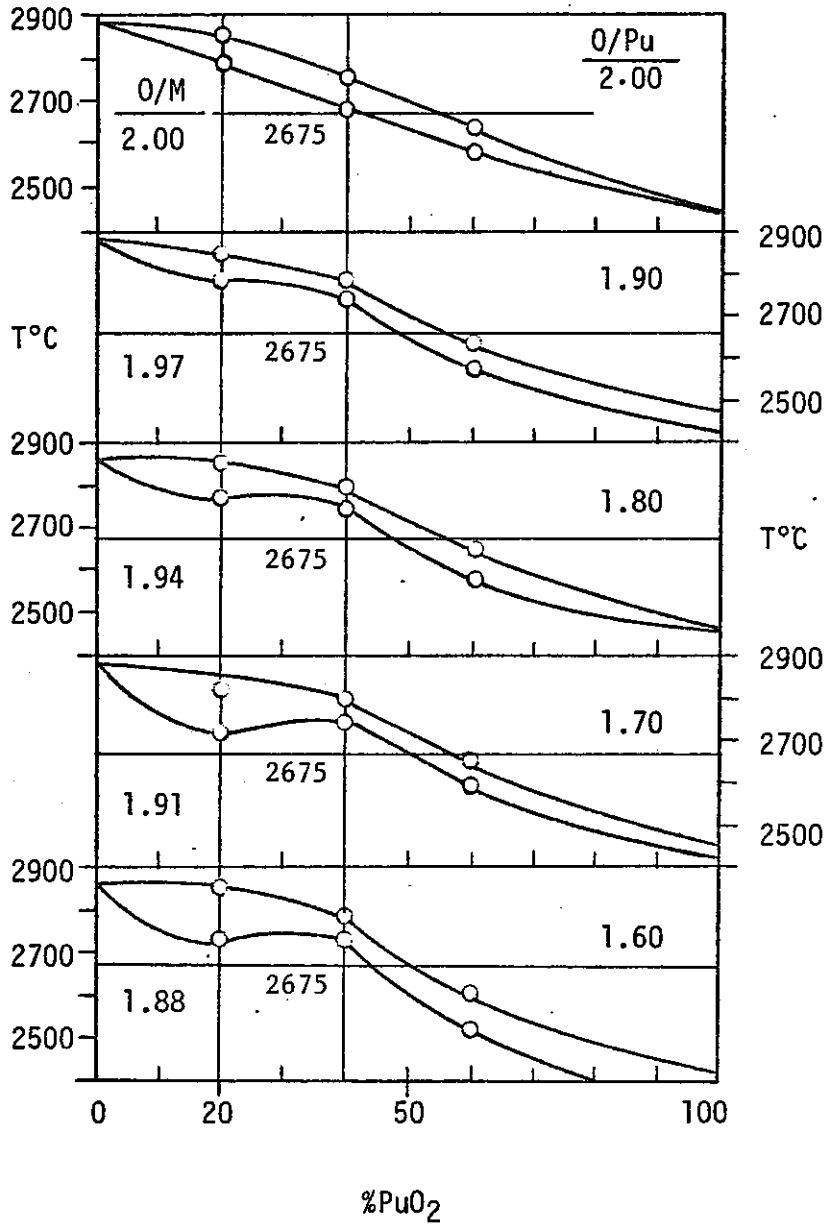
担 当 者　長井修一朗

作成年月日　S 55.1.31

I−1.1.2

項　目　Melting Point　　（1／1）

対　象　Mixed Oxide



Melting points of U-Pu-O system

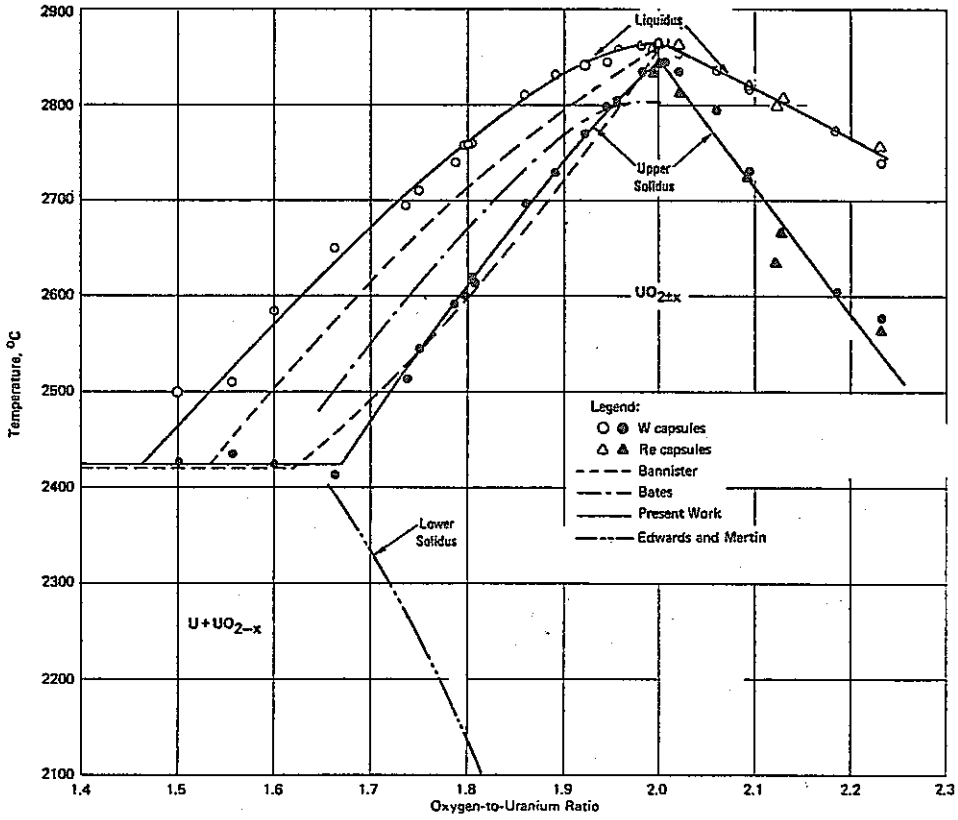
担 当 者　小無健司

作成年月日　S55.1.31

I−1.1.2

項　目　Melting Point　　(1／2)

対　象　Uranium Oxide



Partial phase diagram for urania from $UO_{1.46}$ to $UO_{2.23}$.

Melting Point of $UO_{2.00}$＝2865±15℃

担 当 者　　小無健司

作成年月日　　S 55.1.31

項　目　Melting Point　　(2／2)

Melting points of U-O system

Pre-test O／U	Post-test O／U	Melting points Solidus (℃)	Liquidus (℃)
2.23	—	2564	2758
2.23	—	2578	2740
2.184	2.160	2605	2772
2.13	2.109	2667	2805
2.12	2.103	2634	2798
2.095	2.092	2730	2815
2.095	2.050	2728	2817
2.058	2.058	2794	2836
—	2.022	2812	2863
2.019	2.009	2836	2852
1.998	1.998	2845	2865
1.997	2.008	2845	2865
1.997	2.000	2847	2862
1.993	1.995	2834	2860
1.980	1.990	2832	2860
1.980	1.985	2833	2860
1.956	1.955	2803	2857
1.943	1.943	2796	2845
1.920	1.930	2770	2840
1.890	1.929	2729	2832
1.856	1.861	2697	2810
1.809	1.795	2615	2760
1.803	1.849	2620	2760
1.793	1.809	2601	2758
1.75	1.803	2545	2710
1.790	1.759	2590	2740
1.736	1.736	2513	2695
1.662	1.689	2413	2650
1.60	—	2423	2584
1.556	—	2435	2510
1.50	1.593	2428	2498

I−1.1.3

項　目　Specific Heat Capacity　　(1／3)

対　象　Mixed Oxide

For solid $(U_{0.75}Pu_{0.25})O_{1.98}$

$$C_P = \frac{k_1 \theta^2 e^{\theta/T}}{T^2 (e^{\theta/T}-1)^2} + 2k_2 T + \frac{k_3 E_D}{RT^2} e^{-E_D/RT} \quad \cdots\cdots(1)$$

with T = °K (298−3000°K)

θ = 539°K

E_D = 40.1 kcal/mole

k_1 = 19.53 cal/mole °K

k_2 = 9.25×10^{-4} cal/mole °K

k_3 = 6.02×10^{6} cal/mole

R = 1.9872 cal/mole °K

or

$$C_P = 12.54 + 0.017T - 0.0117 \times 10^{-4} T^2 + 0.307 \times 10^{-8} T^3 \quad \cdots\cdots(2)$$

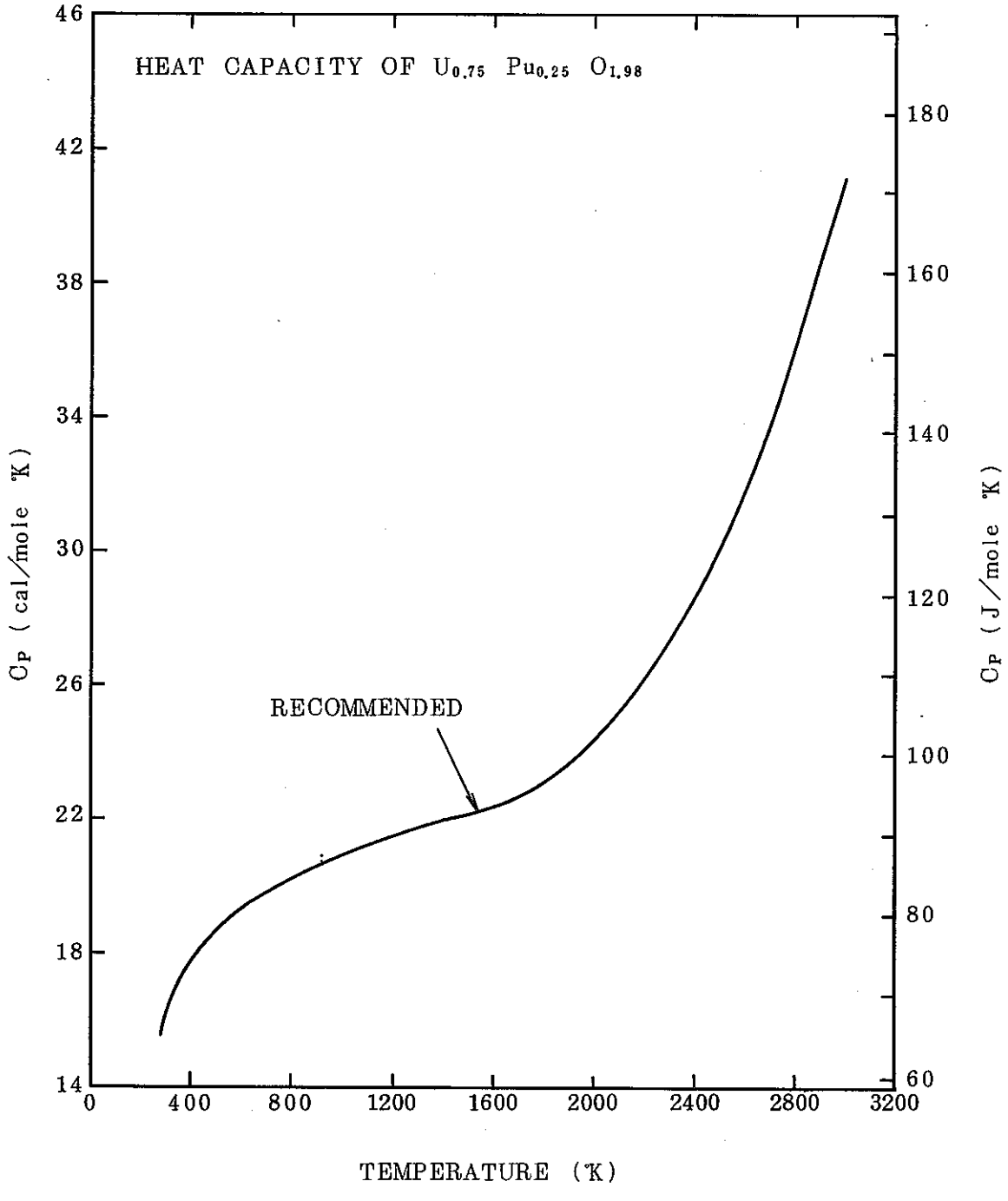
(298−3000°K)

担 当 者　八登唯夫

作成年月日　S55.1.31

I-1.1.3

項　目　Specific Heat Capacity　　(2／3)



項　目　Specific Heat Capacity　　(3／3)

Confidence Limits on the Calculated Heat Capacity for $U_{0.75}Pu_{0.25}O_{1.98}$

Temperature (°K)	95% Confidence Limits Heat Capacity
298	0
500	±2%
1000	±2%
1500	±2%
2000	±2%
2500	±3%
3000	±14%

I−1.1.3

項　目　Specific Heat Capacity　　(1／3)

対　象　Uranium Oxide

For solid UO_2

$$C_P = \frac{k_1 \theta^2 e^{\theta/T}}{T^2 (e^{\theta/T} - 1)^2} + 2k_2 T + \frac{k_3 E_D}{RT^2} e^{-E_D/RT} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots \quad (1)$$

Where : C_P = cal／mole ℃

T = ℃ (298−3100℃)

θ = 535℃

E_D = 37.69 kcal／mole

k_1 = 19.14 cal／mole ℃

k_2 = 7.85×10^{-4} cal／mole $℃^2$

k_3 = 5.64×10^{-6} cal／mole

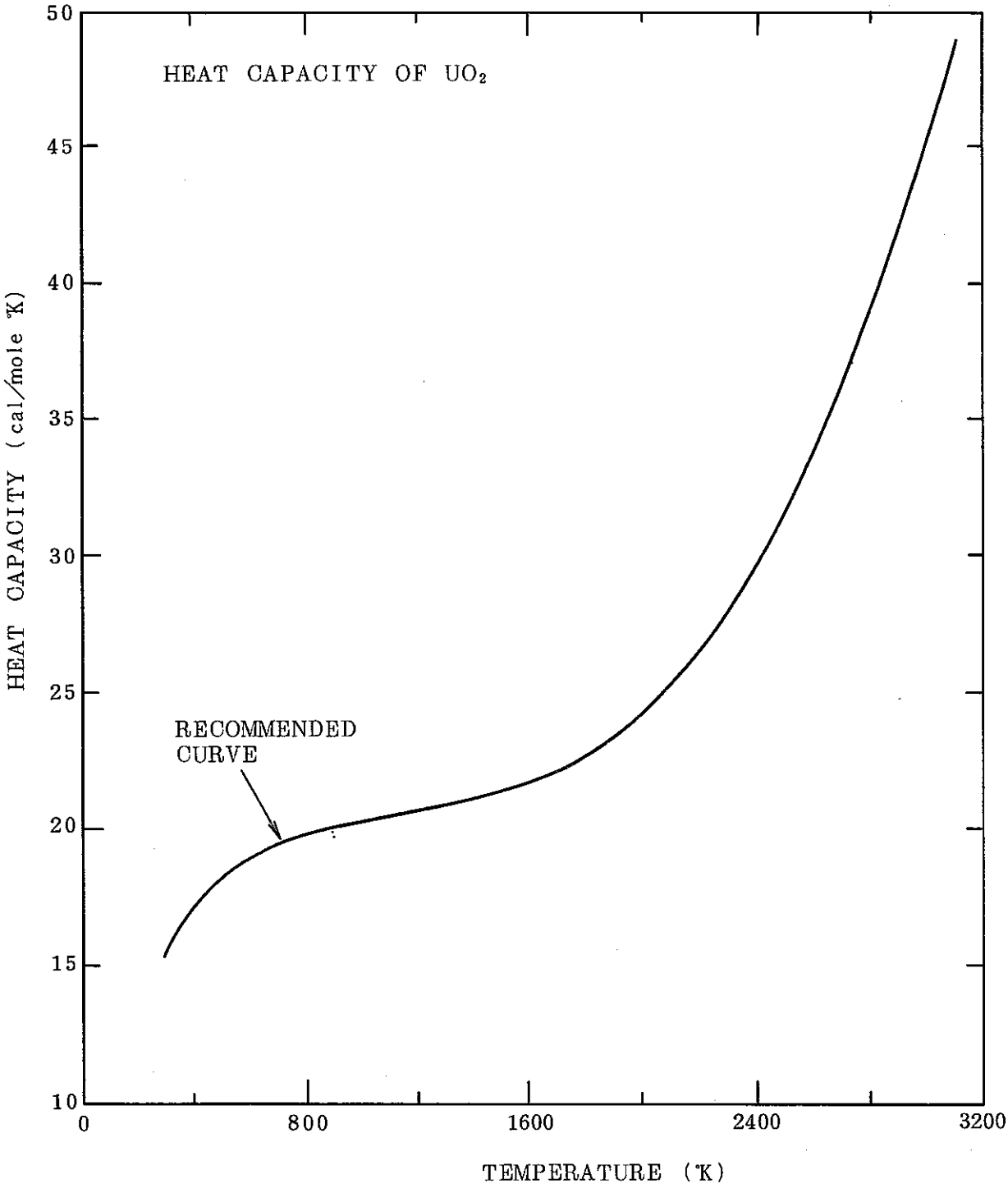
R = 1.9872 cal／mole ℃

担 当 者　八登唯夫

作成年月日　S 55.1.31

I-1.1.3

項　目　Specific Heat Capacity　　(2／3)



項　目　Specific Heat Capacity　　(3／3)

Confidence Limits on the Calculated Heat Capacity for UO_2

Temperature (°K)	95% Confidence Limits[(a)] Heat Capacity
298	0
500	±2%
1000	±2%
1500	±2%
2000	±2%
2500	±3%
3000	±6%
3100	±10%

(a) ±2 Standard Deviations

I−1.1.4

項　目　Thermal Conductivity　（1／2）

対　象　Mixed Oxides

$$K = \left[\frac{D}{1+\beta(1-D)}\right]\frac{2.91}{7.69+407(2.00-O/M)+0.0616(1+0.200Q)T'}$$

$$+5.2997\times10^{-3}T\left[\exp\left(\frac{-13358}{T}\right)\right]\left[1+0.107\left(\left[\frac{13358}{T}\right]+2\right)^{-2}\right]$$

Where

K ＝ Thermal Conductivity (W／cm・K)

D ＝ Fractional of theoretical density

T ＝ Fuel Temperature

T' ＝ Fuel Temperature　for ＜1800°K

＝ −3240＋(4.6−0.001T)T　for 1800～2300°K

＝ 2050　for ＞2300°K

β ＝ 4.72−0.00294T　for ＜1800°K

＝ 20.03−(0.02003−4.770×10^{-6}T)T　for 1800～2100°K

＝ −1　for ＞2100°K

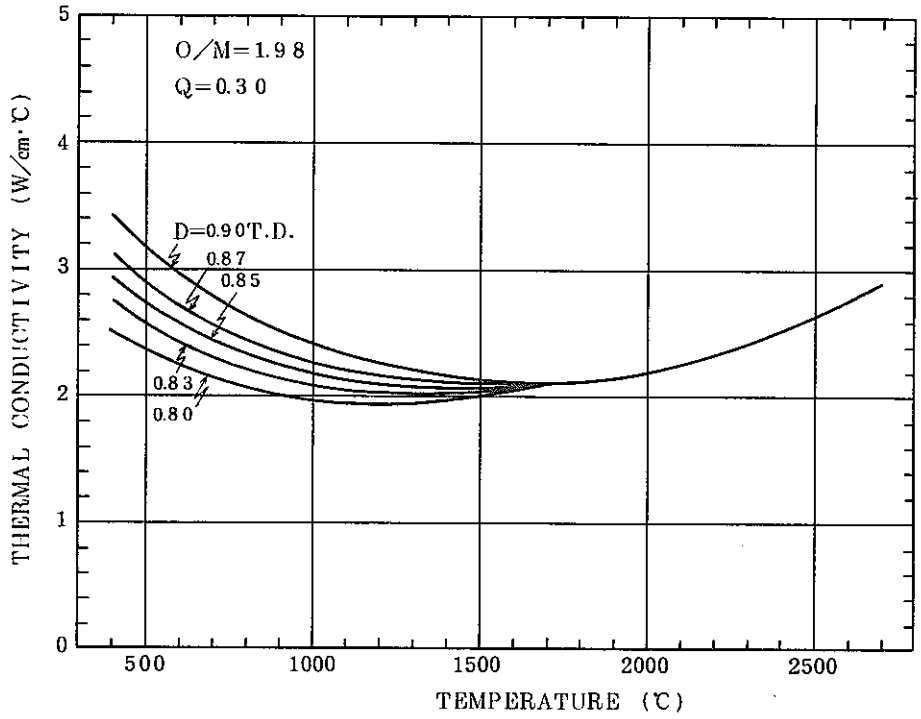
Q ＝ PuO_2 濃度

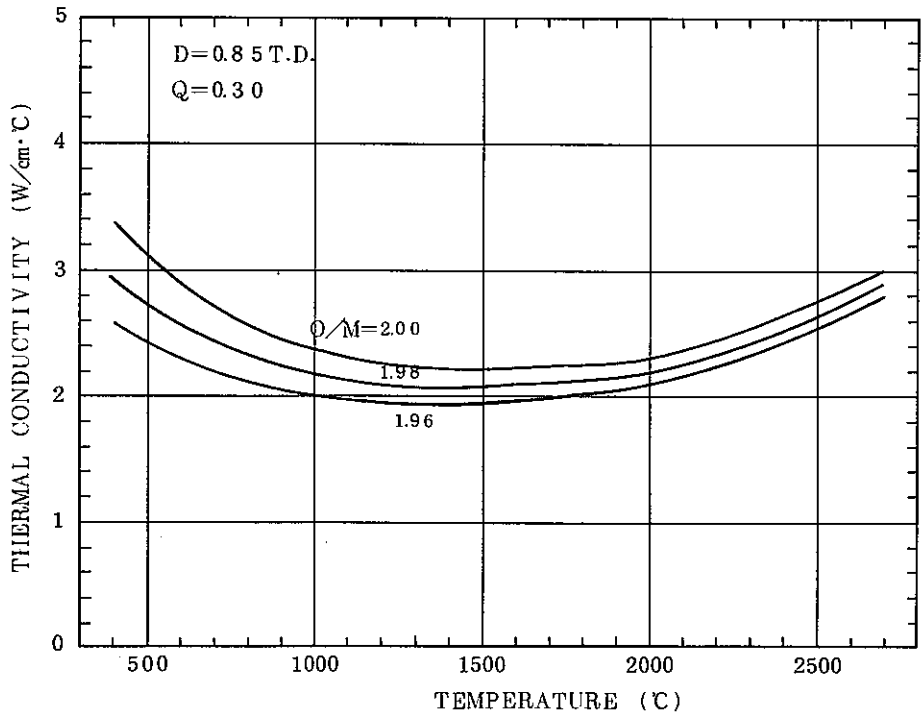
担 当 者　山口俊弘，小無健司

作成年月日　S55.1.31

I−1.1.4

項　目　Thermal Conductivity　　(2／2)





I-1.1.4

項 目 Thermal Conductivity (1/2)

対 象 Uranium Oxide

$$K = \left[\frac{D}{1+\beta(1-D)}\right]\frac{2.79}{7.69+407(2.00-O/U)+0.0616T'}$$

$$+5.2997\times10^{-3}\,T\left[\exp\left(\frac{-13358}{T}\right)\left[1+0.107\left(\left[\frac{13358}{T}\right|+2\right)^{2}\right]\right]$$

Where

K = Thermal Conductivity (W/cm·K)

D = Fractional of Theoretical Density

T = Fuel Temperature

T′ = Fuel Temperature for <1800K

= $-3240+(4.6-0.001T)T$ for 1800~2300K

= 2050 for >2300K

β = $4.72-0.00294T$ for <1800K

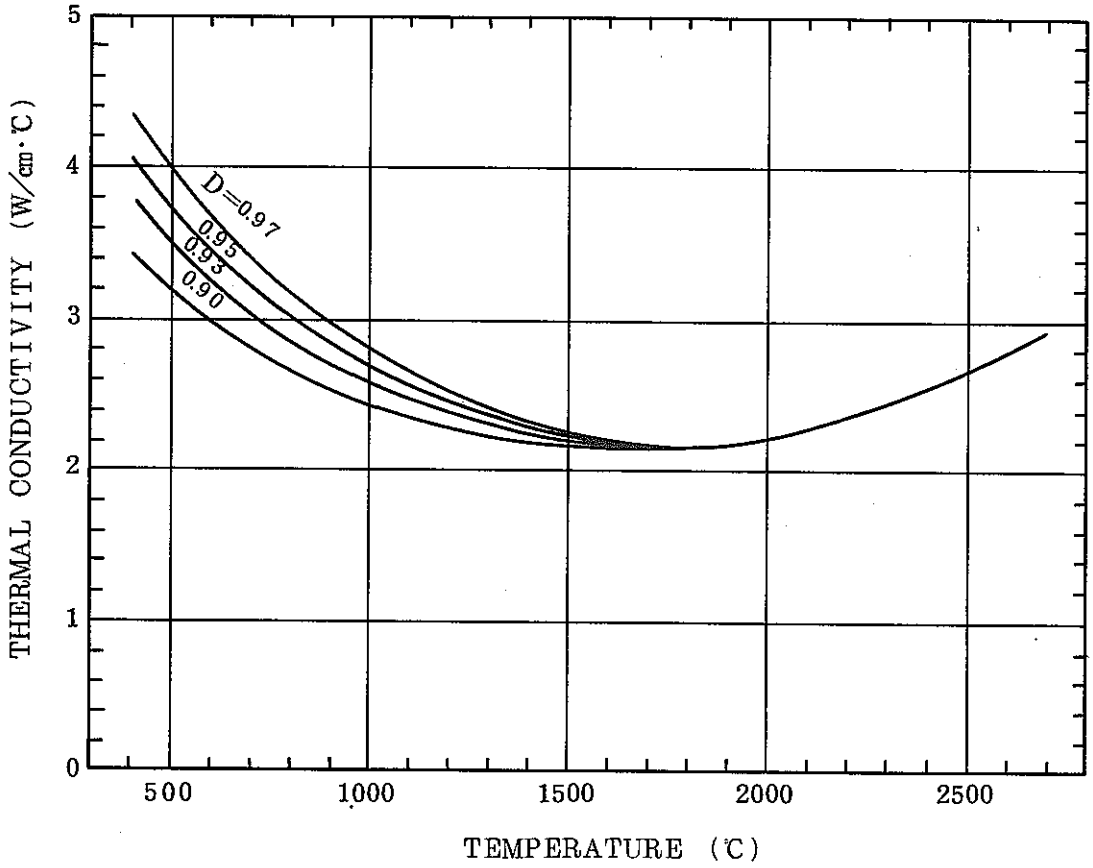
= $20.03-(0.02003-4.770\times10^{-6}T)T$ for 1800~2100K

= -1 for >2100K

担 当 者 山口俊弘，小無健司

作成年月日 S55.1.31

項　目　Thermal Conductivity　　(2／2)



