

SN843-70-13

核 燃 料 物 性 デ ー タ

～ 1970年3月

Physical and Chemical Properties of Nuclear Fuels

～ March, 1970

1970年12月

動力炉・核燃料開発事業団

東 海 事 業 所

この資料は、社内における検討、周知を目的とする社内資料です。

核燃料物性データ

～ 1970年3月

作成 1970年3月

実施責任者	小泉益通(プルトニウム燃料部試験課)
報告者	松本憲一(" ")
	小松純治(" ")
	佐藤政一(" ")
	佐藤 寛(" ")
	金子洋光(" ")
	田畑征雄(" ")
	横内洋二(" ")
	丸石芳宏(" ")
	野呂謙司(" ")

期間 1969年4月～1970年3月

目的 FBR燃料設計および燃料挙動解析のため国，内外の核燃料物質に関するデータの集積整理

概要 45年度より正式なテーマとしてとりあげられた「燃料物性データの集積と整理」の先行的な仕事として係内で各自がばらばらに持っている文献を整理し，利用しやすい形に核燃料関係の物性データを集積した。

はじめに

このデータ集は、45年度より正式にテーマとしてとりあげられた「物性データの集積と整理」の先行的な仕事として、現在、当係で各自がはらばらに持っている文献を係員のためにとりあえず整理してみたものである。

各自が整理を行なっている最中にも新らしい情報が手に入ったり、整理の方法に改良案が出たりしたが、これらは新らしく来年度から取りあげることとし、一応今回は各人各様のまとめ方をした。このため、詳細なデータが記載されているものや、そうでないものがあり、読みにくい点が多々あると思われるが、この仕事に始めて着手したことに免じて御容赦下さい。

今後は、情報収集網の整備を行ない、収集したデータを早く流し、更に、データファイリングシステムのインプットデータとなるよう整理の方法にも改良を加えてゆくつもりである。

今回まとめた内容は主に燃料ミートのデータであるが、この仕事の説明を当係の担当者に行なったときのメモを次にあげて、内容の説明にかえる。

1. 項目

1. Phase Diagrams & Crystal Structure	1-31-30
2. Melting Point & Vapor pressure	1-31-44
3. Thermal Expansion	1-31-46
4. Thermal Conductivity	1-21-42
5. Specific Heat	1-31-41
6. Gap Conductance	3-21-11
7. F. P gas Release Rate	1-31-81
8. Absorbed gas Release Rate	1-31-81
9. Fuel Meat Release & Safety	1-5-
10. Swelling Rate	1-31-82
11. Youngs Modulus	1-31-64
12. Poisson Ratio	1-11-65
13. Yield Strength	1-11-63
14. Creep Rate	1-11-71
15. Structure Changes	1-31-47
16. Interaction between Fuel & Cladding	3-11-11

なお各項目のまとめになる部分の右上に書かれている数字は、将来、ファイリングシステムを考えるとときに用いる予定のコーディングナンバーで、部内の数人で検討したものであり、まだ確定したものではないので、若し、将来確定すれば、番号を打ち変えるつもりである。

Data Coding Criteria

x - xx - xx
大 中 小 分類

- 大 分 類
1. Fuel
 2. Structure Material
 3. Fuel-Structure Material (1+2)
 4. Coolant
 5. Fuel-Coolant (1+4)
 6. Structure Material-Coolant (2+4)
 7. Moderator
 - 8.
 9. Others

中 分 類

1. Fuel 第一桁……Material
 1. Uranium
 2. Plutonium
 3. U-Pu (1+2)
 4. Thorium
 5. U-Th (1+4)
 6. Pu-Th (2+4)
 - 7.
 - 8.
 9. Others
- 第二桁……Status
 - 0 metal
 - 1 Oxide
 - 2 Carbide
 - 3
 - 4
 - 5
 - 6
 - 7
 - 8
 - 9 Others

2. Structure Material

第一桁 Material

- 1 Fe
- 2 Fe

- 3 Ni
- 4 Nb
- 5 V
- 6 Al
- 7 Zr
- 8 Mg
- 9 others

第二桁 一貫番号

- | | | | | |
|---|----|----|-------------|---------------------|
| 1 | Fe | 11 | Al | 304 S. S. (SUS 27) |
| | | 12 | | 304 L (28) |
| | | 13 | | 316 (32) |
| | | 14 | | 316 L (33) |
| | | 15 | | 347 (43) |
| | | 16 | | 321 (29) |
| 3 | Ni | 21 | Inconel 600 | |

3. Fuel-Structure Material

第一桁

- 1 Material Relation
 - 11 Compatibility
- 2 Thermal Relation
 - 21 Gap Conductance

4. Coolant

- 1 Metal
 - 11 Na
 - 12 K
 - 13 NaK
- 2 Non Metal Liquid
 - 11 Light Water
 - 12 Heavy Water
- 3 Gas
- 4 Organic
- 5 Salt
- 6
- 7
- 8
- 9 Others

5. Fuel-Coolant

6. Structure Material-Coolant

1. Material Relation

11 Corrosion

2. Thermal Relation

21 Thermal Conductance

小分類 (大分類の 1, 2 & 4 に適用)

00 Composition

01~15 化学的性質

16~29 核的性質

30~89 物理的性質

90~99 その他

30 Phase Diagram

41 Specific Heat

42 Thermal Conductivity ($\int kd\theta$)

43 Density

44 Melting Point

45 Enthalpy

46 Thermal Expansion

51 Surface Tension

52 Viscosity

53 Prandtl Number

61 Ultimate Tensile Strength

62 Elongation

63 Yield Strength (0.2% Offset Yield Strength)

64 Young Modulus

65 Poisson's Ratio

66

71 Creep

72 Fatigue

81 F. P. Gas Release

82 Swelling

91 Sm

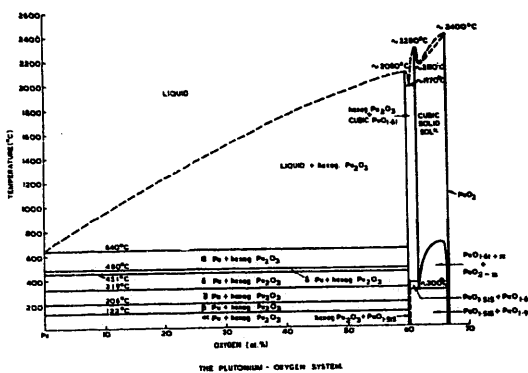
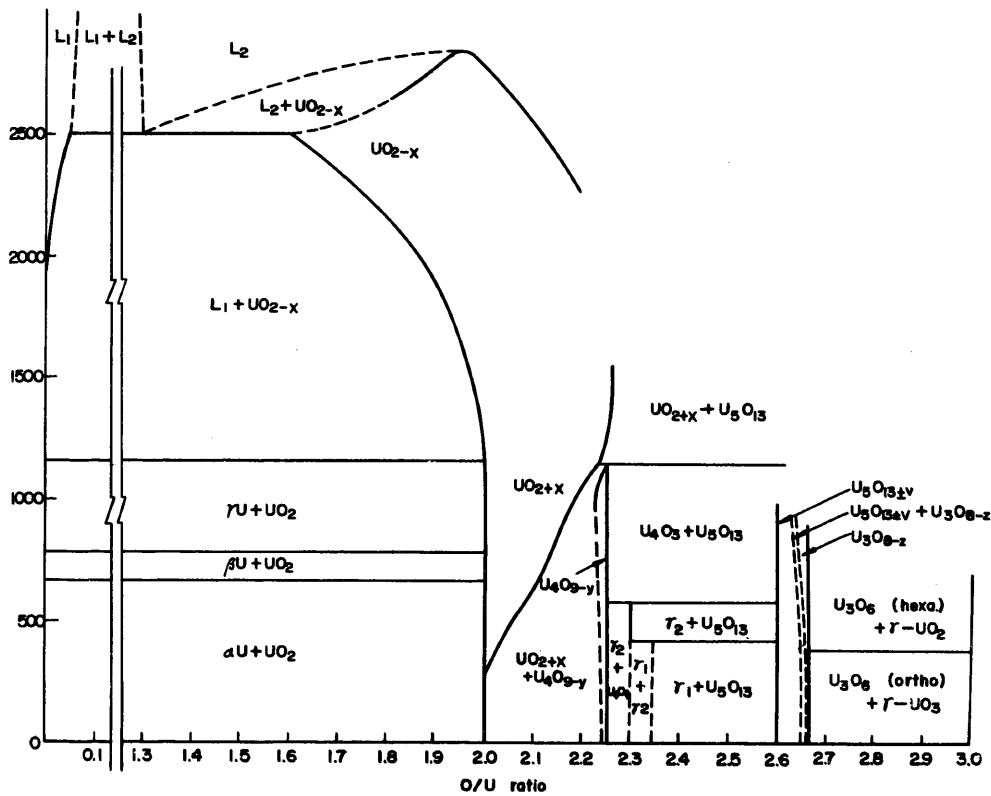
92 Sa

以上

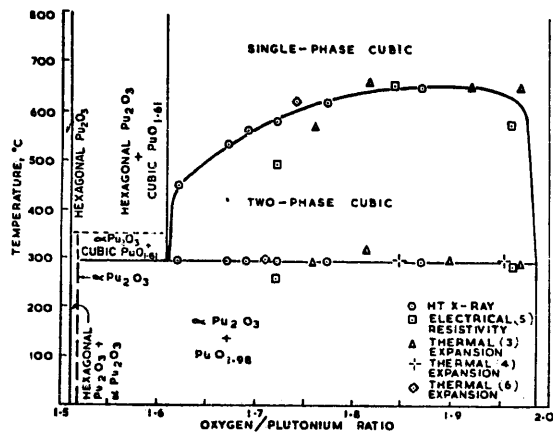
松本憲一

U-O に関する phase diagram は非常にたくさん出ているが最も信頼のおけるものは石井, 内藤のものである。また Pu-O 系のもとしては D.T.Livey and P.Feschott および T.L.Markin and R.S.Street のものが現在最も信頼がおけるものである。

Phase Diagram (U-O)
石井、内藤

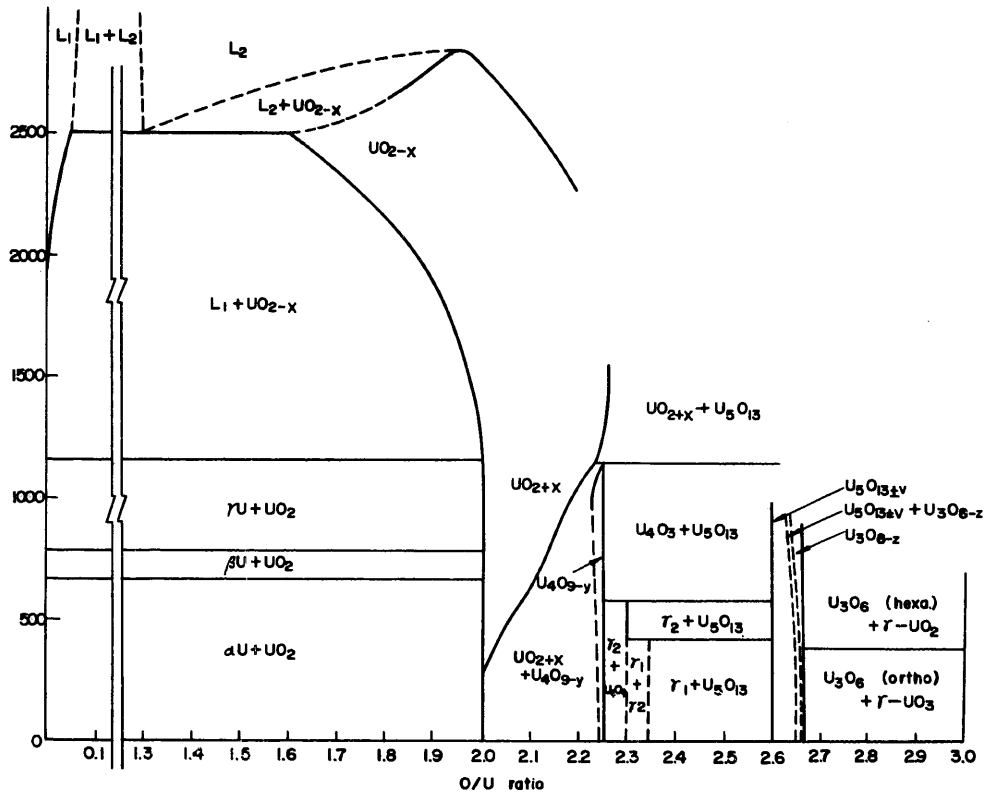


Phase diagram (Pu-O) D. T. Livey and P. Feschotte



Phase diagram (Pu-O) T.L.Markin and R.S.Street

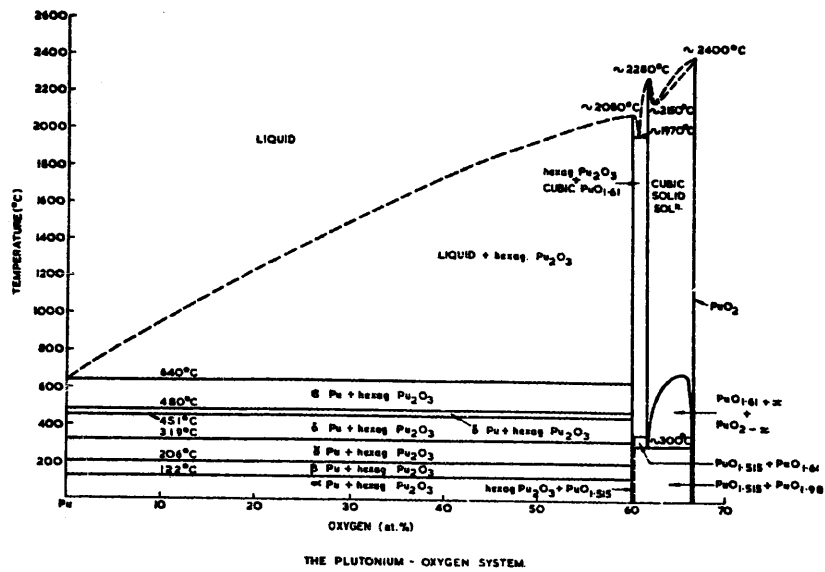
Phase Diagram (U-O)



Phase diagram of uranium oxides.

1. ウラン酸化物に関する資料を stoichiometry を中心にしてその構造や性質を整理した総説。
2. 固相金属ウランには α, β, γ の3相があり、表面は酸化されやすい。
3. 固体UOはまだ単離されていない。
4. $UO_{2.00} \sim UO_{2.67}$ は室温で比較的安定。各相の境界線にはまだ不明な点が残っている。

Phase Diagram (Pu-O)

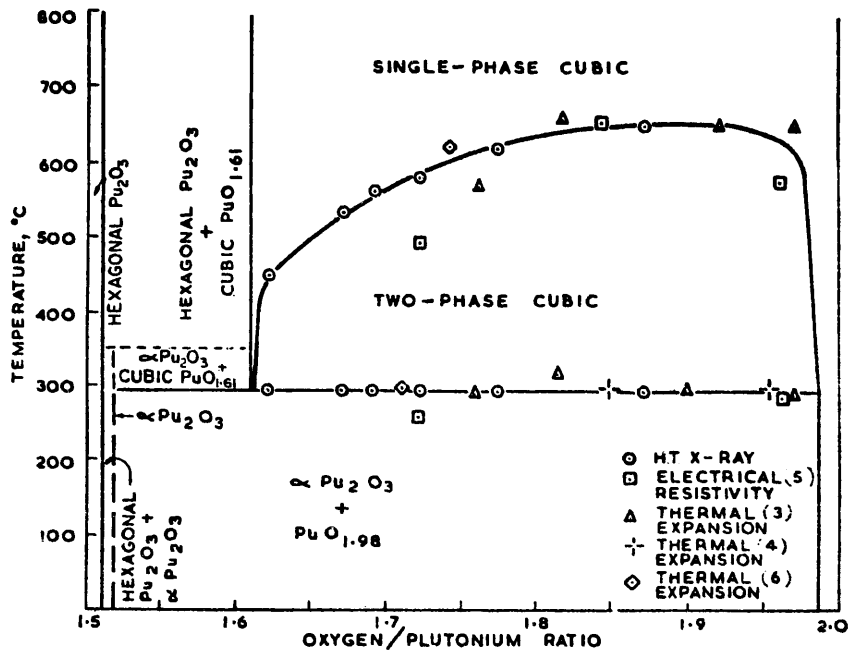


Phase diagram of the system plutonium-oxygen

1. Hanford, Harwell等のデータをもとに作成したもの。
2. PuOはBulkの試料として得られていない。金属Puの表面覆膜としては存在するが、これは金属の表面エネルギーで安定化しているものであるとして、状態図から除いてある。

Atomic Energy Review, vol.4, Special issue no.1. Plutonium: Physico-chemical properties of its Compounds and alloys. IAEA, Vienna, 1966. pp.53~72: D.T.Livey and P.Feschotte.

Phase Diagram (Pu-O)

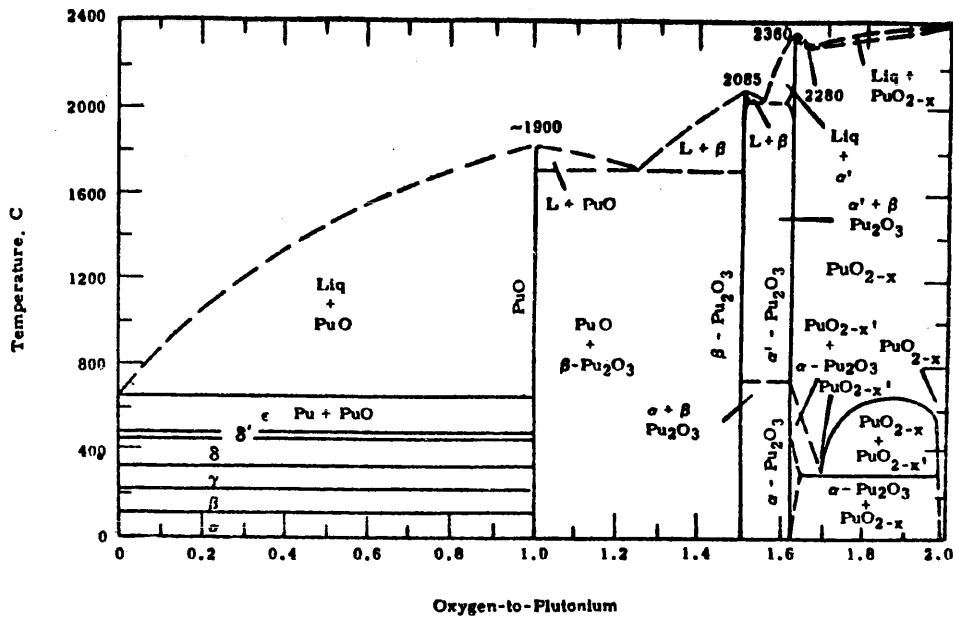


Plutonium-oxygen phase diagram

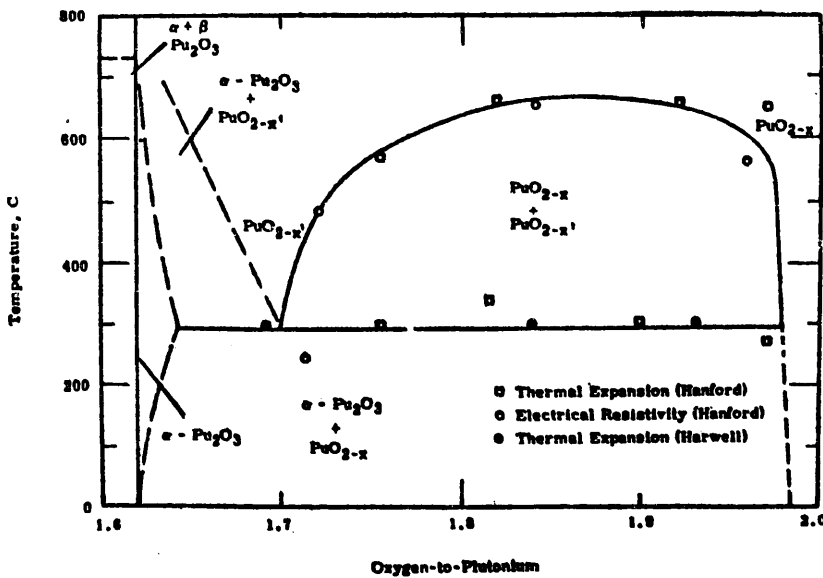
1. Harwell のデータ
2. 高温 X 線のデータから解析
3. Karlsruhe, Los Alamos で提案している状態図はこれを基礎にしている。

J. Inorg. Nucl. Chem., 27 (1965) 541: The Plutonium-Oxygen Phase Diagram, E. R. Gardner, T. L. Markin and R. S. Street.

Phase Diagram (Pu-O)



Proposed phase equilibria diagram for the system plutonium-oxygen.

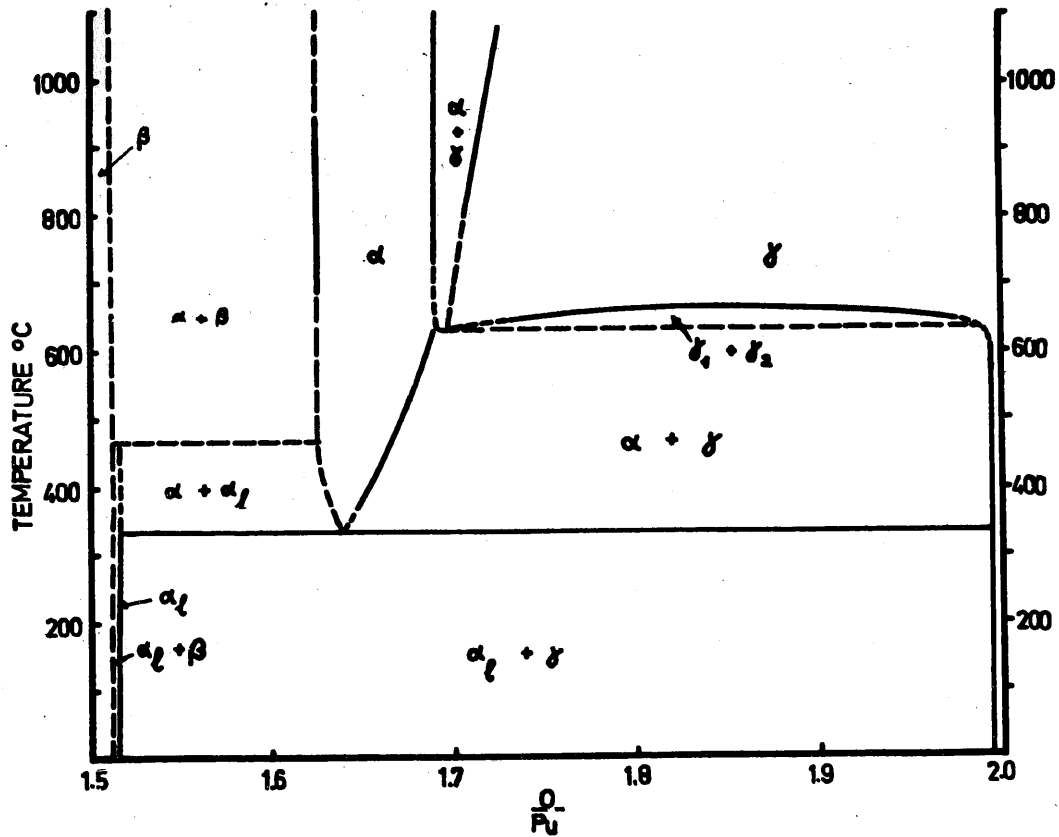


Low temperature-high oxygen content of diagram showing experimental points.

1. Hanford のデータ
2. $O/Pu=1.7$ 以下の領域はその後 Gardner et al および C.Sari et al によって別の状態図が提案されている。

J. Nucl. Mater., 12 (1964) 131, The Plutonium-Oxygen System. T.D.Chikalla, C.E.McNeilly and R.E.Skavdahl.

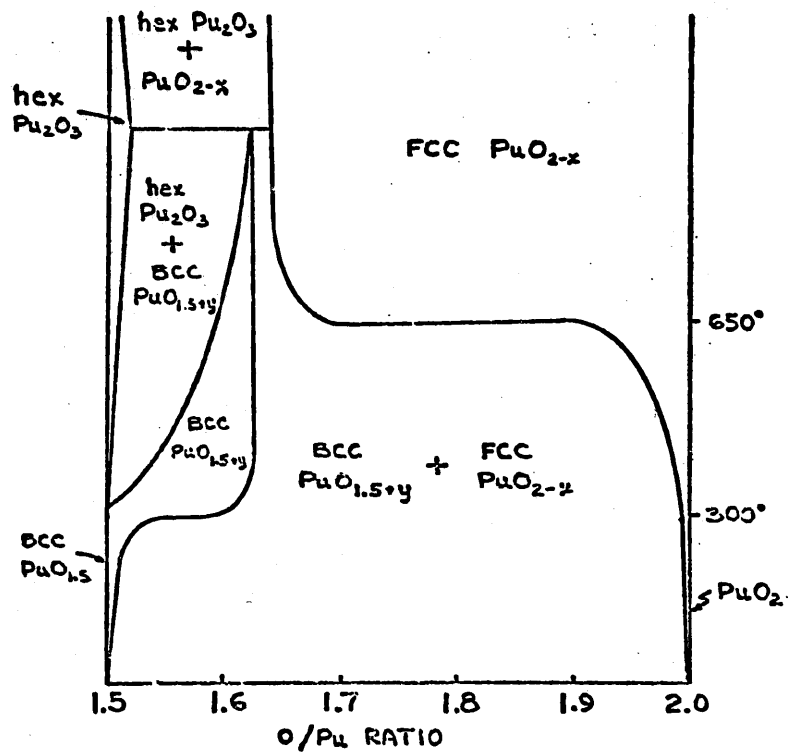
Phase Diagram (Pu-O)



The Pu-O phase diagram modified on the basis of this investigation and of ref. [14]

1. Karlsruhe のデータ
2. 高温から quench した試料の金相観察，常温 X 線のデータから解析。
3. Harwell の Gardner et al. の状態図を修正。

Phase Diagram (Pu-O)

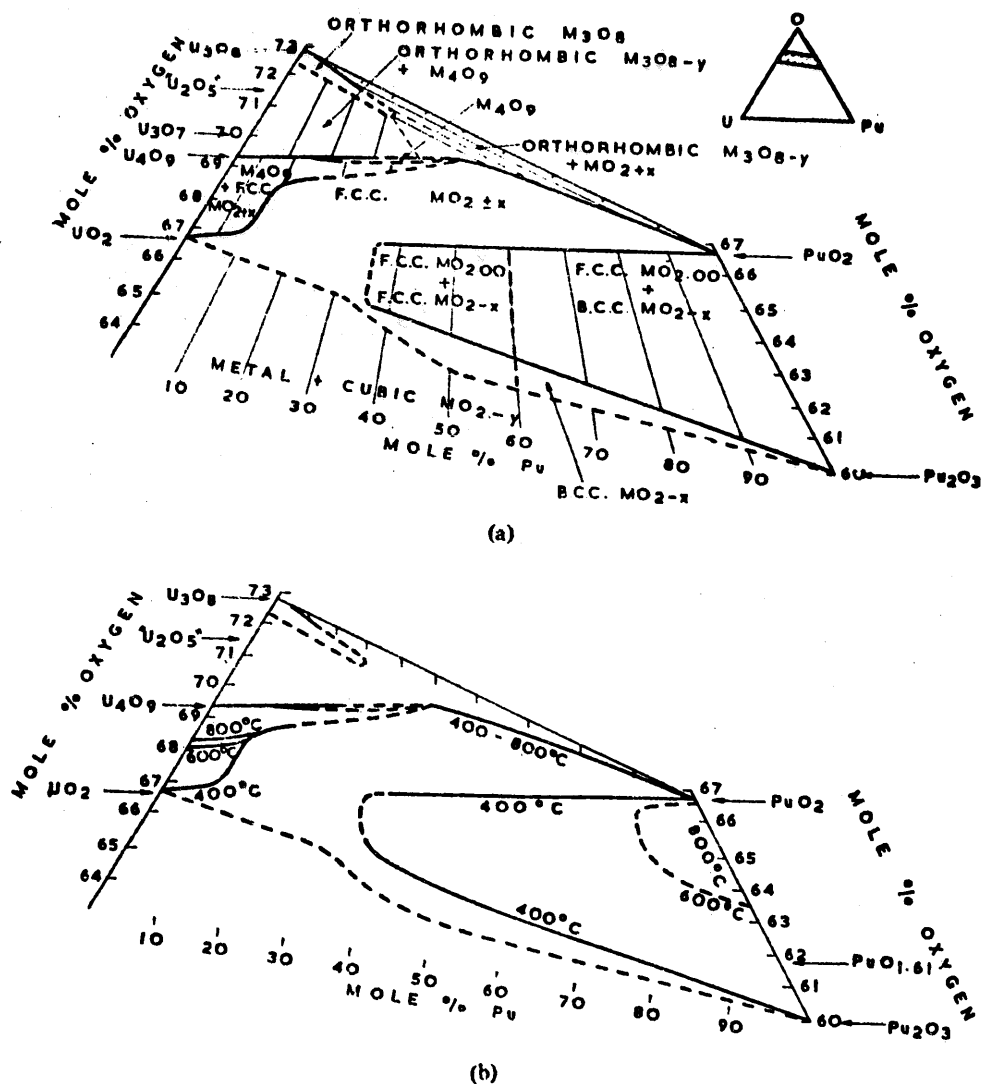


Alternative Phase Diagram

1. Los Alamos のデータ
2. X線回析, 熱容量, エントロピーから解析。
3. この筆者たちの特長は rare earth からの類似で作った点で, データそのものは Harwell の Gardner, Markin, Street の結果と殆んど同じで, こちらを特に秀れていると主張するつもりはなく, 議論を起すのが目的であるとしている。

LADC-8266, 1966, USAEC : Thermodynamic properties of plutonium oxides. B.N. Mulford and C. Hilley.

Phase Diagram (U-Pu-O)

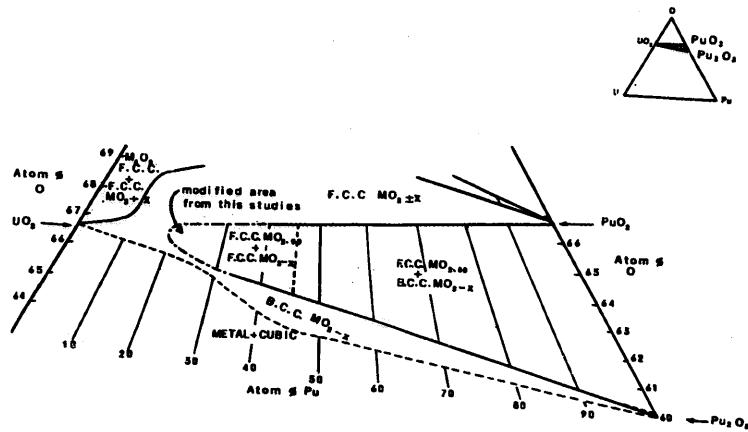


Ternary phase diagram, (a) 25 °C : (b) 400, 600 and 800 °C

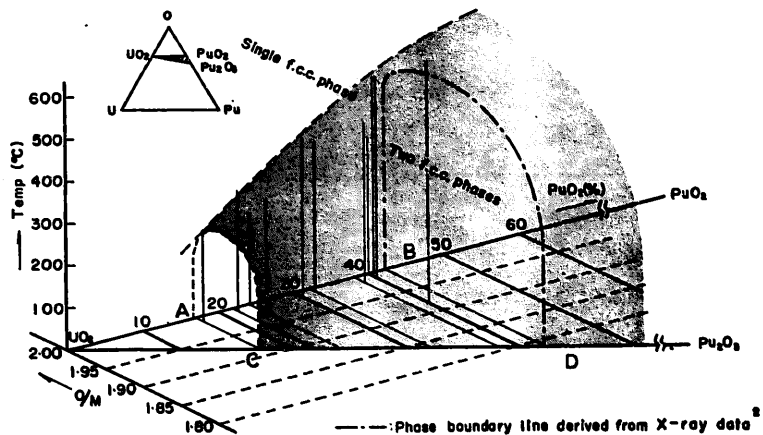
1. Harwell のデータ
2. 1966年 秋のウィーンの Thermodynamics of Plutonium Oxides のパネルでぼくこの線にまとまった。現在もっとも整備された状態図になっている。
3. まだ決定的なものとは云えない。MO_{2.00} をはなれた領域は不明な部分が多い。
4. 高温の状態図も不明な部分が多い。

J. Inorg. Chem., 29 (1967) 2265, The Uranium-Plutonium-Oxygen Ternary Phase Diagram:
T.L. Markin and R.S. Street.

Phase Diagram (U-Pu-O)



Ternary phase diagram of the system Pu-U-O at room temperature



Phase change temperature between a single f. c. c. phase and two f. c. c. phases vs. M ratio and Pu concentration for $(Pu_y \cdot U_{1-y})_x O_2$

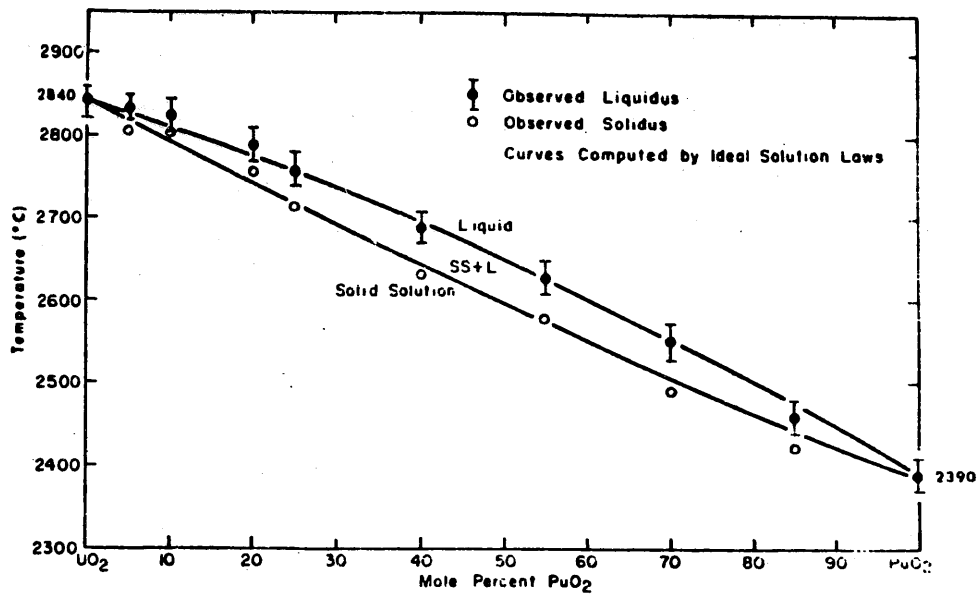
(Top of the bar represents beginning temperature of exothermic peak)

1. PNC のデータ
2. 常温X線, 示差熱分析による。
3. $UO_2 - 15\% PuO_2 \sim 40\% PuO_2$ の範囲を調べた。
4. 2相に分離する範囲が拡がっている。

International Symposium "Ceramic Nuclear Fuels", Am. Ceram. Soc. Nuclear Division.
 Washington, D.C. 1968.: Phase Studies and Fuel Performance in the System Pu-U-O:
 M. Koizumi, Y. Nakamura.

Phase Diagram (U-Pu-O)

W. L. LYON AND W. E. BAILY



Solid-liquid phase diagram for the UO₂ - PuO₂ System.

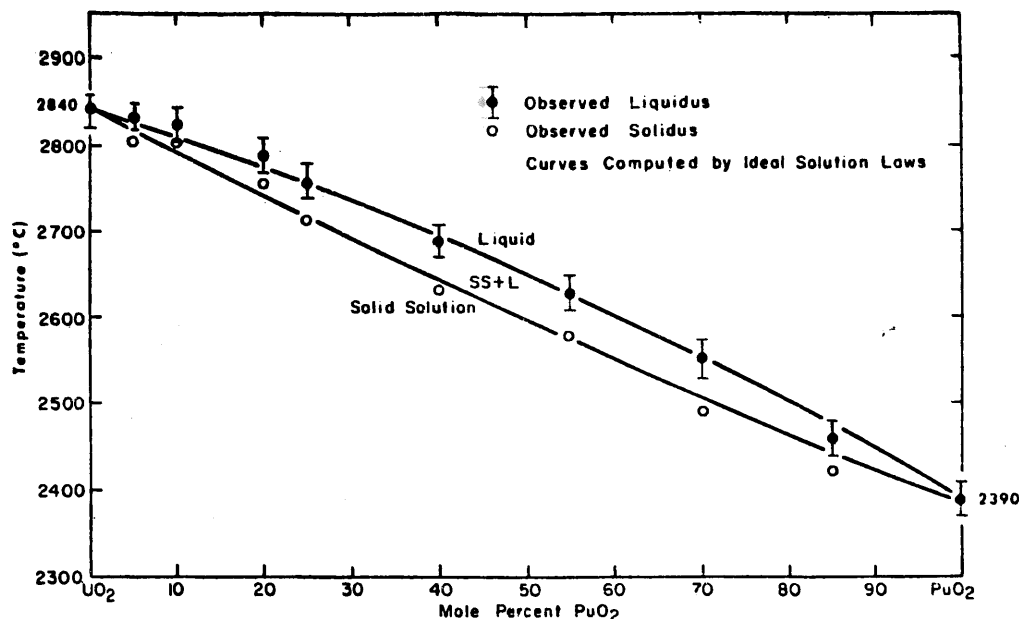
1. GE のデータ
2. Melting point のデータと共通

J.Nucl. Mater., 22 (1967) 332 : The Solid-Liquid Phase Diagram for the UO₂-PuO₂ System.

W.L.Lyon and W.E.Baily.

