

焼きしまりモデルのレビュー

Review of fuel densification models up to 1978

April 1979

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

TOKAI WORKS

POWER REACTOR & NUCLEAR FUEL DEVELOPMENT CORPORATION

複製あるいは入手については、下記にお問い合わせください。

茨城県那珂郡東海村 〒 319-11

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所技術部研究管理課 ☎ 東海 (02928) 2-1111

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Enquiries about copyright and reproduction should be addressed to ;

Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development

Corporation,

Tokai, Ibaraki, Post No 319-11, Japan.

1979年4月

焼きしまりモデルのレビュー

Review of fuel densification models up to 1978

実施責任者 本田 裕*

報告者 中江延男*

金子洋光*

要 旨

本報告は、照射焼きしまりモデル（実験モデルも含む）をレビューしたものである。1972年、照射焼きしまりが発見されて以来、数多くの照射実験が行なわれ、また照射焼きしまりモデルも数々の研究者により提案されてきた。しかし、これらのモデルにおける焼きしまり機構の考え方は、それぞれ異っている。そこでこれらのモデルを整理し、燃料拳動解析用の最適モデルを提案した。

本報告では、1978年までに発表された6つの理論モデルと4つの実験モデルについてのレビューを行った。

PNC T842-79-02
April 1979

Review of fuel densification models up to 1978

HIROSHI HONDA*

NOBUO NAKAE*

HIROMITHU KANEKO*

Abstract

Models (including empirical ones) were reviewed on an irradiation induced fuel densification. Since the phenomena of fuel densification was observed in 1972, many experiments have been carried out to understand the densification and also theoretical and empirical models have been proposed by many workers. There are at least six theoretical models and also four empirical models which have been reported up to 1978 so far. The mechanisms of the desification in these models, however, were different from each other. We, therefore, reviewed these models in detail and selected a model suitable for a fuel pin behavior modeling.

* Plutonium Fuel Division, Research and Development section

目 次

1. 序 論	1
2. 照射焼きしまりモデルの概要	2
3. 照射焼きしまりモデルの詳細	4
3.1 Marlowe のモデル	4
3.2 Lindman のモデル	6
3.3 Stehle & Assmann のモデル	7
3.4 MacEwen & Hastings のモデル	14
3.5 Dollins & Nichols のモデル	17
3.6 Carlson のモデル	21
3.7 Collins & Hargreaves の実験モデル	24
3.8 Rolstad et, al, (Halden) の実験モデル	24
3.9 N R C の実験モデル	25
3.10 Yanagisawa et. al. (J A E R I) の実験モデル	26
3.11 各モデルの特徴と実験結果との比較	27
4. 燃料挙動解析コードにおける焼きしまりモデルの取り扱い	30
5. 結 論	31
表及び図	32
参考文献	44

1. 序 論

照射焼きしまり (Irradiation Induced Densification) とは, 照射により, 燃料 (UO_2 (U, Pu) O_2) 密度が増加する現象のことである。この現象は, 1,972 年 PWR 型燃料棒取り替えの際に, 被覆管の破損が発見されて以来, 世界各国で注目され今日に至っている。しかし, 1,969 年 Ross^[1] 及び Bellamy & Rich^[2] は, UO_2 においては, 小さな気孔は, 燃焼度の関数として消失すると報告しており, さらに, 後者は照射による体積変化は, 気孔の消失により起こると報告している。また翌年 Calza Bini 等^[3] は燃料カラムの長さは, 照射時間即ち燃焼度の増加と共に減少して行くことを示した。これが照射焼きしまりを見い出した最初であろう。1,972 年以降は, この照射焼きしまりに関して多くの実験がなされ膨大な数のデータが発表されている。照射実験結果と共に, 照射焼きしまりのモデルも, かなり提案されている。

本報告では, これらのモデルにおける機構を説明し, 理論式の導出法についても, できるだけ詳しく記述した。本報告の目的は照射焼きしまりモデル (実験式も含めて) をレビューすることであり照射挙動解析用の最適モデルを提案することにある。

2. 照射焼きしまりモデルの概要

照射焼きしまりは、製造時の気孔が照射中何らかの機構でもって縮小あるいは消失していくことにより起こる。これについて以下のような5つの機構が考えられている。(i)照射促進拡散モデル, (ii)核分裂ガス再溶解モデル, (iii)照射促進生成高濃度空格子モデル, (iv)照射点欠陥モデル, (v)空格子再溶解／拡散モデルの5つである。

(i)は、粒界気孔から結晶粒界への空格子の移動（体積拡散）が、照射により促進されるといった機構であり、これは、Coble^[4,5]の熱的焼結機構に基づいていている。この考え方は、Marlowe^[6]によって提案されたものであり、このモデルを修正したものをLindman^[7]が提案している。

(ii)は、気孔径変化が気孔内ガス原子の格子マトリックス中への照射促進再溶解による径縮少とガス原子捕獲による径増大の相互関係により決定されるというモデルであり、Ross^[1]及びNeilson^[8]による気孔内ガス原子の再溶解及び捕獲挙動の考え方に基づいていている。このモデルはCarlson^[9]によって提案されたものである。

(iii)は、核分裂片が気孔近傍を通過または気孔と直接衝突することにより、気孔の一部は空格子に変化して、シンク(結晶粒界)へ拡散することにより気孔の径縮小及び消失が起こる。この際の空格子の流れは、気孔表面とシンクとの空格子濃度差と、空格子拡散係数により決まる。気孔としては粒内気孔のみを考慮している。このモデルは、Stehle & Assmann^[10-13]により提案されFreshley等^[14]はEEI/EPRIの実験結果がこのモデルでよく説明されるとして支持している。

(iv)は、照射により生成した点欠陥(格子間原子及び空格子)が、結晶粒界、転位、気孔等のシンクへ逃散する。格子間原子の気孔への逃散による気孔の収縮と熱的焼結による気孔の収縮の両方を考えており、また気孔としても粒内気孔及び粒界気孔の両方を考えている。このモデルはMacEwen & Hastings^[15]により提案されたものであり、Dollins & Nichols^[16,17]のモデルもこの考え方によく類似している。

(v)は、気孔を固体中の特殊な第2相と考え、この相が固相中に均一に再溶解すると考えている。すなわち、気孔(第2相)は核分裂により、空格子として固相中に再溶解する。 UO_2 においては1 vol%の気孔は、仮想的に 2.4×10^{20} 個のウラン空格子と 4.8×10^{20} 個の酸素空格子を生成させるが、このような高濃度の空格子は、いかにも高温であっても存在し得ない。従って、空格子は、大きな気孔又は結晶粒界等のシンクへ拡散して行く。この結果焼きしまりが起こるというモデルである。

る。このモデルは Cubb 等^[18]により提案されたものである。ただしこのモデルは式化されていない。

上記の理論モデルの他に、焼きしまり実験により得られた実験式が Collins & Hargreaves^[19] Rolstad 等^[20], NRC^[21] 及び Yanagisawa 等^[22]により提案されている。

文献〔19〕には、WAGR燃料ビンの照射実験により得られたもので照射焼きしまりは燃焼度及び初期気孔率の関数として与えられている。

文献〔20〕は、ハルデンプロジェクトによる焼きしまり実験から得られたもので、照射焼きしまりは、燃焼度に対して2つの指數関数の重ね合せで表わされるとしている。

文献〔21〕は、NRCの実験モデルであり、ハルデンの照射焼きしまり実験に基盤を置いたモデルである。照射焼きしまりを、燃焼度の対数関数で与えている。この際、最大焼きしまり量を 1.700°C 24 hr での炉外熱焼結実験により決定している。

また、文献〔22〕は、JAERIのモデルであり、各国のデータを製造因子（焼結温度、初期粒径、初期気孔率）にわけて整理し、初期粒径、初期気孔率をパラメータとする燃焼度の対数関数で照射焼きしまりが表わされるとしている。

3. 照射焼きしまりモデルの詳細

この章では、Marlowe^[6], Lindman^[7], Stehle & Assmann^[10-13], MacEwen & Hastings^[15], Dollins & Nichols^[16, 17], 及び Carlson^[9]の6つの理論モデル及びその理論式導出法の詳細と、2章で示した4つの実験式について説明した。

3.1 Marlowe のモデル^[6] (G.E.)

Marlowe のモデルは、Coble の熱焼結理論を基にして考え出されたものである。Coble の熱焼結理論によれば、気孔の縮小消失は気孔から結晶粒界への空格子の体積拡散（熱拡散）によるものであるとし、その速度は、以下の式で表わされたとした。

$$\Delta P = -MD \Delta t / G^3 \quad (1)$$

ここで ΔP は、気孔率変化、Mは焼きしまり定数、Dは体積拡散係数 Δt は熱焼結時間、Gは結晶粒径である。

Marlowe は(1)式における D と G^3 をそれぞれ

$$D = D_{th} + D_{irr} \quad (2)$$

$$G^3 = G_0^3 + B t \quad (3)$$

とした。

(2)式における D_{th} は熱的（体積）拡散定数、 D_{irr} は照射促進拡散定数であり、(3)式における G_0 は初期結晶粒径、Bは結晶成長速度定数である。

また、結晶成長は、拡散により支配されるとしてBを以下のように考えた。

$$B = AD \quad (4)$$

(2), (3), (4)式を(1)式に代入し、積分を行うことにより、(5)式を得る。

$$P - P_0 = -\frac{M}{A} \ln \left(1 + \frac{A \cdot D_{irr} \cdot t}{G_0^3} \right) \quad (5)$$

Marlowe は 1,100 °C 以下の低温では $D_{irr} \gg D_{th}$ として(5)式における拡散定数として D_{irr} だけを考え、 D_{th} を(5)式から除いた。

また、照射促進拡散定数 (D_{irr}) は核分裂速度 (\dot{F}) に比例するとして

$$D_{irr} = D_{irr}^0 \cdot \dot{F} \quad (6)$$

とした。

D_{irr}^0 は、グリーンペレットの低温における照射焼きしまり実験から

$$1.27 \times 10^{-29} \text{ cm}^5 / \text{fissions} \quad [23]$$

また(5)式における定数Mは、炉外焼結実験より(1)式を用いて、4.44 % cmと決め 定数Aは、

Lyons等^[24]のUO₂の結晶成長実験、及びMarin & Contaminの拡散定数測定結果より2.14 cmとした。しかしM、A値は各々の試料により異なるものである。

また、Marloweは(5)式に核分裂片によるスエリングの効果も考えて、密度変化は、焼きしまりとスエリングの和で表わされるとして、

$$\frac{d\rho}{dt} = \left. \frac{d\rho}{dt} \right|_{densification} + \left. \frac{d\rho}{dt} \right|_{fuel swelling} \quad (7)$$

とした。

燃料のスエリングは1,200°C以下の低温ではV=V₀(1+SFt)で与えられるとした。ここでSは、スエリング率であり0.2~0.7%/10²⁰fissions/cm³として与えられる。従つて、

$$\left. \frac{d\rho}{dt} \right|_{fuel swelling} = -\rho S \dot{F}$$

となる。

(7)式を積分して*得られる次式がMarloweの提案した密度変化を予測する理論式である。

$$\rho = \rho_0 \exp(-S \dot{F} t) + \frac{M}{A} \exp \left[-S \left(\frac{G_0^3}{A \cdot D_{irr}^0} + \dot{F} t \right) \right] \ln \left(1 + \frac{AD_{irr}^0 \dot{F} t}{G_0^3} \right) \quad (9)$$

* この積分を行うと積分指數関数が得られ、それを近似したものが(9)式である。

3.2 Lindman のモデル^[7] (Sweden)

Lindman のモデルは、Marlowe モデルを以下の 3 点について改良したものである。

(i) 照射による結晶成長は起こらない。従って Marlowe モデルにおける(3)式で $B = 0$ である。

(ii) 焼きしまり速度を表わす定数 M は燃焼度と共に減少するものであるとして、

$$M = M_0 \exp(-B \dot{F} t) \quad (10)$$

としている。

(iii) 拡散定数 D として $D_{th} + D_{irr}$ を用いる。 D_{irr} は $D_{irr}^0 = D_{irr}^0 \dot{F}$ ($D_{irr}^0 = 1.27 \times 10^{-29} \text{ cm}^5/\text{fissions}$) として与えられるとしている。また D_{th} として Marlowe が用いた Marin & Contamin^[25] の値を用いないで、 $D_{th} = D_{th}^0 \exp(-E_D/RT)$ として求めている。

以上のような仮定のもとでは、Marlowe による(7)式は、

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{M_0 D}{G_0^3} \exp(-B \dot{F} t) - \rho S \dot{F} \quad (11)$$

となる。これを積分することにより得られる次式が Lindman の提案した密度変化を予測する式である。

$$\rho = \rho_0 \exp(-S \dot{F} t) + \frac{M_0 D}{G_0^3 \dot{F} (B - S)} [\exp(-S \dot{F} t) - \exp(-B \dot{F} t)] \quad (12)$$