I−1.1.5

項　目　Thermal Expansion　（1／2）

対　象　Mixed Oxides

$$\alpha_{(Pu,U)O_2}=\{X\cdot\alpha_{PuO_2}+(1.0-X)\cdot\alpha_{UO_2}\}\cdot\beta$$

where

$\alpha_{(Pu,U)O_2}$＝（Pu，U）O_2 の熱膨張率（$℃^{-1}$）

α_{PuO_2}＝PuO_2 の熱膨張率（$℃^{-1}$）

$=8.496\times10^{-6}+4.302\times10^{-9}T+11.14\times10^{-16}T^2$

α_{UO_2}＝UO_2 の熱膨張率（$℃^{-1}$）

$=7.107\times10^{-6}+5.162\times10^{-9}T+3.42\times10^{-13}T^2$

X＝PuO_2 の重量比

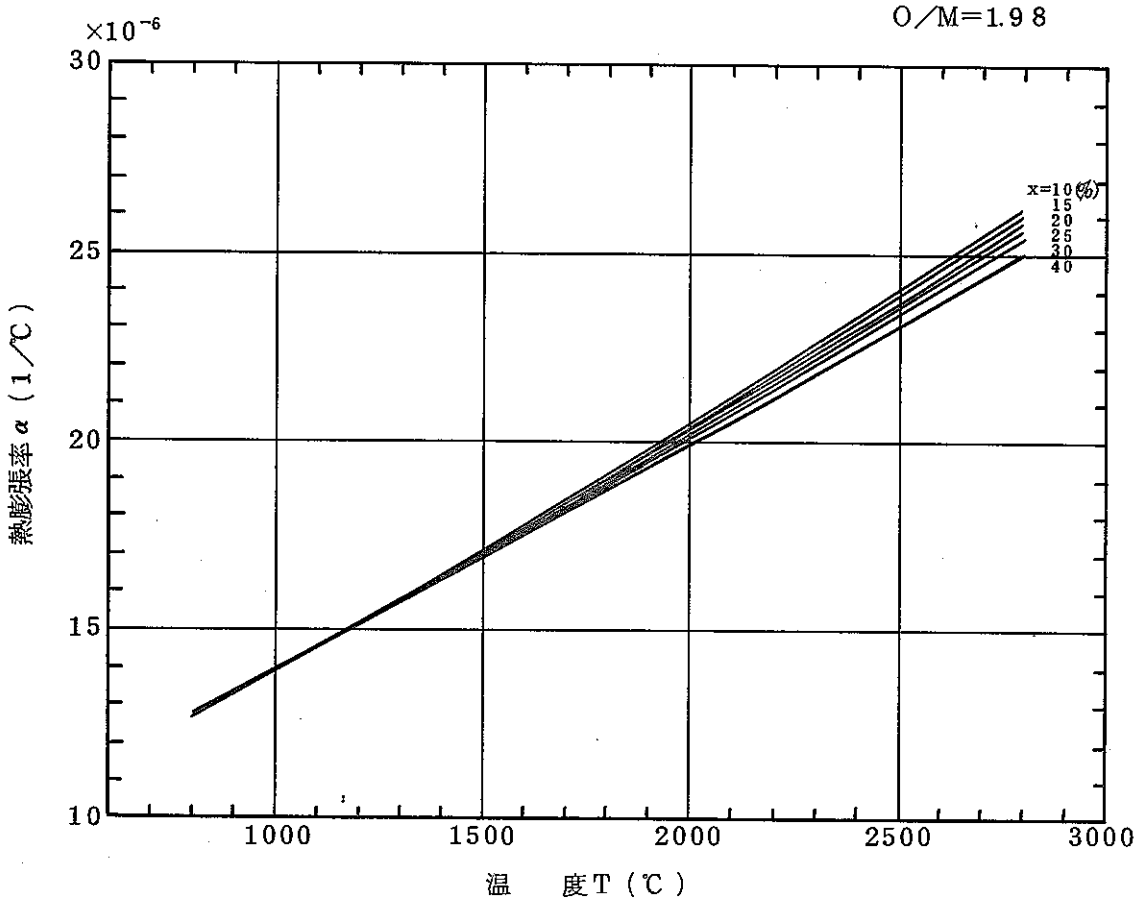
T＝温　度（℃）

担 当 者　山口俊弘，小無健司

作成年月日　S55．1．31

I−1.1.5

項　目　Thermal Expansion　（2／2）



I−1.1.5

項　目　Thermal Expansion　（1／1）

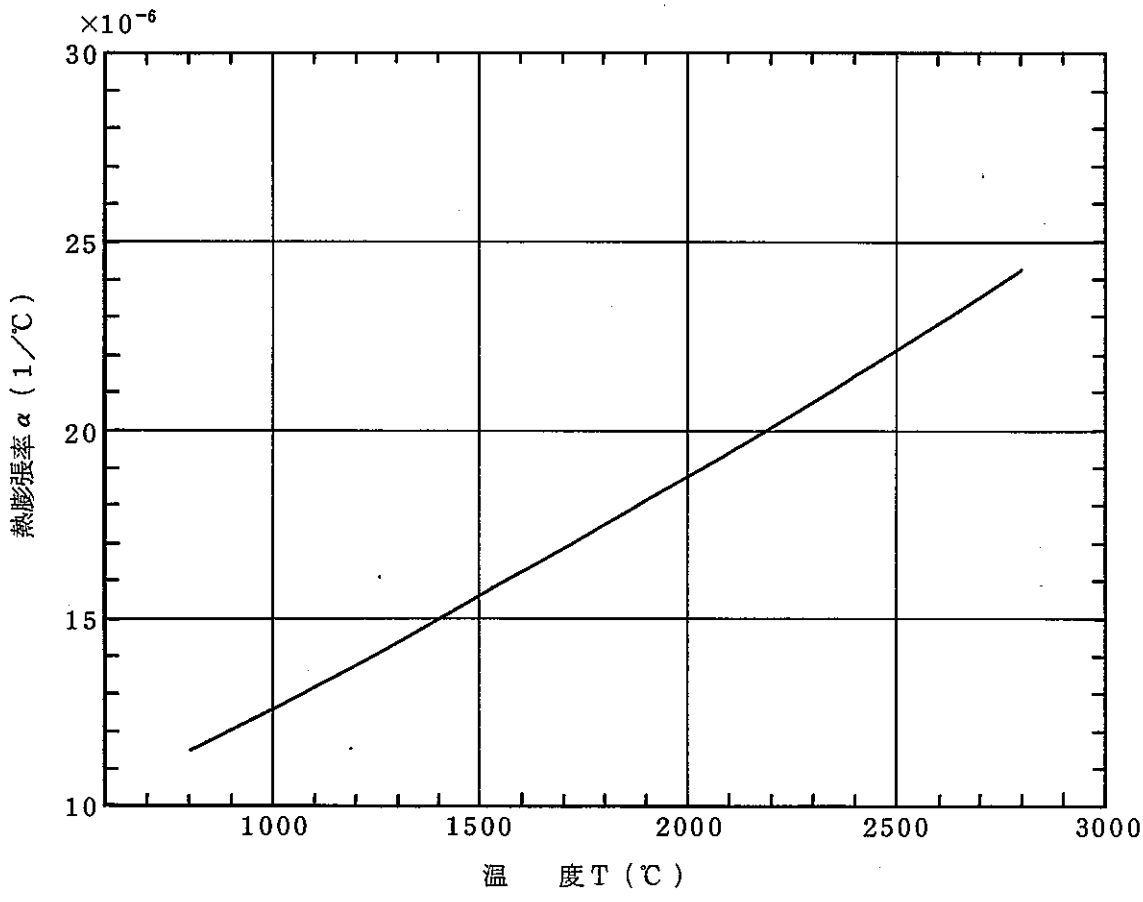
対　象　Uranium Oxides

$$\alpha_{UO_2} = 7.107\times10^{-6} + 5.162\times10^{-9}\,T + 3.42\times10^{-13}\,T^2$$

where

α_{UO_2} = UO_2 の熱膨張率（$℃^{-1}$）

T＝温　　度（℃）



担 当 者　山口俊弘

作成年月日　S55．1．31

I−1.2.1

項　目　Densification　（1／1）

対　象　Mixed Oxide

For pellet that have a resintering density change △D (%) (1700℃ 24hr) of less than 4% of theoretical density (T.D.), the in-reactor density change △ρ (%) as a function of burnup BU may be obtained as the equation (1)

$$(1)\quad \begin{cases} \triangle\rho = 0 & BU \leqq 5\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \dfrac{1}{2}\triangle D \log\left(\dfrac{B.U}{5}\right) & 5\,MWd/MtU \leqq BU \leqq 500\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \triangle D & BU \geqq 500\,MWd/MtU \end{cases}$$

For pellets exhibiting a resintering density change in excess of 4% T.D. the in-reactor density change may be oftained as the equation (2)

$$(2)\quad \begin{cases} \triangle\rho = 0 & BU \leqq 20\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \dfrac{1}{2}\triangle D \log\left(\dfrac{B.U}{20}\right) & 20\,MWd/MtU \leqq BU \leqq 2000\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \triangle D & BU \geqq 2000\,MWd/MtU \end{cases}$$

担 当 者　小無健司

作成年月日　S55.1.31

I-1.2.1

項 目 Densification (1/1)

対 象 Uranium Oxide

For pellet that have a resintering deneity change △D (%) (1700℃ 24hr) of lees than 4% of theoretical density (T.D.), the in-reactor density change △ρ (%) as a function of burnup BU may be obtained as the equation (1)

$$(1)\begin{cases} \triangle\rho = 0 & BU \leqq 5\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \dfrac{1}{2}\triangle D \log\left(\dfrac{B.U}{5}\right) & 5\,MWd/MtU \leqq BU \leqq 500\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \triangle D & BU \geqq 500\,MWd/MtU \end{cases}$$

For pellets exhibiting a resintering density change in excees of 4% T.D. the in-reactor density change may be obtained as the equation (2)

$$(2)\begin{cases} \triangle\rho = 0 & BU \leqq 20\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \dfrac{1}{2}\triangle D \log\left(\dfrac{B.U}{20}\right) & 20\,MWd/MtU \leqq BU \leqq 2000\,MWd/MtU \\ \triangle\rho = \triangle D & BU \geqq 2000\,MWd/MtU \end{cases}$$

担 当 者 小無健司

作成年月日 S55.1.31

I−1.3.1

項　目　Creep　（1／2）

対　象　Mixed Oxide

$$\dot{\varepsilon}=[A\cdot\sigma\exp(-100.000/RT)+B\cdot\sigma^{4.5}\exp(-140.000/RT)]\beta+CF\sigma$$

$\dot{\varepsilon}$：定常クリープ歪速度（I／hr）

A：3.1×10^{7} exp〔33.3（I−D）〕exp（3.56x）／G^{3}

B：4.37×10^{-4} exp〔10.3（I−D）〕exp（3.56x）

C：1.28×10^{-23}

σ：応　力（psi 1.000〜10.000）

R：1.987（cal／mole ℃）

T：温　度（℃）

D：理論密度（0.88〜0.95）

G：初期平均結晶粒径（μ，4〜35）

x：プルトニウム含有量比（Pu／（Pu＋U），0.2〜0.3）

$\dot{F}$：核分裂速度（Fission／cm^{3} sec）

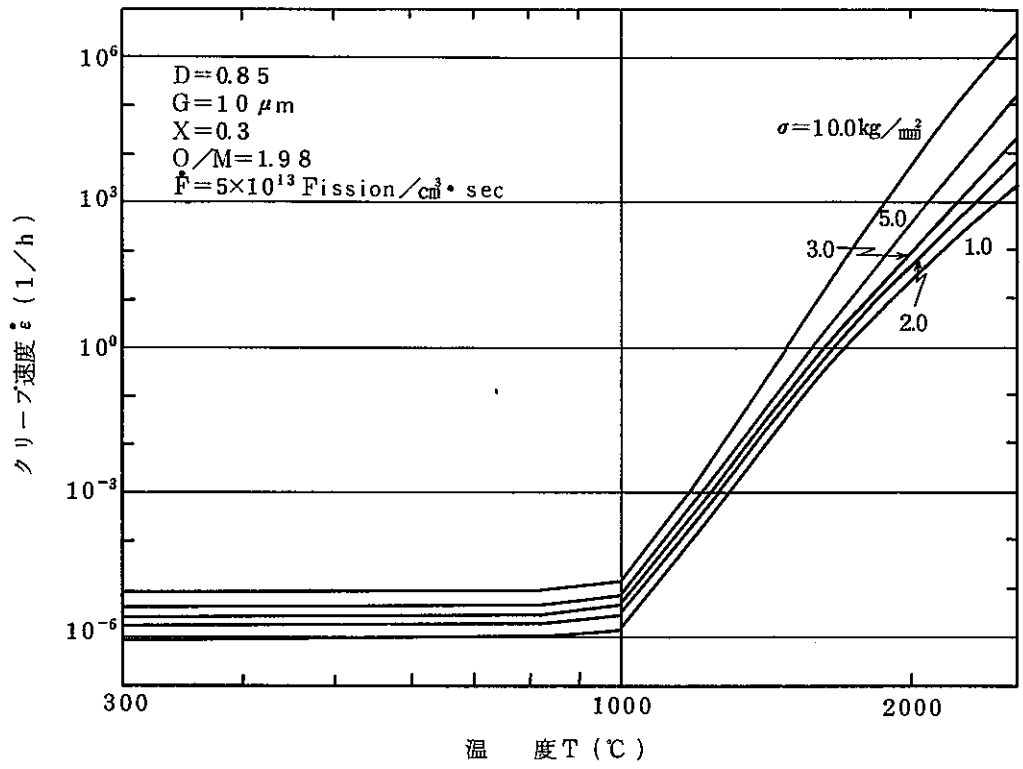
β：118（O／M−1.9415）（$1.95\leq OM\leq2.00$）

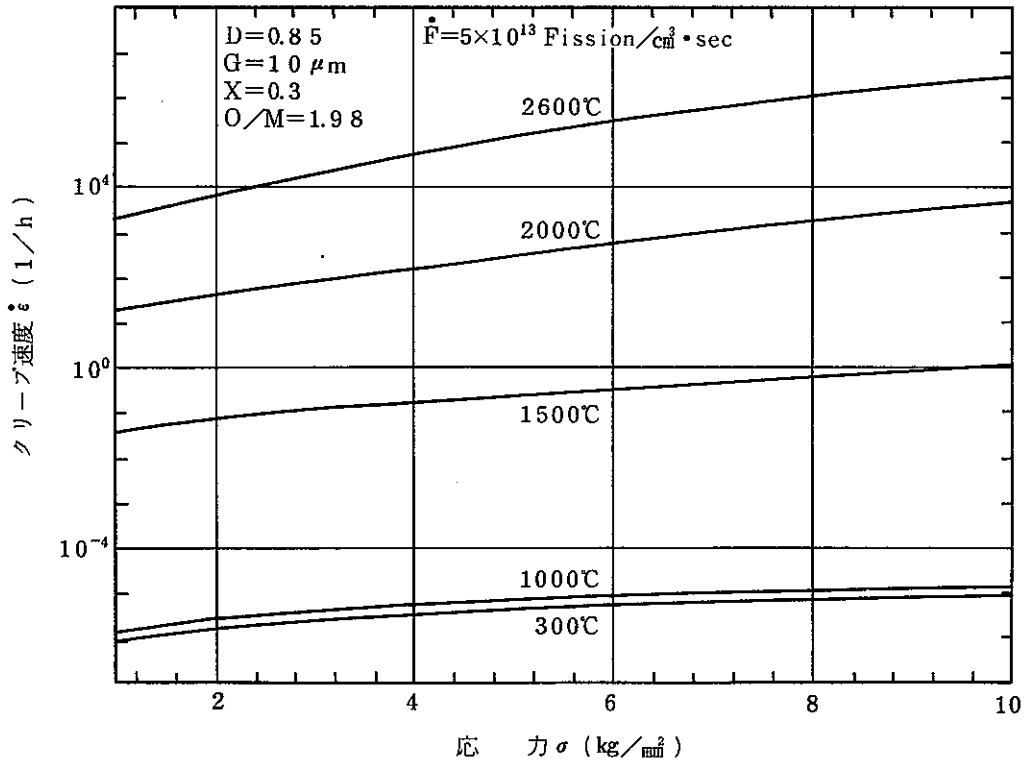
担当者　立花利道

作成年月日　S55．1．31

I−1.3.1

項　目　　Creep　　（2／2）





I−1.3.1

項　目　Creep　（1／2）

対　象　Uranium Oxide

$$\dot{\varepsilon} = \frac{(A_1 + A_2 \cdot \dot{F})\,\sigma \exp(-Q/RT)}{(A_3 + D)G^2} + \frac{A_4 \cdot \sigma^{4.5} \exp(-Q_2/RT)}{(A_5 + D)}$$

$$+ A_5 \cdot \sigma \cdot \dot{F} \exp(-Q_3/RT)$$

$\dot{\varepsilon}$ ：定常クリープ速度（1／hr）

A_1：9.728×10^{6}

A_2：3.24×10^{-12}

A_3：−87.7

A_4：1.376×10^{-4}

A_5：−90.5

A_6：9.24×10^{-28}

Q_1：90.000（cal／mole）

Q_2：132.000（cal／mole）

Q_3：5.200（cal／mole）

$\dot{F}$ ：核分裂速度（Fission／m^3・sec, $8.4 \times 10^{17} \sim 1.18 \times 10^{20}$）

σ ：応　力（psi, 1.000〜16.000）

T ：温　度（K, 713〜2.073）

D ：密　度（%, 92〜98）

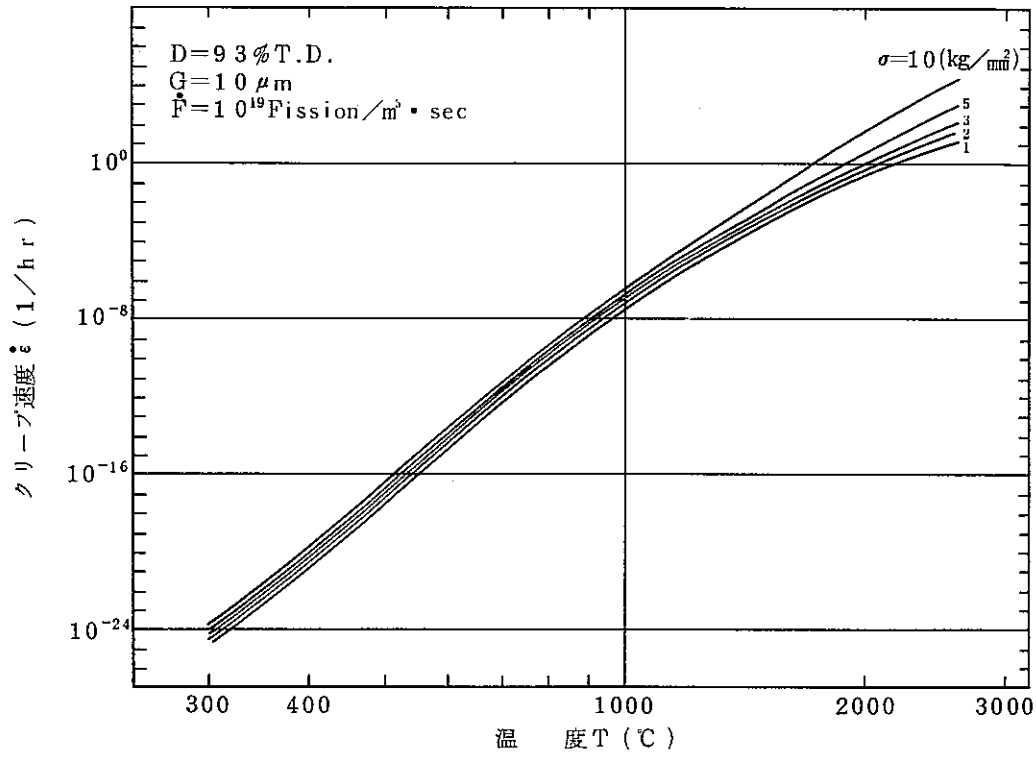
G ：初期結晶粒度（μ, 4〜35）

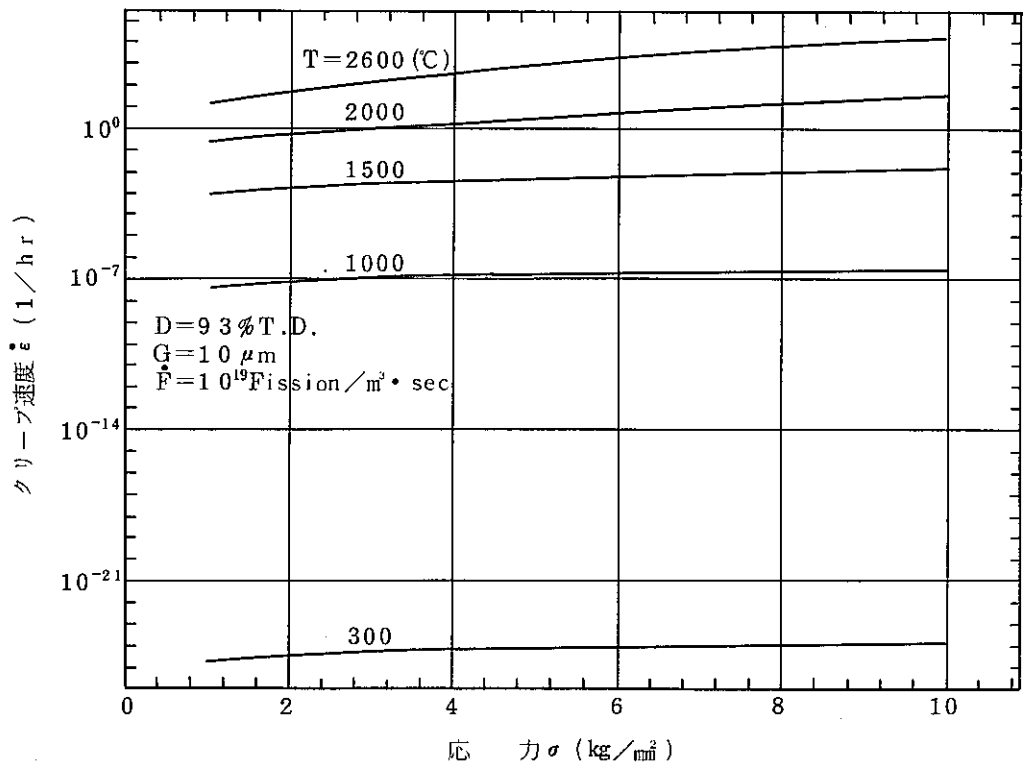
R ：気体定数（1.987 cal／g・mole, °K）

担当者　立花利道

作成年月日　S55．1．31

項　目　Creep　　（2／2）


D=93%T.D.
G=10μm
Ḟ=10^19Fission/m³・sec
σ=10(kg/mm²)
5
3
2
1
10^0
10^-8
10^-16
10^-24
300
400
1000
2000
3000
クリープ速度 ε̇ (1/hr)
温　度T (℃)


T=2600(℃)
2000
1500
1000
300
D=93%T.D.
G=10μm
Ḟ=10^19Fission/m³・sec
10^0
10^-7
10^-14
10^-21
0
2
4
6
8
10
クリープ速度 ε̇ (1/hr)
応　力σ (kg/mm²)

I−1.3.2

項　目　Young's Modulus　（1／2）

対　象　Mixed Oxide

$$E_T^{(U,Pu)O_2} = (20,789 - 0.929T - 6.636\times10^{-4}T^2)\times(2.03D - 1.03)$$

where

$E_T^{(U,Pu)O_2}$ = Young's Modulus of $(U,Pu)O_2$ at T℃ (kg/mm²)

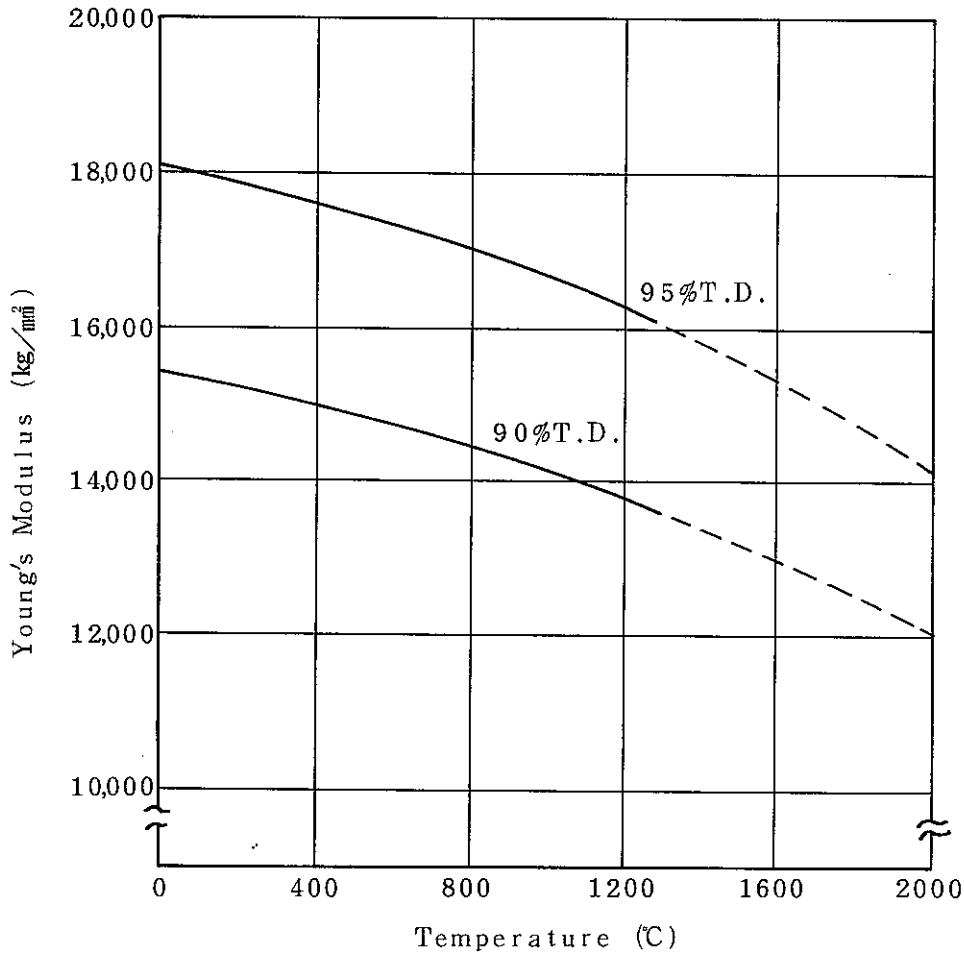
T = Temperature (℃)

D = Fractional density ($0.80 \leqq D \leqq 0.95$)

担 当 者　立花利道

作成年月日　S55．1．31

項　目　Young's Modulus　　(2／2)



Young's Modulus of $(U, Pu)\ O_2$

I−1.3.2

項　目　Young's Modulus　（1／2）

対　象　Uranium Oxide

$$E_T^{UO_2} = (24{,}000 - 2.170T - 2.472 \times 10^{-4} T^2) \times (3.5D - 2.5)$$

where

$E_T^{UO_2}$ = Young's Modulus of UO_2 at T℃ (kg/mm²)

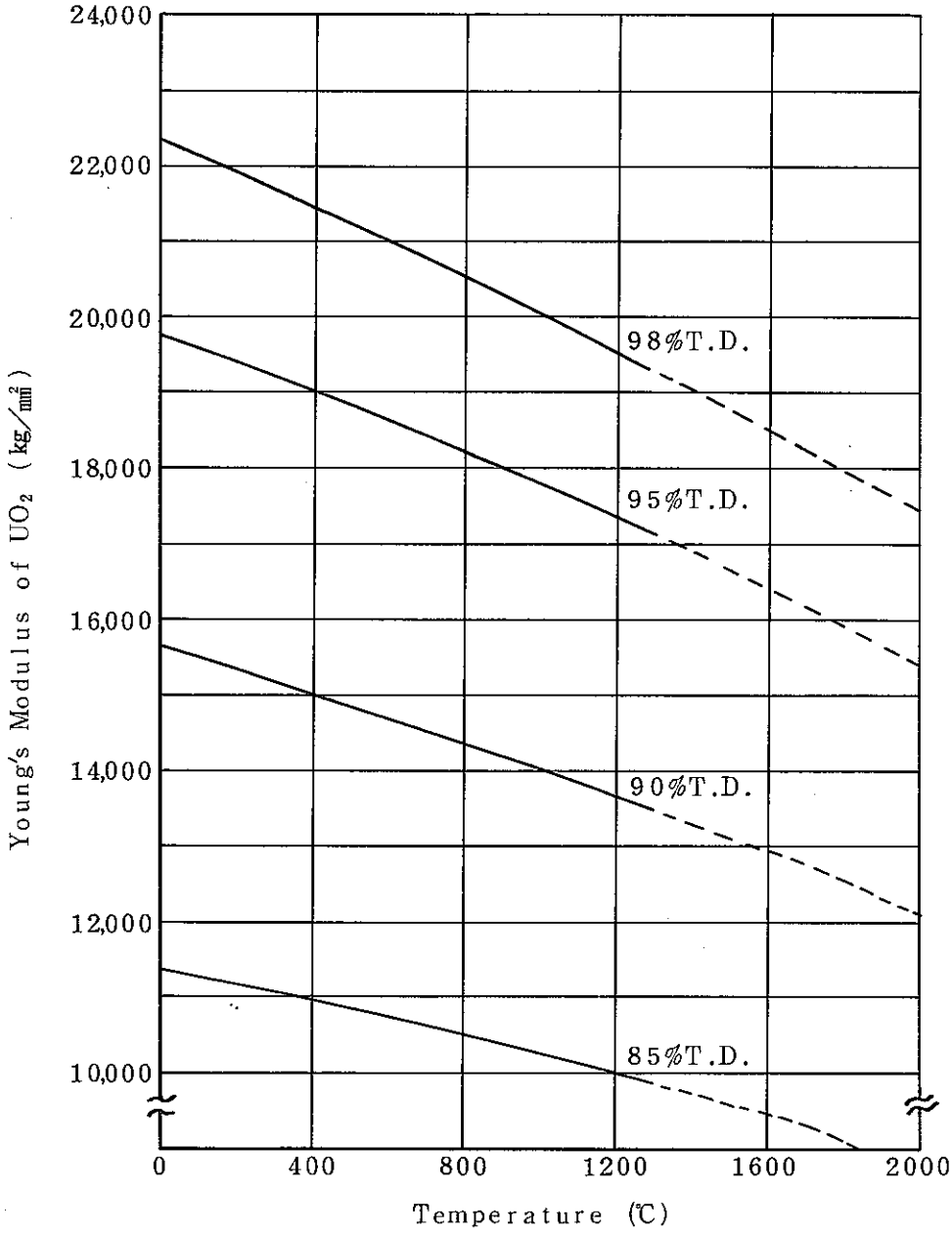
T = Temperature (℃) (R.T.≦T≦1,300℃)

D = Fractional density of UO_2 (0.78≦D≦0.98)

担当者　立花利道

作成年月日　S55．1．31

項　目　Young's Modulus　　(2／2)



Young's Modulus of Uranium dioxide

I−1.3.3

項　目　Poisson's Ratio	(1 ／ 1)
対　象　Mixed Oxide	

$\nu = 0.280$

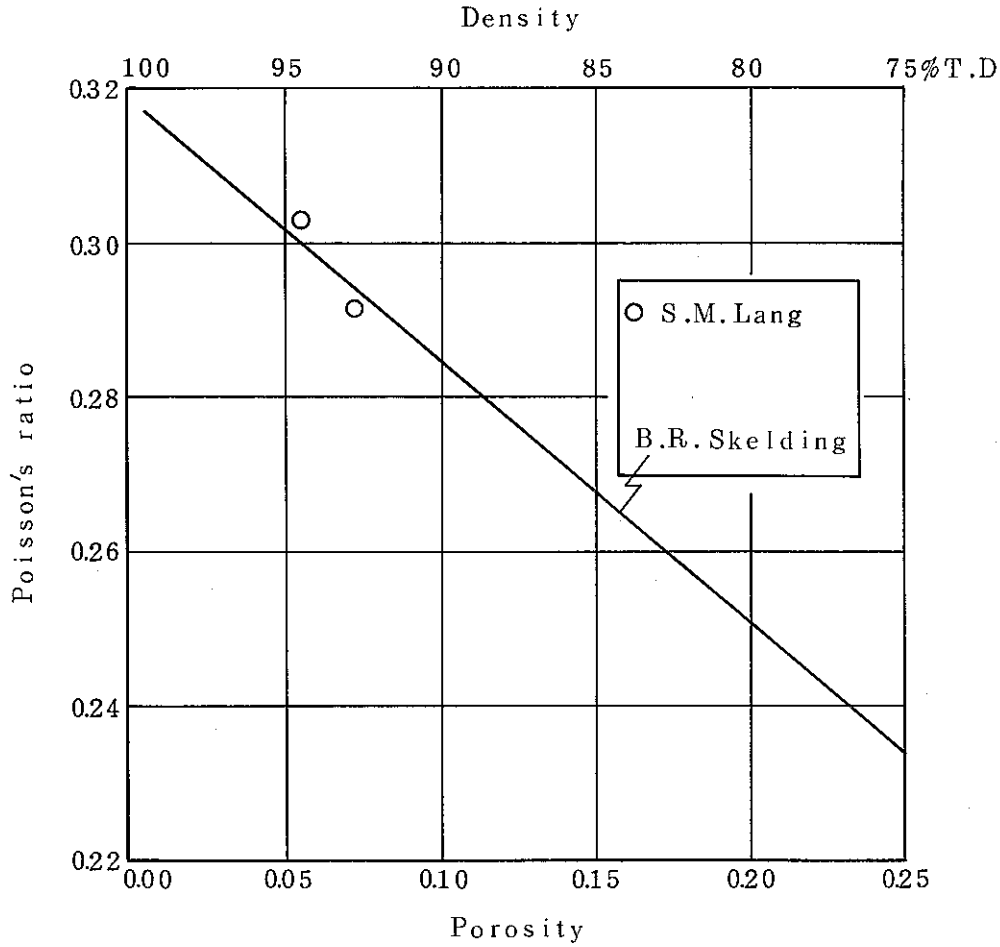
NOTES：This value is available for low density (77～87%TD) of ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$) O_2 only.

