研究論文

55. インバース・ポール・フィギュアによる燃料ウランロッドの解析, (I)

ウラン燃料要素に関する研究, (6)

武谷 清昭*, 市川 達夫*

*Analysis of Uranium Fuel Rod by X-Ray Inverse Pole Figure Method, (I)**Studies on uranium fuel element, (6)*

By K. TAKETANI and M. ICHIKAWA

To develop the fuel element for Japan Research Reactor-3, the properties of uranium fuel rod fabricated into 10 mm in diameter, are studied, and a part of the results has already been reported in this journal. The effect of β -treatment on uranium fuel rod were studied from the points of thermal cycling growth coefficient, thermal expansion coefficient, hardness and microstructure, which has been reported in the reference ⁽⁴⁾. The effect of β -treatment on the texture of the same uranium fuel rod, as was used in the previous study is reported this time. As the preparation of the pole figure of a uranium fuel rod is very troublesome, inverse pole figure method has been preferred, to describe the texture of the specimen.

(001) projection of α uranium is used in this inverse pole figure. Intensities of the diffractions from 22 planes of a specimen have been measured by G. E. diffractometer and they are used for calculation. Inverse pole figures of β -treated uranium rods rolled at 300°C and 600°C respectively have also been made. From the results, β -treatment at 720°C has been found to have better effect on the texture of uranium rod than that at 680°C; more homogenous distribution of crystallographic planes could be obtained, which is, therefore, the reason why β -treatment at 720°C will give smaller thermal cycling coefficient. The more homogenous is the distribution of the planes in the β -treated specimen, the smaller thermal cycling coefficient can be obtained.

緒 言

われわれは JRR-3(国産一号炉) に使用するための燃料および金属ウラン燃料の開発のための研究を進めてきた。金属ウラン丸棒(10mm ϕ)の熱処理が熱サイクルに及ぼす効果についてはすでに発表してあるが、本報告ではその実験に用いられた試料についてX線回折法によって相対逆極点図という一種の集合組織図を求め、前に得られた熱処理法と G_i (熱サイクル成長率)との関係を説明する。相対逆極点図は Harris ら⁽¹⁾によって開発されたものであるが、われわれは熱サイクルによって寸法変化を示さなかったものの結晶組織を基準として他の試料の組織を調べた結果、圧延の

ままの(基準試料に対する)いちじるしい集合組織は G_i の値と関連性を持ち、焼入れの効果によって消失することが明らかになった。このような実験の結果 10 mm ϕ の金属ウラン丸棒において一応の成果を得たので、現在 25 mm ϕ の試料の基本的な解析研究に着手した。つぎにさらにこの方法を発展させて金属ウランの集合組織が熱サイクルおよび再結晶によってどのような変化をうけるかということを研究した。これらの結果は次報にて報告する予定である。さらに上記の実験を総合して、天然ウラン燃料要素で実用されている燃料ウラン棒の評価解析を行ない、将来の JRR-3 運

* 日本原子力研究所 (Japan Atomic Energy Res. Inst.)

転時の燃料要素の構成性格解析の一助とする計画であり、さらには燃料要素ミートの検査法を新しく開発する資料とするものでもある。本報はこのような研究計画の一連の報告の一部である。

I. 試料および実験方法

1. 試 料

本実験に用いられた金属ウラン丸棒試料の分析値、圧延工程、熱処理などの冶金履歴はすでに公けにされた報告⁴にあるものと同一で、これと同じ試料を使用している。試料は2シリーズに分れ、その1は300℃圧延(圧下率81%)後に6種類の熱処理を与えたもの、もう1つは600℃圧延(圧下率81%)後に300℃試料と全く同一の6種類の熱処理を与えたもので、その詳細

Table 1 The treatment of the specimens

Specimen number	Treatment
A00	300℃ as rolled
A61	300℃ rolled, 680℃ × 10min W. Q.
A62	300℃ rolled, 680℃ × 60min W. Q.
A63	300℃ rolled, 680℃ × 10min W. Q., 500℃ × 60min
A71	300℃ rolled, 720℃ × 10min W. Q.
A72	300℃ rolled, 720℃ × 60min W. Q.
A73	300℃ rolled, 720℃ × 10min W. Q., 500℃ × 60min
B00	600℃ as rolled
B61	600℃ rolled, 680℃ × 10min W. Q.
B62	600℃ rolled, 680℃ × 60min W. Q.
B63	600℃ rolled, 680℃ × 10min W. Q., 500℃ × 60min
B71	600℃ rolled, 720℃ × 10min W. Q.
B72	600℃ rolled, 720℃ × 60min W. Q.
B73	600℃ rolled, 720℃ × 10min W. Q., 500℃ × 60min

