

核燃料物性データー1973年4月～1976年3月

Physical and Chemical Properties of Nuclear Fuels
April ; 1973 ~ May ; 1976

1976年8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。

核燃料物性データー 1973年4月～1976年3月

Physical and Chemical Properties of Nuclear Fuels

April ; 1973 ~ May ; 1976

実施責任者 小泉 益通*

報告者 古尾 広高* , 加納 清道** , 長井修一朗*

立花 利道* , 落合 洋治*

期 間 1 9 7 5 年 4 月 1 日 ~ 1 9 7 6 年 3 月 3 1 日

目 的 高速炉燃料の設計および燃料照射挙動解析のため、必要とする国内外の燃料物性に関するデータの集積、評価

要 旨 1 9 7 3 年 4 月 ~ 1 9 7 6 年 3 月 まで に 報 告 さ れ た 物 性 デ ー タ ー の 集 収 整 理 を 行 な っ た。

* (所 属 部 ・ 課 名) 東 海 事 業 所 プ ル ト ニ ウ ム 燃 料 部 開 発 課

** (現 在) 三 菱 原 子 燃 料 東 海 製 作 所

1) データ集積項目

1. Phase Diagram and Crystal Structure
2. Melting Point and Vapor Pressure
3. Thermal Expansion
4. Thermal Conductivity
5. Specific Heat
6. Gap Conductance
7. F.P Gas Release Rate
8. Absorbed Gas Release Rate
9. Fuel Meat Release and Safety
10. Swelling Rate
11. Young's Modulus
12. Poisson's Ratio
13. Yield Strength
14. Fracture Stress
15. Creep Rate
16. Structure Changes
17. Interaction between Fuel and Cladding
18. Surface Tension
19. Densification

2) 前回までの報告書

SN-841-70-13

SN-843-70-14

SN-843-71-08

N-843-72-02

N-843-73-07

1. Phase Diagram and Crystal Structure

1) U-Pu-W-C相の平衡

2) 測定温度範囲 ~2200°C

3) 試料条件

A : 45 (U_{0.8}Pu_{0.2}) - 10W - 45C (a/o)

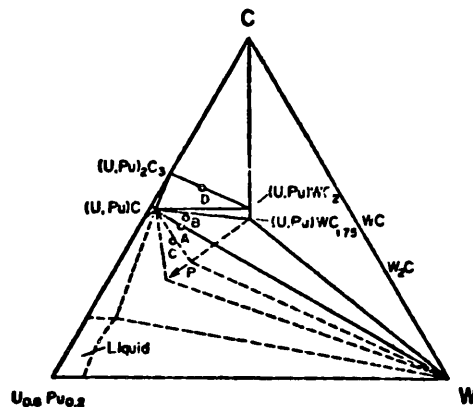
B : 43 (U_{0.8}Pu_{0.2}) - 10W - 47C (a/o)

C : 50 (U_{0.8}Pu_{0.2}) - 10W - 40C (a/o)

D : 34 (U_{1-x}Pu_x) - 10W - 56C (a/o)

(x = 0.05, 0.1, 0.15, 0.2)

4) 結果 下図に示す



A~D indicate alloy specimens prepared in this work; the region (U, Pu)WC_{1.75}-W-C has not been studied. Point P denotes a composition of the peritectic liquid in reaction (1).

Isothermal section for at 1,700°C system (U_{0.8}Pu_{0.2})-W-C

5) 結論

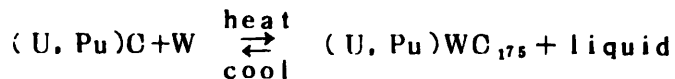
- (U, Pu)C₃をともなった hyper stoichiometricな (U, Pu)C_{1+x} (x>0) は, Wを加えることで組織的に制約を受け, monocarbideとなり, 安定な (U, Pu)WQ₂ 又は (U, Pu)WC_{2.5}を形成する。
- (U, Pu)₂C₃から (U, Pu)Cへの移行は,

$$(1-x)(U, Pu)_2C_3 + W$$

$$\rightarrow (1-2x)(U, Pu)C + (U, Pu)WC_{2-x}$$
 と考えられる。
 (x = 0, or 0.25)

○安定化された燃料組成の大部分は、(U, Pu)C-Wと(U, Pu)C-(U, Pu)WC₂を結ぶ線上にくる。

○[(U, Pu)C+W]もしくは、[(U, Pu)C+(U, Pu)WC₁₇₅+W]中のCは、



の反応に従い、約2100°Cまで安定である。

○その他の元素との両立性を下表に示す。

Eutectic and peritectic temperatures
(°C) for systems containing (U, Pu)C
and some nuclear materials

System	Type of reaction	Reaction temp.(°C)
(U _{0.8} Pu _{0.2})C-W	Peritectic	2,100
(U _{~0.8} Pu _{~0.2})C-Mo	Peritectic	~1,750
(U _{0.85} Pu _{0.15})C-(W, Re)	Peritectic	2,100
(U _{0.7} Pu _{0.3})C-Fe	Eutectic	1,094
(U _{0.7} Pu _{0.3})C-316L SS	Eutectic	1,029
(U _{0.8} Pu _{0.2})C-Cr ₂₃ C ₆	—	~1,500
(U _{0.8} Pu _{0.2})C-Cr ₂₃ C ₆ -Cr	Eutectic	1,290

1. Phase Diagram and Crystal Structure

- 1) $\text{UO}_{2.04} \sim \text{UO}_{2.34}$ の範囲における非化学量論的な UO_{2+x} 単相領域のウラン酸化物の熱力学的性質。
- 2) 測定温度範囲 $500^\circ\text{C} \sim 1100^\circ\text{C}$
- 3) 測定方法 起電力法
- 4) 結果
 - 単相 UO_{2+x} と 2 種類の 2 相共存領域 $\text{UO}_{2+x} - \text{U}_4\text{O}_{9-y}$, $\text{U}_4\text{O}_9 - \text{U}_3\text{O}_{8-z}$ に対する酸素の相対部分モル自由エネルギーを求めた。
 - UO_{2+x} の欠陥構造に対するいくつかの統計的モデルについて述べ、 UO_{2+x} 中の組成による酸素の相対的部分モル自由エネルギーの変化を 2:2:2 欠陥複合モデルに基づいて導いた。

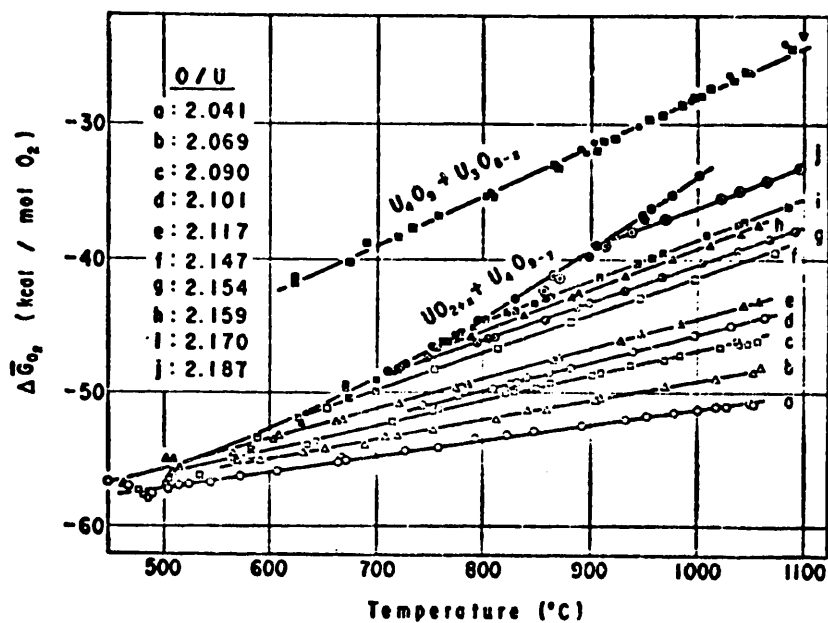


Fig.1 Temperature dependence of the relative partial molar free energy of oxygen in uranium oxides.

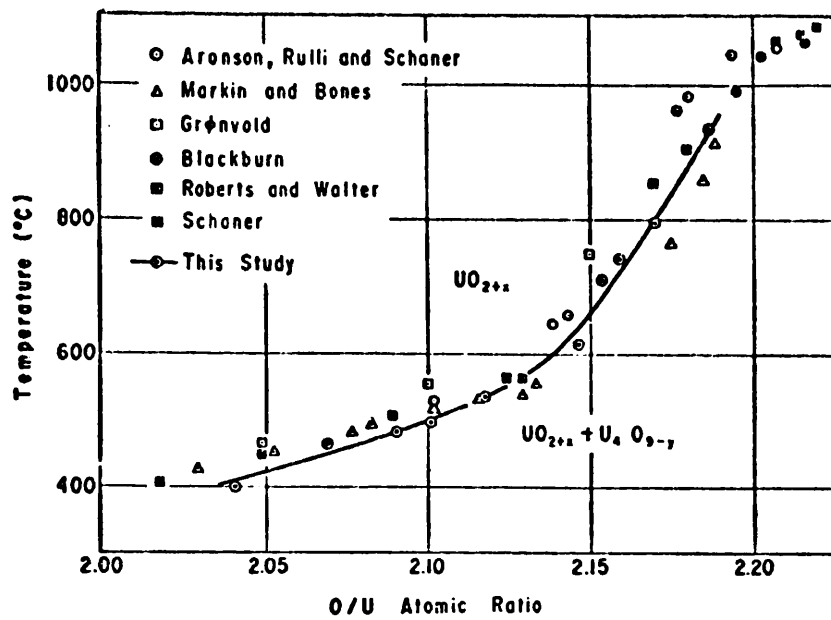


Fig. 2 Phase boundary between UO_{2+x} and $UO_{2+x}-U_4O_{9-y}$.

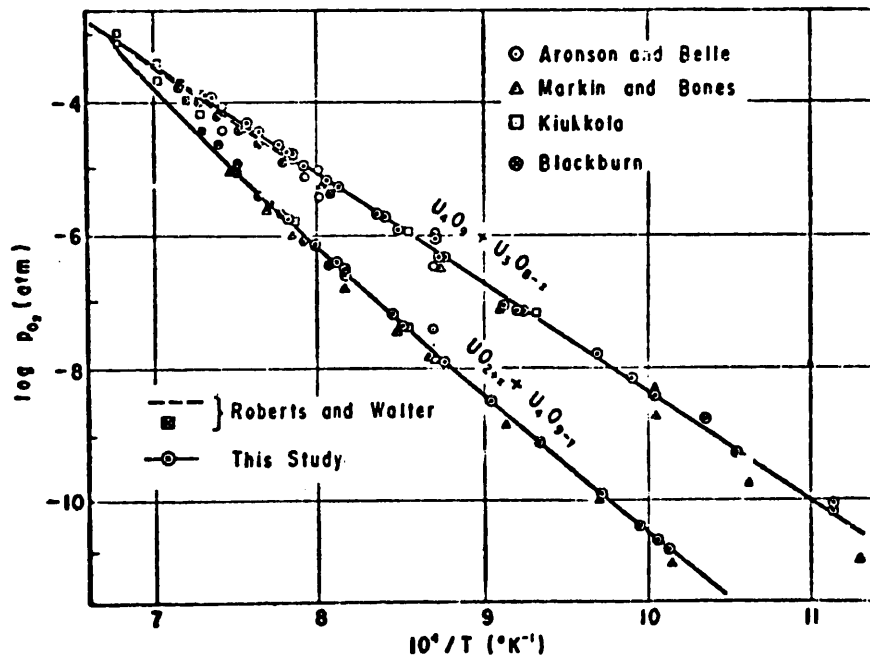


Fig. 3 Equilibrium oxygen pressure for $UO_{2+x}-U_4O_{9-y}$ and $U_4O_9-U_3O_8-z$.

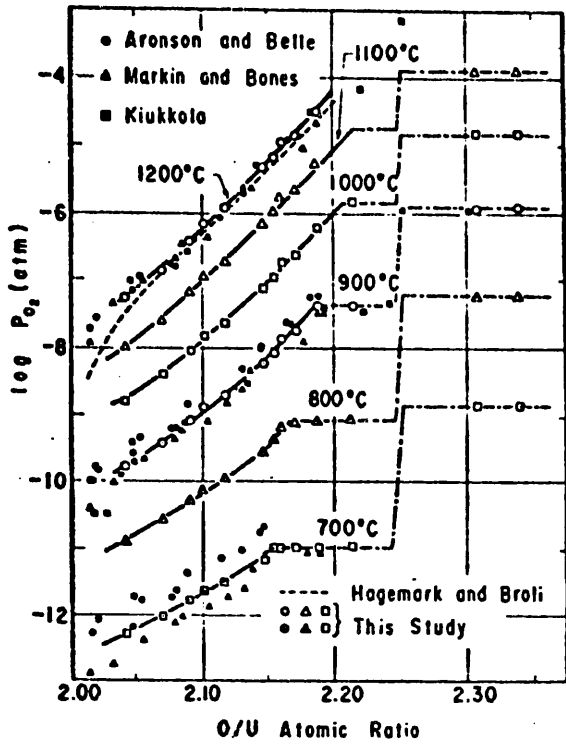


Fig. 4 Equilibrium oxygen pressures for UO_{2+x} .

