- (17) A.C.CHAMBERLAIN, R.J.GARNER, D.WILLIAMS: *Reactor Sci. Technol.*, **14**, 155 (1961).
 (18) H.BLATZ, Ed.: "Radiation Hygiene Handbook", (1959).
 (19) C.D.HODGMAN, Ed.: "Handbook of Chemistry and Physics", 41 st Ed., (1959).
 (20) 渡辺博信, 山下幹雄, 松田節子: 第5回放射能調査発表会, p. 67 (1963).
 (21) R.DENNIS, S.N.PUROHIT, L.E.BROWNELL: AECU-3510, (1957).

研究論文

395. 振動充填 UO_2 燃料体の熱特性に関する炉外試験, (I)

加熱による組織変化

野原忠英*, 久保田正*, 藤永昭三*, 高橋修一郎*

Thermal Simulation Test on Vibratory Compacted UO_2 Fuel, (I)

Structural Change

By Tadahide NOHARA, Tadashi KUBOTA,
Shozo FUJINAGA and Shuichiro TAKAHASHI

In-pile thermal behavior of vibratory compacted UO_2 fuel was simulated by center-line heating method. Main results are as follows:

- (1) The micro-structure of vibratory compacts, while retaining the as-compacted state in the peripheral region, assumed an aspect more and more similar to pressed and sintered pellets toward the fuel center, due to sintering.
- (2) Lenticular voids, larger than those found in pressed and sintered pellets, were found in the columnar grain region.
- (3) Circumferential cracking produced by rapidly rising center temperature was found to occur in short discontinuous stretches, unlike the very distinct cracks seen in sintered pellets and swaged compacts.

I. 緒 言

振動充填 UO_2 燃料体を原子炉で使用する際、核分裂によって多量の熱を発生し、燃料体の温度が上昇する。その結果、振動充填燃料を構成する UO_2 粉末粒子は焼結して高温部では柱状晶が発達し、照射が進行するにつれて圧縮焼結型の燃料体に多少とも近づく傾向を有するものと予想される。さらに、照射による温度上昇によって、燃料体中に熱歪が発生し、クラック

の生ずることも当然考えられる。ところで、炉中照射試験結果は最近になって多少公表されるようになったが、組織変化などを含め、解析が充分進んでいない状態にある。

最近になって、国内外において、いわゆるシュミレータによる実験によって炉中照射データの解析を側面より補佐する傾向が見られており、炉中データの不足

* 三菱原子力工業(株)研究所 (Eng. and Res. Lab., Mitsubishi Atomic Power. Ind. Inc.)

する点について、論文がいくつか公表されている。著者らは、従来焼結ペレット燃料あるいはスウェージ燃料等の研究に使用してきた中心加熱実験方式でシュミレーションを行ない、組織変化などについて研究を行った。

実験方法としては、Lawson & MacEwan^らの方式と同様、燃料体の中心部にタングステン発熱体を挿入して被覆管を冷却する方式を採用した。

II. 実 験

装置と実験手順などの詳細については、別報に記載する予定であるので、本報においては、その概要を簡単に報告するにとどめる。

装置の原理は Lawson & MacEwans^らの方式と類

似しており、Fig. 1 に示すように、試料中心に挿入したタングステン線を加熱すると同時に、試料外表面を水あるいは希ガス(He または Ar)で冷却することにより、炉中の状態に近い温度分布を造ることを目的としている。

オーバーフローによって流量を一定化した冷却水を冷却ジャケットに流して試料外表面の冷却を行なう。冷却ジャケットと試料との間隙にあるセラミック絶縁体などは、試料表面の温度調整を目的として挿入したものである。

温度測定には、主として光高温計を使用した。実験後の微細組織から、逆に温度を推定する方法も併用した。加熱条件、測定温度等の実験条件は Table 1 に総括した。

Fig.1 Schematic Diagram of Thermal Simulation Test Apparatus

Table 1 Experimental Condition

Fuel temperature† (°C)		Heating condition††			
Center (estimated)	Surface (measured)	Time to reach peak temperature	Time kept at peak temperature	Cooling time	Atmosphere
2,700~2,800	1,100±20	30 min	3 hr	4 hr	He (purified)

† In some cases, temperatures at the inside of UO₂ compact were measured by optical pyrometer through the small hole drilled inside UO₂ compact.