Table 2 Diffraction planes used in calculation

(hkl)	2θ
(020)	30°18'
(110)	34°58'
(021)	35°34'
(002)	36°18'
(111)	39°36'
(022)	48°10'
(112)	51°20'
(130)	57°00'
(131)	60°22'
(040)	63°24'
(023)	64°52'
(200)	65°32'
(041)	66°40'
(113)	67°23'
(132)	69°36'
(042)	75°22'
(133)	83°50'
(114)	87°30'
(150)	90°10'
(240)	97°48'
(223)	99°08'
(152)	101°54'

はTable 1に示されている。

試料の直径は約 10 mm, 長さは約 7 mmで、圧延軸に直角な面について機械研磨した後電解研磨を行なった。これを Buchler のマウントプレスによってペークライト中に埋め込んで使用した。

2. 実験装置

この実験に使用したX線装置は G. E. 社製 XRD-5 型の Diffractometer であり、その概要は Plate 1 に示されている。図中(a)は装置の全景を示したもので、手前にあるのがゴニオメータおよびX線管球類、後方に見えるのがその計数記録装置である。なお、写真には現われてはいないが、このほかに電源部がある。(b)は特にゴニオメータの試料保持台を示したものである。また右方に見えるのは G. E. 製 Cu 管球、中央の試料は金

属ウラン丸棒を埋め込んだもの、左方に見えるのは比例計数管である。

また回折線の積分強度を測定したプランメータは上陽製であり、読取り可能ケタ数は4である。

(a)

3. 実験方法

X線回折実験の条件としては、CuK α 線を用い、30 KVP 15 MA の出力で 1/2 度 / 分の速度で Bragg 角走査を行ない、試料の圧延軸と直角な面において X 線図を求めた。X 線図上に現われた

(b)

各回折線のうち比較的回折強度の強い22個のものを、先に述べた面積計によって積分強度の測定を行なった。22個の回折面とその回折角の計算値(Bragg 角 2θ)を Table 2 に示してある。

与えられた試料の(hkl)面の回折積分強度を $I(hkl)$ としてこれを次のように規格化する。

$$[I(hkl)] = I(hkl) / \sum_{(hkl)=1}^{22} I(hkl) \quad (1)$$

標準試料を選定してこれの規格化された(hkl)面の積分強度を $[I^0_{(hkl)}]$ とする。

$$[I^0_{(hkl)}] = I^0_{(hkl)} / \sum_{(hkl)=1}^{22} I^0_{(hkl)} \quad (2)$$

さて(hkl)面回折線について、与試料と標準試料の規格化された積分強度の比をとってみる。

$$[I_{(hkl)}] / [I^0_{(hkl)}] \quad (3)$$

これは(hkl)極に関し、標準試料に対する与試料の集積密度を表わしていると考えられる。この計算式のほかにも方法があるがここではこの計算式を用いる。この比の値が >1 、 $=1$ あるいは <1 になるに従って標準試料に対する与試料の(hkl)極の集合度はそれぞれ大きい、等しい、あるいは小さいといえることができる。またかりに標準試料がきわめて微細粒でその結晶粒位の方位が Random であるならば、これは与試料のいわゆる集合組織、すなわち標準試料をとっての集合組織を示すことになる。しかし金属ウランの結晶粒の方向が Random であるということを知ることは非常に困難なことである。また原子炉内で与えられた条件下で変形なく使用に耐える燃料要素を作るというわれわれの工学的見地からいえば、実際照射試験を行なって変形を起さないことを確かめた金属ウランを標準試料として採用すればよいのであって、それが厳密な意味で Random であるか否かは二次的な問題となる。

それゆえに燃料照射試験ができないわが国の現況において、照射前試験としての熱サイクル試験⁽³⁾によって変形しない金属ウラン丸棒をえらび出すことが重要である。このため、熱サイクル試験によって変形しなかったものをこの実験では標準として選び、これによって与えられた試料の熱サイクル下の挙動を論ずることが妥当であると考えられた。

与えられた試料に対する熱サイクル法およびその結果は前述のとおりすでに報告してある⁽¹⁾⁽²⁾が、内部を真空にした石英カプセル中に試料を封入し、高温550℃15分保持、常温10分保持の熱サイクルを行なったもの