Melting Point のデータとしては W. L. Lyon and W. E. Baily (G. E.) のものが最も利用できるものと思われる。

W. L. LYON AND W. E. BAILY



最近の E. A. Aitken 等 (G. E.) の Informal Letter によれば混合酸化物の M. P. は、 O/M 比に影響されるよりむしろ、 O/Pu 比に大きく依存すると云われている。

0.6 w/o $PuO_2 - UO_2$ そのものの蒸気圧のデータは報告されていない。しかし他の濃度でのデータ等から考えて、0.6 w/o PuO_2 の蒸気圧は UO_2 の蒸気圧とほとんど同じであると言える。

Pascard による 10 w/o と 20 w/o $PuO_2 - UO_2$ の蒸気圧測定結果や、X線による格子常数測定の結果等から考えると、 $PuO_2 - UO_2$ は理想溶体であると見なすことが出来る。 PuO_2 濃度の低い 0.6 w/o $PuO_2 - UO_2$ においては更に理想溶体に近いと考えてよい。従って Raoult の法則が成立し、その蒸気圧 P は、

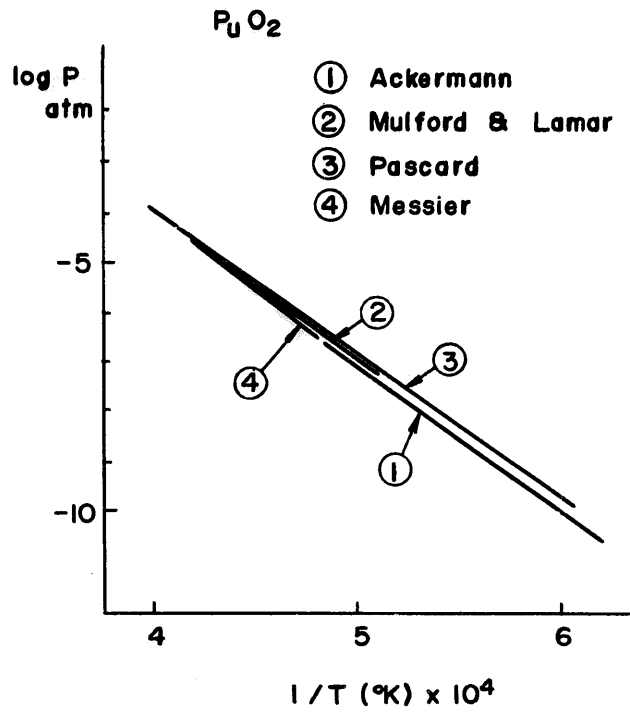
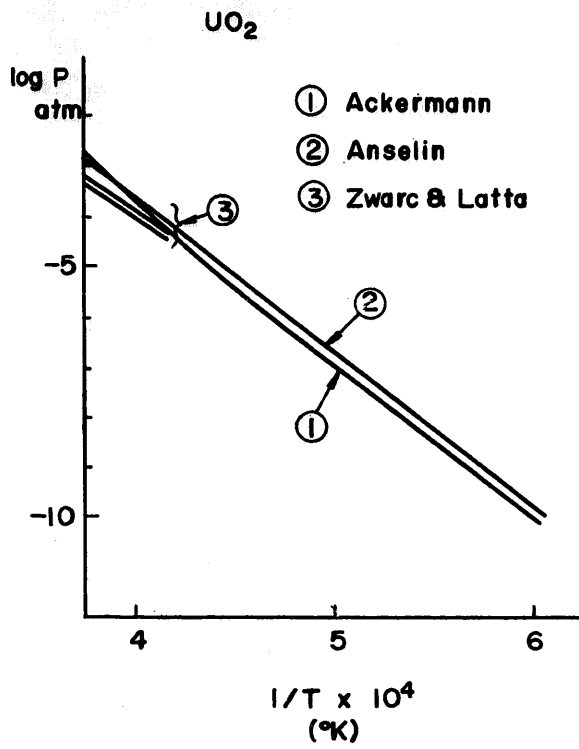
$$P = 0.006 P_{PuO_2} + 0.994 P_{UO_2}$$

となる。但し、 P_{PuO_2} と P_{UO_2} はそれぞれ PuO_2 , UO_2 単体での蒸気圧である。

PuO_2 に関する諸データと UO_2 に関する諸データとを比較しても、両者の蒸気圧の比には 2 倍ほどの開きもない。従って上式を

$$P = P_{UO_2}$$

としても測定誤差の範囲内で、差し支えない。



UO₂ ① ANL-5482(1955)

② IAEA Panel 1966 Vienna で Pascard
が彼に対する私信として Anselin から受取ったもの。

③ J. Amer. Ceram. Soc. Vol. 51 №5,
P264~8(1968)

PuO₂ ① IAEA Panel in Vienna (1966)
J. Phys. Chem. 70, 3698(1966)

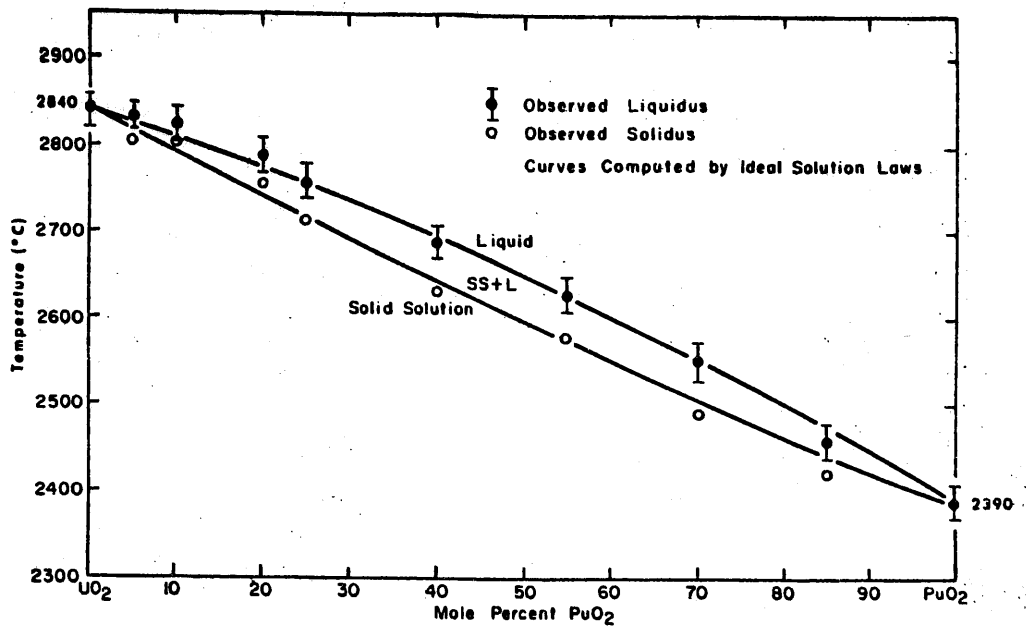
② Plutonium 1960 P411

③ IAEA Panel in Vienna(1966)

④ J. Amer. Ceram. Soc. Vol 51, №12
(1968)

Melting point

W. L. LYON AND W. E. BAILY



Solid-liquid phase diagram for the $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ system

測定

サーマルアレスト法

Wカプセルに約8gのサンプルを封入し、高周波加熱炉で加熱した。

この方法により solidus liquidus Temp.が求まる。

結果

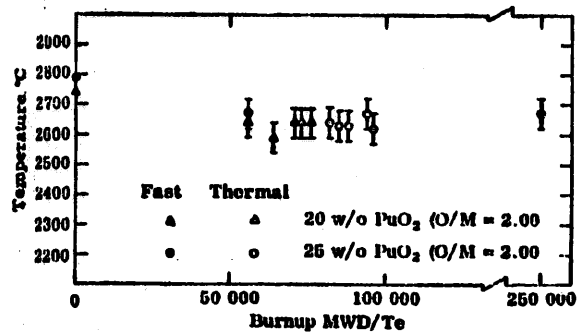
上図のように ideal solution law によく一致している。

W. L. Lyon and W. E. Baily

J. Nucl. Mat., 22(1967) 332-339

"The solid-liquid Phase diagram for the $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ system"

Melting point



Melting temperature of irradiated mixed oxide

測定方法

fast thermal fluxで照射されたサンプルより超音波ドリルでサンプリングし、
 (0.050 in—diam×0.100 inch long) V filament 法で測定
 burn up は燃料半径方向の burn up gradient を利用している。

結 果

50,000 Mwd/T. から 50~100 °C M. P. が下がる。

コメント

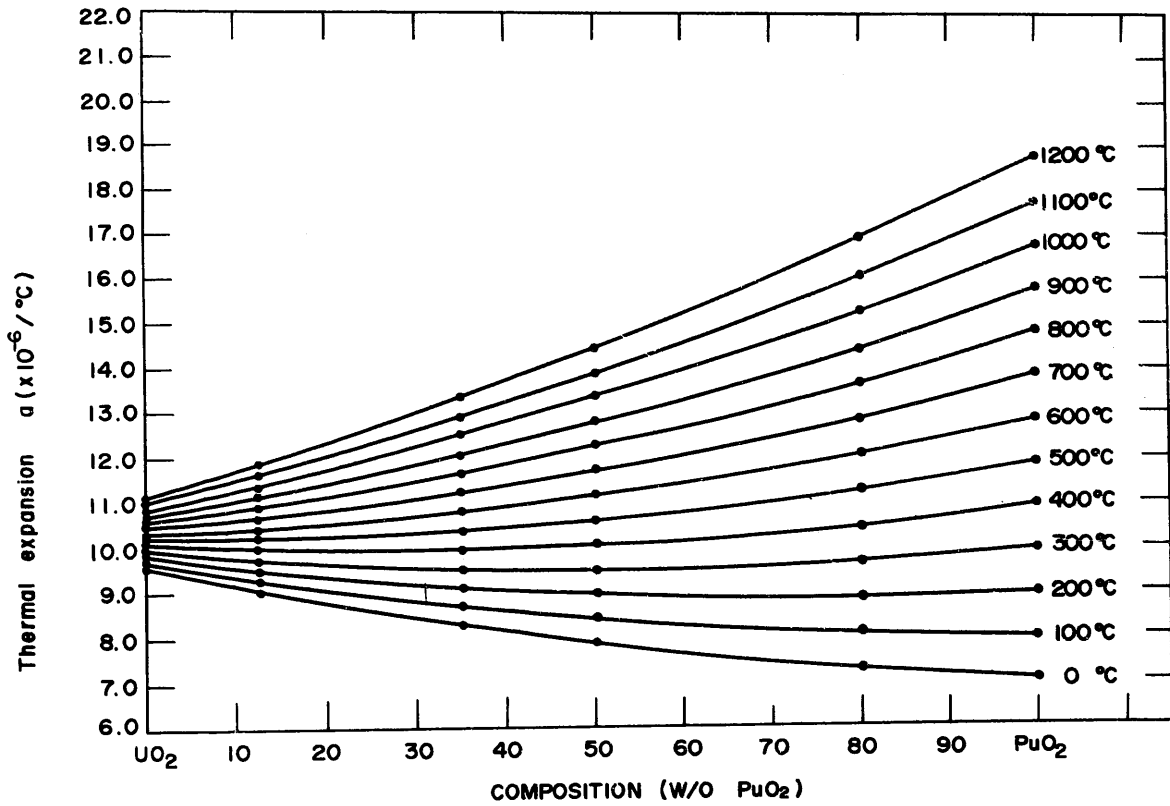
V filament 法なので誤差は大きい。

Krenkota, J. K ; Craig, C. N.

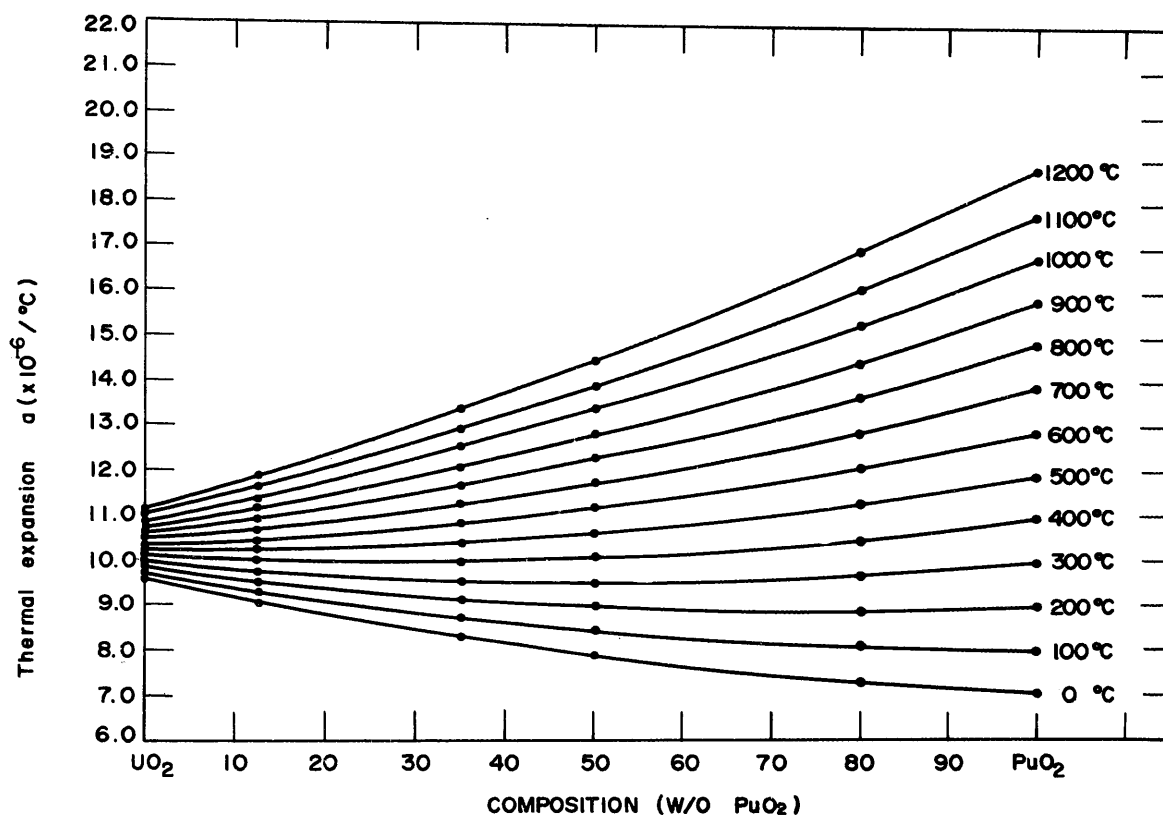
Trans. Amer. Nucl. Soc. 11 ; 132 (June 1968) Cont. —680601

" Melting point of high burn up PuO₂—UO₂ "

Isothermal のデータとしては決定的なものは見当らなかつた。また isothermal のデータをどのように実際の炉内のペレットに結びつけるか今のところ機械的性質の解明が充分でないのため問題がある。温度勾配をつけた炉外試験で R. R. Aspinall et al は温度勾配下のバルクの伸びを測定し、Volumetric av. temp. で計算すると実際とよく合うこと言っている。炉内の場合には縦方向の伸びのデータしかないがこの試験によりリッジング現象が見出されている。下図は、J. Roth, と E. K. Halteman が X線によって広範囲の PuO_2 の組成について熱膨脹を測定したものである。



Thermal expansion



Thermal expansion coefficient vs composition at constant temperature

試料 : 共沈法により PuO₂ と UO₂ を混合。88.8~97.4% T.D.

方法 : 高温 X 線により 0°~1200°C の温度範囲で格子定数を測定して熱膨脹率を求めた。温度補正は ThO₂ で行なった。

結果 : ~400°C 以下では熱膨脹率は PuO₂ の含有量が増すにつれて減少するが、~500°C 以上では増加する。

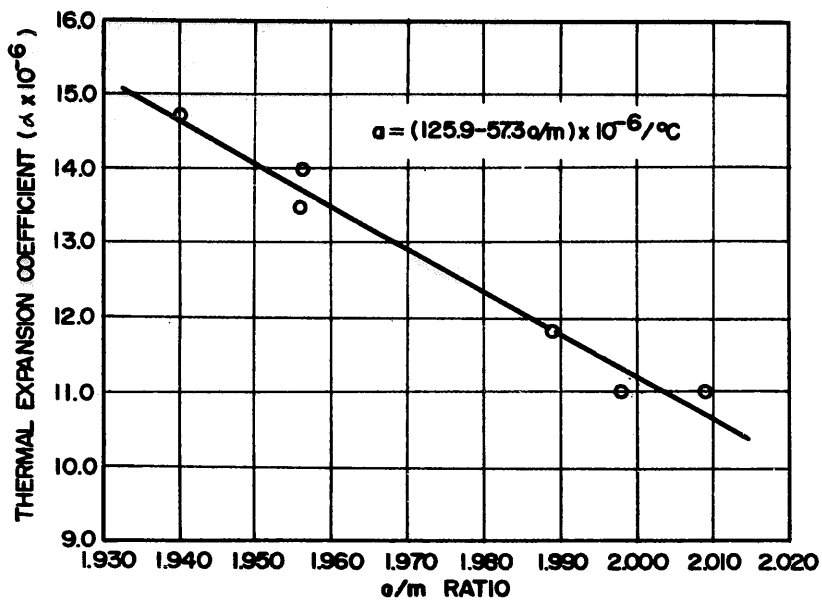
コメント

- X 線による thermal expansion の測定はバルクの expansion とは言えない。格子欠陥によりバルクの expansion は大きくなると思われる。しかし広範囲の PuO₂ - UO₂ の組成についての測定は注目すべきであろう。

J. Roth, E. K. Halteman, NUMEC-2389-9 oct. (1965)

"Thermal expansion of Coprecipitated (U, Pu)O₂ ponders by X-Ray diffraction technique"

Thermal expansion (O/Mとthermal expansion)



Thermal expansion as a function of stoichiometry 20wt%PuO₂-UO₂

試料：20% PuO₂-UO₂

方法：dilatometrを用いて25°~1500°の温度範囲で測決した。測定にはpt-pt 13% Rd thermocouple を用いた。

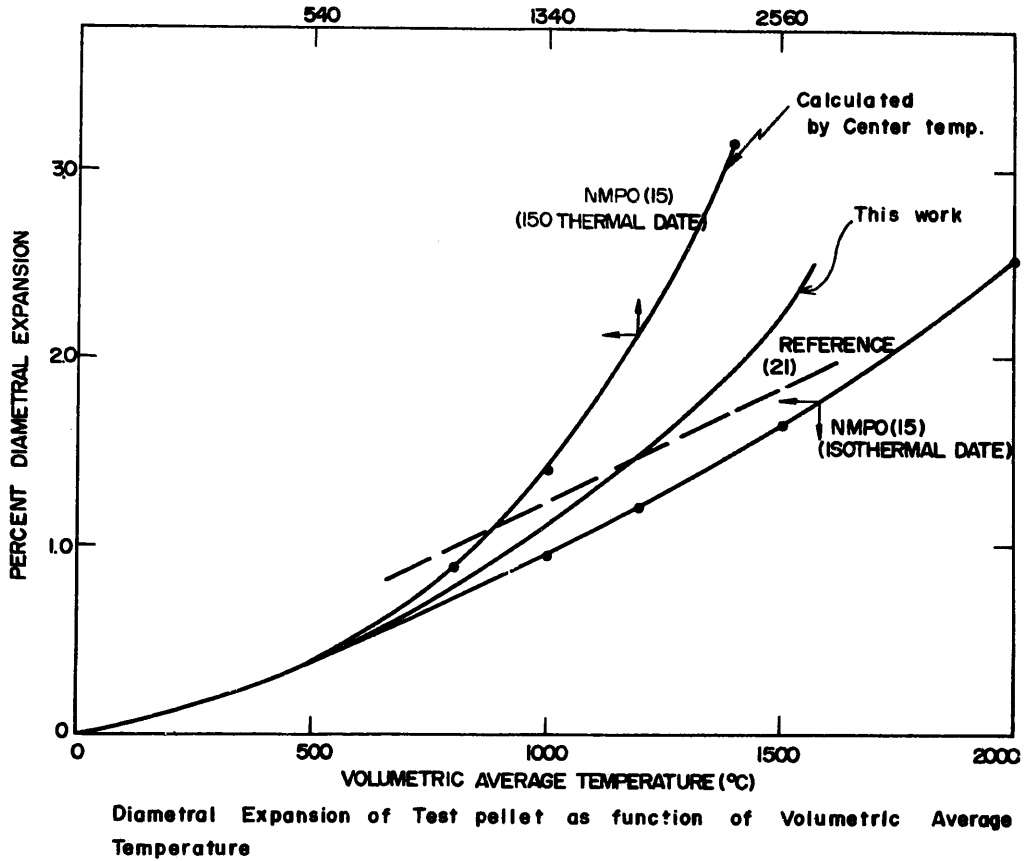
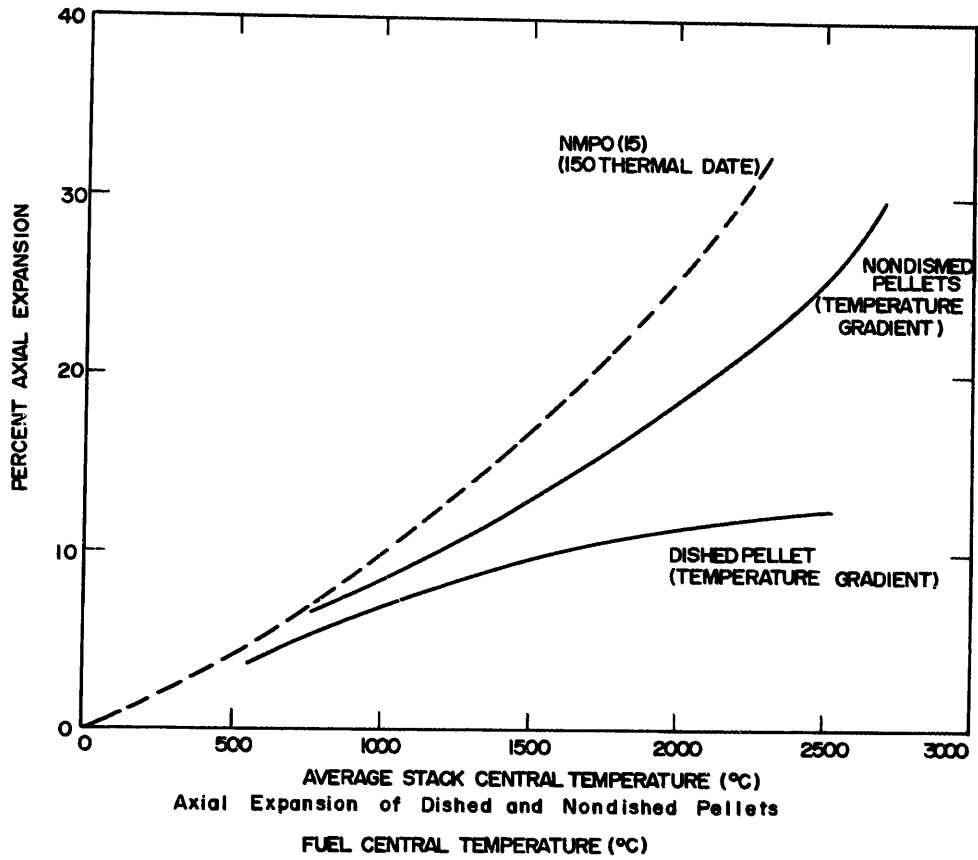
内容：O/M が低下するにつれて熱膨脹率は増加する。
O/M は測定前後に変化はなかった。

J. Roth M. E. Hubert, J. R. cheuy and C. S. Caldwell, Trans. Amer. Nucl. Soc. 10: 457-8 (No. V. 1967).

"The effects of stoichiometry on the thermal expansion of 20W/o PuO₂-UO₂ fast reactor fuel"

Thermal expansion

Thermal expansion



試 料 : UO_2 , $O/U = 2.003 \sim 2.012$. $0.875 \sim 0.889 \text{ in} \phi \times 0.5 \text{ in h}$
91~96%T. D.

方 法 : Wheeler により温度勾配をつける。max power の場合、中心部で 2370°C ,
表面で 1100°C となる。ただし炉内とは逆に温度勾配の曲線は凹型になる。伸び
測定はカセットメーターで横方向および縦方向について行なう。

結 果 :

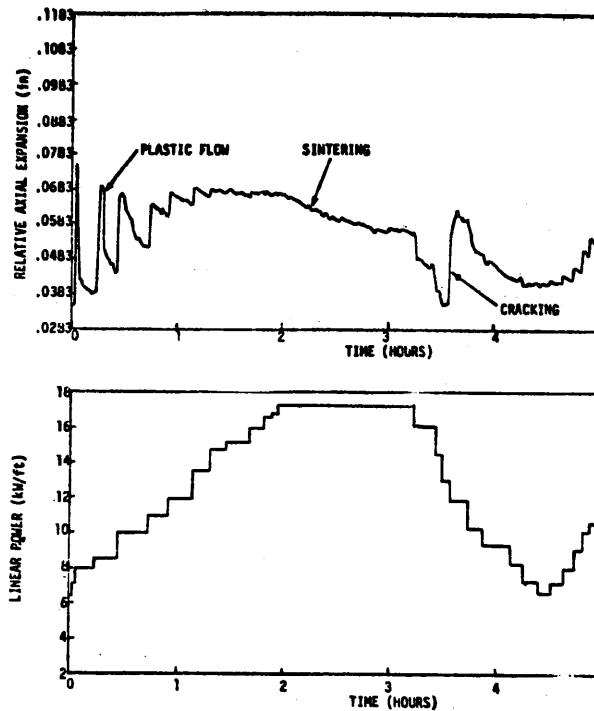
- ① nondished と dished pellets の縦方向の伸びは両者とも中心温度で isothermal data を用いた値よりも小さい。dished pellets は $\sim 2500^\circ\text{C}$ では nondished pellets よりも伸びが半分位になる。
- ② 半径方向の伸びは isothermal data を用い、中心および平均温度で計算したものの中
間に入っている。これらの値は実際の照射データともよく一致する。

コメント

1. カセットメーターで測定しているため精度に不安がある。
2. 温度勾配のつき方が炉内と違うために炉内のデータとして使用するには危険である。

R. R. Asamota K. J. Perry. E. L. Zebroski, "The effective axial and
diametral thermal expansion of UO_2 under a radial temperature
gradient". GEAP-5284 Oct. (1966)

Thermal expansion (Axial)



Power traverse performed after 400 MWd/tonne, showing the relative fuel-clad expansion as a function of fuel-pin power.

測定方法:

ガスプレナム内に transducer を取りつけて axial 方向の膨脹を測定する。

試料:

25% PuO₂-UO₂ 10-inches high gap 5.5mils

結果:

plastic flow と sintering により, のびが減少している。

(Fig. 1 400 MWd/T)。

20,000 MWd/T 以上になると (<13 kW/ft) では cladding と fuel 間にはのびの差はない。

(>13 kW/ft) では crack や突発の f. P. gas 放出により fuel の length が変化する。(T_c > 1900°C)

D. A. Cantley, G. R. Hull, C. N. Craig Axial expansion of mixed-oxide fuel during irradiation in GTR.

対 象



パラメータ

温 度

他のパラメータとして考えられるもの

- O/M
- 密 度
- 不純物量

推選値

(3)

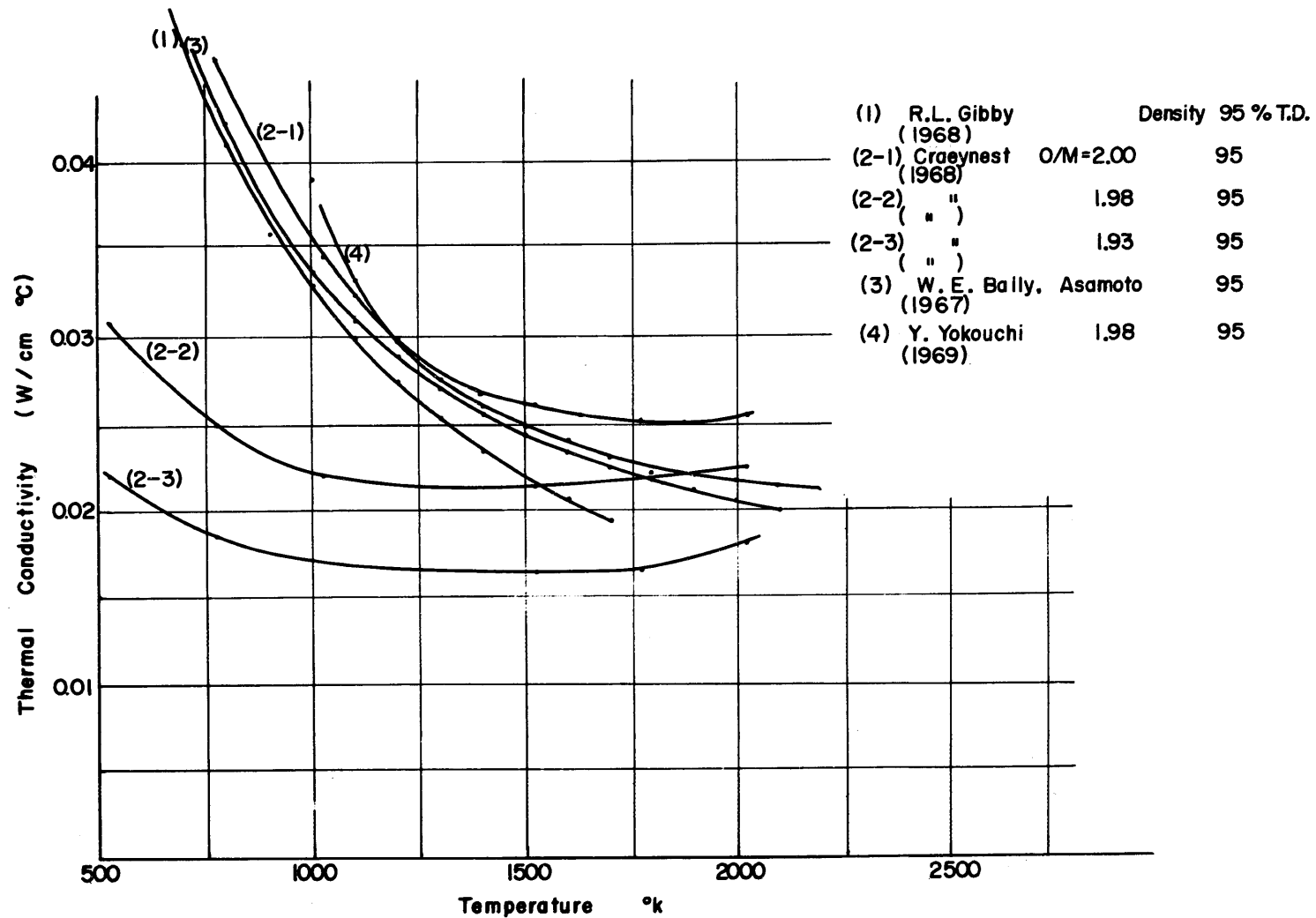
$$K = 0.0110 + \frac{1}{T(0.4848 - 0.4465D)} \quad (W/cm \text{ } ^\circ C)$$

この式を使用した設計例において高温で(2000°C付近から上)熱伝導率を過少評価していることがわかりはじめています。このような点から

(4)の

$$K = 0.017 + \frac{1}{0.1636T - 73.57}$$

は2000°C付近でより大きな値を示しているし、また1000~1800°Cでほぼ(3)と同じ値であるので推選出来るものと思う。



Thermal Conductivity ($U_{0.8}Pu_{0.2}$) O_2

Thermal Conductivity

1. Sample

(U_{0.8} Pu_{0.2})O_{2.00} Pneumatically-impacted
Sintered

2. Out-of-Pile Data

3. Temperature Range

200°C~1400°C

4. Density Range

Pneumatically Impacted 10.57 g/cm³ (95%T.D.)
Sintered 10.60 g/cm³ (96%T.D.)

5. Stoichiometry

2.00

6. Thermal Diffusivity

$$\alpha = 1 / (0.110T - 8.5) \quad \text{cm}^2/\text{sec} \quad T = \text{°K}$$

Thermal Conductivity

$$K = 1 / (0.0307T - 0.45) \quad \text{w/cm °K} \quad T = \text{°K}$$

7. Method of Measuring

Flash Method (Pulse 法)

8. Accuracy

±5% (100~1200°C)

9. Comment

Thermal Conductivity は Specific Data を用いて求めたものである。

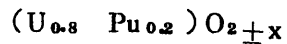
BNWL-704

Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of Stoichiometric (U_{0.8} Pu_{0.2})O₂

By R.L. Gibby

Thermal Conductivity

1. Sample



2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

R.T. ~ 2000°C

4. Density Range

95% T.D.

5. Stoichiometry

1.902 ~ 2.20

6. Thermal Conductivity

$$K = \frac{1}{A+BT} \quad (\text{cal/cm} \cdot \text{sec} \cdot ^\circ\text{C})$$

for $(U_{0.8} Pu_{0.2})O_{2.00}$ $A=40$, $B=0.1125$

$(U_{0.8} Pu_{0.2})O_{1.98}$ $A=110$, $B=0.1125$

$(U_{0.8} Pu_{0.2})O_{1.93}$ $A=160$, $B=0.1125$

7. Measurement Method

Sine Wave Modulated Method

CEA-R-3488

ETUDE DE LA CONDUCTIBILITE THERMIQUE

DES OXYDES MIXTES D'URANIUM

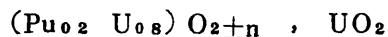
ET DE PLUTONIUM

par Jean-Claude Van CRHEYNES

Jean-Claude WEILBACHER

Thermal Conductivity

1. Sample



2. Out of Pile, In Pile

3. Temperature Range

0~2800°C

4. Density Range

82~95% T.D.

5. Stoichiometry

1.93~2.05

6. Thermal Conductivity

for UO_2

$$K = 0.0130 + \frac{1}{(0.4848 - 0.4465D)} \quad (\text{watts/m} \cdot ^\circ\text{C})$$

for $(\text{Pu}_{0.2} - \text{U}_{0.8})\text{O}_2$

$$K = 0.0110 + \frac{1}{T(0.4848 - 0.4465D)} \quad (\text{watts/cm} \cdot ^\circ\text{C})$$

(T=°C)

7. The value of $\int kd\theta = 86 \text{ watts/cm}$
= 89 " for Hypostoichiometry

8. Measurement Method

Study State Method

a Paper Prepared for Nuclear Metallurgy Symposium American Institute of Mining
Metallurgical and Petroleum Engineers

October 4-6 1967

Camelback Inn, Phoenix, Arizona

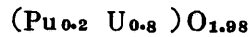
Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide Fuels

By W.E. Baily, E.A. Aitken

R.R. Asamoto, C.N. Craig

Thermal Conductivity

1. Sample



2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

800°C~1900°C

4. Density

95% T.D.