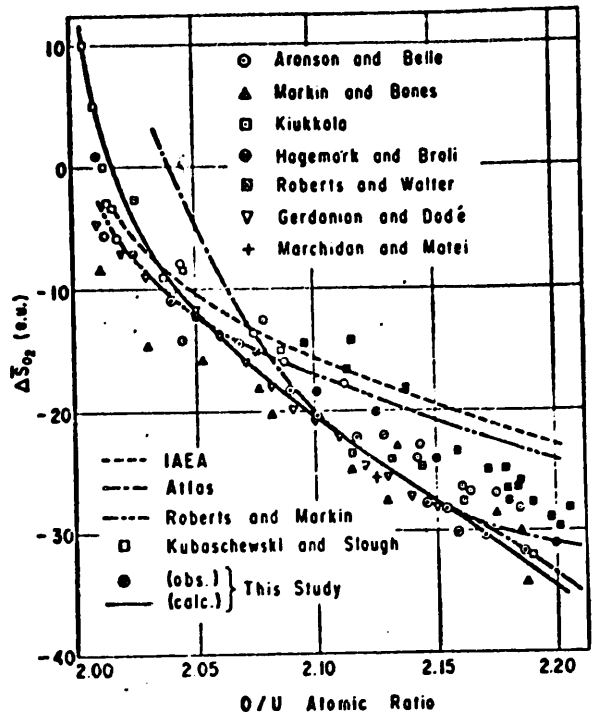


Fig. 5 Relative partial molar entropy of oxygen in UO_{2+x} .

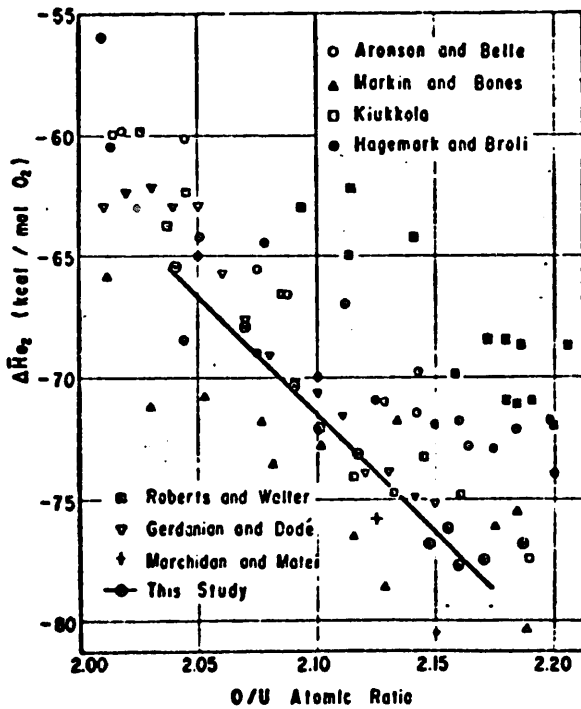


Fig. 6 Relative partial molar enthalpy of oxygen in UO_{2+x} .

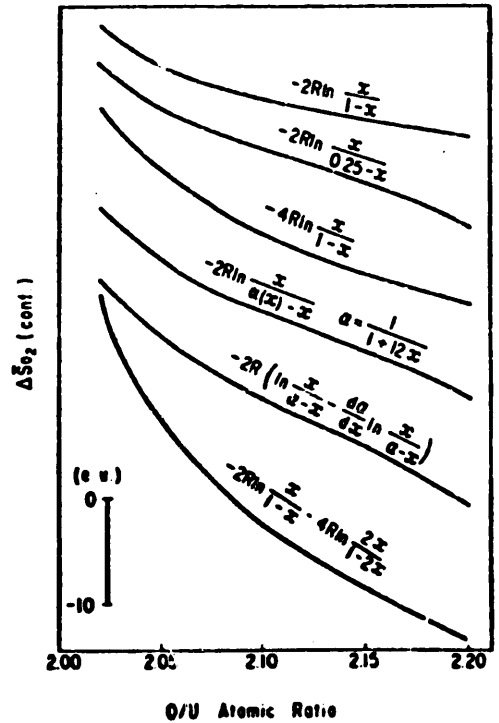
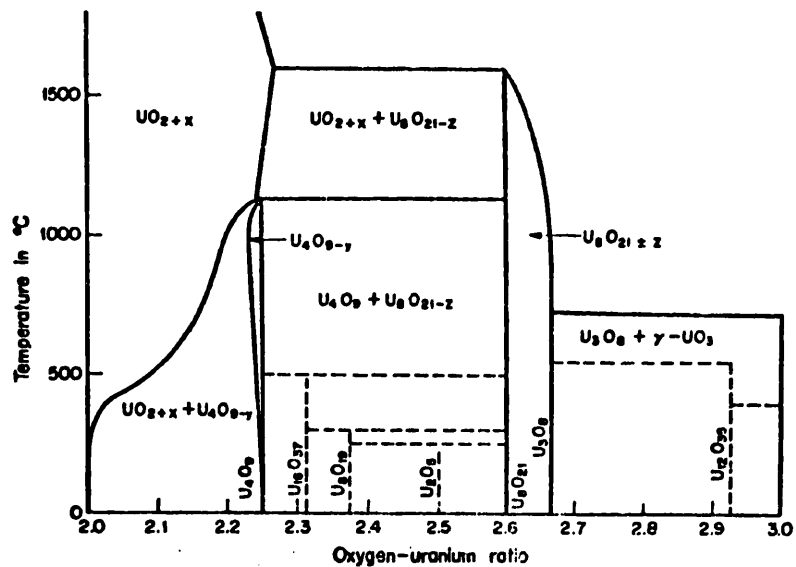


Fig. 7 Variation of configurational entropy term with composition in UO_{2+x} on the basis of the simple interstitial oxygen model.

1. Phase Diagram and Crystal Structure

- 1) ウラン酸化物の結晶構造
- 2) 本報は、報告者自身の実験によるものではなく、各研究者の報告をまとめたものであるが、非常に有益と考えられるので、ここに紹介する。
- 3) 内容 現在報告されているウラン酸化物の相を、立方晶相 (UO_2 で代表される。以下同意義)、正方晶相 (U_3O_7)、斜方晶相 ($\alpha-U_3O_8$)、六方晶相 ($\alpha-UO_3$)に分類し、解説している。
- 4) 記載データ



第 1 図 U-O 系の UO_2 と UO_3 の間の状態図 (Hoekstra ら⁴⁾)

第 1 表 ウラン酸化物の結晶学的データ

化合物	O/U比	結晶系	a	b	c	L°
UO ₂ ⁽⁹⁾	2.0	cubic	5.470			
U ₄ O ₉ ⁽¹⁰⁾	2.25	cubic	21.70(5.44×4)			
U ₁₀ O ₂₁ ⁽¹¹⁾	2.3125	tetra.	5.407		5.497	
U ₃ O ₇ ⁽¹²⁾	2.33	tetra.	5.46		5.40	
U ₆ O ₁₃ ⁽¹³⁾	2.375	monocl.	5.378	5.559	5.378	90.29
U ₂ O ₅ ⁽¹⁴⁾	2.5	ortho.	6.72	3.95	4.13	
U ₃ O ₈ ⁽¹⁵⁾	2.6	ortho.	6.74	3.96	8.26	
U ₃ O ₁₁ ⁽¹⁶⁾	2.625	ortho.	6.751	3.175	8.286	
α-U ₃ O ₈ ⁽¹⁷⁾	2.666	ortho.	4.148	11.966	6.717	
β-U ₃ O ₈ ⁽¹⁸⁾	2.666	ortho.	8.303	11.445	7.069	
γ-U ₃ O ₈ ⁽¹⁹⁾	2.666	hexa.	8.78		9.18	
δ-U ₃ O ₈ ⁽²⁰⁾	2.666	ortho.	8.53	12.46	6.70	
U ₁₂ O ₂₃ ⁽²¹⁾	2.916	ortho.	6.91	3.92	4.16	
α-UO ₃ ⁽²²⁾	3.	hexa.	3.963		4.16	
β-UO ₃ ⁽²³⁾	3.	monocl.	10.34	14.33	3.91	99.03
γ-UO ₃ ⁽²⁴⁾	3.	tetra.	6.89		19.94	
δ-UO ₃ ⁽²⁵⁾	3.	cubic	4.16			
ε-UO ₃ ⁽²⁶⁾	3.	tricl.	4.002	3.841	4.165	98.17, 90.33, 120.28
ζ-UO ₃ ⁽²⁷⁾	3.	ortho.	7.511	5.466	5.224	

3. Thermal Expansion

前回の調査以後、新しい報告はなかった。今回は、今までの集積に記載もれた分を掲載し、さらに現時点で最も信頼できるとされる実験式を示す。

また、熱膨張率について種々の実験データも参考として、記載しておく。

推奨式

$$\alpha = \beta \cdot \left[\frac{1}{T} \{ 4.36 + (X-20) \times 10^{-2} \} \times 10^{-4} \right. \\ \left. + \{ 6.73 - (X-20) \times 5.7 \times 10^{-3} \} \times 10^{-6} \right. \\ \left. + T \{ 2.92 - (X-20) \times 9.0 \times 10^{-3} \} \times 10^{-9} \right]$$

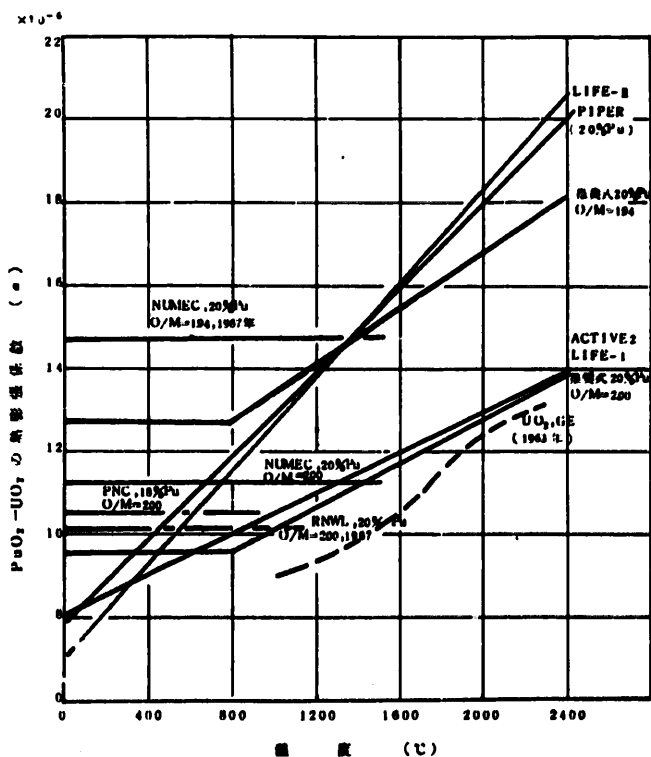
但し、 $\beta = 11.416 - 5.208 \times O/M$

T : 温度 (°C) $800 \leq T < 2000$ °C

X : PuO₂ 含有量 (w%) 但し 800°以下は T=800 とする。

β : O/M 補正係数 (1.94 ≤ O/M ≤ 2.01)

精度 ± 8 %



UO₂-PuO₂ の熱膨張係数の温度依存性

上記推奨式は、B.F.Rubin (G.E. 1970年) 等が整理した式を基本とした。

後の、M.Tokar (U.S. Los Alamos 1973年) による水冷式ディラトメーターでの測定結果とよく一致している。

参考文献 B.F.Rubin: GEAP-13582(1970)19-20

M.TOKAR, A.W.NUTT, and T.K.KEENAN; Nucl.Tech. 17(1973)147-152

J.Roth, M.E.Hubert, J.R.Cherry, and C.S.Caldwell (Numech)

; Trans, A.N.S. 10(1967)457

3. Thermal Expansion

試料：²³⁸PuO₂

(plasma-formed microsphere)

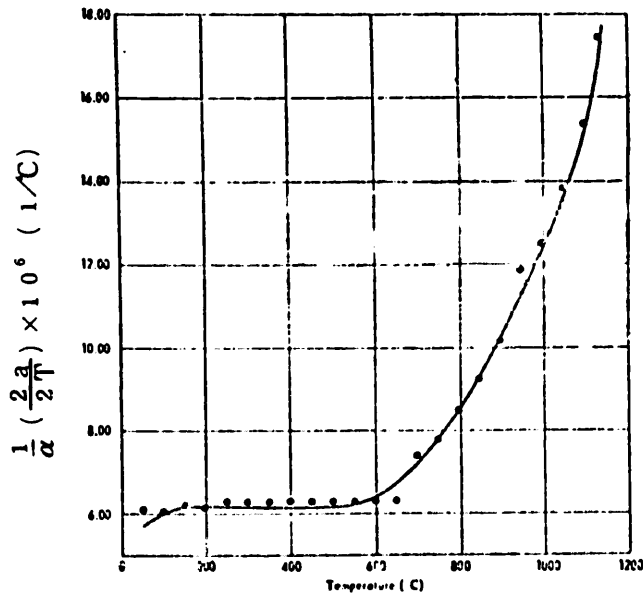
方法：雰囲気～石英管中に酸素ガスシール

温度範囲 14～1505℃

測定 X線

(デバイシェラータイプ)

* 14～1505℃までの温度範囲で相変化は全く見られなかった。また、温度測定は オプティカルピロメーターで測定し、同時に Pt の熱膨張を X線 で測定し、温度を確認した。
 なお、試料加熱体はタンタルホイールを使用している。



Coefficient of thermal expansion, α , of stoichiometric ²³⁸PuO₂ plasma-formed microspheres versus temperature. Solid curve calculated from eq. (5) and points are experimental data.
 a: lattice parameter, T: Temperature

(参考文献) R.J.DESANDO, W.C.WYDER, R.R.ECKSTEN and W.R.AMOS

; J.Nucl Mate 36(1970)241-243

3. Thermal Expansion

試料 : UO_2 (0.25 inch × 2.0 inch ロッド)

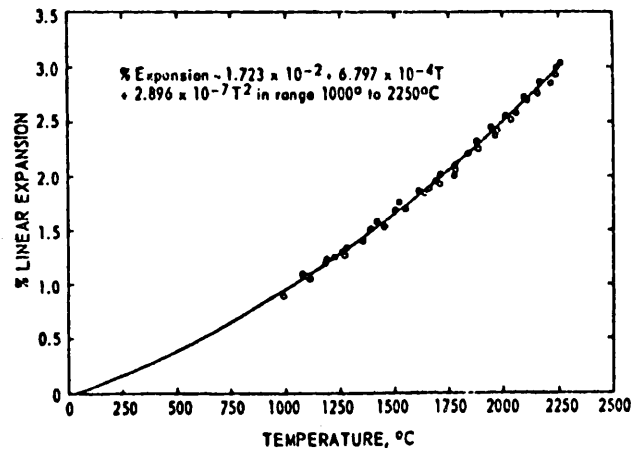
方法 : マイクロメーターテレスコープで変位測定

: 試験温度 ~ (1000 ~ 2250 °C)

オプティカルパイロメータで測定

: 雰囲気 ~ 水素を含む不活性ガス

* なお試料は、1700°Cで焼結加熱後さらに2200°Cに加熱したものである。



Linear Thermal Expansion Versus Temperature for UO_2 .