(12)式における定数 M_0 , B 及び D_{th} 中の D_{th}^0 , E_D は EEI/EPRI の焼きしまり実験結果^[26] を (12) 式によつて最小自乗法でベストフィットするように決める。それによると、

$$M_0 = \exp(-5.32 \pm 0.20) \quad (\text{cm} \cdot \% \text{T.D.})$$

$$B = (3.99 \pm 1.30) \times 10^{-20} \quad \text{per fissions/cm}^3$$

$$D_{th}^0 = \exp(-2.12 \pm 1.8) \quad \text{cm}^2/\text{sec}$$

$$E_D = 136.3 \pm 19.2 \quad (\text{KJ/mole}) \quad 32.4 \text{ Kcal/mole}^*$$

である。

ここで、Lindman によれば(12)式は半径方向 r での密度を求める式である。

(12)式で、燃料全体の密度変化 ρ を求めるには、径方向位置 r での温度 $T(r)$ を知る必要がある。

この $T(r)$ は、ペレットの中心温度 $T(r=0)$ 及び表面温度 $T(r=R)$ より以下の式で求められる。

$$T(r) = T(r=0) - (r/R)^2 [T(r=0) - T(r=R)] \quad (13)$$

すると、燃料全体での密度変化は、

$$\rho = \frac{2}{R^2} \int_0^R r \rho(r) dr \quad (14)$$

で与えられる。ここで $S(r)$ は、径方向位置 r での密度変化である。

* この値は、体積拡散の活性化エネルギーとして報告されている 80 ~ 100 Kcal/mole と比べると、約 40 % 程度である。この低い見かけ上の活性化エネルギーは、Lindman によると焼きしまりに対して、粒界拡散の寄与があるとしている。

3.3 Stehle & Assmann のモデル^[10~13] (KWU)

このモデルは、図-1に示されるように核分裂片が気孔と衝突又は、近傍を通過することにより体積 ω だけが気孔の1方の側から他方の側へはじき出される。この部分の空格子濃度を η とすれば $\eta\omega$ 分だけ気孔は縮小することになる。（ここでは、全ての空格子がシンクへ逃散するとしている。）気孔の半径を r とし、核分裂片の長さを λ 、核分裂速度を F とすれば、単位時間当たりの体積減少率 (dv/dt) は、

$$\frac{dv}{dt} = -\frac{4}{3} \pi r^2 \eta \omega \lambda F \quad (15)$$

となる。¹⁵式は、次のように書き直すことができる。

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{1}{3} \eta \omega \lambda F \quad (16)$$

¹⁶式を積分すると、

$$r = r_0 - \frac{1}{3} \eta \omega \lambda F t \quad (17)$$

一方、 $P/P_0 = (r/r_0)^3$ であるから焼きしまりは、

$$\left(\frac{dV}{V_0}\right)^{(P)} = P - P_0 = -P_0 \left[1 - \left(1 - \frac{\eta \omega \lambda}{3 r_0} F t\right)^3 \right] \quad (18)$$

となる。

¹⁷式または¹⁶式は、はじき出された空格子は、全てシンクへ逃散すると考えた場合である。

次に、空格子の生成とシンクへの逃散（移動）の両方の過程を考えることにする。気孔表面の空格子の生成は、¹⁶式と同様の手順により求められ、その空格子生成源の強さ Q は、

$$Q = \frac{4}{3} \pi r^2 \omega \lambda (C_s - C_T) \quad (19)$$

で表わされる。ここで C_T は気孔表面での空格子の平衡（生成と移動）濃度であり、 C_s は融点下での空格子濃度である。（図-2参照）今、空格子のシンクまでの距離を R とすれば、気孔表面（位置 r ）からシンク（位置 R ）への空格子の流れは一般の拡散方程式で与えられる。すなわち、

$$Q = -4 \pi \rho^2 D_V \frac{dc}{d\rho} \quad (20)$$

ここで、 D_V は空格子の拡散係数である。シンク R での空格子濃度を C_T （その試料温度での空格子濃度）として、²⁰式を積分すると、

$$C(\rho) = C_T + \frac{Q}{4 \pi D_V} \frac{R - \rho}{R \rho}$$

となる。すなわち、 $\rho = r$ のとき、 $C(\rho) = C_1$ とすれば、

$$Q = 4 \pi D_V (C_1 - C_T) \frac{R r}{R - r} \quad (22)$$

である。

定常状態では(20)式と(22)式は等しいと考えることができるので、

$$Q = \frac{\frac{4}{3} \pi r^2 \omega \lambda F (C_S - C_T)}{1 + \frac{\omega \lambda F}{3 D_V} r (1 - \frac{r}{R})} \quad (23)$$

を得る。今、シンクまでの距離 R を $r + r_g$ (r_g :結晶粒径) とすれば、 $Q = dv/dt = 4 \pi r^2 (dr/dt)$ であるから気孔(半径 r)の縮小の時間変化は、

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\frac{1}{3} \omega \lambda F (C_S - C_T)}{1 + \frac{\omega \lambda F}{3 D_V} \frac{r \cdot r_g}{r + r_g}} \quad (24)$$

で与えられる。

(24)式において、線出力が $400\text{W}/\text{cm}$ では、 $F = 2 \times 10^{13} \text{fissions}/\text{cm}^3\text{sec}$ であり、fission spike の長さ(λ)は $6 \mu\text{m}$ 、体積 ω は $5 \times 10^{-19} \text{cm}^3$ ^[27]であり、結晶粒径を $r_g = 3 \mu\text{m}$ とすれば、

$$\frac{1}{3} \omega \lambda F r_g = 6 \times 10^{-13} \text{cm}^2/\text{sec} \quad (25)$$

となる。

一方、Dienst^[28]によれば空格子の拡散定数 D_V は、

$$D_V = \frac{1}{6} d^5 \cdot 5 \times 10^{14} \exp(-5,300/RT)$$

で与えられる。ここで d は、ウラン副格子間の最近接距離であり、 $d = 3.868 \times 10^{-8} \text{cm}$ であるから、空格子の拡散定数 D_V は、

$$D_V = 0.125 \exp(-5,300/RT) \quad (26)$$

となる。図-3に各温度に対して、 $(1/3) \omega \lambda F r_g$ と D_V を示した。図-3より明らかなるように上記の条件のもとでは、 750°C 付近で $(1/3) \omega \lambda F r_g = D_V$ となる。

従って、 750°C より低温部では、(24)式は、 $D_V \ll (1/3) \omega \lambda F r_g$ として、

$$\frac{dr}{dt} = -D_V (C_S - C_T) \frac{r + r_g}{r \cdot r_g} \quad (27)$$

となる。つまり、低温部では、空格子の移動が気孔縮小の過程を律則する。

一方 750°C より高温では、 $D_V \gg (1/3) \omega \lambda F r_g$ となり(24)式は、

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{1}{3} \omega \lambda F (C_s - C_T) \quad (28)$$

となる。つまり、高温部では、空格子の生成が気孔縮小の過程を律則する。

勿論、(28)式が Stehle & Assmann が粗大気孔に対して、2段階（空格子の生成とシンクへの移動）機構を適用して求めた初期の焼きしまりの理論式である。このモデルでは、空格子の生成は、照射によってのみ起こる。また空格子の気孔からシンク（結晶粒界）への逃散は熱的拡散だけを考え、照射促進拡散は考慮していない。しかも、空格子が粒界への移動の途中で他のシンク（気孔）にトラップされる効果が入っていない。

Stehle & Assmann は、さらに上記のような効果を考慮して、粗大 pore についての焼きしまりをモデル化した。

それによると単位時間、単位体積当たり、生成される空格子の数 Z^+ は、

$$Z^+ = \frac{8\pi r^2}{a^2} \frac{\nu}{g} e^{-Q_S/KT} (1 - C_i) + \frac{4\pi r^2}{3} \lambda F \frac{\omega}{\Omega} (C_s - C_T) \quad (29)$$

で表わされたとした。(29)式における第1項は熱的に生成される空格子数を表わし、第2項は(19)式に対応するものであり、照射により生成される空格子数を表わす。ここで、 a は格子定数であり、 ν はジャンプ頻度、 g は 1 以上の定数であり、 Q_S は Q_F （空格子生成エネルギー）と Q_M （空格子移動エネルギー）の和として与えられる。また Ω は原子空格体積である。一方、生成した空格子が、シンクへの移動の途中で再び pore に吸収される数 Z^- は、

$$Z^- = \frac{8\pi r^2}{a^2} \frac{\nu}{g} \exp [-(Q_S - Q_F + A\omega)/KT] \cdot C_i \quad (30)$$

で与えられたとした。ここで、 $A\omega$ は $A\omega = 2r\Omega/r$ (r ; 表面張力) で与えられるもので、表面エネルギー増加分である。

今、気孔（半径 r ）からシンクである結晶粒界（半径 R ）へ単位時間当たり移動する空格子数を Z^m とすれば Z^m は、

$$Z^m = \frac{4\pi (D_V^{th} + D_V^{irr})}{\Omega} (C_i - C_T) \frac{Rr}{R-r} \quad (31)$$

で与えられる。

従つて、 Z^m により気孔の体積減少が起こるわけであるが、それは $dV/dt = -Z^m\Omega$ または $dV = 4\pi r^2 dr$ より、

$$\frac{dr}{dt} = -(D_V^{th} + D_V^{irr}) (C_i - C_T) \frac{R}{r(R-r)} \quad (32)$$

として与えられる。

(32)式中の C_1 は未知数であり、具体的にはわからない。そこで C_1 は、 $Z^m = Z^+ - Z^-$ なる関係式を用いて(29), (30), (31)式より $C_1 - C_T$ を求ることにより、

$$\frac{dr}{dt} = - \frac{(D_V^{th} + D_V^{irr}) R}{r(R-r)} \frac{\frac{2\tau\Omega D}{rKT} \frac{1}{2ag} + \frac{\lambda F \omega}{3}(C_s - C_T)}{D_V^{th} \frac{1}{2ag} + \frac{(D_V^{th} + D_V^{irr}) R}{r(R-r)} + \frac{\lambda F \omega}{3}} \quad (33)$$

を得る。

(33)式が、粗大気孔に対する縮小速度を与えるものであるが、この式をまとめて解いては、実際上、非常に困難となる。そこで彼らは、各温度領域に分けて(33)式を解いている。(図-4 参照)

図-4 に示されている領域 I, II すなわち 450 °C 以下及び 450 °C から 750 °C の低温領域では(33)式は、

$$\frac{dr}{dt} = -(D_V^{th} + D_V^{irr}) C_s \frac{1}{r} \quad (34)$$

と書き変えられる。これを積分して体積変化に書き換えれば、

$$\left(\frac{dV}{V}\right)^c = - \sum_i P_{oi}^c \left\{ 1 - \left(1 - \frac{(D_V^{th} + D_V^{irr}) C_s t}{r_{oi}^2} \right)^{3/2} \right\} \quad (35)$$

となる。

(35)式においては、気孔径を i 通りに分けており、また初期気孔径 r_{oi} が消失するまでの時間を t_{oi} とすれば、

$$t_{oi} = \frac{1}{(D_V^{th} + D_V^{irr}) C_s} r_{oi}^2$$

となり(35)式は、

$$\left(\frac{dV}{V}\right)^c = - \sum_i P_{oi}^c \left\{ 1 - \left(1 - \frac{t}{t_{oi}} \right)^{3/2} \right\} \quad (36)$$

と書き変えられる。

ここで、照射促進拡散定数 D_V^{irr} として Stehle & Assmann は、

$$D_V^{irr} = \frac{8}{3\pi^2} D_V^{(M)} \tau F \Omega_s \quad (37)$$

で与えられるとしている。^[29] ここで $D_V^{(M)}$ は、溶融状態での空格子の拡散定数であり UO_2 の場合、 $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{sec}$ であるとし、また $\tau = 2 \times 10^{-11} \text{ sec}$ $\Omega_s = 10^{-15} \text{ cm}^2$ とすれば $F = 2 \times 10^{-13} \text{ fissions/cm}^3 \cdot \text{sec}$ のとき、 D_V^{irr} は $10^{-17} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 程度となる。

領域 III (750 ~ 1,300 °C) では、(33)式は、

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{\lambda F \omega}{3} C_s$$

となり、これを積分して、

$$\left(\frac{dV}{V}\right)^c = -\sum_i P_{oi}^c \left\{ 1 - \left(1 - \frac{t}{t_{oi}}\right)^3 \right\} \quad (38)$$

を得る。ここで(38)式中の t_{oi} は、

$$t_{oi} = \frac{3}{\lambda \omega F C_s} r_{oi}$$

である。

領域IV(1,300°C以上)では、(38)式は、

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{2r\Omega D}{KT} \frac{1}{r^2}$$

となり、上記と同様の方法により、

$$\left(\frac{dV}{V}\right)^c = -\sum_i P_{oi}^c \left\{ 1 - \left(1 - \frac{t}{t_{oi}}\right)^3 \right\} \quad (39)$$

を得る。ここで t_{oi} は、

$$t_{oi} = \frac{KT}{6\Omega r D(x)} r_{oi}^3 \quad (40)$$

である。

(40)式中の $D(x)$ は、領域IVのような高温領域では、 $D_V^{th} \gg D_V^{irr}$ であるから拡散定数として熱的拡散だけを考えている。また x は定比からのずれの程度を表わすものであり、hyper組成の UO_{2+x} における拡散は、定比からのずれ x に依存する^[30-32]という実験結果に基いて拡散定数を x の関数として表わした。

以上、粗大気孔の焼きしまりについて考察した。

次に、微小気孔の焼きしまりについて記す。図-5における添字P及びCは、それぞれ微小及び粗大を意味する。微小気孔及び粗大気孔の密度をそれぞれ Z_P , Z_C とする。微小気孔については r_P (微小気孔の半径) が小さく粗大気孔の場合のような取り扱いは出来ない。従って、微小気孔の焼きしまりに対しても、以下のように考える。

熱平衡状態より過剰に存在する空格子濃度Cは準平衡状態においては、次式で表わされる。

$$\frac{\partial^2 C}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{Q_{eff}}{D_V} = 0 \quad (41)$$