5. Stoichiometry

$$\text{O}/\text{M} = 1.98$$

6. Thermal Conductivity

$$K = 0.017 + \frac{1}{0.1636T - 73.57}$$

7. Measurement Method

Sine Wave Modulated Method

Presented at the Fall Meeting of the Atomic Energy Society of Japan (Tohoku Univ. Nov. 1969)

"Thermal Diffusivity Measurements of Simulated fuel to irradiated PuO_2 - UO_2 at high burn-up

Y. Yokouchi et al

Thermal Conductivity

0.6% PuO₂-UO₂ 燃料そのもののデータは報告されていないが、他の物質のデータ、熱伝導のメカニズム、あるいは10, 15, 20% PuO₂-UO₂ のデータなどから、かなりの正確さをもって次のことが云えるものと信ずる。

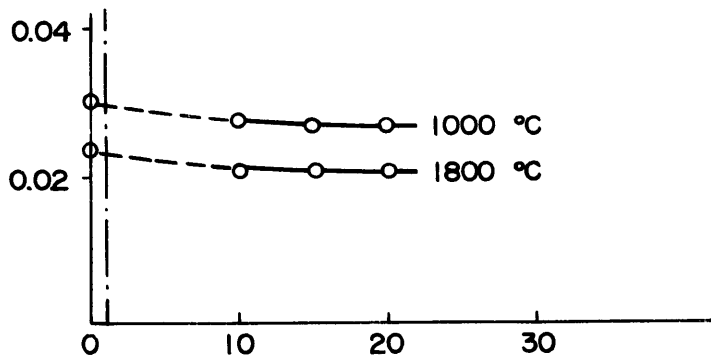
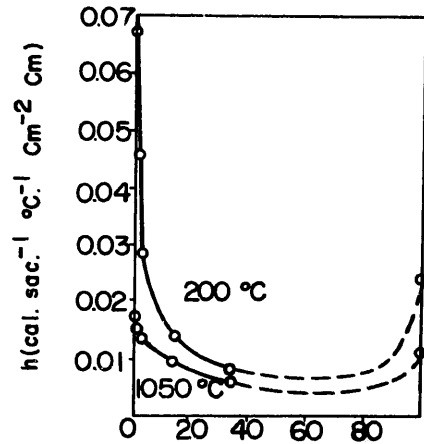
0.6% PuO₂ を UO₂ 中に含まれた不純物と考えることが出来るが、不純物が熱伝導率におよぼす影響は低温であるほど大きい、温度があがるにしたがってその影響は小さくなり1000°C から上の温度では極めて小さい。

例としてMgO 中にNiO が不純物として入った時の熱伝導率変化を右図に示す。

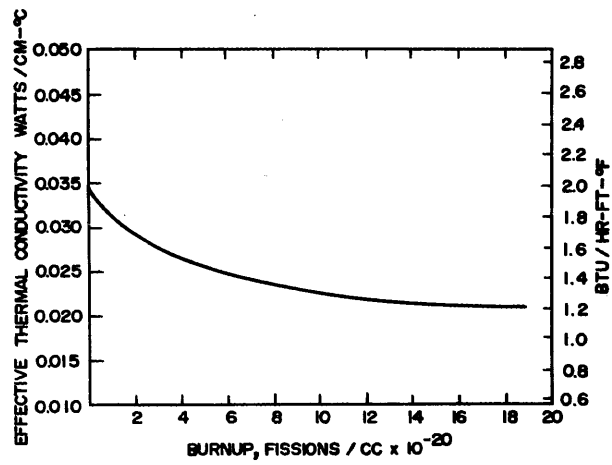
200°C においては微量不純物により熱伝導率は大きく影響されるが1000°Cにおいてはあまり大きな影響はうけない。

このことは熱伝導の機構から物質によらず一般的に云えることであってPuO₂ を不純物とみなした場合のPuO₂-UO₂ についても云えることである。

10, 15, 20% PuO₂-UO₂ およびUO₂ の熱伝導率からPuO₂ 濃度と熱伝導率の関係をグラフにしてみると下図のようになる。



熱伝導率の燃焼度効果



Effective Thermal Conductivity of UO₂ at ~525°C
(Bett 69-4 experimental data).
(Neg. № 31874-5)

試料：UO₂

内容：～525°CにおけるUO₂の実効熱伝導度と燃焼度の関係。

B.U.O～19×10²⁰ fissions/cc

コメント：信頼度不明

Daniel and Cohen

WAPD-263 (1962)

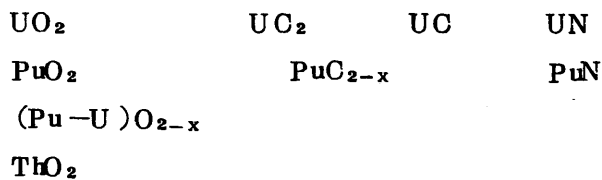
1. 緒言

核燃料の比熱は照射時における安全解析，熱拡散率の測定結果から熱伝導率を計算する場合，また一つの熱力学関数として重要である。

現在までに報告されている比熱のデータとして主要なものを集めてみたがデータの量としてはまだ十分蓄積されているとは云えない。ウラン酸化物，混合酸化物については極くわずかしかない。

2. 対象とした核燃料物質

今回対象とした核燃料物質は以下のようなものである。



3. 集収結果

Fig.1 ~ 9 までに集収したデータのグラフを示す。

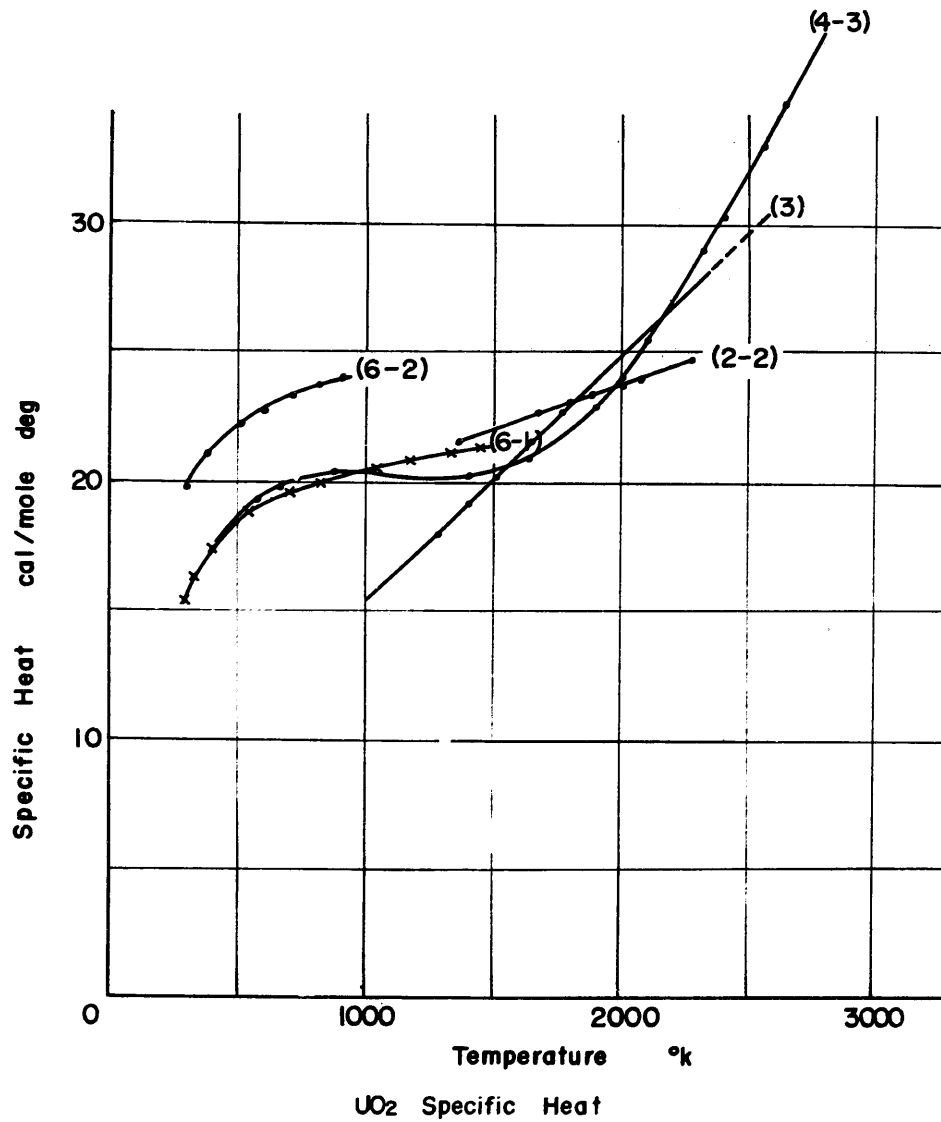
グラフ中の(1-1)，(4-3)などの数字は文献の番号である。

4. 検討

使用推奨値

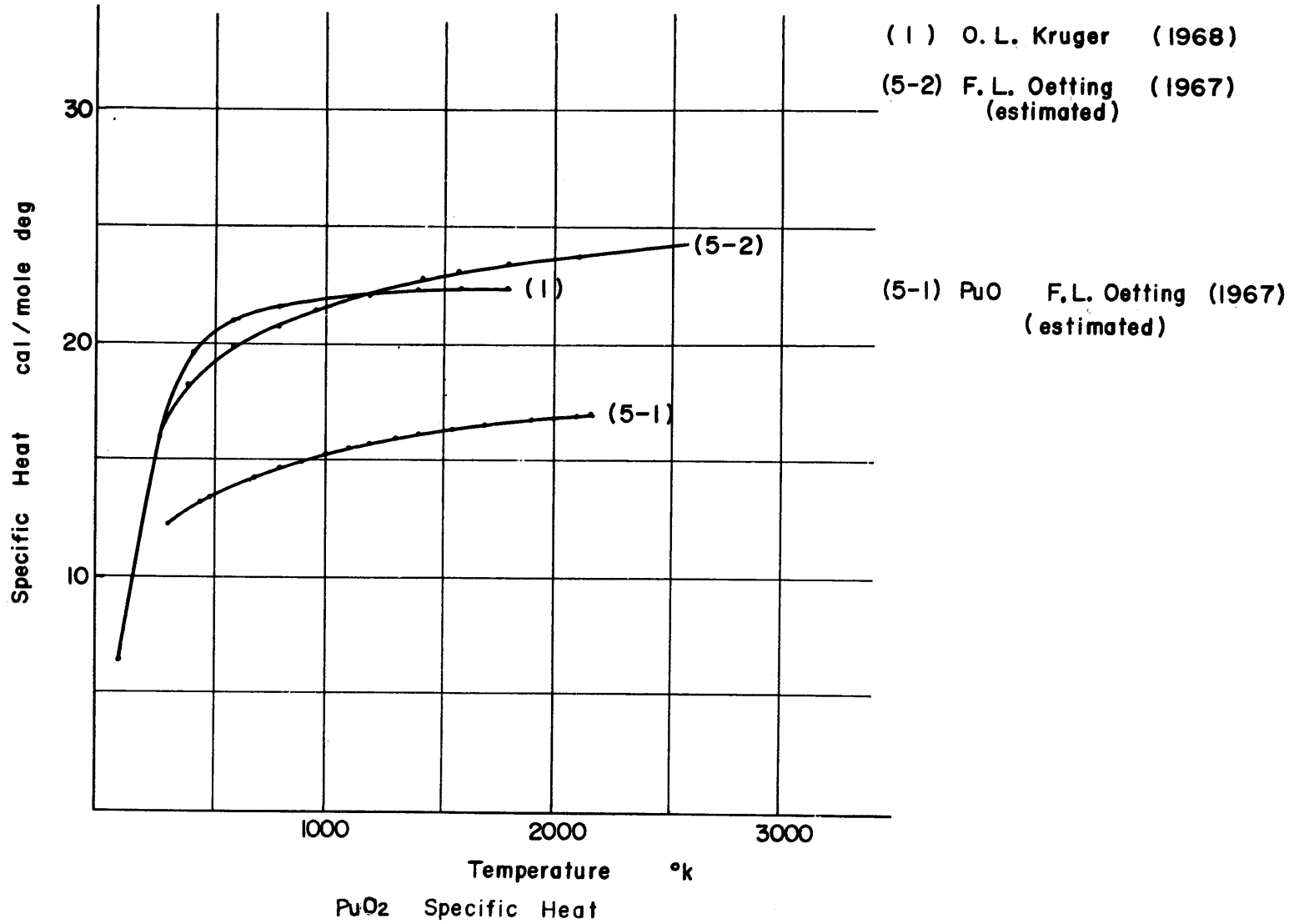
- | | |
|--|---|
| a) UO_2 | (4-3) |
| b) PuO_2 | (1), (5-2) |
| c) PuO | (5-1) |
| d) $\text{U}_{0.802} \text{Pu}_{0.198} \text{O}_{1.98}$ | (2-1) |
| $\text{U}_{0.802} \text{Pu}_{0.198} \text{O}_{2.0}$ | (2-3) |
| e) UC_2 | (10-3), (11-2) |
| f) UC | (10-1), (11-1) |
| g) $\text{PuC}_{0.67}$, PuC , Pu_2C_3 , PuC_2 | (5-3), (5-4), (5-5), (5-6)
{(5-4)=(8)} |
| h) ThO_2 | (4-4) |
| i) UN | (4-5) |
| j) PuN | (5-7) |

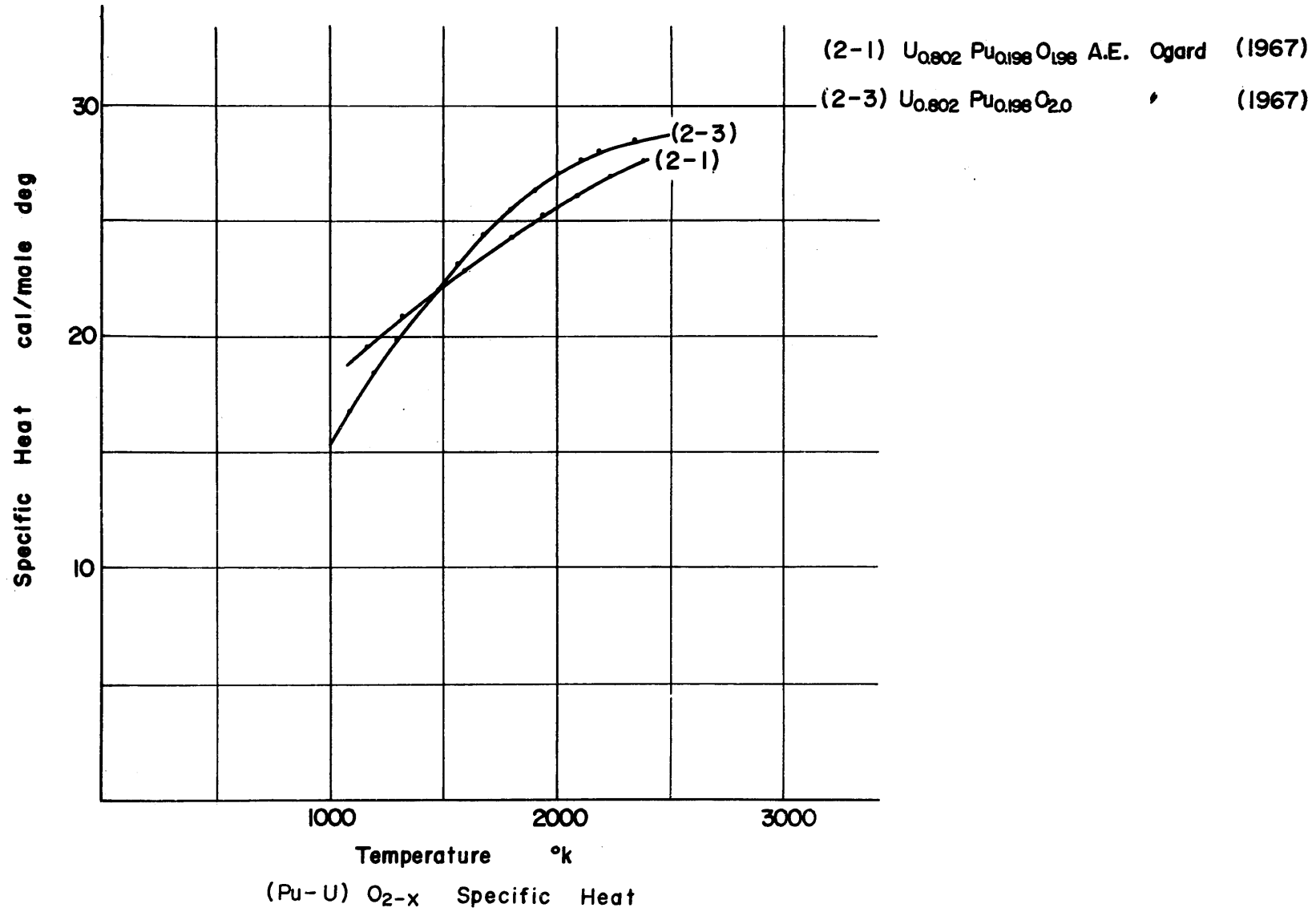
以下に集収した文献とその内容を示す。

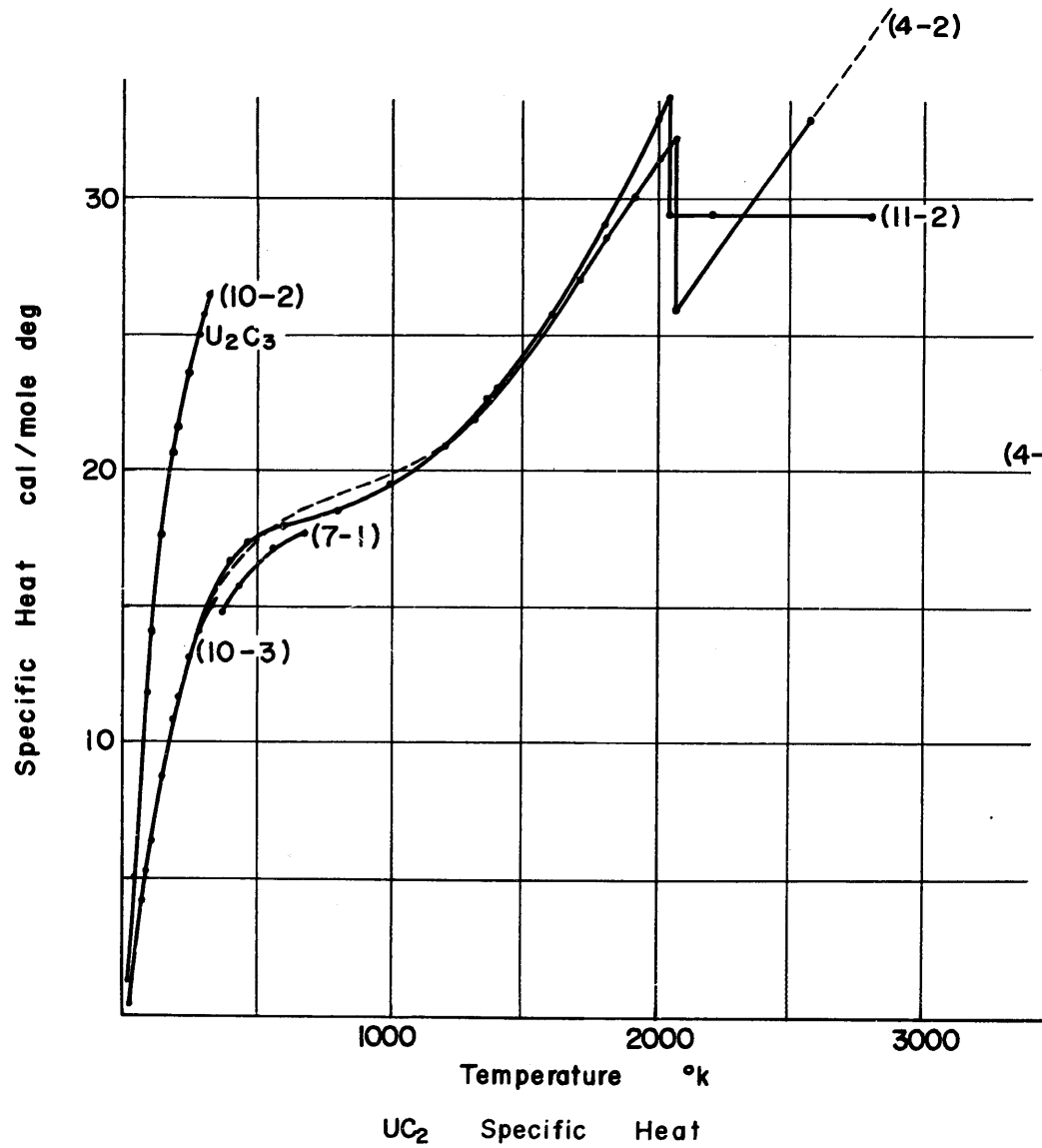


- (2-2) A.E. Ogard (1967)
- (3) J. B. Conway (1965)
- (4-3) T.G. Godfrey (1966)
- (6-1) G.E. Moore, K.K. Kelley (1947)

(6-2) UO₃ G.E. Moore, K.K. Kelley (1947)

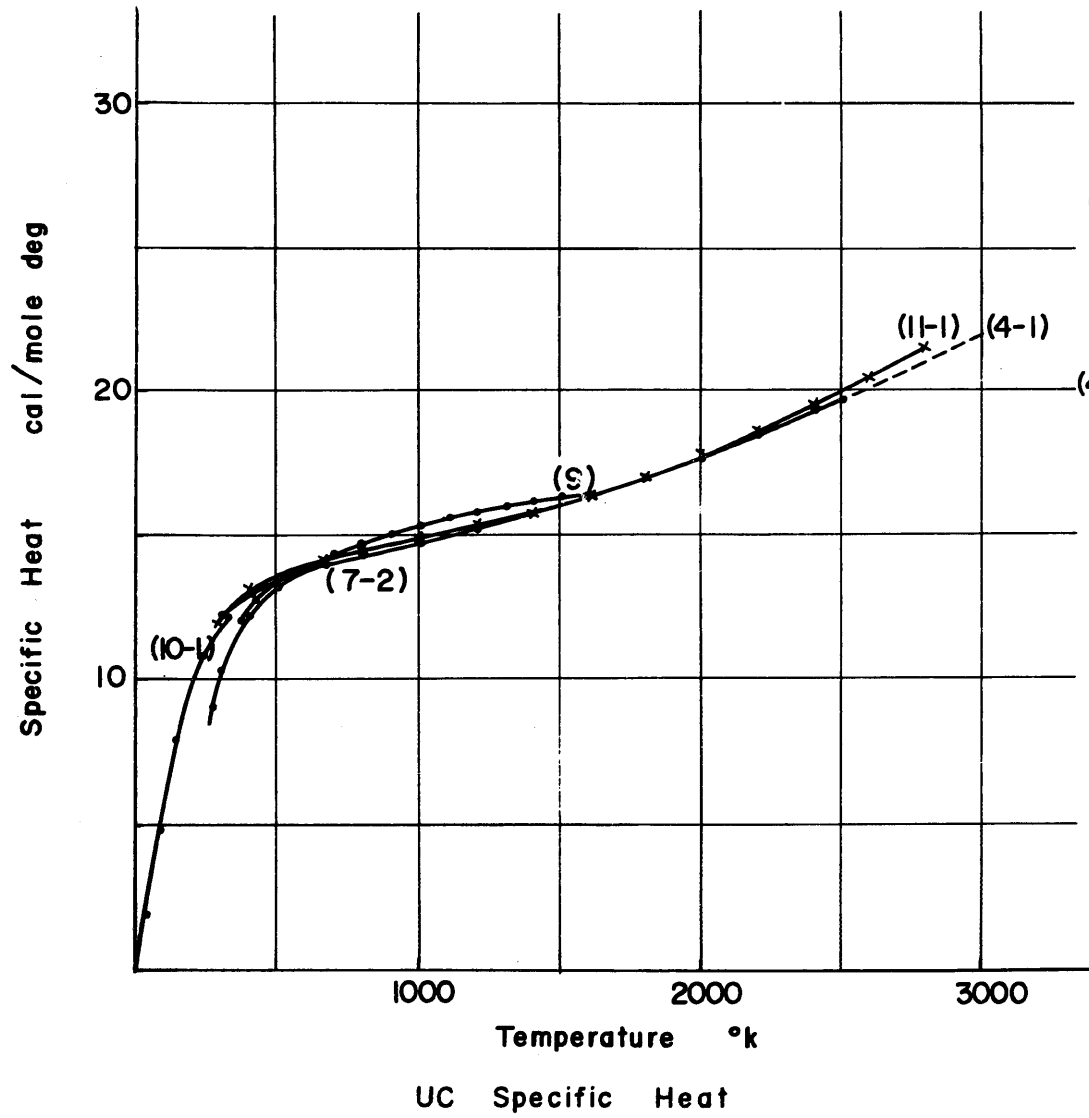




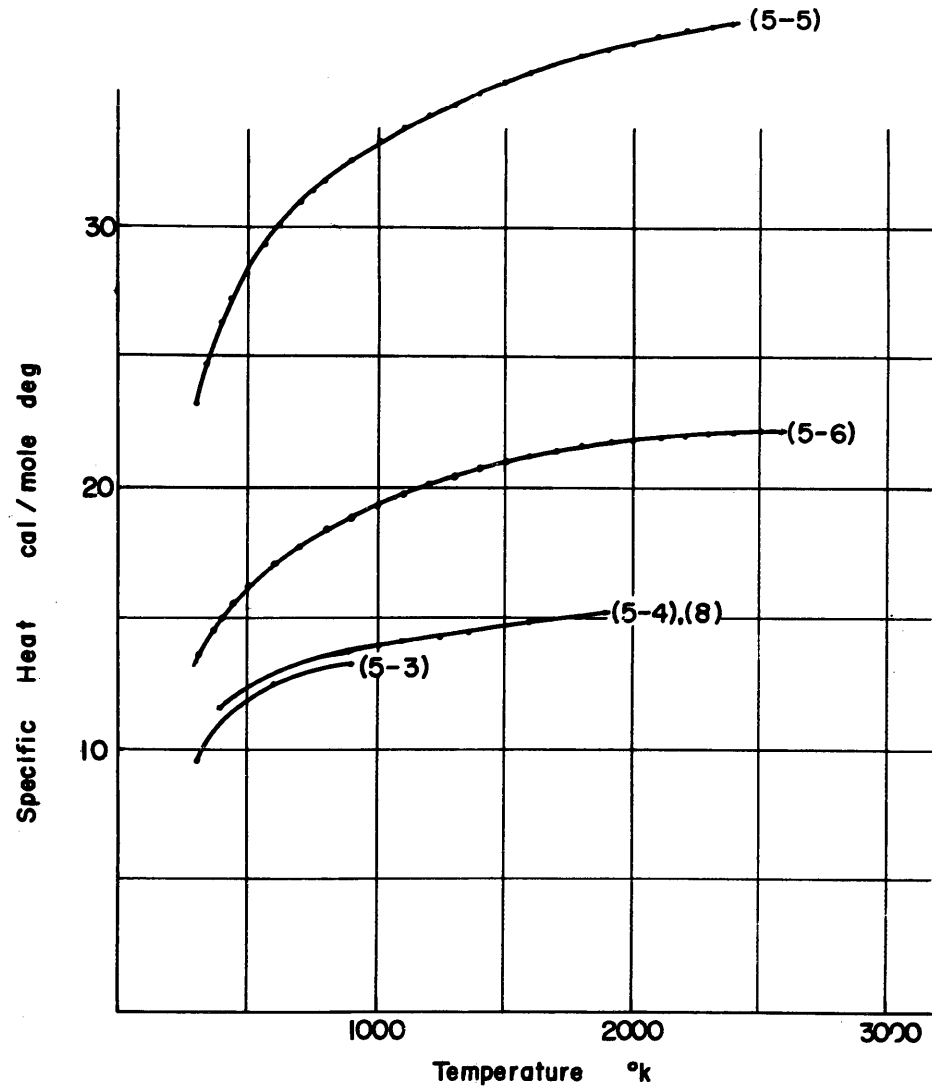


- (4-2) T.G. Godfrey (1966)
- (7-1) T. Mukaibo (1962)
- (10-2) R.J.L. Andon (U₂C₃) (1963)
- (10-3) " (UC_{1.91}) (1963)
- (11-2) E. K. Storms (1968)

(4-2) は Westrum et al
Andon et al
Levinson
のデータより評価されたものである。



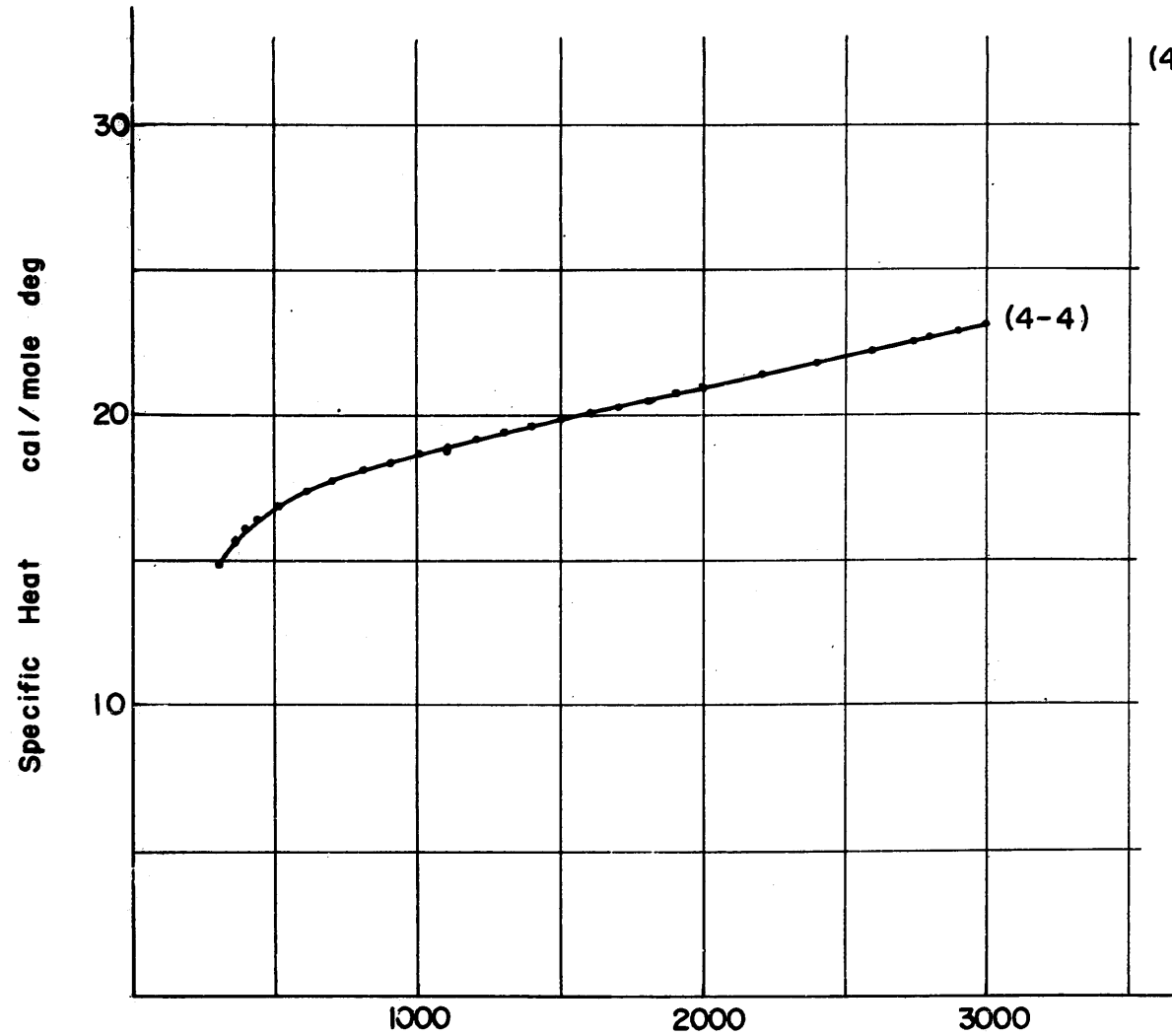
(4-1) の低温部は Andon et al
Westrum et al
Harrington and Rowe
Levinson
のデータから評価されたものである。



- (5-3) PuC_{0.67} F.L.Oetting (1967)
(estimated)
- (5-4) PuC " (")
- (5-5) Pu₂C₃ " (")
(estimated)
- (5-6) PuC₂ (estimated) (")
- (8) PuC O.L. Kruger (1964)

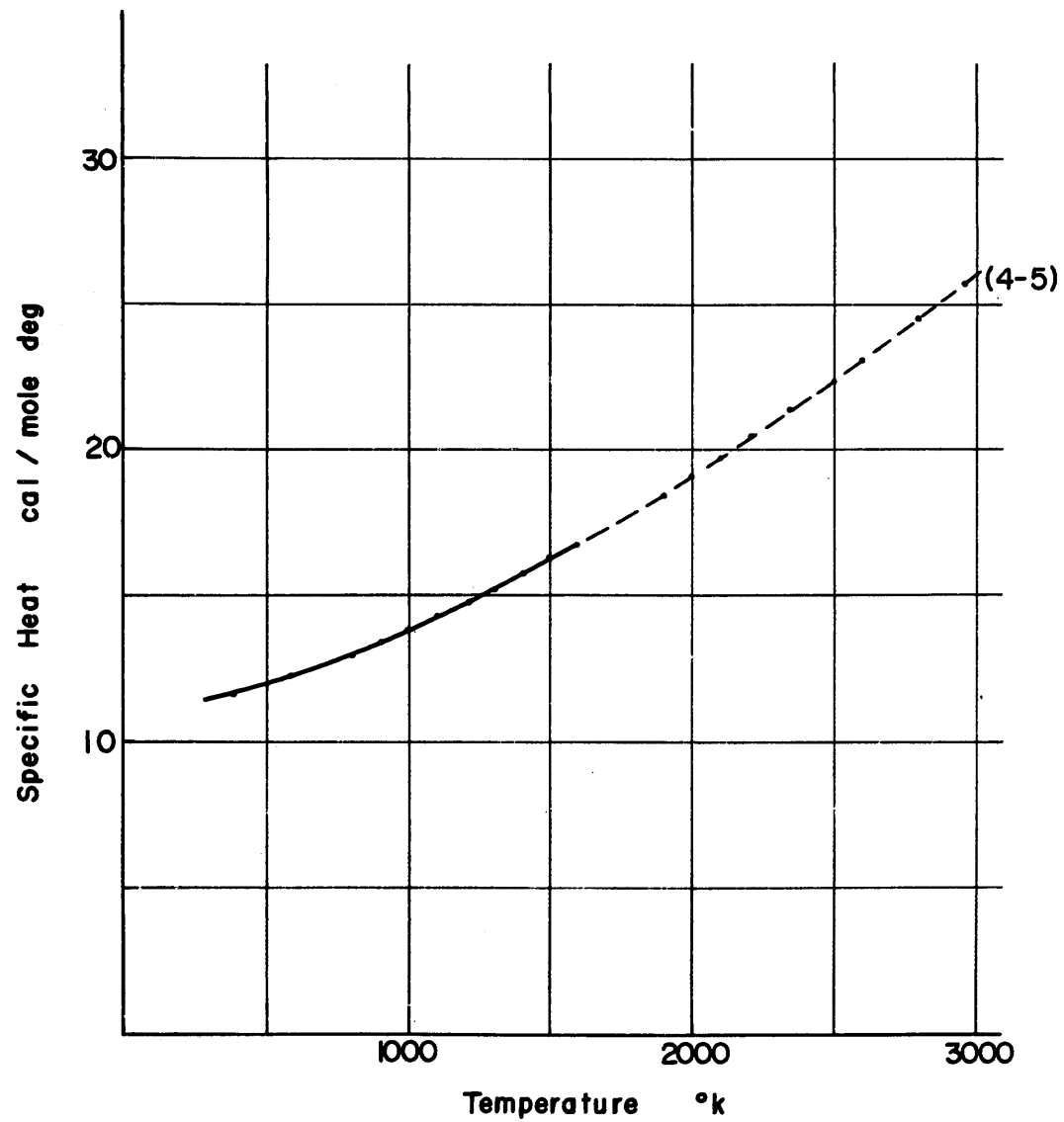
(5-4)は(8)のデータの引用である。

PuC_{2-x} Specific Heat



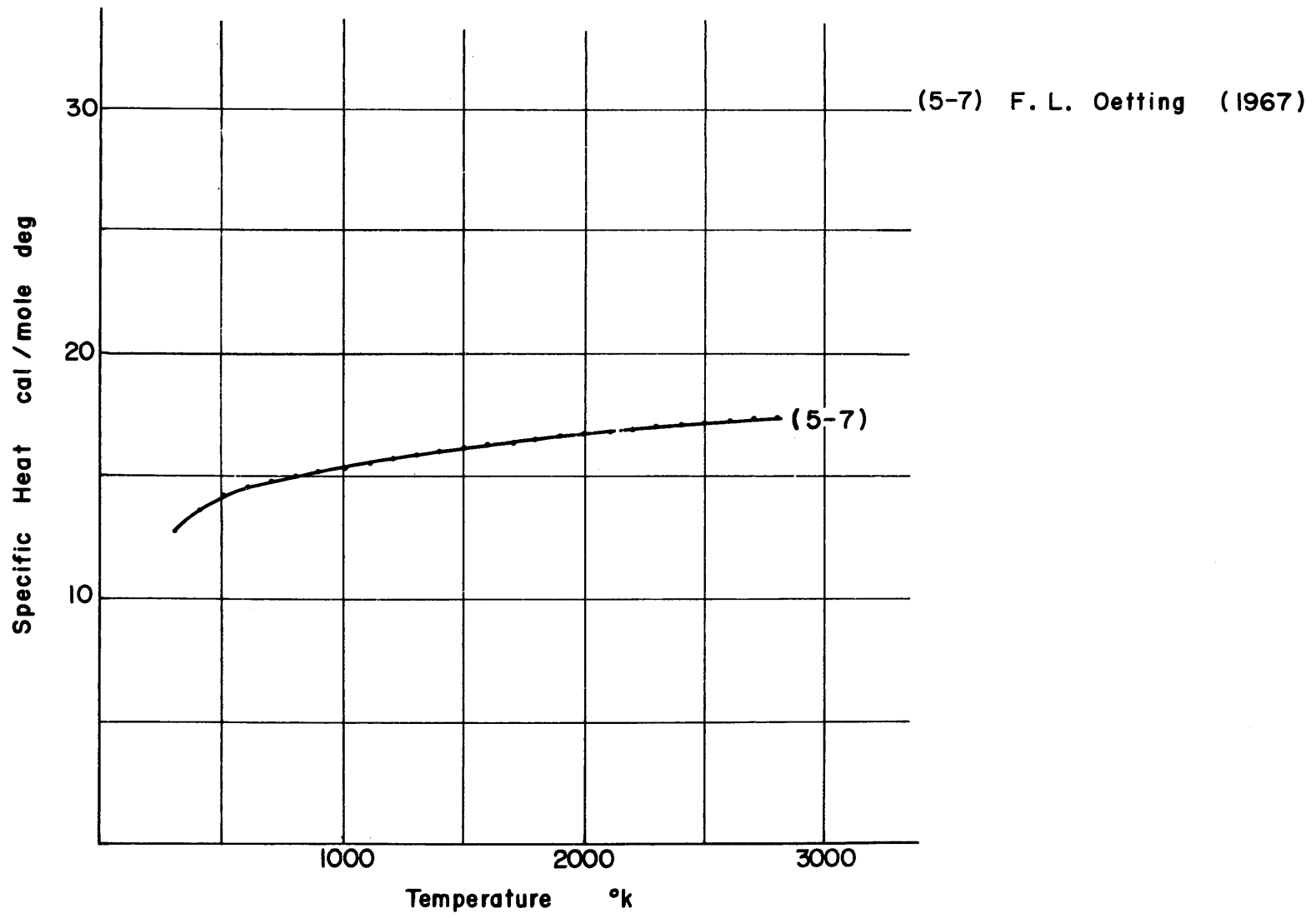
(4-4) T.G. Godfrey (1966)

ThO₂ Specific Heat



(4-5) T. G. Godfrey (1966)

UN Specific Heat



PuN Specific Heat

Specific Heat

Chemical analysis of PuO₂

1. Sample

PuO₂

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

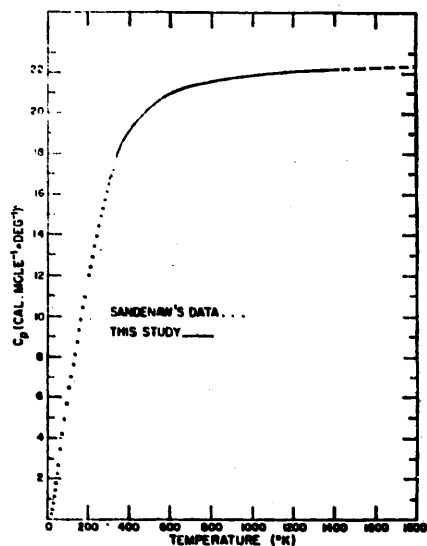
300 °K ~ 1400 °K

4. Results

5. Measurement Method

By Isothermal drop Calorimeter

Element	ppm/wt
Ag	< 1
Al	14
Ba	< 2
Be	< 0.002
Ca	16
Co	< 2
Cr	12
Cu	10
Fe	50
K	< 2
Li	< 0.005
Ca	< 0.1
W	< 2
La	< 2
Mg	34
Mn	2
Mo	< 0.5
Na	< 2
Ni	5
Pb	< 1
Sb	20
Sn	< 2
Sr	< 0.005
Ti	< 2
V	< 5
Zn	< 2
Zr	< 2
Co	< 2
Rb	< 5



Heat capacity of PuO₂ as a function of temperature.