(参考文献) J.B.Conway, R.M.Fincel, Jr., and R.A.Hein; Trans. A. N.S. 6 (1963) 1

4. Thermal Conductivity

1) 試料 UO_2

O/U : 2.001~2.060

porosity : 4.11~9.03%

2) 方法 heat pulse 法

3) 結果

(a) 500~1600°Kの温度範囲では，熱伝導度は porosity と温度の関数として

$$\lambda_p (\text{W/m } ^\circ\text{K}) = [0.0433 + 0.355P + (201 + 1.47P) \times 10^{-4}T]^{-1}$$

(b) 1600°K以上の温度では通常用いられる輻射伝導による T^3 の項では，測定結果は十分に説明できず，著者らは，電子伝導によるものと考えている。

(c) hyper stoichiometric sample は，1700°K以上で，stoichiometricな組成へ還元されてしまう。

I.C. Hobson , R. Taylor. and J.B. Ainscough , J. Phys. D: Appl. Phys. ,

7, 1003 (1974)

5. Specific heat

1) 試料 $\text{UO}_2 - (20 \sim 25) \text{ wt} \% \text{PuO}_2$

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

2) 適用温度範囲

$$\text{室温} \sim 3000^\circ\text{K}$$

3) 方法

Ogard and Leary, Leibowitz, Gibby らが報告している $\text{UO}_2 - (20 \sim 25) \% \text{PuO}_2$, $\text{O}/\text{M} = 1.98, 1.97$ の試料についてのエンタルピー, 熱容量のデータに対して, 理論的に算出されたアインシュタインの関係式の変形式をあてはめ, 次の式を得た。

$$\begin{aligned} \cdot H_T^\circ - H_{298}^\circ &= K_1 \theta \left(\left[\exp(\theta/T) - 1 \right]^{-1} - \left[\exp(\theta/298) - 1 \right]^{-1} \right) \\ &\quad + K_2 (T^2 - 298^2) + K_3 \exp(-E_D/RT) \end{aligned}$$

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

$$\theta = 539 [\text{deg K}] \text{ (Einstein Temp)}$$

$$E_D = 40.1 \times 10^3 [\text{Cal/mol}] \text{ (defect formation energy)}$$

$$K_1 = 19.53 [\text{Cal/mol} \cdot \text{K}]$$

$$K_2 = 9.25 \times 10^{-4} [\text{Cal/mol} \cdot \text{K}^2]$$

$$K_3 = 6.02 \times 10^6 [\text{Cal/mol}]$$

この式を更に簡単な温度に関する多項式で近似して, エントロピー, 熱容量の温度関数式を求めた。

4) 結果 図-1

$$H_T^\circ - H_{298}^\circ = -4396 + 1254T + 0.00851T^2 - 0.389 \times 10^{-5} T^3 + 0.766 \times 10^{-9} T^4$$

$$C_p(T) = 1254 + 0.0170T - 0.117 \times 10^{-4} T^2 + 0.307 \times 10^{-8} T^3$$

5) 考察

この式を使って計算された値の誤差を表1に示した。

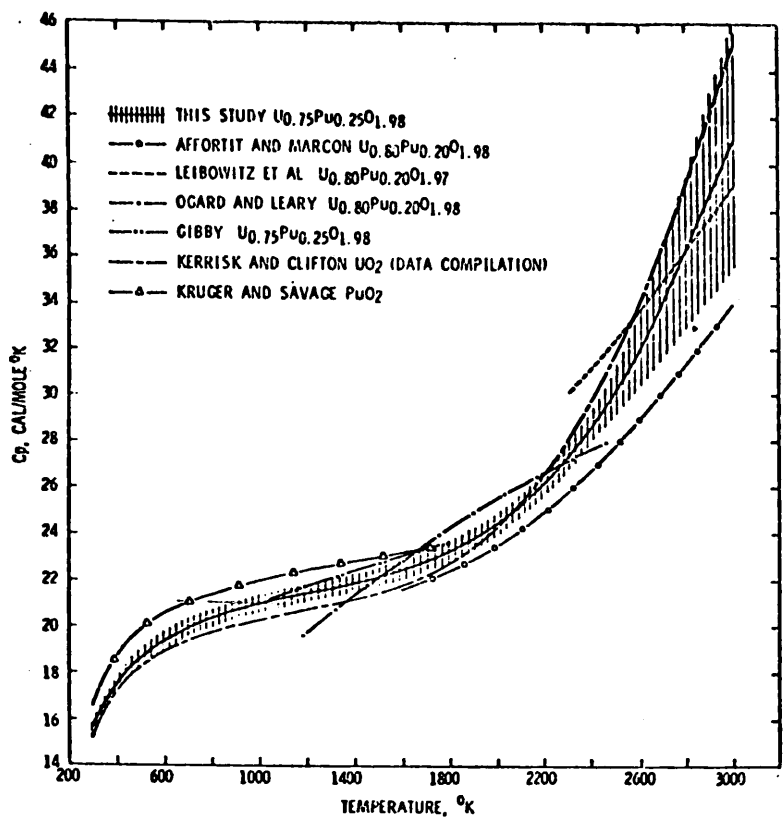


图 1 -- 1 Calculated heat capacity of $U_{0.75}Pu_{0.25}O_{1.98}$ as a function of temperature.

表 1

Confidence limits on the calculated enthalpy and heat capacity

Temp (K)	95% confidence limits	
	Enthalpy	Heat capacity
298	0	0
500	± 0.6 %	± 2 %
1000	± 0.6 %	± 2 %
1500	± 0.6 %	± 2 %
2000	± 0.6 %	± 2 %
2500	± 0.8 %	± 3 %
3000	± 1.5 %	± 1.4 %

6) 文献

R. L. Gibby, L. Leibowitz, J. F. Kerrisk and D. G. Clifton "Analytical Expression for Enthalpy and Heat Capacity for Uranium-Plutonium Oxide."

J. Nucl Mat 50(1974) p155~161

6. Gap Conductance

- 1) 現在まで公表されている 16 の文献, 430 の測定値を基に, 燃料-被覆管の gap conductance を推定した。
- 2) 使用した測定値を表 1 に示す。
- 3) gap conductance を推定するために使用した仮定

(a) UO_2 燃料の熱伝導度…… Lyon の式

$$K(T, D) = F(D) \cdot \left(\frac{38.24}{129.4 + T} + 6.1256 \times 10^{-13} T^3 \right)$$

ここで, T : 絶対温度

$$F(D) : \text{Maxwell-Eucken 係数} = \frac{1.025}{0.95} \left(\frac{D}{1 + (1-D)0.5} \right)$$

D : 密度 (fraction)

- (b) 燃料の restructuring を利用して, gap conductance を推定する場合,
- UO_2 の融点…… 2790°C
 - 柱状晶生長半径…… 1700°C
 - 等軸晶生長半径…… 1400°C

4) 結果

(a) HELIUM-FILLED GAPS (照射初期条件)…… 図 1

$$h_{g,p} = \frac{0.1167 \sqrt{T_{GAP}} - 236}{G/D} + 0.6391 \left(\frac{B}{1+B} \right) + 0.0321$$

$$\text{ここで } T_{g,p} = T_{c1} + 273 + 0.2723 \left(1 + 0.08 \cdot \frac{G}{D} \right) q$$

$$B = \exp \left(-7.0 - 6.3 \frac{G}{D} + 0.035 q \right)$$

q : 線出力 (W/cm)

T_{c1} : 被覆管内面温度

G/D : gap-to-pellet diameter ratio (%)

この経験式は $q = 100 \sim 600 \text{ W/cm}$, $G/D = 1 \sim 4\%$ の範囲で成立する。

(b) 4~6 GWD/MTU の燃焼度に対して, …… 図 2

(b-1) open gap の場合

$$h_{g,p} = 0.1398 + \frac{0.001043q}{G/D}$$

(b-2) closing gap

$$h_{c,p} = 0.12 + \frac{0.001043q}{G/D} + 0.4569 \left(\frac{B}{1+B} \right)$$

D. D. Lanning, C. R. Hann and E. S. Gilbert, BNWL-1832(1974)

TABLE 1. Listing of Documents Examined

<u>Document</u>	<u>Method of Temperature Measurement</u>	<u>Fill Gas</u>	<u>Range of G/D, (%)</u>	<u>Range of W/cm², KW/ft</u>	<u>Total Number of Data points</u>
HPR-80	TC	He	0.4-1.3	100-500(3-15)	24
HPR-10	TC	He	1.5	100-600(3-18)	70
AE-318	TC	He	0.4-1.03	100-600(3-18)	40
Testa et al	TC	He	1.2-2.4	100-500(3-15)	40
RISO-269	TC	He	0.5	100-300(3-9)	3
ONEN	TC	He	1.2	100-500(3-15)	6
CEA-R-2586	TC	He	0.2	200-430(6-13)	24
CEA-R-3538	MS	He	0.7-2.4	450-650(13-20)	11
CYNA-142	MS	He	1.4-5.9	360-785(11-24)	11
		and Ar			
AECL-1676	MS	He	0.5	600-1200(18-36)	6
Belgonucleaire	MS	He	2.1	400-725(12-22)	33
Lepsky et al.	MS	He	2.2	600-1200(18-36)	6
HOR-129	TC		1.5	100-800(3-24)	60
		Fiss Gas			
HAPO-228	TC		0.7-3.8	100-250(3-7.5)	70
AECL-2588	MS	Ar	0.8-5.2	500-725(15-24)	21
AECL-2662	MS	Ar	0.5	500-725(15-24)	10

(a) "TC" indicates temperature measurements by thermocouples, "MS" indicates temperature measurement by microstructural features.

(b) G/D is the ratio of diametral gap to pellet diameter

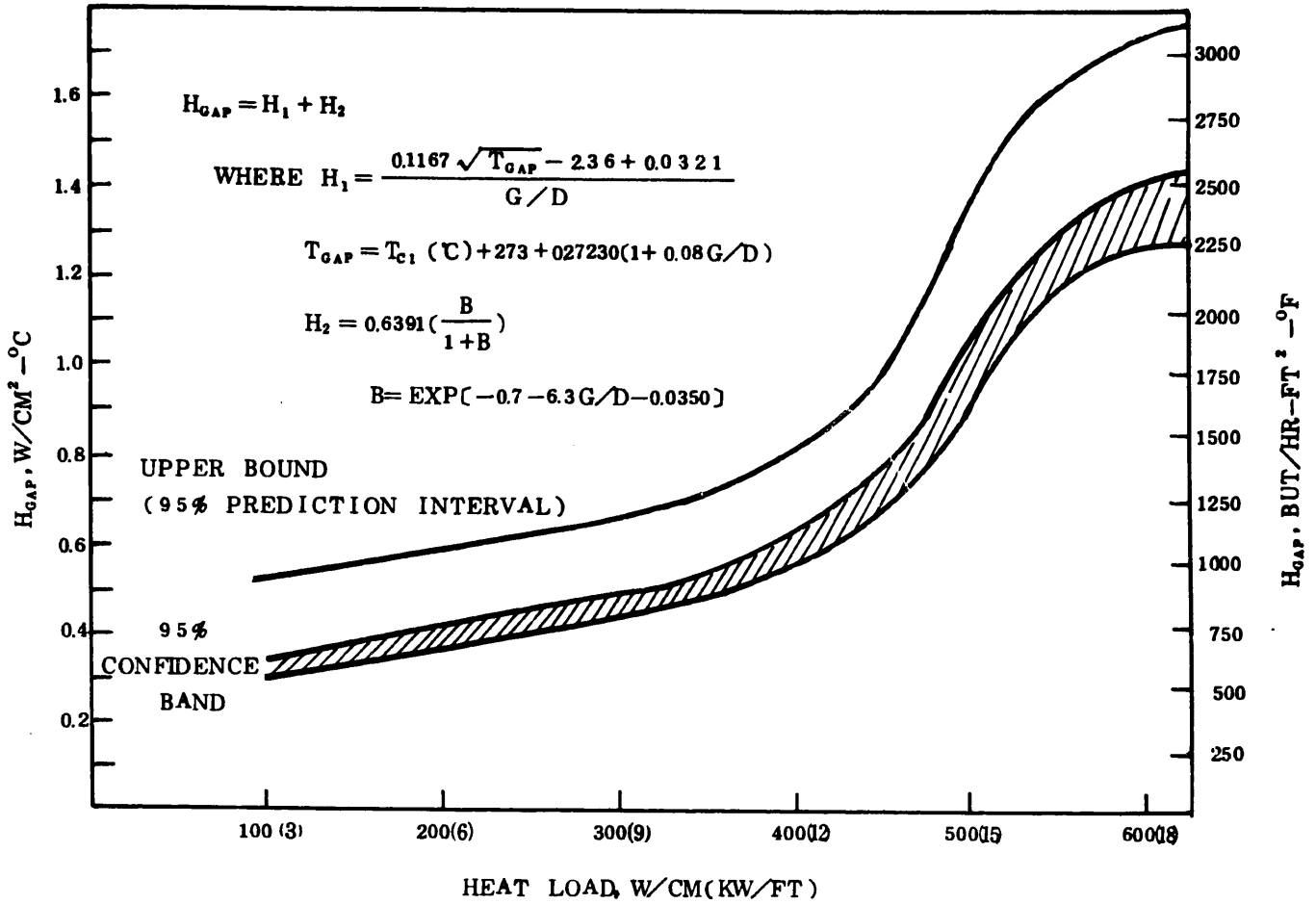


FIGURE 1. Correlation for Helium-Filled Gaps (C/D=1.5%)