†† Even in case of cycling test (2~30 cycles), heating condition shown in this figure was maintained

III. 振動充填 UO₂ 燃料体における 焼結現象と結晶粒の成長

振動充填燃料体における UO₂ 充填体の構造は同じ

密度で比較しても、焼結ペレットの場合と大分異なっている。スウェージ型燃料体は振動充填燃料と同様、粉末を圧縮した燃料であるため、その構造はもちろん類似しているものの、厳密に見た場合微細構造な

どに相異があるのであって、Thurber ら⁽²⁾⁽⁷⁾の炉中照射試験結果にも報告されているように、実際に両者の炉中挙動に相異が現われている。

振動充填燃料体を原子炉燃料として使用するためには、高密度であることが要求されているが、これは原子炉の出力密度や燃料の炉中特性と関連してくるものであって、振動充填加工に携わる研究者の重要なポイントとなっている。

ところで、いわゆる高密度の振動充填燃料の構造を見ると、大きいサイズの UO_2 粉末の部分と小さい UO_2 粉末の集った部分とがはっきり区別され、燃料棒全体としての平均密度が、例えば90%(理論密度)の高密度であっても、局所的に見た場合には、直径3 mm くらいを局所の1単位として、密度の高い部分と低い部分とがあることがわかる(Photo. 1)。大きいサイズの粉末の存在する所では100%に近い高密度であるが、小さいサイズの粉末の部分は70%前後の密度をしめるにすぎない。もちろん局所的な密度分布の相異は、原料粉末の粒度分布に影響されるわけであるが、一般に高密度充填用 UO_2 粉末においては、粒度分布に数ピーク有するものが使用されており、上記のような局所的密度分布が存在するものと考えて差支えない。Brayer らは、充填用粉末の粒度分布を種々変えて、充填前後の粒度分布の変化を調べた結果、充填後の粒度分布は充填前の粒度分布に関係なくほとんど同一であることを報告している⁽²⁾⁽⁶⁾。

なお、粒度の比較的小さくかつ粒度分布にピークのない粉末を充填した場合についても、本研究において実験を行なっているが、充填密度は75%T.D.以下(high fired UO_2 のみ、あるいは電解単結晶粉末)である。

局所的密度分布が振動充填燃料に明瞭に存在することが、焼結型燃料と比較して核的にも熱的にも燃料の炉中挙動に特徴を与えるものと考えられる。例えば核的には、局所的分布を考慮に入れる必要が生じるが、本報では、一応核的特性を離れて熱的性質に主眼をおくことにする。

Photo. 1, 2 は、中心加熱実験を行なった試料の1例であって、fused UO_2 粉末(3~10 mesh)60%と、high-fired UO_2 粉末(50~300 mesh)40%との混合粉末を原料として、振動充填した燃料棒について、中心加熱式の熱的擬似炉中試験を行なったものである。Photo. 1 は中心加熱前、Photo. 2 は中心加熱後の横断面組織を示している。

白く大きく見える部分(直径約2~4 mm)は fused UO_2 粉末を示し、その回りの小粒子は high-fired UO_2

Macrograph was taken by fixing the position of UO_2 powder particles with epoxy resin.

Transverse Cross Section of UO_2
Vibratory Compact before Center-line
Heating

Photo. 1

Transverse Cross Section of UO_2
Vibratory Compact after Center-line
Heating

Photo. 2

粉末の部分を示す。

この試料においては、中心温度は約 $2,800^\circ\text{C}$ 、外縁部の温度は約 900°C であった。中心部に近づくにつれて温度が高くなるため、焼結の進行度合は大であり、中心部付近には柱状結晶粒の発達しているのが認められる。

Photo. 3 は、中心加熱を行なった試料の中心部から外縁にかけての光学顕微鏡写真で、上記の現象をさらに細部にわたって示したものである。大きいサイズの粒子が fused UO_2 であり、小さいサイズの粒子が high-fired UO_2 である(粉末粒子内に結晶粒界が認められる)。中間部(約 $1,500^\circ\text{C}$)の状態は、一見したところ外縁部となんら変わらないようであるが、すでに焼結固化が始まっている。写真でははっきりしないが、断面を研磨する際、外縁部では、小さい粉末粒子がこぼれやすい事実が認められたのに対し、中間部から中心部にかけては、焼結体の研磨と同様、粉末粒子がこぼ