担 当 者	立花利道
作成年月日	S55．1．31

I-1.3.3

項　目　Poisson's Ratio　　(1／1)

対　象　Uranium Oxide



Poisson's ratio of UO_2

$\nu = 0.319 - 0.340 \cdot P$

where, ν = poisson's ratio

$P = 1 - D$ (D : fractional density)

担 当 者　立花利道

作成年月日　S55.1.31

I-2.1

項 目 FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interaction) (1／3)

対 象 20 Percent CW 316SS

The maximum cladding attack depth for the irradiated LMFBR fuel pins is correlated with the following expression in terms of cladding innersurface temperature, burnup and fuel initial O/M ratio

$$D(\mu m) = 2.06 \times BU\,(T-450)\,(O/M-1.93)$$

for $BU \geqq 0$, $T \geqq 450$, $O/M \geqq 1.93$

where

D = maximum depth of attack in microns

BU = burnup in at % and BU=6 when BU≧6

T = cladding innersurface temperature in ℃ and T=600 when T≧600

O/M = fuel initial O/M ratio

担 当 者 八登唯夫

作成年月日 S55.1.31

I-2.1

項　目　FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interaction)　(2/3)

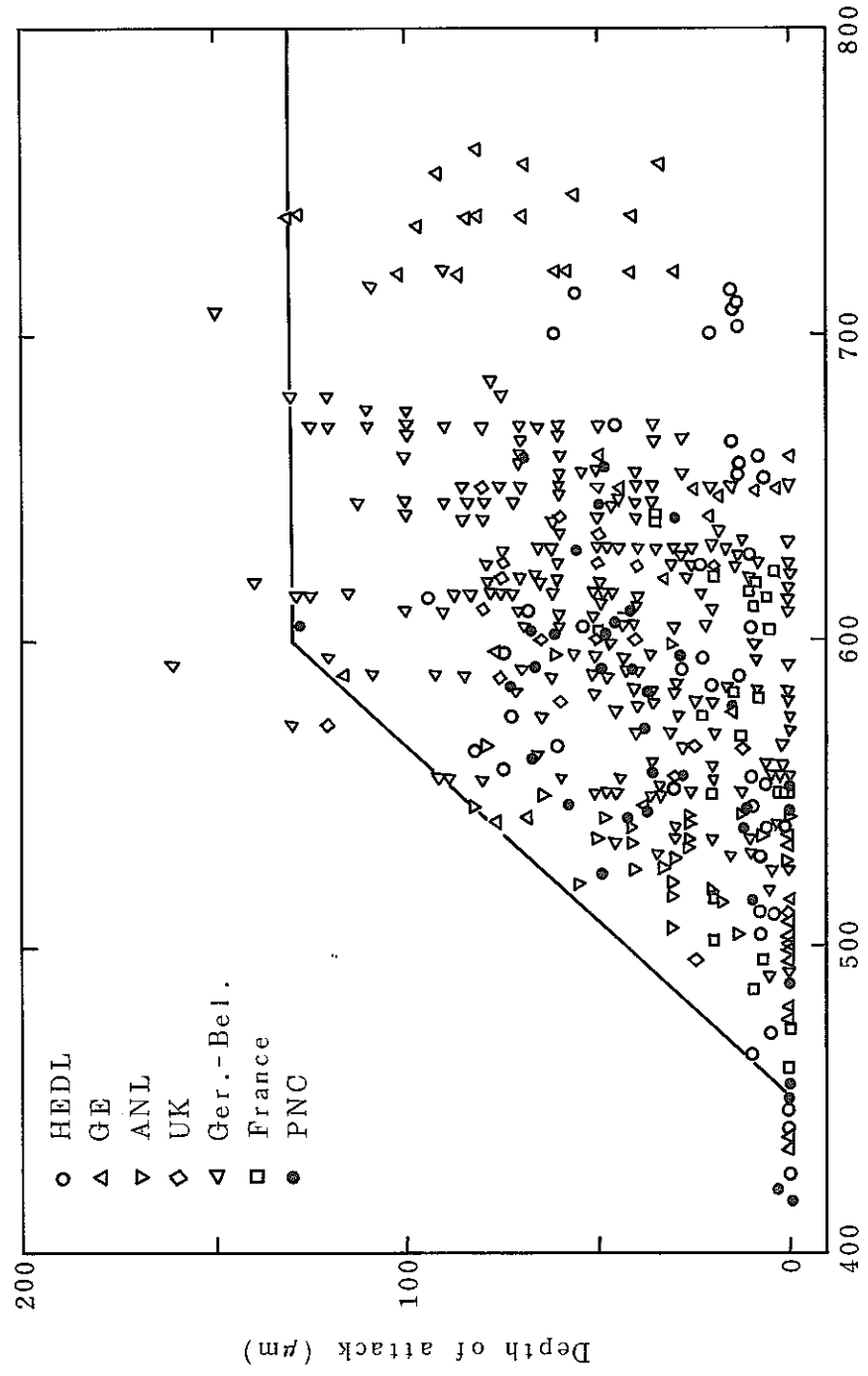


Fig.8 FCCI attack depth as a function of temperature

I-2.1

項　目　FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interaction)　(3 / 3)

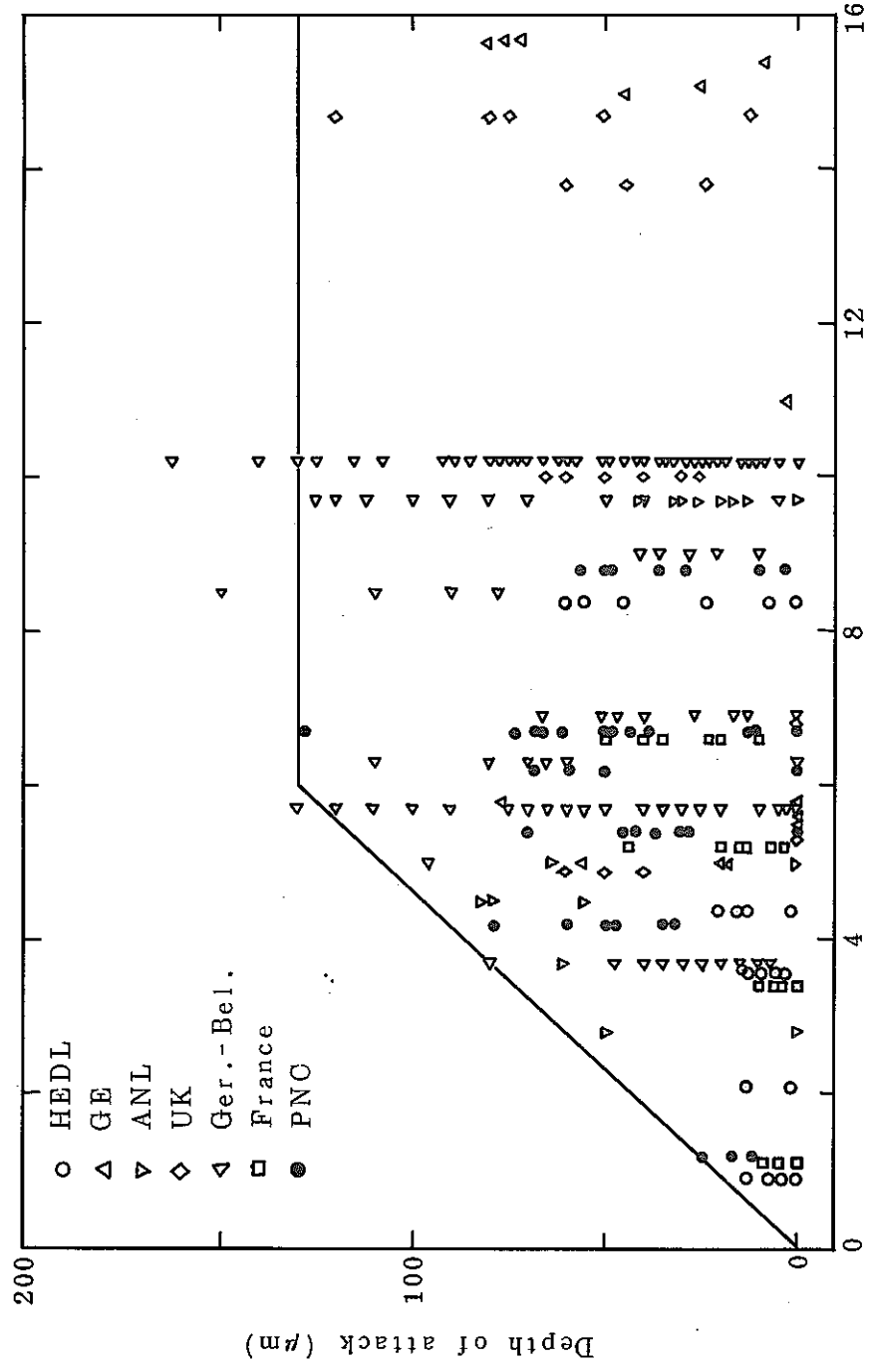


Fig.9 FCCI attack depth as a function of burnup

第Ⅱ章　選 定 理 由

Ⅱ−1.1.1

項　目　Density　（1／2）

対　象　Mixed Oxide

（U，Pu）O_2 系の格子定数は，N.H.Brett等[1]，T.L.Markin等[2]及びW.H.Lyon 等[3]により測定されている。その結果を図1に示す。

三者の測定結果とも，格子定数はVegardの法則に従い組成に対して直線的に変化し，かつそれらの結果は相互に非常に良く一致している。

これらの結果をまとめると（U，Pu）O_2 系の格子定数は

$$A(\text{Å}) = 5.470 - 0.074x$$

ここで

x：PuO_2 のmole fraction

この格子定数の結果より（U，Pu）O_2 系の密度は

$$D = \frac{4}{NA^3}\left\{(1-x)M_{UO_2} + x \cdot M_{PuO_2}\right\} \quad (g/cm^3)$$

ここで

N：Avogadro数

M_{UO_2}，M_{PuO_2}：UO_2 及び PuO_2 の分子量

参考文献

(1) N.H.Brett and L.E.Russel, A.E.R.E.Report R.3900（1962）

(2) T.L.Markin and R.S.Street, J.Inorg.Nucl.chem., 29(1967)2265

(3) W.L.Lyon and W.E.Baily, J.Nucl.Mat., 22(1967)332

担当者　長井修一朗

作成年月日　S55.1.31

項　目　Density

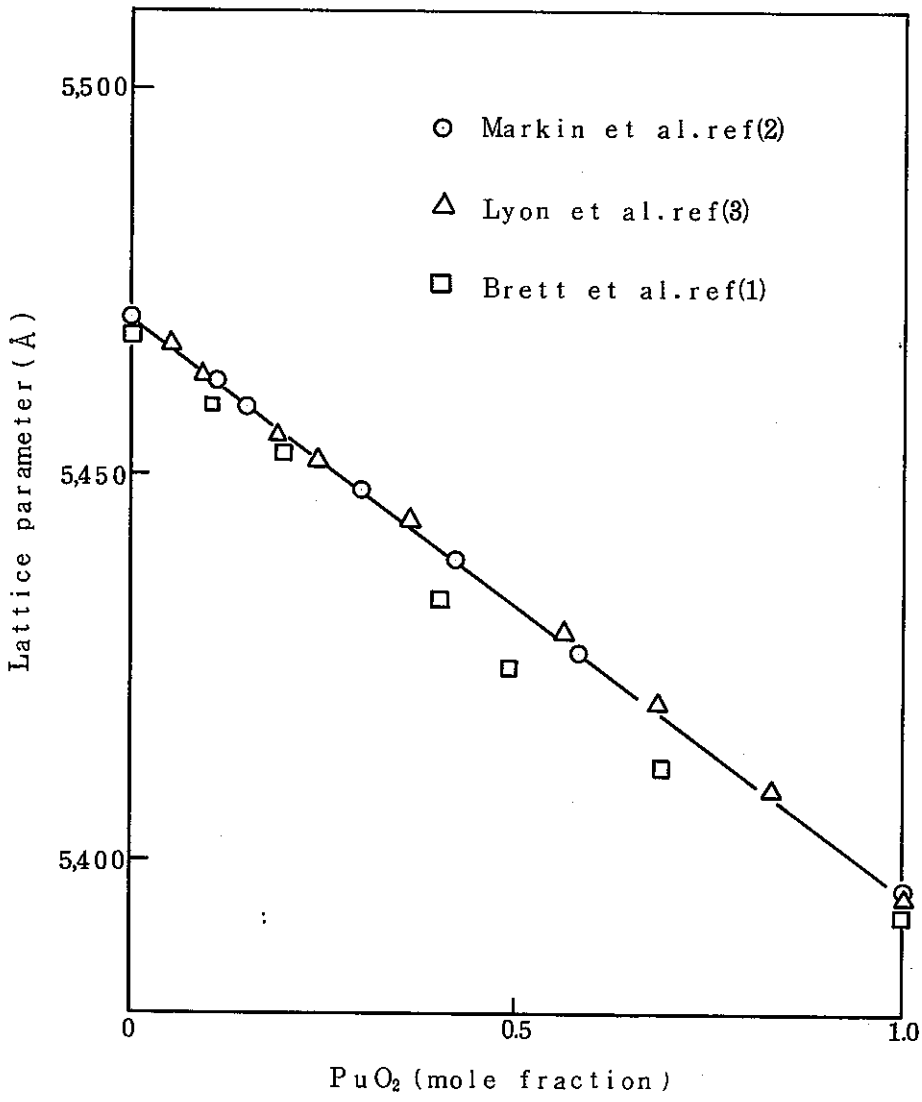


Fig.1. Lattice parameter us composition for UO_2-PuO_2 solid solutions

項　目　　Density　　（1／2）

対　象　　Uranium Oxide

UO_2 は CaF_2 型の結晶構造を有し，その格子定数は"Thermodynamic and Transport properties of Uranium Dioxide and related phases（IAEA Technical Report Series №39，1965）[1]にレビューされている。その結果をTable.1.に示す。

Table.1.　UO_2 の格子定数

格子定数（Å）	Reference
5.4690±0.0001	(2)
5.4704±0.0008	(3)
5.4703±0.0002	(4)
5.4698±0.0008	(5)
5.4720±0.0005	(6)
5.4698±0.0002	(7)

これらの平均値は5.470Åであり，通常広く使用されている値である。従って格子定数としては，5.470Åが妥当である。

この格子定数を基に UO_2 の密度は

$$D = M_{UO_2} / \left(\frac{1}{4} \cdot N \cdot A^3 \right) \quad (g/cm^3)$$

と書ける。

ここで，D　：密度（g／cm³）

M_{UO_2} ：UO_2 の分子量（g／mole）

N　：Avogadro数（6.022×10^{23}／mole）

A　：格子定数（cm）

担当者　　長井修一朗

作成年月日　　S55．1．31

項　目　Density　（2／2）

上記の値を代入するとUO_2の密度は

$$D=M_{UO_2}／24.640（g／cm^3）$$

と書ける。

天然ウランの場合，（U^{235}のモル分率は0.0072），UO_2の分子量は270.029g／cm^3であるので

$$D=10.959g／cc$$

となり

気相成長より作成した単結晶の密度10.950±0.0005g／cm^3と良く一致していることより，上式で密度を計算するのが妥当である。

参考文献

(1) Thermodynamic and Tranoport Properties of Uranium Oxide and Related Phase（IAEA Technical Report Series №39（1965）

(2) Perio, P., Theisis, Paris（1955）

(3) Gronvold, F., J. Inorg, Nucl . Chem . 1（1955）357

(4) Lynds, L., J.Inorg.Nucl .Chem.24（1962）1007

(5) Belbeoch, B., Laredo, E.and Perio, P., J.Nucl .Mat.13（1964）100

(6) Vaughan, D.A., Bridge, J.R.and Schwarty, C.M., USAEC Ret BMI−1241（1957）

(7) Ackerman, R.J., Gilles, P.W., and Thorn, R.J., J.Chem.Phys.25（1956）1089

項　目　Melting Point　（1／2）

対　象　Mixed Oxide

UO_2のみについての測定結果は，1911年頃から出はじめて非常に多くの人の報告があるがPuO_2を含む(U，Pu)O_2系については，6ケの報告がある。

これらの報告を比較検討した結果，タングステンV型フィラメントを用いた方法では，測定前後の試料の組成に変化があること，試料の蒸気による光吸収で温度の測定が低温側にずれやすいこと，液相一固相曲線が取れないことから，信頼性の高いデータが得られなかった。しかし，タングステンカプセルに試料を封入し，高周波加熱し，融点を測定する方法が開発され，精度よく測定されるようになった。従ってこの方法を用いたAitken and Evanceの測定が最も信頼性が高いとして推奨できる。

参考文献

(1) E.A.Aitken and S.K.Evans GEAP−5634

(2) E.A.Aitken and S.K.Evans GEAP−5672

担当者　小無健司

作成年月日　S55．1．31

項　目　Melting Point　　（2／2）

Table.1. Meting points of U-Pu-O System

Pu／U+Pu	O／M	O／Pu	Solidus-liquidus temperatures
1.0	2.00	2.00	2445−2445
	1.846	1.84	2445−2470
	1.785	1.785	2467−2472
	1.73	1.73	2470−2470
	1.61	1.61	2300− ?
0.6	2.00	2.00	2580−2627
	1.91	1.85	2562−2640
	1.84	1.73	2606−2652
	1.76	1.60	2612−2697
0.4	2.00	2.00	2685−2745
	1.06	1.90	2737−2772
	1.91	1.78	2750−2782
	1.84	1.60	2730−2765
0.2	2.00	2.00	2787−2855
	1.98	1.90	2783−2848
	1.95	1.80	2780−2845
	1.94	1.70	2715−2825
	1.92	1.60	2727−2848

項　目　Melting Point　（1／2）

対　象　Uranium Oxide

UO_2 の融点は極めて高い為に加熱と測温に高度の技術を必要とする。多くの研究者は，タングステン−フィラメントによる加熱方式を用いているが，この測定方法は，測定前後の試料の組成に変化があること試料の蒸気による光吸収で温度の測定が低温側にずれやすいこと，液相−固相曲線が取れないこと等の欠点を持っている。これに対して近年，試料をタングステンカプセルに封入し，高周波加熱方式により融点を測定する方法が開発された。従って，この高周波加熱方式を採用し広範囲の非化学的量論組成の$UO_{2\pm x}$の融点測定を行ったLatta and Fryxellの測定[1]（Table 1.）が現在のところ，最も精度の高い測定であると考えられる。

参考文献

(1) R.E.Latta and R.E.Fryxell J.Nucl.Mat.35(1970)195

担当者　小無健司

作成年月日　S55.1.31

項　目　Melting Point　　(2／2)

Melting points of U-O system

Pre-test O/U	Post-test O/U	Melting points Solidus (℃)	Liquidus (℃)
2.23	—	2564	2758
2.23	—	2578	2740
2.184	2.160	2605	2772
2.13	2.109	2667	2805
2.12	2.103	2634	2798
2.095	2.092	2730	2815
2.095	2.050	2728	2817
2.058	2.058	2794	2836
—	2.022	2812	2863
2.019	2.009	2836	2852
1.998	1.998	2845	2865
1.997	2.008	2845	2865
1.997	2.000	2847	2862
1.993	1.995	2834	2860
1.980	1.990	2832	2860
1.980	1.985	2833	2860
1.956	1.955	2803	2857
1.943	1.943	2796	2845
1.920	1.930	2770	2840
1.890	1.929	2729	2832
1.856	1.861	2697	2810
1.809	1.795	2615	2760
1.803	1.849	2620	2760
1.793	1.809	2601	2758
1.75	1.803	2545	2710
1.790	1.759	2590	2740
1.736	1.736	2513	2695
1.662	1.689	2413	2650
1.60	—	2423	2584
1.556	—	2435	2510
1.50	1.593	2428	2498

項　目　Specific Heat Capacity　（1／8）

対　象　Mixed Oxide

1. まえがき

混合配化物燃料（U，Pu）O_2の比熱は比較的多くのデータが報告されている。それらの中でGibby et al.[1]のデータは，それ以前に報告されたデータを総合的に評価して得られたものであり，また，その後報告されたLeibowity et al.[2]のFBR燃料の安全解析においても推奨式として採用されている。

従って，ここではGibby et al.[1]の報告の紹介を行う事により推奨理由にかえる。

2. 固体比熱の理論

固体の定容比熱は一般の固体物理の教科書で述べられている様に格子振動に基づくDebyeの理論により最も良く表わす事ができる。また，極低温の場合を除けばもう少し簡単なEinsteinの理論も充分適用できる事が知られている。ここでは取扱いを簡単にするためにEinsteinの理論を用いる。Einsteinの式は次式で表わされる。

$$C_V = \frac{K_1 \theta^2 \exp(\theta/T)}{T^2 [\exp(\theta/T)-1]^2} \quad \cdots\cdots (1)$$

ここで

C_V ＝定容比熱（cal／mole °K）

K_1 ＝定数（cal／mole °K）

θ ＝Einstein温度（°K）

(1)式は体積一定の場合の比熱であり，実際の条件下では圧力一定の場合の定圧比熱C_Pが重要である。C_PとC_Vの間には次の関係がある。

$$C_P = C_V + \left(\frac{\alpha^2 V}{\beta}\right) T \quad \cdots\cdots (2)$$

ここで

α ＝熱膨張係数

β ＝圧縮率

担当者　八登唯夫

作成年月日　S55．1．31

V＝モル体積

$\alpha^2 V/\beta = 2K_2$ とおくと K_2 は近似的に一定であり，(2)式は

$$C_P = C_V + 2K_2 T \quad \cdots\cdots (3)$$

となる。

約1500℃K以上の高温では，格子欠陥が生成する事により比熱は急激に増加する[3]～[5]。欠陥生成による過剰の比熱は次の様に書ける。

$$C_P = \frac{K_3 E_D}{RT^2} \exp(-E_D/RT) \quad \cdots\cdots (4)$$

ここで

E_D＝欠陥の生成エネルギー（cal／mole）

K_3＝定数（cal／mole ℃K）

(1)，(3)，(4)式より固体の比熱は一般に次式で表わされる。

$$C_P = \frac{K_1 \theta^2 \exp(\theta/T)}{T^2[\exp(\theta/T)-1]^2} + 2K_2 T + \frac{K_3 E_D}{RT^2} \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right) \quad \cdots\cdots (5)$$

同様に，エンタルピー関数は次式で表わされる。

$$H_T^0 - H_{298}^0 = K_1\theta\left([\exp(\theta/T)-1]^{-1} - [\exp(\theta/298)-1]^{-1}\right) + K_2(T^2 - 298^2) + K_3 \exp(-E_D/RT) \quad \cdots\cdots (6)$$

3. データ解析

上の理論式における5個の定数K_1，K_2，K_3，θ，E_Dは比熱あるいはエンタルピーの実測値を(5)あるいは(6)式にフィッティングする事により求める事ができる。エンタルピーは熱量測定から直接求められるのに対し，比熱は一般に間接的に求められた値である。従って，定数の決定にはエンタルピー値を用いる方が適当である。

エンタルピーデータは幾つかの報告から得る事ができる。Ogard et al[6]は$(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}$のエンタルピーをO／M＝2.00と1.98について895から2197℃まで測定している。

項　目　Specific Heat Capacity　　（3／8）

Leibowity et al.[7]は（$U_{0.8}Pu_{0.2}$）$O_{1.97}$に対し２０７５から２７３２℃のデータを得ている。比較的低温部のデータはGibby[8]により測定されている。彼は（$U_{0.75}Pu_{0.25}$）O_{2-x} のエンタルピーをO／M＝1.９８と1.９５について８０から１４９０℃まで測定した。上記のデータはPu濃度が異なる２種類の試料に対するものであるが実験誤差範囲内でPuO_2＝２０％と３０％ で差は見られない。これに対し，O／M比の影響は無視する事はできない。従ってデータ解析にはO／M＝1.９７と1.９８の場合のデータを用いる。

エンタルピーのデータから最小二乗法により求めた各定数の値をTable 1.に示す。(6)式からの計算値を各研究者の実測値と共にFig.1.に示す。

Table 1. Fitted values of parameters in eqs. (5) and (6)

Parameter	Units	Value	Standard deviation
θ	deg K	539	± 14
E_D	cal/mol	40.1×10^3	$\pm 6.9 \times 10^3$
K_1	cal/mol·K	19.53	−
K_2	cal/mol·K^2	9.25×10^{-4}	$\pm 2.11 \times 10^{-4}$
K_3	cal/mol	6.02×10^6	$\pm 6.6 \times 10^6$