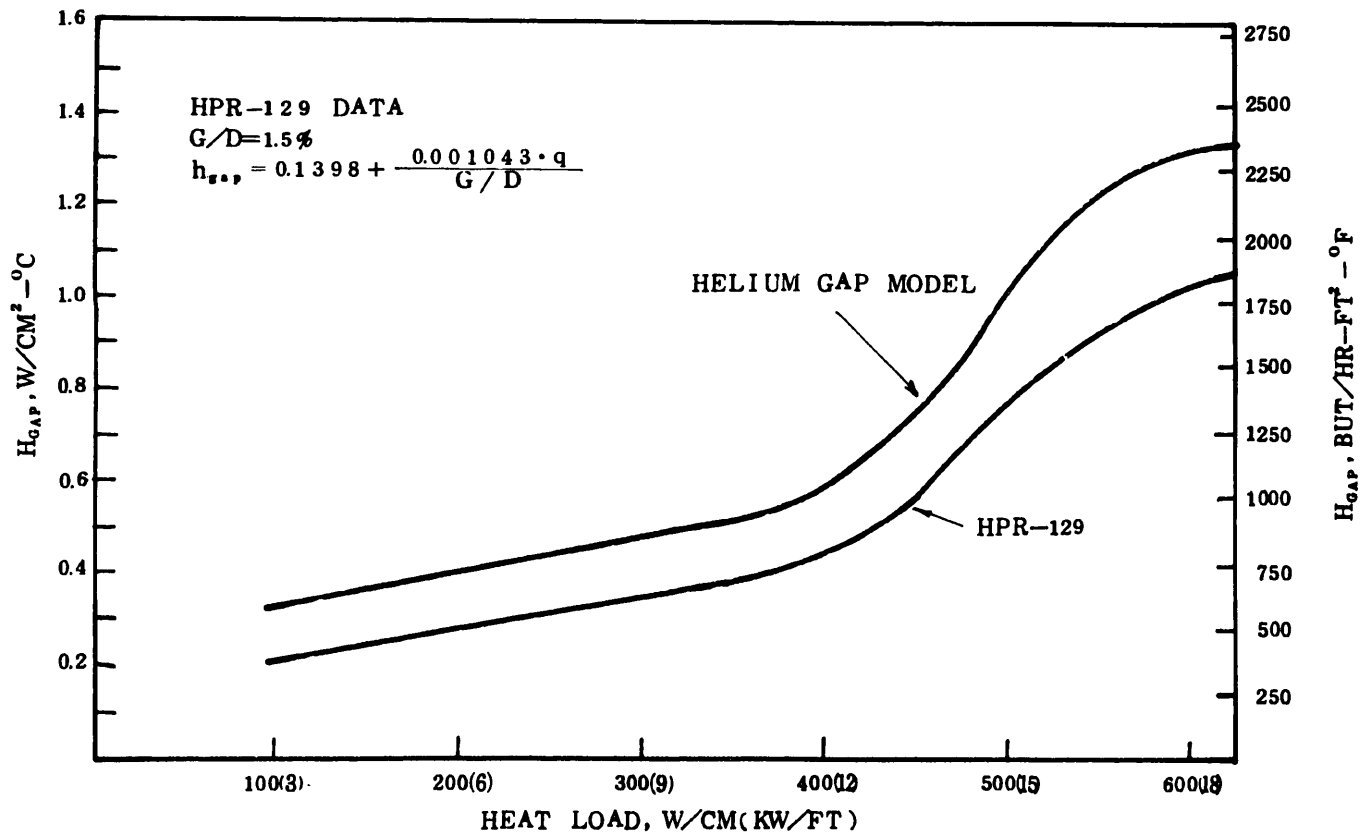


FIGURE 2. Correlation for HPR-129 Data

6. Gap Conductance

1) 試料および方法

in pile で UO_2 燃料と Zr -2 被覆管の gap conductance を線出力の関数として測定した。

2) 結果

(a) gap conductance $H_{g..}$ は一般に

$$H_{g..} = H_0 + \frac{K_{g..}}{g_0 + g} \quad \text{の形式で表わされた。}$$

ここで

$K_{g..}$: 気体の熱伝導度

g_0 : 定数

g : radial gap

H_0 : 定数 燃料ペレットにクラックが入り、燃料-被覆管ギャップが部分的に閉じることにより生ずる定数

(b) ペレット状燃料

gap conductance は power cycle により、燃料にクラックが生ずるため、第1 cycle 目は $H_0 = 0$ であるが、第2 cycle 以後は $H_0 \geq 0$ となる。(この H_0 の値は測定ピンにより異なる。) 従って、start up 時に比較して、第2 cycle 以後は gap conductance は増加する。

(c) Vipac fuel

照射初期に clad 内面に酸化物層 (ZrO_2) が生ずるため、start up 時に比較して、第2 cycle 以後は gap conductance の減少が起こる。

A. Calza-Bini, G. Cosoli, G. Filacchioni, M. Lanchi, A. Nobili, E. Pesce, U. Rocca, and P. L. Rololoni, J. nucl. Mat. 25 103 (1975)

11. Young's Modulus

前回以後、新しい報告は見あたらない。

今回は、今までのデータをまとめて図に示し、さらに現時点で最も信頼できると考えられる実験式を示す。

1969年に A. Pedel が $(PuU)_2O_3$ の弾性定数を測定した。この値は、1968年に A.W. Nutt (ANL) の測定結果の外挿値とよく一致しており、さらに Pedel は同じ方法で UO_2 についても測定しており、この結果も Belle の結果 (TID-7546) とよく一致している。

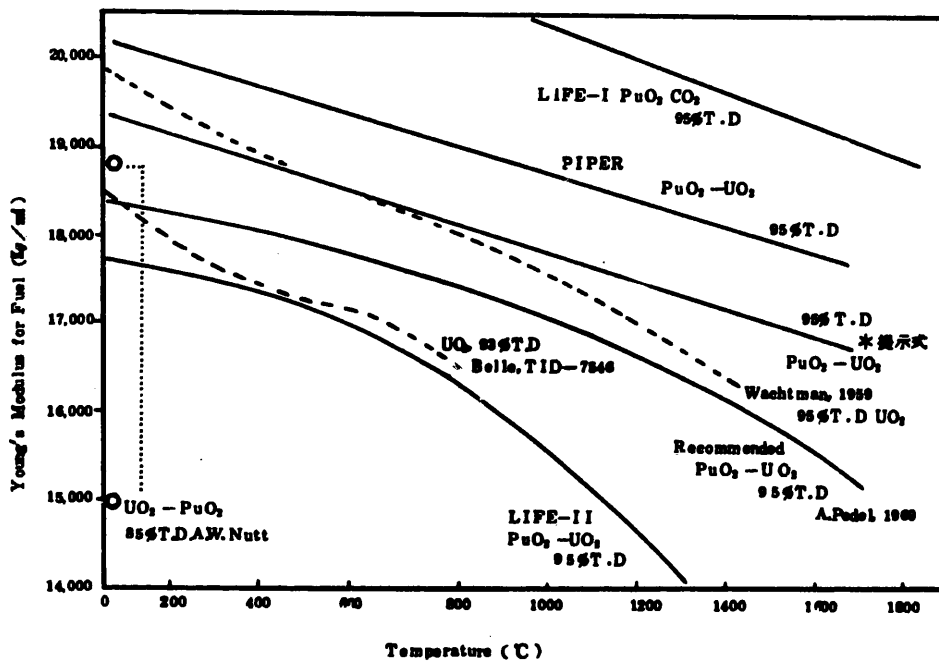
従って、A. Pedel の測定値が現時点で最も信頼できると考えられる。次式は、A. pedel の測定結果を数式化したものである。

$$E = (18500 - 0.875T - 6.25 \times 10^{-4} T^2) \times (0.24 + 0.8D)$$

但し、 E = ヤング率 (Kg/cm^2)

T = 温度 ($^{\circ}C$)

D = 密度割合 ($0.80 \leq D \leq 0.95$)



(参考文献) A. Pedel et CH. DE Novion ; J. Nucl. Mat. 33 (1969) 40

* なお、A.W. Nutt によって、 E 値の O/M 依存性は $O/M=1.97\sim 200$ の範囲で 1% 程度の差しかない実験データが示されている。

A. W. Nutt ; ANL-7460 (1968)

ポアソン比

現在のところ、今だに、(Pu, U)O₂ のポアソン比の測定報告は皆無である。

しかし、燃料挙動計算には、UO₂ のデータを使用しているのが現状であり、また、(PuU)O₂ と UO₂ とでは、ポアソン比の差はあまり考えられない。

UO₂ のポアソン比の測定は現在、B. R. SKELDING(1967年)とS. M. LANG(1960年)によってなされた。両者の測定は互によく一致している。

B. R. SKELDINGの測定結果を示す。

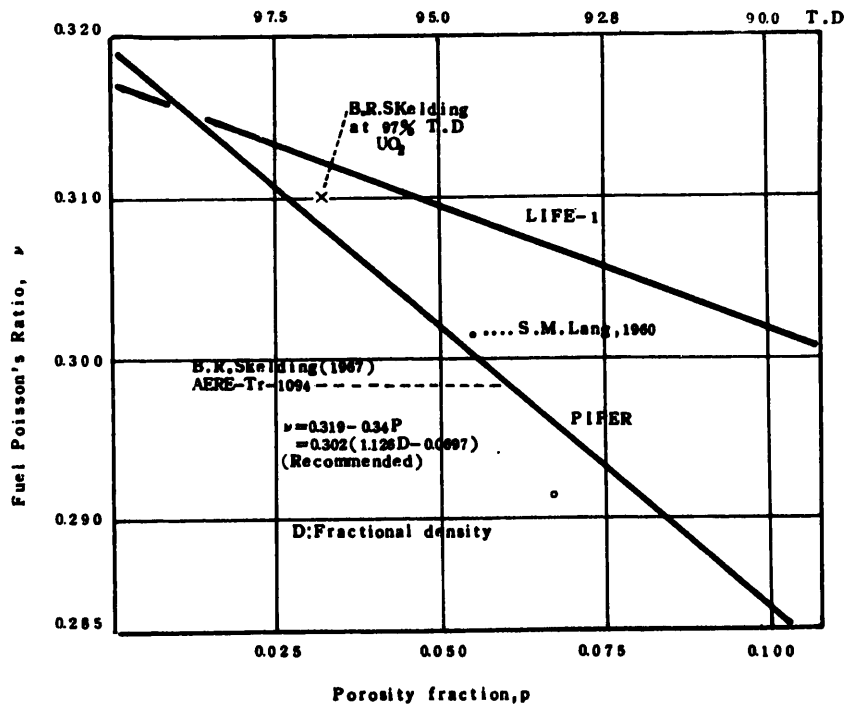
$$\nu = 0.302(1.126D - 0.0697)$$

ν : ポアソン比

D : 密度割合

なお、燃料挙動解析コードの中で使用されているデータを次頁に示す。

(LIFE-1とPIPER)



参考文献 S. M. LANG : U. S. Nat. Bur. Standards Monograph 6, 1960

B. R. SKELDING ; AERE-Tr-1094

なお、燃料のポアソン比は密度によって大きく影響される。(図参照)

13. Yield strength

試料: UO_2

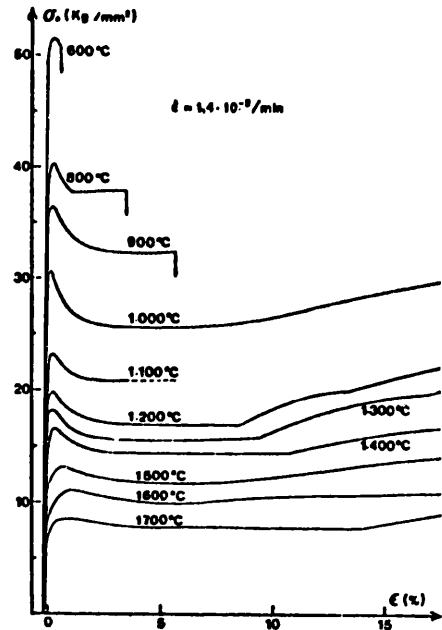
方法: 圧縮

ひずみ速度: $7 \times 10^{-4} / \text{min} < \dot{\epsilon} < 7 \times 10^{-2} / \text{min}$

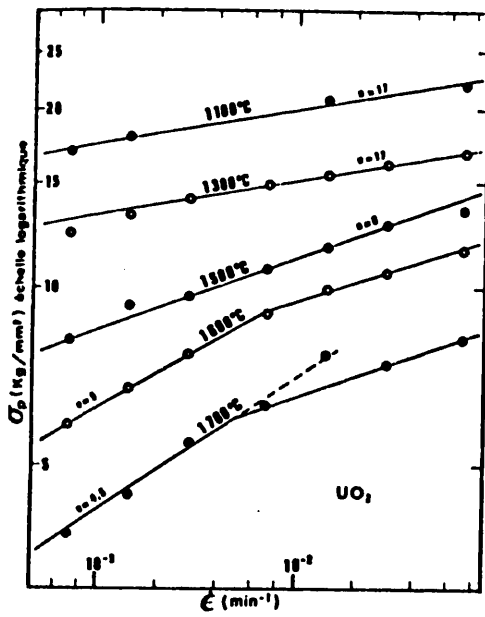
試験温度: $600 < T < 1700^\circ\text{C}$

試料密度: $94 \pm 0.5\% \text{TD}$

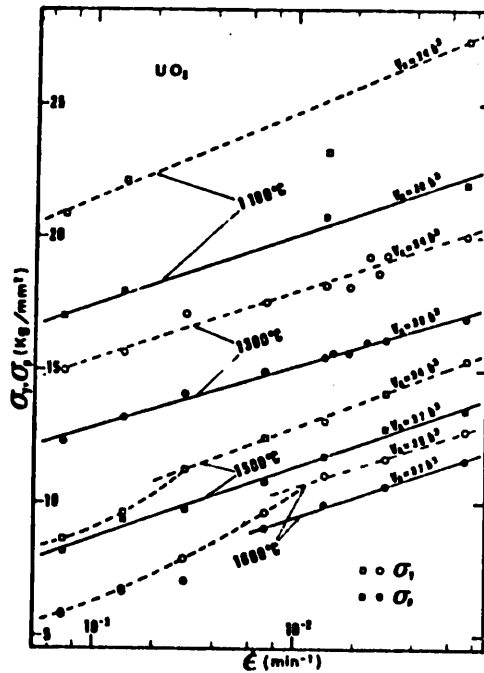
O/U 比: 2000~20015



Courbes effort-déformation de l' UO_2 à vitesse de déformation constante $\dot{\epsilon} = 1,4 \times 10^{-2} / \text{min}$.