ここで Q_{eff} は空格子生成源の実効値であり、これは $Q_{eff} = Q_{gen} - Q_{rec}$ で与えられる。

Q_{gen} (空格子生成量) 及び Q_{rec} (空格子の気孔への吸収) は、それぞれ、

$$Q_{gen} = p \Omega_{SP} \eta F (1 - C/C_s)$$

$$Q_{rec} = -4\pi (Z_c r_c + Z_p r_p) D_v C$$

ここで p は局所的な微小気孔率であり、 Ω_{SP} は核分裂スパイクの体積である。すると Q_{eff} は、

$$Q_{eff} = p \Omega_{SP} \eta F (1 - C/C_s) - 4\pi (Z_c r_c + Z_p r_p) D_v C \quad (42)$$

となる。

一方、気孔率 P の減少率は、

$$\frac{dP}{dt} = -p \Omega_{SP} \eta F (1 - C/C_s) + 4\pi Z_p r_p D_v C \quad (43)$$

で表わされる。ところが、このような取り扱いは局部的な場合であり、注目している結晶粒内での平均化した気孔率 \bar{P} の変化を考えた場合、(43)式は、

$$\frac{d\bar{P}}{dt} = \frac{3D_v}{r_g} \left\{ \frac{\partial C}{\partial r} \Big|_{r=r_g} - 4\pi Z_c r_c \frac{1}{r_g^2} \int_0^{r_g} Cr^2 dr \right\} \quad (44)$$

とする必要がある。(41), (42), (44)式より、 C 及び $d\bar{P}/dt$ について解くとそれぞれ、

$$C = \frac{K}{a^2} \left(1 - \frac{r_g \sinh(ar)}{r \sinh(ar_g)} \right) \quad (45)$$

$$\frac{d\bar{P}}{dt} = -3D_v K \frac{1}{x^2} \left\{ (x \coth x - 1) + 4\pi Z_c r_c r_g^2 \left(\frac{1}{x^2} + \frac{1}{3} - \frac{1}{x} \coth x \right) \right\} \quad (46)$$

と与えられる。ここで、

$$a^2 = \frac{\bar{P} \Omega_{SP} \eta F}{C_s D_v} + 4\pi (Z_c r_c + Z_p r_p)$$

$$K = \bar{P} \Omega_{SP} \eta F / D_v$$

$$x = ar_g$$

である。

(46)式が Stehle & Assmann が導出した微小気孔に対する焼きしまりの理論式であるが、

Stehle & Assmann は(46)式をさらに場合分けして実際の予測の際には、さらに簡潔な式を提案している。すなわち、微小気孔の縮小消失による体積変化は、

$$\left(\frac{dV}{V} \right)^t = -f^* P_0^t (1 - e^{-\eta^* \Omega_S F t}) \quad (47)$$

で表わされる。ここで P_0^t は微小気孔の初期気孔率である。

f^* , η^* については、以下に記す(i), (ii)の場合に分けて数式を与えていく。

(i) 初期微小気孔濃度が低く、粒径も小さい場合(よく焼結されたものに対応)

$$f^* = \frac{1}{1 + (4\pi/15) Z_{crc} r_g^2}$$

$$\eta^* = \left(1 - \frac{4\pi}{45} Z_{prp} r_g^2 \right) \eta$$

(ii) 初期微小気孔濃度が高く、粒径も大きい場合(焼結が不十分なものに対応)

$$f^* = \frac{1}{1 + (4\pi/3) Z_{crc} r_g / \sqrt{4\pi (Z_{crc} + Z_{prp})}}$$

$$\eta^* = \eta \frac{1}{r_g \sqrt{4\pi (Z_{crc} + Z_{prp})}}$$

Stehle & Assmannは実際の予測には、*46式*をさらに簡略化した次式を用いている。

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)^t = -P_o^t (1 - e^{-\eta^* \Omega_s F t}) \quad (48)$$

従つて、最終的には、スエリングの効果も含めた全体の体積変化として、Stehle & Assmannは、*36*, *38*, *39*, *47式*を用いて、次式を提案した。

$$\left. \frac{\Delta V}{V} \right|_{tot} = S_M F t - \underbrace{f^* P_o^t (1 - e^{-\eta^* \Omega_s F t})}_{\text{Swelling}} - \underbrace{\sum_i P_{oi}^C \left[1 - \left(1 - \frac{t}{t_{oi}} \right)^n \right]}_{\text{Fine pore densification Coarse pore densification}} \quad (49)$$

ここで、 S_M は UO_2 におけるスエリング率として $S_M = 1.05 \text{ vol \% per } 10^4 \text{ MWd/t(U)}$ を用いている。

3.4 MacEwen & Hastings のモデル^[15] (AECL)

このモデルは、照射により生成する点欠陥（格子間原子及び空格子）の照射下での挙動を基礎としたモデルである。気孔の消失、縮小は、照射欠陥*が気孔を埋めて行く機構と気孔の熱焼結による機構の両方を考えている。気孔としては粒内気孔（気孔径分布を6種類に分ける）と粒界気孔（径は1種類のみを考える）を考えている。このモデルによる理論式の導出は以下に記す。

照射下での点欠陥の速度式は空格子及び格子間原子に対して、それぞれ、

$$\frac{dC_V}{dt} = P_V^* - A [C_V C_i - C_V^{th} C_i^{th}] - \sum_{K=1}^N P_K^V [\nu_V (C_V - C_V^{th})] \quad (50)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = P_i^* - A [C_V C_i - C_V^{th} C_i^{th}] - \sum_{K=1}^N P_K^i [\nu_i (C_i - C_i^{th})] \quad (51)$$

で与えられる。^[33]ここで、 C_V 、 C_i は空格子及び格子間原子濃度であり、 C_V^{th} 、 C_i^{th} は、今考えている温度でのそれぞれの熱平衡濃度である。 P_V^* 、 P_i^* は空格子及び格子間原子の照射による生成率を表わすもので、これらは、核分裂速度に依存する。 P_V^* と P_i^* は等しいか、もしくは、 P_i^* は P_V^* よりわずかに大きい。^[34]また、Aは $a_1 \nu_1 + a_V \nu_V$ で与えられ、aは再結合体積に依存する定数であり、 ν はジャンプ頻度を表わす。 P_K^V 及び P_K^i はK番目のシンクでの再結合確率を表わすものである。このモデルでは、シンクとして、結晶粒界、気孔、転位、の3種類を考えている。すなわち、 P_{GB} 、 P_{pore} 、 $P_{dislocation}$ である。またこれらは、以下のように表わされる。

$$P_{GB} = \frac{15 b^2}{6 (d/2)^2} \quad (52)$$

ここで、bはバーガースペルトルであり、dは結晶粒径である。

$$P_{pore} = \frac{b^2}{2R^2(R/r - 9/5)} \quad (53)$$

ここで、rは気孔径、Rは気孔間距離であり、気孔密度 N_{pore} より以下の式で与えられる。

$$R = \left(\frac{3}{4\pi N_{pore}} \right)^{1/3} \quad (54)$$

$$P_{dislocation} = \frac{b^2}{3x^2 \left[\ln \left(\frac{x}{r_c} \right) - \frac{3}{4} \right]} \quad (55)$$

ここで、xは転位間の平均距離であり、転位による捕獲半径 r_c は、空格子に対する刃状及びら

* 照射により生成された格子間原子及び空格子は生成と同時に約90%は再結合する。従ってこのモデルでは残りの約10%の点欠陥を考えている。

せん転位では、また格子間原子に対するらせん転位では、 $r_c = b$ である。格子間原子に対する刃状転位の場合は以下のような式となる。^[35]

$$r_c = \frac{1.34Gb\varepsilon\Omega}{KT} \quad (56)$$

ここで、Gは剛性率、Ωは原子容、Kはボルツマン定数、εは格子間原子による不正歪みである。

次に、核分裂ガス濃度 C_g の速度式は、次式のように与えられる。

$$\frac{dC_g}{dt} = P_g^* - (P_{GB} + \sum^n P_{pore}) \nu_g C_g \quad (57)$$

ここで、 P_g^* は核分裂ガスの生成率であり ν_g はガス原子のジャンプ頻度である。⁽⁵⁷⁾ 式では、核分裂ガスのシンクとして、結晶粒界と n 個の気孔を考えている。

生成した核分裂ガスが気孔に移動することによる気孔の内圧 P の変化は、

$$P = \frac{3N_gKT}{4\pi \left(r^3 - \frac{3N_gB_V}{4\pi} \right)} \quad (58)$$

で与えられる。ここで B_V は定数である。 N_g は半径 r の気孔に含まれるガス原子数であり、次式で与えられる。

$$\frac{dN_g}{dt} = \frac{P_{pore} \cdot \nu_g \cdot C_g}{\Omega \cdot N_{pore}} \quad (59)$$

従って、点欠陥の気孔への移動、及び熱焼結による気孔径(r)の変化は、粒内気孔に対して、

$$\frac{dr}{dt} = \frac{P_{pore} \{ \nu_V (C_V - C_V^{th}) - \nu_i (C_i - C_i^{th}) \}}{4\pi r^2 N_{pore}} - \frac{b^2 \nu_V}{br} \left\{ \exp \left(\frac{2r}{r} - P \right) \frac{\Omega}{KT} - 1 \right\} \quad (60)$$

で与えられる。⁽⁶⁰⁾ 式において、第 1 項は、点欠陥の気孔への移動による項であり、第 2 項は、熱焼結による項^[35] である。ここで P は気孔内ガス圧であり、γ は表面エネルギーである。

一方、粒界気孔に対しては、

$$\frac{dr}{dt} = \frac{P_{GB} \{ \nu_V (C_V - C_V^{th}) - \nu_i (C_i - C_i^{th}) \}}{4\pi r^2 N_{pore}} - \frac{r \Omega W D_{GB}}{x K T r^2} \quad (61)$$

で与えられる。ここで第 2 項は熱焼結による項であり^[36]、W は粒界の幅であり、 D_{GB} は粒界拡散係数である。また x は粒界気孔の平均間隔である。

6 種類の異なる径を持つ粒内気孔と、1 種類の径を持つ粒界気孔を有する UO_2 に対して、気孔径変化を求める場合は、実際には、17 個の非線型微分方程式を同時に解く必要がある。具

体的には、(50), (51)式より、点欠陥濃度を求め、(57)式より、核分裂ガス濃度を求めて(58), (59)式より
り気孔内ガス圧を求め、(60), (61)式により、気孔径変化を求めることがある。

このモデルで用いられた物理定数を表-1に示す。

3.5. Dollins & Nichols のモデル^[16]

Dollins & Nichols モデルは、3.4で示した MacEwen & Hastings のモデルに類似している。このモデルは気孔として粒内気孔だけを考えている。Dollins & Nichols モデルでは、核分裂片損傷の機構を非常に詳細に取り扱っており、MacEwen & Hastings が明確にしていなかった格子間原子及び空格子の照射による生成率を推定している。また damage cascade (depleted zone) に対応) を新しく考えている。

このモデルでの気孔の消失、縮小は格子間原子及び空格子の気孔(シンク)への移動の結果起こるものと考えている。また Dollins & Nichols は、空格子の生成として、照射によるはじき出しでできるものと、Stehle & Assmann が提案している気孔と核分裂片との衝突による空格子の生成の両方を考えている。このモデルにおける理論式の導出は MacEwen & Hastings モデルにおけるものと類似しているので詳細については述べず概略程度にする。

まず照射による格子間原子及び空格子の生成率は、格子間原子では $f \cdot \Omega \cdot 10^4$ また、空格子では、 $f \cdot \Omega \cdot \xi (\xi = 10^4 - 2 \frac{\pi r_d^2 b}{\Omega})$ としている。

ここで f は核分裂速度、 Ω は原子容(原子空孔体積)、 r_d は depleted zone から発達した空格子ループの半径であり、 b はバーガースペルトルである。

このモデルでは、これらの点欠陥のシンクとして転位、気孔、damage cascade、結晶粒界を考えている。今、空格子に着目して考えると、

転位に対して

$$\frac{2 \pi \rho D_v}{\ln(r_1/6)} (C_v - C_0) \quad (62)$$

ここで D_v は空格子の拡散定数、 C_v は転位から十分離れた位置での平均の空格子濃度、 C_0 は熱平衡空格子濃度であり、 r_1 は、転位間距離の半分であり、 $r_1 = 1/\sqrt{\pi \rho}$ で与えられる。⁽⁴¹⁾ また ρ は転位密度であり次式により与えられる

$$\rho = \exp(-2.07 \times 10^{-3} (T - 273) + 21.82) \quad (63)$$

気孔に対して

$$4 \pi r_p N_p D_v (C_v - C_0) \exp\left(\frac{\Omega}{KT} \left(\frac{2r}{r_p} + p - p_g\right)\right) \quad (64)$$

ここで、 r_p は気孔の半径、 N_p は単位体積当りの気孔の数(気孔密度) K はボルツマン定数 γ は表面張力、 p は外部静水圧、 p_g は核分裂ガスによる気孔内ガス圧である。

damage cascade に対して⁽⁴²⁾

$$4 \pi^2 r_d N_d D_v (C_v - C_0) \exp\left(-\frac{\mu b \ln(32 r_d/b)}{4 \pi (1-\nu) r_d KT}\right) / \ln(8 r_d/b) \quad (65)$$

ここで μ はせん断係数、 ν はポアソン比であり、 r_d は damage cascade の半径であり、

$r_d = \left(\frac{2500\Omega}{\pi b} \right)^{\frac{1}{2}}$ で与えられる。 N_d は単位体積当たりのカスケードの数であり、以下の微分