Molar thermodynamic properties of PuO₂

T (°K)	C° (cal mole ⁻¹ · deg ⁻¹)	S _T [°] - S ₀ [°] _K (cal mole ⁻¹ · deg ⁻¹)	H _T [°] - H ₀ [°] _K (cal mole ⁻¹)	-(G _T [°] - H ₀ [°] _K)/T (cal mole ⁻¹ · deg ⁻¹)
25	0.80	0.43	7	0.15
50	2.62	1.50	48	0.54
75	4.58	2.94	138	1.09
100	6.35	4.50	276	1.75
125	7.89	6.09	454	2.46
150	9.28	7.65	669	3.19
175	10.61	9.18	918	3.94
200	11.92	10.69	1199	4.69
225	13.20	12.16	1513	5.44
250	14.42	13.62	1858	6.18
275	15.56	15.05	2233	6.92
298.16	16.50	16.34	2605	7.61
300	16.57	16.44	2635	7.66
350	18.15	19.12	3506	9.11
400	19.19	21.62	4441	10.52
450	19.85	23.92	5418	11.88
500	20.30	26.04	6423	13.19
600	20.93	29.80	8486	15.66
700	21.33	33.06	10601	17.91
800	21.57	35.92	12747	19.99
900	21.76	38.47	14914	21.90
1000	21.90	40.76	17097	23.68
1100	22.00	42.87	19293	25.33
1200	22.08	44.79	21497	26.87
1300	22.17	46.56	23710	28.32
1400	22.22	48.20	25929	29.68
1500 ^a	22.27	49.74	28153	30.97
1600 ^a	22.32	51.17	30383	32.19
1700 ^a	22.36	52.53	32617	33.34
1800 ^a	22.39	53.81	34855	34.44

^a Extrapolate.

$$H_T - H_{298} = -8468 + 22.18T + 1.040 \times 10^{-4} T^2 + 4.935 \times 10^5 T^{-1}$$

$$C_p = 22.18 + 2.080 \times 10^{-4} T - 4.935 \times 10^5 T^{-2}$$

The Journal of Chemical Physics

Vol. 49, Number 10 15 November 1968

Heat Capacity and Thermodynamic Properties of Plutonium Dioxide

By Owen L. Kruger

Specific Heat

1. Sample

UO₂

U_{0.802} Pu_{0.198} O_{2.00}

U_{0.802} Pu_{0.198} O_{1.98}

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

UO₂ 1338~2303 °K

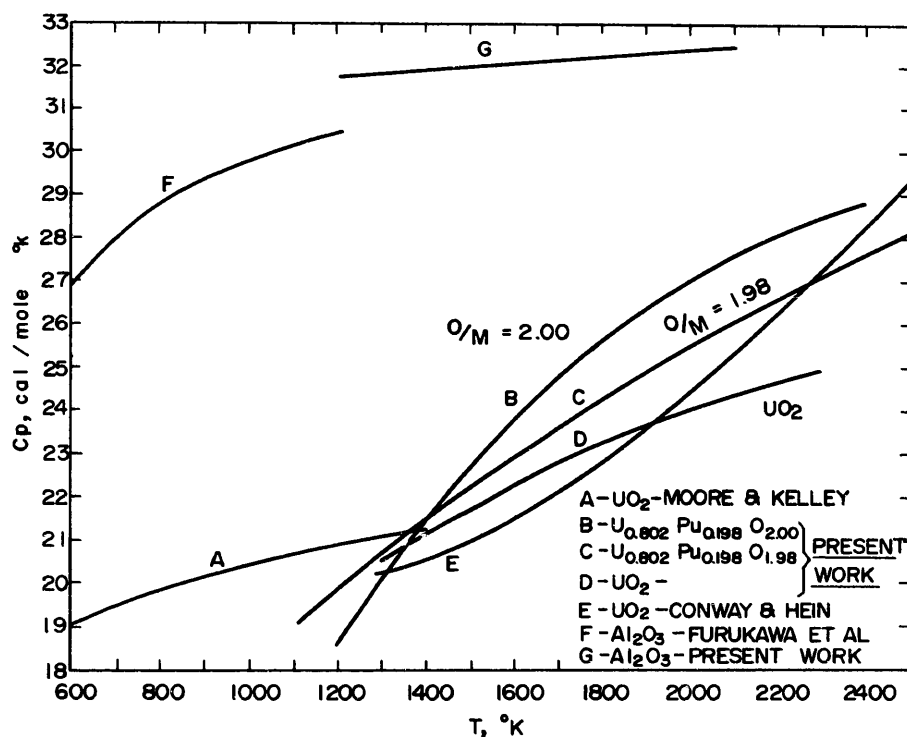
U_{0.802} Pu_{0.198} O_{2.00} 1168~2450 °K

U_{0.802} Pu_{0.198} O_{1.98} 1176~2470 °K

4. Measurement Method

By High-temperature drop calorimetry

5. Results



High temperature heat capacities of α -Al₂O₃ and UO₂-PuO₂ solid solutions.

Paper given at a Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials I.A.E.A., Vienna, 1967

High-Temperature Heat Content and Heat Capacity of Uranium Dioxide-Plutonium Dioxide Solid Solutions

By A.E. Ogard and J.A. Leary

Specific Heat

1. Sample

UO₂

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

900~2350°C

4. Measurement Method

By Modified Parr adiabatic water calorimeter

5. Results

$$H_T - H_{25^\circ\text{C}} = 21.71 + 3.1 \times 10^{-2}T + 1.77 \times 10^{-5}T^2$$

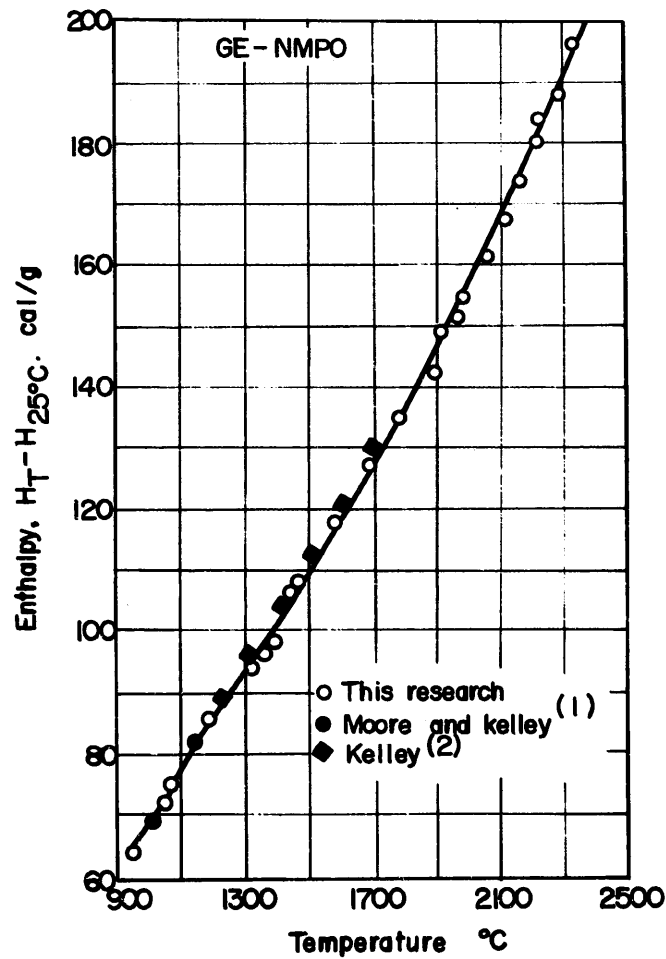


Fig. 1. Enthalpy-temperature data for UO₂ to 2350°C

Journal of Nuclear Materials 15, 1 (1965) 149-150

Enthalpy of Uranium Dioxide to 2350°C

By J.B. Conway and R.A. Hein

Specific Heat

1. Sample

UC, UC₂, UO₂, ThO₂, UN

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

UC 300~3000 °K

UC₂ 300~2800 °K

UO₂ 300~2700 °K

ThO₂ 300~3000 °K

UN 300~2600 °K

4. Measurement Method

Summary of other investigator's data

5. Results

$$\begin{aligned} \text{UC} \quad C_p &= 14.430 - 2.148 \times 10^{-3} T - 1.890 \times 10^5 \cdot \frac{1}{T^2} + 8.683 \times 10^{-5} \cdot T^{\frac{3}{2}} \\ \text{UC}_2 \quad C_p &= 4.07649 + 5.26186 \times 10^{-2} T - 6.99633 \times 10^{-5} T^2 \\ &\quad + 4.10020 \times 10^{-9} T^3 - 7.86655 T^4 \quad \text{for } 2060 \text{ °K} > T \\ &\quad C_p = 2.51238 + 13.78732 T \quad \text{2060 °K} < T \\ \text{UO}_2 \quad C_p &= 5.48923 + 4.58830 \times 10^{-2} T - 4.93842 \times 10^{-5} T^2 \\ &\quad + 21.25448 \times 10^{-9} T^3 - 28.60115 T^4 \\ \text{ThO}_2 \quad C_p &= 16.5643 + 2.23214 \times 10^{-3} T - 2.19547 \times 10^5 \\ \text{UN} \quad C_p &= 10.9563 + 18.40415 \times 10^{-5} \cdot T^{\frac{3}{2}} - 3.19114 \times 10^{-1} \cdot \frac{1}{T^2} \end{aligned}$$

ORNL-TM-1596 December 1966

Thermodynamic Functions of Nuclear Materials

UC, UC₂, UO₂, ThO₂, and UN

By T.G. Godfrey, J.A. Woolley, and J.M. Leitaker

Specific Heat

1. Sample

Pu, Pu(Gas), PuH₂, PuH₃, PuD₂, PuO, β -Pu₂O₃, α -Pu₂O₃, PuO₂,
PuF₃, PuF₄, PuF₆, PuF₆(Gas), PuCl₃, PuBr₃, PuI₃, PuOF, PuOCl,
PuOBr, PuOI, PuC_{0.67}, PuC_{0.85}, Pu₂C₃, PuC₂, PuN, PuS, Pu₂S₃, Pu(SO₄)₂

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range 種々

4. Measurement Method

Summary of other investigator's data and estimations.

5. Results

式は導出してない。

Chem. Revs. Vol. 67 No. 3 1967

The Chemical Thermodynamic Properties of Plutonium Compounds

Franklin L. Oetting

Specific Heat

1. Sample

U, UO₂, UO₃

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

U(α) 298 - 935 °K

U(β) 935 - 1045 "

U(γ) 1045 - 1300 "

UO₂ 298 - 1500 "

UO₃ 298 - 900 "

4. Measurement Method

By Drop method

5. Results

U(α) $C_p = 3.15 + 8.44 \times 10^{-3}T + 0.80 \times 10^{-5}T^{-2}$

U(β) $C_p = 10.38$

U(γ) $C_p = 9.10$

UO₂ $C_p = 19.20 + 1.62 \times 10^{-3}T - 3.957 \times 10^{-5}T^{-2}$

UO₃ $C_p = 2.209 + 2.54 \times 10^{-3}T - 2.973 \times 10^{-5}T^{-2}$

J. Am. Chem. Soc. 69 (1947) 2105

High-Temperature Heat Contents of Uranium, Uranium Dioxide and Uranium Trioxide

G.E. Moore, K.K. Kelley

Specific Heat

1. Sample

UC

UC₂

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

UC 373-673 °K

UC₂ 373-673 °K

4. Measurement Method

By Adiabatic calorimeter

5. Results

UC $C_p = 5.01 + 2.63 \times 10^{-2} T - 1.92 \times 10^{-5} T^2$

UC₂ $C_p = 2.93 + 4.33 \times 10^{-2} T - 3.17 \times 10^{-5} T^2$

Proceedings of the Symposium on Thermodynamics of Nuclear Materials, IAEA, Vienna, 1962

The Measurement of the Specific Heat of Uranium Carbides above Room Temperatures

T. Mukaibo, K. Naito, K. Sato, T. Uchijima

Specific Heat

1. Sample

PuC

2. Out of Pile Data

3. Temperature

400~1900 °K

4. Measurement Method

By Isothermal drop calorimeter

5. Results

$$C_p = 13.08 + 11.44 \times 10^{-4} T - 3.232 \times 10^{-5} T^2$$

Specific Heat

1. Sample

UC

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

273~1473 °K

4. Measurement Method

By Drop type calorimeter

5. Results

$$C_p = -1.647 \times 10^3 T^{-2} + 56.89 \times 10^{-3} + 6.294 \times 10^{-6} T \text{ cal/g } ^\circ\text{K}$$

$$C_p = 14.223 + 1.574 \times 10^{-3} T - 0.412 \times 10^{-6} T^{-2} \text{ cal/mole } ^\circ\text{K}$$

PWAC-426 January 8, 1964

(Pratt & Whitney Aircraft Division of United Aircraft corporation Canel)

The Enthalpy and Heat Capacity of Uranium Monocarbide to 1200 °C

L.C. Harrington, G.H. Rowe

Specific Heat

1. Sample

UN

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

273~1423 °K

4. Measurement Method

By Ice calorimeter

5. Results

$$C_p = 13.32 + 1.19 \times 10^{-3} T - 2.10 \times 10^{-5} T^2 \text{ cal/g mole } ^\circ\text{K}$$

BMI-1633

(EURAE C-706) May 30, 1963

Fabrication and Properties of Hot-Pressed Uranium Mononitride

Edward O. Speidel, Donald L. Keller

Specific Heat

Table 1. -Analyses of samples

1. Sample

Table 1. -Analyses of samples

Sample	total C % w/w	free C % w/w	O % w/w	N % w/w	spectrographic analysis p.p.m
1. uranium monocarbide	4.75	n. d.	0.12	0.05	Fe 150; Cu 30
2. uranium sesquicarbide	7.22	0.27	0.03	0.052	Fe 100; Mg 50; Cr 20; Ni 20
3. uranium dicarbide	8.56	0.02	0.012	0.0225	Fe 250; Mg 20; Al 50; pb 20; Cr 20; Cu 20

Unless stated otherwise Ni, Cr, Mg, Al, Cu, Mo < 10 p.p.m; V, As, B, Co, Be, Mn, Pb, Sn < 5 ppm

Table 2. -Composition of samples

Sample	UC mole %	U ₂ C ₃ mole %	UC ₂ mole %	graphite mole %	method of estimation
1. uranium monocarbide	97.5		2.5		Chemical analysis
2. uranium sesquicarbide	10.6 ± 2.5	75.3 ± 1.5	4.1 ± 1.3	9.9 ± 3*	point-counting
3. uranium dicarbide	4.7 ± 0.5		95.3 ± 0.5		X-ray

* equivalent to 0.28 % w/w

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

10~330 °K

4. Measurement Method

By In an adiabatic calorimeter

5. Results

式を導いていない。

Trans. Faraday Soc. 60 1030 (1964)

Thermodynamic Properties of Uranium Compounds

R.J.L. Andon, J.F. Counsell, J.F. Martin and Hedger

Specific Heat

1. Sample

UC_{1.90}, UC

2. Out of Pile Data

3. Temperature Range

298.15~2800 °K

4. Measurement Method

不明

5. Results

UC
$$H_T^0 - H_{298.15}^0 = -4.9624 \times 10^3 + 14.315T - 1.5130 \times 10^{-4} T^2$$

$$+ 3.5038 \times 10^{-7} T^3 + 2.0828 \times 10^5 \cdot 1/T$$

(cal/mole)

(298-2823 °K)

UC_{1.90}

α -UC₂
$$H_T^0 - H_{298}^0 = 8.377 \times 10^3 + 23.40T - 5.752 \times 10^{-3} T^2$$

$$+ 2.727 \times 10^{-6} T^3 + 5.487 \times 10^5 \times 1/T$$

(cal/mole-deg)

β -UO₂
$$H_T^0 - H_{298}^0 = -1.873 \times 10^4 + 29.44T$$

(cal/mole-deg)

α - β は 2038 °K をさかいにして変体する。

Submitted to the Panel on "Thermodynamics of Nuclear Carbides" Sept. 9~13, 1968

Vienna

The Uranium-Carbon and Plutonium-Carbon Systems

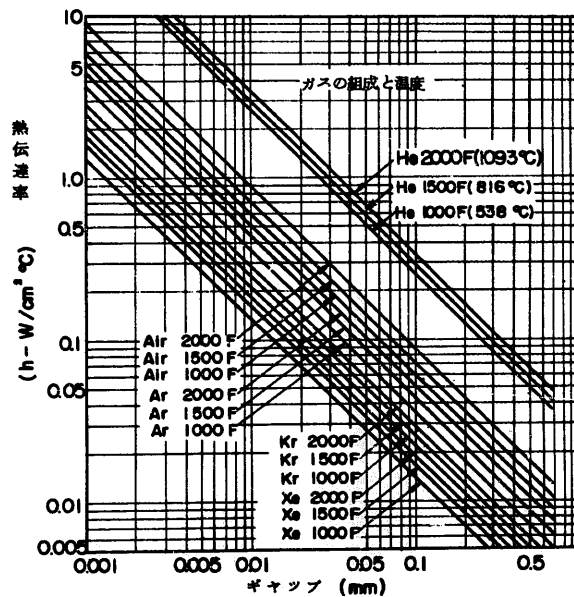
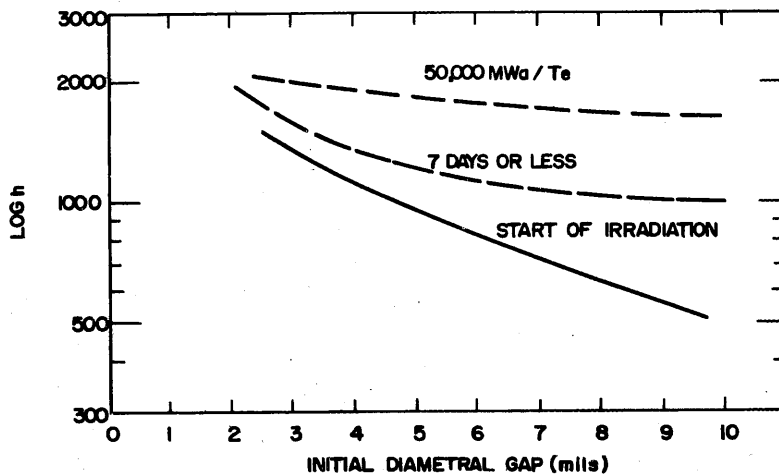
E.K. Storms

燃料温度の推定に必要とされる Gap Conductance については実験例が少なくデータが不足している。

現在までのところ GE でおこなった $(Pu_{0.2} U_{0.8})O_2$ についてのデータが最も信頼がおけると考えられる。

初期 Gap size は照射の進むにつれて、変化するので Gap Conductance も変化してくる。JEFR 燃料では、約 4 ミルの初期 Gap size で、 $500 W/cm$ 、5% 程度の燃焼をおこなうとすると、実効ギャップコンダクタンスとして約 $2000 Btu/ft^2 h$ をみておけばよいと考える。但しこの場合、1 気圧でのヘリウムガスを封入した場合で、分裂生成ガスによる希釈効果は無視してある。

燃焼度のすすむにつれて生ずる分裂生成ガスの影響については現在まで利用できるデータは見あたらないが参考に GE でおこなった炉外データを示しておく。



ギャップの熱伝達率
Ref GEAP 4418

Gap Conductance

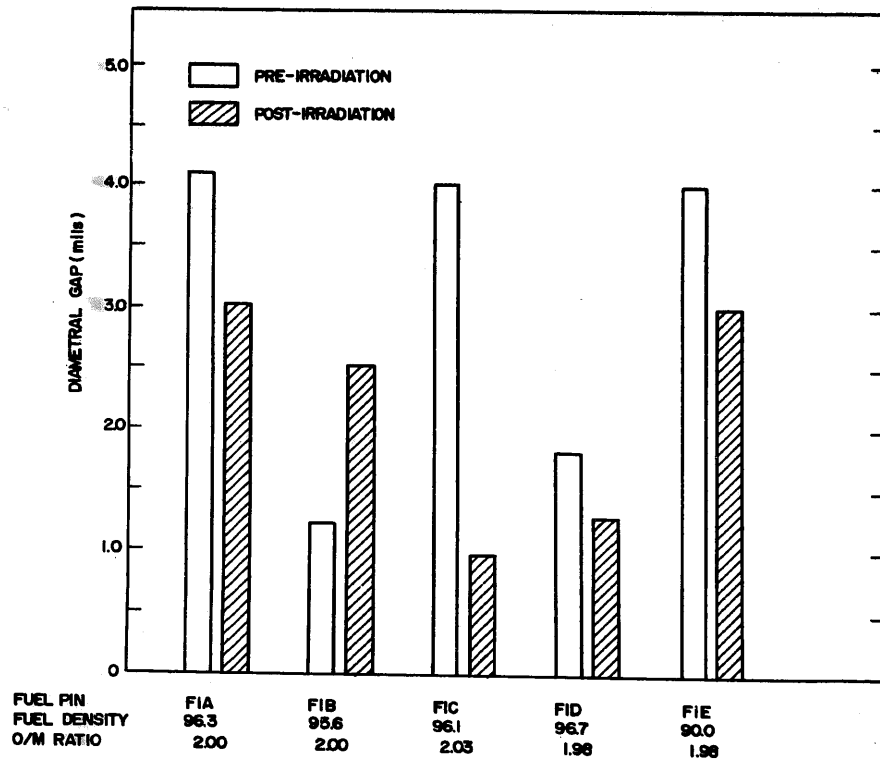


Fig. 5-18. Comparison of pre and post-irradiation diametral gaps.

Fig. 5-18はEBR-IIで10日間、照射 (Peak-burnup 1800MWD/Te) したもので試料は $20\text{W}/\text{o}$ $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ 、ピーク時の線出力は $14.8\sim 16.8\text{ kw/ft}$ 、燃料ピンは $0.250\text{ inch-dia}\times 35-\frac{1}{2}\text{ inch}$ longであった。

(FIB)のピンを除いて、その他の全てのピンは照射中に gapが減少している。

ピン(FIB)の gapが増加しているのは偶然そうなったもので異常なものであり、ピン(FIC)の gapの大きな減少は、その高い O/M 比に関係しているように思われる。

GEAP-5570

" Short-term Fast Flux (EBR-II) Irradiation of $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ Fuel Pins

S.A. Rabin, W.W. Kerdall, W.E. Baily

Gap Conductance

TABLE I In-Pile Test Parameters and Results of
Gap Conductivity Experiment

Pin #	1	2	3	4
Diametral gap size (mils)	22	4	4	4
Linear power (kW/ft)	20±1.5	20±1.5	20±1.5	20±1.5
Clad surface temp °C	570	570	570	570
Fuel surface temp °C	960	1100	1720	1100
$\int_{T_s}^{T_c} K dW/cm$	40.5	40.5	40.5	40.5
In-fuel thermocouple	-	-	-	yes
Calculated gap conductivity (Btu/(h ft ²))	2000	1400	600	1400
Post-irradiation gap size (mils)	2	2	5	2

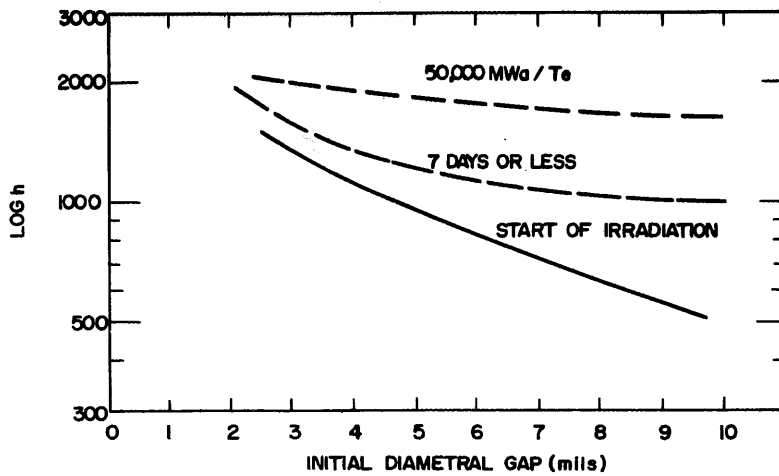
GETR で 2, 4, 10mil の gap をもった 4本の燃料ピンについて 41.5 時間の照射を行った。照射後燃料の金相試験では、2-mil の gap をつけた試料には中心ポイドはなく、10mil-Gap のものは、明らかに中心がとけて、大きな中心ポイドが見られた。

Trans, ANS, 9 (1) June 1966 P40

Bailey, W.E. et. al

Effect of Diametral gap Size on the In-pile Performance of Fast Ceramic Reactor Mixed-Oxide Fuel.

Gap Conductance



Effective gap conductivity as a function of burnup and initial gap size (neglecting fission gap contribution)

上の図は照射前および15kW/ft以上のPower levelで約7日と50,000MWD/Teで燃やした時の期待されるgap conductanceを示すものである。15kW/ft以上のPower levelで燃やした時の燃料中心温度に関するdiametral gapの効果は、照射の初期の段階で非常に重要である。

"AIME 1967 Nuclear Metallurgy Symposium Plutonium Fuels Technology, Oct. 4~6 1967 Phoenix"

"Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide Fuels"

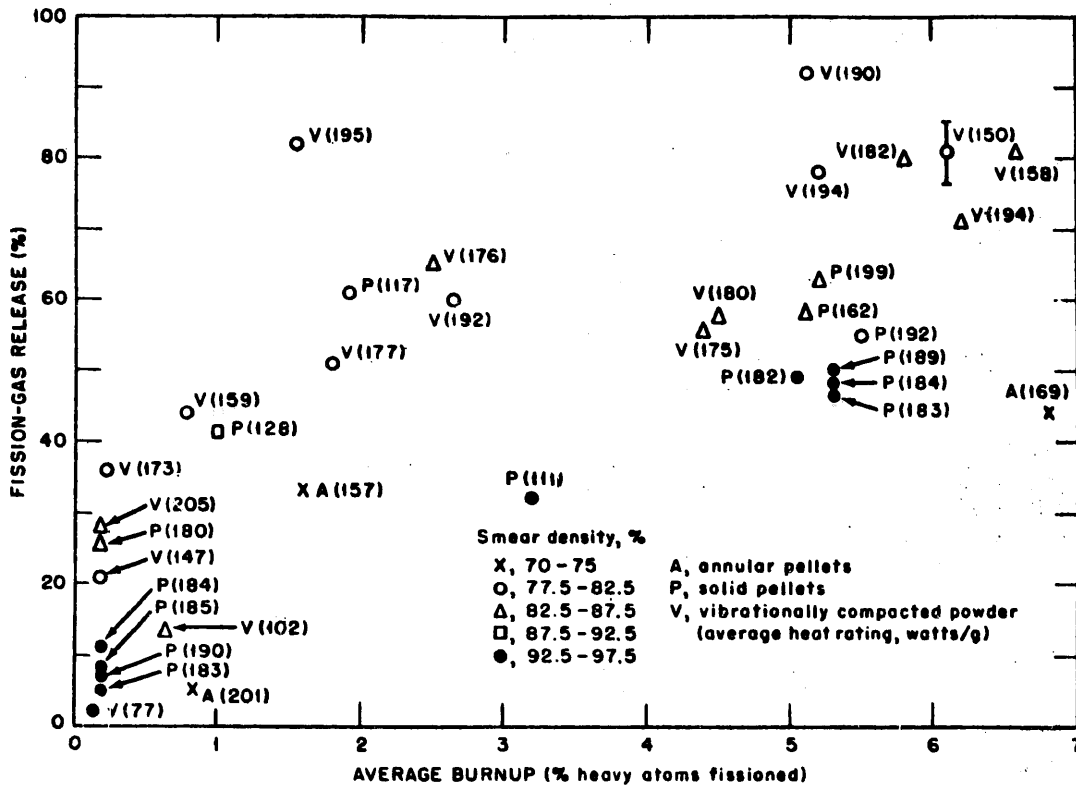
W.E. Baily, E.A. Aitken, R.R. Asamoto, C.N. Craig.

F.P. ガス放出は燃料の温度分布，燃焼度，燃料組成や燃料の機械的性質によって異なってくる。

熱中性子炉で高速炉燃料を約 16kW/ft の線出力で照射した場合放出されるガス量は約 4% F/MA (Fission per Initial Metal Atom) までは燃焼度に比例して増加するが，これ以上の燃焼度では生成量の 80~90% 程度の放出で飽和してくることが示されている。

高速炉でのガス放出量は，現在 EBR-II, DFR でのデータをまとめた下図のものが利用でき燃焼度の上昇や Smear density の低下により放出量が増す。また Vipac の方が放出量が多い。O/M の影響は O/M 測定に問題があり比較できるデータがまだ得られていない。

これらのデータから J EFR 燃料についてのガス放出量の推定は中性子束やスペクトルもことなるので問題であるが 5% の燃焼度で 50~60% の放出量となる。高速炉では熱中性子下での放出より低くなるので安全をとれば 80~90% の放出量をみれば充分と考えられる。



Fission-gas release from fast-flux experiments with mixed-oxide fuel

Gas Release

Fuel element specifications

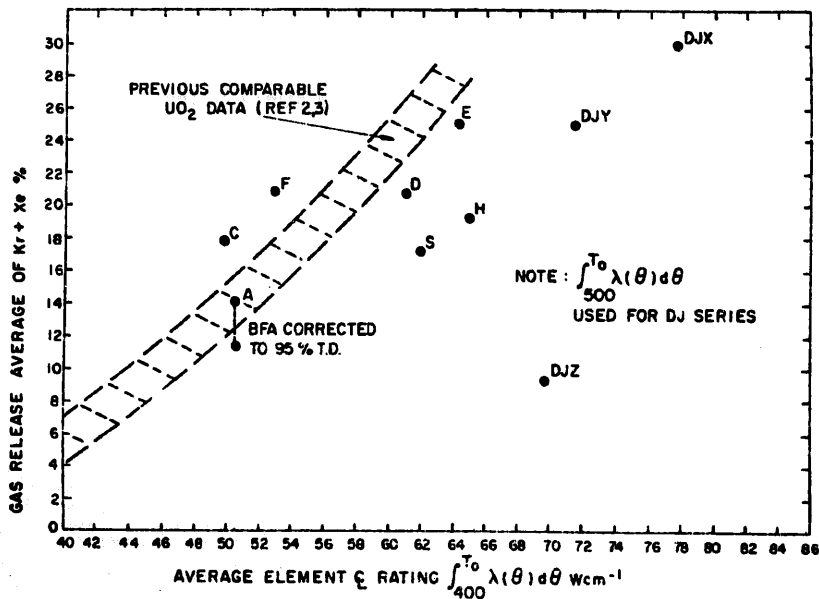
Element	Composition by wt.	PuO ₂ particle size (μm)	Sintering temp. (°C)	Grain size (μm)	Density (g cm ⁻³)
BFA	1.39% PuO ₂ in UO ₂	< 62	1250	17	10.24
BFB	0.84% PuO ₂ in UO ₂	62-88	1250	15	10.30
BFC	1.42% ²³⁸ UO ₂ in UO ₂	--	1250	7	10.58
BFD	0.50% PuO ₂ in UO ₂	< 62	1250	15	10.52
DJX	1.93% PuO ₂ in ThO ₂	< 62	1630	9	9.64
DJY	1.55% PuO ₂ in ThO ₂	< 62	1630	7	9.60
DJZ	1.35% PuO ₂ in ThO ₂	< 62	1630	11	9.67
BFE	0.50% PuO ₂ in UO ₂	< 62	1250	16	10.46
BFF	1.42% ²³⁵ UO ₂ in UO ₂	--	1600	9	10.57
BFH	0.84% PuO ₂ in UO ₂	62-88	1600	12	10.55
BFS	1.39% PuO ₂ in UO ₂	< 62	1600	10	10.53

UO₂-base elements contain 8 pellets per element }
 ThO₂-base elements contain 11 pellets per element } Fuel stack length
 152 ± 2 mm

Each pellet had a spherical disc 17-mm wide by 0.6-mm deep, one end.

The fuel sheath was Zircaloy-2, 20.3-mm O.D. × 0.38-mm wall, and the fuel-to-sheath clearances were 0.10 ± 0.005-mm diametral, 1.0-mm axial.

Each element contained three flux monitors in the form of 0.46-mm diam. cobalt wire rings in circumferential grooves in pellets 2, 5 and 7 (BF series) and 2, 6 and 10 (DJ series).



Average (Kr + Xe) gas release

NRX 炉を用いて、 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ (6本; 1.39% PuO_2 までのもの)濃縮 UO_2 (2本)を heat rating 63Wcm^{-1} , 平均バーンアップ 1550MWD/Te で照射, $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$ (3本; 1.93% PuO_2 までのもの)を 77Wcm^{-1} , 最大バーンアップ 1260MWD/Te で照射した。 $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ element は one reactor cycle (26.8 full power days), $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$ element は8本の $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ に加えて共に, two reactor cycle (35.9 full power days)で照射した。

上の表に燃料要素の仕様と, 上の図にガス放出と平均線出力との関係を示す。

Proceedings of a Symposium, Brussels, 13-17 march 1967

Plutonium as a Reactor Fuel

Irradiation Behaviour Experimental Fuel Assemblies of $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ and $\text{ThO}_2\text{-PuO}_2$ A. T. Jeffs.

Gas Release

Characteristics of Capsule E 2D

1. Parameters			
Pin	E2D-1	E2D-2	
Fuel	UO ₂ -25 wt% PuO ₂	UO ₂ -25 wt% PuO ₂	
O/M Ratio	2.00	1.96	
²³⁵ U/U ^T	40%	40%	
Pellet Density, %	90.1	91.6	
Smear Density, %	87.5	88.3	
Pellet Diameter, in.	0.152	0.152	
Average Fuel-Clad Gap, mils	2.4	3	
Cladding	Type-316 Annealed	Type-316 Annealed	
Wall Thickness, in.	0.014	0.014	
Cladding o.d., in.	0.182	0.182	
2. Conditions of Irradiation			
EFPD	291	291	
Clad Surface Temperature	1050°F	1050°F	
Heat Rating	17 kW/ft	17 kW/ft	
	1.22 × 10 ⁹ Btu/(h ft ²)		
3. Results			
Gas Release, %	76	82	
Maximum ΔD, mils/%	0.5/0.3	0.5/0.3	
Av Burnup, × 10 ³ MWD/MT	127	122	
× 10 ²⁰ fissions/cm ²	28.4	27.5	
Peak Burnup × 10 ³ MWD/MT	134	131	
× 10 ²⁰ fissions/cm ²	30.4	29.6	
Clad exposure × 10 ²⁰ n/cm ² > 1 MeV	1.2	1.2	
Fuel-Surface Temperature, est	1030°C	1030°C	
$\int_{T_s}^{T_c} Kd\theta$, W/cm	27	28.5	
Fuel-Center Temperature, est	2275	2325	
$\int_{T_s}^{T_{CGG}} Kd\theta$, W/cm	20	17.8	
Temp of Columnar Grain Growth, deg C	1975	1900	

高い燃焼度と高温での Stoichiometric 及び hypostoichiometric の燃料の挙動をしらべた。

Stoichiometric と hypostoichiometric に対して、76% 及び 82% のガス放出が測定された。

Trans ANS. 10 (1) 1967

The Irradiation of Stoichiometric and Hypostoichiometric UO₂-PuO₂ Fuels to Exposures of 125,000 MWD/MT

B.F. Rubin, R.C. Nelson, K. Perry (GE-Sumyvale)

Gas Release

FUEL DESIGN PARAMETERS^(a)

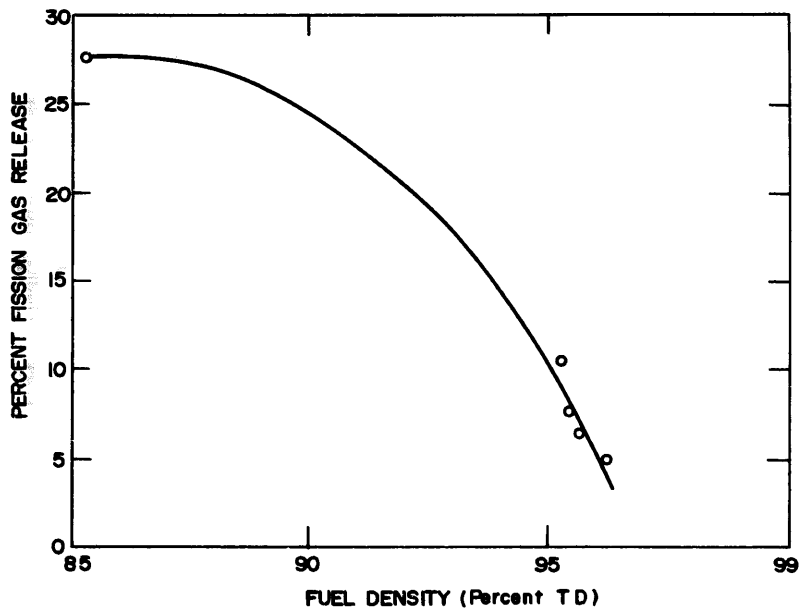
Fuel Pin	Fuel Compaction Process	Average Stoichiometry (O/M)	Average Fuel Density (%TD)	Smear Density (%TD)	Average Diametral Gap (inch)	Axial Gap (inch)	Cladding Material	Center Void Radius (mils)	%Fission Gas Released
F1A	Pellets	1.998	95.3	93	0.0039	0.49	347 SS	9.0	11.1
F1B	Pellets	2.000	96.2	95	0.0025	0.48	347 SS	0.5	5.1
F1C	Pellets	2.030	95.6	94	0.0022	0.002	Incoloy 800	8.5	6.7
F1D	Pellets	1.978	95.3	93	0.0030	0.48	Incoloy 800	0	7.9
F1E	Pellets	1.984	89.2	87	0.0030	0.50	316 SS	15	26.0
F1F	Vi-pac	1.986	85.3 ^(b)	85	N.A.	0.31	Incoloy 800	22	27.6

- (a) Coprecipitated 20 wt% PuO₂ - 80 wt% UO₂.
Cladding dimensions (nominal) - 0.250 - inch od x 0.015 - inch wall.
(b) Smear density.