Influence de la vitesse de déformation sur la limite élastique inférieure σ_p (échelle logarithmique).



Variation de σ_y et σ_p avec le logarithme de la vitesse de déformation.

(参考文献) Yannick GUERIN; J. Nucl. Mat. 56(1975)61-75 (DECPu, France)

試料 : UO_2

$O/U = 2.01 \pm 0.01$

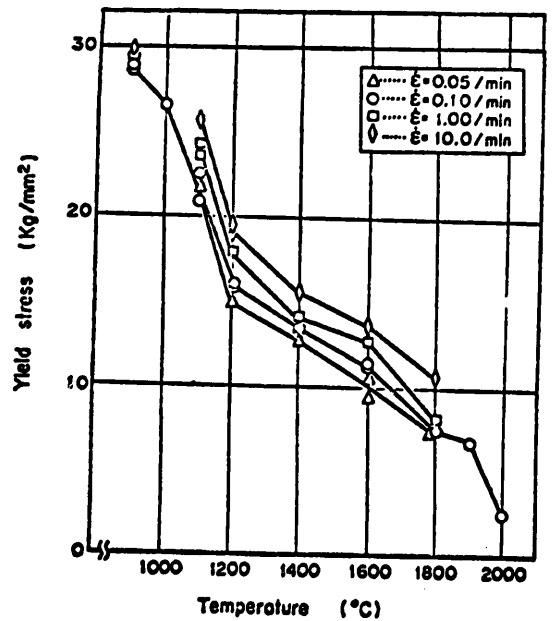
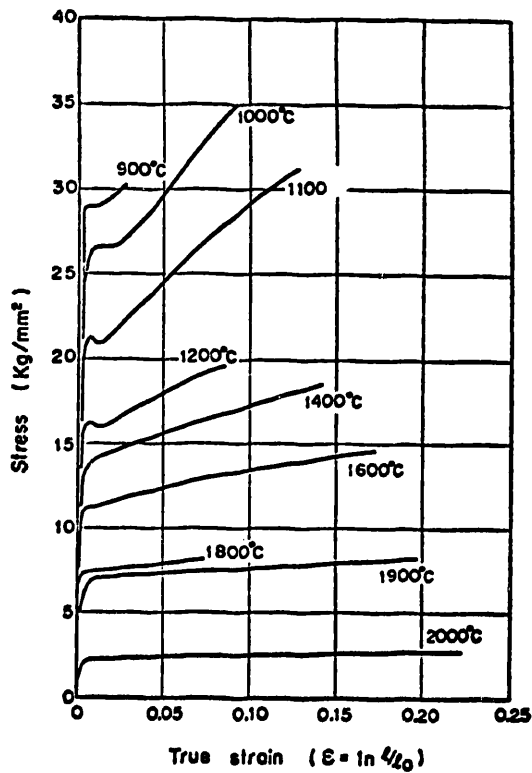
試験方法 : 圧縮

試験温度 : $900 \sim 2000^\circ C$

雰囲気 : 真空中

ひき速度 : $0.05 / \text{min} \sim 10.0 / \text{min}$

試料密度 : $94.0 \pm 1.0\% TD$



参考文献 T. TACHIBANA, H. FURUY ; J. Nucl. Sci. Technol. 13(1976)9
立花, 古屋, 小泉 ; PNCT-841-76-13

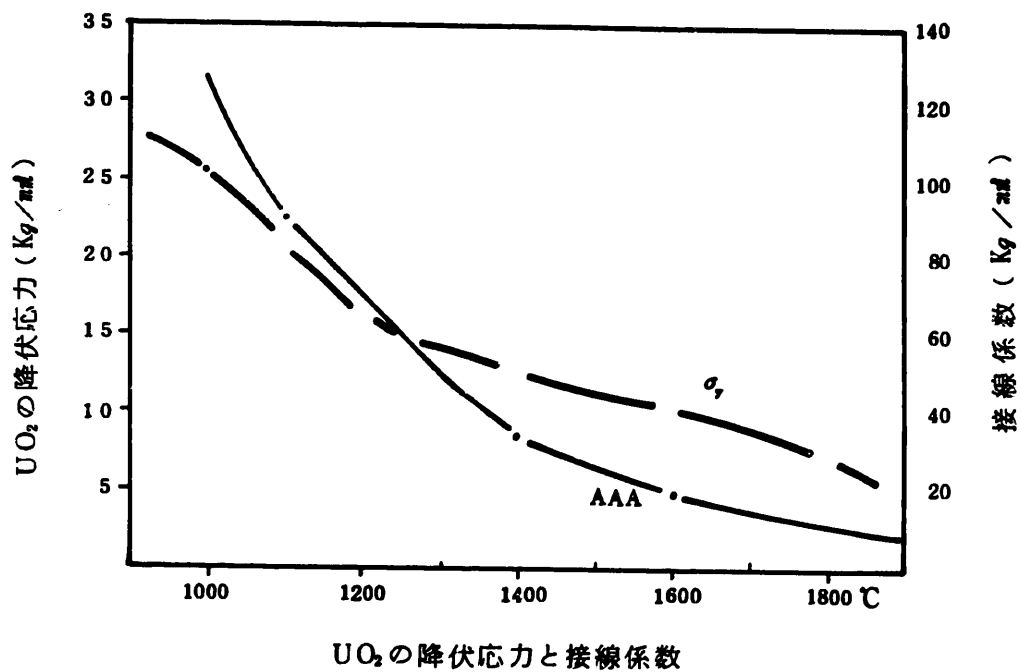
試料：UO₂ 密度 94±1% TD, O/U = 2.00±0.01

方法：圧縮法

試験温度：900~2000℃

ひずみ速度： $\dot{\epsilon} = 0.1 / \text{min}$

試験雰囲気：真空中



(参考文献) ○立花, 大内, 古屋, 小松, 小泉; N 841-73-34 (1973)

14. Fracture stress

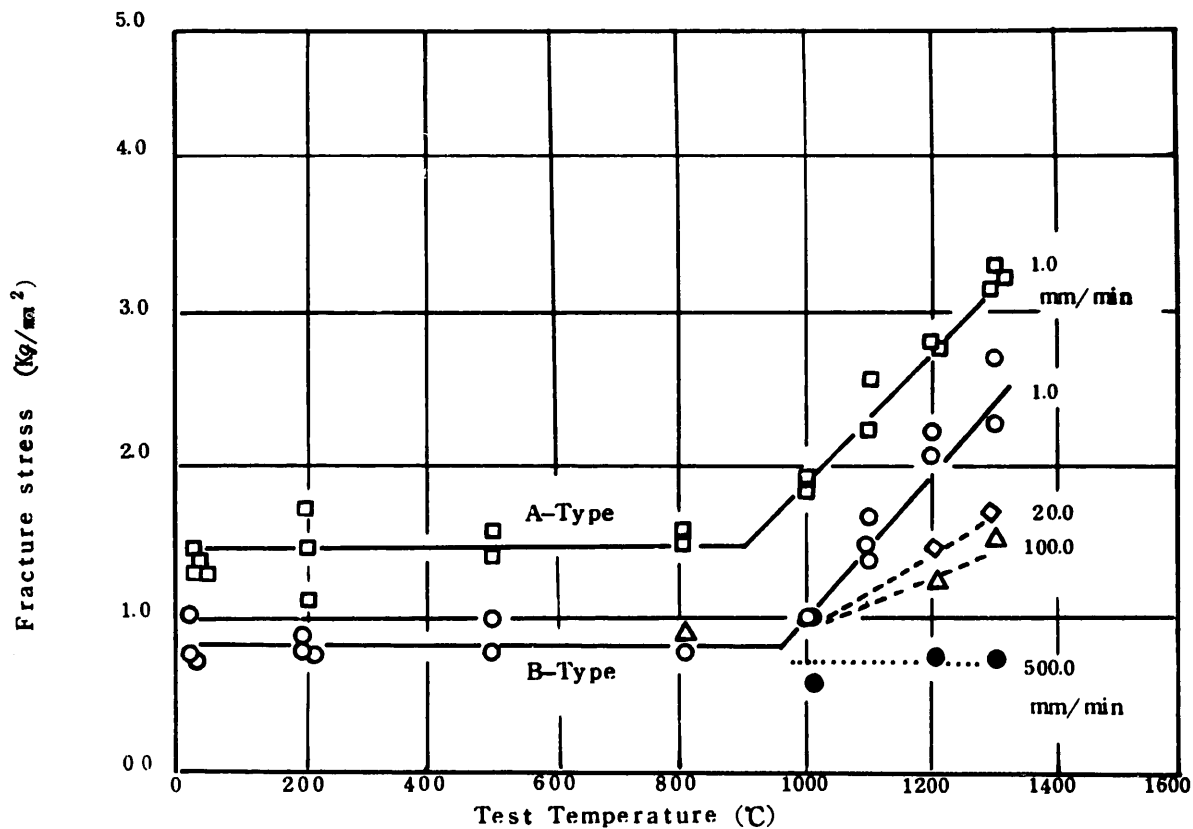
試料: UO_2 O/U=2.01±0.01

密度 94±1% T·D porosity 径 A型試料 60μ
 B型試料 140μ

試験方法: 圧裂法による引張破壊応力測定

試験温度: RT~1300°C

* 1000°C以上の高温になると破壊強さは増大している。しかし、高速で変形を加えて破壊させるときは、破壊強さは温度に依存しない。RT~1300°Cで一定値を示している。



EFFECT OF TEMPERATURE AND STRAIN RATE ON THE FRACTURE STRESS OF UO_2

(参考文献) 立花, 古屋, 小泉; 日本原子力学会 50 年秋の分科会 G11

15. Creep rate

UO₂ - PuO₂ の定常クリープ速度は、熱的クリープと照射クリープとがある。

照射中の燃料クリープ変形は、熱的クリープと照射クリープとの和である。しかし、測定は熱的クリープと照射クリープと分けて行なうのが便利である。

PuO₂-UO₂ について多くの報告がある。しかし、この中で熱的クリープについては、S. K. EVAN 等 (GE) は広い範囲の応力および温度で行なっており、また雰囲気コントロールもよくなされているので、現時点で S. K. EVANS 等のデータが最も信頼できると思われる。

また、照射クリープ (irradiation induced creep) は J. S. Perrin (1972年, Battelle Columbus Lab.) が (UO₂-22%PuO₂) 試料で測定している。(従来の irradiation induced creep は UO₂ 試料を使用)

ここに、S. K. EVANS (GE) と J. S. PERRIN (Battelle columbus) の測定結果をまとめた式を示す。(GEAP-13732, J. Nucl. Mat. 42(1972) 101-104)

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

但し

$\dot{\epsilon}$ = 定常クリープひずみ速度 (h⁻¹)

A = 31 × 10⁷ exp [333(1-D)] exp(356X) / G³

B = 4.37 × 10⁻⁴ exp [103(1-D)] exp(356X)

C = 9.8 × 10⁻²²

σ = 応力, psi (1,000 ~ 10,000)

R = 1.987 cal/mole °K

T = 温度 (°K)

D = 密度割合 (0.88 ~ 0.95)

G = 初期平均結晶粒径, μ (4 ~ 35)

X = プルトニウム含有量 (Pu/Pu+U), (0.2 ~ 0.3)

F = 核分裂束. (Fission/cm²-s)

β = 118 (o/M - 1.9415), (1.95 ≤ o/M ≤ 200)