次に比熱について見てゆく。Table 1.に示す定数の値を用いて(5)式から計算を行った結果を上記研究者ら[6]〜[8]，Affortit et al.[9]による（U,Pu）O_2についての報告値およびKerrisk et al.[10]のUO_2についての値，Kruger et al.[11]のPuO_2についての値と共にFig.2.に示す。ここでUO_2についてのデータはKerrisk et al.が多くの報告値を評価して求めたものであり信頼性は最も高いと考えられる。Fig.2.で（U，Pu）O_2についての以前の報告値が(5)式からの計算値と異なるのは主に比熱評価のもとであるエンタルピーの関数形が異なる事による。UO_2とPuO_2のデータからKopp's low*により（$U_{0.75}Pu_{0.25}$）$O_{1.98}$の比熱を評価すると(5)式からの計算値と良く一致する。従って定数がTable 1.で示される(5)式は充分信頼性が高いと考えられる。Table 2.にはエンタルピーと比熱の計算値の９５％信頼限界(±2σ)を示す。

NOTES：*Kopp's low

固体化合物の比熱は近似的に成分元素の比熱の和に等しい。

項　目　Specific Heat Capacity　　(4／8)

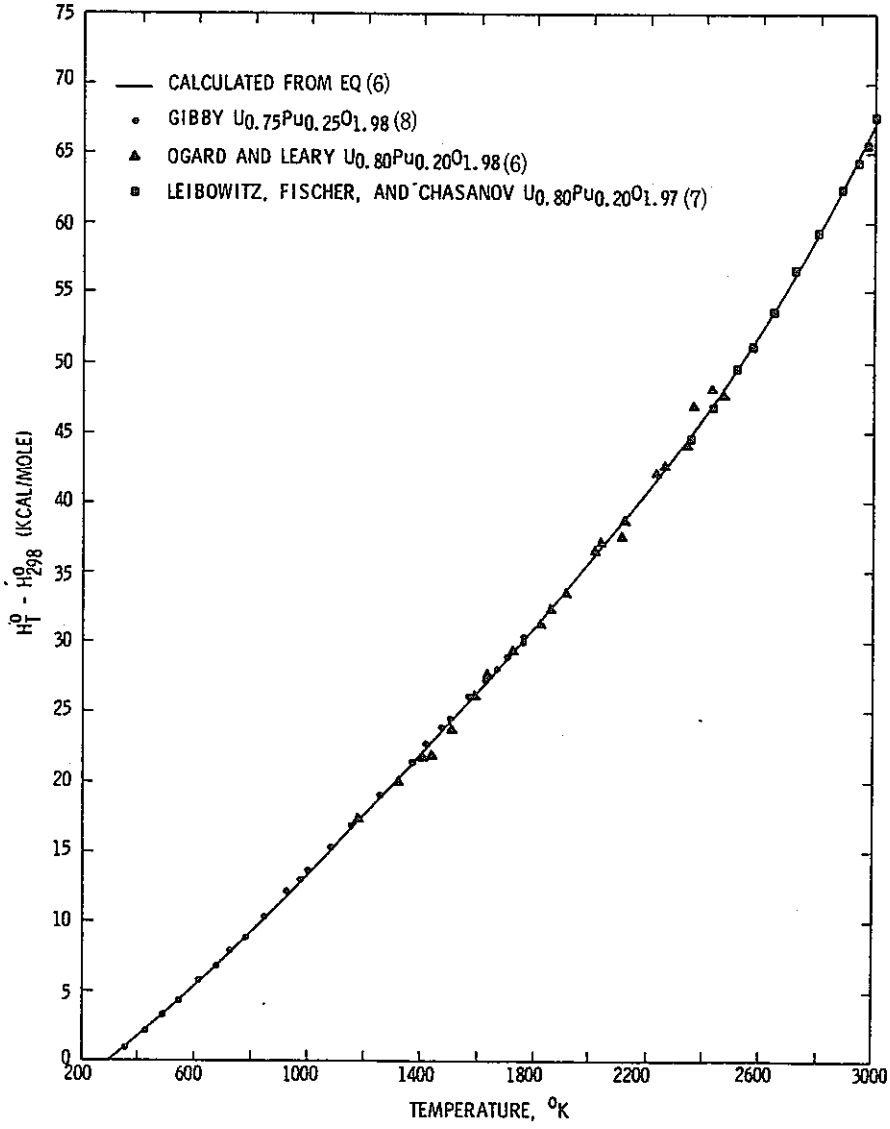


Fig.1. Measured mixed oxide enthalpy as a function of temperature compared with calculated Einstein based function (eq. (6))

項　目　Specific Heat Capacity　　(5／8)

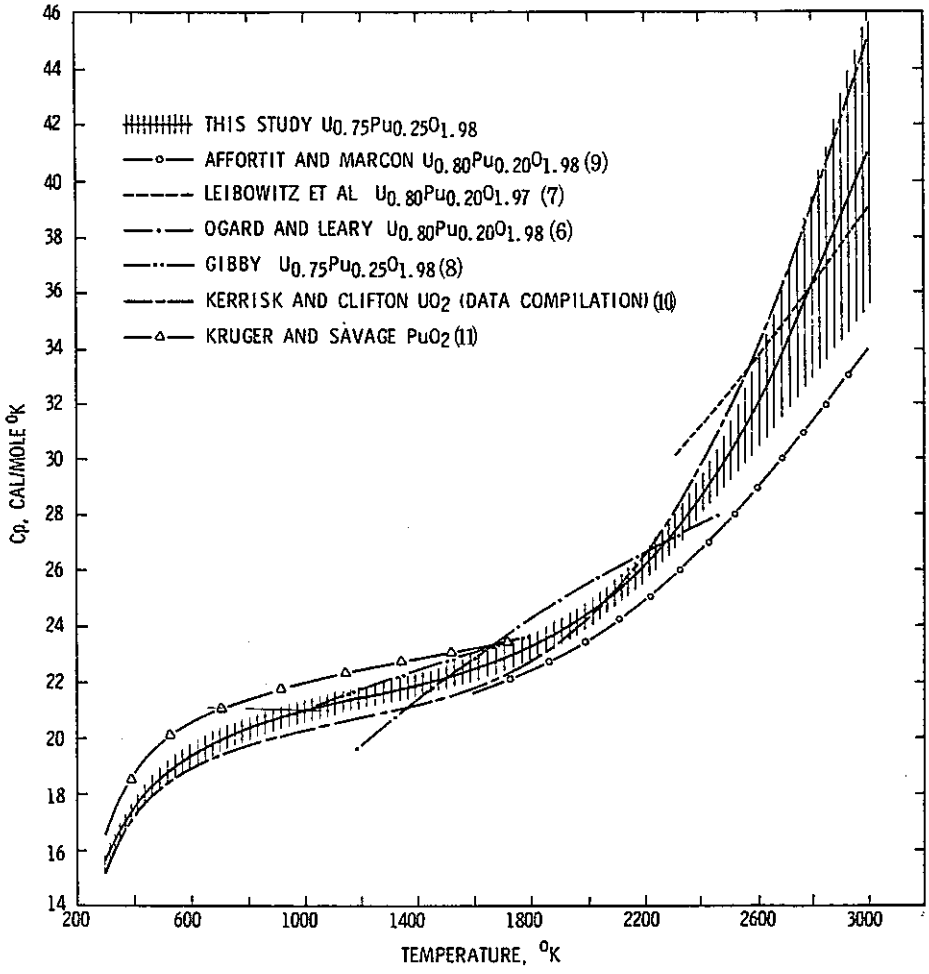


Fig.3. Calculated heat capacity of $U_{0.75}Pu_{0.25}O_{1.98}$ as a function of temperature

Table.2. Confidence limits on the calculated enthalpy and heat capacity

Temp (K)	95% confidence limits	
	Enthalpy	Heat capacity
298	0	0
500	± 0.6%	± 2%
1000	± 0.6%	± 2%
1500	± 0.6%	± 2%
2000	± 0.6%	± 2%
2500	± 0.8%	± 3%
3000	± 1.5%	±14%

Table.3. Enthalpies and heat capacities for $U_{0.75}Pu_{0.25}O_{1.98}$ calculated from eqs. (5) and (6)

Temp (K)	$H_T^o - H_{298}^o$ (cal/mol)	C_p (cal/mol·K)
298	0	15.53
300	113	15.58
400	1781	17.57
500	3598	18.67
600	5503	19.38
700	7468	19.89
800	9477	20.29
900	11523	20.62
1000	13600	20.91
1100	15705	21.18
1200	17836	21.43
1300	19991	21.67
1400	22170	21.92
1500	24374	22.17
1600	26606	22.46
1700	28869	22.81
1800	31170	23.22
1900	33517	23.74
2000	35921	24.37
2100	38396	25.15
2200	40957	26.11
2300	43623	27.25
2400	46413	28.59
2500	49348	30.14
2600	52449	31.92
2700	55738	33.91
2800	59238	36.13
2900	62971	38.56
3000	66957	41.19

(5), (6)式から計算した（$U_{0.75}Pu_{0.25}$）$O_{1.98}$のエンタルピー，比熱の値をTable 3.に示す。これらの値は次のTの多項式により表わす事ができる。

$$H^0_T - H^0_{298} = -4396 + 12.54T + 0.00851T^2 - 0.389\times10^{-5}T^3 + 0.766\times10^{-9}T^4 \quad \cdots\cdots (7)$$

$$C_P = 12.54 + 0.0170T - 0.117\times10^{-4}T^2 + 0.307\times10^{-8}T^3 \quad \cdots\cdots (8)$$

(7), (8)式は各々(6), (5)式と等価であり，両者の式からの計算値の差は±1％以内である。

4. 結　論

固体の（$U_{0.75}Pu_{0.25}$）$O_{1.98}$に対して

$$C_P = \frac{K_1\theta^2\exp(\theta/T)}{T^2[\exp(\theta/T)-1]^2} + 2K_2T + \frac{K_3E_0}{RT^2}\exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right)$$

ここで

T ＝ °K（298−3000°K）

θ ＝ 539°K

E_D＝ 40.1 kcal／mole

K_1＝ 19.53 cal／mole °K

K_2＝ 9.25×10^{-4} cal／mole °K

K_3＝ 6.02×10^{6} cal／mole

R ＝ 1.9872 cal／mole °K

あるいは

$$C_P = 12.54 + 0.017T - 0.0117\times10^{-4}T^2 + 0.307\times10^{-8}T^3 \quad (298-3000°K)$$

項　目　Specific Heat Capacity　　（8／8）

5. 参考文献

(1) R.L.Gibby et al. J.Nucl.Mat.50(1974)155. and HEDL−TME 73−60(1973)

(2) L.Leibowity et al. ANL−CEN−RSD−76−1−Appendix(1976)

(3) R.Szwarc, J.Phys.Chem.Solid, 30(1969)705

(4) D.R.Olander, "Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements", ERDA, TID−26711−P1(1976)P.119

(5) E.A.Fisher et al.J.Nucl.Mat.59(1976)125

(6) A.E.Ogard et al.IATA−SM−98／32(1968)651

(7) L.Leibowity et al.J.Nucl.Mat.42(1972)113

(8) R.L.Gibby, HEDL−TME−73−19(1973)

(9) C.Affortit et al.Rev.Int.Hautes Temp.et Refract.7(1970)236

(10) J.F.Kerrisk et al.Nucl.Tech.16(1972)531

(11) O.L.Kruger et al.J.Chem.Phys.49(1968)4540

Ⅱ−1.1.3

項　目　Specific Heat Capacity　（1／6）

対　象　Uranium Oxide

1. まえがき

比熱は一般にエンタルピーのデータから求められる。固相UO_2のエンタルピーは多くの研究者により測定されている(1)〜(6)が，Kerrisk et al.(7)はそれらのデータをもとに固相UO_2の比熱式を導いた。

この式はLeibowitz et al.(8)のFBR燃料の安全解析やMATPRO−Version 11(9)において推奨データとして採用されている他，その後新しいデータが報告されていないことから最も信頼性の高いデータと考えられる。従って，ここではKerrisk et al.(7)の報告を紹介することにより推奨理由にかえる。液相UO_2の比熱についても補足的に述べる。

2. 評価方法*

固体の比熱およびエンタルピーはEinstesin理論をもとに次式で表わされる。

$$C_P = \frac{K_1 \theta^2 \exp(\theta/T)}{T^2[\exp(\theta/T)-1]^2} + 2K_2T + \frac{K_3 E_D}{RT^2} \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right) \quad \cdots\cdots (1)$$

$$H_T^0 - H_{298}^0 = K_1\theta\{[\exp(\theta/T)-1]^{-1}[\exp(\theta/298)-1]^{-1}\} + K_2(T^2-298^2) + K_3\exp(-E_D/RT) \quad \cdots\cdots (2)$$

ここで

T ＝温度　（°K）

θ ＝Einstein温度　（°K）

E_D＝欠陥生成エネルギー（cal／mole）

K_1 ＝定数　（cal／mole °K）

OTES：＊詳細はMIXED OXIDEの項（Part-Ⅳ, Group-1, section-1）を見よ。

担当者　八登唯夫

作成年月日　S55.1.31

項　目　Specific Heat Capacity　　（2／6）

K_2 ：定数　　（cal／mole °K）

K_3 ：定数　　（cal／mole）

定数θ，E_D，K_1，K_2，K_3はエンタルピーデータを(2)式に最小二乗フィッティングする事により求める事ができる。

データの出典はTable.1.に示す。

Table.1. UO_2 Enthalpy Data Sources

Reference	Temp Range(°K)	O／U Patio	Number of Data Points
Moore and Kelley[1]	483 to 1462	／	14
Ogard and Leary [2][3]	1338 to 2303	2.00	13
Hein, Sjodahl, and Szwarc [4]	1174 to 3107	2.003±0.003	31
Liebowitz, Mishler, and Chasanov[5]	2557 to 3083	2.015	12
Frederickson and Chasanov [6]	675 to 1434	2.005	24

Table.2. Constants in Eqs.(3)and(4)

Constant	Units	Value	Standard Deviation
θ	°K	535.285	8.86
E_D	kcal／mole	37.6946	2.39
K_1	cal／mole °K	19.1450	—
K_2	cal／mole °K	7.84733×10^{-4}	1.38×10^{-4}
K_3	cal／mole	5.64373×10^{6}	2.04×10^{6}

Table.2.に示す定数の値を用いて(2)式から計算を行った結果を実測値と共にFig.1. に示す。実測値の計算値からのずれは2.7％以内である。

(1)式から計算を行った比熱の値を幾つかの報告されている比熱式[10]〜[12]からの値と共にFig.2. に示す。

項　目　Specific Heat Capacity　（3／6）

1000°K以下ではデータ間の一致は非常に良いが，高温ではAffortit et al. のデータは4%（1600°K）から22%（3000°K）低めである。

Table.3.にはエンタルピーと比熱の計算値の95%信頼限界を示す。

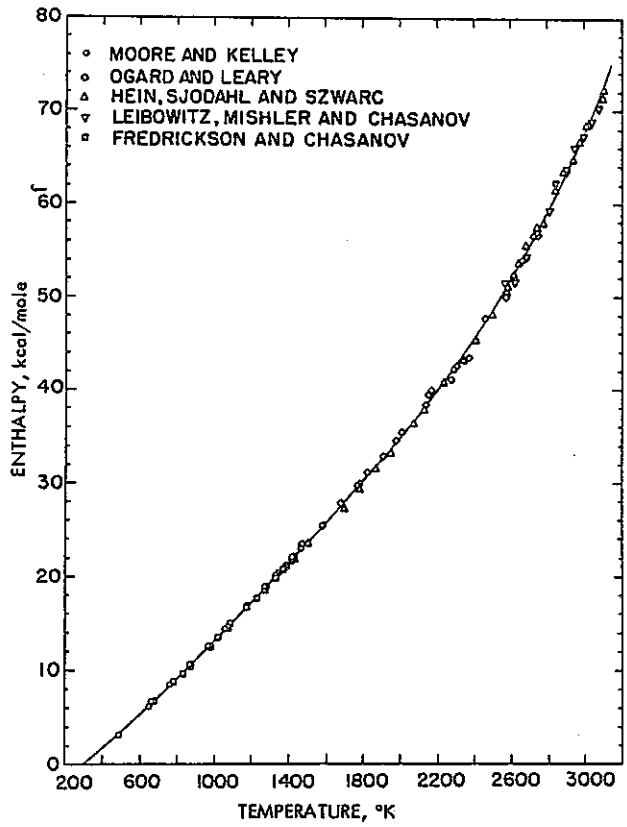


Fig.1. Enthalpy of UO_2 as a function of temperature

項　目　Specic Heat Capacity　　(4 ／ 6)

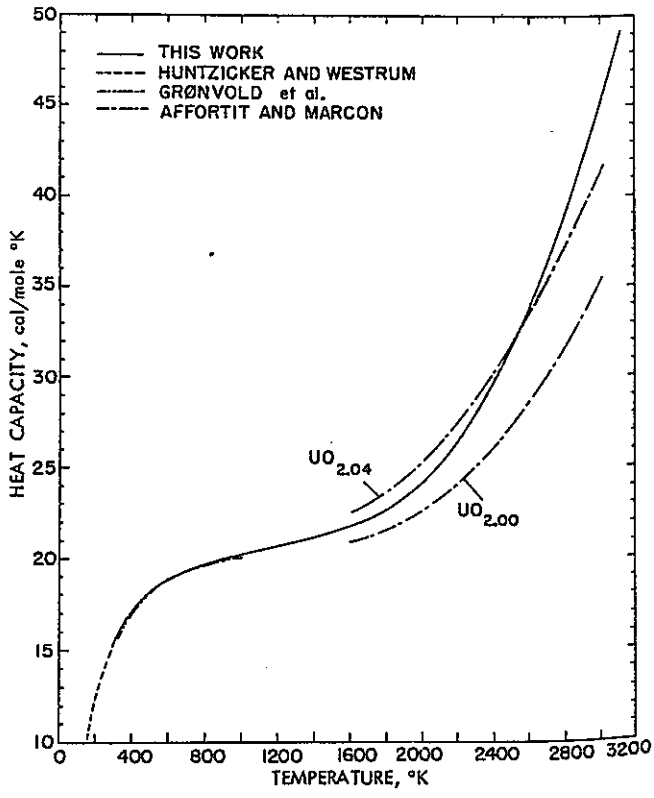


Fig.2. Heat capacity of UO_2 as a function of temperature

Table.3. Smoothed Enthalpy and Heat Capacity Confidence Limits

Temp (°K)	95% Confidence Limits[a]	
	Enthalpy	Heat Capacity
298	0	0
500	±0.5%	±2%
1000	±0.5%	±2%
1500	±0.5%	±2%
2000	±0.5%	±2%
2500	±0.5%	±3%
3000	±0.7%	±6%
3100	±1%	±10%

[a]±2 standard deviations.

項　目　Specific Heat Capacity　　(5／6)

3. 結　論

固体のUO_2の比熱は

$$C_P = \frac{K_1 \theta^2 \exp(\theta/T)}{T^2 [\exp(\theta/T)-1]^2} + 2K_2 T + \frac{K_3 E_D}{RT^2} \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right)$$

ここで

T ＝°K（298−3100°K）

θ ＝535°K

E_D＝37.69kcal／mole

K_1＝19.14cal／mole °K

K_2＝7.85×10^{-4} cal／mole °K

K_3＝5.64×10^{6} cal／mole

R ＝1.9872cal／mole °K

4. 補　足

液相UO_2についての比熱，エンタルピーデータは皆無に等しくエンタルピーのデータとしてHein et al.[13]とLeibowitz et al.[14]のものが存在するのみである。Leibowitz et al.は3173から3523°Kの測定結果から次のエンタルピー式を報告している。

$$H_T^0 - H_{298}^0 = 32.457T = 11153.8$$

この式から比熱は32.46cal／mole °Kと求める事ができる。

5. 参考文献

(1) G.E.Moore et al.J.Am.Chem.Soc.69（1947）

(2) A.E.Ogard et al.IAEA−SM−98／32（1968）651

(3) A.E.Ogard et al.LA−4494−MS（1970）43

(4) R.A.Hein et al.J.Nucl.Mat.25（1968）99

(5) L.Leibowity et al.ibid.29（1969）356

(6) D.R.Frederickson et al.J.Chem.Thermodyn.2（1970）623

(7) J.F.Kerrisk et al.Nucl.Tech.16(1972)531

(8) L.Leibowity et al.ANL−CEN−RSD−76−1−Appendix(1976)

(9) D.L.Hagrman et al.NUREG／CR−0497 TREE−1280(1979)

(10) J.J.Huntzicker et al.J.Chem.Thermodyn.3(1971)61

(11) F.Gronvold et al.ibid.2(1970)665

(12) C.Affortit et al.Rev.Int.Hautes Temp.et Refract.7(1970)236

(13) R.A.Hein et al.GEMP−578(1968)

(14) L.Leibowity et al.J.Nucl.Mat.39(1971)115

項　目　Thermal Conductivity　（1／7）

対　象　Mixed Oxide

1. まえがき

混合酸化物燃料（U, Pu）O_2 燃料の熱伝導度の測定は，UO_2 の測定に比べて少ない。[1〜3]

現在報告されている熱伝導度のモデルは，これらの数少ない実験値を基に作成されたものである。

ここでは，もんじゅ用燃料（Pu富化度＝28.8％，密度＝85％TD，O／M=1.98）の設計及び挙動解析に用いることを目的として，上記の測定値に，動燃の内部で行われた，実際のもんじゅ用燃料を用いて行った測定値を加え，信頼性の高い式を作成し，推奨する。

2. 評価データ

混合酸化物燃料の熱伝導度は，温度，密度，O／M，Pu含有量等の多くのパラメータの影響を受ける。

混合酸化物燃料の熱伝導度の測定値が，[1〜3] いくつか報告されているが，Pu含有量が20％以下，温度が1500℃以下のデータがほとんどである。

ここでは，評価の対象として，これらの報告例の中でもんじゅ用燃料のスペックに近いものと，もんじゅ用燃料を用いた測定値[4]を採用した。

これらのデータをTable 1.に示す。

担当者　山口俊弘，小無健司

作成年月日　S57．11．1

項　目　Thermal Conductivity　　(2／7)

Table 1　Thermal Conductivity Data List

DATA SET	Density	O／M	PuO_2	
FTHCON−1	95.04	1.993	30.50	Yamaguchi (PNC)
FTHCON−2	95.04	1.980	30.50	
FTHCON−3	95.04	1.963	30.50	
FTHCON−4	95.04	1.942	30.50	
FTHCON−5	88.73	1.980	29.34	
FTHCON−6	84.68	1.980	29.34	
FTHCON−11	93.40	1.997	0.00	
FTHCON−21	97.00	2.000	30.00	R. L. Gibby (HEDL)
FTHCON−22	96.00	2.000	0.00	
FTHCON−23	97.00	2.000	5.00	
FTHCON−24	97.00	2.000	12.00	
FTHCON−25	98.00	2.000	20.00	
FTHCON−26	97.00	2.000	25.00	
FTHCON−27	97.00	2.000	100.00	
FTHCON−28	95.80	2.000	0.00	
FTHCON−31	93.00	1.950	30.00	R. A. LASKIEWICZ (GE)
FTHCON−41	96.00	1.990	30.00	L. A. GOLDSMITH (UK)
FTHCON−42	98.60	2.000	0.00	〃
FTHCON−51	94.00	2.000	0.00	J. A. CRISTENSEN
FTHCON−61	93.40	2.000	0.00	L. A. GODFREY
FTHCON−71	98.40	2.000	0.00	J. L. BATES
FTHCON−81	98.00	2.000	0.00	J. C. Weilbacher
FTHCON−91	94.90	2.000	0.00	I. C. Hobson

3.　モデル式

燃料の熱伝導度のモデル式は，現在までに，いくつか報告されている。ここでは，この中で，数多いUO_2の測定値を基に，理論に忠実な形で評価を行っているHagrman[5]による MATPRD−Version11 (Revision 1) における評価方法を採用した。

項　目　Thermal Conductivity　（3／7）

$$K=\left[\frac{D}{1+\beta(1-D)}\right]\left[\frac{Cv}{(A+BT')(1+3e_{th})}\right]$$

$$+5.2997\times10^{-3}T\left[\exp\left(\frac{-13358}{T}\right)\right]\left[1+\frac{2f}{(1+f)^2}\left(\frac{13358}{T}+2\right)^2\right]$$

ここで

K＝熱伝導度（W／（m・k））

D＝fraction of theoretical density(unitless)

β＝Poreの形状及び分布に依存する因子で次の式で表わされる。

β＝BETA1−BETA2×T

但しβ＝−1となる温度以上では，β＝−1とおく。（unitless）

A＝燃料のO／Mに依存する因子でA＝A_0 ＋A_1x で表わされる。（m・s／kg）

B＝燃料のPu富化度に依存する因子でB＝B_0（1＋B_1×q）で表わされる（m・s／(kg・k)

T′＝燃料の温度を表し，2050K以上の温度の場合はT′＝2050とする。（k）

Cv＝燃料の定積比熱（J／kg・k）

D＝燃料の線熱膨張率（unitless）

一般に，固体中のエネルギー輸送担体としては，phonon，electron，photon 等が考えられる。

UO_2 及び（U，Pu）O_2 では1600k 以下の温度範囲ではphonon によるエネルギーの輸送が他の過程に比べて，格段に大きく，熱伝導はほとんどこの過程によって行われる。(1)式の第1項がこのphonon 伝導に相当し，O／M比，Pu富化度等の影響を受ける。

理論密度以下のporous な燃料に対しては，次式に示すようなMaxwell−Eucken 型の補正係数を掛けることによって表わされる。

$$\frac{K}{K_{100}}=\frac{1-P}{1+\beta\times P}\qquad-②$$

ここでKはporous な燃料の熱伝導度でありK_{100} は理論密度をもった燃料の熱伝導度を表わす。また，Pは燃料のporosity である。βはPに関しては，定数であり温度の一次関数で表わされる。

項　目　Thermal Conductivity　　(4／7)

次に，UO_2 及び（U，Pu）O_2 燃料においては，1600K を超える温度から，phononによる熱伝導度に他の過程が加わり，全体として熱伝導度は増加する傾向がある。この増加の原因は，現在では，electron による熱伝導であると考えられている。

①式の第2項がこのelectron による熱伝導を表わしている。

4. 推奨式

上記のモデルとTable 1のデータベースを用いて非線形最小二乗法により推奨式を作成した。非線形最小二乗法コードとしてNONLIN[6]を使用した。推奨式の例をFig.1に示す。

推奨式の密度依存性，O／M依存性を，それぞれFig. 2，3 に示す。

項　目　Thermal Conductivity　　(5／7)

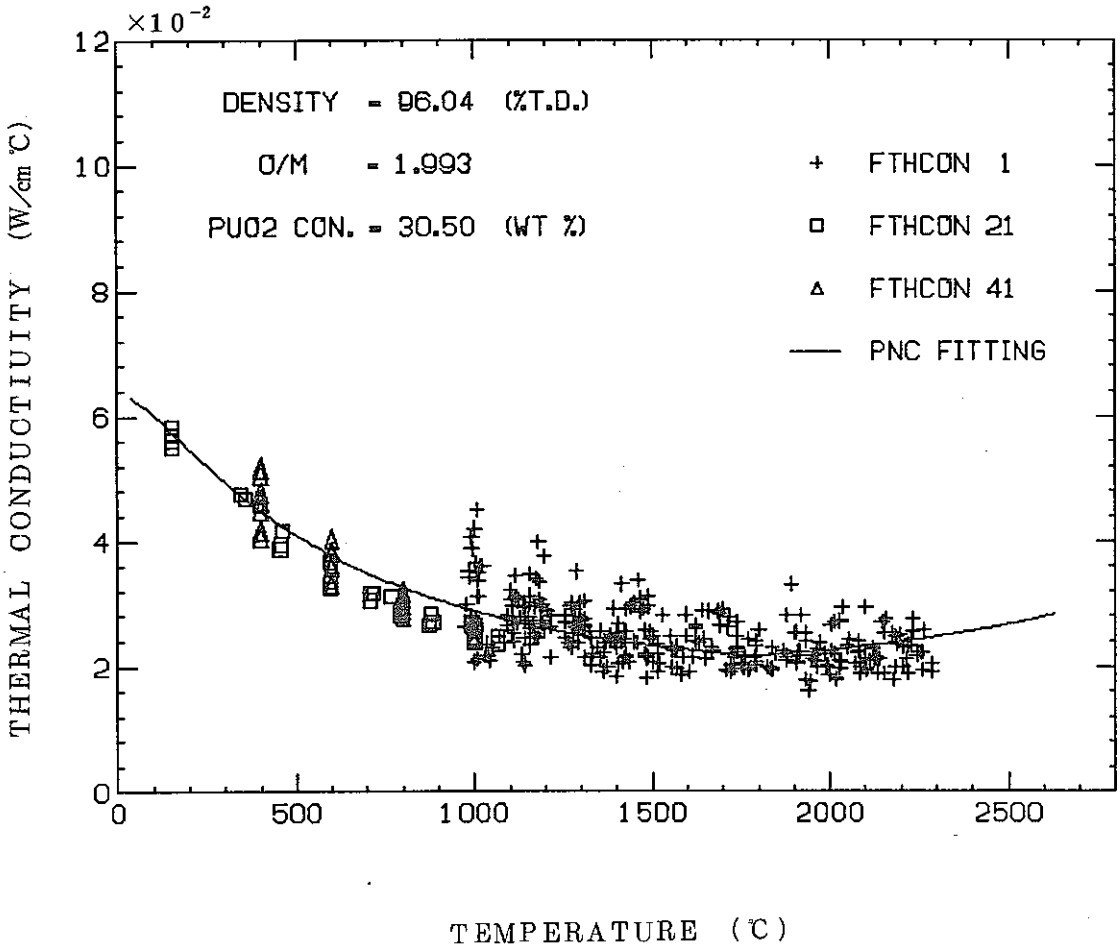


Fig 1　$(U, Pu)O_2$ 燃料熱伝導度

項　目　Thermal Conductivity　　(6／7)