EBR-IIで6本のピンの照射を行なった。照射期間は10日 (Peak burn up 1800MWD/Te), 最高線出力は, 14.8 kW/ft ~ 16.8 kW/ft, 被覆管内壁温度は1066~1097°Fであった。

左のグラフに示すようにFPガスの放出は高密度燃料に対しては5%, から低密度Vipac燃料に対しては, 約28%に渡っており, fuel densityの低下と共に, 一般に増加しているのがみられる。F1Dを除いて, gas放出は, 中心孔の大きさと共に増加していった。又, F1Cを除いて, グレイン-グロースと共に増加していった。上のTableにFuel design Parameter, 左のグラフに燃料密度に対する gas releaseを示す。

GEAP-5570



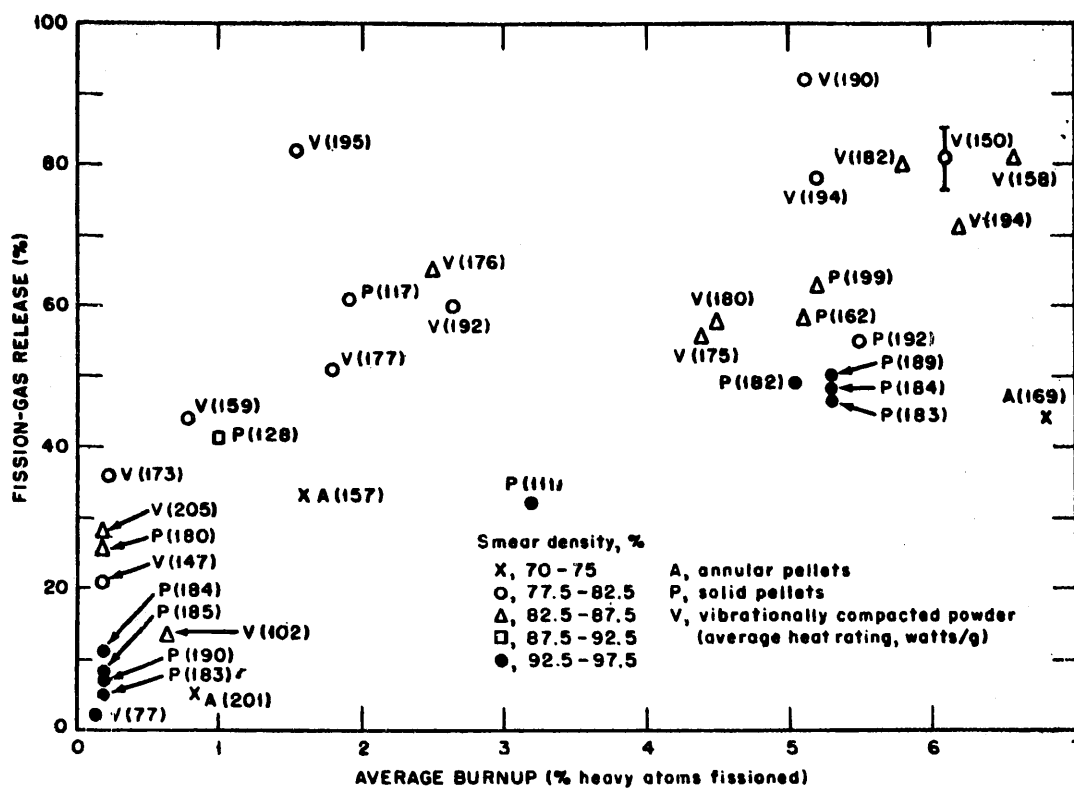
Fission gas release versus fuel density for short-term fast flux irradiation

GEAP 5570

Short Term Fast-Flux (EBR-II) Irradiation of PuO₂-UO₂ Fuel Pins

S.A. Rabinger, W.W. Kendall, W.E. Baily

Gas Release



Fission-gas release from fast-flux experiments
with mixed-oxide fuel.

高速実験炉 EBR-II と DFR での実験結果をまとめたもので、ガス放出率が燃焼度、燃料密度、燃料形態、出力によってどう変化するかを示している。

- (1) ガス放出率は燃焼度の高いほどまた燃料密度の低いほど増加する傾向がみとめられる。
- (2) 振動充填燃料は同一密度、同一線出力のペレット燃料より放出率が大きい。
- (3) 中空ペレットがガス放出率が低いのは燃料中心温度が低いことによる。
- (4) O/M 、燃料平均温度が放出率に大きく関係するが分析方法の困難さと、温度推定の不確定さもあり厳密に比較することは出来ない。

コメント：高速炉での実験データのまとめとして、1つの傾向が見られ信頼できる。

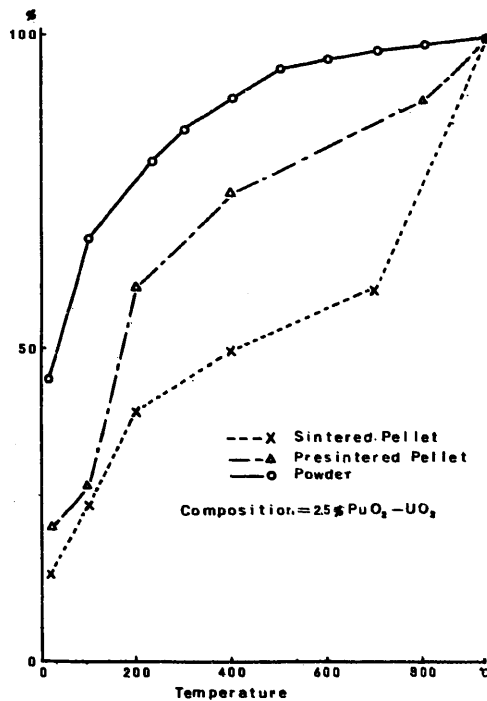
Absorbed Gas Release のデータは少ない。H.J. Anderson は PuO_2 , UO_2 -1% PuO_2 からの吸着水の放出は UO_2 のみの場合より高温で起こることを言っている。
25% PuO_2 - UO_2 からの吸着水の放出は PNC のデータが有用なものと思われる。

Absorbed Gas Release Rate

Analytical Results Moisture and Released Gas

Sample	Moisture	Released Gas	Carbon Content
Powder	2050 $\mu\text{l/g}$	1040 $\mu\text{l/g}$	500ppm
Presintered Pellet	1040 "	1790 "	800~1000ppm
Sintered Pellet	20 "	30 "	<50ppm

samples: 2.5% PuO₂-UO₂



Extraction Curve of Moisture vs Temperature

- 試料: 1) 2.5% PuO₂-UO₂ (粉末) Mechanical Blending
 2) 2.5% PuO₂-UO₂ 予焼ペレット (800°C, 予焼)
 3) 2.5% PuO₂-UO₂ 焼結ペレット (1600°C, 2hr)

結果: UO₂に関するH.J. Andersonの結果とかなりよく一致している。UO₂では吸着水分量の一部は、30°C 近辺で放出され、残りは約300°C で放出するが、2.5%PuO₂-UO₂ では600°C~900°C で加熱したサンプルから、少量の部分が放出している。

PNCPU-Report-031

Some Observations on Moisture and Release Gas in PuO₂-UO₂

H. Nakano, and K. Ohnishi

H.J. Anderson: HW-76304 October-December 1963

Absorbed Gas Release Rate

PuO_2 の脱ガス状態を調べるため、空気中にさらした Plutonia を調べたが、水分、 CO_2 および窒素酸化物が吸着されていて、これの 95% は、 700°C の脱ガスで除去されることが解った。

J.L. Stakebake & M.R. Dringman,

Desorption From Plutonium Dioxide,

USAEC RFP-1248, Dow Chemical Co., Nov. 21, 1968

高速炉燃料の安全性に関する実験は、溶融、液体金属の沸騰や過熱、冷却材損失など広範囲にわたっている。こゝでは単一燃料ピンについて、燃料の製造法、密度などが安全性に大きな差をあたえるかどうか、また種々の照射条件での破損機構とその破損しきいをしらべるためにおこなわれている power transient の実験結果を集めた。

混合酸化物については G.E. Atomic Products Operation で TREAT 炉を利用して一連の実験がおこなわれており、 UO_2 については ANL と BNWL でおこなわれている。

現在のところ実験データの不足、要因の複雑性、TREAT 炉の Power 再現性の不確実さもあり燃料破損のしきいや機構についてははっきりした結論はでてない。しかし、2, 3 の要因については以下のような情報が得られている。

- (1) 未照射ペレット燃料すなわち Start up 時における燃料破損のしきいは被覆管の溶融あるいは燃料の 70% が溶融した場合である。
- (2) 定常状態で数 atomic % の照射を受けた試料が Power Transient をうけたときは、捕獲されている分裂生成ガスが破損のしきいを低下させる。燃料の 30% の溶融や被覆管の溶融がそのしきいとなる。
- (3) Power Transient が繰返えされると、半径方向の Ratcheting により被覆管が塑性変形をおこす。

これらのデータをそのまま Power や温度のことなる高速炉のデータとしてあてはめることは問題であるが、被覆管の溶融か燃料破損の 1 つのしきいとなることは JEF の場合にも適用されると考える。

Fuel Meas Release & Safety

Summary of the Transient Irradiation Results of Fuel Specimen C4A

General - 14.2-in. fuel-column length x 0.250-in.-o.d. 316 stainless-steel cladding, 0.015-in. wall thickness	
Transient peak specimen power (kW/ft)	155
Transient peak fuel energy density (cal/g)	308
Total specimen energy release [(kWsec)/ft]	124.7
Calculated maximum fuel temperature (°C)	3000±300
Measured fuel volume melt (%)	56-63
Measured average clad deformation (mils)	1.1

試料：(Pu_{0.2}U_{0.8})O₂ ペレット 90.4% Smeard Density

方法：TRET Reactorを利用して軸方向を拘束した燃料ピンの照射後試験により破損機構を解析した。

結論：(1) 金相試験から熔融領域は56~63%である。
(2) 被覆管の破損は燃料カラムの上部でおこり、燃料容積の約5%が被覆管の外に出た。
(3) 被覆管の軸方向の破損は管の外表面近くにあった少量の燃料によって生じたものでFPガスによるものではないと思われる。

G.R. Thomas and J.H. Field, Destructive Examination of an Axially Restrained Pelleted Mixed-Oxide Specimen that Failed During Transient Over Power Conditions, Trans. Amer. Nucl. Soc. 11 (2) (November 1968)

Fuel Meas Relere & Safety

Summary of Design Parameters and Transient Irradiation Results

Series IV Axially Restrained Zero-Burnup Pelleted Fuel Specimens					Series II Unrestrained Zero-Burnup Pelleted Fuel Specimens ^{3,5}		
Specimen	C4A	C4B	C4C	C4D	C2A	C2B	C2C
Smeared Density (% TD)	90.4	91.2	80.4	80.1	90.4	90.6	91.8
Fuel Column Length (ln.)	14.2	14.2	14.2	14.2	6	6	6
Cladding	316SS, 0.250-in. o.d. × 0.015-in. wall thickness.				347SS, 0.250-in. o.d. × 0.015-in. wall thickness.		
Designed Axial Restraint (°C)	> 2800 (≈ Melt)	> 2800	> 2800	> 1600	None	None	None
Transient Peak Specimen Power (kW/ft)	164	220	147	91	134	211	200
Total Specimen Energy Release [(kW sec)/ft]	132 ± 7	134 ± 30	116 ± 7	94 ± 7	118	146	198
Calculated Maximum Fuel Temperature (°C)	3500 ± 300	3600 ± 300	3500 ± 300	2800 ± 200 - 100	2700	2760	4160
Fuel Volume Melt (%)	70-75 ^a	75-80 ^{a,b}	75-80 ^a	50 ^c	≈ 0 ^{a,c}	≈ 72 ^c	> 80 ^a
Central Void Formed	Yes	Yes	Yes	No	No	Yes	Yes
Fuel Movement	Moderate ^f	Extensive ^g	Moderate	No	No	Moderate	Extensive
Clad Deformation	No ^{b,d}	Poss. > 1 mil ^e	No ^{b,d}	No	No	No	No
Clad Failure	Yes ^f	Yes ^g	No	No	No	No	Yes

^aCalculated.

^bMeasured in neutron radiographs.

^cMeasured during destructive examination.

^dTo be verified by destructive examination.

^eLocation and extent of clad failure precluded conclusive measurement.

^fApparent clad melt through; < 7% of fuel relocated outside of clad.

^gApparent clad melt through; ≈ 30% of fuel relocated outside of clad.

試料：(Pu_{0.2}U_{0.8})O₂ペレット燃料

方法：TREAT炉を利用し燃料ピンの軸方向を拘束してPower Transientを与え拘束しないピンとの比較をする。

- 結論：(1) 破損した試料C4A, C4Bと無拘束ピンC2Bとの比較では、90.4% Smeared Densityではfuel Columnの軸方向を拘束すると破損のしきいが低下する。
- (2) あらかじめ燃焼してない試料C4C, C4A, C4Bの比較では、低密度のC4Cは70~80%。溶融でも被覆管の破損がなかった。
- (3) 燃焼度0での破損機構は、外見上は被覆管の溶融でこれが破損のしきいとなる。

G.R. Thomas and J.H. Field, Response of Axially Restrained Pellet Fuel to Transient Overpower, Trans. Amer. Nucl. Soc 10 (2) 707-709 (November 1967)

Fuel Melt Release & Safety

Summary - Specimen C4J Transient Irradiation Results

General - 13.5-in. fuel-column length by 0.250-in.-o.d., 0.220-in.-i.d. 316 stainless-steel cladding.

Transient peak specimen power (kW/ft)	132
Total specimen energy release [(kW sec)/ft]	114 ± 7
Calculated maximum fuel temperature (°C)	3000 ± 300
Measured fuel volume melt (%)	49 - 60
Measured average cladding deformation (%)	0.4 to 0.8

試料：(Pu_{0.2}U_{0.8})O₂ 振動充填燃料 83.7% Smeard Density

方法：TREAT炉を利用し軸方向を拘束したピンの破損機構を解析した。

結論：(1) 熔融した容積は48~60%でペレット燃料と同じような挙動を示した。
(2) 熔融時の膨脹，ガス圧などで被覆管から燃料が流れ出た。
(3) 被覆管の破損箇所より下では，燃料が上方方向に破損箇所まで，また逆に上では燃料が下方方向に破損箇所まで移動することが観察され，ペレット試料C4A，C4Bと同じ挙動を示した。

Fuel Meat Release & Safety

TREAT REACTOR PARAMETERS FOR SERIES III TRANSIENTS

APD Transient Number	TREAT Transient Number	Initial Period (sec)	Reactivity Addition (percent Δk)	Integrated Power (MW-sec)	Peak Power (MW)	Type of Transient
C3B-1	822	0.622	0.753	94	284	Clipped after peak power.
C3B-2	834	0.217	1.08	193	149	Clipped after peak power.
C3E-1	926	0.239	1.04	160.5	124	Clipped after peak power.
C3C-1	982	0.157	1.25	239	273	Clipped after peak power.

COMPILATION OF RESULTS FROM TEST TRANSIENTS

Specimen	Reactor Power		Sample Energy Release (Btu)	Calculated Temperatures		
	Peak (MW)	Integrated (MW-sec)		Maximum Fuel Temperature (°F)	Maximum Average Cladding (°F)	
C3B	149	193	68	5280	1830 (800°F preheat)	Cladding deformation and cracking, axial separation of the fuel column.
C3E	124	160.5	44	4900	1245 (600°F preheat)	No radial deformation or cracking of cladding. Some axial movement of the fuel.
C3C	273	239	67	5950	1295 (300°F preheat)	Cladding deformation and cracking. Axial expulsion of molten fuel through bottom of fuel pin.

試料：(Pu_{0.28}U_{0.72})O₂ ペレット
被覆管 347SS 1/4" O.D.

方法：軸方向を拘束しないC3B, C3C, C3Eの3つのピンを ETRで8100, 73000, 70000MWD/Te各々照射してからTREAT炉で照射する。

- 結果：(1) Transient 中 fuel Melting による F.P. ガス放出は被覆管破損の初期原因となる。
- (2) Melting 中の FP ガス放出は燃料の再配置, 分散の原動力となる。
- (3) 約 1% の被覆管の変形は粒界折出物により被覆管内壁のクラック発生の原因となる。
- (4) 破損のしきい値は, 約 1% の被覆管の変形と 50% 以上の燃料の溶融である。これらのしきい値と実際の実用炉での値とは大きな差があると考えられる。

J.E. Hauson and J.H. Field, Experimental Studies of Transient Effects in Fast Reactor Fuels, Series III: Pre-irradiated Mixed Oxide (PuO₂-UO₂) Irradiation, Final Report, Transient Irradiation, GEAP 4469 (July 1967)

Fuel Meant Release & Safety

Summary of TREAT Photographic Tests with Zircaloy-clad UO₂ Fuels

Run Number CEN-	Fuel Type	Enrichment (w/o ²³⁵ U)	Reactor Period (msec)	Total Transient Energy (cal/g UO ₂)	Energy at Failure (cal/g UO ₂)	Mode of Failure
234T	Vibra-Pac	5	43	354	235	Prompt
233T	Vibra-Pac	5	48	335	277	Prompt
239T	Pellet	5	48	331	291	Prompt
240T	Pellet	5	63	263	263	Delayed
238T	Pellet	5	66	244	Did not fail	-
237T	Vibra-Pac	5	67	258	258	Delayed
235T	Vibra-Pac	5	71	233	Did not fail	-
229T	Vibra-Pac	10	74	357	277	Prompt
236T	Vibra-Pac	5	75	223	Did not fail	-
224T	Pellet	10	80	450	295	Prompt
225T	Pellet	10	107	330	330	Prompt
230T	Pellet	10	108	290	290	Delayed

試料：UO₂ (5% ²³⁵U) 1/2"φ ペレットと振動充填燃料

Zr-2 cladding

結果：TREAT炉でのMeltdown実験により破損機構としてつぎの2方法が考えられる。

いづれの方法も部分的には原子炉周期に依存する。

- (1) 速発性破損 …… Power transient 中に生じ試料内の急速な圧力上昇による被覆管破損と燃料の冷却系への移動により生ずる。
- (2) 遅発性破損 …… Transient の終了後におこりMetal-Water 反応による被覆管の劣化と燃料-被覆管の相互作用によっておこる。

Reactor Period < 80m sec では、破損のしきいエネルギーは燃料の形体、濃縮度に無関係に

速発性破損 …… 235 cal/g UO₂

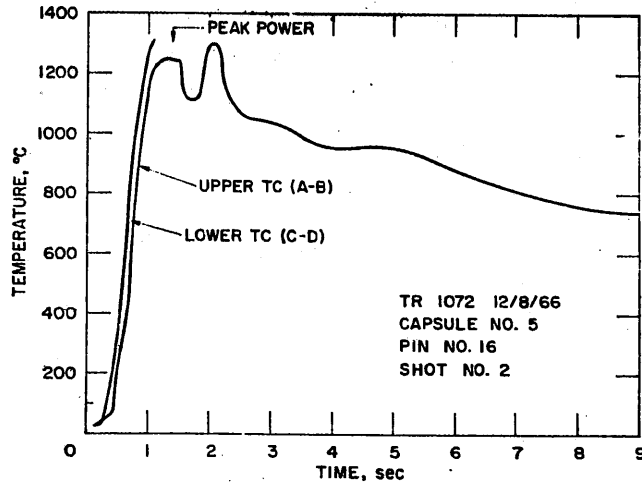
遅発性破損 …… 290 "

となる。

R.O. Ivins, Analysis of Excursion Accidents, in ANL Reactor Development Progress Report, ANL-7457 pp B44-146

Argonne National Laboratory July 2, 1968

Fuel Meat Release & Safety



T Thermocouple Data from Tr 1072 Exposure of 6 a/o Burnup Oxide Pin. ANL Neg. No. 112-8518.

Treat Exposure Conditions for Pin 16

Transient	Burnup, a/o	TREAT Integrated Power, MW-sec	Total Sample Energy, J/g	Max. Temperature Recorded	
				Lower Thermocouple, °C	Upper Thermocouple, °C
1071	6.2	74.3	419	889	850
1072	6.2	207	1151	1310*	1300*

* Melted.

Transient Temperature Calculations for Tr 1072

Maximum Fuel Temperature, °C	Max. Fuel Surface Temperature at Time of Max. Fuel Temperature, °C	Max. Radius of Fuel Reaching Melting Point of 2750°C, cm	Total Duration Fuel is at Melting Point, sec
2750	2060-2175	0.14	0.5

試料: UO₂ペレット (13%U²³⁵) 9.196% T.D. %_U 2.019

燃料カラム 0.381cmφ × 13.97cmℓ アルゴン封入

被覆管 304SS 0.396cm I.D. × 0.442cm O.D.

方法: MTR であらかじめ6%の照射をしてからTREAT炉で照射し高速度カメラで破損機構をしらべる。

結果: Power Transient によって試料中に捕獲されていたF.P.ガスの激しい放出とか酸化物が粉碎されるようなことはおこらなかった。Melting Temperature までは定常状態で照射した場合と同じ挙動を察した。

また溶融した燃料が中心孔にそって移動した跡は認められなかった。

破損のしきいは外見上被覆管の溶融によるものである。

C.E. Dickermem and R. Stewart, Results from Transient Reactor Test (TREAT) Facility Fast Reactor Oxide Fuel Pin, in Reactor Physics Div. Annual Report for July 1, 1966-June 30, 1967 ANL 7310 276-280, Argonne National Laboratory; January 1968

Fuel Meant Release & Safety

Results from TREAT Meltdown Experiments with Zircaloy-clad
UO₂ Fuel Rods Submerged in Water.

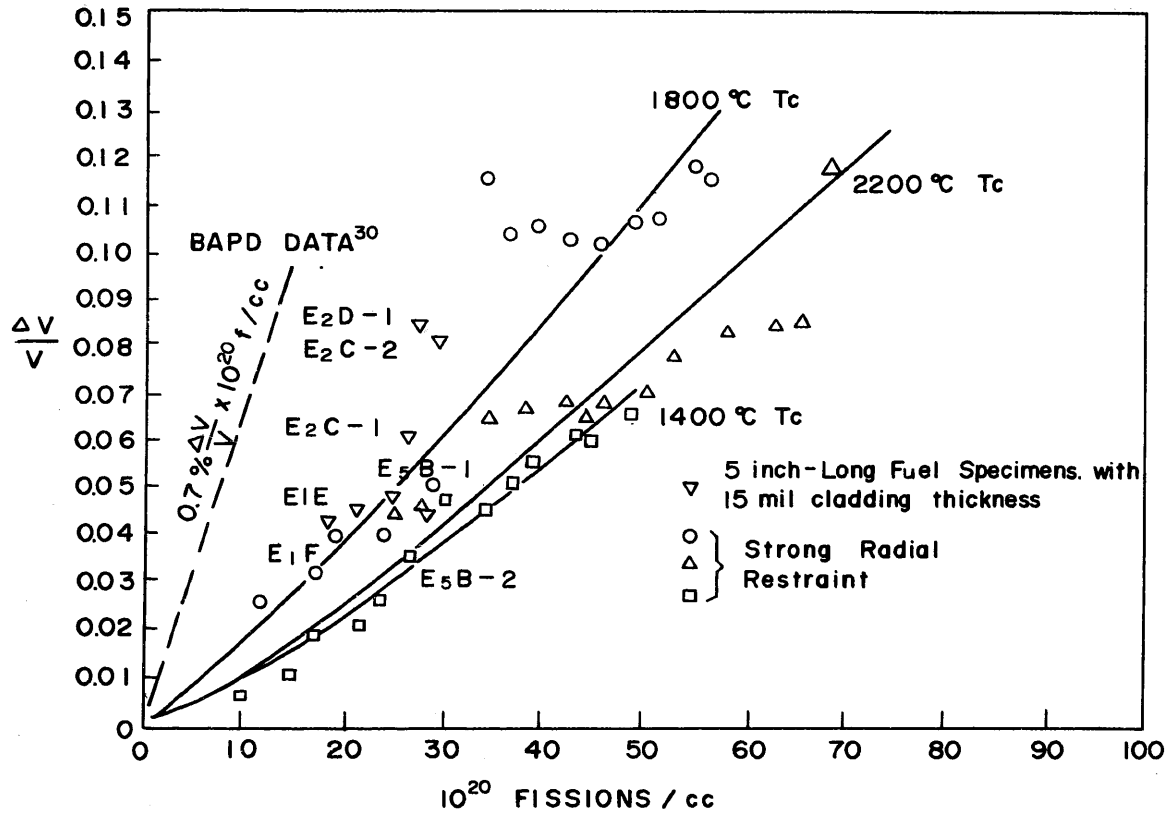
	CEN Run Number					
	246T	247T	248T	249T	250T	251T
Characteristics of Fuel Rod						
Fuel Type	Powder	Powder	Powder	Pellet	Pellet	Pellet
²³⁵ U enrichment, %	5	5	5	10	10	10
Rod diameter, in.	0.50	0.50	0.50	0.375	0.375	0.375
Fuel weight, g	169	169	169	87	87	87
Cladding weight, g	41	41	41	28	28	28
Reactor Characteristics						
Integrated power, MW-sec	379	507	499	214	217	320
Peak power, MW	1496	2790	2006	430	448	1111
Reactor period, msec	64	48	54	118	117	74
Results						
Total fission-energy input, cal/g UO ₂	250	334	328	236	240	354
Fission-energy input at first indication of failure, cal/g UO ₂	218	256	238	-	-	257
Zircaloy-H ₂ O reaction, g Zr	3.4	9.7	11.0	0.6	0.5	9.2
Final appearance of fuel rod	Two large holes; rod broken	Rod severely damaged; dispersal of fuel	Rod severely damaged; dispersal of fuel	Rod intact	Rod intact	Specimen completely destroyed

試料：UO₂ (5% U²³⁵) 振動充填 Zircaloy-2 cladding
 UO₂ (10% U²³⁵) ペレット Zircaloy-2 cladding

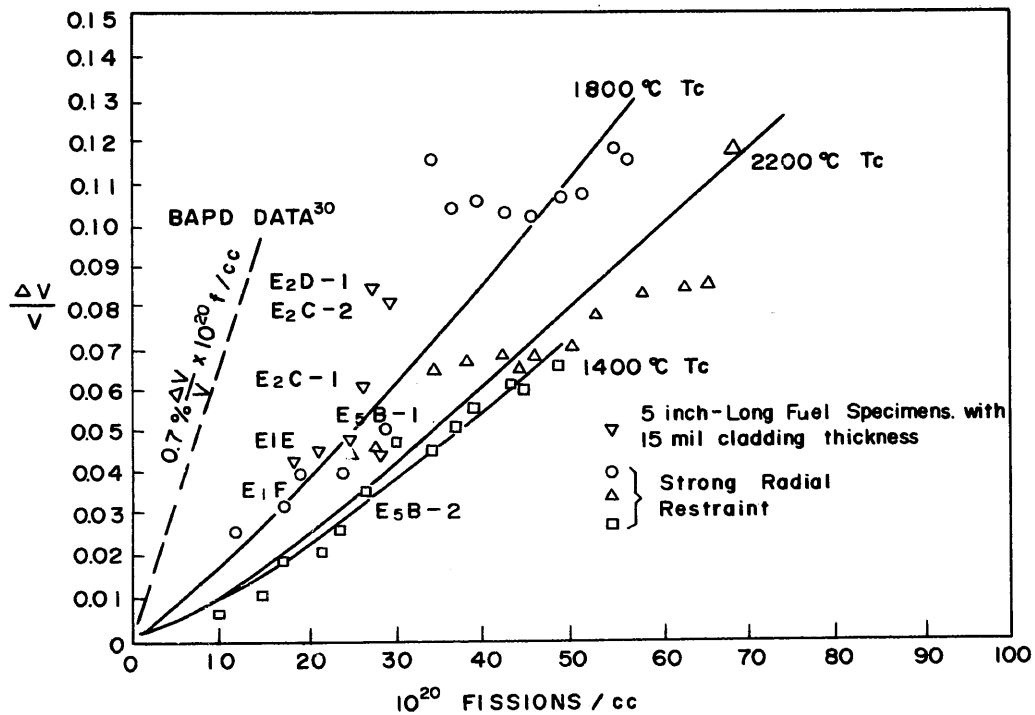
方法：TREAT炉を利用し Reactor Period 120m sec 以下での破損機構をしらべる。

結果：(1) 被覆管の破損は局部的に高い内圧と燃料との強い接触によるものであった。
 (2) 被覆管破損の後、水との反応により管の劣化、燃料が完全に細粉化した。
 (3) ペレット燃料は破損をおこなった。

円柱形燃料ミートのスエリングデータとして現在最も有用なものは E.L. Zebroski et al (G.E) のものである。



Swelling



照射条件：・熱中性子束 (GETR)

- ・ 20%PuO₂-UO₂ ・ 中実ベレット
- ・ $O/M=1.98\sim 2.00$ ・ スミヤク密度 87.0~96.7%T.D.
- ・ 半径方向に強い外部拘束力をかけ、軸方向のスエリングを測定した。
- ・ 燃焼度 $10\sim 70 \times 10^{20}$ fissions/cc

結 果：・スエリング率 $0.1\sim 0.3\% \frac{\Delta V}{V} / 10^{20}$ fissions/cc

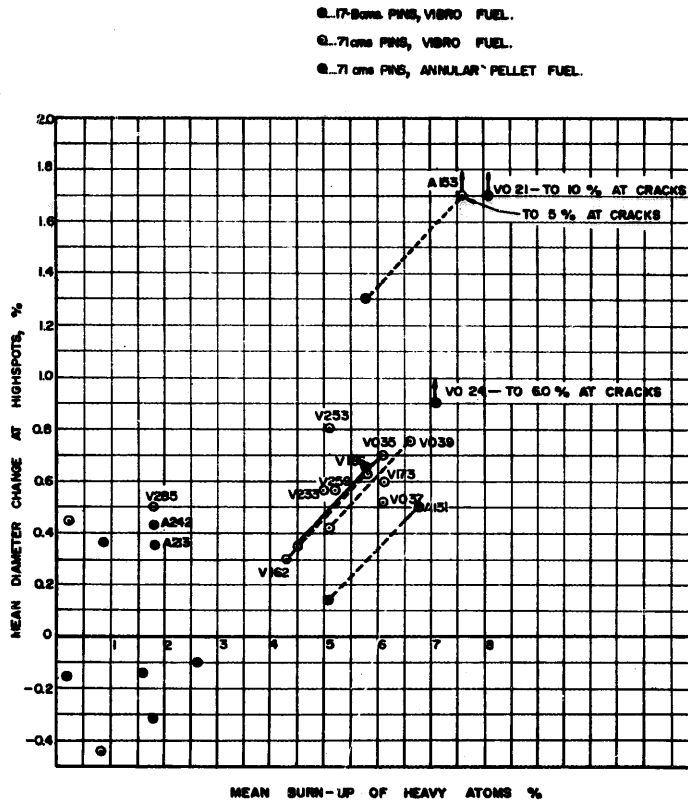
- ・ 中心温度 1800°C の時のスエリングが最大。
(2200°C, 1400°C では低くなる)

コメント：円柱型燃料ミートのスエリングデータとしては現在で最も有用なものである。
このデータは外部拘束力の影響を受けているので、設計値としては $0.3\% \frac{\Delta V}{V} / 10^{20}$ f/cc を使えばよい。

E.L. Zebroske et. al. (GE)

AIME Nuclear Metallurgy Symposium (Phoenix 1967)

Swelling



Diameter changes in fuel pins irradiated in the DFR

照射条件：・ 15% PuO₂-UO₂ (Enriched)

- ・ クラッド 316 ステンレス
- ・ VIPACと共沈法による穴あきペレット
- ・ DFR
- ・ クラッド最高温度 550~650°C
- ・ heat rating 100-250W/g

結果：1.B.U. 7^a/₀ を越えるとクラックが入って破壊してしまう。

2.B.U. 3^a/₀ 以下は潜伏期

3.B.U. 3^a/₀ ~ 7^a/₀ は 0.2% $\frac{4D}{D}$ 1^a/₀ B.U

4. 316 ステンレスのクラッドは高速中性子照射下ではB.U. 7^a/₀ 以上はもたない。

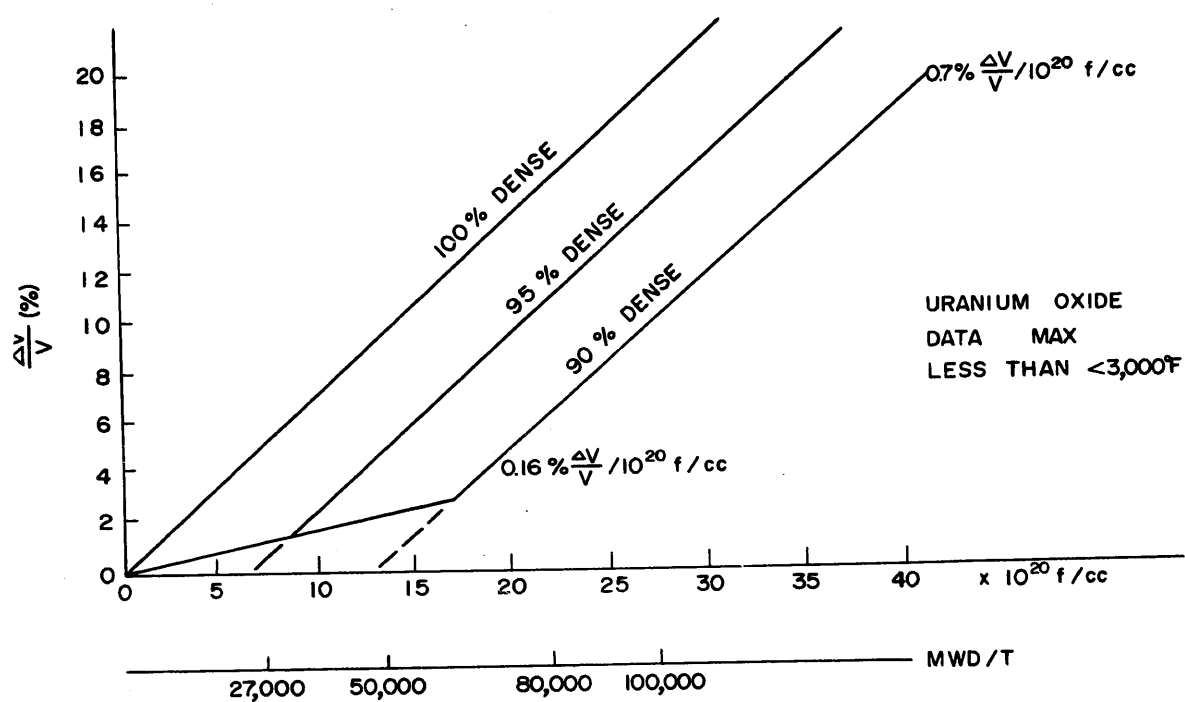
H. Lawton et al

(Dounreay UKAEA)

London Conferens BNES May 1966

Paper 4B/4 P631~654

Swelling



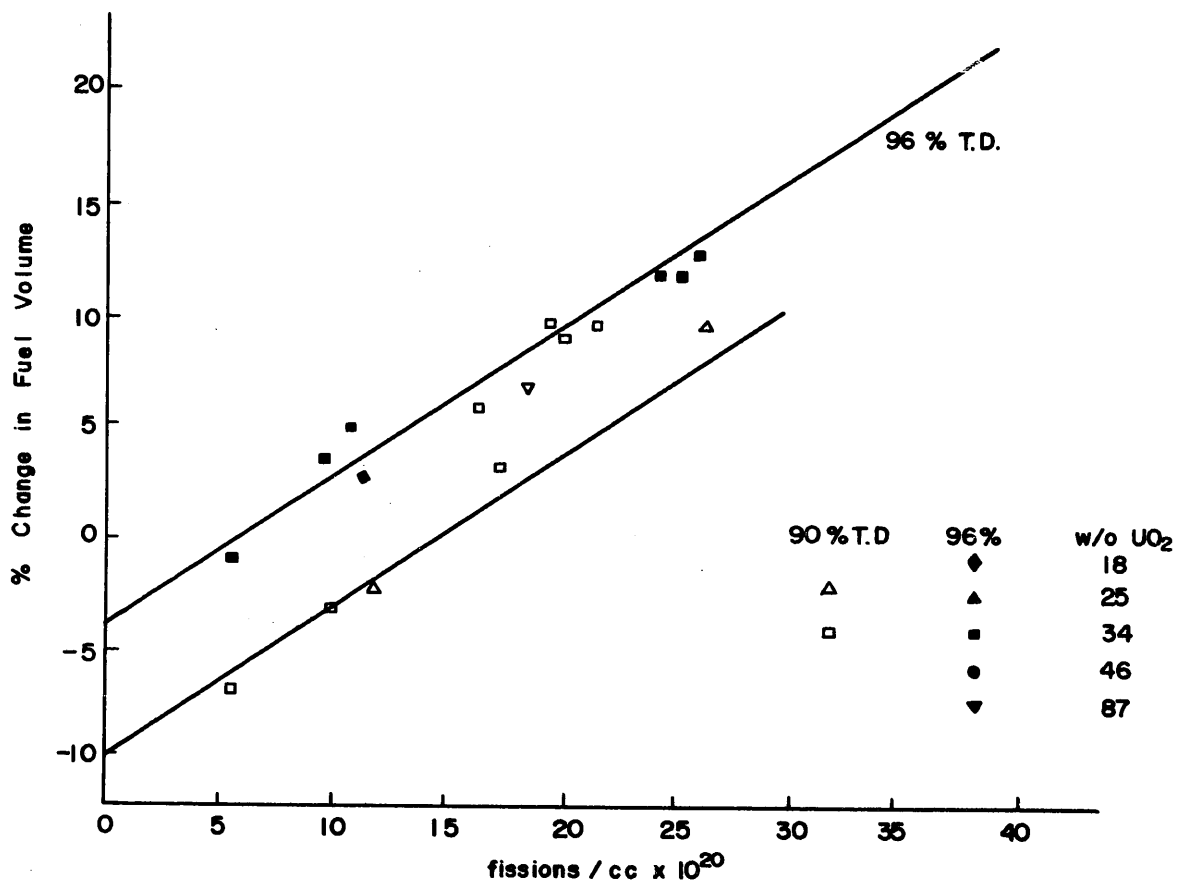
照射条件：・熱中性子束（高温水ループ）
 ・UO₂ 板状燃料

コメント： この図は，GEがWH社のスエリング実験の結果を用いて，高速炉設計の参考資料にしたものである。

・GEのスエリングデータより大きめの値である。

原文献はWAPD-263(1962)である。

Swelling



Volume Change of ZrO₂ fuels with Burnup

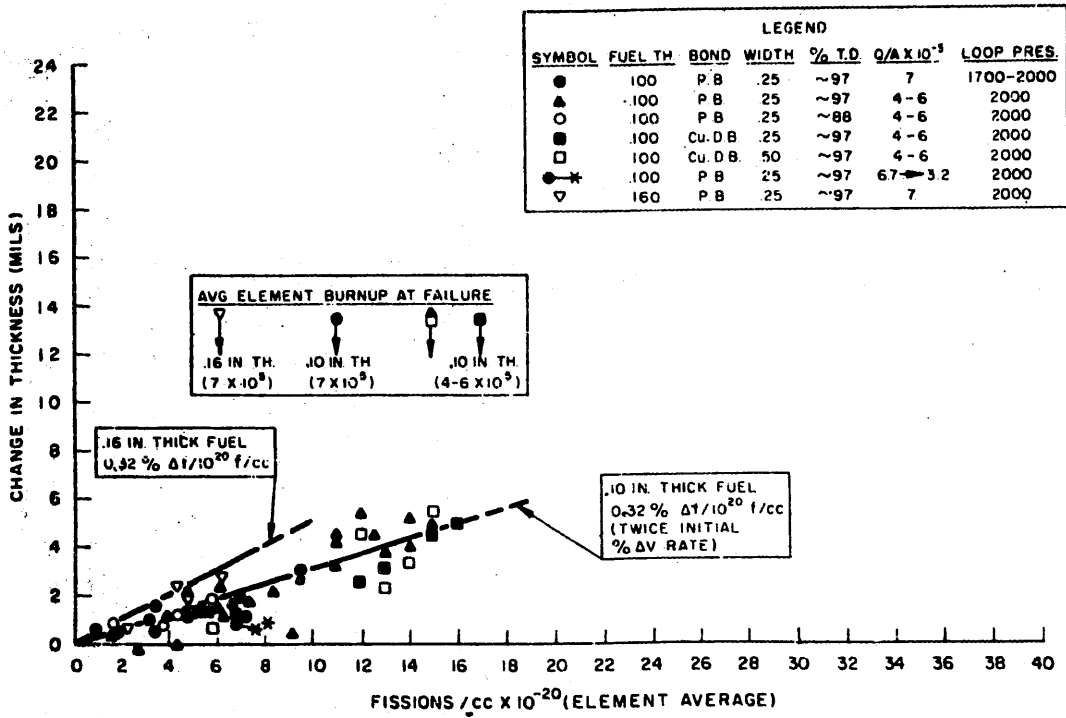
照射条件：
 ・ ZrO₂-UO₂ 板状燃料
 ・ 熱中性子束（高温水ループ）

結果：
 ・ 密度 96% のものは 90% のものより体積増加が大きい。
 ・ WH社の UO₂ 板状燃料に見られたスエリングの起ち上りの直線はなく、低燃焼度側ではスエリングの値が負の値を示している。