15. Creep rate

試料： $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_2$

O/M=1.95, 2.00

応力：1,000~6,000 psi

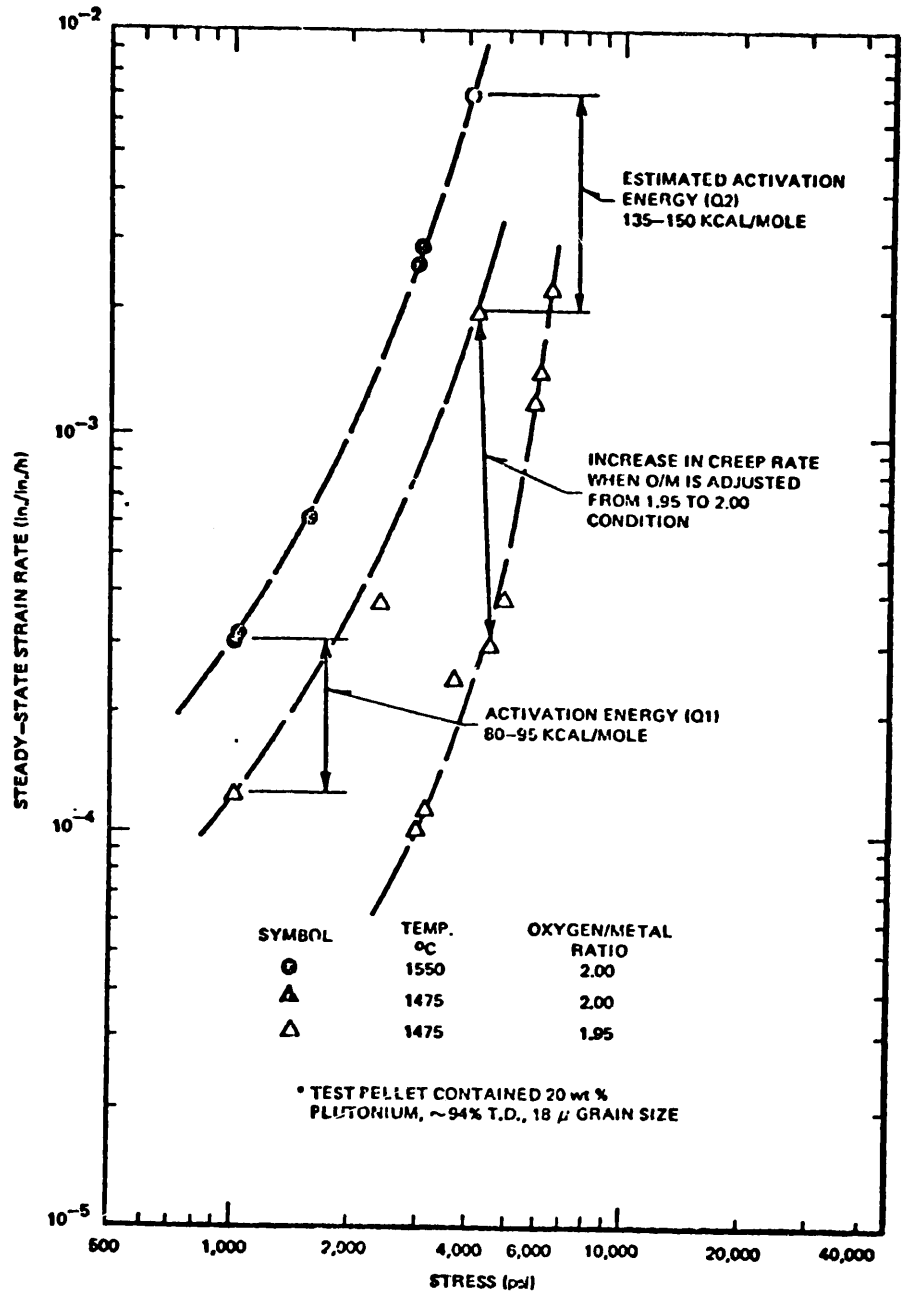
(圧縮)

雰囲気： $N_2 - 6\%H_2$

結晶粒径：18 μ

密度：94% T·D

(炉外試験)



Variation in Steady-State Creep of $(U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2-x}$ with Stoichiometry

(参考文献) S.K.EVANS, P.E.BOHAHOY, and R.A.LASKIEWICZ; GEAP-13732

(1971)

15. Creep rate

試料: $UO_2-22wt\% PuO_2$

密度 9.5% T·D

(He 8% - H_2 中で
1550°C × 4 hr 焼結)

中空ペレット

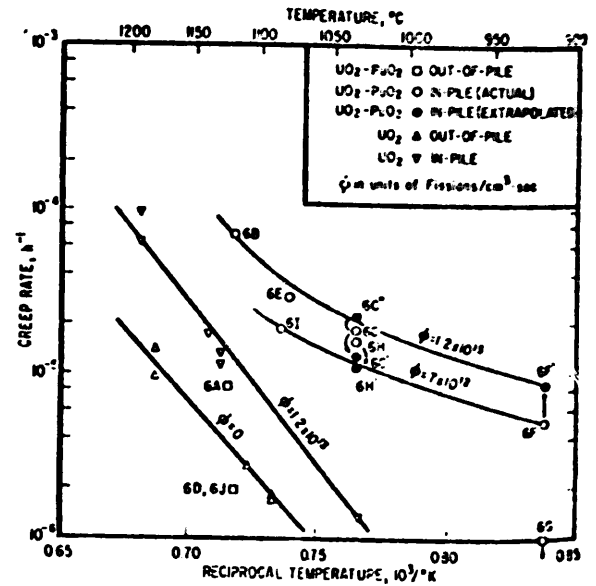
使用炉: Battelle Research Reactor

Peak thermal flux = 4.5×10^{13}
($N/cm^2 \cdot sec$)

Peak fast flux = 2×10^{13} (>0.1
MeV) ($N/cm^2 \cdot sec$)

試験雰囲気: 高純度 He

方法: 圧縮クリープ



Creep rate versus reciprocal temperature for in-pile and out-of-pile tests of UO_2 and UO_2-PuO_2

Summary of out-of-pile and in-pile creep experiments

Test no.	Fission rate ^{a)} (fissions/cm ³ ·sec)	Measured temperature ^{b)} (°C)	Effective temperature ^{c)} (°C)	Stress (psi)	Creep rate ^{d)} (h ⁻¹)
6A	0	1125	1125	2000	8.5×10^{-6}
6B	1.2×10^{13}	1125	1120	2000	7.2×10^{-6}
6C	1.0×10^{13}	1040	1035	2000	1.9×10^{-5}
6D	0	1120	1120	2000	2.0×10^{-6}
6E	1.2×10^{13}	1085	1080	2000	3.0×10^{-5}
6F ^{e)}	7×10^{12}	915	920	2000	5.5×10^{-6}
	7×10^{12}	910	915	2000	4.1×10^{-6}
6G	0	920	920	2000	< 10^{-6}
6H	1.0×10^{13}	1040	1035	2000	1.3×10^{-5}
6I	7×10^{12}	1085	1085	2000	1.9×10^{-5}
6J	0	1120	1120	2000	2.0×10^{-6}

^{a)} Fission rate calculated from measured neutron flux using a one-dimensional thirty-group integral transport code (THERMOS).

^{b)} Temperature measured with foil thermocouple on specimen outer diameter at axial midplane.

^{c)} Effective temperature is the temperature at which an isothermal specimen would have the same overall measured creep rate, assuming no in-pile enhancement of creep rate. The difference between the measured temperature and the effective temperature is a function of specimen length, fission rate, and actual temperature.

^{d)} Creep rates calculated by statistical analysis using a regression analysis computer code.

^{e)} The two creep rates for 6F were determined before and after a reactor scram.

(参考文献) ○ J. S. PERRIN; J. Nucl. Mat. 42(1972)101-104

○ R. A. ROBINSON, S. J. BASHAN and J. S. PERRIN; Nucl Eng and Design, 24 (1973)242-249

15. Creep rate

照射クリープの定数値をまとめて次す。

(A)

$$\dot{\epsilon}_{\text{irrad}} = A \cdot \sigma \cdot F$$

$\dot{\epsilon}_{\text{irrad}}$: Irradiation induced Creep rate (h^{-1})

σ : Stress (psi)

F : Fission rate ($\text{N/cm}^2 \cdot \text{sec}$)

年 代	試 料	定 数 (A)	文 献
1970	UO ₂	208×10 ⁻²¹ 364×10 ⁻²¹ 543×10 ⁻²²	J.S.PERRIN BMI-1899(1970)
1971	UO ₂	7×10 ⁻²³ 3×10 ⁻²³ (LIFE-I)	A.A.SOLOMON ANL-7857
1972	UO ₂ -22W/OPuO ₂	98×10 ⁻²²	J.S.PERRIN J.Nucl.Mat. 42(1972)101
1973	UO ₂	(LIFE-II) 372×10 ⁻²³ 128×10 ⁻²³	A.A.SOLOMON J.of The Nucl. Ceram. Soc. 56(1973)164-171

19. Densification

試 料

UO₂

密 度 : 88.8~97.7 % TD

結晶粒径 : 3~3.3 μm

実験条件

照射条件	ピーク線出力	: 8~9.5 KW/ft
	ピーク fission rate	: 12~14.5×10 ¹² fission/cm ² ·sec
	燃料中心温度	: 1140~1370°C
	燃料表面温度	: 515~590°C
	ピーク、バーンアップ	: 1000~3500 MWD/MTM

炉外加熱条件

、 1200°C~1700°C, 4hr~1500hr

実験結果

- 1) 焼きしまり易いペレットでは、1000MWD/MTM以下のバーン・アップで最高7%TDの密度増加があり、97.8%TDまでに達した。
- 2) 焼きしまり量は、fission rate, 温度, バーン・アップに依存する。
- 3) 1μm以下のポアが占める体積が大きく、結晶粒径が小さく(8μm以下)、初期密度が小さいペレット程、良く焼きしまりが起こる。(図1)
- 4) 次式で与えられるK₁, K₂によってペレットの焼きしまり安定性がわかる。K₁, K₂の値が大きい程安定である。(図2)

$$K_1 = G_0^2 \cdot \bar{d}_0 / V_p$$

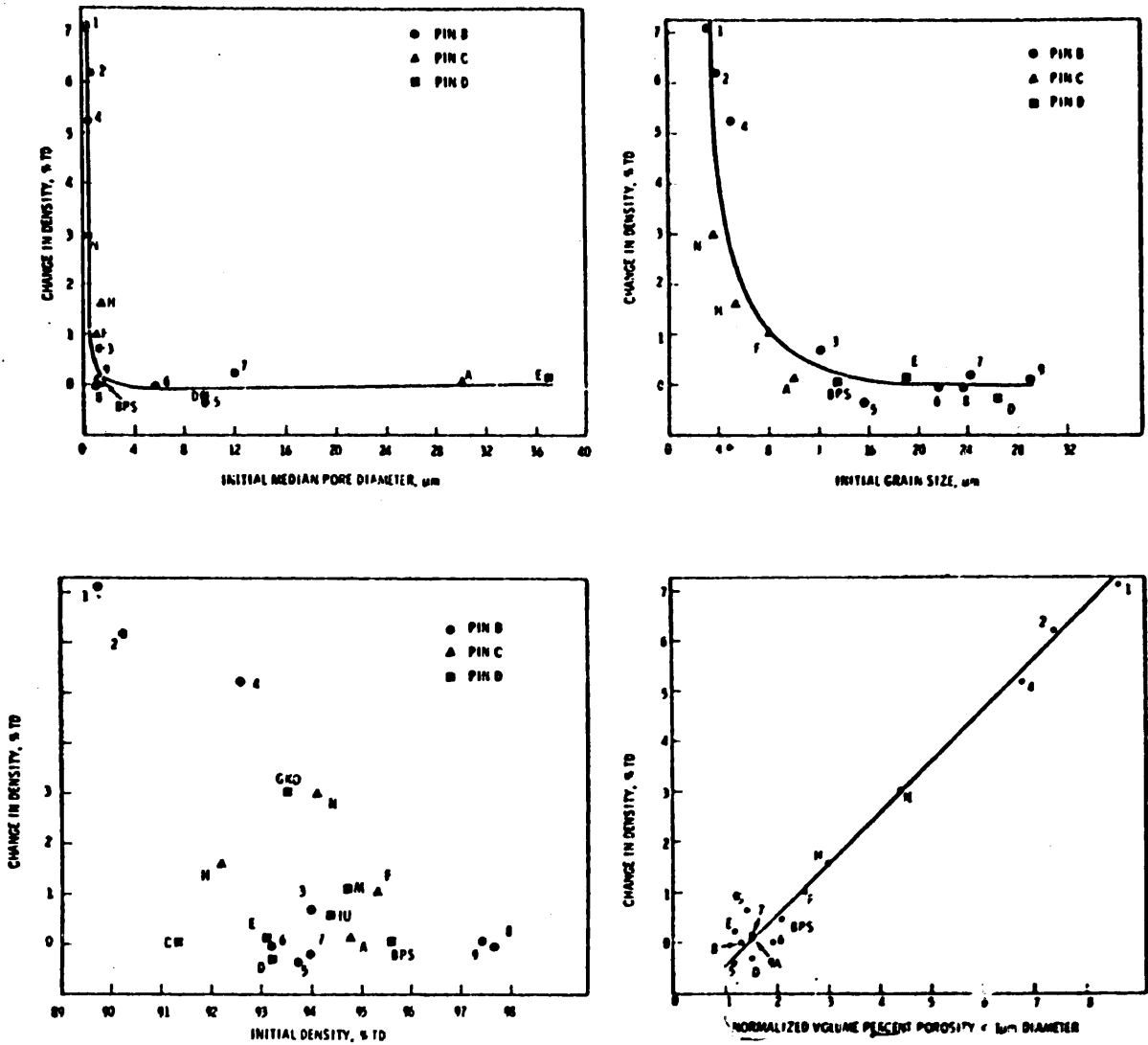
$$K_2 = \left(\frac{V_0 > 1}{V_0 < 1} \right) \left(\frac{\bar{d}_0 > 1}{\bar{d}_0 < 1} \right) \left(\frac{1}{V_p} \right)$$

G₀ : 初期結晶粒径 \bar{d}_0 : 平均ポア粒径V_p, V₀ : ポア体積パーセント

- 5) 1700°C×14hrs, 1600°C×48hrsでの炉外焼きしまり量が5.8~14.1×10¹²fissions/cm²·sec, 1400~3400MWD/MTMでの炉内焼きしまり量にほぼ一致した。(図3)

文 献 EEI/EPRI Fuel Densification Project

Research Project 131, Final Report, March 1975



The Relationships Between Initial Pore Diameter, Grain Size, Density, and Volume Percent of Porosity < 1 μm Diameter and Observed Change in Density for Pellets Irradiated at the Maximum Burnup, Fission Rate, and Temperature Conditions. Pellet Types C, GK0, IU, and M are not included in the pore diameter and pore volume correlations because only pore sizes greater than 1 μm diameter were characterized in these fuel types.