方程式により与えられる。

$$\frac{d N_d}{dt} = 2 f \frac{N_d + 4\pi}{r_d \cdot b \cdot \ln(8 r_d / b)} \{ D_i C_i + D_v [C_o \exp(1 - \frac{\mu b \Omega \ln(32 r_d / b)}{4\pi(1-\nu) r_d K T})$$

$$- C_v] \} \quad (66)$$

結晶粒界に対して ^[43]

$$\frac{3 K_v D_v}{R_g} (C_v - C_o) \quad (67)$$

ここで R_g は結晶粒径であり、 K_v は以下のように与えられる ^[43]

$$K_v = \left[\frac{2\pi\rho}{\ln(r_1/b)} + 4\pi(r_p N_p + r_d N_d) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (68)$$

また、格子間原子及び空格子の再結合は

$$\frac{5040(D_i + D_v)}{a^2} C_v C_i$$

で与えられる。 ^[42]

ここで、 C_i 、 D_i は格子間原子濃度及び拡散係数である。また a は原子のジャンプ距離である。

従って、空格子に対する速度式は以下のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{d C_v}{dt} &= f \Omega \xi - \frac{2\pi\rho D_v}{\ln(r_1/b)} (C_v - C_o) + 4\pi r_p N_p D_v [C_o \exp(\frac{\Omega}{K T} (\frac{2r}{r_p} + p - p_g)) \\ &\quad - C_v] + 4\pi^2 r_d N_d D_v [C_o \exp(\frac{\mu b \Omega \ln(32 r_d / b)}{4\pi(1-\nu)}) - C_v] / \ln(\frac{8 r_d}{b}) \\ &\quad - \frac{5040(D_i + D_v)}{a^2} C_v C_i - \frac{3 K_v D_v}{R_g} (C_v - C_o) \end{aligned} \quad (69)$$

また、格子間原子に対する速度式は熱平衡格子間原子濃度はゼロであるとして、次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{d C_i}{dt} &= f \Omega 10^4 - \frac{2\pi D_i C_i \rho}{\ln(r_1/(b + \Delta R))} - 4\pi r_p N_p D_i C_i \\ &\quad - 4\pi^2 r_d N_d D_i C_i / \ln(\frac{8 r_d}{b}) - \frac{5040(D_i + D_v) C_v C_i}{a^2} \\ &\quad - \frac{3 K_i D_i C_i}{R_g} \end{aligned} \quad (70)$$

ここで K_i は以下のように与えられる。^[43]

$$K_i = \left[\frac{2\pi\rho}{\ell n \{ r_i / (b + \Delta R) \}} \right] + 4\pi (r_p N_p + r_d N_d)^{\frac{1}{2}} \quad (71)$$

また、 ΔR は不整合歪み ϵ を用いることにより

$$\Delta R = 0.07ba^3 \mu \epsilon / KT \quad (72)$$

で与えられる。

(70). 例式中で、気孔へ移動する点欠陥を考えれば、気孔への正味の欠点陥の流れは

$$\frac{d n_p}{dt} = 4\pi r_p N_0 D_i C_i + 4\pi r_p N_0 D_v \{ C_0 \exp \left[\frac{\Omega}{KT} \left(\frac{2r}{r_p} + p - p_g \right) \right] - C_v \} \quad (73)$$

で与えられる。

$d n_p / dt$ と $d r_p / dt$ の関係は $V_p = \frac{4}{3}\pi r_p^3 = n_p \Omega$ なる関係を用いることにより、以下のよう に与えられる。

$$\frac{d r_p}{dt} = -\frac{1}{r_p} \{ D_i C_i - D_v \{ \omega \exp \left[\frac{\Omega}{KT} \left(\frac{2r}{r_p} + p - p_g \right) \right] - C_v \} \} \quad (74)$$

(74)式における p_g は

$$p_g = \frac{n_g K T}{\frac{4}{3}\pi r_p^3 - \beta n_g} \quad (75)$$

で与えられる。ここで β はファンデルワールス定数であり n_g は気孔に含まれるガス原子数であ り、次式により与えられる。

$$\frac{d n_g}{dt} = 4\pi r_p D C_g N_0 - \frac{n_g}{\tau} \quad (76)$$

ここで $\tau = (10^5 \Omega f)^{-1}$ として与えられる。^[44] 定常状態では (76)式は

$$d n_g / dt = 0 \text{ より}$$

$$n_g = 4\pi r_p D C_g N_0 \quad (77)$$

となる。

Dollins & Nichols は例式にさらに核分裂片と気孔との衝突により空格子が生成される効果を考えて、 $-\Omega 2f \lambda \eta$ の項を加えている。

ここで、 η は衝突によりはじき出される空格子数であり、 λ は核分裂片の飛跡の長さである。故に例式は次のように書き換えられる。

$$\frac{d r_p}{dt} = -\Omega 2f \lambda \eta - \frac{1}{r_p} \{ D_i C_i - D_v \{ C_0 \exp \left[\frac{\Omega}{KT} \left(\frac{2r}{r_p} + p - p_g \right) \right] - C_v \} \} \quad (78)$$

⑧式を解くことにより気孔の消失、縮小を求めている。

具体的には⑨⑩式により、 C_i , C_v を求め、また、スエリング及び核分裂ガス放出モデル^[45]を用いて⑦式での C_g を求め、 n_g を決定している。この n_g を⑧式に代入することにより p_g を求め、 C_i , C_v , p_g を⑧式に代入することにより r_p の変化を求めている。この場合も MacEwen & Hastings のモデル（3.4で記した）と同様、数個の非線型微分方程式を同時に解く必要がある。

3.6. Carlson のモデル^[9]

このモデルは、Ross^[1] や Nelson^[8] の考えに基礎を置いたもので、ガス原子（核分裂ガス原子をも含む）の再溶解及び気孔への捕獲により、気孔の径変化が生じるとしている。すなわち再溶解（re-solution）による径変化を dr_r/dt とし、捕獲（capture）による径変化を dr_c/dt とすれば、全体としての径変化 dr/dt は $dr/dt = dr_r/dt - dr_c/dt$ により与えられるとしている。

このモデルでは、気孔内には、必ずガス原子が含まれることになる。

再溶解による径変化

ガス原子の放出は、核分裂片もしくは、displacement cascade と気孔内ガス原子との相互作用により生じるとし、再溶解するガス原子の速度 dN_r/dt は、

$$dN_r/dt = \rho V_R \eta \quad (79)$$

で与えられる。ここで ρ は、気孔内ガス原子密度であり、 V_R はガス原子放出可能な体積として気孔表面から距離 d の範囲内を考える。

また、 η は放出確率である。

今、体積 V 、圧力 P 、温度 T なる気孔を考えた場合、次式が成立する。

$$\rho = N/V = P/kT \quad (80)$$

ここで K はボルツマン定数であり、 N は着目している気孔に含まれるガス原子数である。

平衡状態にあっては、気孔径を r 、表面張力を γ とすれば

$$P = \frac{2\gamma}{r} \quad (81)$$

となる。従って(80)、(81)式より

$$\rho = 2\gamma/r \cdot kT \quad (82)$$

となる。一方 V_R は、次式で与えられる。

$$V_R = \int_{r-d}^r 4\pi r_1^2 dr_1 = 4\pi r^2 d \quad (d < r) \quad (83)$$

また、放出確率 η は、相互作用実効断面積 σ_e と、核分裂片のフラックス ϕ_e とに比例するから比例定数を A とすれば

$$\eta = A \cdot \sigma_e \cdot \phi_e \quad (84)$$

で与えられる。

(82)、(83)、(84)式を(79)式に代入することにより、再溶解速度 dN_r/dt は

$$\frac{dN_r}{dt} = A \cdot \sigma_e \cdot \phi_e \cdot 8\pi \cdot \gamma \cdot r \cdot d / kT \quad (85)$$

となる。

一方、平衡時の気孔内ガス原子数Nは

$$N = \frac{4}{3} \pi r^3 \cdot \rho = 8 \pi r \cdot r^2 / 3 K T \quad (86)$$

であるから

$$\frac{dN}{dr} = 16 \pi r \cdot r / 3 K T \quad (87)$$

が得られる。

故に、ガス原子再溶解による気孔径変化 dr_r / dt は次式のようになる。

$$\frac{dr_r}{dt} = \frac{dN_r}{dt} \cdot \frac{dr}{dN} = \frac{3A \cdot d \cdot \sigma_e \cdot \phi_e}{2} \quad (88)$$

(88)式において核分裂片フラックス ϕ_e は、核分裂速度 F に比例するから (88)式は A を A' に変えて

$$\frac{dr_r}{dt} = \frac{3A' \cdot d \cdot \sigma_e \cdot F}{2} = K_1 \cdot F \quad (89)$$

となる。

捕獲による径変化

格子マトリックスから気孔へのガス原子捕獲速度 dN_e / dt は Ham⁽⁴⁶⁾ によれば

$$dN_e / dt = 4\pi DC \quad (90)$$

で与えられる。ここで D は、ガス原子の実効拡散定数であり、これは核分裂速度 (F) に比例するから、 $D = KF$ 、また C は格子マトリックス内に存在するガス原子濃度であり次式で与えられる。

$$C = f \cdot I \quad (91)$$

ここで f は核分裂ガス生成率であり、I は燃焼度である。すると (90)式は次のように書き直すことができる。

$$\frac{dN_e}{dt} = 4\pi \cdot K \cdot F \cdot f \cdot I \quad (92)$$

従って (88)式の導出と同様な手法を用いることにより、捕獲による径変化 dr_e / dt は次式となる。

$$\frac{dr_e}{dt} = \frac{dN_e}{dt} \cdot \frac{dr}{dN} = \frac{3K \cdot f \cdot I \cdot F \cdot K \cdot T}{4\gamma \cdot r}$$

$$= \frac{3 K \cdot f \cdot F^2 \cdot t \cdot K \cdot T}{4 r \cdot r} \quad (I = F \cdot t) \\ = K_2 \cdot F^2 \cdot t \cdot T \quad (93)$$

(93)式中の比例定数 K_2 中には、気孔径 r が含まれるが、時間 dt 間における r の変化は小さいとして一定とみなしている。

故に、全体の気孔径変化は、次式となる。

$$\frac{dr}{dt} = \frac{dr_r}{dt} - \frac{dr_e}{dt} = K_1 F - K_2 F^2 t T \quad (94)$$

(94)式を t に関して積分することにより

$$\Delta r = \int_{r_1}^{r_2} dr = \int_0^t (K_1 F - K_2 F^2 t T) dt$$

即ち、気孔径変化 ΔD は

$$\Delta D = K_1 F t - \frac{1}{2} K_2 F^2 t^2 T = K_1 \cdot I - \frac{K_2}{2} I^2 \cdot T \quad (95)$$

で与えられる。

Carlson は、EBR-II 混合酸化物燃料の照射後試験結果より、定数 K_1 、 K_2 を決め、下式を提案している。

$$\Delta D = -(4.37 \pm 0.49) \times 10^{-5} I + (9.45 \pm 0.62) \times 10^{-13} I^2 T$$

ここで、 ΔD は μm 、 I は MWd/MTM 、 T は $^{\circ}K$ の単位で表わされる。

3.7. Collins & Hargreaves^[19]の実験モデル

WAGRで照射した燃料ピンに対して、Collins & Hargreavesは実験的に以下の式で、気孔率(V)の変化を燃焼度の関数として表わしている。

$$V = A V_0 \exp(-S I) + (1-A) V_0$$

(96)

ここでIは燃焼度(MWD/t eU), V_0 は初期気孔率, Aは0.5~0.6の値をとる定数, Vは燃焼度Iでの気孔率, Sは 2×10^{-3} であるとしている。

式は、1000°Kから1100°Kの温度範囲にあるWAGR燃料に対する焼きしまりに、よく一致するとしている。

3.8. Rolstad et.al.(Halden)の実験モデル^[20]

Rolstad等は、燃焼度5GWd/t UO₂で焼きしまりは最大になるとして初期密度と焼結温度より最大スタック長減少率($\Delta L/L$)は次式で表わされるものとした。

$$\frac{\Delta L}{L} = 2.2 \cdot \frac{100 - T.D.}{T_s - 1180}$$

(97)

ここで T_s はペレット焼結温度(1300~1700°C)であり、T.D.は初期密度(80~100%T.D.)である。

また、照射中のスタック長減少率は次式で与えられる。

$$\frac{\Delta L}{L} = 3.0 - 0.93 \exp(-B.U) - 2.07 \exp(-3.5 B.U)$$

(98)

ここでBUはGWd/t UO₂なる単位で表わされる燃焼度である。

3.9. NRC の実験モデル [21]

US NRC はハルデンの照射焼きしまり実験結果を以下のように整理した。

比較的よく焼きしまる燃料(焼きしまり量が 4% T.D.以上)では、照射焼きしまりは、50 MWd/MtU から開始し、500 MWd/MtU で完了する。

一方、焼きしまりにくい燃料(焼きしまり量が 4% T.D.以下)では、焼きしまりは、200 MWd/MtU から開始し 2000 MWd/MtU で完了する。

すなわち、照射焼きしまりは、次式に従って進行するとしている。

(i) $\Delta\rho \geq 4\%$ T.D. の燃料に対して

$\Delta\rho = 0$	$BU \leq 50 \text{ MWd/MtU}$
$\Delta\rho = m \log(BU) + b$	$50 \text{ MWd/MtU} \leq BU \leq 500 \text{ MWd/MtU}$
$\Delta\rho = \Delta\rho_{sntr}$	$BU \geq 500 \text{ MWd/MtU}$

(ii) $\Delta\rho \leq 4\%$ T.D. の燃料に対して

$\Delta\rho = 0$	$BU \leq 200 \text{ MWd/MtU}$
$\Delta\rho = m \log(BU) + b$	$200 \text{ MWd/MtU} \leq BU \leq 2000 \text{ MWd/MtU}$
$\Delta\rho = \Delta\rho_{sntr}$	$BU \geq 2000 \text{ MWd/MtU}$