である。前記各試料の1,000回における熱サイクル成長率 G_t は Table 3 にまとめられている。

Table 3 中の B71 (600℃圧延, 720℃10分間保持, 水焼入れ) は $G_t=1.2$ で上記条件の熱サイクルに対し非常に安定である。それでこの試料をX線回折の際の標準とする。

さて、アルファウランの(hkl)面のステレオ投影図が Fig. 1 に示されているが、この(hkl)極上に、(3)式の $[I_{(hkl)}] / [I^0_{(hkl)}]$ の値を記入し、同じような値を示す点を線で結ぶと、一種の逆極点図(Inverse Pole Figure)ができる。われわれは特殊な試料を標準として極点図を作ったので、特にここでは相対逆極点図(Relative Inverse Pole Figure)と称する。

Fig. 1 (000) Projection of α uranium

II. 実験結果および検討

1. 実験結果

Table 4 に標準試料の規格化された回折積分強度が示されている。この回折測定は試料B71の圧延軸に直角な4個所の面上において行なわれた。それは長さ約7mmの試料の圧延軸に直角な両端面とそれからほぼ0.4mm内側に入った面について、先に述べた方法によって表面を仕上げた。標準値としてはその平均を採用した。

さらに Table 5, 6 にはそれぞれ300℃圧延シリーズと600℃圧延シリーズの各試料の規格化された回折積分強度が示されている。

Fig. 2 には300℃圧延シリーズの相対逆極点図が、Fig. 3 には600℃圧延シリーズのそれが示されている。相対逆極点図はいずれも熱サイクル前のもので、それと同じような試料の1,000回における G_t は同

Table 3 Thermal cycling growth coefficient at 1,000 cycles

Sample number	A00	B00	A61	A62	A63	A71	A72
G_t 1,000	700	436	408	185	227	19.1†	55.2
Sample number	A73	B61	B62	B63	B71	B72	B73
G_t 1,000	27.2	242	114	253†	1.2	87.5	6.4

† Extrapolated value

Table 4 Diffracted intensity $I^o_{(hkl)}$ calculated from the charts

	①	②	③	④	平均
020	0.0166	0.0111	0.00591	0.0154	0.0122
110	0.182	0.106	0.0766	0.102	0.117
021	0.146	0.239	0.261	0.131	0.194
002	0.162	0.186	0.164	0.223	0.184
111	0.0847	0.117	0.0965	0.117	0.104
022	0.00717	0.00843	0.0100	0.0151	0.0102
112	0.0475	0.0585	0.0550	0.121	0.0704
130	0.0179	0.0156	0.00951	0.00698	0.0125
131	0.0601	0.0498	0.0543	0.0474	0.0529
040	0.0116	0.00685	0.00720	0.0134	0.00975
023	0.0403	0.0195	0.0406	0.0398	0.0350
200	0.0345	0.0198	0.0350	0.0349	0.0310
041	0.00896	0.00711	0.0134	0.00814	0.00939
113	0.0318	0.0249	0.0152	0.0209	0.0232
132	0.00493	0.00764	0.00745	0.00465	0.00616
042	0.00852	0.0119	0.0213	0.00814	0.0124
133	0.0498	0.0285	0.0424	0.0192	0.0334
114	0.0184	0.0298	0.0260	0.0221	0.0240
150	0.0251	0.0124	0.0203	0.0140	0.0179
240	0.00627	0.0124	0.00925	0.00727	0.00879
223	0.0112	0.0153	0.0118	0.0186	0.0142
152	0.0278	0.0127	0.0177	0.0116	0.0174

図上に記入されている。なお相対逆極点図の配列は G_i の大きいものから小さいものへと並べられている。

2. 検 討

(1) 300℃圧延・熱処理シリーズ

300℃ 圧延のままの試料は標準試料に対する集合組織(今後単に集合組織と呼ぶ)は非常によく発達しているが、 β 熱処理を加えるとその組織はくずれて行く。図は G_i の大きな順序で並べられているが、 G_i が小さくなるに従って、(3)式の $[I(hkl)]/[I^o(hkl)]$ の値はステレオ投影上に一様に現われるようになる。A71の試料の組織はほとんど標準試料のB71に等しいことがFig. 2と3からわかる。そしてこれは試料A71が $G_i=19.1$ という低い G_i を示す理由を説明するものである。