☒ - 1

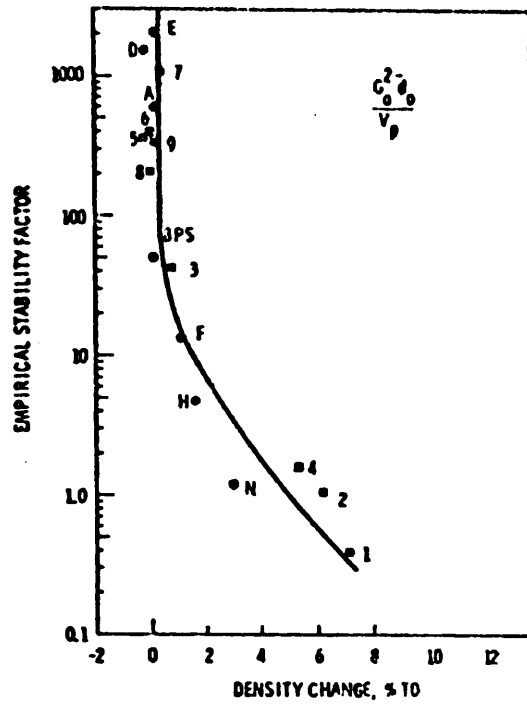


图 2 - 1

The Relationship of Maximum Observed In-Reactor Densification to Grain Size Characterization Factor

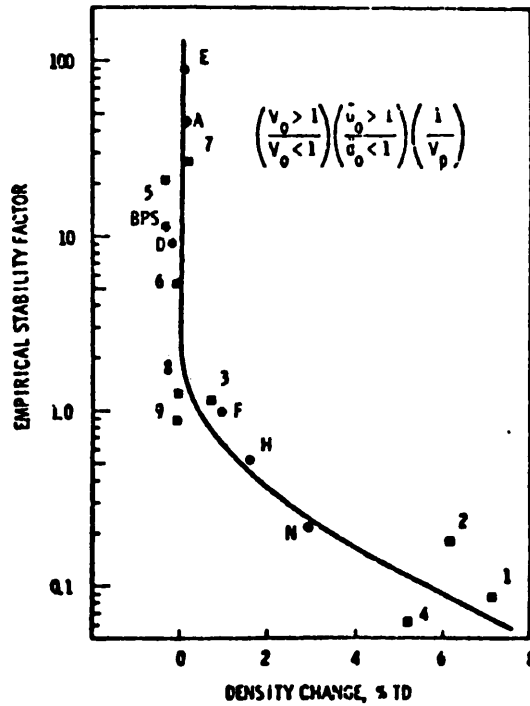
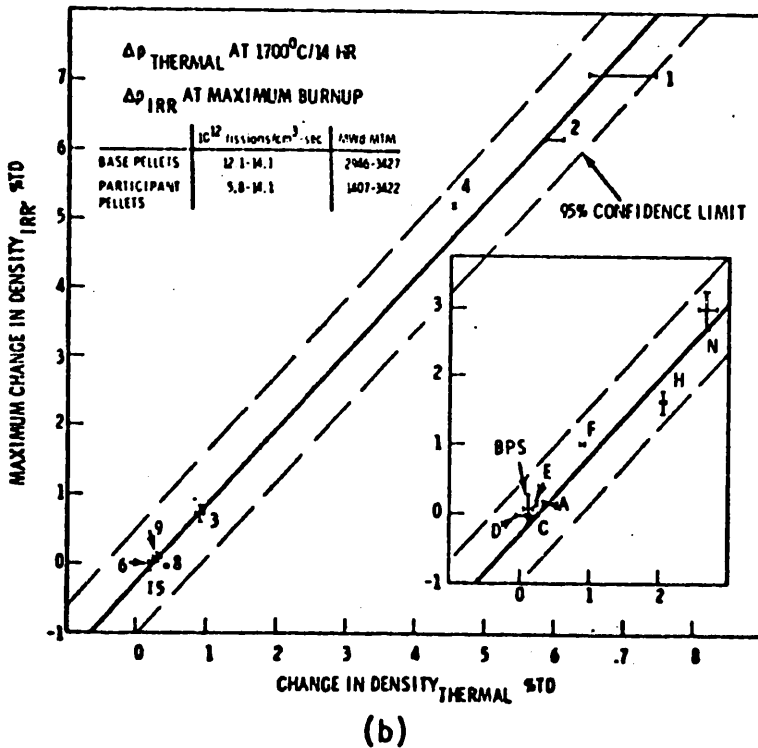
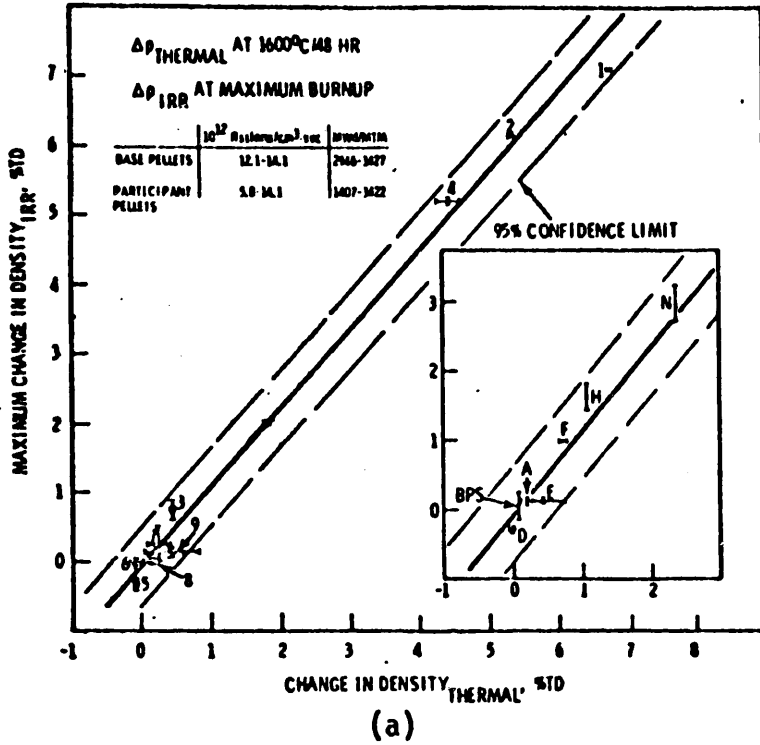


图 2 - 2

The Relationship of Maximum Observed In-Reactor Densification to Porosity Characterization Factors



☒ - 3

Maximum Changes in Density During Irradiation Correlated with the Density Change which Occurred During Isothermal Resintering Tests of (a) 48 hr at 1600°C and (b) 14 hr at 1700°C. Bars represent ranges in values rather than precisions. The line represents a least squares fit to the base program data only.

19. Densification

試料：UO₂-20%PuO₂，ペレット（88%TD）

中空ペレット（93%TD）

バイバック燃料（82%TD）

条件：線出力：320~430W/cm

燃焼度：~46000MWD/MT

被覆管表面温度：400~450℃

ペレット有効長：180mm

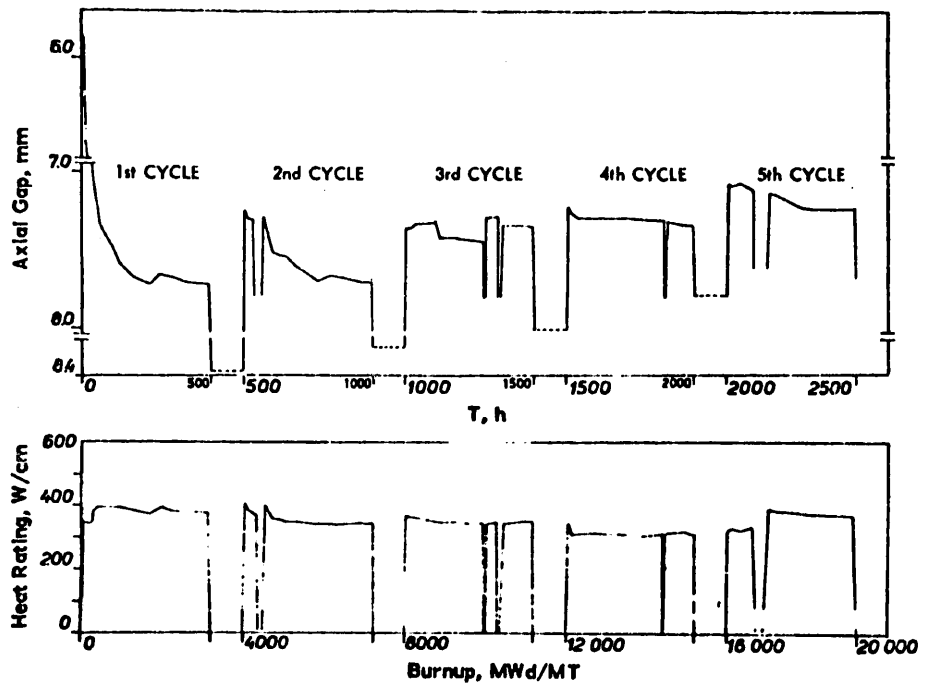
実験結果：照射中の軸方向ギャップを連続的に測定した。

中空ペレット：照射開始後200時間でスタック長が約1%減少した。（図1）

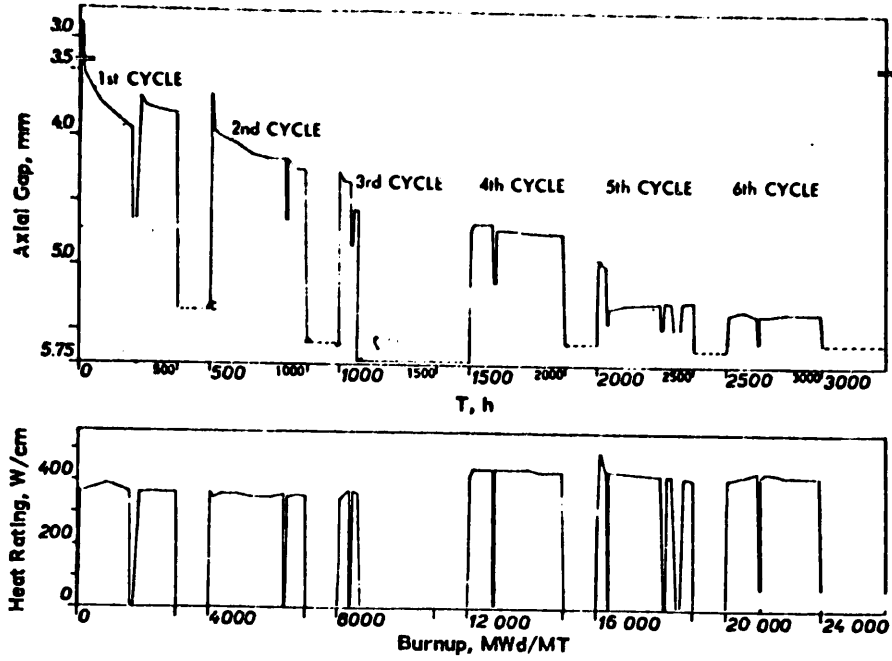
ペレット：8000MWD/MTまでの照射で約0.7%スタック長が減少した。（図2）

バイバック燃料：4000MWD/MTまでの照射で1.2%スタック長が減少した。

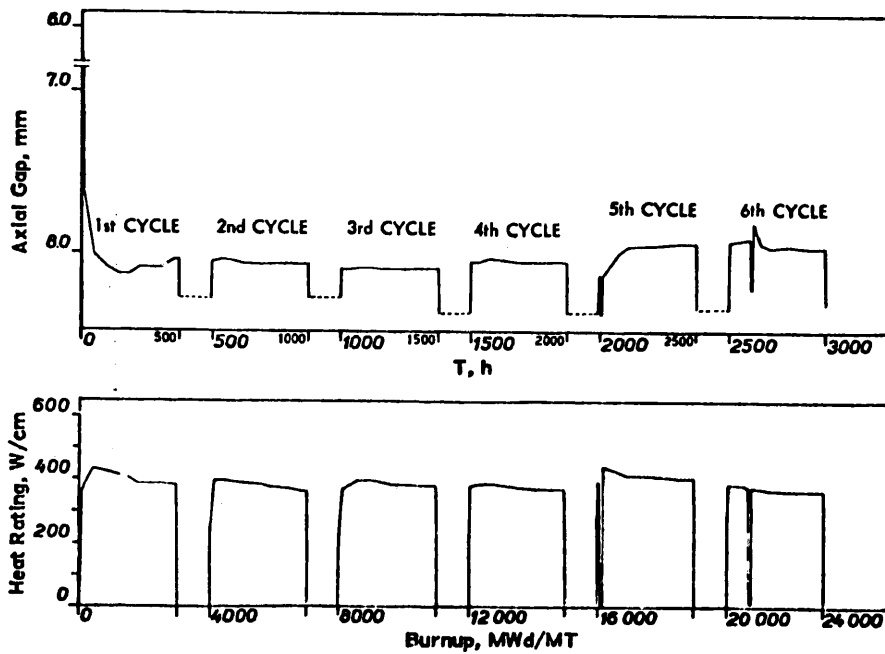
（図3）



☒ — 1 Cysrum 1: gap variation with burnup for cored pellets.



☒ - 2 Cyrsum 2: gap variation with burnup for solid pellets.



☒ - 3 Cyrsum 3: gap variation with burnup for Sphere-Pac samples.