ここで m , b は 3 つの式を燃焼度に対して連続にする定数であり具体的には、以下のようにして決定される。

(99) 式においては、次の連立方程式を解くことにより得られる。

$$\left. \begin{array}{l} 0 = m \log(50) + b \\ \Delta\rho_{sntr} = m \log(500) + b \end{array} \right\}$$

また、(100) 式においても同様に下記の連立方程式を解くことにより得られる。

$$\left. \begin{array}{l} 0 = m \log(200) + b \\ \Delta\rho_{sntr} = m \log(2000) + b \end{array} \right\}$$

定数 $\Delta\rho_{sntr}$ (最大焼きしまり量に対応) は、1700°C 24 hr の炉外焼結実験の結果より与えられるものである。ただし、この際数多くの炉外実験結果を統計的に処理した数値を採用している。

上記の手順により得られた密度変化 $\Delta\rho/\rho$ と、径方向変化 $\Delta D/D$ とは、径方向変化は等方的であるとして

$$\frac{\Delta D}{D} = \frac{1}{3} - \frac{\Delta\rho}{\rho}$$

また、軸方向変化($\Delta L/L$)は、非等方的であるとして

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{1}{2} - \frac{\Delta\rho}{\rho}$$

として求めている。

3.10. Yanagisawa et.al.(JAERI)の実験モデル^[22]

このモデルでは、Uchida 等^[47,48] Freshly 等^[14] Cubb 等^[18] 及び Halden の照射実験データを燃料製造パラメータである焼結温度(TS)初期粒径(IG), 初期気孔率(IP)について整理し、焼きしまり量との関係を以下のように見積った。

$D(IG) \leq 4$	$IG \leq 2$
$\leq -\frac{1}{2}IG + 5$	$2 \leq IG \leq 8$
≤ 1	$8 \leq IG \leq 32$
$D(IP) \leq 4$	$2 \leq IP \leq 6$
$\leq -IP + 10$	$6 \leq IP \leq 10$
≤ 0	$10 \leq IP \leq 40$ (気孔安定剤添加)

上記の関係式を用いて、最大焼きしまり量 D_{max} は次式により求められる。

$$D_{max} = \max \{ D(IG), D(IP) \} \ln(BU+1)$$

(30)

ここで、IG, IP, BU及びDの単位は、それぞれ μm , %, GWd/tUO_2 , % である。

図式において $D(TS)$ を除いているのは、焼結温度と焼きしまり量の相関関係がよくないことを理由にしている。

3.1.1. 各モデルの特徴と実験結果との比較

各モデルによる理論式及び実験式を以下にまとめる。

Marlowe のモデル（粒界気孔のみ）

$$\rho = \rho_0 \exp(-SFt) + \frac{M}{A} \exp(-S(\frac{G_0^3}{A \cdot D_{irr}^0} + Ft)) \ln(1 + \frac{AD_{irr}^0 Ft}{G_0^3}) \quad (9)$$

Lindman のモデル（粒界気孔のみ）

$$\rho = \rho_0 \exp(-SFt) + \frac{M_0 D}{G_0^3 F (B-S)} [\exp(-SFt) - \exp(-BFt)] \quad (10)$$

Stehle & Assmann のモデル（粒内気孔のみ）

$$\frac{\Delta V}{V}_{\text{total}} = S_M Ft - f \underbrace{P_0^f (1 - e^{-\eta \frac{\Omega}{Ft}})}_{\text{Swelling}} - \sum_i P_{oi} \underbrace{[1 - (1 - \frac{t}{t_{oi}})^n]}_{\text{Coarse pore densification}} \quad (11)$$

MacEwen & Hastings のモデル（粒内、粒界気孔）

粒内気孔に対して

$$\frac{dr}{dt} = \frac{P_{pore} (\nu_v (C_v - C_v^{th}) - \nu_i (C_i - C_i^{th}))}{4 \pi r^2 N_{pore}} - \frac{b^2 \nu_v}{6 r} \{ \exp(\frac{2r}{r} - p) \frac{\Omega}{KT} - 1 \} \quad (12)$$

粒界気孔に対して

$$\frac{dr}{dt} = \frac{P_{GB} (\nu_v (C_v - C_v^{th}) - \nu_i (C_i - C_i^{th}))}{4 \pi r^2 N_{pore}} - \frac{r (2W D_{GB})}{x K T r^2} \quad (13)$$

Dollins & Nichols のモデル（粒内気孔のみ）

$$\frac{dr_p}{dt} = -\Omega 2f \lambda \eta - \frac{1}{r_p} (D_i C_i - D_v \{ C_0 \exp(\frac{\Omega}{KT} (\frac{2r}{r_g} + p - p_g)) \} C_v) \quad (14)$$

Carlson のモデル（粒内、粒界気孔）

$$\Delta D = K_1 I - \frac{K_2}{2} I^2 T \quad (15)$$

Collins & Hargreaves の実験モデル

$$V = A V_0 \exp(-SI) + (1-A) V_0 \quad (16)$$

Rølstad et al(Halden)の実験モデル

$$\frac{\Delta L}{L} = 3.0 - 0.93 \exp(-BU) - 2.07 \exp(-35BU) \quad (98)$$

NRCの実験モデル

$$\Delta\rho = 0$$

$$\Delta\rho = m \log(BU) + b \quad (99) \quad (100)$$

$$\Delta\rho = \Delta\rho_{\text{satr}}$$

Yanagisawa et al(JAERI)の実験モデル

$$D_{\max} = \max\{D(\text{IG}), D(\text{IP})\} \ln(BU+1) \quad (101)$$

(9)式による予測値と、ハルデンの照射実験結果との比較を図-6、図-7に示す。 (10)式による予測値とEEI/ERRIの実験結果を図-8に示す。 (49)式による予測値とハルデンの照射実験結果(IFIA418 rod3)との比較を図-9に示す。 (60), (61)式による予測値を図-10に示す。この予測値と、実験結果との比較はなされていない。 (48)による予測値とBanks(49)の実験結果との比較を図-11に示す。 (46)式による予測値を図-12に示す。この予測値と実験結果との比較はなされていない。

実験モデルによる計算結果と、実験結果との比較を図-13、図-14に示す。図-13、図-14はNRCの実験モデルと、Haldenにおける炉内実験結果⁽⁵⁰⁾との比較を示すものである。

図-6～図-9及び図-11に示した通り、理論モデルによる予測値と、実験結果との比較は、いずれの場合もかなりよい一致を示している。

Marlowe及びLindmanのモデルは、照射温度の効果を考慮しておらず、また、粒界気孔だけを考えているのは、今まで報告されている照射焼きしまりの実験結果と矛盾する。Stehle & Assmannのモデルでは、照射温度、核分裂速度、気孔径分布、結晶粒径を考慮したもので、よく実験結果を反映しているが、このモデルでは、粒内気孔だけしか考えておらず、また点欠陥のうち、格子間原子の寄与も考えていない。ところが、MacEwen & HastingsモデルやDollins & Nicholsモデルでは、照射温度、核分裂速度、気孔径分布、結晶粒径、点欠陥の挙動を考えたモデルであり、理論上はもっともよく焼きしまり現象を反映しているものと考えられるが、数式の取り扱いは3.4及び3.5でも述べた如く、非常に複雑であり、しかも実験結果との一致もよくなく、また比較されてないものもある。Carlsonモデルは、気孔内には、ガス原子が含まれていると考えたモデルであり、上記のモデルとは異っているが、Carlsonが提案している再

溶解機構のみが、焼きしまり機構を支配しているとは考え難い。

実験モデルにおけるNRC, JAERIのものは、非常に簡単な式で焼きしまり量が計算されるが、実験結果を正確に評価する上では、かなり大ざっぱなものである。安全性の観点から最大焼きしまり量を求めるには、JAERIのモデルを用いるのが適当であろう。また、NRCのモデルでは最大焼きしまり量でさえ、正確に推定していない。これは、NRCモデルにおいては、最大焼きしまり量を炉外焼結実験(1700°C 24 hr)により決めていためであろう。(図-13 図-14 参照)また、Collins & Hargreaves モデルは、初期の実験モデルであり、その後数多くの照射焼きしまりデータが報告されていることを考えると、推奨できない。従って、実験モデルとしては、Rolstad 等が提案している実験式が、現時点では最適であると考えられる。しかし、この実験式における定数は適当に変化させる必要があろう。

4. 燃料挙動解析コードにおける焼きしまりモデルの取り扱い

燃料挙動解析コードにおいて使用される焼きしまりモデルは、できるだけ簡単な形の式が取り扱い上有利であろう。この観点からすれば、実験モデルである Rolstad et. al. モデルがよいわけであるが、このモデルでは、燃焼度の関数としてのみ焼きしまり量が算出されるだけであり、燃料ピン又は燃料棒全体としての平均的な焼きしまりを評価することになり、数式の取り扱いは簡単ではあるが、大ざっぱな予測値を与える傾向がある。そこで考えられるのが Stehle & Assmann モデルであり、筆者は、このモデルを推奨したい。ただし、このモデルを使用する際には、前もって、照射前の気孔径分布を正確に知る必要がある。

実際に、焼きしまり量を評価する際には、燃料をその温度によって、半径方向に 3 領域程度に分け、出力履歴により燃焼度を求め、燃焼度及び温度の関数として焼きしまり量を算出することになろう。

上記の手法では、燃料温度が急激に変化するような場合（すなわち原子炉のスタートアップ及びシャットダウンの時）には、温度として平均的な温度を選ぶ必要がある。理想的には、焼きしまり速度を正確にしかも簡単にモデル化する必要がある。

5. 結論

本報告では、1978年までに発表された焼きしまりモデルをレビューした。いずれのモデルも UO_2 に対して提案されたものであり、混合酸化物 (U, Pu) O_2 については、Carlson モデルのみである。しかし、混合酸化物においても、焼きしまり機構は UO_2 の場合と同様と考えられる。それ故、混合酸化物に対する焼きしまりモデルとして、筆者は、Stehle & Assmann のモデル（(49)式）が最もよく焼きしまり現象を反映させ、また実験値との一致もよいとして推奨する。

混合酸化物に対する焼きしまりモデルを考えるためには、焼結温度、焼結時間、結晶粒径、初期気孔率（初期密度）、初期気孔径分布の異なる試料をいろんな照射条件（線出力、照射温度、燃焼度）で照射し、その照射挙動を正確に把握する必要がある。

さらには、照射挙動を知るための基礎実験例えば照射下での U, Pu 原子の拡散定数を今後詳細に調べる必要がある。

最後に、本報告の結論として筆者は、理論モデルにおいては、Stehle & Assmann モデルを実験モデルにおいては、Rolstad et al. モデルを推奨する。

表-1 MacEwen & Hastings モデルに用いられた物理定数⁽¹⁵⁾

物 理 定 数	数 値	文 献
空格子生成エネルギー	2.3 eV	[37]
空格子移動エネルギー	2.2 eV	[37]
格子間原子生成エネルギー	4.0 eV	[37]
格子間原子移動エネルギー	0.3 eV	[37]
転位密度	$5 \times 10^9 \text{ m}^{-2}$	
原 子 容 (ϱ)	$4 \times 10^{-29} \text{ m}^3$	
バーガースペクトル (b)	$5 \times 10^{-10} \text{ m}$	
剛 性 率 (G)	$6.95 \times 10^4 \text{ MPa}$	[38]
表面エネルギー (r)	0.65 J m^{-2}	[39]
粒界拡散係数 (D_{GB})	$0.3 \times 10^{-3} \text{ exp}(-2.9/kT)$	[40]
不 正 歪 み (ϵ)	0.05	