B.F. Rubin et. al. (WH)

WAPD-264 (1962)

Swelling



Thickness Changes of 0.10 and 0.16 Inch Thick Fuels Prior to Final Examinations. (Neg. No. 31598-20)

試料：板状UO₂ 燃料 厚さ0.10と0.16 inch

1750°C焼結

クラッド材は ジルカロイ (Zry-2, Nifree Zry-2, Zry-4)

コメント：・燃焼初期の比較的小さなスエリング率を示す段階のデータである。

・板状燃料の肉厚の変化率の約 $\frac{1}{2}$ が体積変化率であるので、体積のスエリング率は

$$0.16\% \frac{\Delta v}{v} / 10^{20} \text{ f/cc}$$

である。

R.C. Daniel

WAPD-263 (1962)

UO₂のヤング率と Porosity の関係では、高密度 (>94% T.D.) の場合

$$E = E_0 (1 - AP)$$

$$E = E_0 \exp(-BP)$$

$$E = E_0 \left(1 + \frac{AP}{1 - (A+1)P} \right)$$

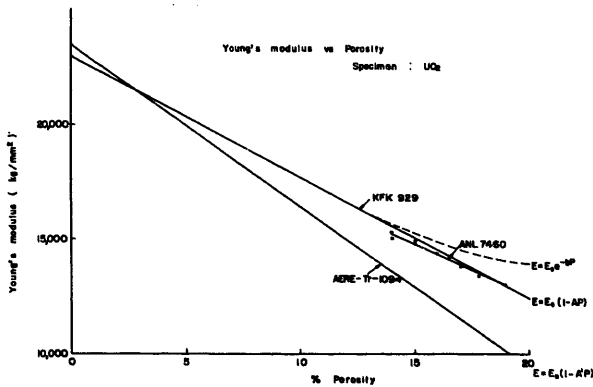
のどの場合もほぼ一致するが、低密度 (81~86% T.D.) の場合、データ少ないが現在のところ、

$$E = 23,000 (1 - 2.2P)$$

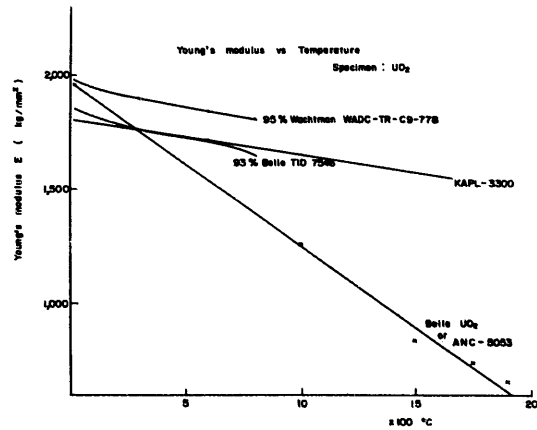
が実験データともよく一致する。高密度から低密度 (>80% T.D.) の範囲で最も信頼のおけるものは、G.Engelhardt と H.Hoffman (KFK-729)である。

ヤング率と温度との関係では~1,200°Cまでは Wachtman, Belle, KAPL-3300, および A.Padel et CH. De Novion のものが信頼がおける。

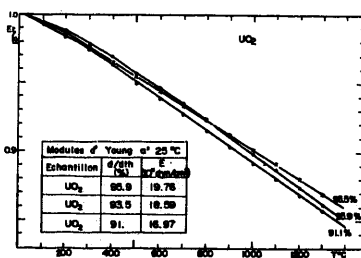
Mixed oxide (20%PuO₂) ではデータは少ないが、A.W.Nutt の Porosity との関係 A.Padel et CH. De Novionの温度との関係が最も新しく有用なものである。



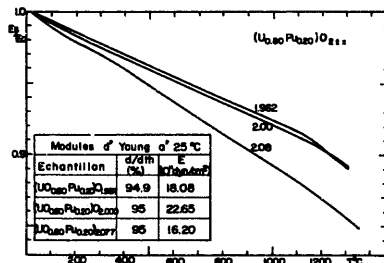
Young's modulus vs porosity



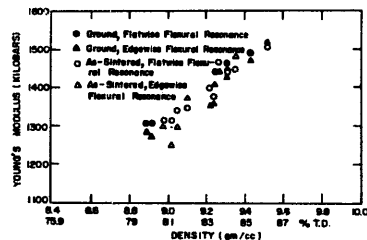
Young's modulus vs temperature



A. padel et CH. DE Novion UO₂ vs temperature

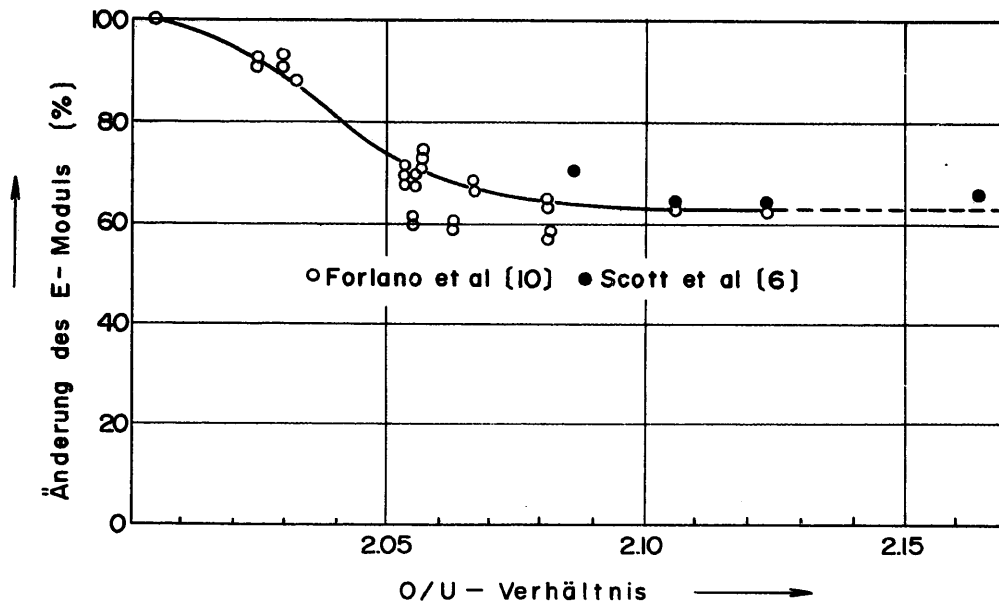


A. padel et CH. DE Novion (U_{0.80} Pu_{0.20}) O_{2±x} vs temperature



A. W. Nutt (U_{0.80} Pu_{0.20}) O_{1.98} vs porosity

Young's Modulus



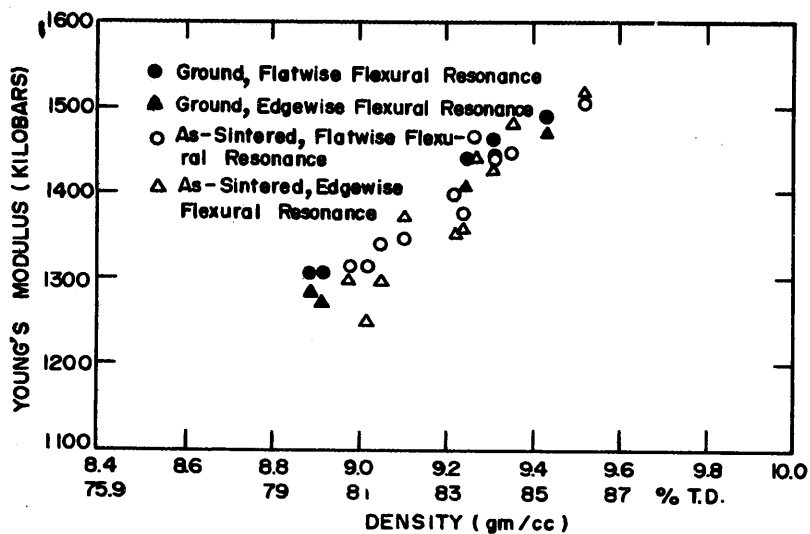
Abhängigkeit des E-Moduls vom O/U-Verhältnis [10]

試料: UO_2

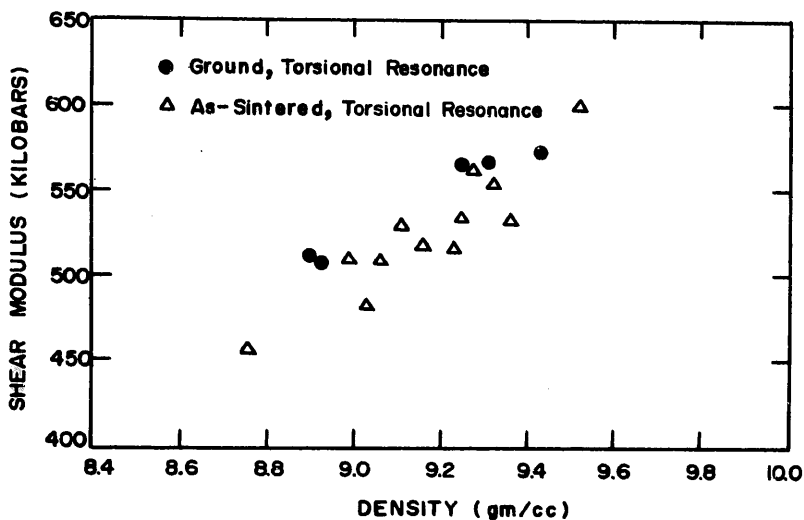
G. Engelhardt and H. Hoffmann

KFK-729 Feb. 1968

Young's Modulus



Youngs Modulus of $U_{0.8} Pu_{0.2} O_{1.98}$ as a Function of Density



Shear Modulus of $U_{0.8} Pu_{0.2} O_{1.98}$ as a Function of Density

試料： $U_{0.8} Pu_{0.2} O_{1.98}$

UO_2 , PuO_2 , Carbowax 4000 1%_W 湿式混合 → プレス → 粉碎 - 20 mesh → プレス
 (0.3 × 0.2 × 7.4 cm) → 脱脂 350°C He - 6% H₂ → 焼結 1525°C 4 h
 $O/M = 1.98$

方法：Fürster resonance technique

ヤング率はタワミ共鳴，剛性率はねじれ共鳴室温測定

Young's Modulus

Representative Data of the Change of Elastic Moduli of $U_{0.8}Pu_{0.2}O_{1.982}$ with Porosity

Density (g/cm^3)	Edgewise Youngs Modulus (kbar)	Flatwise Youngs Modulus (kbar)	Shear Modulus (kbar)	Bulk Modulus (kbar)
8.89	1309	1282	511	929
8.92	1307	1271	507	939
9.10	1370	1345	530	1032
9.25	1443	1405	565	990
9.31	1465	1450	566	1143
9.35	1481	1445	570	1125
9.43	1485	1467	573	1160
9.52	1520	1505	600	1086

Representative Data of the Dependence of Elastic Moduli and Internal Friction at 835°C upon Stoichiometry of $U_{0.8}Pu_{0.2}O_{2-x}$ with a Density of $9.25 g/cm^3$

Atmosphere	O/M Ratio	Edgewise Youngs Modulus (kbar)	Flatwise Youngs Modulus (kbar)	Shear Modulus (kbar)	Bulk Modulus (kbar)	Internal Friction x 10^5 (average of 6 or more points)
CO-CO ₂ (10:1)	1.992	1448	1413	567	999	1.55
H ₂ (dry)	1.982	1447	1412	567	995	1.44
CO-CO ₂ (10:1)	1.992	1454	1416	569	1000	1.34
H ₂ (dry)	1.981	1455	1416	570	1005	1.41

燃 料 : $U_{0.8}Pu_{0.2}O_2$

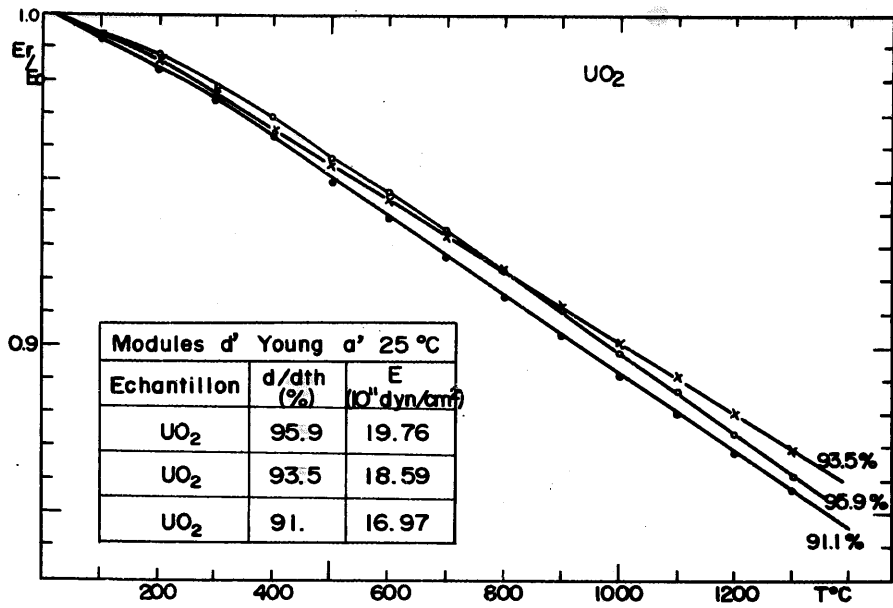
$UO_2 + PuO_2 +$ カーボワックス 4000 1^w/₀ → 混合 → プレス → 粉碎 → プレス ($0.4 \times 0.6 \times 7.5 cm$) → 脱脂 350°C He-6% H_2 → 焼結 1525°C 4h.

$O/M = 1.984$

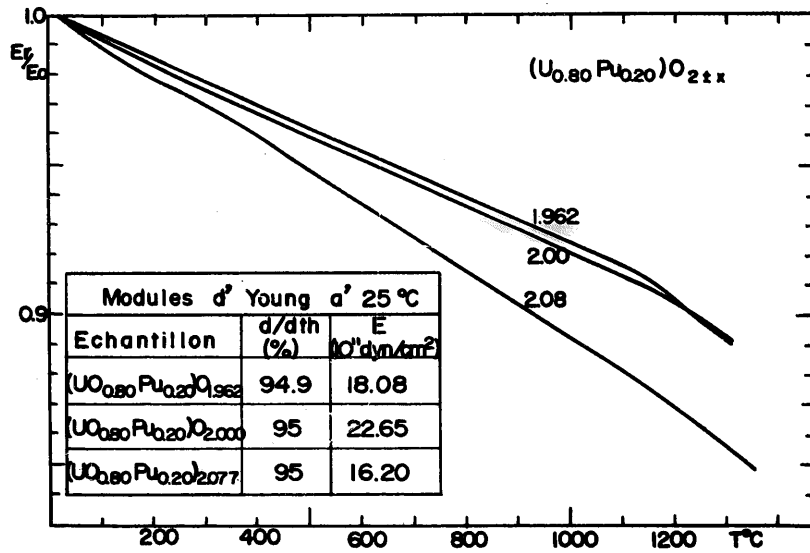
方 法 : Förster resonance technique

ヤング率はタワミ resonance, 剛性率はネジの resonance

Young's Modulus



Variation du module d Young de UO₂ en fonction de la temperature



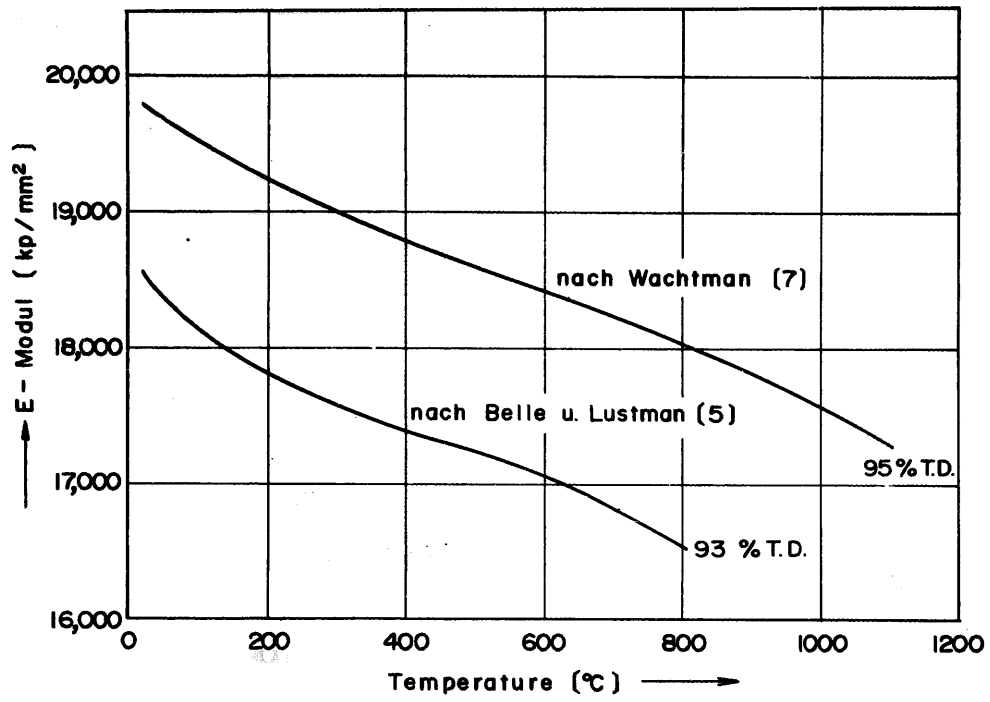
Variation du module d Young de (U_{0.8} Pu_{0.2}) O_{2±x} en fonction de la temperature

試料 : UO₂ , (U_{0.80} Pu_{0.20}) O_{2±x}

方法 : 25° ~ 1300°C の温度範囲で共鳴法にて測定。

A. Padel et CH. DE Novion : J. Nucl. Mat. 33, 40 (1969)

Young's Modulus



E-Modul als Funktion der Temperature

試料: UO_2

Young's Modulus

結果： $S = S_0(1 - A_s P)$

$$E = E_0(1 - A_m P)$$

$S = \text{Strength}$ $S_0 = 100\% \text{密度の strength}$

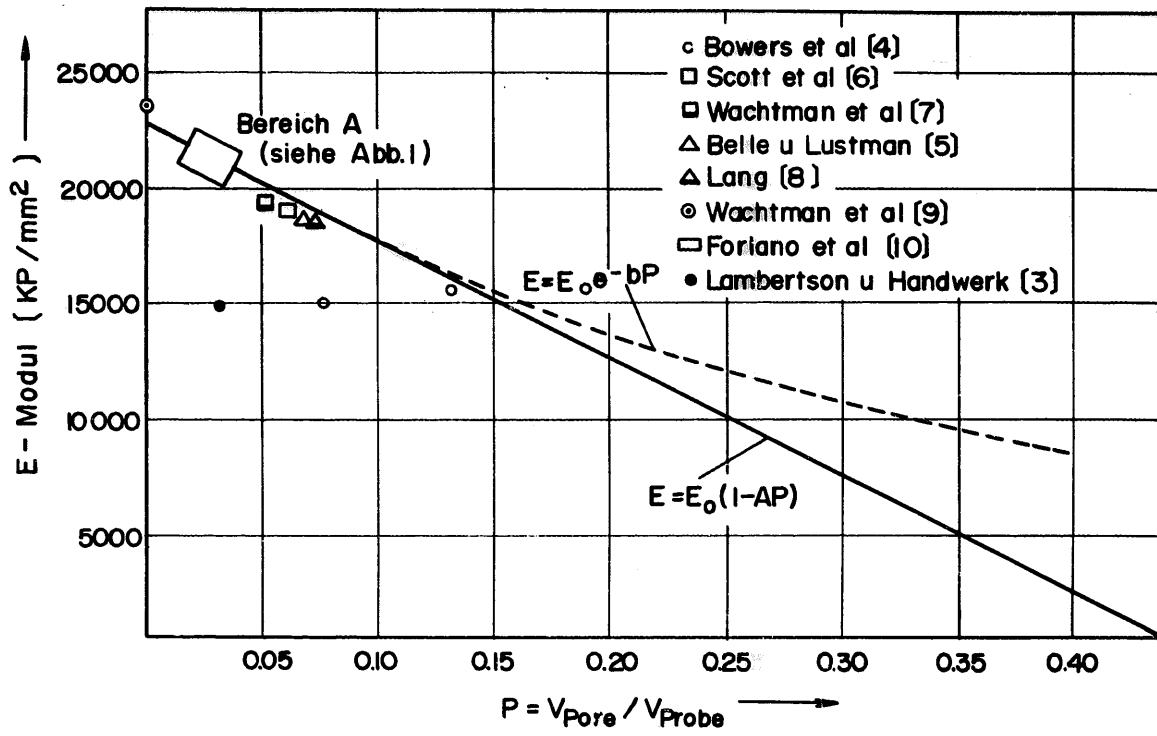
$E = \text{Young 率}$ $E_0 = \quad \quad \quad \text{ヤング率}$

$P = \text{Porosity}$ $A_s, A_m = \text{const}, A_s = kA_m$

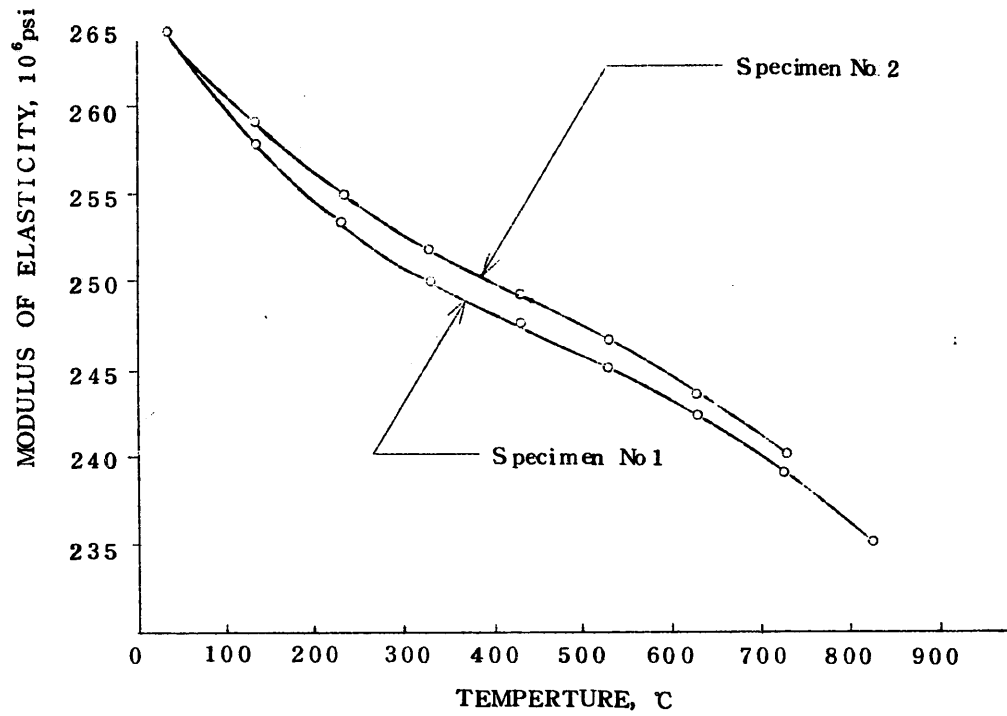
($k = \text{ポアの形, 分布に依存するconst}$)

試料：多結晶体

Young's Modulus



Young's Modulus



Modulus of elasticity versus temperature in vacuo

試料: UO_2 93% T.D.

方法: dynamic method in vacuo ($<1\mu\text{Hg}$)

Young's Modulus

結果： $E = E_0 - BT \exp(-T_0/T)$

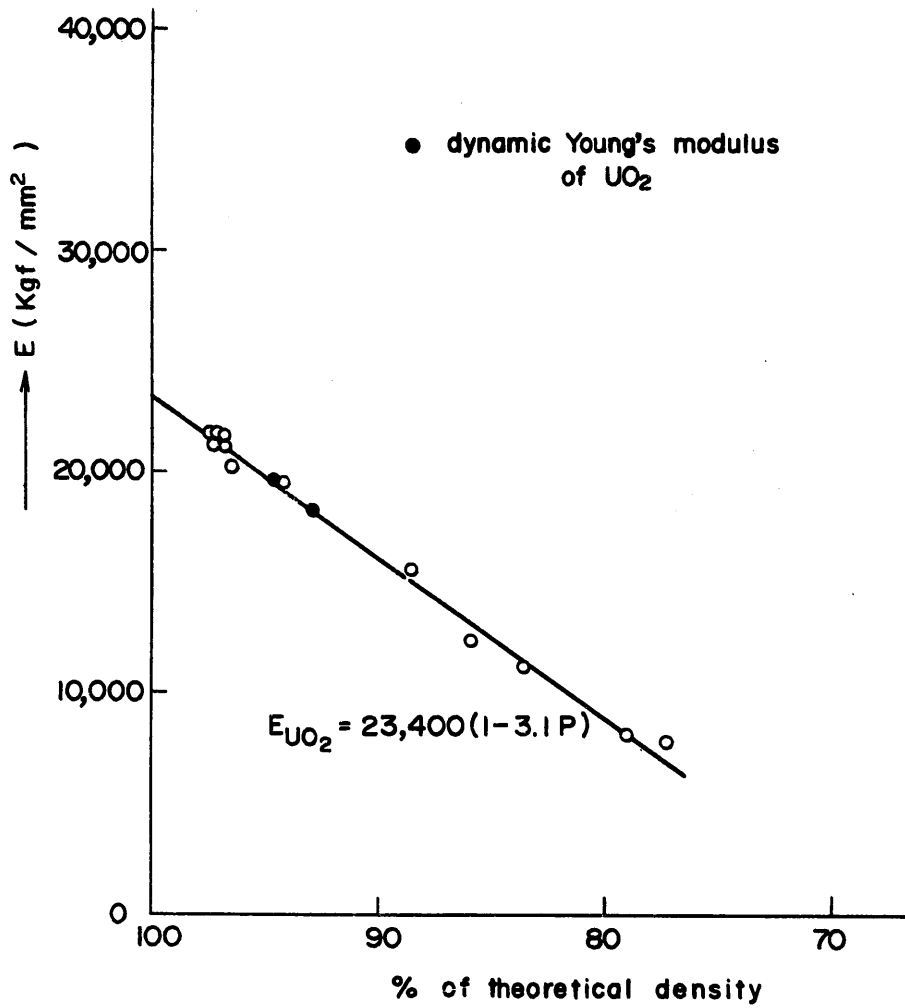
E = ヤング率, $E_0 = 0^\circ\text{K}$ のヤング率

$B = \text{const}$, $T_0 = \text{characteristic Temp.}$

$\exp(-T_0/T)$ は高温では 1

試料：oxide (Al_2O_3 , MgO , ThO_2)

Young's Modulus



試料：UO₂，真空ホットプレス成型，粒径 1~3 μm
 20mm φ × 4.5mm 面は 260 番 SiC で研磨

方法：径方向に圧縮して stress を strain gauge で測定

$$E = - \frac{16P}{\pi h d (3\epsilon_2 + \epsilon_1)} f_E$$

$f_E = 1.005$ (補正係数)， $P = \text{pressure}$

$\epsilon_1 = \text{圧力方向に直角な stress}$

$\epsilon_2 = \text{ " 平行 "}$

その他：Bending法よりも正確である。

B.R. SKELDING. AERE-Tr-1094, 1967

Young's Modulus

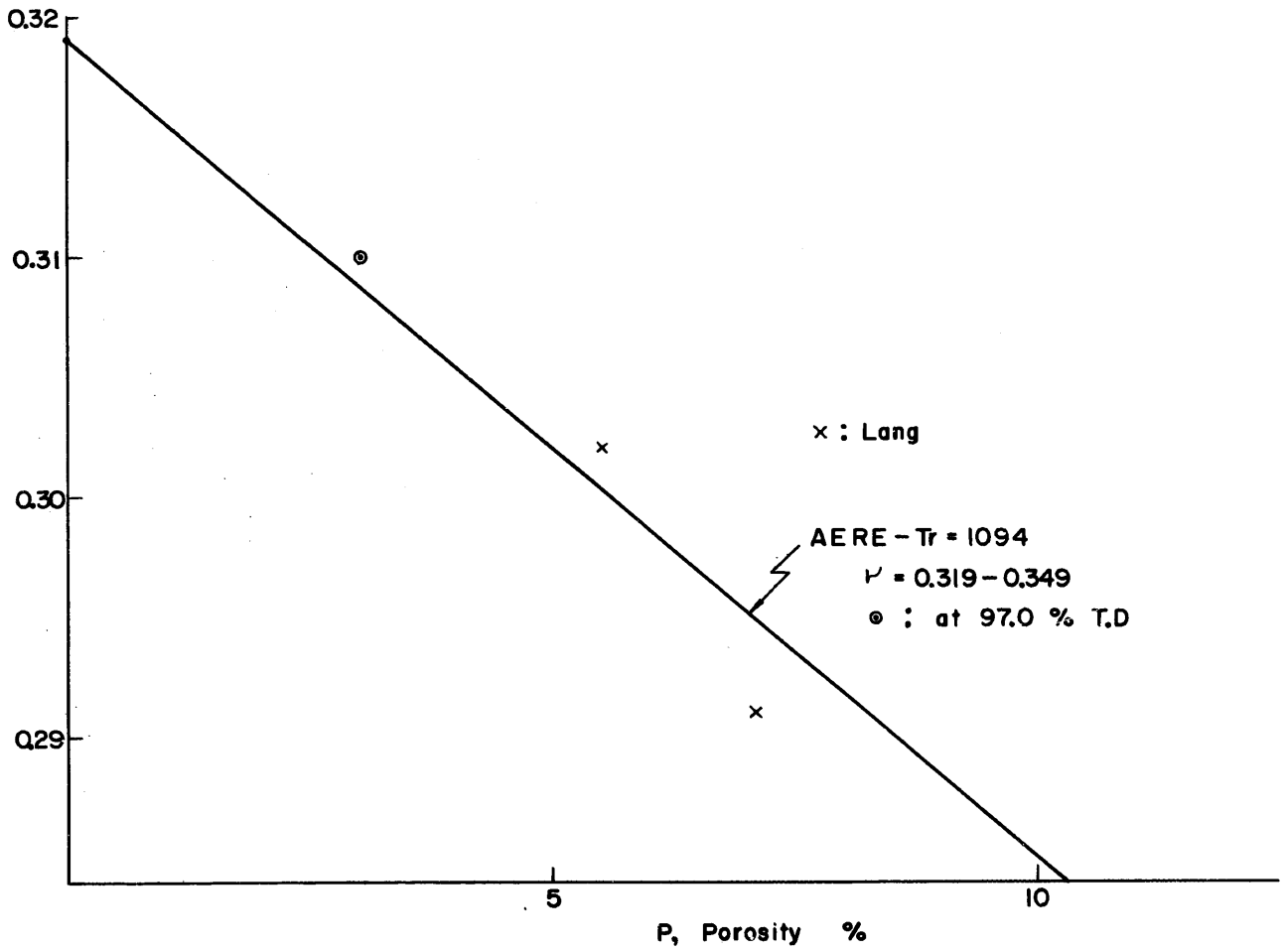
結果： $E = E_0 \left(1 + \frac{AP}{1 - (A+1)P} \right)$

E = 弾性率, E_0 = 密度 100% の弾性率

$A = \text{const}$, $P = \text{porosity}$

試料：多結晶体

ポアソン比はUO₂のみであるが、B.R. Skelding の Porosity との関係で示したものが最も利用できると思われる。



Poisson Ratio

結果： $\nu = 0.319 - 0.34P$

$P = \text{Porosity}$

試料： UO_2 ，真空ホットプレス成型，粒径 $1 \sim 3 \mu$

$20\text{mm} \phi \times 4.5\text{mm} \ell$ 面は #260 SiC で研磨

方法：径方向に圧縮して stress を strain gauge で測定

$$\nu = \frac{3\varepsilon_1 + \varepsilon_2}{3\varepsilon_2 + \varepsilon_1} f\nu$$

$f\nu = 1.055$ (補正係数)

$\varepsilon_1 =$ 圧力方向に直角な stress

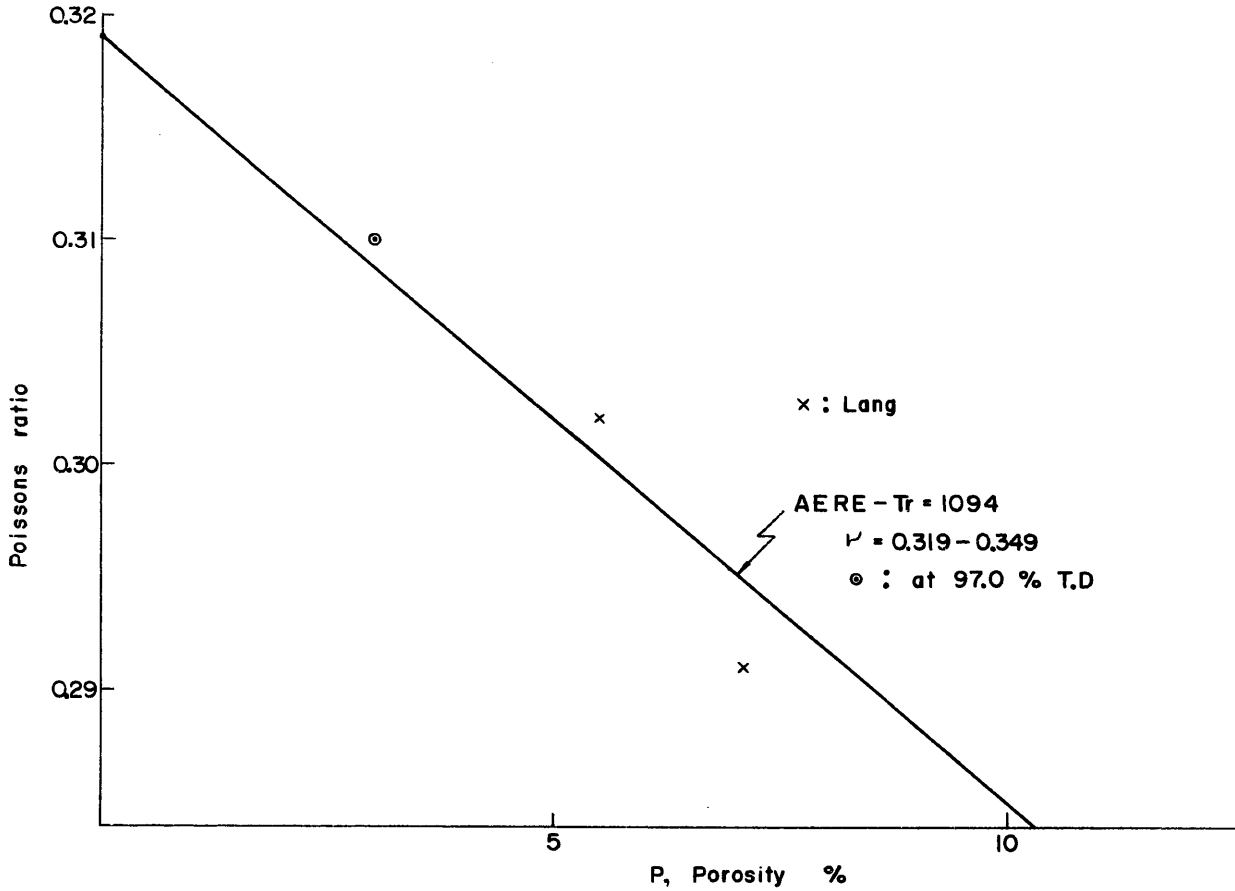
$\varepsilon_2 =$ " 平行 "

Poisson Ratio

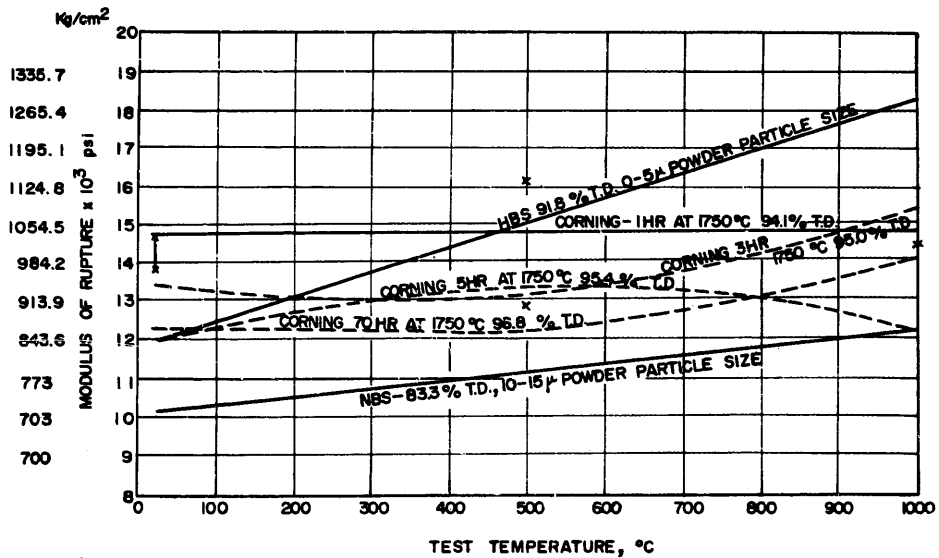
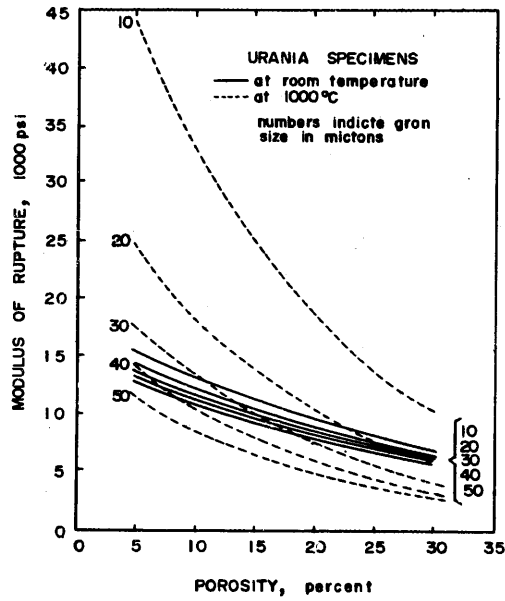
結果： $\nu = 0.302$ (94.5%)， 0.291 (93.0%)

試料： UO_2 ，常溫

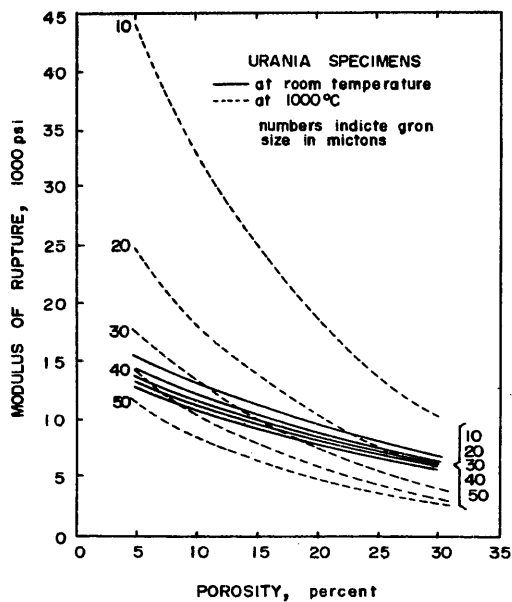
方法：超音波法



UO₂ に関してのみであるが、破壊強度は試料の形状、測定法によつてかなりのばらつきがあるが、最も有用と思われるものは、F. P. Knudsen et al の Porosity との関係で示したものと、J. Belle と B. Lustman の温度との関係で示したものにあらる。



Modulus of Rupture



Effect of porosity and grain size on flexural strengths of additive-free urania specimens of room temperature and at 1000°C. calculated according to the equations in Table. III

結果:

$$S = kG^{-a} \exp(-bP)$$

S = strength

k, a, b = Empirical Const.