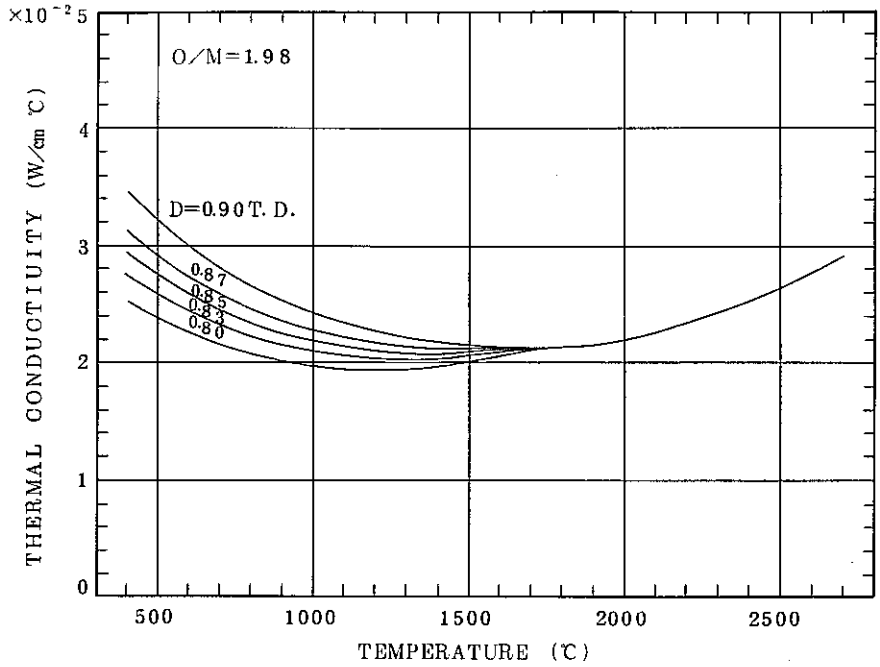


Fig. 2　(U, Pu)O_2 燃料熱伝導度密度依存性

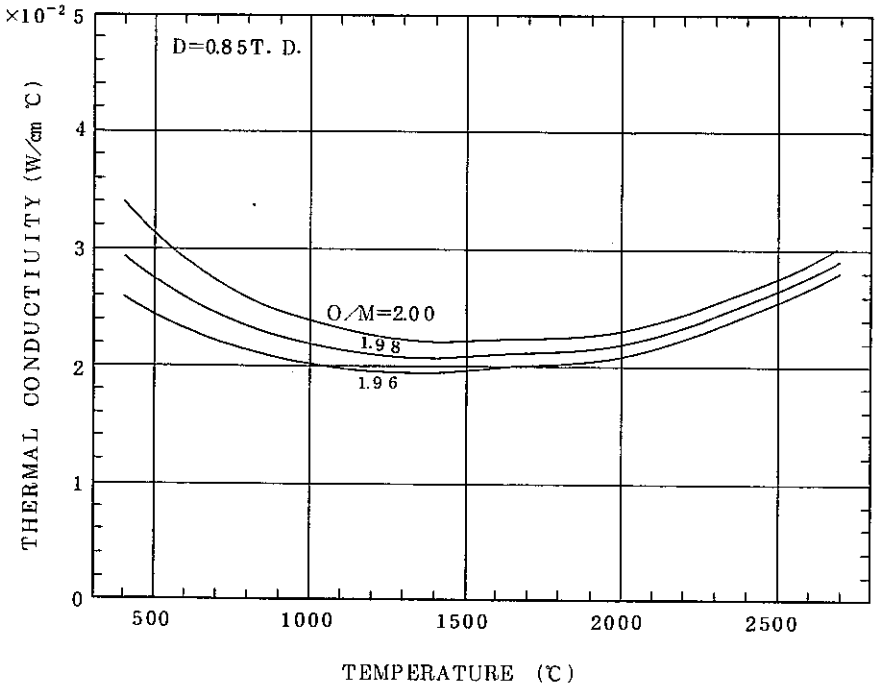


Fig. 3　(U, Pu)O_2 燃料熱伝導度O／M依存性

項　目　Thermal Conductivity　（7／7）

5. 参考文献

〔1〕 R.L.Gibby , J.Nucl. Mat. 38（1971）163

〔2〕 R.A.Laskiewicz , GEAP−13733（1971）

〔3〕 L.A.Goldsmith and J.A.M. Douglas J.Nucl. Mat. 43（1972）225

〔4〕 T.Yamaguchi et al , PNCT831−80−01

〔5〕 D.L.Hegrman , NUREG／CR−0497, TREE−1280 ,Rev 1

〔6〕 J.Neal , BDX−613−813

項　目　Thermal Conductivity　　（1／4）

対　象　Uranium Oxide

1. まえがき

UO_2 燃料の熱伝導度の測定データは，数多く報告されており，それらを総合的に評価し，モデルを作成した例もいくつか報告されている。

ここでは，これらのモデル式を，動燃で作成されたUO_2 ペレットによる測定値で補正した，信頼性の高い式を推奨する。

2. 評価データ及びモデル式

Brandt及びHagrman は，それまで報告された数多くのUO_2 の熱伝導データ[1〜6]を総合的に評価しモデル式を作成している。ここでは，$(U,Pu)O_2$の場合と同様に，理論に忠実な形式で評価を行っているHagrman によるMATPRO Version 11 (Revision 1)[7]における評価方法を採用した。一方，動燃内部でも，UO_2 に関する熱伝導度の測定がなされている。（mixed oxide 熱伝導度の項のTable 1参照）

モデルについての説明は，mixed oxide 熱伝導度の項に記してあるので，ここでは省略する。

3. 推奨式

推奨式は，mixed oxide の場合と同様に，非線型最小二乗法コードNONLIN を使用した。

推奨式の例をFig. 1 に示す。

推奨式の密度依存性をFig. 2 に示す。

担当者　山口俊弘，小無健司

作成年月日　S57．11．1

項　目　Thermal Conductivity　　(2／4)

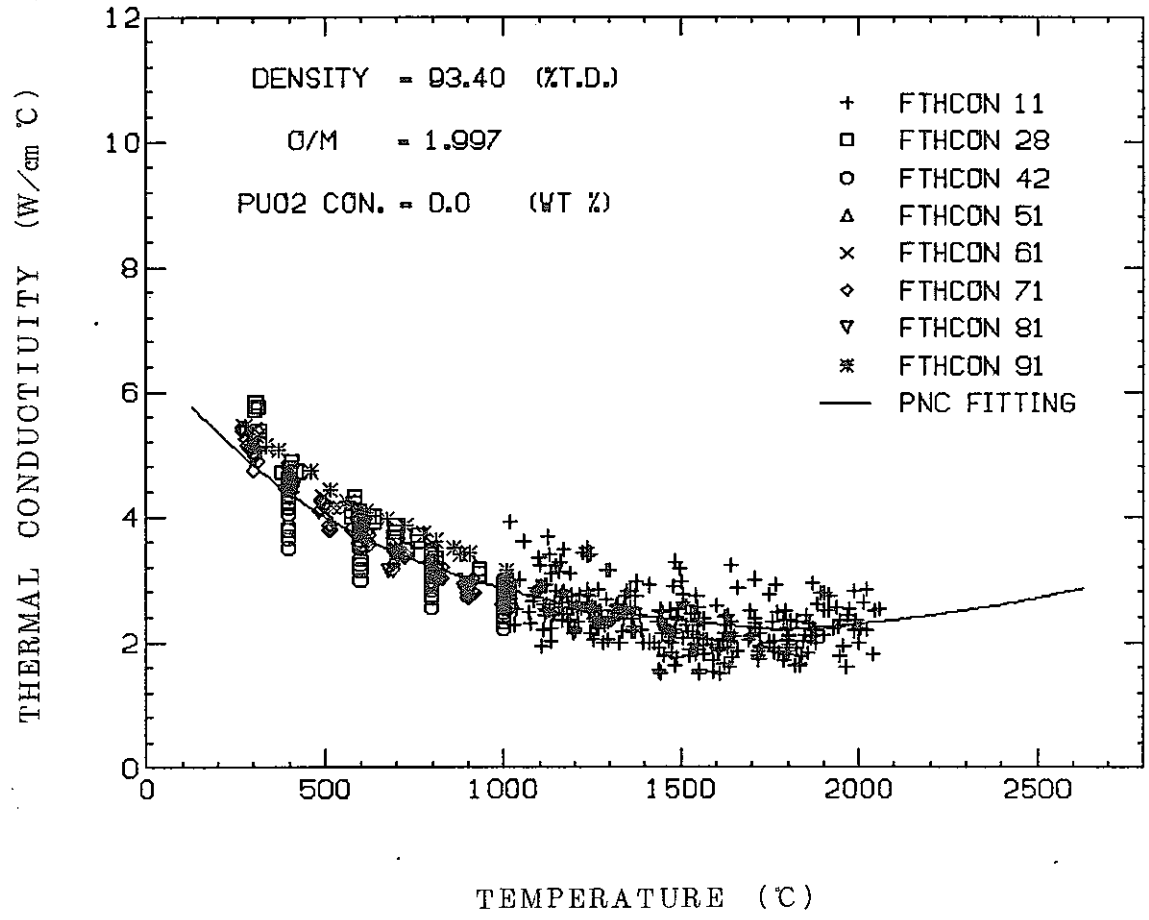


Fig. 1　UO_2 燃料熱伝導度

項　目　Thermal Conductivity　　(3／4)

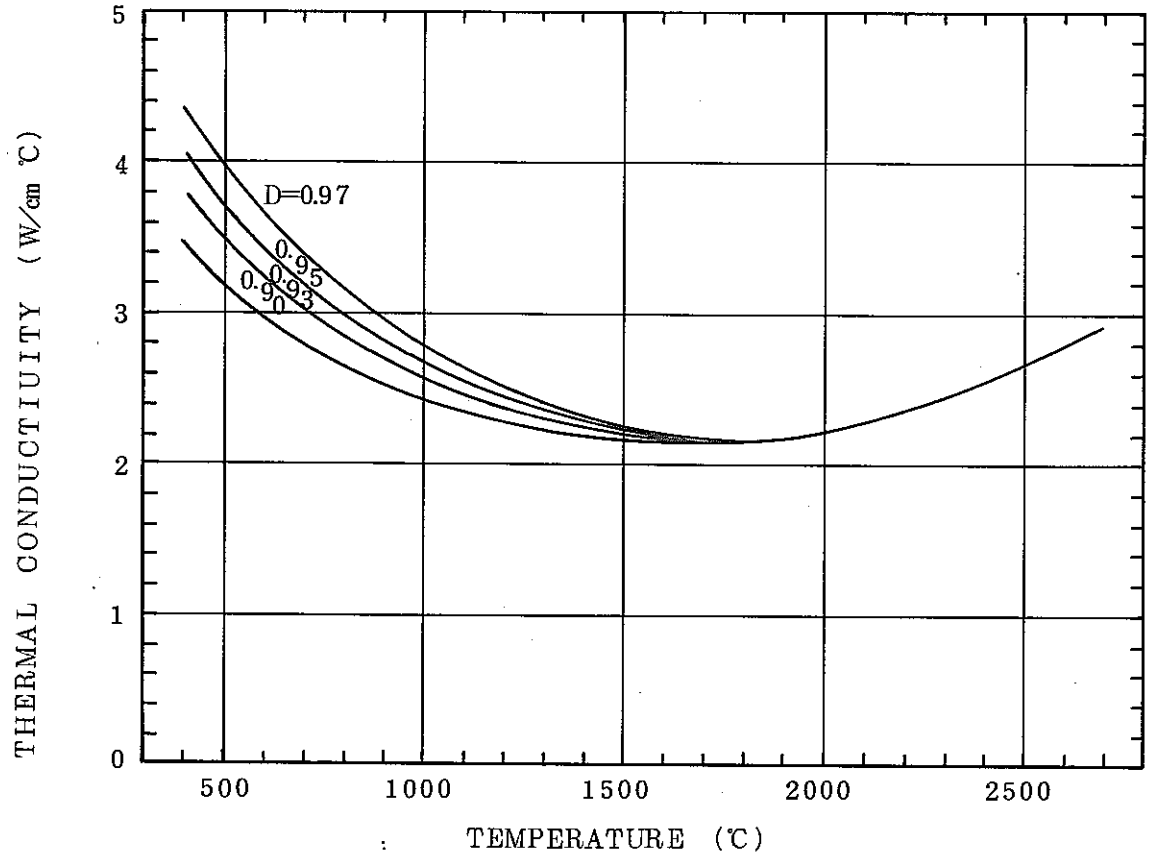


Fig. 2　UO_2燃料の熱伝導度の密度依存性

項　目　Thermal Conductivity　（4／4）

4. 参考文献

〔1〕 L.A.Goldsmith and J.A.M.Douglas , J.Nucl. Mat. 47(1973)31

〔2〕 J.A.Cristensen , et al., Trans.A.N.S. 7(1964)391

〔3〕 L.A.Godfrey,et al.,ORNL−3556(June 1964)

〔4〕 J.L.Bates,BNWL−1431(July1970)

〔5〕 J.C.Weilbacher , High Temperature − High Pressure 4(1972)431

〔6〕 I.C.Hobson,et at.,J.Phys.Section D:Applied Physics − 7(1974)1003

〔7〕 D.L.Hagrman,et al.,NUREG/CR−0497,TREE−1280,Rev 1, 1980

〔8〕 T.Yamaguchi,et al,PNCT831−80−01

〔9〕 J.Neal,BDX−613−813

項　目　Thermal Expansion　（1／6）

対　象　Mixed Oxides

1. まえがき

燃料の熱膨張を測定する手法として次の3つの方法が現在，用いられている。

① 高温X線による方法

② デラトメータによる方法

③ 精密マイクロメータテレスコープによる方法

それぞれの測定方法には，利点，欠点はあるが，現在のところ②，③の測定方法が精度的に良いとされている。

混合酸化物の熱膨張率に影響する因子としては，①プルトニウム富化度，②O／M比，③温度があげられる。

2. 熱膨張データ

燃料の熱膨張は，UO_2 については，Burdick and Parker[1]，Conway et al.[2,3]，Christensen[4]，Hoch and Momin[5]，Belle[6]，等の報告がある。またPuO_2については，Tokor et al.[7]及びBrett and Russell[8]の報告がある。

混合酸化物の熱膨張の測定は，1965年にRoth and Haltman(NUMEC)[9]がプルトニウム含有量を0.0～100％ の広範囲での測定結果を報告している。

測定温度範囲は100～1200℃であり，X線粉末回折法を用いている。その後1967年にRoth[10]は，混合酸化物燃料のO／M依存性に着目した実験を，X線法によって行っている。1970年にRubin[11]は，混合酸化物の熱膨張がPuO_2とUO_2のそれぞれの熱膨張に，組成比（重量比）で重みをつけて平均した値と一致することを指摘している。

3. 推奨式

MATPRO，Version 11[12]では，以上のデータを用いて，次の式を導いている。

担当者　山口俊弘，小無健司

作成年月日　S55．1．31

項　目　Thermal Expansion　　(2／6)

UO_2 では

$$\frac{\triangle L}{L} = -4.972\times10^{-4} + 7.107\times10^{-6}T + 2.581\times10^{-9}T^2 + 1.140\times10^{-13}T^3$$

for 0℃＜T＜Tm　　(1)

where

$\frac{\triangle L}{L}$ = fractional linear thermal expansion

T = temperature(℃)

Tm = melting temperature of fuel(℃)

$(U, Pu)O_2$ については

$$\frac{\triangle L}{L} = -3.9735\times10^{-4} + 8.4955\times10^{-6}T + 2.1513\times10^{-9}T^2 + 3.7143\times10^{-16}T^3$$

　　(2)

(1), (2)式による計算値とデータをFig. 1 , 2に示す。Fig 1 , 2に示されているように, (1), (2)式は, 測定データと良い一致を示す。

従って, (1), (2)式は, 信頼性の高い式であると考えられる。

混合酸化物燃料については, Rubin[11] の報告に基づき, (1), (2)式に, 組成比 (重量比) で重みをつけて平均した式を採用し, O／M依存性については, Roth[10] のデータを採用した。

以上は, 熱膨張の値であり, 熱膨張率の推奨式はこれを, 温度で微分することにより求めた。

項　目　Thermal Expansion　　(3 / 6)

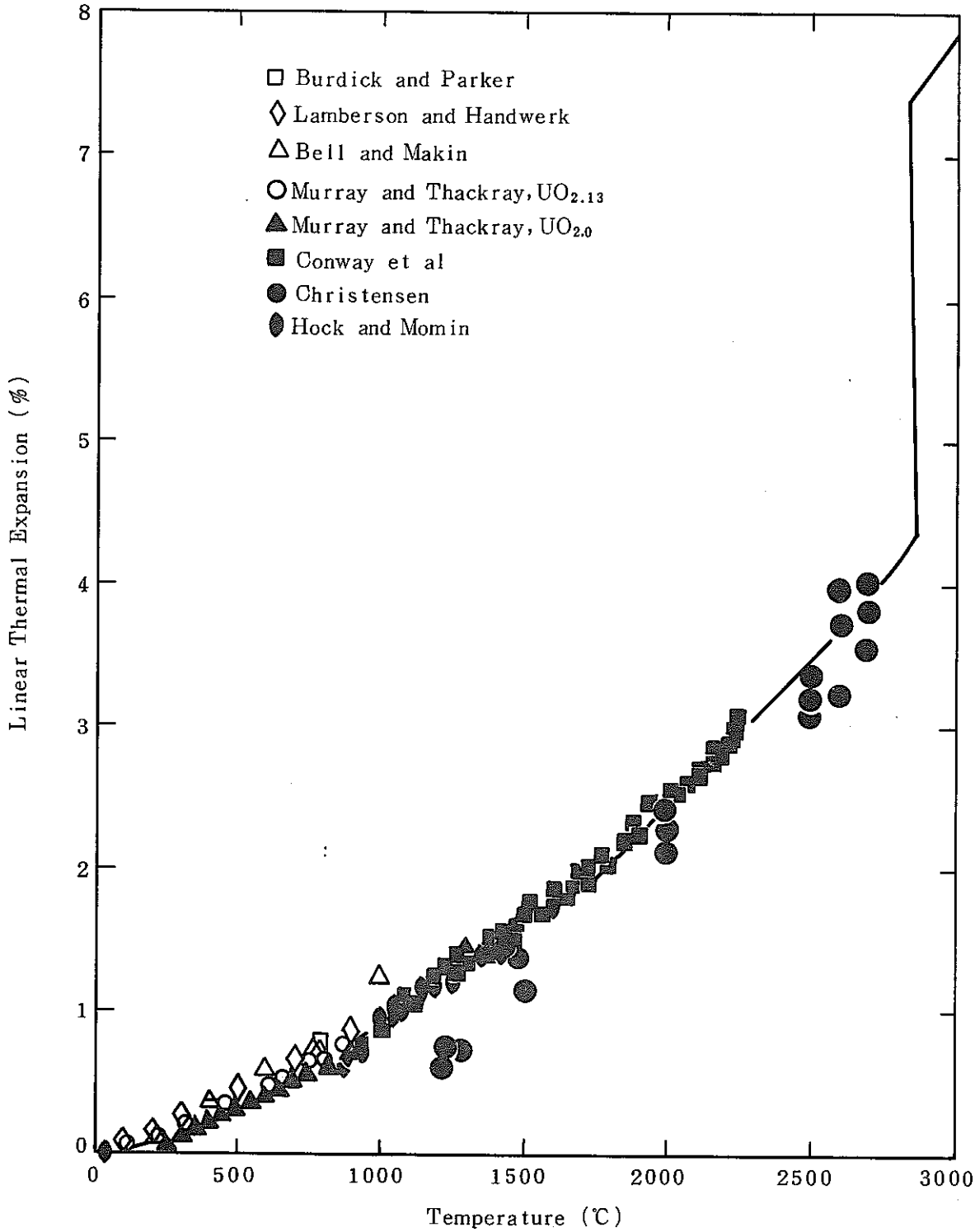


Fig. 1　UO_2 thermal expansion

項　目　Thermal Expansion　　(4／6)

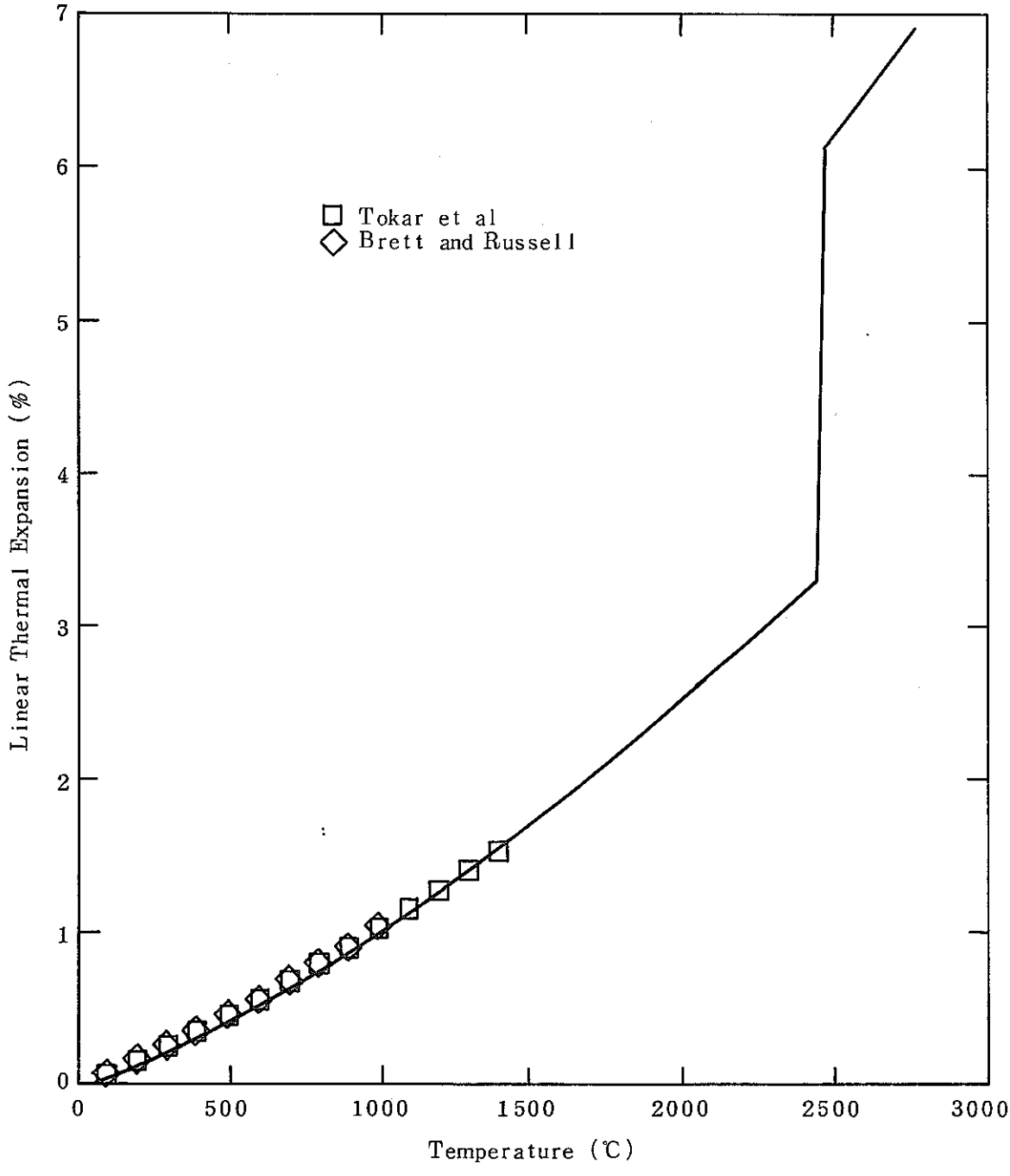


Fig. 2　PuO_2 thermal expansion

項　目　Thermal Expansion　　(5／6)

4. 参考文献

1. M.D.Burdick and H.S.Parker,"Effect of Particle Size on Bulk Density and Strength Properties of Uranium Dioxide Specimens," Journal of the American Ceramic Society,39, (1956)p181.
2. J.B.Conway,R.M.Fincel,Jr.,R.A.Hein,"The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO_2 to 2,200℃,"Transactions American Nuclear Society, 6, 1 (June 1963)
3. J.B.Conway,R.M.Fincel,Jr.,R.A.Hein,The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO_2 to 2,200℃, TM−63−6−6,General Electric Company (1963).
4. J.A.Christensen,"Thermal Expansion and Change in Volume of Uranium Dioxide on Melting,"Journal of the American Ceramic Society,46, 12(1963)p607.
5. M.Hoch and A.C.Momin,"High Temperature Thermal Expansion of Uranium Dioxide,"High Temperatures − High Pressures,1, 4(1969) p401.
6. J.Belle(ed.),Uranium Dioxide:Properties and Nuclear Applications,TID−7546USAEC(1961).
7. M.Tokar,A.W.Nutt,T.K.Keenan,"Linear Thermal Expansion of Plutonium Dioxide,"Nuclear Technology,17(February 1973)p147.
8. N.H.Brett and L.E.Russell,"The Thermal Expansion of PuO_2 and Some Other Actinide Oxides Between Room Temperature and 1,000℃,"in Plutonium 1960;E.Grison,W.B.H.Lord,and R.D.Fowler (eds.), Proceedings of the 2nd International Conference on Plutonium Metallurgy,Grenoble,France,April 19-22 1960,p 397.
9. J.Roth and E.K.Haltman,"Thermal Expansion of Copvecipitated $(U,Pu)O_2$ Powders by X-ray Diffraction Techniqus,"NUMEC-2389-9, Oct(1965)

項　目　Thermal Expansion　（6／6）

10. J.Roth et al, "The Effects of Stoichiometry on the Thermal Expansion of 20 wt% PuO_2-UO_2 Fast Reactor Fuel, Trans. Am. Nucl. Soc. 10(1967)457

11. B. F.Rubin et al, "Summary of $(U, Pu)O_2$ Properties Fabrication Method," GEAP-13582, (1970)

12. D. L.Hagrman, NVREG/CR-0497, TREE-1280, ReV 1.

Ⅱ−1.1.5

項　目　Thermal Expansion　（1／1）

対　象　Uranium Oxides

推送データ

PuO_2 −UO_2 の項で記してあるので，ここでは，はぶく。

Reference

(1) J.B.Conway, R.M.Fincel and R.A.Hein :The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO_2 to 2000℃, Trans.Am.Nucl.Soc., 6(1963)1, p.153.