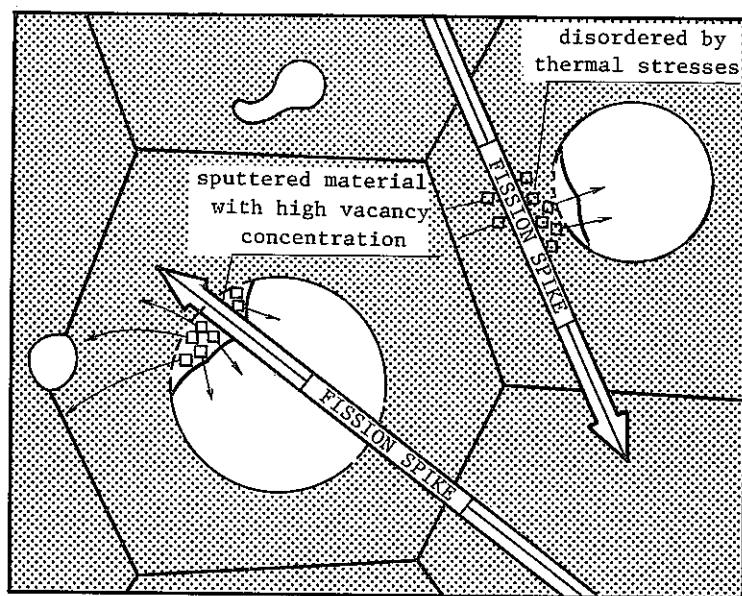


図-1. Stehle & Assmann モデルにおける空格子の生成の概略

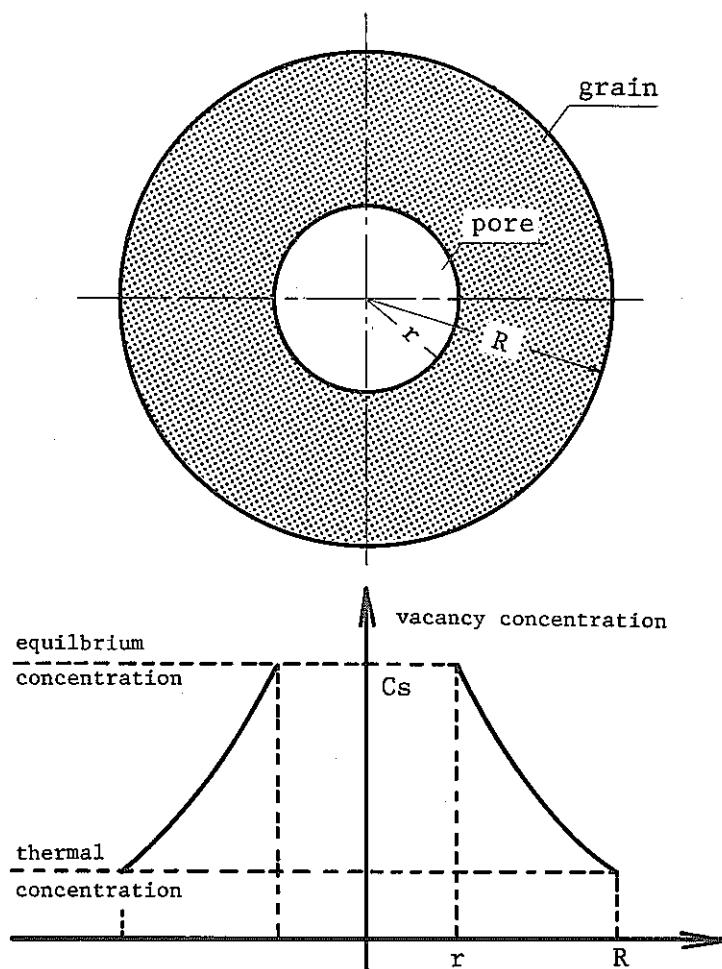
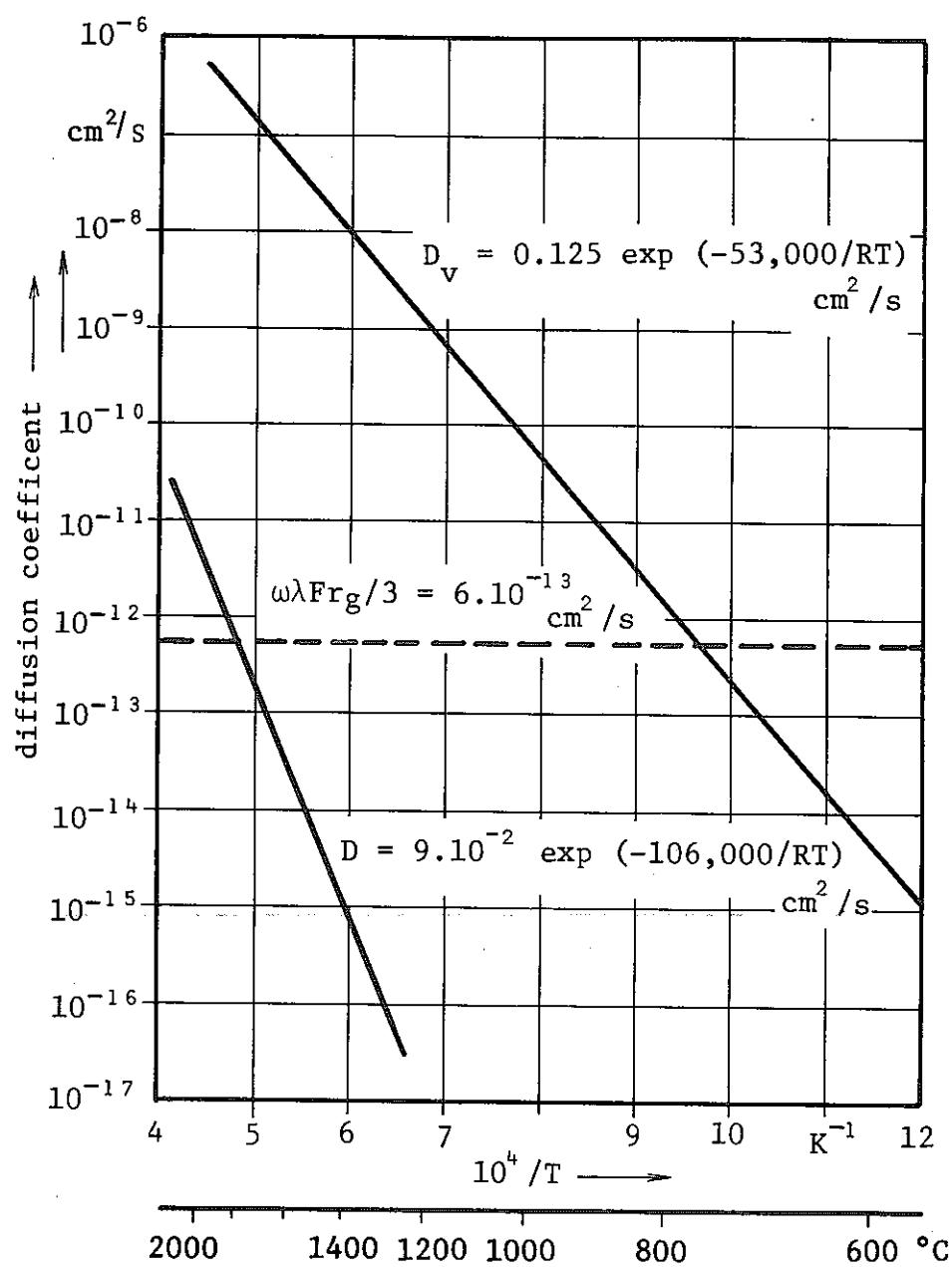


図-2. Stehle & Assmann モデルにおける空格子濃度

図-3 拡散定数(D)とパラメータ($\omega \lambda F r g / 3$)との比較

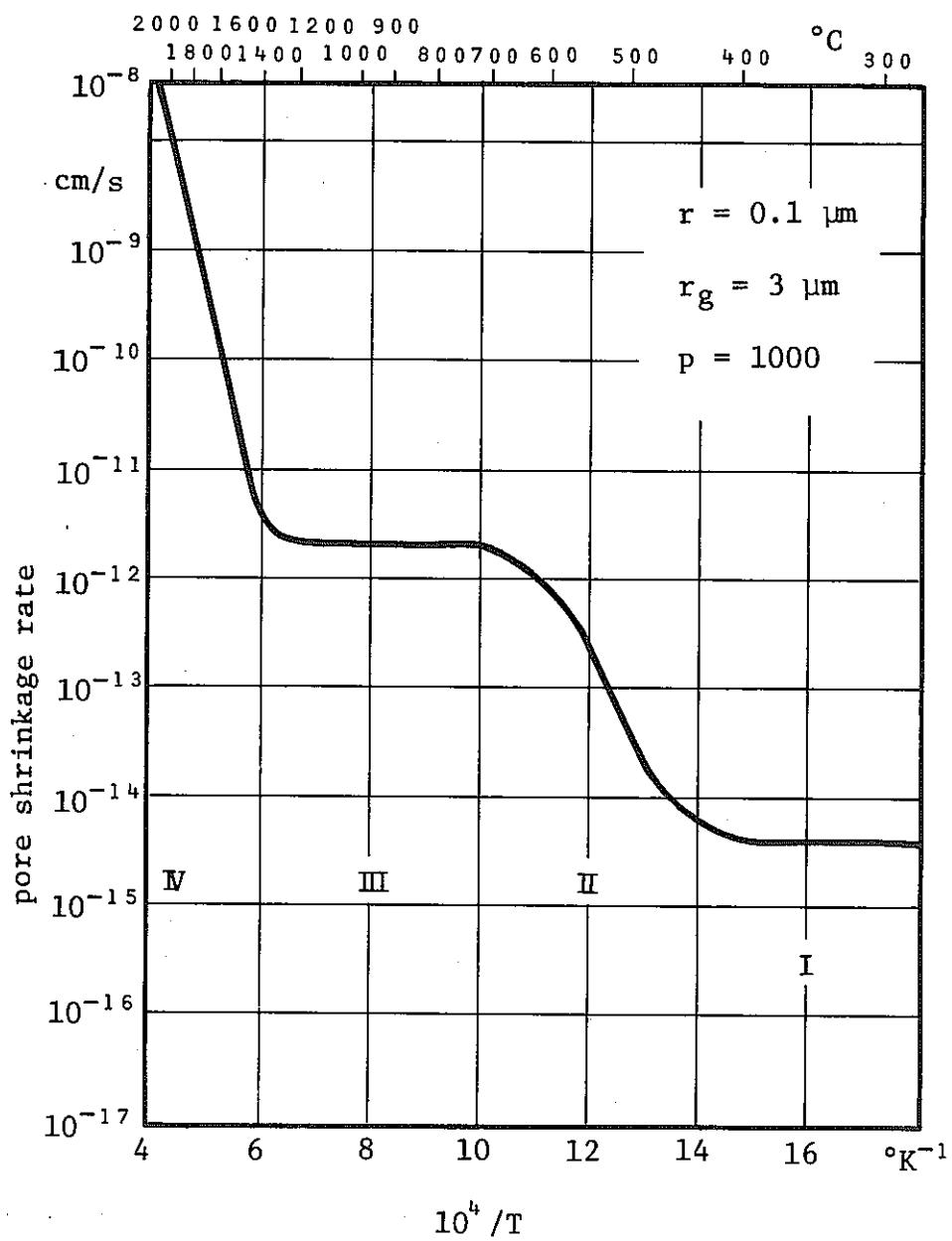


図-4 溫度の関数として表わされた pore 縮小速度

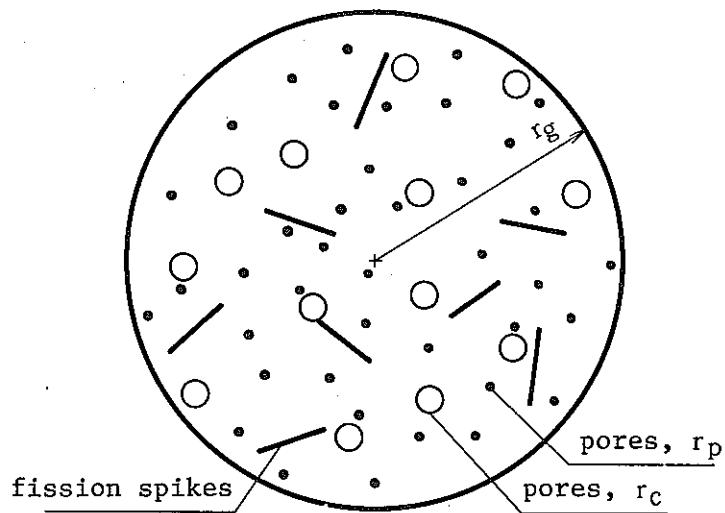


図-5. Stehle & Assmann モデルにおける微小気孔に対する炉内焼きしまりモデル

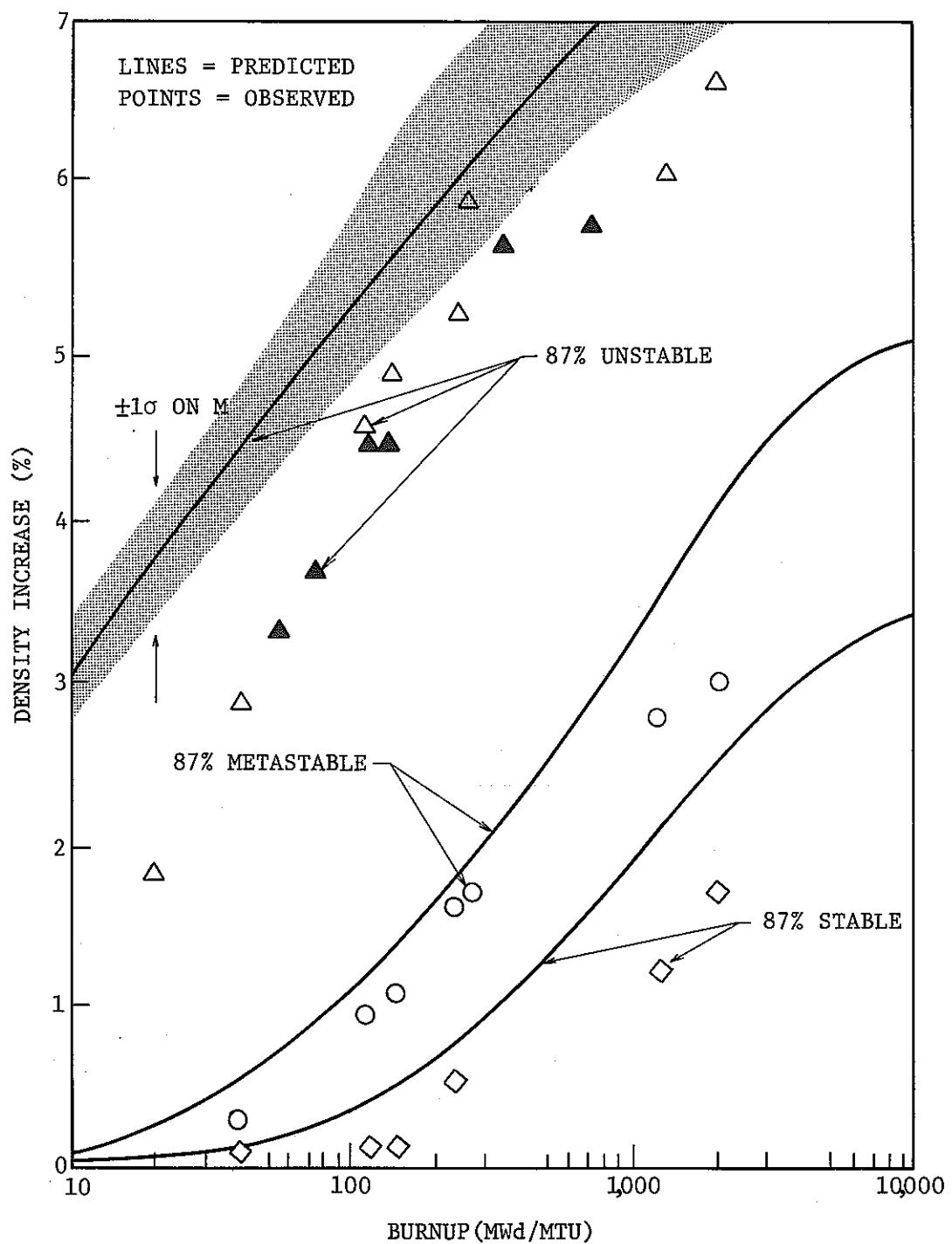


図- 6. やきしまりの実測値と計算値の比較 (Marlowe モデルによる)