680℃ 10分保持水焼入れ、またはその後 α 熱処理を行なった試料にはまだかなり集合組織が残っており、この2つの試料の G_i が大きいのもその辺に原因があるものと思われる。720℃より焼入れの熱処理を行なったものは、ほとんど集合組織をもたず、集合組織の点からいえば680℃熱処理よりすぐれているといえることができる。

(2) 600℃圧延・熱処理シリーズ

300℃ 圧延・熱処理シリーズと傾向は全く同じである。ただ600℃圧延のままの試料は、300℃圧延のま

Fig. 2. Relative Inverse Pole Figures of 300℃ rolled specimens

Fig. 3 Relative Inverse Pole Figures of 600°C rolled specimens

Table 5 Diffracted intensity $I_{(hkl)}$ in 300°C rolled specimen

	AA00	AA61	AA62	AA63	AA71	AA72	AA73
020	0.0373	0.0178	0.0143	0.0263	0.0115	0.0396	0.00882
110	0.0955	0.0824	0.138	0.0458	0.103	0.228	0.151
021	0.347	0.271	0.206	0.254	0.316	0.0981	0.208
002	0.0153	0.0490	0.0733	0.0170	0.161	0.0918	0.271
111	0.0735	0.0824	0.112	0.0597	0.0636	0.127	0.0549
022	0.00	0.00779	0.00737	0.00772	0.00669	0.00879	0.00931
112	0.0187	0.0568	0.0702	0.0396	0.0311	0.0660	0.0275
130	0.00815	0.0111	0.0126	0.0247	0.0139	0.00314	0.0108
131	0.169	0.155	0.0533	0.179	0.0617	0.0685	0.0265
040	0.0338	0.0412	0.0130	0.0211	0.0258	0.0245	0.00490
023	0.00583	0.0156	0.0260	0.00721	0.0431	0.0170	0.0309
200	0.00	0.0134	0.0663	0.00566	0.0225	0.0220	0.0108
041	0.0361	0.0122	0.00997	0.0237	0.0100	0.00628	0.0196
113	0.00	0.0100	0.0134	0.0185	0.0110	0.0220	0.0196
132	0.00465	0.0122	0.00910	0.0139	0.00430	0.00628	0.0118
042	0.0373	0.0178	0.0212	0.0288	0.0187	0.0157	0.0103
133	0.0105	0.0290	0.0295	0.0427	0.0177	0.0515	0.0270
114	0.00	0.0111	0.0126	0.00412	0.0148	0.0132	0.0510
150	0.0268	0.0212	0.0316	0.0360	0.0206	0.0258	0.0108
240	0.0140	0.0223	0.0186	0.0227	0.0110	0.0151	0.00833
223	0.00932	0.00	0.0230	0.0114	0.00956	0.0239	0.00
152	0.0572	0.0612	0.0381	0.107	0.0225	0.0258	0.0275

まの試料に比較して、集合組織の発達度が弱い。680℃より β 焼入れした試料の系にはかなり集合組織が残る、720℃よりの β 焼入れした試料の系にはほとんど集合組織が残らない。これは G_r の示す傾向と全く一致している。

すでに報告されたように⁽³⁾、熱処理の相異による G_r の差は偏光顕微鏡写真、熱膨脹曲線からでは明確な説明は困難であった。相対逆極点図法によるその差異ははっきりと読み取ることができ、 G_r の相異の説明が可能である。しかし、試料の長さ方向には相当組織のバラツキがあり、またこの相対逆極点図は G_r の値を予想するには非常に定性的なものである、熱サイクル試料による金属ウラン丸棒の寸法安定性を論ずるにはなお多数のデータ集積を行なう必要がある。