文献：A. Calza-Bini, G. Cosoli, et al, "Fuel Stack Dimensional Variations in Fast Reactor Pins under Irradiation"

Nuclear Technology vol 25, January (1975.), 92 ~ 102

19. Densification

試料: UO_2

密度 89~95% TD

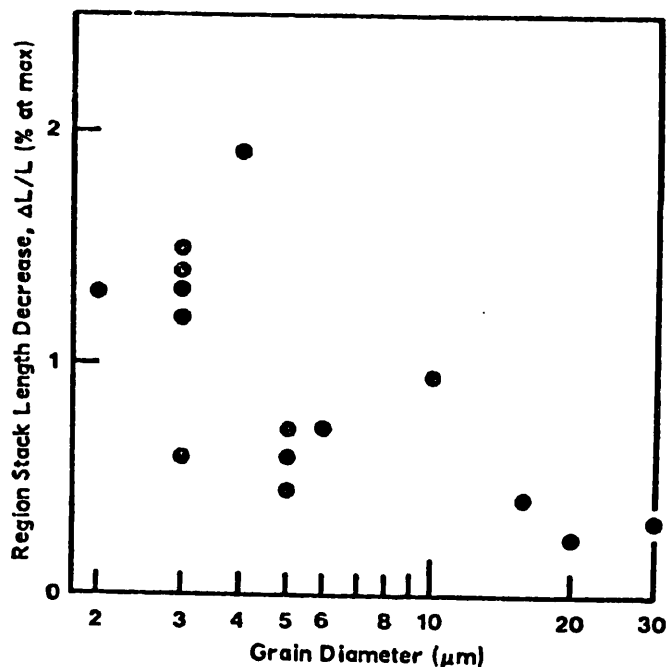
平均結晶粒径 2~30 μm

照射条件: 平均線出力 6 KW/ft

燃焼度 0~20000 MWd/MTU

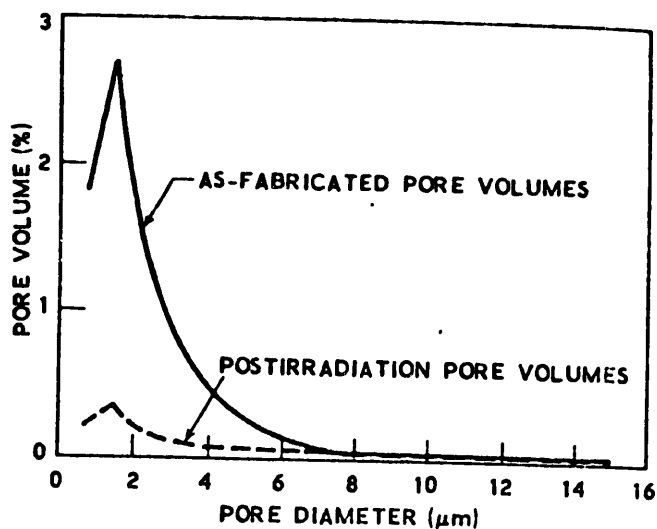
実験結果: 焼きしまり量はペレットの微細構造によって決まる。即ち、平均結晶粒径、平均ポア径が小さい程焼きしまり易い。

従って、ペレット製造条件のコントロールによって、炉内焼きしまり量を減少することができる。

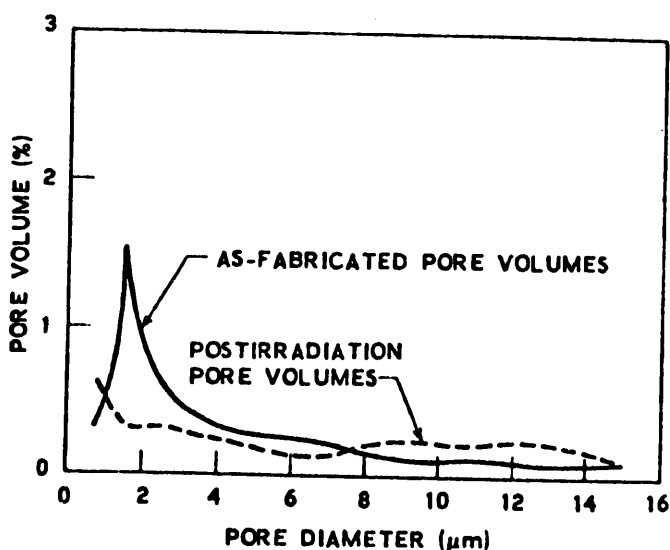


☒ - 1 Neutron detector measurements of fuel stack length changes in-pile.

Fuel Type	Fabricated Density	Grain Size	Sintering Temperature	% Densification ($\Delta\rho/\rho$)
I	89% TD	2.5 μm	low (1450°C)	7.5
II	89% TD	6.8 μm	high (1750°C)	1.8



☒ - 2 Pore size distribution in Type I fuel.



☒ - 3 Pore size distribution in Type II fuel.

文 献：W. CHUBB et al, "The Influence of Fuel Microstructure on In-Pile
Densification "

Nucl. Technol. 26,486 (1975)

19. Densification

試 科 : UO_2 (点欠陥 Annealing モデル)

- 条 件 :
- 1200 °K 以下の温度
 - Transient period での照射により点欠陥が生成し, それが pore で annealing される。
 - 粒界ポアと粒内ポアを分けて考える。

結 果 : 照射中の UO_2 の焼きしまりを解析するためには, 次のような vacancy と格子間原子の濃度, 焼結ポアの内部圧力, fission gas 濃度の時間依存性の計算を行う非線形微分方程式を解く必要がある。

- point defect 濃度計算

$$\frac{dC_v}{dt} = P_v^* - A [C_v C_i - C_v^{1h} C_i^{1h}] - \sum_{\kappa=1}^N P_{\kappa}^v [\nu_v (C_v - C_v^{1h})]$$

$$\frac{dC_i}{dt} = P_i^* - A [C_i C_v - C_v^{1h} C_i^{1h}] - \sum_{\kappa=1}^N P_{\kappa}^i [\nu_i (C_i - C_i^{1h})]$$

- fission gas 濃度計算

$$\frac{dC_g}{dt} = P_g^* - (P_{gb} + \sum_{p=1}^N P_{p,gb}) \nu_g C_g$$

$$P_{gb} = 1.5 b^3 / 6 (d/2)^2$$

$$P_{p,gb} = b^2 / 2 R^2 (R/r - 9/5)$$

- pore 中のガス圧力計算 (各ポア径範囲毎に計算)

$$P = \frac{3 N_g k T}{4 \pi (r^3 - \frac{3 N_g B_v}{4 \pi})}$$

$$\frac{dN_g}{dt} = \frac{P_{p,gb} \cdot \nu_g \cdot C_g}{\Omega N_{p,gb}}$$

- 粒内ポアの径変化 (各ポア径範囲毎に計算)

$$\frac{dr}{dt} = \frac{P_{p,gb} [\nu_v (C_v - C_v^{1h}) - \nu_i (C_i - C_i^{1h})]}{4 \pi r^2 N_{p,gb}} - \frac{b^2 \nu_v}{6 r} [\exp(\frac{2r}{r} - P) \frac{\Omega}{kT} - 1]$$

○ 粒界ポアの径変化 (各ポア径毎に計算)

$$\frac{dr}{dt} = \frac{P_{gr} [\nu_v (C_v - C_v^{ib}) - \nu_i (C_i - C_i^{ib})]}{4 \pi r^2 N_{p,rr}} - \frac{r \Omega W D_{gb}}{x k T r^2}$$

ここで

C_v, C_i : vacancy, interstitial concentration

C_v^{ib}, C_i^{ib} : vacancy, interstitial equilibrium concentration

P_v^*, P_i^* : vacancy, interstitial production rate

$A = a_i \nu_i + a_v \nu_v, \nu_i, \nu_v$: jump frequency, a_i, a_v : constant

P_x^v, P_x^i : annihilation probabilities

b : Burgers vector

d : grain diameter

r : pore diameter

R : distance between pores

P_g^* : fission gas production rate

ν_g : gas jump frequency

C_g : fission gas concentration

N_p : number of gas atoms in a pore of radius r

Ω : atomic volume

D_{gb} : boundary self-diffusivity

W : boundary width

x : mean spacing between boundary pores

本モデルによれば 900°K , 10^{19} fiss/ $m^2 \cdot \text{sec}$ では $0.2 \mu\text{m}$ までの粒内ポアは約1時間で消滅する。 $1 \mu\text{m}$ 以上のポアが消滅するには約75日もかかる。(図-1)

このモデルは実験結果と一致した。

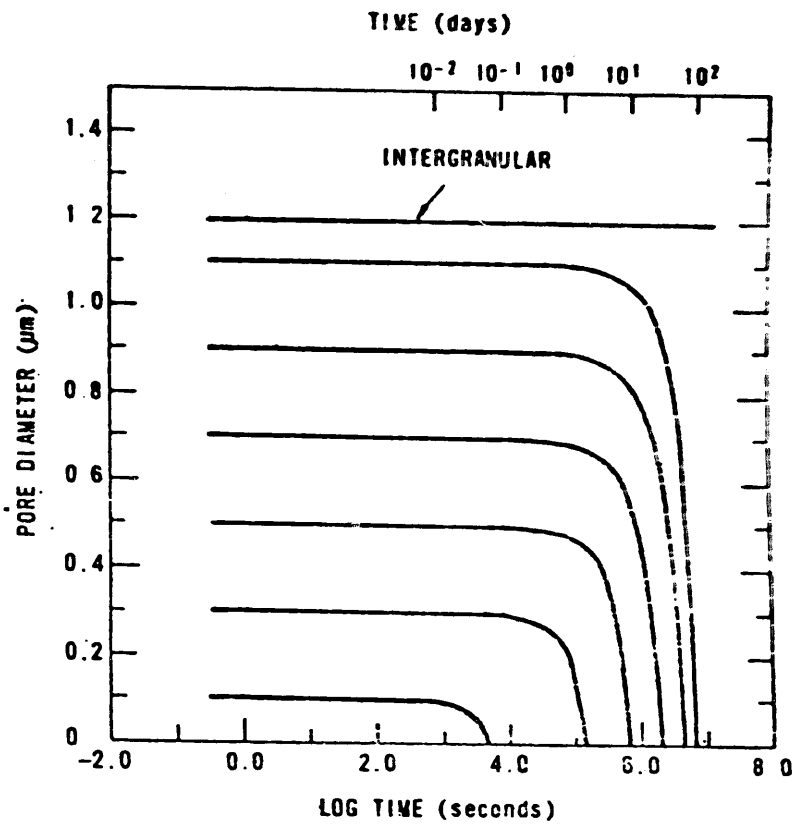


图-1

Variation of sintering pore diameter with time at 900K and 10^9 fissions $m^{-3}sec^{-1}$ for intragranular and intergranular (arrowed) pores.

文献 : S. R. Macewen and I. J. Hastings "A model for in-reactor densification", *Philosophical Magazine* 31(1975)135~143

19. Densification

試料 : UO_2 (核分裂スパイクによる気孔の再固溶モデル)

条件 : ポアを横切る核分裂破片によって, vacancyが生成し, この vacancy が sinkに移動し, 焼きしまりが起る。

結果 : 焼きしまりは低温 ($\sim 750^\circ\text{C}$ 以下) では vacancyの移動が律速であり, pore径や結晶粒径に依存する。

高温 ($\sim 750^\circ\text{C}$ 以上) では vacancyの生成速度が律速である。

この vacancyの生成速度が律速である場合のペレットの体積変化は次の式で評価される。

$$\begin{aligned} \Delta V/V &= (\Delta v/v)^{\text{(swell)}} + (\Delta v/v)^{\text{(densify)}} \\ &= K \cdot F t - \int_0^\infty \left[1 - \left(1 - \frac{\eta w \lambda}{3 r_0} F t \right)^3 \right] P_0(r_0) dr_0 \end{aligned}$$

ここで K : スエリング定数

F : fission rate per cm^3

t : irradiation time

η : average number of vacancies

λ : length of fission spike

w : vacancy volume

r_0 : initial radius of pores

$P_0(r_0)$: initial porosity of r_0

図-1 : 半径 r_0 の径のポア消滅時間と結晶粒径の関係

図-2 : 照射時間とポア収縮の関係

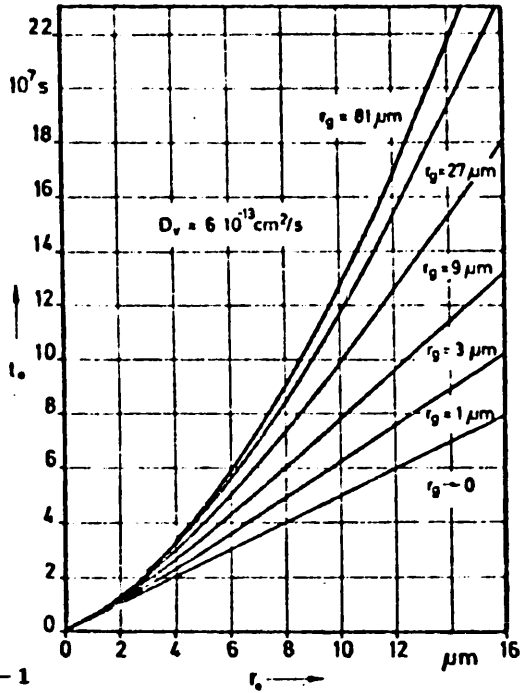


图-1 Time, t_0 , until disappearance of the pore class of initial radius, r_0 , for constant D_v ($F = 2 \times 10^{13}$ fissions/cm³·s).

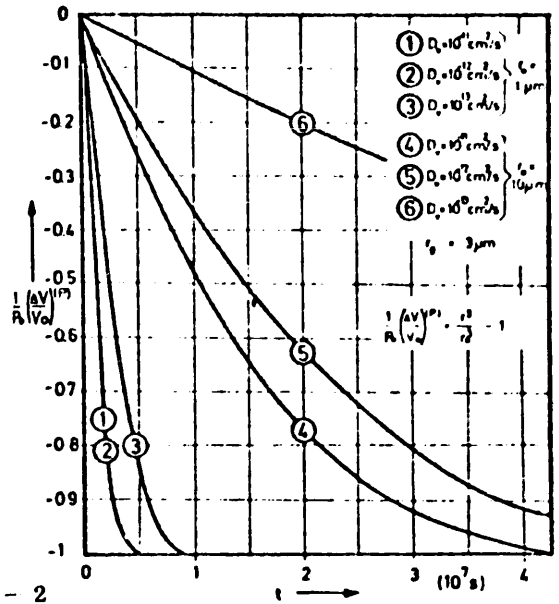


图-2 Relative pore shrinkage versus time ($F = 2 \times 10^{13}$ fissions/cm³·s).

文献：H. STEHLE and H. ASSMANN, "The Dependence of In-Reactor UO₂ Densification on Temperature and Microstructure". J. Nucl. Mat. 52 (1974) 303 ~ 308