(2) P.J.Baldock et al. :The X-ray Thermal Expansion of hear-Stoichiometric UO_2, J.Nucl.Mat. 18(1966)305-313

担当者　山口俊弘，小無健司

作成年月日　S55.1.31

項　目　Densification　　(1／2)

対　象　Mixed Oxide

混合酸化物燃料のやきしまりを扱ったモデル式は現存しない。しかし，EPRI[(1)]は，混合酸化物燃料について数多くの実験を行ない，混合酸化物の焼きしまりは，UO_2 の焼きしまり現象と同等に扱える事を示している。従ってここでは，UO_2の焼きしまりに用いた式を，混合酸化物燃料のやきしまりモデルとして推奨する。

以下にEEI／EPRIの実験において得られた結論を要約して示す。

1. 一般に混合酸化物燃料の焼きしまり挙動は，UO_2 燃料のそれと，類似していると言える。PuO_2 の添加によって混合酸化物燃料が焼きしまりに関連した新たな制限を課せられることはない。
2. UO_2 燃料の場合と同様に混合酸化物燃料にも安定なものと不安定なものがあり不安定なものでは，核分裂率，燃料温度及び燃焼度の増加とともに密度も増加する最も不安定な型のペレットでは最高5％TDの密度増加があった。又，安定型混合酸化物燃料の密度増加は1％以下であった。
3. O／M比は調べた6ケース中5ケースまでは，再焼結挙動に影響を及ぼさなかった。
4. 炉外再焼結試験は，炉内の高密度化挙動を安全側に予測する指標となり得る。

参考文献

(1) "Plutonia Fuel Study" EPRI NP-637 Project 396 Final Report January 1978

担当者　小無健司

作成年月日　S55．1．31

項　目　Densification　　(2 / 2)

1. Sample　　$(U,Pu)O_2$, PuO_2 content ; 0～6.4wt%

Density ; 90.6～95.1%T.D.

Grain size ; 2～16 um

2. Experimental Method

Density mesurement ; saturated water immersion technique

Porosity measurement

3. Experimental Condition

Fission rate : 14.8～17.5 fissions/cm^3 sec.

Burn up ; 915～3905 MWD/MTM

Center fuel temperature ; 1320～1575℃

4. Data

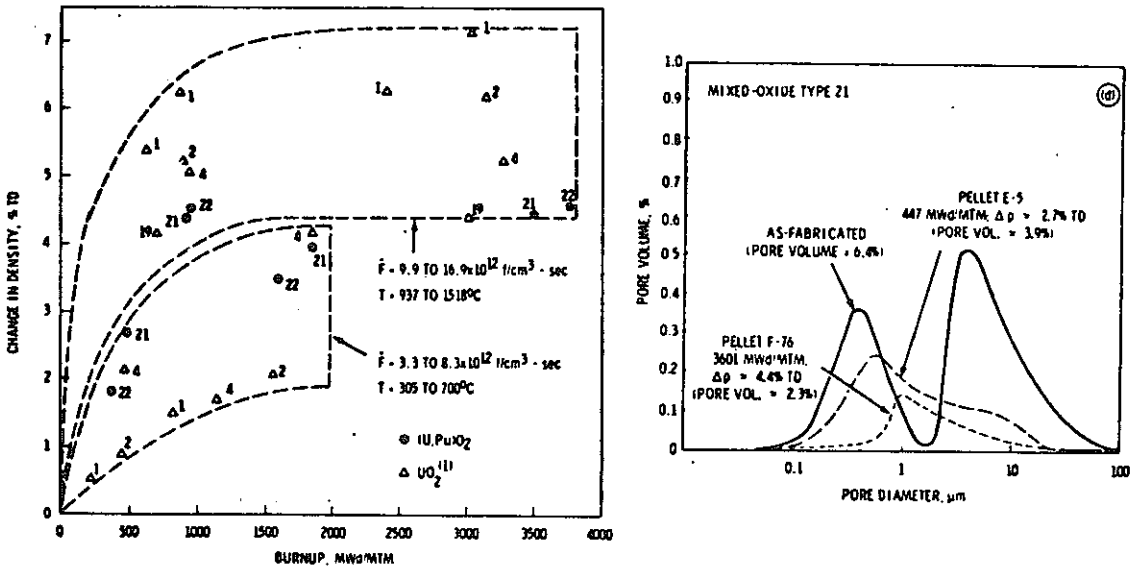


Fig. 1　The Effect of Burnup and Fission Rate/Fuel Temperature on the Densification Behavior of Unstable UO_2(1) and Mixed-Oxide Fuel Types Irradiated in Pins E and F

項　目　Densification	（1／4）

対　象　Uranium Oxide

焼しまり現象を調べた結果は，現在までに相当数報告されている。例えば，国外においては，ハルデン炉で行なわれた実験[1][2]，そしてＥＥＩ／ＥＰＲＩが行なった実験[3][4]の２つの広汎な実験があり，国内においては，日本原子力研究所がＪＭＴＲを用いて行なった焼きしまり実験[5]がある。

次に，これらの実験を評価して，モデルにまとめたものも，いくつか提出されており，焼きしまり現象の解析は，現在かなり進んだ段階に来ていると考えられる。しかし，実際の炉内での焼きしまり量に対して，普遍性のある定量解釈ができるまでにはまだ至っていない。

この原因として，炉内における焼きしまり現象そのものが，多くのパラメータ（例えば製造因子として，焼結温度，初期粒径，初期気孔率，気孔径分布，照射因子として，照射温度，核分裂速度）に依存し，これら全てを理論的に予測する事が困難であることが考えられる。従ってここでは，実用上の観点から，Ｍａｒｌｏｗ[6]やＳｔｅｈｌｅ Ａｓｓｍａｎ[7]等の純枠理論的モデルよりも現段階では実験式ではあるがＮＲＣのモデル[8]を推奨する。つまりＮＲＣのモデルでは焼きしまり現像を複雑にする要因と考えられる。燃料に関する製造因子を炉内燃きしまりに対応する炉外再焼結試験の結果で代表する事にしている。

このＮＲＣモデルは，実験値の正確な評価という面から考えるとかなり大ざっぱなものであるが，実用面では非常に簡単な式で焼きしまり量が評価できるという便利な点がある。又，これは，ハルデンプロジェクトによる実験及びＥＥＩ／ＥＰＲＩによる実験からの多くの測定結果を参考にして作成されており，この点からも信頼性が高いと考えられる。

このモデルの特徴は，焼きしまりによる密度変化が燃焼度の関数として表わされることと，炉内焼きしまりの最大値は炉外再焼結試験（1,700℃24hr）で得た密度変化の値を統計的に処理した数値で代用している事である。この後者における炉内一炉外間の等価性はＥＥＩ／ＥＰＲＩによる焼きしまり実験の結果[9]（Ｆｉｇ.1）及びハルデンでの実験結果に支持されている。

最後に，このＮＲＣモデルを用いて焼きしまりを評価した結果を（Ｆｉｇ.2）（Ｆｉｇ.3）に示す。（Ｆｉｇ.2）は，９２％ＴＤと９５％ＴＤとについてのグラフで（Ｆｉｇ.3）は８７％ＴＤについてのグラフである。

担当者　小無健司

作成年月日　Ｓ５５．１．３１

項　目　Densification　　（2／4）

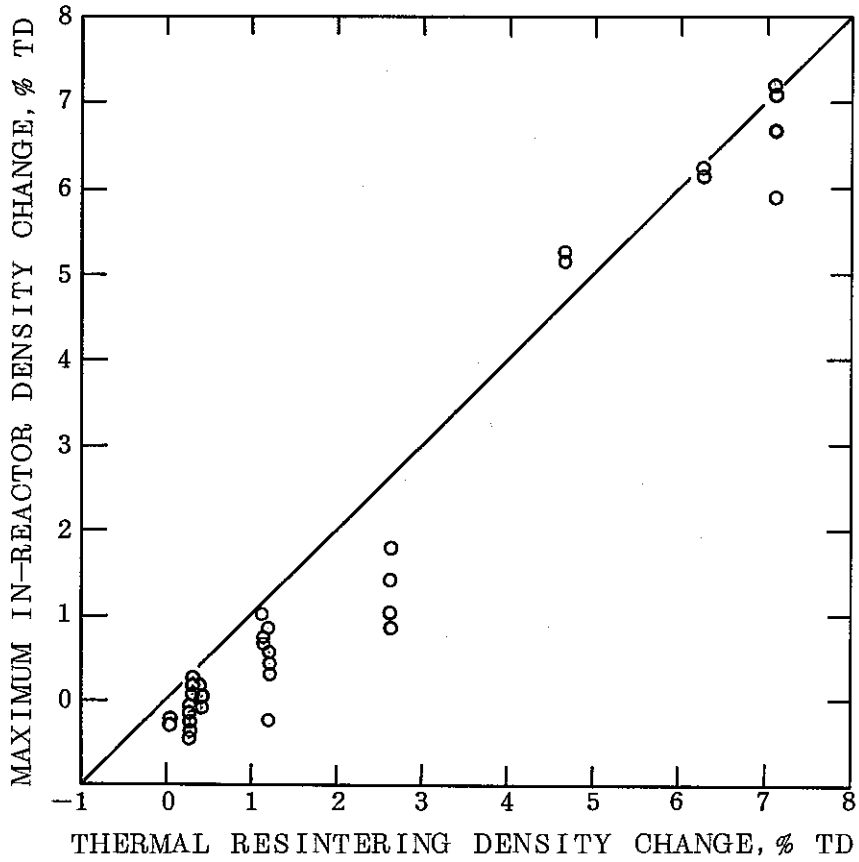


図1　焼きしまりによる稠密化と炉外熱処理試験（１７００℃−２４時間）結果との比較

項　目　Densification　（3／4）

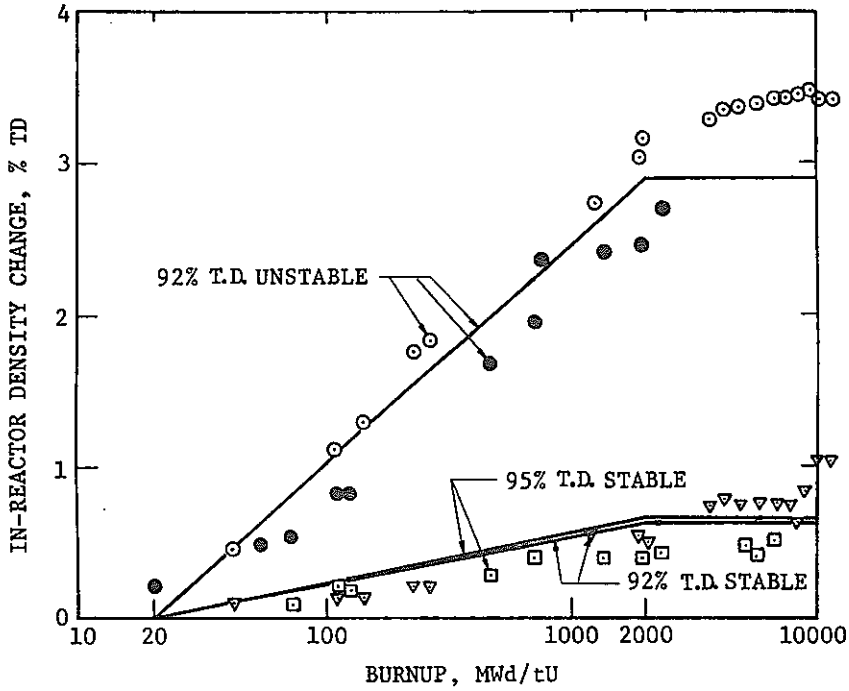


図2　NRCモデルによる計算値（実線で示す）とHaldenの焼きしまり実験結果（高密度燃料）

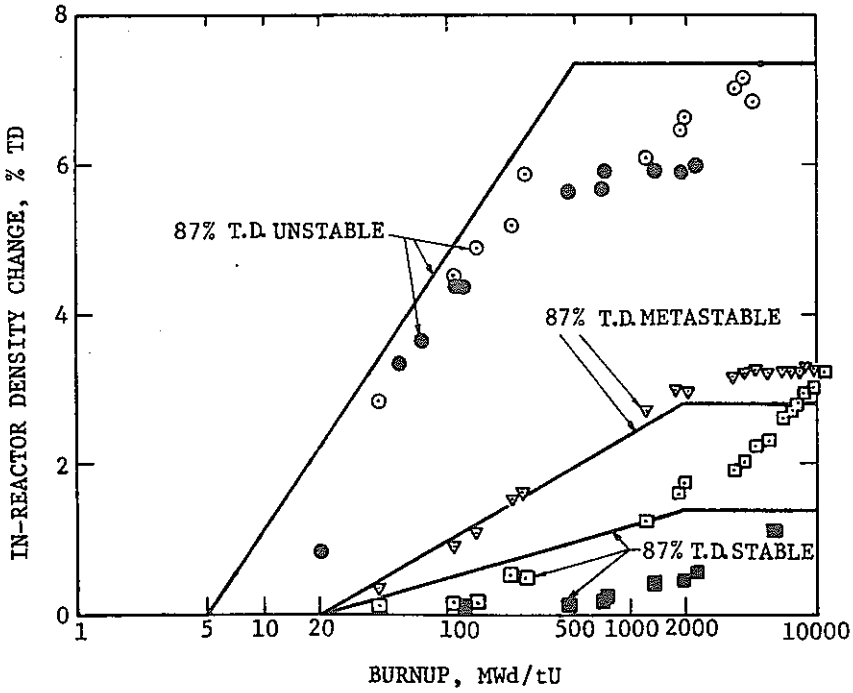


図3　NRCモデルによる計算値（実線で示す）とHaldenの焼きしまり実験結果（低密度燃料）

項　目　Densification　　（4／4）

参考文献

(1) A.Hanevik et al, "In Reactor Measurements of Fuel Stack Shortening", Paper №89 presented at BENS Nuclear Fuel Performance Conf., London (1973)

(2) OECD Halden Reactor Project, Quarterly Progress Report HPR−172 (proprietary) July to Sept (1974)

(3) M.D.Freshly et al.,"The Effect of Pellet Characteristics and Irradiation Conditions on UO−2Fuel Densification", Proc. Amer. Nucl. Soc./Can. Nucl. Assoc. Conf on Commercial Nucl. Tech. Today Toronto (1975) 2

(4) "EEI/EPRI Fuel Densification Project", EPRI131 Final Report March (1975)

(5) Uchida, M. et al.; JAERI−M6904 (1977)

(6) M.O.Mavlow, NEDO−12440 (1973)

(7) H.Stehle and H.Assmann, J.Nucl.Mat.61 (1976) 326

(8) USNRC Regulatory Guide, 1.126, March (1977)

(9) Meyer.P.O.; USNRC Report, NUREG−0085 (1976)

Ⅱ−1.3.1

項　目　Creep　（1／3）

対　象　Mixed Oxide

1. 推奨データ

下記の式を推奨する。

$$\dot{\varepsilon}=[A\sigma\exp(-100{,}000/RT)+B\sigma^{4.5}\exp(-140{,}000/RT)]\cdot\beta+C\cdot F\cdot\sigma$$

Where,

$\dot{\varepsilon}$＝Steady State creep rate of $(U, Pu)O_{2+x}$, (1／hr)

$A=3.1\times10^{7}\exp[33.3(1-D)]\cdot\exp(3.56X)/G^{3}$

$B=4.37\times10^{-4}\exp[10.3(1-D)]\exp(3.56X)$

$C=1.25\times10^{-22}$

σ＝stress, psi (1,000～10,000)

R＝1.987cal／mole／K

T＝Temperature (K)

D＝Density (0.88～0.95)

G＝Grain size, μ (4～35)

X＝Pu content ($0.2\leqq Pu/Pu+U\leqq0.3$)

β＝118.0(O／M−1.9415), ($1.95\leq O/M\leqq2.00$)

$\dot{F}$＝fission／cm³／sec

2. 推奨根拠

$(U, Pu)O_2$のクリープ変形速度は，温度，応力，密度，結晶粒径，O／M，Pu含有量および核分裂速度によって影響されるとしている。このうちの核分裂束の効果を除いては炉外で測定できる。

① 炉外クリープ（Thermal creep）

$(U, Pu)O_2$のクリープ速度の測定実験は初期のもとして1969年アメリカ（BNWL）

担当者　立花利道

作成年月日　S55.1.31

項　目　Creep　　（2／3）

のO.D.Slagle[1]の報告がある。これはO／Mが不明確であったことと荷重のかけ方が曲げ法であったためクリープ速度式として表示できるまでのデータは得られなかった。この後，1970年にイギリス（Harwell lab.）のJ.A.C.MarpleらはO／Mを制御し且つ圧縮法で測定し信頼性の高い（Pu,U）O_2のクリープデータを示した[2][3]。この実験はPu含有量をパラメータとしたのが特徴である。しかし，測定時の応力条件範囲は最大2,000psiであり，高応力クリープ（約6,000psi）をカバーすることはできない。また同時期にアメリカのM.D.Houstonら[4]は（U，Pu）O_2のクリープ速度に及ぼす密度の効果を測定した。この後，1971年にアメリカ（G.E）のS.K.Evansら[5]はPu含有量，密度，O／M，結晶粒をパラメータとして広い応力範囲（最大8,000psi）で測定している。

この他にアメリカ（G.E）のP.E.Bohaboyら[6]（文献(5)と一部重複），M.S.Seltzerら[7]，H.Assmanら[8]の測定報告がある。これらのデータはS.K.Evansのデータも含めて互に差はあまりない。しかし，荷重方法が圧縮法であるため応力値が明確であり，且つ，測定時の雰囲気コントロールも良くなされており，また，実験パラメータの種類も多く，パラメータの範囲が広いS.K.Evansら[5]のデータが最も適切と考えられる。

なお，Pu含有量25％に限れば，アメリカ（ANL）のJ.L.Routbortら[9]の実験式が最近のデータとして注目されるが，Pu含有量が変化する場合のデータとしては使えない。

今回は，上記S.K.Evansら[5]の提示式にさらに筆者がO／Mの効果を入れ修正した実験式を推奨式の2項のうち第1項炉外の（U，Pu）O_{2+x}の定常クリープ速度式として推奨する。

② 炉内クリープ

（U，Pu）O_2のクリープの照射効果についての主な報告は6件[10]〜[15]ある。

このうち，文献(11)は，炉内クリープ速度式として表示できるまでのデータはなく，文献(12)はDienstが15％PuO_2-UO_2の照射クリープに対する密度の効果を測定したが，試料密度は86，93.5％T.D.の2種類だけなので，密度効果データとしては充分とは言えないし，応力条件は1,422psiのみである。また，文献(15)に混合酸化物のクリープの照射効果としての表示式があるが，これはアメリカ（ANL）のSolomonがUO_2試料で測定したデータと考えられるのでDienstのデータと共に除外する。

アメリカ（Battlle columbus）のJ.S.Perrin等は22w／oPuO_2-UO_2の910〜1,125℃，応力2,000psiで照射クリープを測定し，1972年に結果を報告している[10]。この結果から$\dot{\varepsilon}_{irrad.}=(1.615\pm1.065)\times10^{-21}\sigma\cdot\dot{F}$と読みとれる。（ここで$\sigma$は応

項　目　Creep　　（3／3）

力，psiでφは核分裂速，f／cm³／sec）その後，フランス（CEA−CEN）のP. Combette P. Combetteらが700〜900℃，0〜4,000psiの範囲で15w／o PuO_2 −UO_2の照射クリープ速度を測定し，1976年[13]，1977年[14]に報告している。この報告によると，$\dot{\varepsilon}irrad = 1.25\times10^{-22}\sigma\cdot\dot{F}$と記されている。（U，Pu）$O_2$の照射クリープ速度を評価できる式として上記のJ．S．Perrinらのデータと P．Combetteらのデータがあるが互に一桁異っている。

J．S．Perrin等の測定条件にくらべて，P．Combetteらの測定条件は応力範囲が0〜3,770psiと広範囲であり，照射クリープ速度は応力に比例していることが明確にされており，且つ，核分裂速度が0〜6×10^{13} fission／cm³／secと広い。（Perrinの場合は1×10^{13} fission／cm³／sec）従って，（U，Pu）O_2の照射クリープ速度データとしてフランスのP．Combetteの提示式を（U，Pu）O_2の照射クリープ速度式として推奨する。

①，②より表社の式をクリープ速度式として推奨する。

3. 参考文献

(1) O.D.Slagle et al.：BNWL−971（1969）

(2) J.A.C.Marples et al.：AERE−R−6421（1970）

(3) J.A.C.Marples et al.：Nucl, Metall., 17（1970）497−508

(4) M.D.Houston et al.：Nucl.Metall., 17（1970）488〜496

(5) S.K.Evans et al.：GEAP−13732（1971）

(6) P.E.Bohaboy et al.：Nucl.Metall., 17（1970）478〜487

(7) M.S.Seltzer et al.：BMI−1906（1971）

(8) H.Assman et al.："Plutonium and Other Actinide"（1976）83

(9) J.L.Routbort et al.：J.Nucl.Mat., 44（1972）247−259

(10) J.S.Perrin et al.：J.Nucl.Mat., 42（1972）101−104

(11) R.A.Robinson et al.：J.Nucl.Mat., 24（1973）242−249

(12) W.Dienst et al.：J.Nucl.Mat.61（1976）185−191

(13) P.Combette et al.：CEA−CONF−3515（1979）

(14) P.Combette et al.：J.Nucl.Mat., 65（1977）37−47

(15) N.M.Tuttle et al.：J.Nucl.Mat., 65（1977）9−15

項　目　Creep　（1／3）

対　象　Uranium Oxide

1. 推奨データ

下記の実験式を推奨する。

$$\dot{\epsilon} = \frac{(A_1 - A_2\dot{F})\,\sigma \exp(-Q_1/RT)}{(A_3+D)G^2} + \frac{A_4\,\sigma^{4.5}\exp(-Q_2/RT)}{(A_5+D)} + A_6\sigma\dot{F}\exp(-Q_3/RT)$$

Where

$A_1 = 9.728\times10^{6}$

$A_2 = 3.24\times10^{-12}$

$A_3 = -87.7$

$A_4 = 1.376\times10^{-4}$

$A_5 = -90.5$

$A_6 = 9.24\times10^{-22}$

$Q_1 = 90{,}000$ cal／mole

$Q_2 = 132{,}000$ cal／mole

$Q_3 = 5{,}200$ cal／mole

$\dot{\epsilon}$ = creep rate $\frac{\text{in.}}{\text{in.}-\text{h}}$

$\dot{F}$ = fission rate〔8.4×10^{17} to 1.18×10^{20} fission／(m^3−sec)〕

σ = stress(1,000 to 16,000psi)

T = temperature °K（713 to 2,073°K）

D = Density（%T.D.）（92 to 98%T.D.）

R = 1,987（cal／mole／°K）

G = grain size（μ）

担 当 者　立花利道

作成年月日　S55．1．31

項　目　Creep　　（2／3）

2. 推奨根拠

最初にアメリカのG.E.のP.E.Bohaboyは，1969年にUO_2の密度，結晶粒径をパラメータとして広い温度，応力範囲（それぞれ1,440～1,760℃，1,000～15,000psi）で定常クリープ速度を測定し実験式を示した[1]。

その後，1970年にアメリカ（BMI）のM.S.Seltzer等は2,000℃の高温でクリープ速度を測定し[2]，Bohaboyの実験式を確認した。さらに新しくO／Uの効果についても測定した[3][4]。

A.A.SolomonはUO_2のクリープを炉内で測定し[5]，照射によるクリープへの効果として$\dot{\varepsilon}_{irrad.}=3.72\times10^{-23}\sigma F$を得て，Bohaboyの炉外での実験式を基に，照射効果も含めたUO_2のクリープ式[6]を示した。

J.S.Perrin等もUO_2の照射クリープを測定し，1971年にその結果を報告[7]している。この他に，UO_2の照射クリープに関し数件の文献たとえば[8]～[10]がある。

アメリカのOlsenは文献[1]～[10]のデータをまとめ，BohaboyそしてSolomonによって表示された実験式をもとに新しく作り直し，種々の条件でUO_2のクリープ速度を計算式として完成させた[11][12]。このOlsenの実験式は現在までのクリープ速度データを網羅しており（Fig.1参照）且つ適用範囲も広い。従って，この実験式をUO_2の定常クリープ速度計算式として推奨する。

項　目　Creep

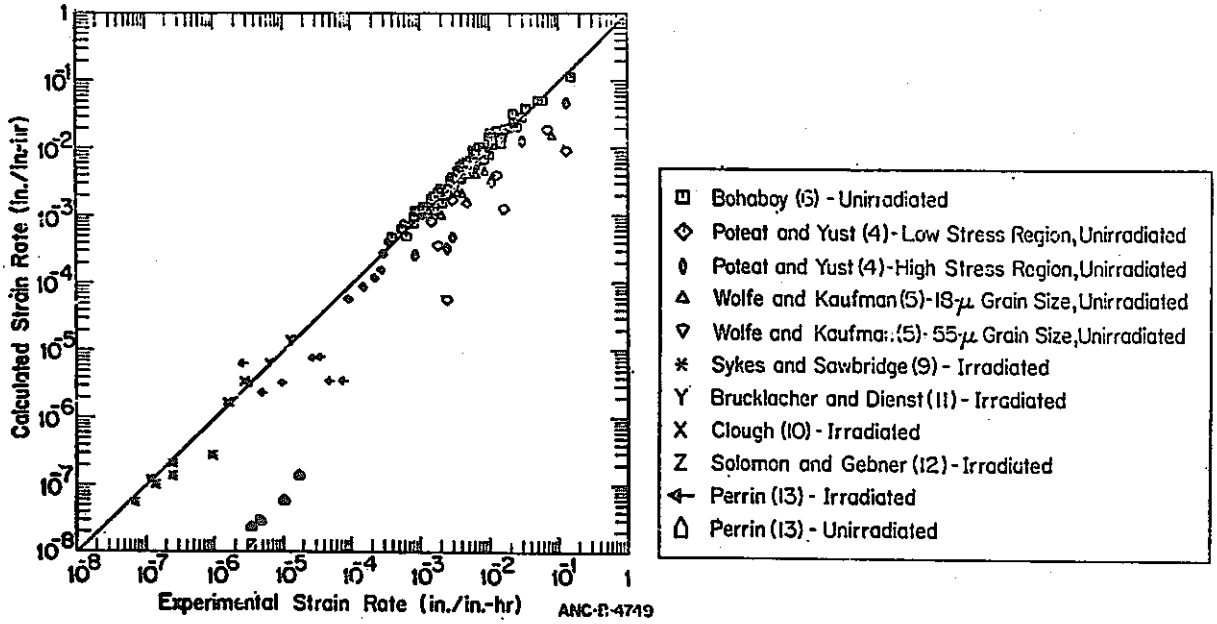


Figure 1: Comparison of experimental data for irradiated and unirradiated UO_2 with corresponding calculated values obtained from Equation (1).