普通の金属の集合組織を見るために使用されるある特定の極に関する極点図をウランに適用する方法と、上記の方法とを比較すると、ウランは透過法

Table 6 Diffracted intensity $I_{(hkl)}$ in 600°C rolled specimen

hkl	A B 00	A B 61	A B 62	A B 63	A B 72	A B 73
020	0.0186	0.0118	0.328	0.0221	0.00856	0.0171
110	0.117	0.158	0.157	0.0708	0.164	0.137
021	0.310	0.320	0.221	0.233	0.202	0.190
002	0.0442	0.00463	0.0293	0.0315	0.0790	0.185
111	0.0970	0.0819	0.0422	0.0980	0.187	0.0683
022	0.00476	0.0108	0.00	0.0151	0.0133	0.0279
112	0.0416	0.00978	0.0183	0.00805	0.0685	0.0411
130	0.00779	0.00772	0.00527	0.0141	0.00713	0.00465
131	0.133	0.107	0.0915	0.178	0.0547	0.0667
040	0.0156	0.0129	0.0559	0.0215	0.00713	0.0163
023	0.0113	0.00875	0.0252	0.00905	0.0390	0.0450
200	0.00822	0.00205	0.0164	0.0201	0.00808	0.0372
041	0.0281	0.0180	0.0328	0.0164	0.00665	0.0163
113	0.0104	0.00514	0.0293	0.0178	0.0233	0.0171
132	0.00995	0.00411	0.0106	0.00670	0.00571	0.00543
042	0.0255	0.0350	0.0481	0.0721	0.0119	0.00543
133	0.00562	0.0118	0.0522	0.0211	0.0224	0.0279
114	0.00562	0.00926	0.00	0.00536	0.0218	0.0217
150	0.0160	0.121	0.0328	0.00	0.00713	0.0264
240	0.0117	0.0180	0.00997	0.0372	0.0123	0.0163
223	0.0126	0.00926	0.0217	0.0138	0.0390	0.0124
152	0.0489	0.0355	0.0299	0.0426	0.0105	0.0256

による集合組織決定が非常に困難であるので、反射法に頼らねばならず、前者の方法では特殊のゴニオメータを使用し測定に技術と時間を要する。後者では特定の面上の極の集合度しかわからないが、測定は非常に簡単であってなんら特別の技術、装置を要さない。しかも非常に短時間で解析が行なえるので工学的である。後者の方法での最大の問題点は標準試料であるが、すでに述べたように原子炉内で寸法変化を起さなかった試料を標準とすることを最終目標とすることによって解決される。また与試料、標準試料中の残留歪、結晶粒度の影響に関しては現在検討中である。

II. 結 論

緒言においても述べたようにJRR-3の燃料要素としての金属ウランの構成性格を知るため、直径約10mmのウラン丸棒の β 熱処理法についてその熱サイクル試験による寸法安定性などについてはすでに報告した⁽⁴⁾。今回はその報告に使用されたのと同じの試料をX線的方法により、その集合組織を解析し、前回の実験の裏付けを行なった。その結果を取りまとめると次の

とおりである。

- (1) 既報の10mm ϕ 金属ウラン丸棒の β 処理、熱サイクルを行なった試料に関し、相対逆極点法図を開発して、これによって各試料の熱サイクルによる寸法不安定性を説明した。
- (2) 680℃焼入系のは720℃焼入系のものに比して圧延の際の集合組織を残しており、これが寸法不安定性を示す一因となる。このことは300℃圧延シリーズ、600℃圧延シリーズに関しいえることである。
- (3) β 焼入れ後の再結晶のための熱処理は極点図に根本的な変化を与えないようであるが、その効果に関しては次回に報告する。
- (4) 以上の結果より、相対逆極点図は金属ウランの寸法不安定性を知るために使用できるという結論をえた。
- (5) 以上の結果を適用してJRR-3燃料要素の構成性格の解析に役立つ可能性は十分認められた。しかしこの方法をさらに開発して新しい燃料要素ミートの検査法にまで開発するには、さらに多くの実験を行なう必要がある。

この相対逆極点図法によって、熱サイクルによる組織の変化、再結晶による変化を研究しその一部は「第1回原子力研究総合発表会」で公けにしたが、現在25mm ϕ の金属ウラン丸棒についても燃料要素の構成性格解析の立場から研究を進めている。

この実験を遂行するに当っては、X線装置について種々絶大なご助言、ご援助をいただいた金属研究室栗原正義氏に深く感謝するとともに、実際面倒な測量と計算を行なった鹿志村悟、深井勝磨両氏に謝辞を呈する。なおいろいろ便宜いただいたり、設備の使用を許可された金属研究室長およびご援助下さった冶金特研の諸氏に深く感謝する。

(1960年 4月11日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) G. B. HARRIS: *Phil. Mag.*, **43**, Ser. 7, No. 336, 113 (1952).
- (2) M. H. MUELLER, et al.: *Trans. AIME*, **213**, No. 2, 39 (1958).
- (3) 武谷清昭: 本誌, **2**, No. 1, 6 (1960).
- (4) 武谷清昭: 本誌, **1**, No. 3, 190 (1959).