G = Grain Size

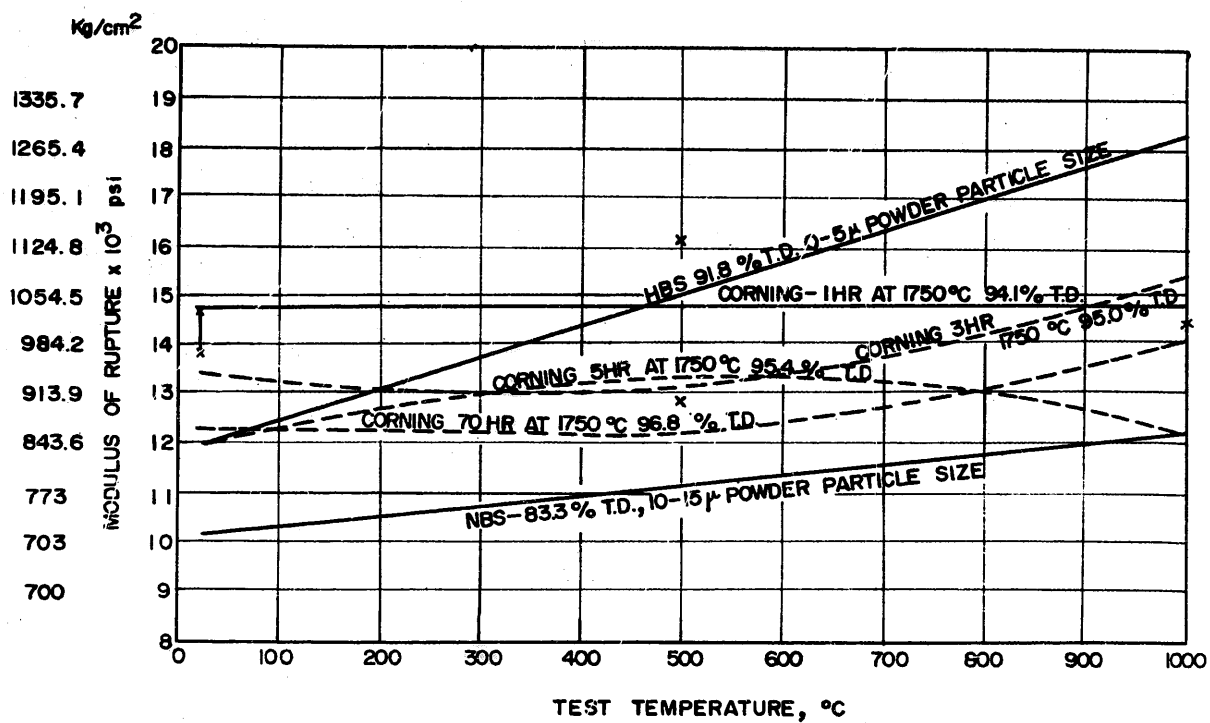
P = Porosity

常温では, $S = 23,700 G^{-0.119} \exp(-3.17P)$

1000°Cでは $S = 409,000 G^{-0.837} \exp(-5.84P)$

試料: UO_2 $\frac{3}{8}$ in. $\phi \times \frac{1}{2}$ long, $3,000 \frac{lb}{in^2} \rightarrow$ プレス $45,000 \frac{lb}{in^2} \rightarrow$ 焼結 1 h

Modulus of Rupture

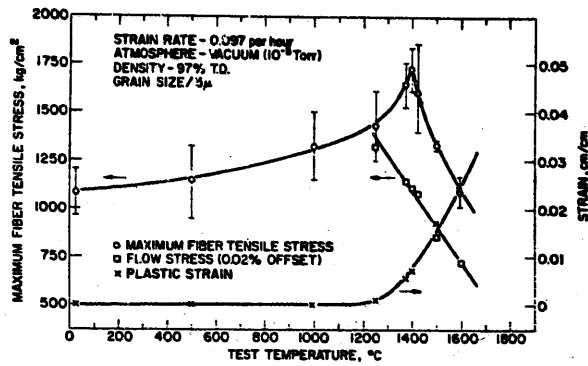


試料：UO₂

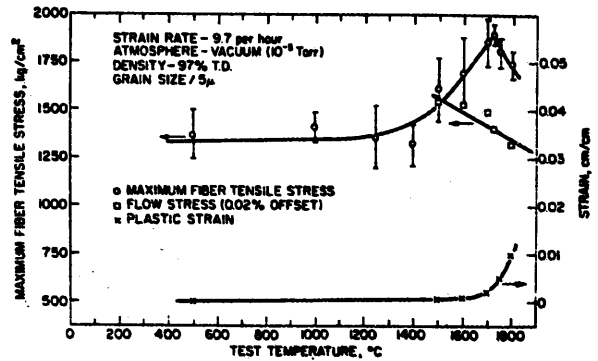
方法：4点曲げ法

J. Belle and B. Lustman, TID-7546 (1958)

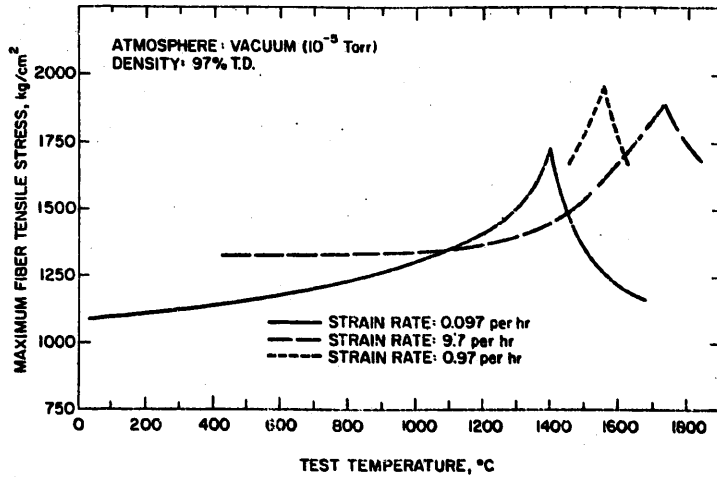
最大たが張り応力，降伏強度



The Effect of Temperature on the Maximum Fiber Tensile Stress, Flow Stress Strain of Stoichiometric Uranium Dioxide (slow strain)



The Effect of Temperature on the Maximum Fiber Tensile Stress, Flow Stress, and Plastic Strain of Stoichiometric Uranium Dioxide (fast strain)



The Effect of Temperature and Strain Rate on the Maximum Fiber Tensile Stress of Stoichiometric Uranium Dioxide.

試料：UO₂，焼結体，密度97% T. D. 平均粒径5 μ

方法：4角棒の4点曲げ法

結果：Flow stress (Yield Stress) は 0.097/h の strain では

$$\sigma_f = 3,620 - 1.812 t$$

$$\sigma_f = \text{flow, stress (yield stress) in } \text{Kg/cm}^2$$

$$t = \text{test temperature (}^\circ\text{C)}$$

同じく 9.7/h の strain rate では

$$\sigma = 2,580 - 0.675 t$$

Yield Stress

Yield Stress Values of Stoichiometric UO_2

Test Temp ($^{\circ}\text{C}$)	Yield Stress ^a (Kg/cm^2)
1250	1323.6
1375	1131.5
1400	1107.1
1425	1086.2
1500	854.2
1600	730.5

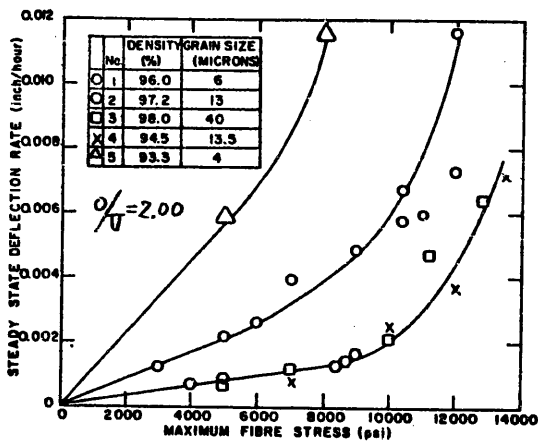
^a0.02% offset.

試料: stoichiometric UO_2

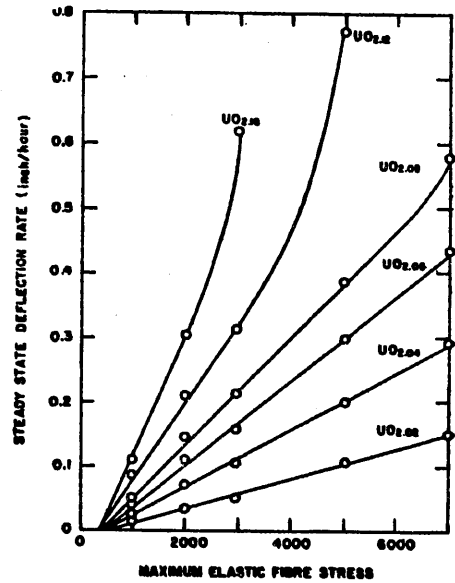
方法: 4点曲げ法, 0.02% offset

結果: 1250 $^{\circ}\text{C}$ 以下では brittle fracture で破壊

炉内での実験データはない。炉外でのクリープデータとしてStoichiometric および non-stoichiometric な UO_2 に関しては, W. M. Armstrong et. al. のものが最も有用なものと思われる。

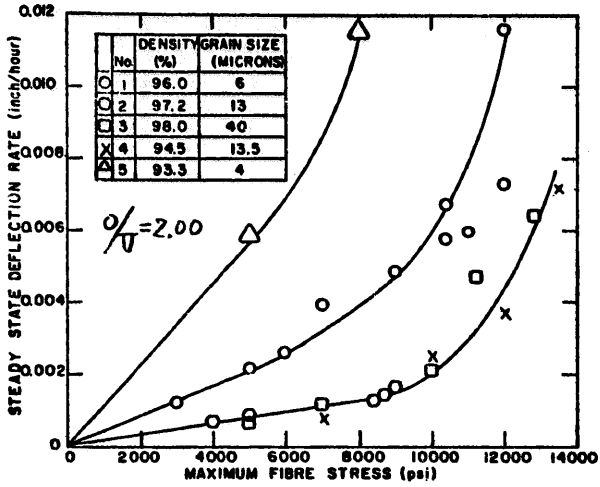


Effect of grain size and density on plastic behaviour of stoichiometric material at 1400°C.

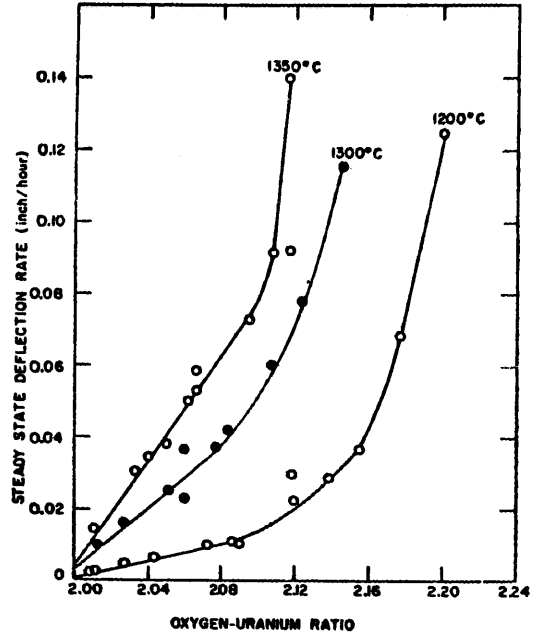


Stress dependence of creep rates at 1300°C (values taken graphically from data plotted in fig 2).

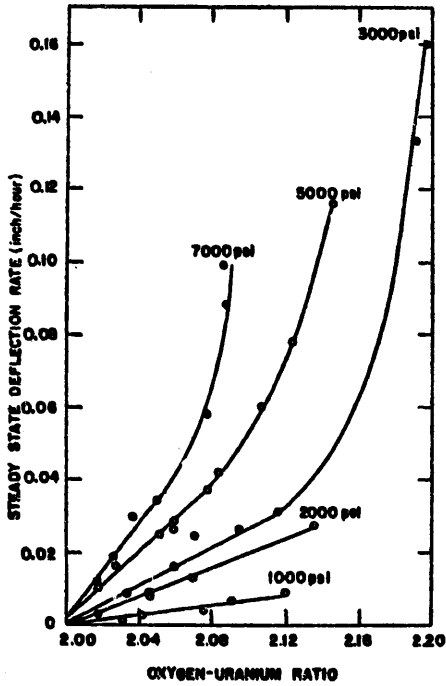
Creep



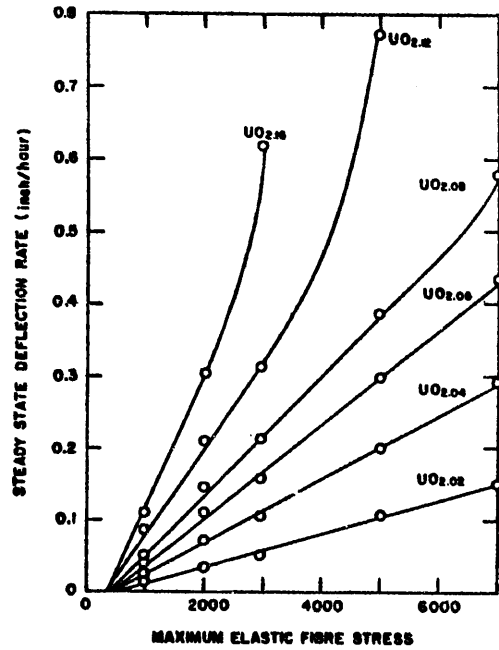
Effect of grain size and density on plastic behaviour of stoichiometric material at 1400°C



Steady state deflection rate vs. oxygen-uranium ratio (all samples tested under a maximum fibre stress of 5000 psi; density of material tested was 96 per cent of theoretical).



Steady state deflection rate at 1300°C vs. oxygen-uranium ratio (density of samples tested was 96 per cent of theoretical).



Stress dependence of creep rates at 1300°C (values taken graphically from data plotted in fig. 2).

Creep

試料： $\text{UO}_{2.00} \sim \text{UO}_{2.25}$ Sintered pellets

方法：975°~1400℃の温度範囲，700~16,000 psi の応力範囲で中心点荷重による曲りクリープを測定。 UO_{2+x} の場合 O/U の変化は±0.01% 以内に保持した。

クリープ速度：

$$1) \text{O}/\text{U} = 2.00^{1)}$$

$$\dot{\epsilon} = A \exp(-91,000/RT) \cdot \sigma^n$$

$\dot{\epsilon}$: 歪速度

σ = 応力 (psi)

A, R : 定数

$n = 1$ $\sigma < 10,000$ psi, 定数 $\approx 97\%$ TD ベレット

$n > 1$ $\sigma > 10,000$ psi, 低密度ベレット

$A = 5.1 \times 10^2 \text{ poise}^{-1}$ ($n = 1.3$, 96.1% T. D. 粒径 6μ)

$$2) \text{O}/\text{U} = 2.02 \sim 2.08^{2)}$$

$$\dot{\epsilon} = A (\text{O}/\text{U} - 2) \cdot \sigma \cdot \exp(-55,700/RT)$$

$A = 0.064 \text{ poise}^{-1}$ (96.0% T. D. 粒径 6μ)

コメント：Stoichiometric および non-stoichiometric な UO_2 に関するクリープとしては有用なものである。

1) W. M. Armstrong, W. R. Irvine and R. H. Martinson, J. Nucl. Mat. 4, 133(1962).

2) W. M. Armstrong and W. R. Irvine, J. Nucl. Mat. 9, 121(1963)

G r e e p

1. サンプル $UO_{2.00}$, $UO_{2.06}$, $UO_{2.16}$
2. 温度 $UO_{2.00}$ 1,000℃と1,650℃
 $UO_{2.06}$ } 800℃～1,000℃
 $UO_{2.16}$ }
3. 方式 中心荷重, 曲げクリープ
4. 応力
5. クリープ速度

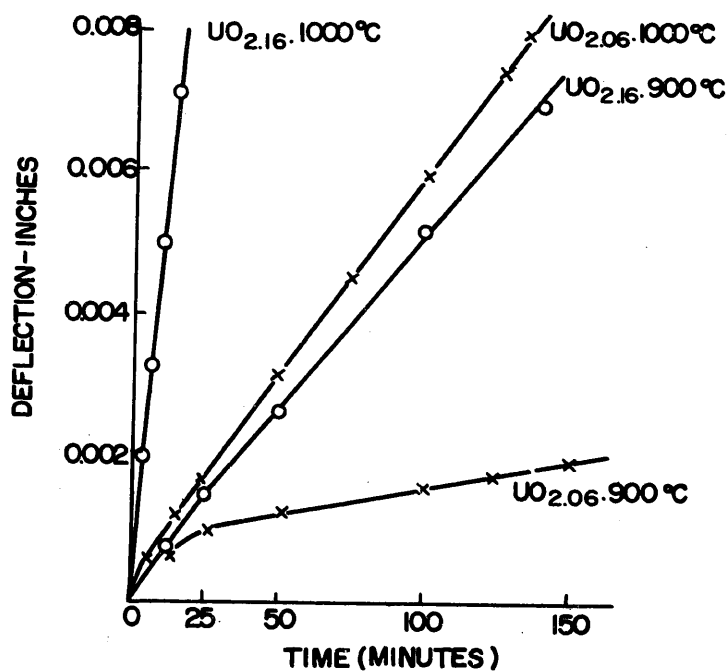
$$\dot{\epsilon} = A \sinh(\sigma/\sigma_0) \exp(-Q/RT)$$

$$\sigma/\sigma_0 = 2.16 \quad Q = 65 \text{ kcal}$$

$$\sigma/\sigma_0 = 2.0 \quad Q = 72 \text{ kcal}$$

$$\sigma/\sigma_0 = 2.00 \quad Q \geq 95 \text{ kcal}$$

A, σ_0 , Qは物質定数



Creep curves for uranium oxides at 1200 g load.

R. Scott, A. R. Hall and J. Williams. (AERE Harwell U. K.)

J. Nucl. Mater. 1(1959) 39-48

Creep

1. サンプル $UO_{2,000 \pm 0.001}$ の単結晶
2. 温度 1340 ~ 1685 °C
3. 方式 四点荷重 曲げクリープ
4. 応力 3,600 ~ 8000 psi, 曲げによる引っ張り
5. クリープ速度

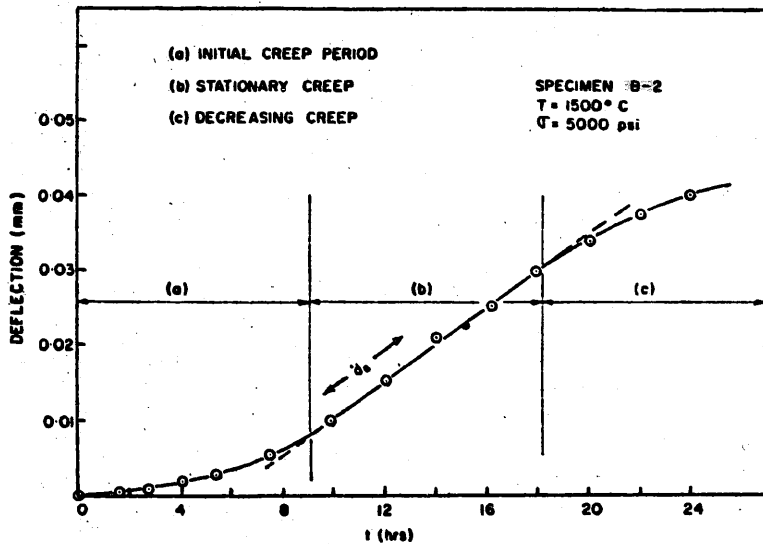
$$\dot{d}_s = K \sigma^{3.33} \exp(-5.1/kT)$$

\dot{d}_s : stationary deflection rate mm/hr

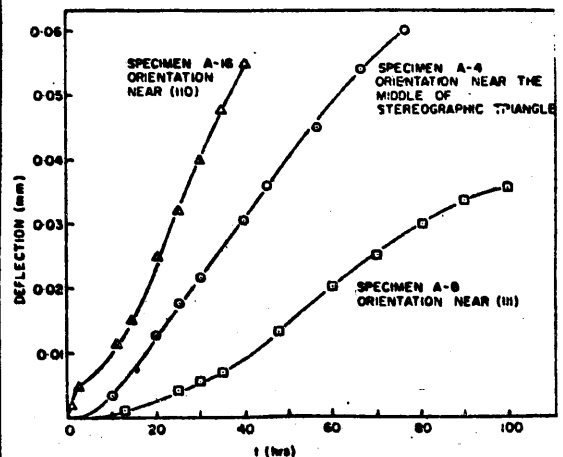
k : ボルツマン定数 $8.6 \times 10^{-5} \text{ ev} \cdot \text{deg}^{-1}$

活性化エネルギーは ev 単位

$$5.1 \pm 0.4 \text{ ev} = 108 \sim 127 \text{ kcal/mole}$$



Typical creep curve : delimitation of regions.



Some creep curves for batch A at 1400°C temperature and 5000 psi tensile stress.

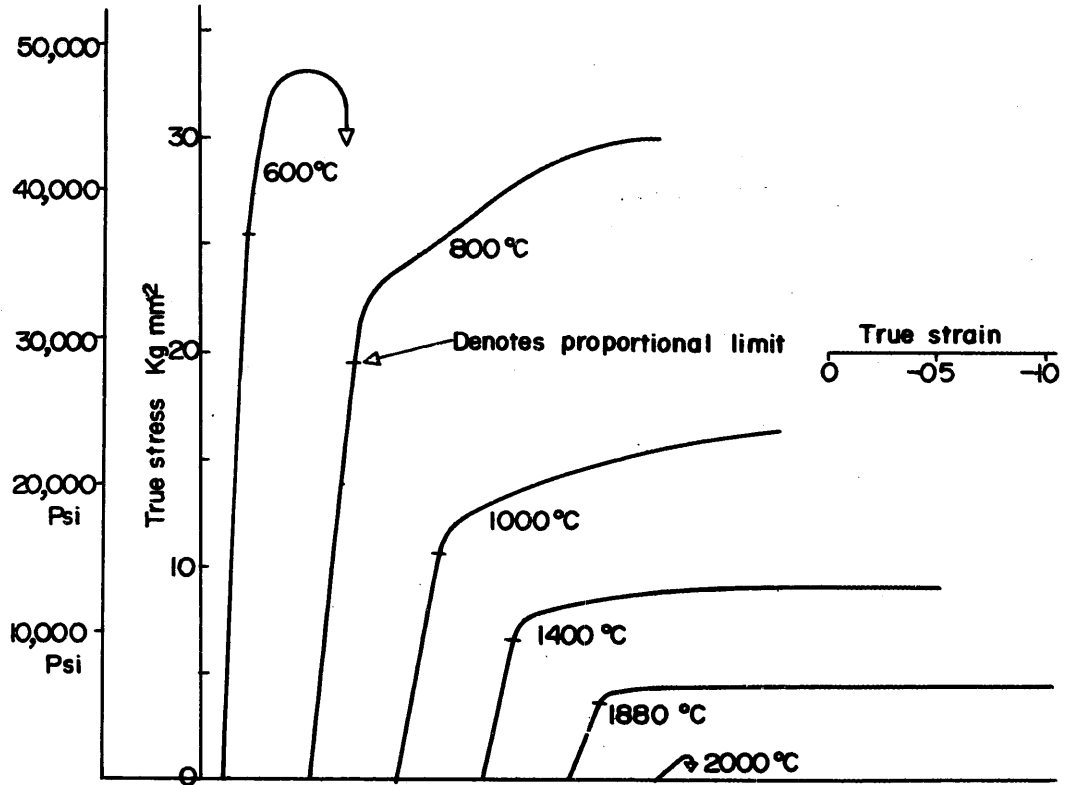
6. コメント

UO_2 の単結晶のクリープとしてはこのデータが最も信頼のおけるものである。

W. M. Armstrong , A. R. Causey and W. R. Sturrock (The University of British Columbia , Canada).

J. Nucl , Mater , 19(1966) 42—49

Stress-Strain Curve



Stress strain curves for $UO_{2.00}$

サンプル $UO_{2.001}$, 97% T. D. Grain dia. : $18.6\ \mu$
 不純物 Fe 38 ppm Si 20, Ca 20, Mg 20
 Al 25 Pb. 2 P 8
 形状・直平行六面体 $2.4\ mm^2 \times 4.8\ mm^2$ long

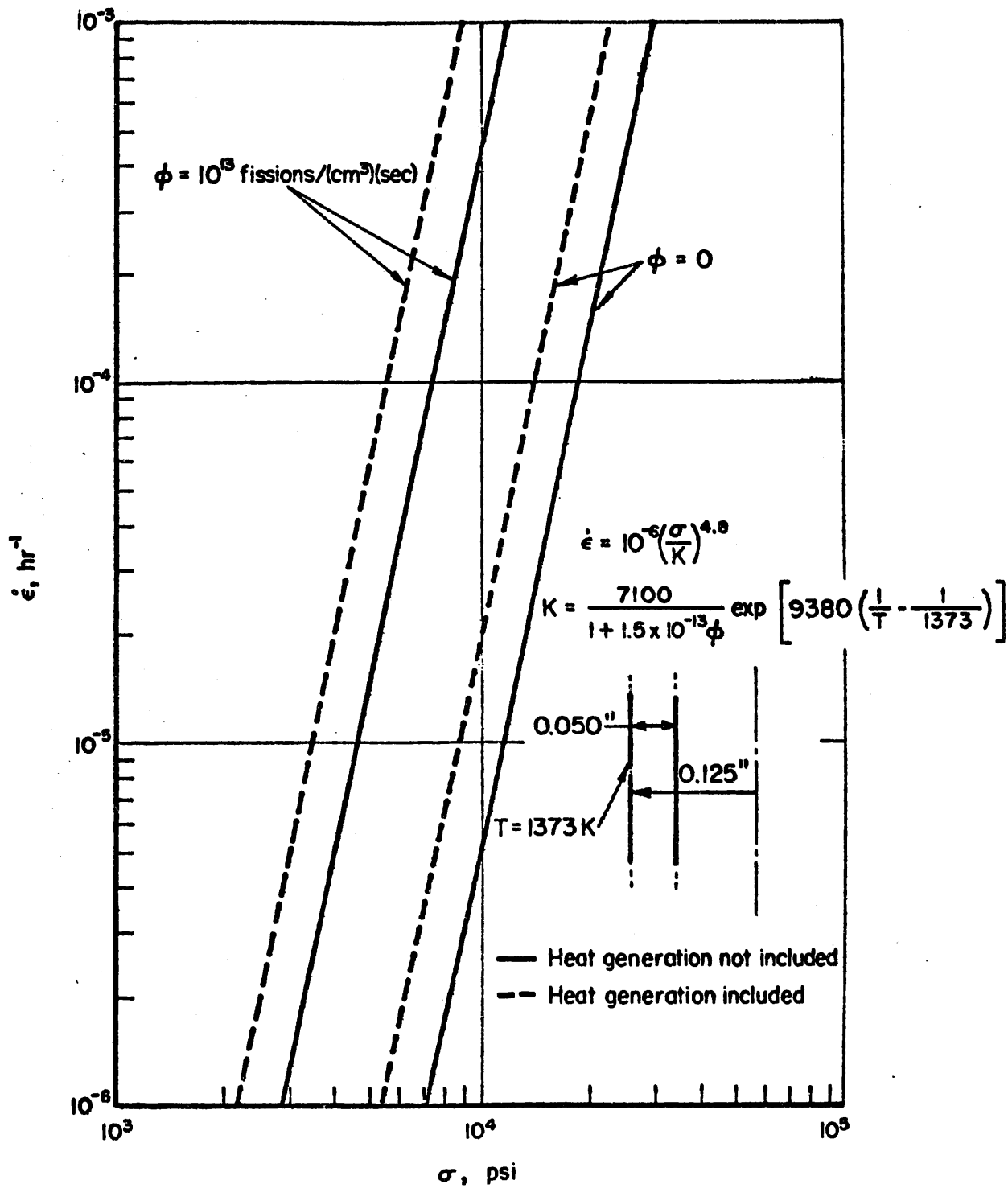
方 式 圧縮法 , 歪速度約 0.02 min.
 純 Ar 雰囲気

コメント : UO_2 に関するデータとしては最も新しく信頼のおけるものである。

J. F. Byron (Univ of Liverpool, UK)

J. Nucl. Mater. 27 (1968) 48-53

Creep



Effects of heat generation and fission rate on creep behavior of UO_2 at an outside temperature of 1100 C

クリープ速度

—核分裂速度と熱発生の効果—

—スウェリングデータからの推定—

コメント

① 核分裂効果

isothermal な条件下での、クリープ速度に対する核分裂速度の効果を推定している。

この推定は isothermal という条件下で考える為に、 UO_2 よりも UC のスウェリングデータ（参考文献の名は書いてない）を用いている。従って殆んど意味の無い推定であるが、他に炉内実験のデータが無い以上、このレポートの著者が言う様に、この推定計算値を核分裂効果の大きさの目安として使うといった意味での使い道がある。

② 熱発生の効果

BMI で考えている、炉内圧縮クリープ試験に用いる中空円筒状試料内の発熱による温度分布の効果を計算によって推定したものである。

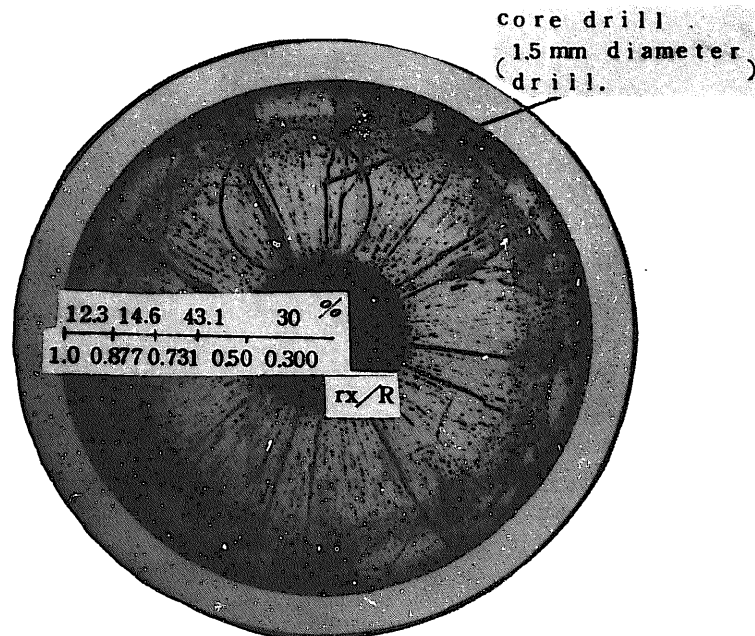
高速炉照射はかなり行なわれているが、Structure change についてのデータは発表が少ない、D. R. O Boyle et al のデータはEBR-IIで照射したVipac 燃料の1例である。組織変化は熱中性子炉照射の場合と差がないようである。BurnupはJEFRの目標に等しい。但し燃料形態が異なる。燃料の健全性その他照射履歴の詳細が少ないのでStructure change以外については不明である。S. A. Rabin et al のデータはEBR-IIによる短時間照射であるがJEFRには十分活用できる。

Irradiation:

1. Structure change

fuel element design parameters and reactor operating for mixed-oxide fuel element studied by.

Fuel material	
Composition (wt %)	UO ₂ -20 PuO ₂
Stoichiometry (O/M ratio)	2.00
Synthesis	<u>Pneumatically impacted</u>
Form	<u>Vibratorily compacted</u>
Fuel element design parameters	
Fuel length (mm)	292
Fuel diameter (mm)	6.45
Effective density (%)	83.3
Jacket material	Type 304 st. st.
Jacket o.d. (mm)	7.52
Jacket wall thickness (mm)	0.533
Fuel element irradiation conditions	
Reactor	EBR-II
Maximum heat rating (W/cm)	560
Maximum jacket temperature (°C)	570
Burnup (fissions/cm ³)	5.6 × 10 ²⁰
(at %)	2.7



Transverse section through the midlength of mixed-oxide fuel element irradiated in EBR-II to 5.6×10^{20} fissions/cm³ at 560 W/cm. Shows central void, columnar grains with metallic inclusions at grain boundaries, equiaxed grain region and original vibratorily compacted structure. Jacket is type 304.