3. 参考文献

(1) P.E.Bohaboy et al.;GEAP−10054(1969)

(2) M.S.Seltzer et al.; J.Nucl.Mat.34(1970)351−353

(3) M.S.Seltzer et al.; J.Nucl.Mat.44(1972)331−336

(4) M.S.Seltzer et al.; J.Nucl.Mat.44(1972)43−56

(5) A.A.Solomon ; J.of.Amer.Ceram.Soci., 56(1973)164−171

(6) A.A.Solomon ; ANL−7857(1971)

(7) J.S.Perrin ; BMI−1899(1971)

(8) E.C.Sykes et al.; BC／BW／1489(1969)

(9) D.J.Clough ; "Fast reactor fuel and fuel element" Karlsruke (1970)

(10) D.Brucklacher et al.; J.Nucl.Mat.36(1970)244

(11) C.S.Olsen ; Trans ANS 22(1975)210

(12) C.S.Olsen ; CONF−751101−16(1975)

Ⅱ−1.3.2

項　目　Young's Modulus　（1／2）

対　象　Mixed Oxide

1. 推奨データ

$$E=(20{,}789-0.929T-6.636\times10^{-4}T^{2})\times(2.03D-1.03)$$

ここで，

E＝ヤング率（kg／mm²）

T＝温　　度（℃）

D＝密　　度（Fraction）

2. 推奨根拠

（U，Pu）O_2のヤング率に関する文献は4件あり，いづれも（$U_{0.8}$，$Pu_{0.2}$）O_2を試料を使っての測定報告である。これらの文献を要約すると以下の通りである。

文献番号 年	著者名 測定方法	パラメータ	温度範囲	95%T.D.（$U_{0.8}$，$Pu_{0.2}$）O_{2+x}のヤング率（kg／mm²）
(1) 1965年	R.S.Porlano等 超音波法	−	R.T.のみ	$E_{(1)}$=18869
(2) 1971年	D.Vollath	（文献(1)を引用したもの）		
(3) 1969年	A.Pedel等 機械的共鳴法	O／M（1.962 2.00 2.08） 温　度	R.T.～ 1300℃	$E_{(2)'}$=18449（O／M=1.962） $E_{(2)''}$=16531（〃　=2.077） $E_{(2)'''}$=23112（〃　=2.00）
(4) 1970年	A.W.Nutt等 たわみ共鳴法	O／M（1.965 〜 2.005） 密　度	R.T.のみ	$E_{(3)}$=18500（O／M=1.98） （95%T.D.外挿値）

担当者　立花利道

作成年月日　S55.1.31

項　目　Young's Modulus　（2／2）

A.W.Nutt[4]はO／M＝1.965～2.005の範囲で詳細に，ヤング率に対するO／Mの効果を示している。これによるとO／Mが1.965～2.005の範囲でヤング率の変化は1％程度と知ることができる。また，A.W.Nutt[4]の文献より，測定技術上のバラツキは8％程度と理解できる。従って$E_{(1)}$，$E_{(2)'}$，$E_{(2)''}$，$E_{(2)'''}$，$E_{(3)}$ のうち$E_{(2)''}$は選定から除外すべきである。(なぜなら$E_{(2)''}$は他の値よりも約18％高めであるが，他は互いに約9％程度のバラツキ範囲に入っている。)

従って，

① 室温での値は$E_{(1)}$，$E_{(2)'}$，$E_{(2)''}$，$E_{(3)}$の平均値が適切と考えられる。（平均E＝18087 kg／mm²）

② O／Mの効果は無視しうると考えられる。

③ 試料密度の効果は文献(4)より，密度1％増加当りヤング率は2.03％高まるとすることができる。

④ ヤング率の温度の効果に関する文献はA.Pedel[3]の測定結果のみである。

よって①，②，③，④を基に表記の推奨式が考えられる。

3. 参考文献

(1) R.S.Porlano et al.: ANL−7101（1965）

(2) D.Vollath：EURFNK−968 KFK−1400（1971）

(3) A.Pedel et al：J.Nucl.Mat.33（1969）40

(4) A.W.Nutt et at：J.Amer.Ceram.Soc., 53（1970）205−210

NOTES：

100％T.D.のヤング率＝E_0とする。

密度1％低下当りヤング率は2.03％減らすとして，$E=E_0[1-2.03(1-D)]=E_0(2.03D-1.03)$がえられる。

項　目　Young's Modulus　（1／3）

対　象　Uranium Oxide

1. 推奨データ

表気に示す式を推奨する。

なお，Fig.1は上記の推奨式に従って算出したものである。

2. 推奨根拠

UO_{2+X} のヤング率の測定に関する主な文献は下記の5件である。

文献番号 年　代	著者名 （測定方法）	パラメータ	温度範囲	95%T.D. UO_2の室温でのヤング率（kg／mm²）
(1) 1958年	J. Belle等 （荷重変形法）	温　度	R.T.〜800℃	$E_{(1)}$= 19950 （95%T. D.に補正）
(2) 1959年	Wachtman等 （−）	温　度	R.T.〜1000℃	$E_{(2)}$= 19800
(3) 1967年	B. R. Skelding （荷重変形法）	密　度 （約78〜98%T.D.）	R. T.	$E_{(3)}$= 19500
(4) 1968年	G. Engelharde （−）	O／U （2.00〜2.16）	R. T.	−*
(5) 1969年	A. Pedel等 （機械的共鳴法）	密度（91%T.D. 93.5 〃 95.9 〃） 温　度	R.T. 〜1300℃	$E_{(5)}$= 19960 （95%T.D.に補正）

MOTES：* 文献(4)はヤング率のO／Uに対する変化のみのデータ

担当者　立花利道

作成年月日　S55.1.31

項　目　Young's Modulus　　(2／3)

UO_2のヤング率に対する密度の効果は文献(3), (5)に示されている。UO_2の密度が1％増加するとヤング率は，Skelding（文献(3)）とPedel（文献(5)）はそれぞれ4.5％，2.5％だけ高くなると示している。UO_2のヤング率に対する密度の効果としてこの両者の平均をとると密度1％の増加あたりヤング率は3.5％高まることになる。

現在，密度をパラメータとしてのUO_2のヤング率の測定はこの2件である。従って密度の効果は上記値（3.5％）が適切と考えられる。この値に従って95％T.D.UO_2のヤング率を列挙すると上記の表に示す値となる。これらの値$E_{(1)}$,$E_{(2)}$,$E_{(3)}$,$E_{(5)}$の平均値（E）はE＝19800kg／mm²であり，$E_{(1)}$～$E_{(5)}$の間のバラツキは1％程度であり，非常に小さいと云える。
（なぜなら，Skelding（文献(3)）のデータポイントから，測定技術上のバラツキは10％程度と理解できるから）

従ってUO_2（95％T.D.）の室温でのヤング率は$E_{(1)}$～$E_{(5)}$の平均値E＝19800が最適と考えられる。

次にヤング率に対する温度の効果は文献(1), (2), (5)に示されている。

文献(1), (2), (3)によると，いづれも1000℃でのヤング率は室温でのヤング率にくらべて，10％程度低下している。

ヤング率に対する温度の影響度合は，文献(1), (2), (3)いずれも同程度であるが，ここで測定温度範囲が最も広い文献(5)から温度の効果の項として推奨するのが最適と考えられる。

よって，上記で示したヤング率に及ぼす密度の効果，温度の効果をまとめると下記の推奨式ができる。

（なお，ヤング率に対するO／Uの効果は文献(4)に記されているがこの文献値の測定バラツキは15％もあるため，今回不採用とする。従って現在のところ，ヤング率に対するO／Uの効果は無視するとする。）

$$E_{T}^{UO_2} = (24{,}000 - 2.170T - 2.472\times10^{-4}\,T^2)\times(3.5D - 2.5)$$

ここで　$E_{T}^{UO_2}$＝T℃におけるUO_2のヤング率（kg／mm²）

T　＝温度（℃）　（1300℃以上は外挿値となる。）

D　＝UO_2の密度割合（$0.78 \leqq D \leqq 0.98$以外は外挿となる。）

項　目　Young's Modulus　（3／3）

3. 参考文献

(1) J. Belle at al.; TID-7546(1958)

(2) Wachtman; WADC-TR-C9-778(1959)

(8) B.R. Skelding; AERE-Tr-1094(1967)

(4) G. Engelhardt et al.; KFK-729(1968)

(5) A. Pedel et al.; J. Nucl. Mat. 33(1969)40

MOTES : 100%T.D.のヤング率＝E_0 とする。

密度1%減少当りヤング率は3.5%下るのだから

$E = E_0 [1 - 3.5(1 - D)]$

$= E_0 (3.5D - 2.5)$ となる。

項　目　Poisson's Ratio　（1／1）

対　象　Mixed Oxide

1. 推奨データ

$\nu = 0.280$

2. 推奨根拠

UO_2 のポアソン比の測定に関する文献はある。[1][2] しかし（U，Pu）O_2 のポアソン比の測定に関する文献は見あたらない。

1970年にA. W. Nutt[3] は室温で77～87%T.D.（$Pu_{0.2}$，$U_{0.8}$）O_2のヤング率と剛性率とを同時に測定している。これらのデータより弾性公式*を使ってポアソン比が示されている。

現在のところ，（U，Pu）O_2 のポアソン比に関するデータは上記のA. W. Nuttのデータから得られる以外ないので，これを推奨する。

なお，A. W. Nutt はポアソン比に及ぼす（U，Pu）O_2 の密度効果はないと記している。

3. 参考文献

(1) S. M. Lang ; U. S. Nat. Bur. Standard, Monograph 6 (1960)

(2) B. R. Skelding ; AERE−Tr−1094 (1967)

(3) A. W. Nutt et al. ; J. Amer. Ceram. Soc., 53 (1970) 205～210

NOTES : * $\nu = \frac{E}{2G} - 1$

ν = ポアソン比

E = ヤング率（kg／mm²）

G = 剛性率（kg／mm²）

担当者　立花利道

作成年月日　S55.1.31

項　目　Poisson's Ratio　（1／1）

対　象　Uranium dioxide

1. 推奨データ

$\nu = 0.319 - 0.340P$

ここで　ν ＝ポアソン比

$P = (1 - D)$　D＝fractional density

2. 推奨根拠

UO_2 のポアソン比に関する測定報告例は，

(1) 1960年のS. M. Langの報告[(1)]

(2) 1967年のB. R. Skeldingの報告[(2)]がある。

1960年にS. M. Langは93.0％T. D.と94.5％T. D.のUO_2 のポアソン比を実測し報告している。

その後，1967年にB.R. SkeldingはUO_2 のポアソン比に及ぼす密度の効果を調べ，この結果下記の実験式を示した。

この実験式から得られるポアソン比の値はLang のデータと良く一致している。従って，密度の効果が入っているSkelding の下記の実験式を推奨する。

$\nu = 0.319 - 0.340P$

ここで　ν ：UO_2 のポアソン比

P：1−D〔 DはUO_2 の密度(Fraction)〕

3. 参考文献

(1) S. M. Lang ； U. S. Nat. Bur. Standard, Monograph 6 (1960)

(2) B. R. Skelding ； AERE−Tr−1094(1967)

担当者　立花利道

作成年月日　S55.1.31

項　目　FCCI（Fuel−Cladding Chemical Interaction）　（1／15）

対　象　20Percent CW316SS

1. まえがき

高速炉用燃料被覆管には一般にオーステナイト系ステンレス鋼が用いられるが，各国で採用しているステンレス鋼の種類は組成，加工度等にわずかの相違が見られる。

例えば，316SS，304，1.4988，CW材，ST材等である。しかしながら，腐食への被覆材の違いの影響は小さいと考えられるので，ここではオーステナイト系ステンレス鋼をまとめて取扱う。

2. 各国（各研究機関）での照射試験データ

現在までに公表されている各国（各研究機関）の炉内腐食データを次にまとめる。

2.1 HEDL（1−11）

HEDLにおいては，Weber et al.[1]がFCCIに対する燃料初期O／M比の影響を調べたのを始め，最近に到る一連のHEDL−P23照射試験（2−11）においてO／M 燃焼度，温度等の主要パラメータの影響を系統的に調べている。

Fig. 1 に公表されている全てのデータを示す。

2.2 GE（12−20.3）

GEではPerry et al. を中心とした試験のデータが報告されているだけであり，最近の報告は見られない。Fig. 2にGEのグループが報告しているデータを示す。

2.3 ANL（21−26）

ANLのグループによるデータとしてはGEと同様に1971〜1972年に報告されたものがあるのみである。

Fig. 3 にNUMECのデータも加えた腐食結果を示す。

2.4 UK（27−29）

UKにおいてはDERE（Dounreay）とHaywellの研究者によりDFRを用いての統計的な照射試験が行われている。UKでの試験に特徴的な事は燃料にVIPAC（振動充填）

担当者　八登唯夫

作成年月日　S55.1.31

燃料とANNULAR（中空）ペレットを用いている事である。

Fig. 4に腐食データを示す。

2.5 Germany, Belgium[30−42]

西独とベルギーにおいてはKarlsruhe, ITU(European Institute for Transuranium Elements), Belgonucleaire, MOLの研究者らによりBR−2, DFR, Rapsodie の各炉を用いてSNRタイプ燃料ピンの照射試験が行われている。

Fig. 5に腐食データを示す。

2.6 France[43, 44]

フランスにおいては以前に1本のピンについての照射結果[43]が報告された他，最近，Rapsodie及びPhenix の両炉における実炉燃料の運転実績[43]が報告されている。

Fig. 6にはPhenix炉での照射データを示す。

2.7 PNC[45−47]

PNCではJOYO, MONJU仕様の燃料をDFR及びRapsodie 炉を用いて一連のDFR332シリーズ，PNCシリーズの照射試験を行っている。Fig. 7には腐食が観察されたシリーズのデータを示す。

3. 照射データの評価

炉内でのFPによる被覆管の腐食において最も影響の大きい因子は温度，燃焼度，O／M比であり，影響のそれ程大きくない因子は線出力，燃料密度（形態），被覆材質等である。[45]炉内の腐食に影響する因子はこの様に非常に多くその上，これらの因子の幾つかは相互に関連しているため，個々の因子について影響を評価するのは非常に難しい。

一般に，炉内腐食データは次の2通りの方法で評価される。

① 諸因子の影響をコントロールして得た限られたデータから腐食深さの平均値を求める。

② できるだけ多くのデータから最大値を求める。

①の方法は製造及び照射履歴等の個々のデータに関する条件が同等な場合にのみ採用できる方法であり，普通は各研究機関毎に行われる。例えば，HEDLではP−23シリーズの照射データから，幾つかの腐食深さの式を推奨している。[2−11]

②の方法は最大腐食深さを評価する場合にとられる方法であり，データを統計的に扱うために

できるだけ多くのデータが必要である。本物性データにおいては②の最大腐食深さの評価を行う。

Fig.1から7の各国(研究機関)のデータをまとめてFig.8に示す。この際，腐食深さが極端に大きいデータは省いた。

Fig.8で腐食深さの最大値を実線で示すが，幾つかのデータを除いて各国(研究機関)のデータは全てこの実線の中に入る。Fig.8より，被覆管の内面腐食は約450℃以上で始まり，温度増加と共に腐食深さは直線的に増加する。そして約600℃で腐食深さは飽和し，飽和値は約130μmである事がわかる。次に，腐食深さに対する燃焼度の影響を見るためにFig.1から7のデータを横軸を燃焼度として表わした図をFig.9に示す。この場合もほぼ全てのデータは実線で示す最大値の中に収まる。Fig.9より腐食は照射初期から始まり，燃焼度と共に腐食は直線的に増加する。そして約6at.% B.U.で飽和する。燃料初期O／M比の影響はWeber et al.[1]，Ellis et al.[19]，Neiwark et al.[25]らにより調べられている。Roake et al.[3]は彼らのデータをFig.10に示す通り整理している。Fig.10から明らかな様にO／Mが約1.93以上で腐食は始まり，O／M増加に対して腐食深さは直線的に増加する。

以上より，腐食が飽和に至るまでの最大腐食深さDと温度，燃焼度O／M比の間の関係は次式で表わすことが出来る。

$$D = K \cdot BU(T-450)(O/M-1.93)$$

そして，BU=6at.%，T=600℃，O／M=2.00でD=130μm

より，　K=2.06である。

4. 結　論

高速炉用ステンレス鋼被覆管の炉内での最大腐食深さは被覆管内面温度，燃焼度，燃料初期O／M比と次式で関係づけられる。

$$D(\mu m) = 2.06\,BU(T-450)(O/M-1.93)$$

$$(BU \geqq 0\,at.\%,\ T \geqq 450℃,\ O/M \geqq 1.93)$$

但し，　BU≧6の時はBU=6

T≧600の時はT=600

とする。

項 目　FCCI(Fuel−Cladding Chemical Interction)　(4／15)

参考文献

(1) I. W. Weber et al. Trans. ANS 14(1971)175.

(2) J. W. Weber et al. ibid. 23(1976)154, 155.

(3) W. E. Roake et al. IAEA − IWGFR／16(1977)137.

(4) US−UK Technical Exchange Report. HEDL−S／A−13635(1977).

(5) D. C. Hata et al. Trans. ANS 27(1977)233.

(6) L. A. Lawrence et al. ibid. 27(1977)235.

(7) L. A. Lawrence et al. HEDL−SA−1470−S(1978).

(8) L. A. Lawrence et al. HEDL−SA−1527−FP(1978).

(9) L. A. Lawrence et al. Trans. ANS 28(1978)210.

(10) L. A. Lawrence et al. Nucl. Tech. 42(1979)195.

(11) L. A. Lawrence at al. Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance(1979) 432.

(12) K. J. Perry et al. Trans. ANS 12(1969)564.

(13) K. J. Perry et al. GEAP−10385(1971).

(14) W. H. McCarthy et al. GEAP−13735(1971).

(15) K. J. Perry et al. Trans. ANS 14(1971)17.

(16) K. J. Perry et al. Int. Conf. Fast Reactor Fuel Element Technology (1972)411.

(17) W. H. McCarthy et al. Nucl. Tech. 16(1972)171.

(18) W. H. McCarthy et al. Trans. ANS 17(1973)193.

(19) J. A. Ellis et al. ibid. 19(1974)124.

(20) M. G. Adamson et al. GEAP−14075(1976)

(21) C. E. Crouthamel et al. ANL−7825(1971)5.33.

(22) P. S. Maiya et al. ANL−7887(1971)5.27

(23) C. E. Johnson et al. Int. Conf. Fast Reactor Fuel Element Technology (1972)393.

(24) J. D. B. Lambert et al. ibid(1972)517.

(25) Neimark et al. Nucl. Tech. 16(1972)75.

(26) J. D. B. Lambert et al. ANL−RDP−3(1972).

(27) W. Batey et al. J. Brit. Nucl. Eng. Soc. 13(1974)49.

(28) W. Batey et al. IAEA−IWGFR/16(1977)97.

(29) K. Q. Bagley et al. Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance(1979)233.

(30) W. Dienst et al. KFK−1736(1973).

(31) O. Götzmann et al. KFK−1803(1973).

(32) K. Ehrlich et al. KFK−1864(1974).

(33) K. Ehrlich et al. KFK−1960(1974).

(34) O. Götzmann et al. J. Nucl. Met. 52(1974)33.

(35) Ph. Dünner et al. Reactortag. 7(1975)423.

(36) M. Coquerelle et al. Trans. ANS 20(1975)257.

(37) W. Dienst et al. KFK−2218(1976).

(38) M. Coquerelle et al. Nucl. Energ. Matur. 3(1976)363.

(39) O. Götzmann et al. IAEA−IWGFR/16(1977)43.

(40) B. Steinmetz et al. ibid. (1977)48.

(41) W. K. Biermann et al. Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance(1979)569.

(42) D. Haas et al. Nucl. Tech. 34(1977)75, BN7612−04(1976).

(43) M. Conte et al. IAEA−SM−173/7(1974)197.

(44) M. Conte et al. IAEA−IWGFR/16(1977)27.

(45) M. Koizumi et al. ibid. (1977)64.

(46) K. Uematsu et al. ibid. (1977)79.

(47) K. Uematsu et al. Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance (1979)16.

項　目　FCCI(Fuel-Cladding Chemical Interaction)　(6/15)

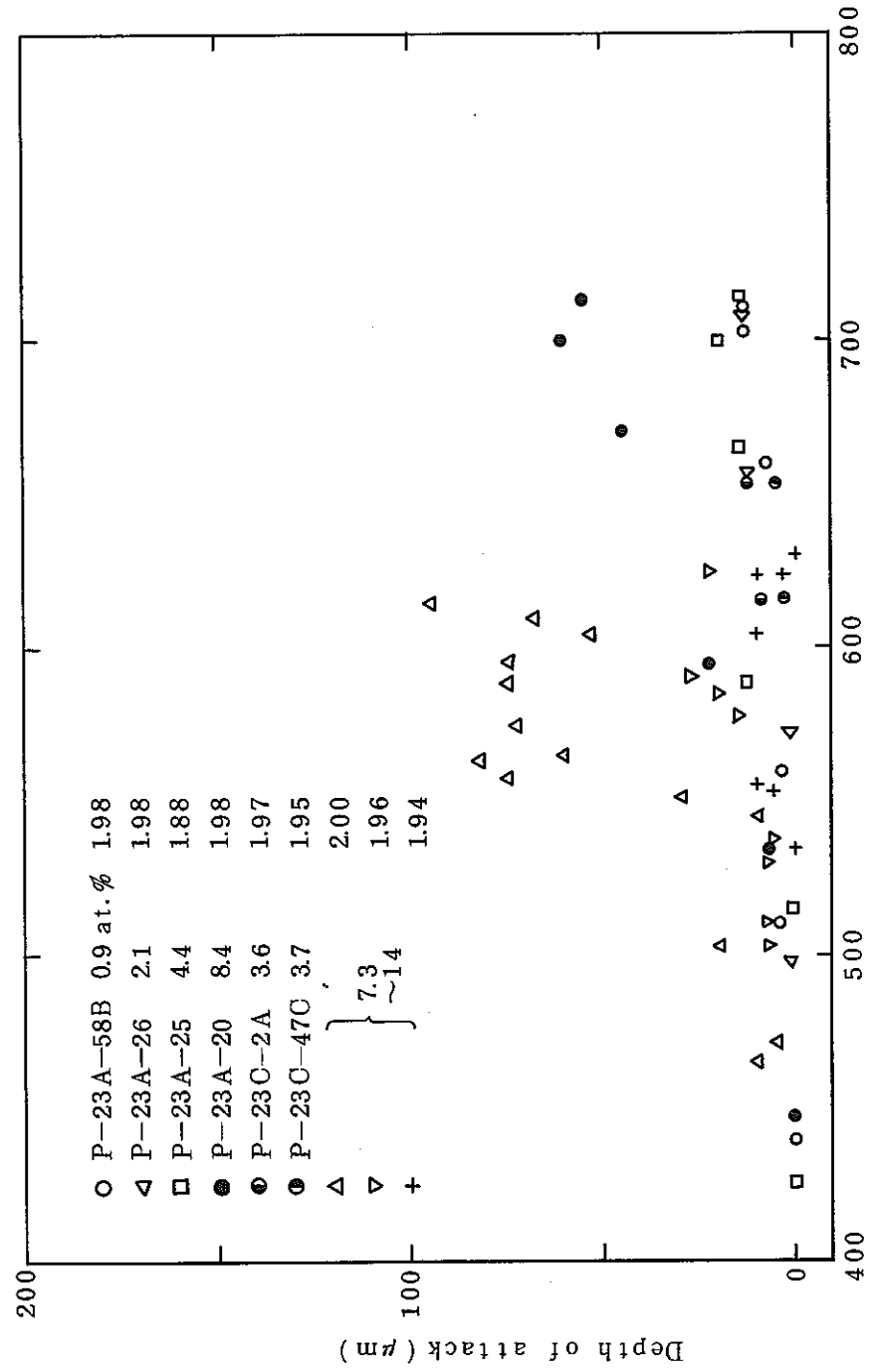


Fig.1. FCCI in-pile data at HEDL.

項　目　FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interction)　(7/15)

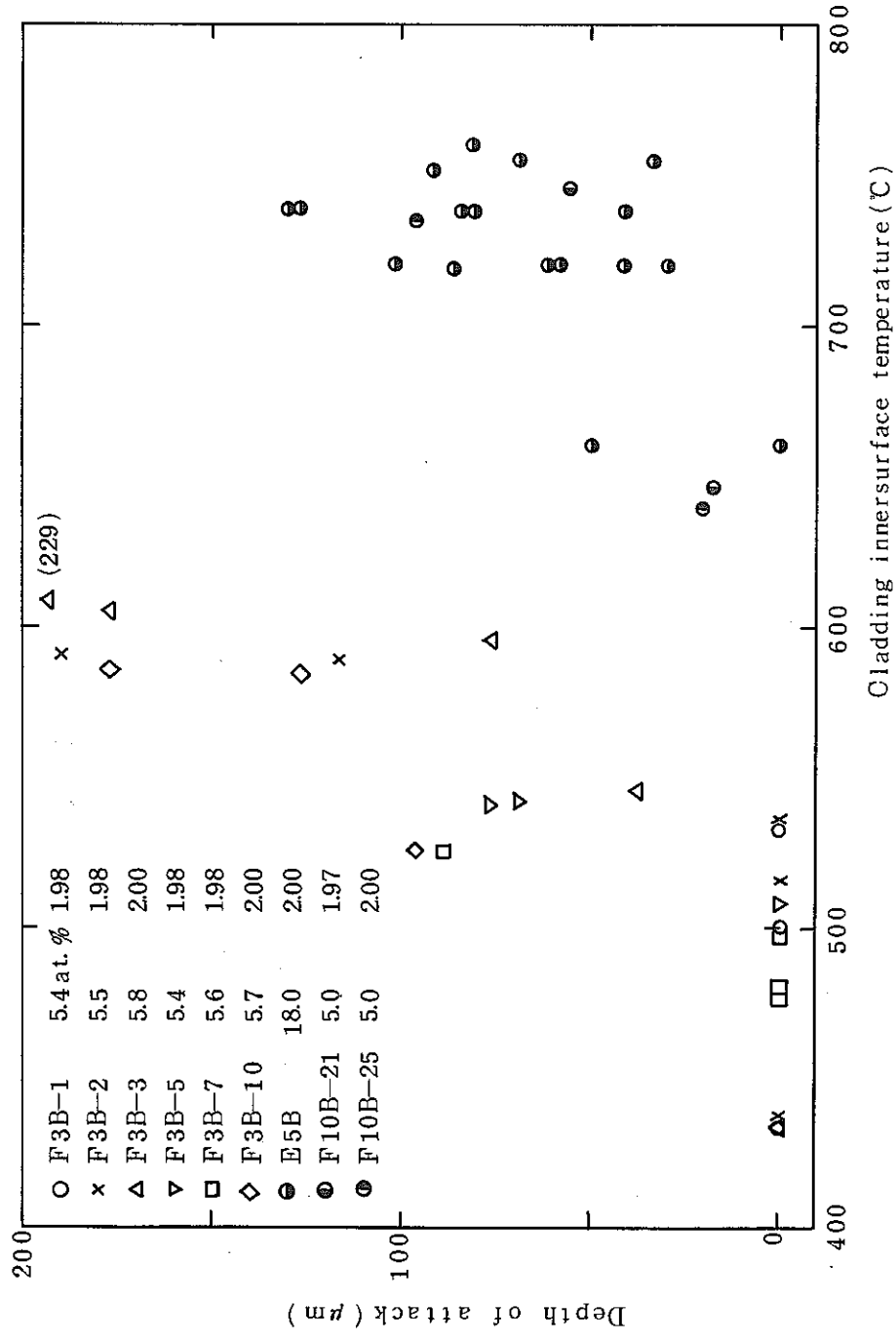


Fig. 2 FCCI in-pile data at GE.

項　目　　FCCI(Fuel−Cladding Chemical Interaction)　　(8 /15)

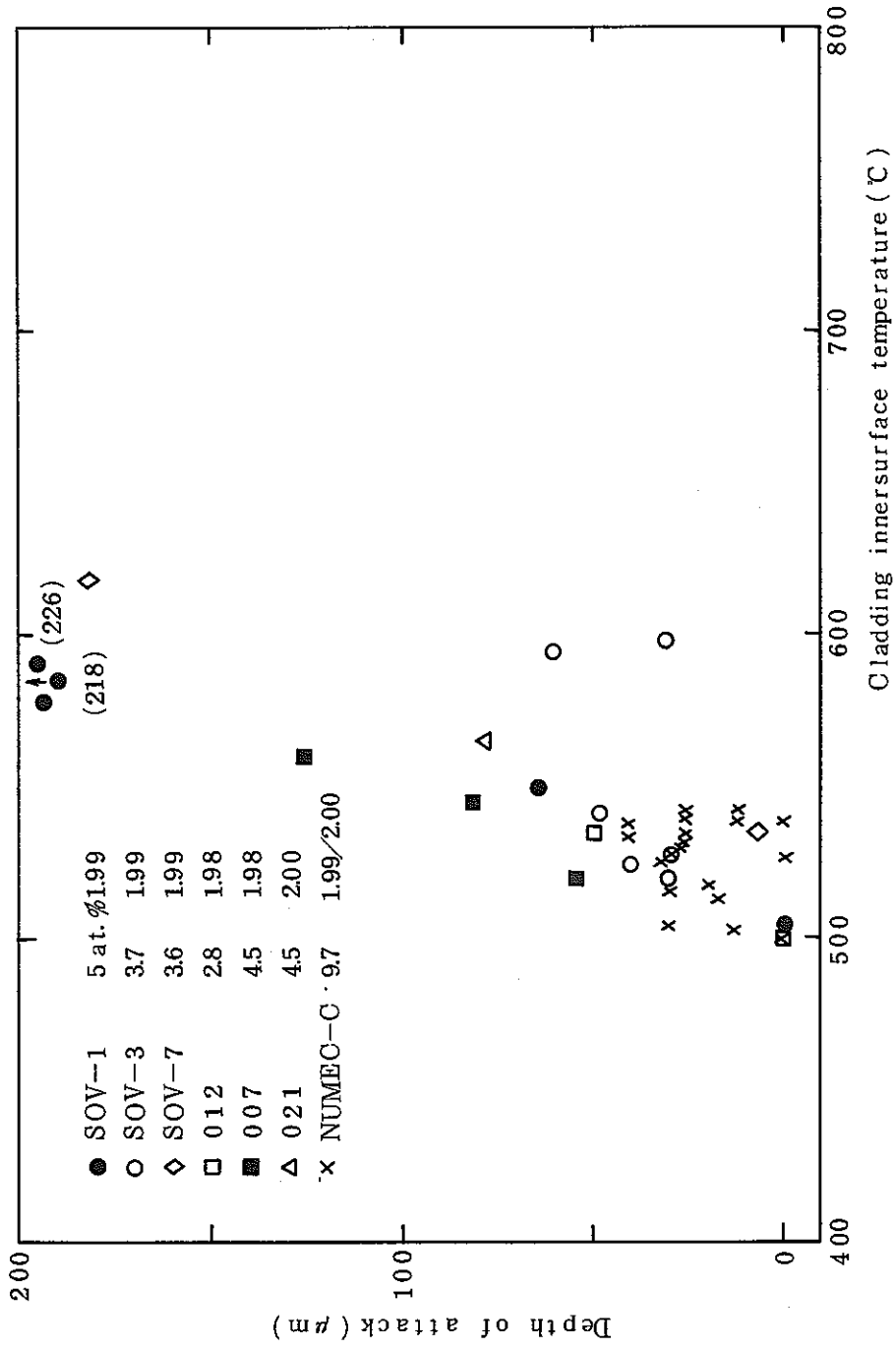


Fig. 3. FCCI in−pile data at ANL.