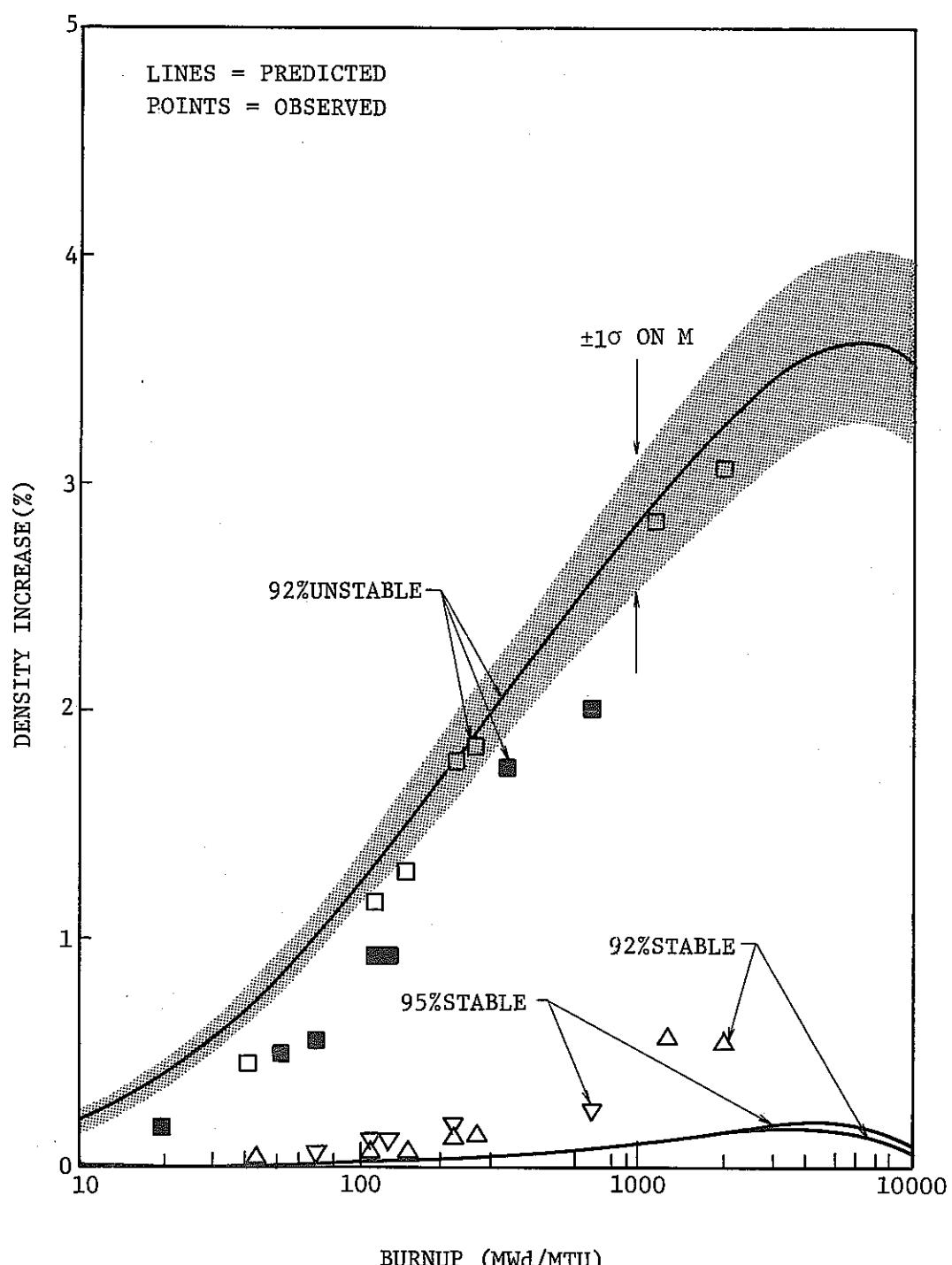
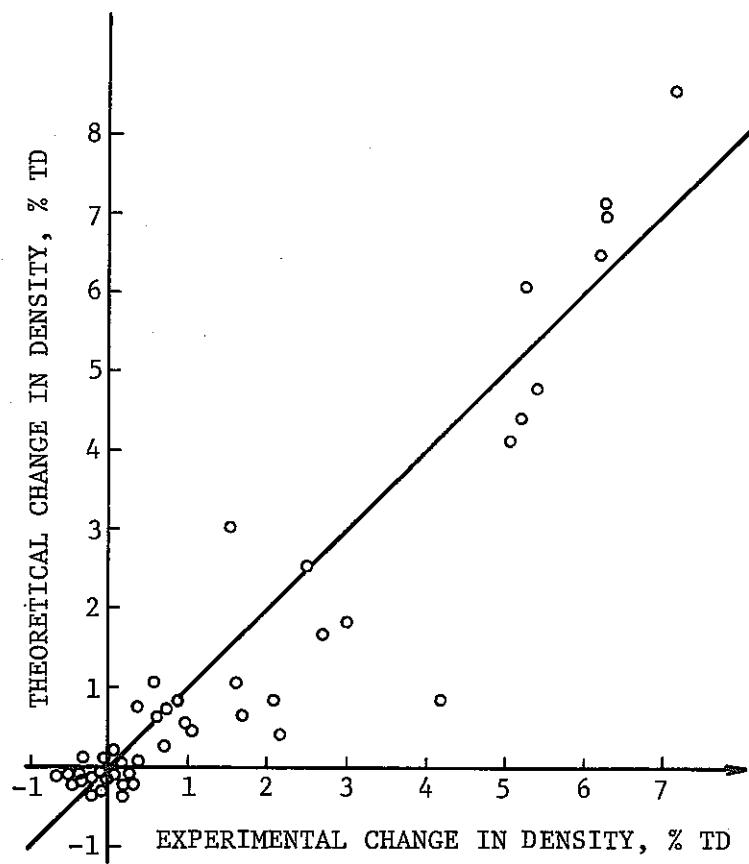


図-7. やきしまりの実測値と計算値の比較 (Marlowe モデルによる)