内 容 (1) この実験は EBR-II で照射した (U-Pu)O₂ (20% PuO₂) 中の固体状核分裂生成物の挙動解析である。使用した装置は ARL 社製 EMX である。
1.5 mmφ のドリルで試料を採集して全相試料として EMX で測定, 大きさは金相写真の小円。

コメント (1) Vipac 83.3% S. D では Melt しないで中心 Void を形成
(2) 組織は 4 領域に別れている。

Region 1.	中心 void 領域	径方向 30%
Region 2.	柱状晶領域	" 43.1%
Region 3.	等軸晶領域	" 14.6%
Region 4.	未変化領域	" 12.3%

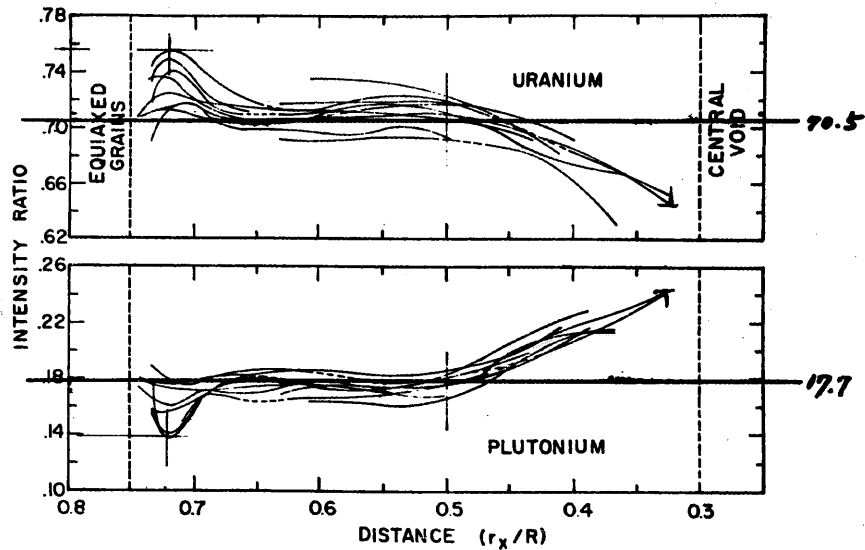
(各領域は同心円になっている。)

- (3) 組織変化は熱中性子炉照射の場合と差がないようである。
(4) 照射位置及び履歴の詳細が少ないので, 定常時か過渡時を代表しているか不明
(5) Burnup としては J E F R の目標に等しい, 但し, 燃料形態が異なる。

D. R. O'BOYLE, F. L. BROWN and J. E. SANECKI

J. Nucl. Mat. 29(1969) 27~42

2. Radial distribution of Uranium and Plutonium



Radial distribution of uranium and plutonium in the UO_2 -20 wt % PuO_2 matrix after irradiation in EBR-II to 5.6×10^{20} fissions/cm at a heat rating of 560 W/cm. Measurements were along eleven different radii while simultaneously recording the uranium plutonium Y-ray intensity. Original concentrations of fissile atoms in the matrix are 70.5 wt % uranium and 17.7 wt % plutonium.

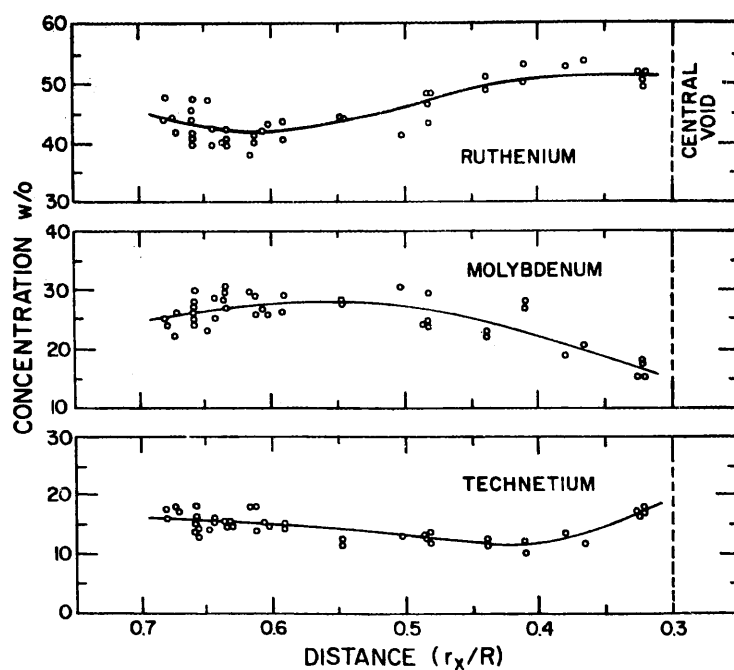
- 結果
- (1) 測定範囲は柱状晶領域である。
 - (2) 上記領域での径方向分布を Fig. 9 に示す。
 - (3) 中心 void より 1.05mm の所で, Pu は約 40% 増加
中心 void より 1.61mm ($\frac{r_x}{R} = 0.5$) の所で中心に向つて u は減少。
Pu は増加。
 - (5) 等軸晶領域の境界近くでは u は増加, 約 7%。
Pu は減少, 約 20%
 - (6) 上図の中の線は, 初期 u, Pu の wt % である。
 - (7) 中心 void 近くの増加は Ruiz et al.⁽¹⁾ and Lauritzen et al.⁽²⁾ によるプルトニウムのセグレーションについての初期観察と一致している。かつ Beisswenger et al.⁽³⁾ による温度勾配下による熱拡散によるプルトニウムの再分布の計算にも一致した。
- コメント
- (1) 温度勾配下によるという点からすると, equiaxed grains 近くでの Pu 減少はおかしい。
 - (2) プルトニウムの分布に差が生じることは高燃焼度を達成する上に問題である。

(1) C. P. Ruiz, J. M. Gerhart, H. W. Alter and L. F. Epstein, Trans, Am. Nucl. Soc. 6. (1963)82

(2) T. A. Lauritzen, P. E. Nowak and J. H. Davies, GEAP-4466(1966)

(3) H. Beisswenger, M. Bober and G. Schumacher, in Plutonium as a reactor fuel (IAEA, Vienna, 1967). P. 273.

3. Radial distribution of fission Products.



Radial variation in ruthenium, molybdenum and technetium concentrations of the metallic fission-product inclusions in the columnar grain region. Intensity ratios of each element were measured simultaneously by means of three independent spectrometers and are corrected for X-ray absorption and fluorescence effects.

- 結論 (1) 柱状晶領域と等軸晶領域に析出している金属 F. P. は Mo, Tc, Ru, Rh と Pd. であり, Mo, Ru, Tc でほぼ 90 wt% を占めている。各々は半径方向で上の図のごとく変化している。
- (2) gray phase の F. P 析出物は等軸晶領域内で柱状晶領域の近くにあり, Ba, Sr, Ce で BaO, SrO で存在, Ba¹⁴⁰ Ce で生成。

Structure Change

内容：(1) EBR-II による短時間照射で、パラメータに O/M , 燃料密度, 充填密度, ペレット対Vipac燃料体, Diametral Gap 及び被覆材をとって Structure change の比較を行なった。(Table 3-1)

(2) 被覆材の Max. neutron dose $\approx 1.2 \times 10^{21}$ n/cm² (>1MeV)

結果：(1) Structure changes (中心Void形成, 結晶成長)は密度, O/M , diametral gapによって差を生じた。(Table 5-5, Fig. 5-7, 5-8, 5-9)

(2) 全てMeltingを生じなかった。(Table 3-2, Fig. 5-10, 12, 15)

コメント (1) 短時間照射(低バーンアップ Max 1800MWD/Te) であるがJEFRには十分に活用できる。

(a) $O/M=1.998$ 93% S. D, Diametral gap 99.1 μ m (F1A pin)は Linear Power 16.1 kw/f (528w/cm)で照射したがMeltingしなかった。(EBR-II の PowerはMax, 45MWtとJEFRに比べて差はない)この点から考えるとJEFRのSpecで行くとLinear Powerを10% Over Power (449w/cm)でも①中心温度は2739°C までならないと考えられる。
②Claddingの温度計算は高い。

Table 3-1 Fuel Design Parameters ^(a) GEAP-5570

Fuel Pin	Fuel Compaction Process	Average Stoichiometry (O/M)	Average Fuel Density (%TD)	Smear Density (%TD)	Average Diametral Gap (inch)	(μ m)	Axial Gap (inch)	Cladding Material
F1A	Pellets	1.998	95.3	93	0.0039	99.1	0.49	347 SS
F1B	Pellets	2.000	96.2	95	0.0025	63.5	0.48	347 SS
F1C	Pellets	2.030	95.6	94	0.0022	55.9	0.002	Incoloy 800
F1D	Pellets	1.978	95.3	93	0.0030	76.2	0.48	Incoloy 800
F1E	Pellets	1.984	89.2	87	0.0030	76.2	0.50	316 SS
F1F	Vi-pac	1.986	85.3 ^(b)	85	N. A.	0	0.31	Incoloy 800

(a) Coprecipitated 20 wt % PuO₂-80 wt % UO₂

Cladding dimensions(nominal)-0.250-inch od×0.015-inch wall.

(b) Smear density.

Structure Change

Table.3-2 Fuel element irradiation Conditions

Reactor DBR-11
 Reactor Power Level Max 45MWt
 Irradiation time 10 days
 Burnup Peak 1800MWD/Te

Fuel Pin	Linear Power (kW/ft)	(w/cm)	Peak Cladding Temperature (Inside Diameter)	
			(F)	(C)
F1A	16.1	528	1086	585.5
F1B	16.4	538	1091	588.4
F1C	16.8	551	1097	591.7
F1D	16.2	531	1088	586.6
F1E	14.8	486	1066	574.4
F1F	16.4	538	1091	588.4

* Based on 192 MeV per fission.

Structure Change

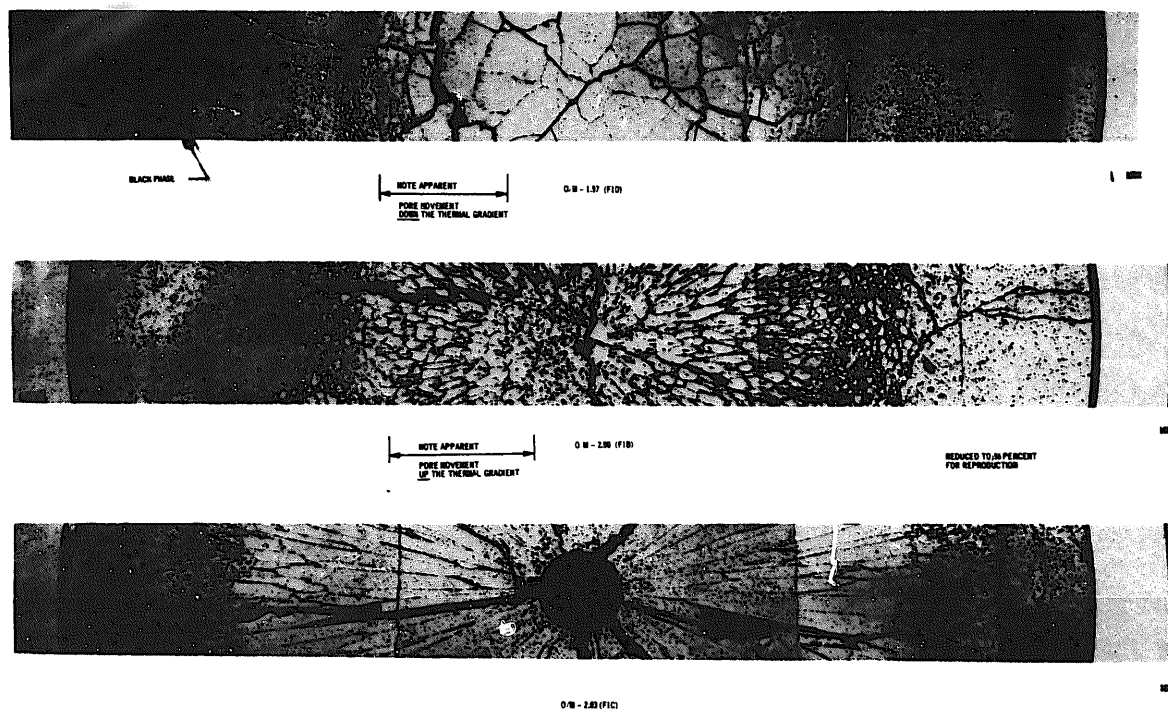


Fig. 5-10. Effect of stoichiometry on microstructure of mixed oxide fuel irradiated at comparable power levels.

Table 5-5 Heat Rating to Cause Structural
Changes in Group 1 Fuel Pins^(a)

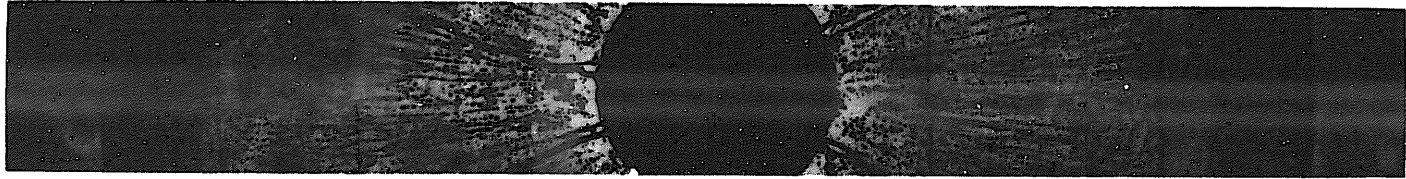
Fuel Pin	Radii of Structural Changes(mils)			$\int_{T_s}^{T_{CGG}} KdT$	$\int_{T_s}^{T_c} KdT$
	Equiaxed Grain Growth	Columnar Grain Growth	Central Void		
F1A	92	60	9.0	26.8	38.1
F1B	82	50	0.5	30.9	38.9
F1C	110	75	8.5	20.9	38.9
F1D	80	40	0	34.0 ^{b)}	>39.2
F1E	98	70	15	20.6	33.8
F1F	110	75	22	20.6	37.1

(a) T_{CGG} = Temperature at which columnar grain growth occurs ($\sim 1800^\circ\text{C}$).

T_c = Center temperature.

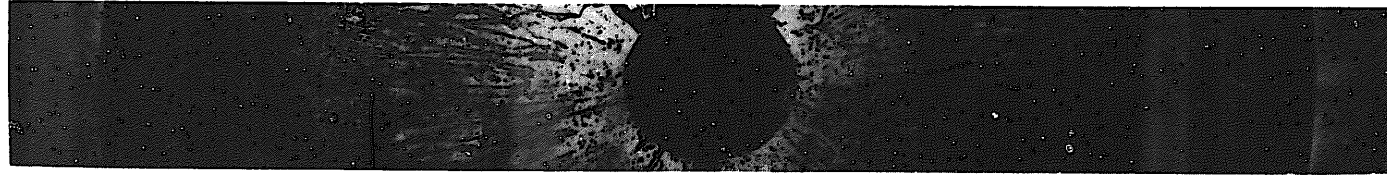
T_s = Fuel surface temperature.

(b) Coarse equiaxed grains.



100x

POWDER



100x

PELLET

REDUCED TO 25 PERCENT
FOR REPRODUCTION

Structure Change

Fig. 5-12 Microstructure of low density fuel irradiated for short time in EBR-11

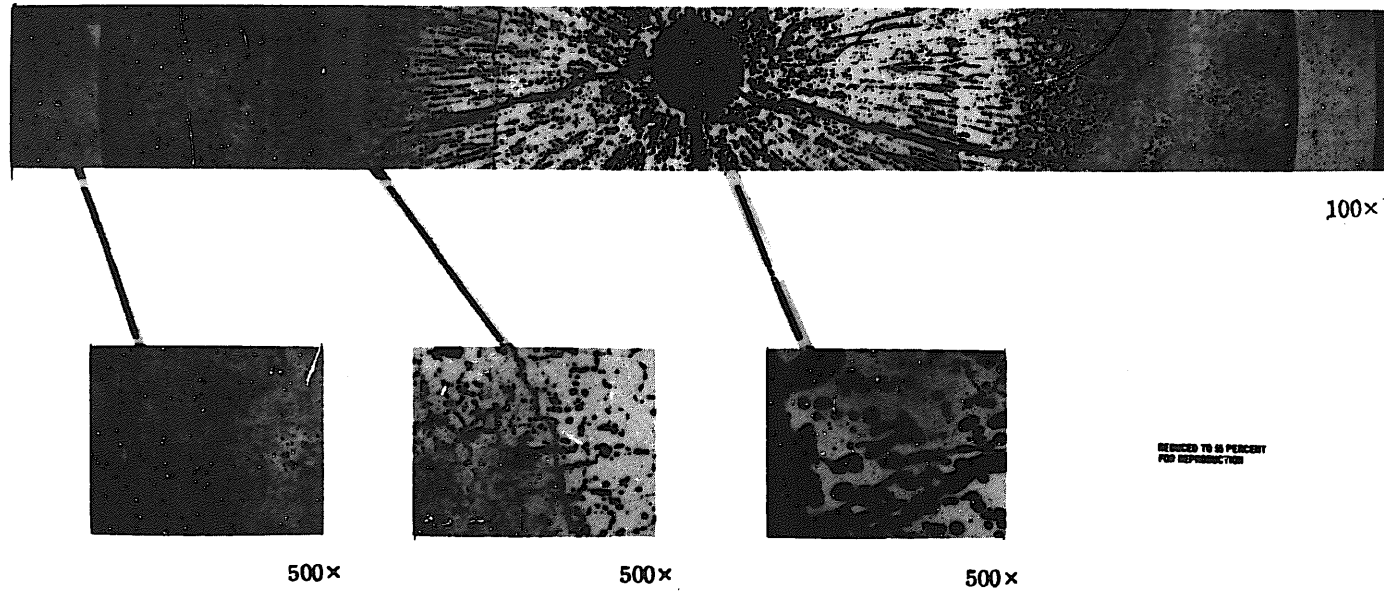
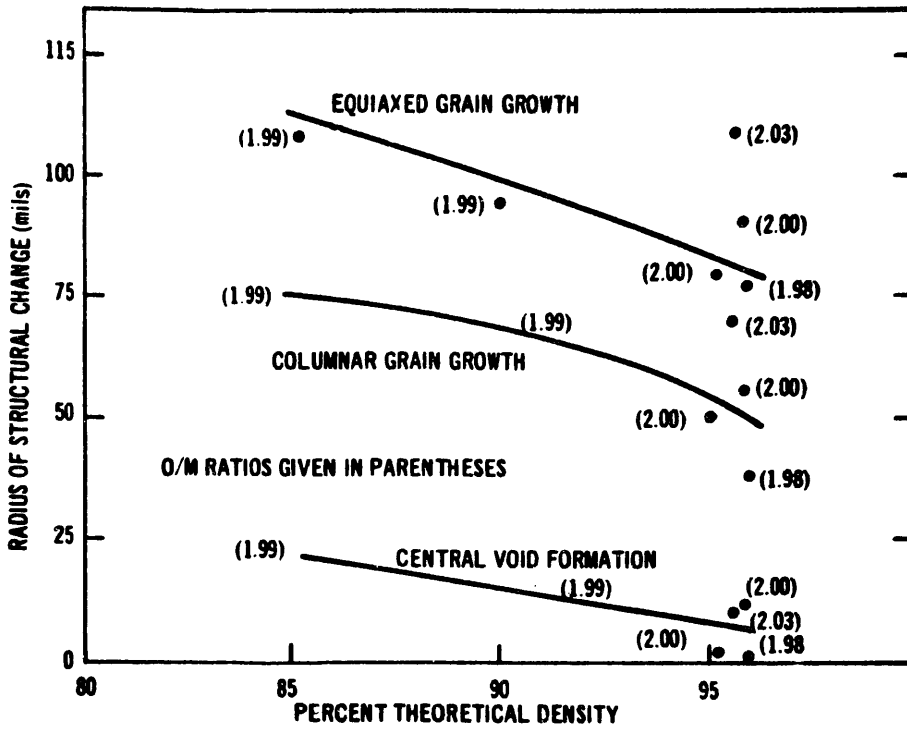
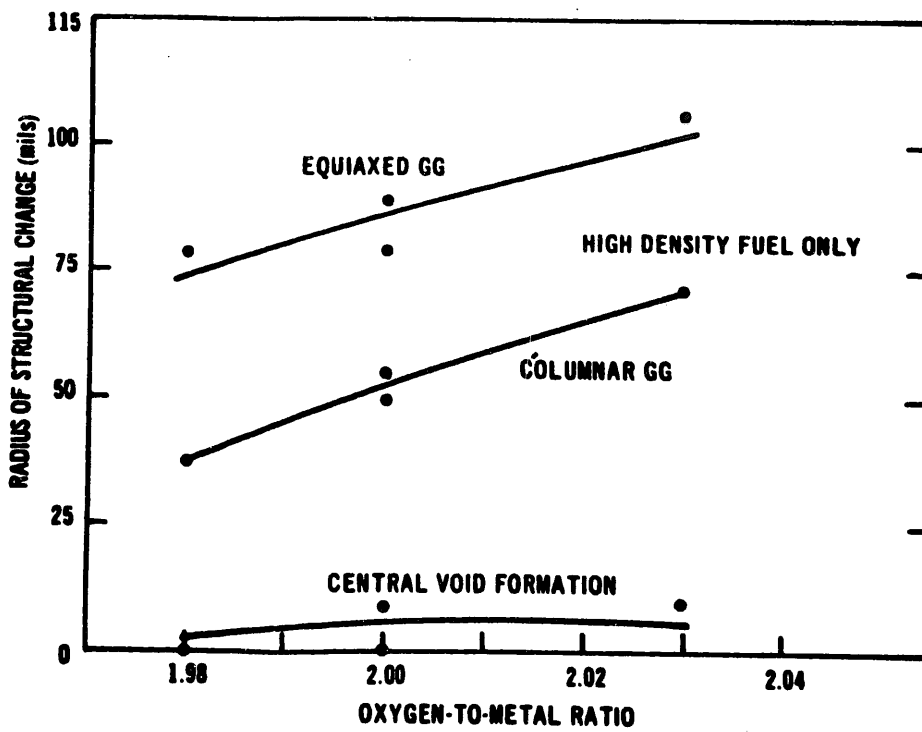


Fig. 5-15 Peak power cross section of fuel pin FIA

Structure Change



Restructuring as a function of fuel density



Restructuring versus oxygen-to-metal ratio

Structure Change

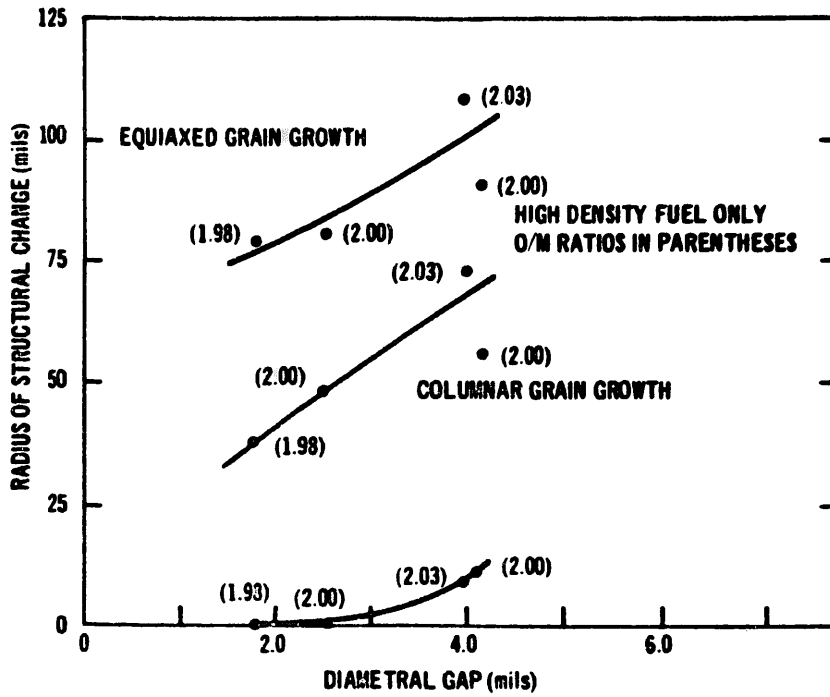


Fig 5-9. Restructuring as a function of diametral gap.

* S. A. Rabin, W. W. Kendall and W. E. Baily SHORT-TERM FAST FIUX (EBR-11) IRRADIATION OF PuO_2 FUEL PINS GEAP-5570 (1967)

Structure Change

高速炉燃料の炉内焼結 Correction Factor (熱計算時の焼結効果)

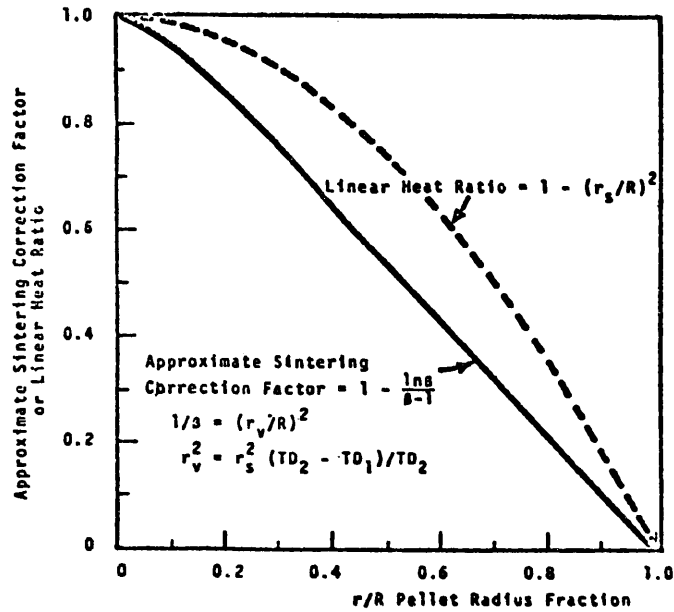


Fig.3 Cylindrical pellet sintering correction factor.

- 目的：** 照射中の酸化物燃料内では、中心空孔や高密度領域が中心部に形成されるので、燃料最高温度が低下する、逆にいえば同一温度を保つなら単位長出力をもっと大きくとることが出来る。この温度低下あるいは単位長出力の増加量を簡単に計算する。
- 理論：** 仮定：高速炉（出力密度分布一定）、定常状態、温度約1800℃以上で燃料密度=98%T.D.になり、1800℃以下は初期値のままとして中心空孔を計算。熱伝導度はBailey-Asamotoの式。

Sintering Correction Factor として照射前と照射中の炉内焼結が進行した状態の単位長出力の比を採用した。（燃料最高温度一定として）

- コメント：** 組織変化（炉内焼結）が進行し切った状態に対して適用可能。計算が簡便に行なえる。数学的な誤りが1.2ヶ所あるが最終結果は正しい。

E. G. Stevens (B. N.W.)

Nuclear Applications 410-416, Vol. 5 Dec. 1968

16 Interaction between Fuel & Cladding

3-11-11

混合酸化物と、被覆材との相互については2つ考えられる。即ち、1) 機械的作用、2) 化学的作用(いわゆる Compatibility)である。

1) についてはあまり多くの文献が得られていないので、抄録した。UO₂に関する文献が代表である。

2) については比較的多くの文献が出つゝある。照射済のSUS内面に異層が多くの場合認められている。XMA観察では、Fe, Ni, Cr, Cs, BaおよびTeが認められている。また Grain boundary には Metallic Iodides の形で、F.P. が移動している。

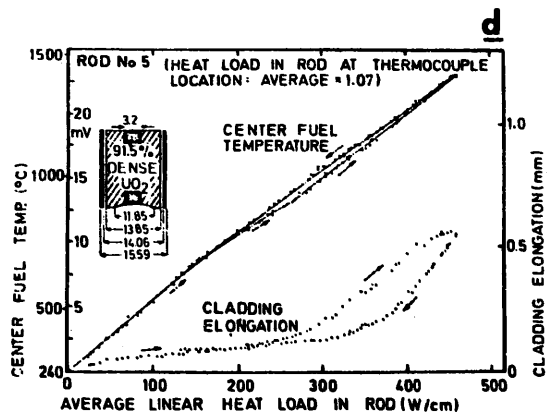
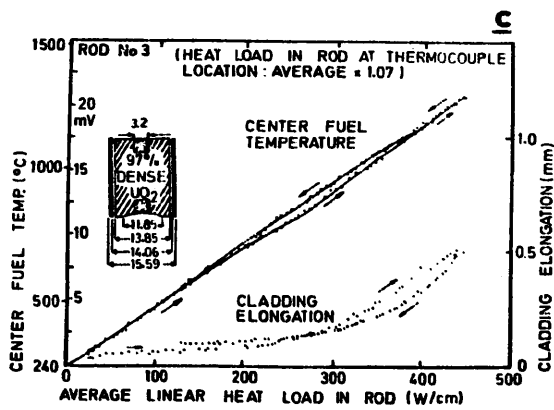
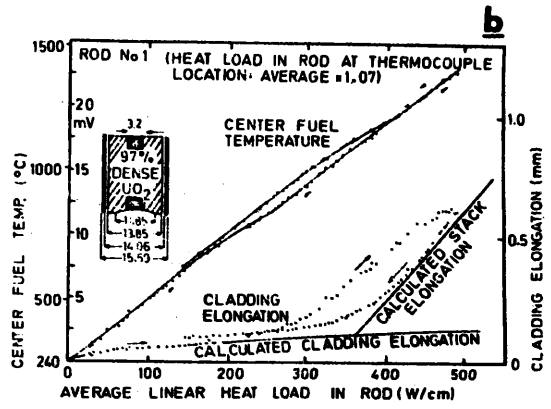
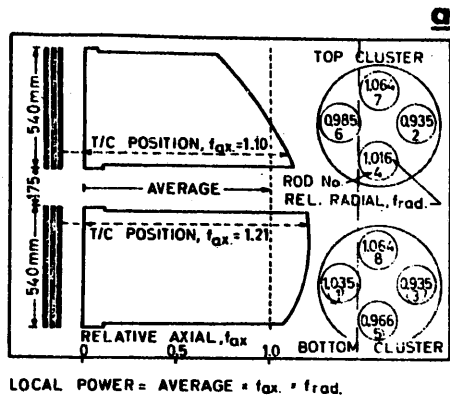
Mechanical interaction between fuel and cladding

試 料：UO₂

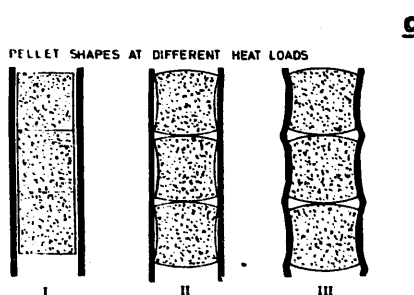
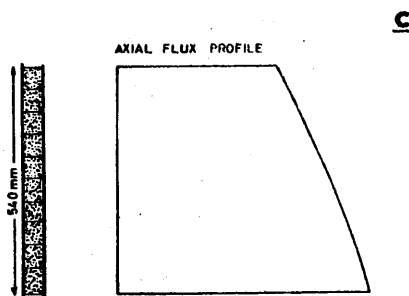
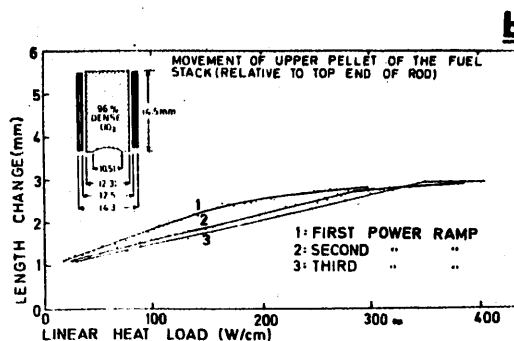
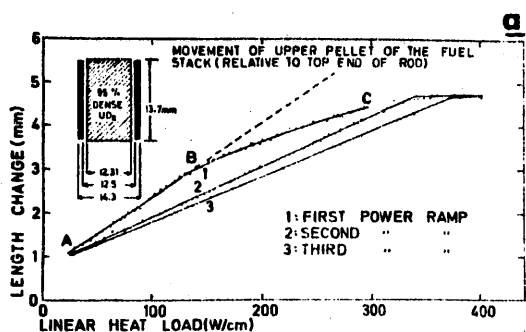
方 法：transducerを用いて fuel stack と cladding の伸びを測定

結 果：Fig.4 は fuel の中心温度および cladding の伸びと線出力との関係を示したものである。～300w/cm以下においては cladding の伸びが支配的であるが、それ以上では fuel stack の伸びが支配的である(b)。Fig.5 は fuel stack の伸びを測定したもので～130w/cmから伸び率が減少しているが、これは d-II,III に示すように fuel と cladding との相互作用が生じるためである。

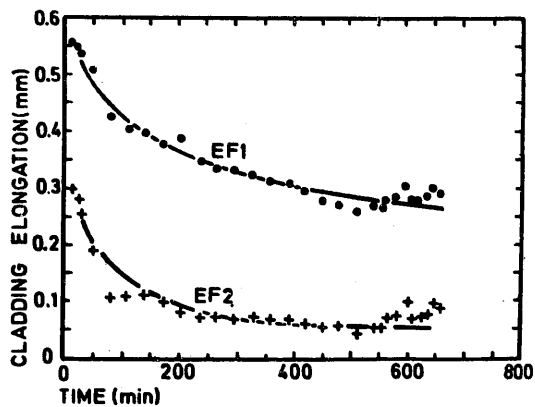
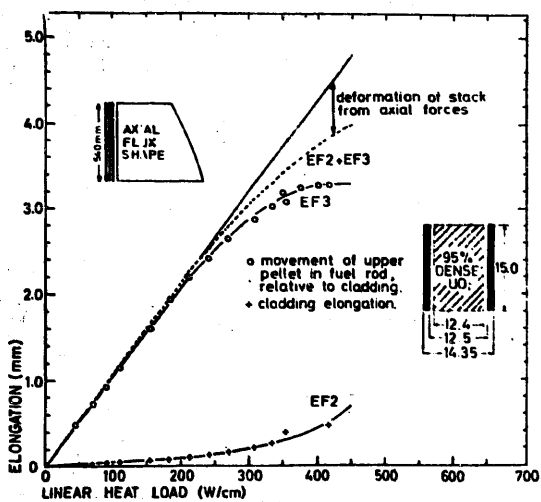
Fig.6 は fuel stack と cladding の伸びを測定したもので、～210w/cmまでは両者共に linear に伸びるが、それ以上では fuel stack と cladding との間に相互作用が生じ～380w/cmにおいては両者の間の伸びの差は無くなる、fuel stack と cladding の伸びを加えたもの(破線)が初期の fuel stack の伸びの外挿直線よりずれるのは fuel stack が cladding より受ける Compression stress のためである。Fig.7 は 525w/cm(±10%)の線出力で～10時間保持したときの cladding の伸びの変化を測定したもので、伸びは時間とともに減少している。



Measured cladding elongation and fuel temperature



Measured fuel stack elongation



Fuel stack and cladding elongation Creep of fuel stack with time

Compatibility

熱力計算

Anselin & Baily : 2.00 を high burnup(数値なし) まで照射すると O_2 を放出し SUS 中の Cr を減少させる。

Markin & Mcleuer : 同じ結果, 但し O_2 は fuel 中の C により CO と CO_2 の形で移動するものと仮定。

Rand & Marlin : Nonstoichiometric fuel は O_2 の勾配ができる。fuel の冷たい部分 (clad の近く) では 2.00, 中心の高温部で 2.00 から最大のずれを示すと予想される。

Christensen : 上記の予想を量的に support

Srear et.al : 熱力計算で $Pu_x U_{1-x} O_{2\pm y}$ ($x=0.1\sim 0.3$, $y=0\sim 0.15$) と metal の compatibility. (600~900°C)

◦ Al, Zr, Ti, V. : fuel を Pu_2O_3 , UO_2 に還元

◦ Ta, Nb, Na (<1100°C), Cr, K (<800°C) : stoic. と hyper の一部を還元
18-8-1SS (1%Mo)

◦ Mo, Fe, W, Co, Ni, Re, Ru, Rh, Pd : Hyper を還元しない。

OUT OF PILE 実験

G.E.₁ : (0.80U-0.20Pu) O_2 の stoic と hyper : { インコイ 800 }
オーステナイト } の compat.

760°C, 1000 h で stoic は compatible

hyper はわずかに酸化

(304 SS で 30 μ 厚)

NUMEC : 1.97~1.98 の (U-0.2Pu) O_2 と 316, ハステロイ X は 1350°C, 24 h で反応なし

Batey et.al : stoic. (0.85U-0.15Pu)

O_2 と refractory metal の反応。

1300~2100°C で Mo, W, Ta, Nb を酸化。

G.E.₂ : W-26% Re tube と (0.17Pu-0.83U) $O_{2.00}$ を dry Ar 中 520 h

1480° で加熱, 反応なし

2,550°C で 11 h 加熱, 粒界 attack で破損

Ta は 2,550°C, 4 h で破損

G.E.₃ : W-26% Re tube : 1.97-2.00 は 13 h, 2,300°C で反応なし hypo のものは

2,770°C, 0.7 h で反応なし

Compatibility

IN PILE 実験

33~36 : 試料 - (0.75U-0.25Pu)O₂, 316, 347 SS

Hypo と Stoic

照射 - 12~13% FIMA

Heat rate 17~20 KW/ft

Clad Temp 560~570°C

結果 - Corrosion なし, 316 では gap 不明の相が 1~2 mil あり, 347 では 1~2 mil の反応相が局所的にあり。

66 : 試料 - Vipac の mixed oxide

照射 - EBR-II 条件不明

結果 - F.P. の Cs が cladding 中に粒界に沿って 3 mil 入りこんだ。

37 : 試料 - Hypo の mixed oxide と Hastelloy, GCFR-type

照射 - 1,000 h, clad 740~820°C

結果 - 2 mil の attach

UO₂-20%PuO₂ SUS304 clad の接触部と被覆材の粒界相中に F.P. の Cs が濃縮されていた。接触部温度 600°C (計算値) のところで粒界相の厚さは 3 μ, 接触部から 200 μ のところでは 0.3 μ である。Cs 濃縮は cladding 中 40 mil の深さ迄みとめられる。Cs がある所では Si と Ni が粒界に移動している。

- U. S. - JAPAN News Letter -

Irradiated M. O. - Cladding Interactions

II By R. Natesh ANL

3.7 a/o (7.6×10^{20} f/cc) 照射の ($UO_2 \cdot 20PuO_2$) と 304SS との反応電顕で調べると、燃料中の金属含有物は SUS の成分である。Fe : 等軸晶と柱状晶領域の境界近くでは純鉄として存在し、低温部ではパラジウムモリブデンと合金を作っていることが多い。

Cr : 燃料-被覆材の境近くのごく浅い部分にある。

Ni : 被覆材の粒界に出てくるが燃料中には入らない。被覆材の破片 : 燃料の外端に付着

接 触 部

燃料-被覆材の接触部で cladding の反応による。深さは 90 μ 程度。この部分には I があるのが特徴で、その他 Fe, Ni, Cr, Cs, Ba, Te がある。

I による金属の移動

cladding から fuel への metal 移動は I によって行なわれる。移動のメカニズムは金属ヨウ化物の熱分解により、金属の Purification と vapor deposition が行なわれる。即ち、照射中に I ができて fuel-cladding の接触部に移動し、cladding と反応してできた金属ヨウ化物が蒸発し、fuel の高温部に移動する。高温部で熱分解して metal を置いてくる。熱力で説明。他の試料でもこの仮説が裏付けられている。

-U. S. - JAPAN News Letter -

Irradiated M.O. - Cladding Interactions : I By Johnson et. al.

ANL