項　目　　FCCI (Fuel−Cladding Chemical Interaction)　　(9／15)

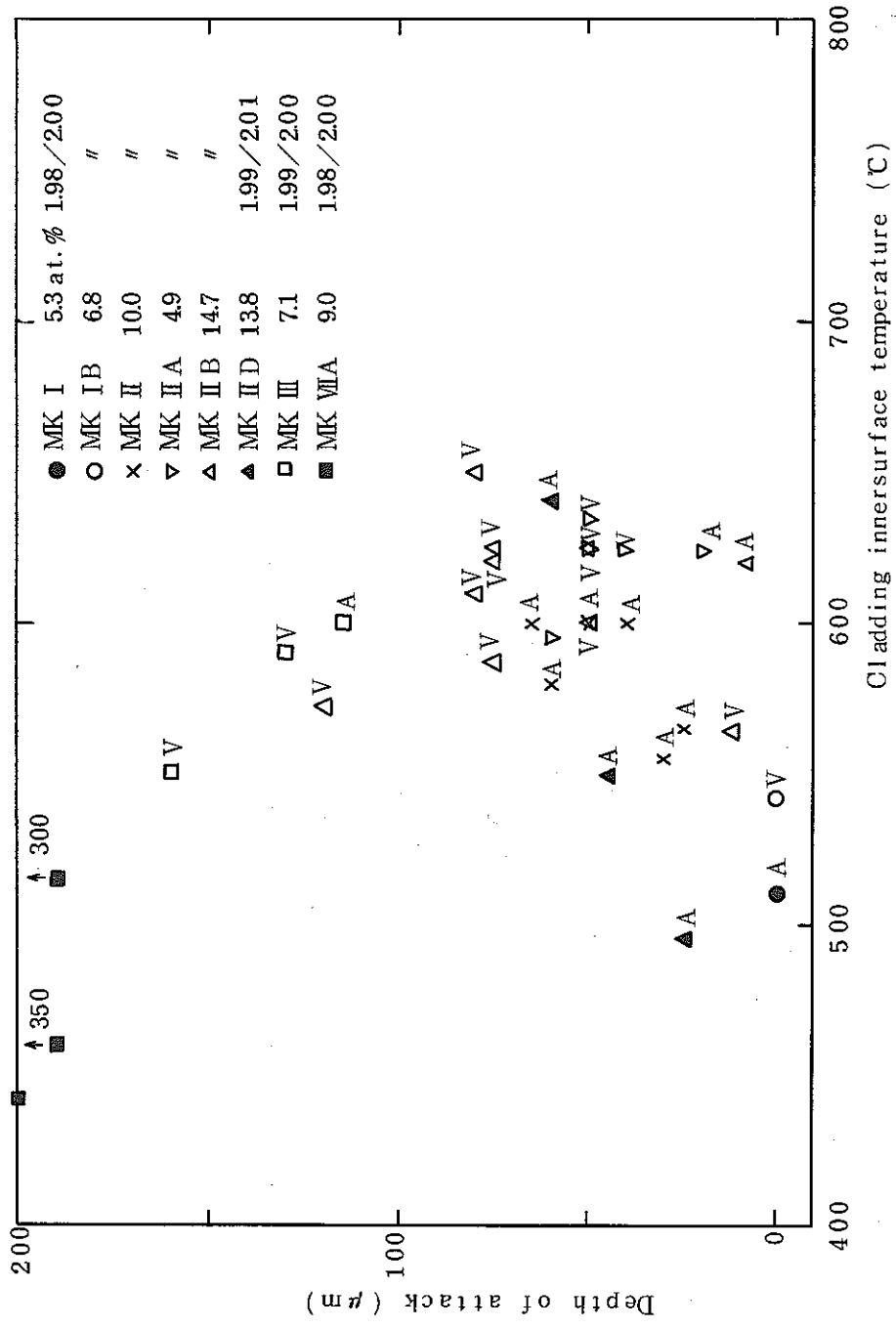


Fig.4. FCCI in−pile data in UK.

項　目　FCCI(Fuel−Cladding Chemical Interection)　(10／15)

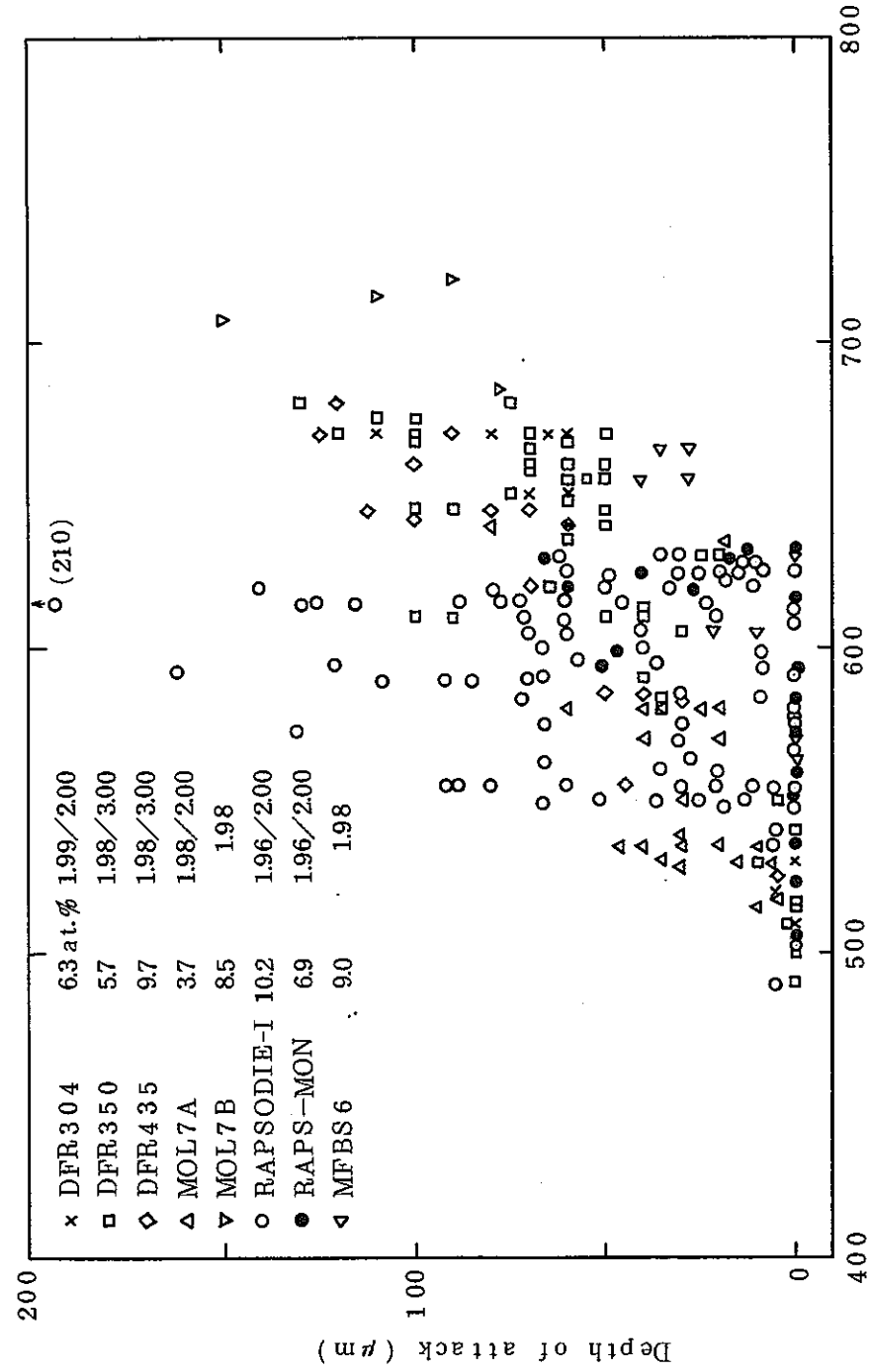


Fig.5. FCCI in-pile data in Germany and Belgium.

項　目　FCCI(Fuel-Cladding Chemical Interaction)　(11/15)

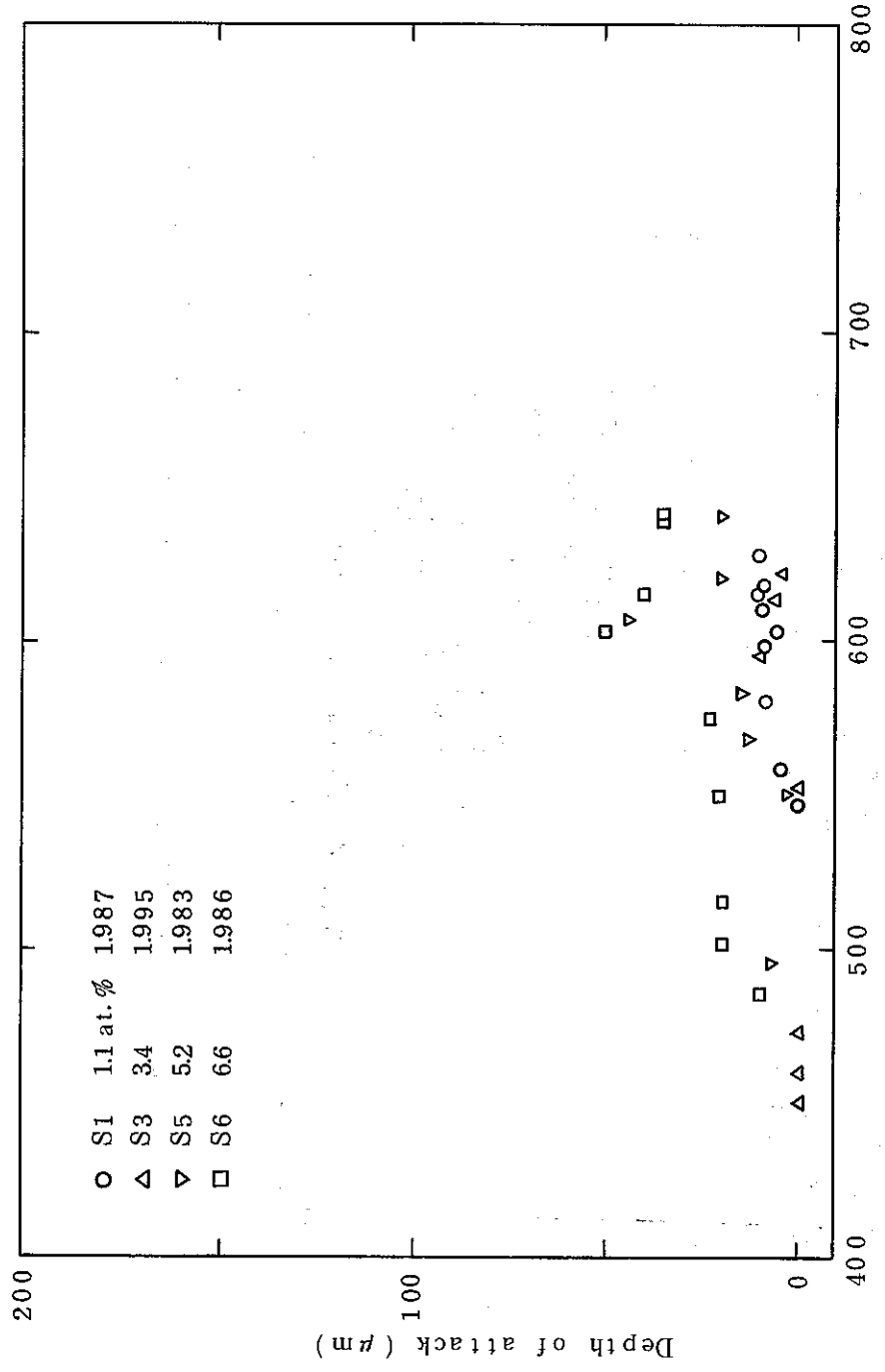


Fig. 6. FCCI in-pile data in France.

項　目　FCCI(Fuel−Cladding Chemical Interaction)　(12／15)

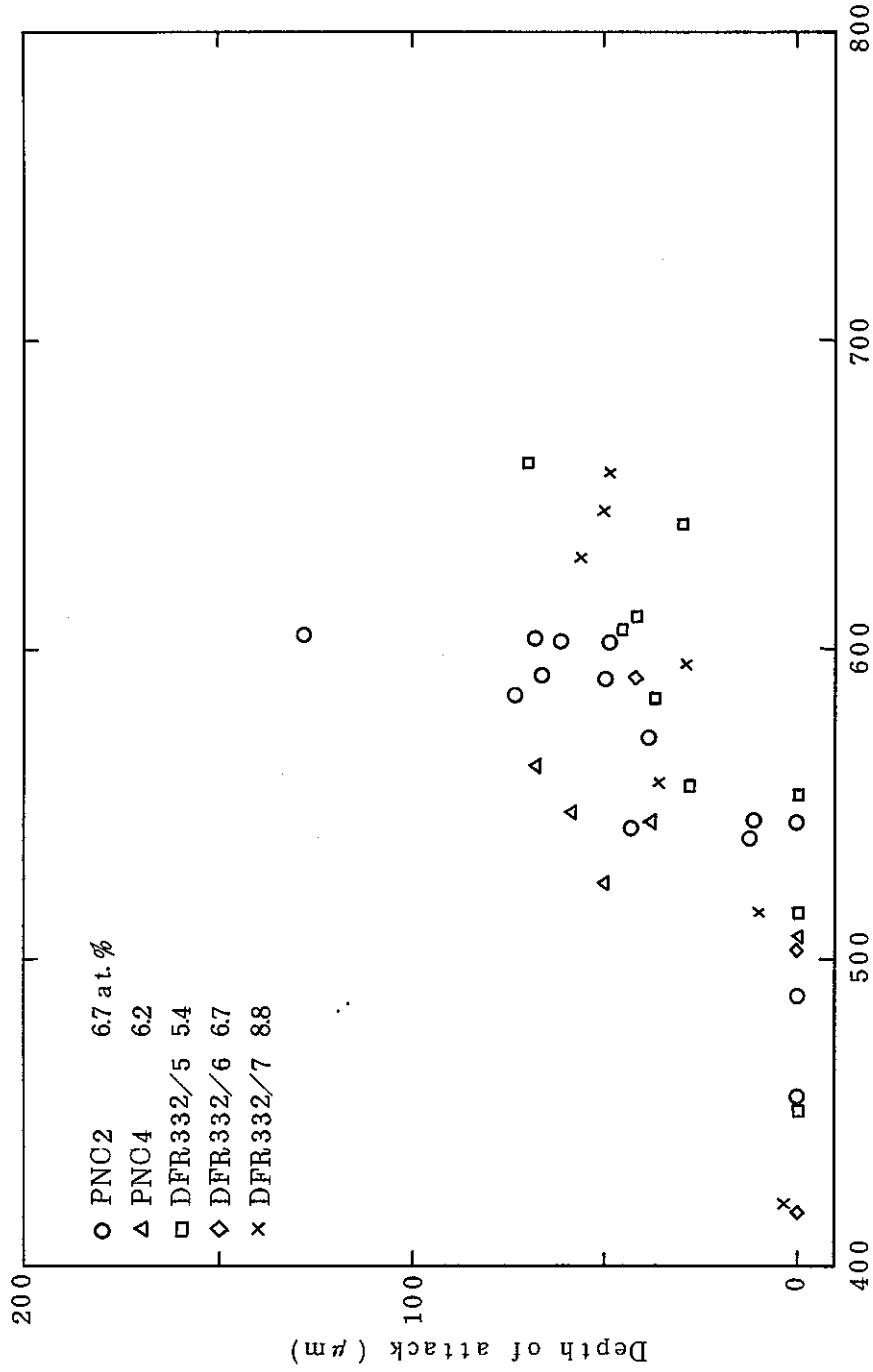


Fig. 7. FCCI in−pile data at PNC.

項　目　　FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interaction)　　(13／15)

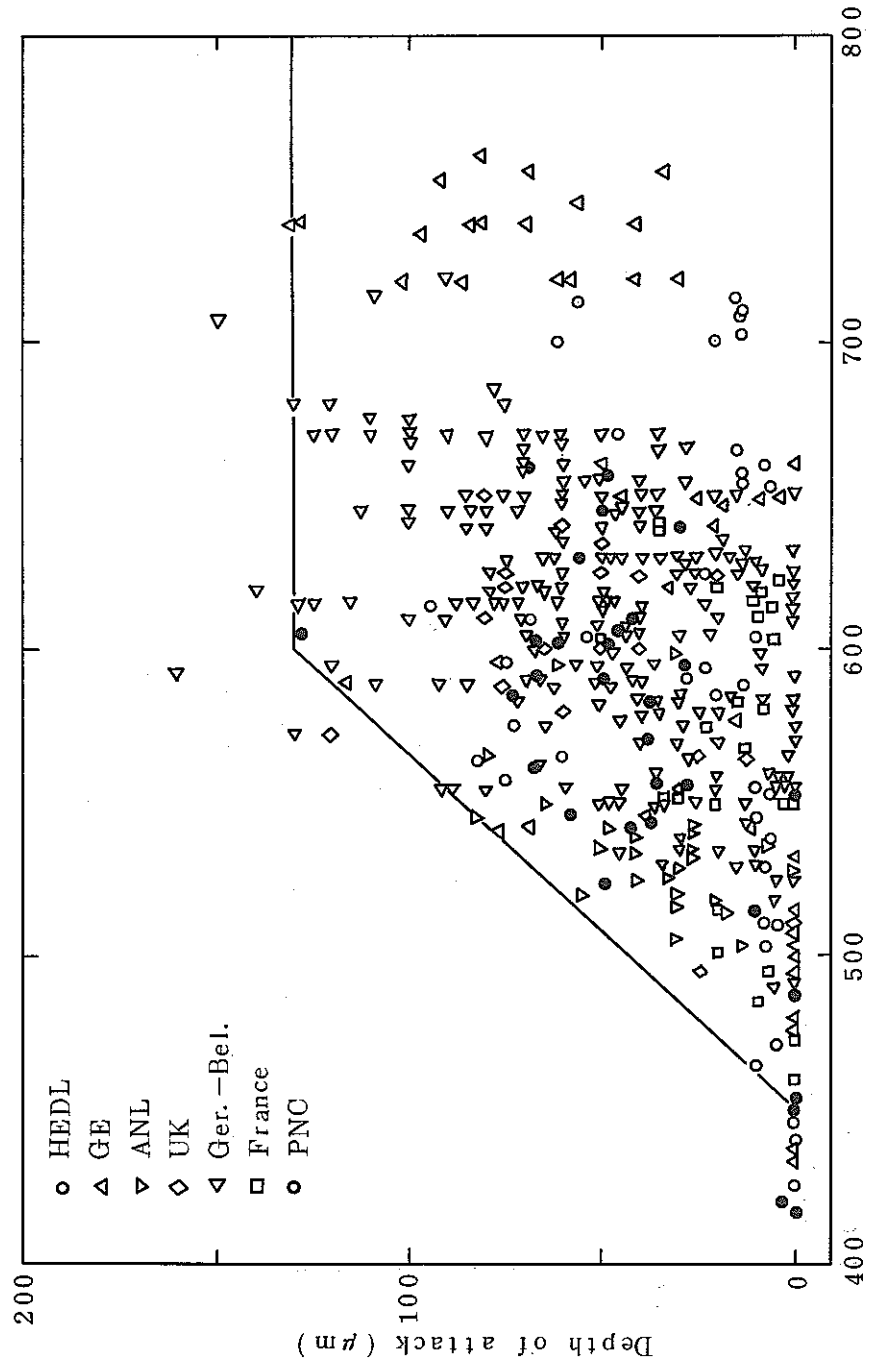


Fig.8. FCCI attack depth as a function of temperature.

項　目　FCCI(Fuel−Cladding Chemical Interaction)　(14／15)

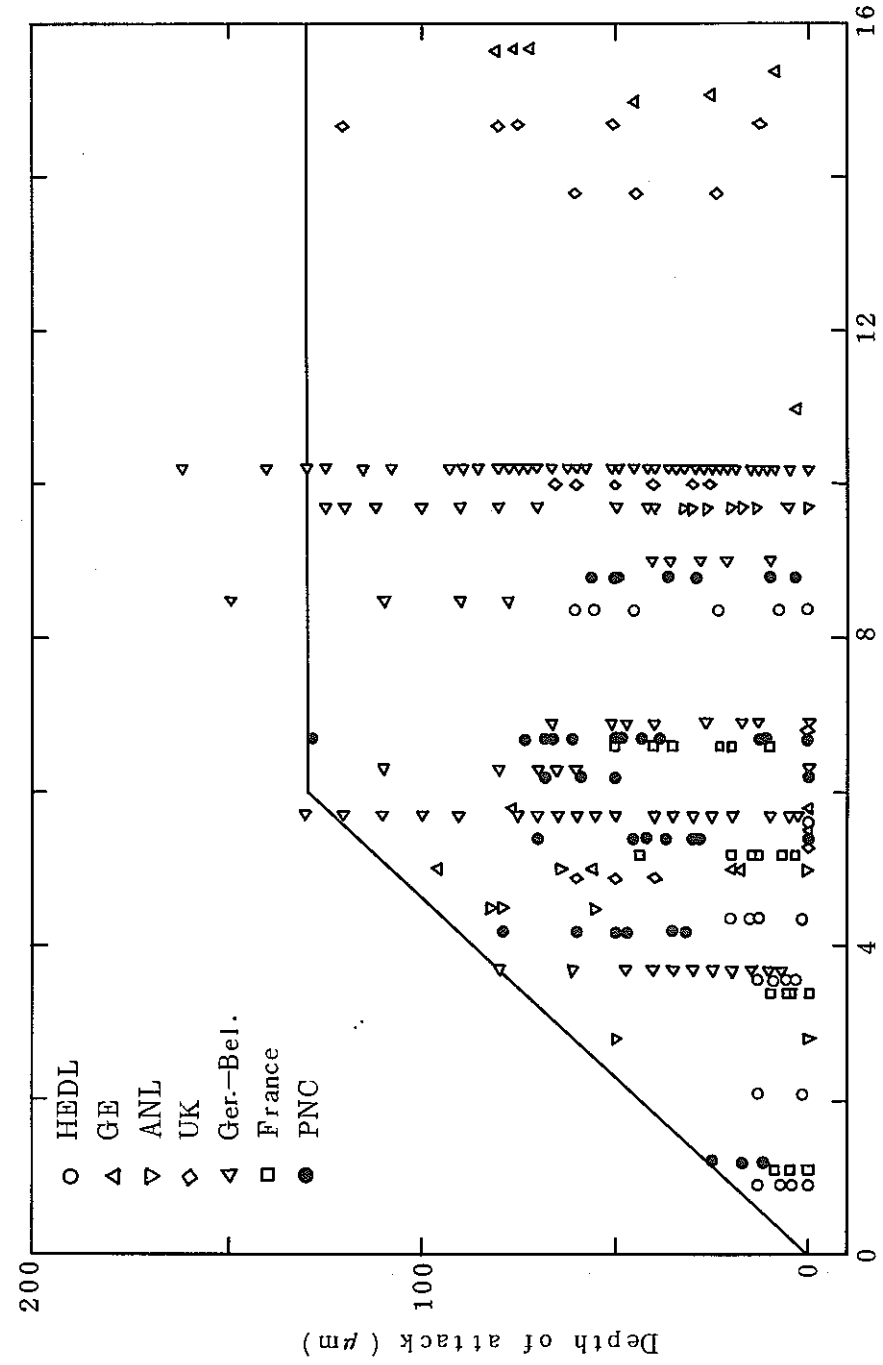


Fig. 9. FCCI attack depth as a function of burnup.

項　目　FCCI (Fuel-Cladding Chemical Interaction)　(15/15)

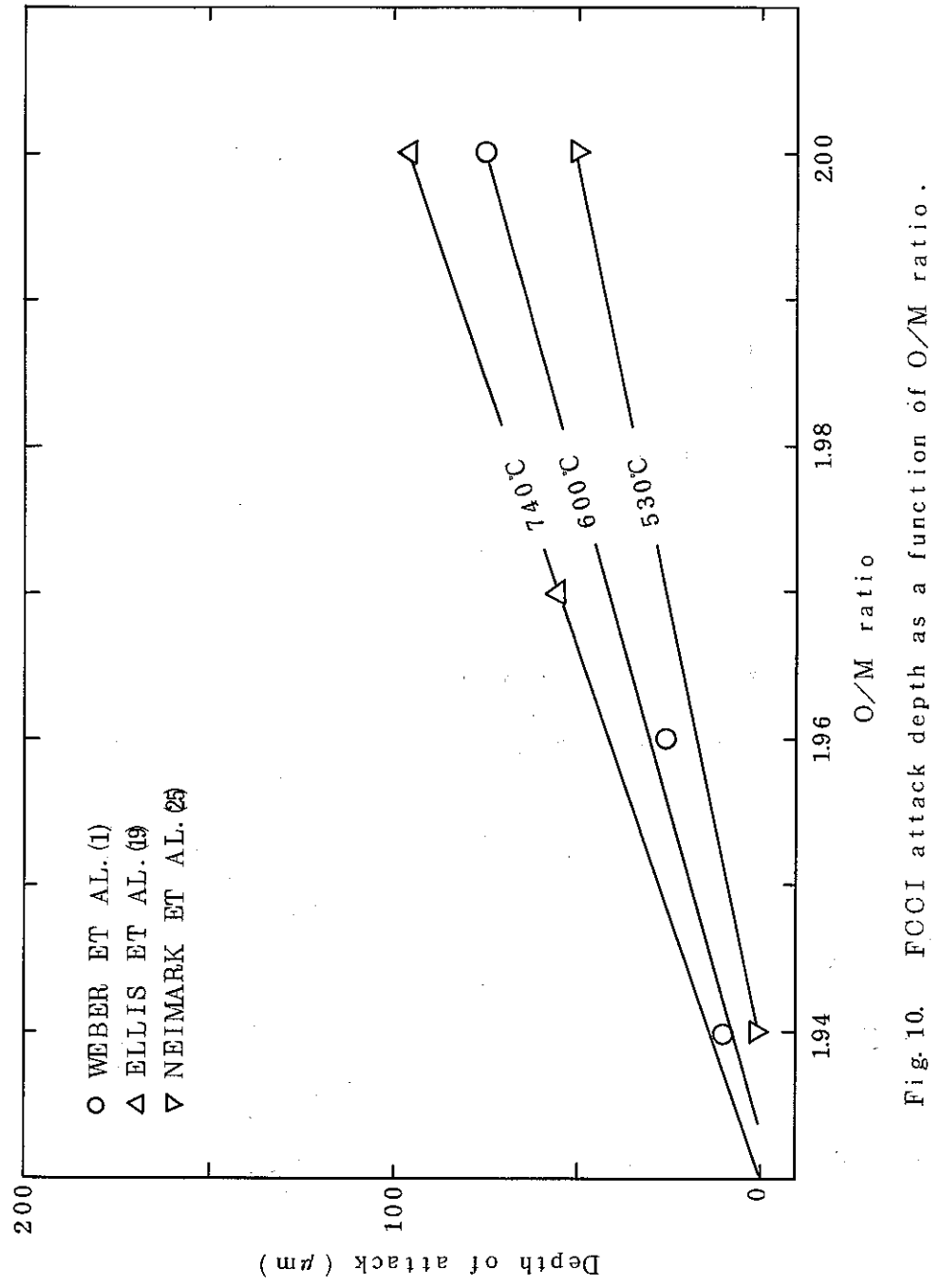


Fig. 10. FCCI attack depth as a function of O/M ratio.