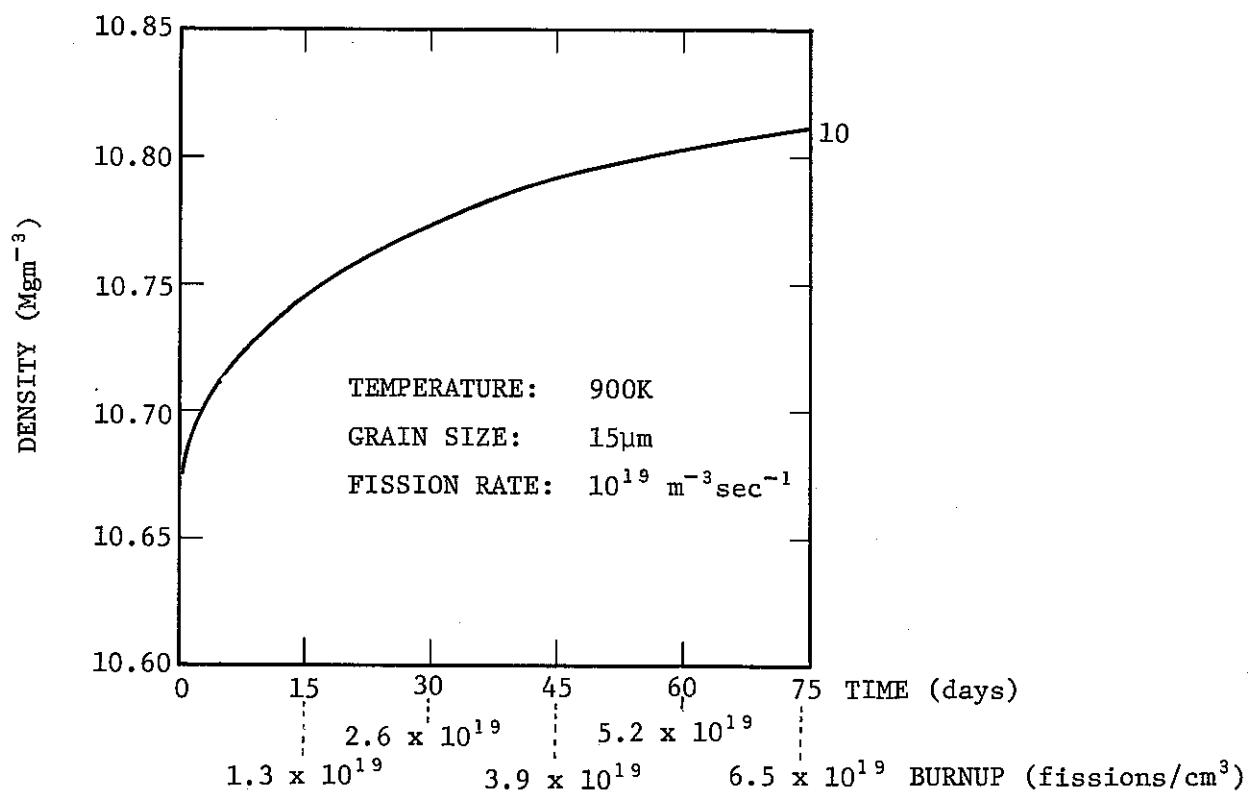


図-10. MacEwen & Hastings モデルによる焼きしまり
予測値

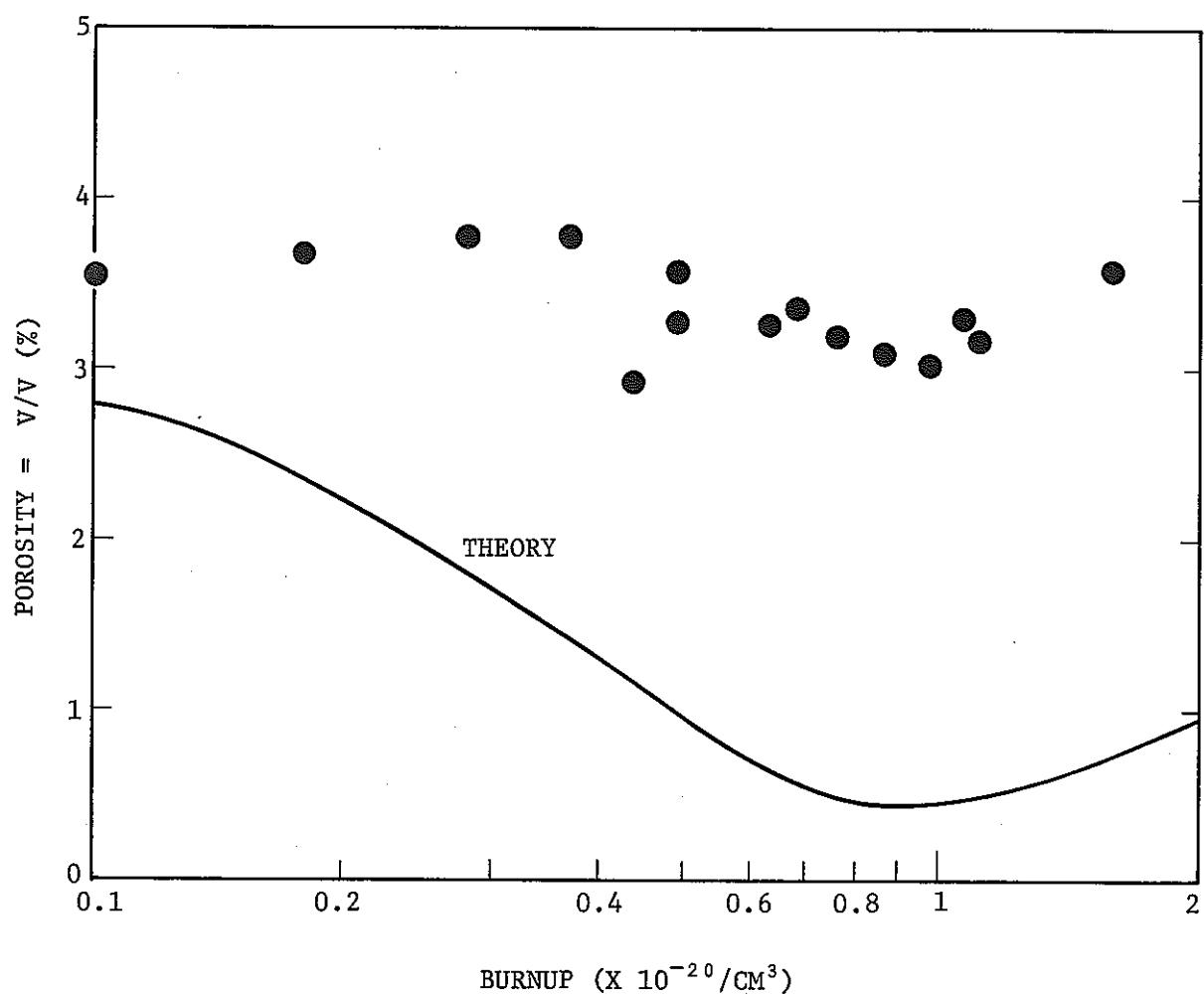


図-11. Dollins & Nichols モデルによる予測値と Banks の焼きしまり実験結果との比較

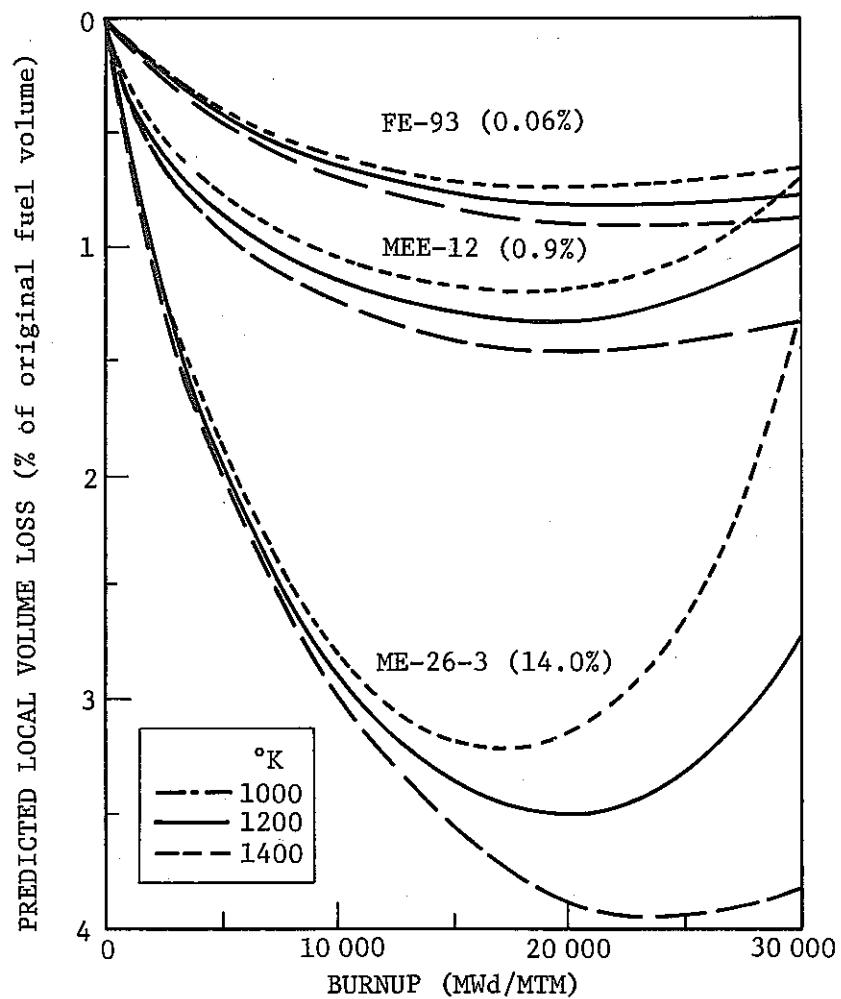


図-12. Carlson モデルによる焼きしまり
予測値

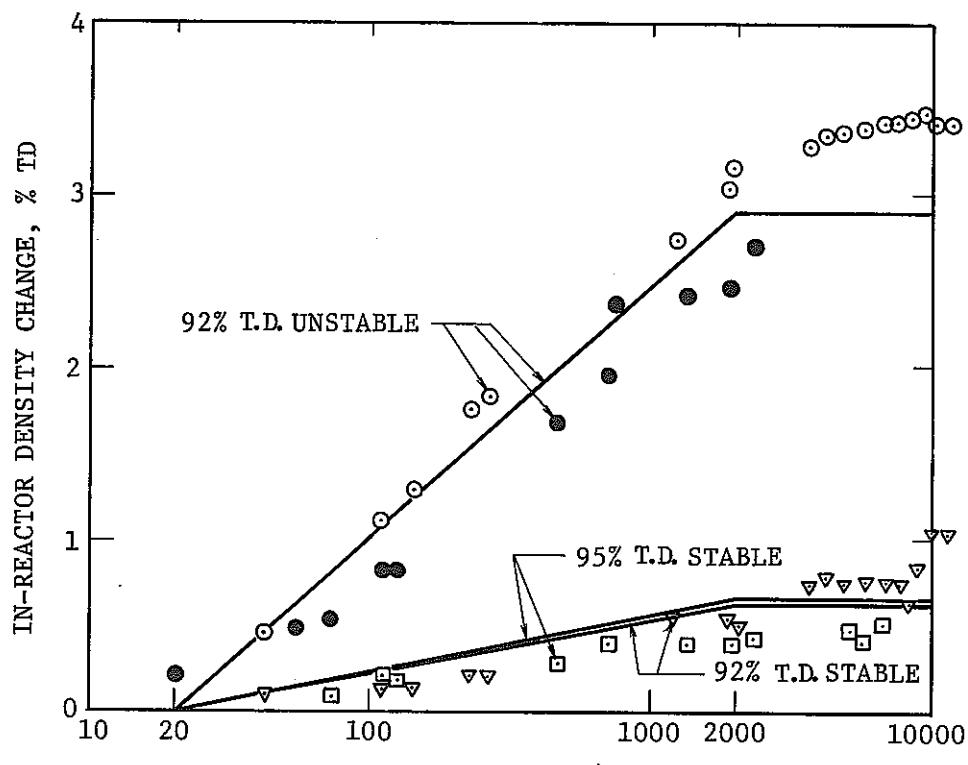


図-13. NRC モデルによる計算値(実線で示す)と Halden の焼き
しまり実験結果(高密度燃料)

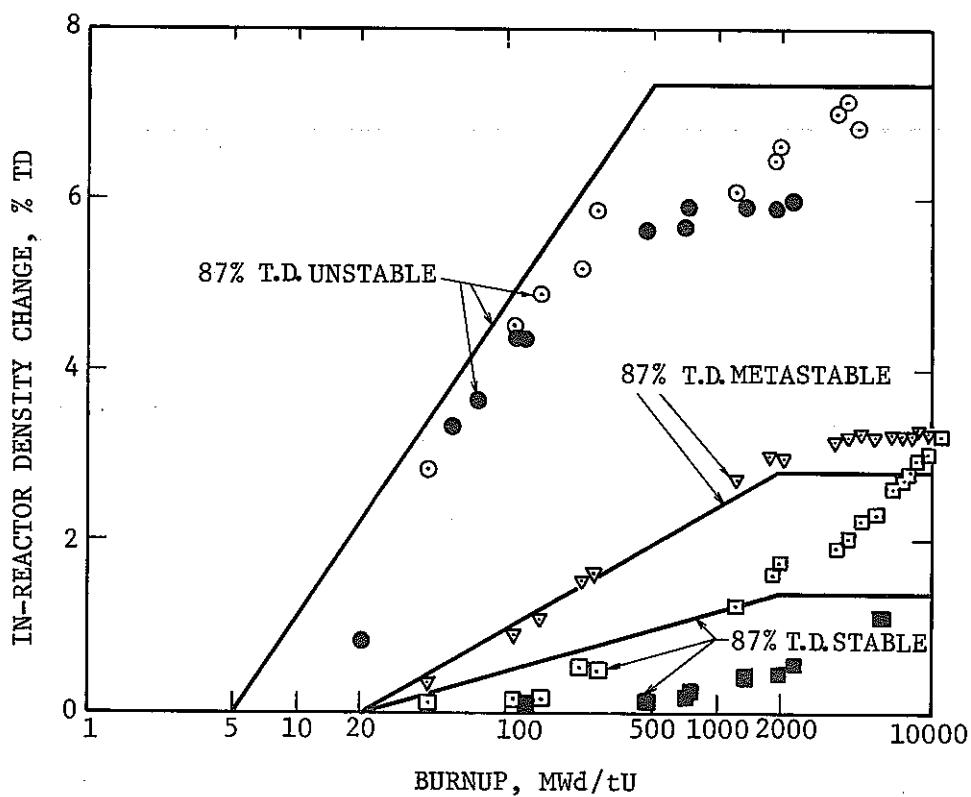


図-14. NRC モデルによる計算値(実線で示す)と Halden の焼き
しまり実験結果(低密度燃料)

参考文献

- [1] A. M. Ross, J. Nucl. Mat. 30(1969) 134.
- [2] R. G. Bellamy and J. B. Rich, J. Nucl. Mat. 33(1969) 64.
- [3] A. Calza Bini, G. Cosoli, G. Filacchioni, M. Lauchi, A. Nobili, U. Rocca and P. L. Rotoloni, Proc. Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, Karlsruhe, September, (1970) p520-p540.
- [4] R. L. Coble, J. Appl. Phys. 32(1961) 787.
- [5] R. L. Coble, ibid, 32(1961) 793.
- [6] M. O. Marlowe, NEDO-12440 (1973).
- [7] N. Lindman, J. Nucl. Mat. 71(1977) 73.
- [8] R. S. Nelson, J. Nucl. Mat. 31(1969) 153.
- [9] M. C. J. Carlson, Nucl. Tech. 22(1974) 335.
- [10] H. Stehle and H. Assmann, J. Nucl. Mat. 52(1974) 303.
- [11] H. Stehle and H. Assmann, J. Nucl. Mat. 61(1976) 326.
- [12] H. Assmann and H. Stehle, the 4th Int. Conf. on Structural Mechanics in Reactor Technology, San Francisco, California, August, (1977), Paper C3/1.
- [13] H. Assmann and H. Stehle, Nucl. Eng. Design 48(1978) 49.
- [14] M. D. Freshley, D. W. Brite, J. L. Daniel and P. E. Hart, J. Nucl. Mat. 62(1976) 138.
- [15] S. R. MacEwen and I. J. Hastings, Phil. Mag. 31(1975) 135.
- [16] C. C. Dollins and F. A. Nichols, WAPD-TM-1293(1977).
- [17] C. C. Dollins and F. A. Nichols, J. Nucl. Mat. 78(1978) 326.
- [18] W. Cubb, A. C. Hott, B. M. Argall and G. R. Kilp, Nucl. Tech. 26(1975) 486.
- [19] D. A. Collins and R. Hargreaves, Paper 50, BNES Conf. Nucl. Fuel Performance, London, (1973).
- [20] E. Rolstad, A. Hanevik and K. K. Knudsen, Enlarged HPG Meeting on Computer Control and Fuel Research (1974).
- [21] USNRC Regulatory Guide, 1.126, March, (1977).
- [22] K. Yanagisawa, JAERI-memo 7820(1978).
- [23] M. O. Marlowe, Presented at the Annual Meeting of the American Ceramic Society, Washington, D. C., May 1972.
- [24] M. F. Lyons, D. H. Coplin and B. Weidenbaum, GEAP-4111 (1963).
- [25] J. F. Marin and P. Contamin, J. Nucl. Mat. 30(1969) 16.
- [26] L. J. Martel and H. Ocken, EPRI 131 (1975).
- [27] H. Assmann and H. Stehle, Deutsches Atomforum, Proc. Reactor Conf. Karls-

- ruke, (1973) p409.
- [28] W. Dienst, KFK-1215 (1970).
 - [29] H. Stehle, H. Assmann and F. Wunderlich, Nucl. Eng. Des. 33(1975) 230.
 - [30] Hj. Matzke, in : Plutonium 1975 and other actinides, Proc. Symp., North Holland Publ. Co., Amsterdam, (1976) p801.
 - [31] Hj. Matzke, J. Nucl. Mat. 30(1969) 26.
 - [32] J. F. Marin and P. Contamin, J. Nucl. Mat. 30(1969) 16.
 - [33] H. Wiedersich, Rad. Eff. 12(1972) 111.
 - [34] C. C. Dollins, Rad. Eff. 11(1971) 33.
 - [35] T. E. Volin and R. W. Balluffi, Phys. stat. sol. 25(1968) 163.
 - [36] D. Hull and D. Rimmer, Phil. Mag. 6(1959) 673.
 - [37] Hj. Matzke, Proc. Int. Summer School Phys. of Ionized Gases, Herceg Novi, Yugoslavia, (1970) p354.
 - [38] B. J. Seddon, UKAEA Report DEG 120(R) (1960).
 - [39] E. N. Hodkin and M. G. Nicholas, UKAEA Report, AERE-R 7066 (1972).
 - [40] B. Burton and G. L. Reynolds, J. Nucl. Mat. 45(1972) 10.
 - [41] H. R. Warner and F. A. Nichols, Nucl. Appl. and Tech. 9(1970) 148.
 - [42] C. C. Dollins, J. Nucl. Mat. 59(1976) 61.
 - [43] A. D. Brailsford and R. Bullough, "Physical Metallurgy of Reactor Fuel Elements", The Metals Society, 148(1975).
 - [44] C. C. Dollins and H. Ocken, Nucl. Appl. and Tech. 9(1970) 141.
 - [45] C. C. Dollins and F. A. Nichols, J. Nucl. Mat. 66(1977) 143.
 - [46] F. S. Ham, J. Phys. Chem. Solids, 6(1958) 335.
 - [47] M. Uchida, K. Yanagisawa and M. Ichikawa, JAERI-M-6904 (1977).
 - [48] K. Yanagisawa, M. Uchida and K. Hayashi, JAERI-M-7210 (1977).
 - [49] D. A. Banks, J. Nucl. Mat. 54(1974) 97.
 - [50] A. Hanevik, K. D. Knudsen and P. Arnesen, Proc. Int. Conf. organised by B. N. E. S., (1973) Paper 89.