(a) Throughout photograph from fuel center to outer surface
(b) Micrograph of a part in outer surface region
(c) Micrograph of a part in middle region
(d) Micrograph of a part in fuel center region
Optical Micrograph of Center-line Heated Specimen

Photo. 3

れて研磨し難いということはない。これは外縁部の低温領域では焼結がほとんど進行せず、粉末粒子が個々に独立した存在であるため、研磨による衝撃により、ともすると離れてしまうのに対して、中間部、中心部の高温領域では粉末粒子が固結しているため、焼結体の研磨とほとんど変わらないものになることに原因すると考えられる。

このほか high-fired UO_2 粉末粒子内の結晶粒の大きさが、中間部と外縁部とで相異のあることが認められた。本実験に使用した high-fired UO_2 粉末は、その製造時において、 $1,300^\circ\sim 1,400^\circ\text{C}$ 前後の温度で high-fire したものであって、中心加熱において、その温度以上の高温になった部分では、結晶粒が成長したものである。

ここで、外縁部に貫通する開気孔の問題を、組織の立場から検討してみる。

粉末充填型燃料(ホットスウェージ燃料など高温で製造したものを除く)では、一般に粉末粒子はおのおの独立した存在であるのであって、隣接粒子と密着している部分でも分子寸法の間隙が存在する。したがって、He などの気体に対しては、外縁部はもとより、

中心に至るまで開気孔が続いているものと考えられる。テトラリンのように液体でも、粉末充填燃料の密度を求めると、粉末粒子自体の密度とほとんど同様の値が求められることから、中心部まで開気孔が続いていると考えてよいようである。

このような開気孔の状態が、原子炉で燃料を使用した場合にも存在するとすれば、ウランの核分裂によって生じた分裂生成物ガスの大部分は、燃料の外部へ容易に放出されることになる。実際には、高熱発生率で照射された振動充填燃料を含め、粉末充填型燃料における分裂生成物ガスの放出率が、予想よりもかなり小さいことが、照射試験の結果として報告されている⁽⁵⁾⁽⁸⁾のであって、その主な原因の1つとして、炉中における組織の大幅な変化があげられると考えられる。

燃料の温度が低い時は組織変化はほとんどなく、また、ガス放出の機構も反跳機構が支配的であって、放出率の値はかなり高いものと考えられる。

燃料温度が高くなると中心部は焼結して開気孔を閉じる結果、この部分で発生した分裂生成物ガスは焼結体の場合とはほぼ同様の拡散機構(固体拡散、気孔を媒介とする拡散など)⁽⁹⁾で放出され、分裂生成物ガスの何十%かは閉気孔などでトラップされることになる。外縁部では焼結がほとんど進んでいないので、開気孔は依然元のままの状態を維持するため、この領域で生成した生成分裂物ガスのほとんどは外部へ放出されるものと考えてよい。

カナダの Robertson らの計算によると、柱状結晶の発生温度は $1,850^\circ\text{C}$ 以上であるといわれる。著者らは、実際に試料の被覆管を通して燃料体の中に小孔を開け、孔の最深部における温度を光高温計によって測定した。加熱後、横断面の微細組織を調べたところ、柱状結晶の始まる部分と、ある孔の最深部が偶然一致していることがわかった。(Photo. 4) この孔の最深部の測定温度は $1,900^\circ\pm 50^\circ\text{C}$ であって、パイロメータの読取りの誤差を考えた場合、Robertson らの推定と大体一致しているとみてよい。

振動充填燃料の柱状結晶粒における特徴として、 $0.1\sim 0.2\text{ mm}$ のサイズの大きいレンズ状気孔の存在があげられる。(Photo. 5) レンズ状気孔については、焼結ペレットの照射データあるいは炉外試験データ⁽¹⁰⁾で報告があるが、気孔の大きさは振動充填燃料の場合と比較してずっと小さく、約 $50\sim 100\mu$ にすぎない。レンズ状気孔の生成機構については、蒸発-凝縮、気孔内表面拡散および体積拡散などの機構がからみあったものと考えられるが、その点については、今後検討を充

分行なった上で報告したい。

なお、上記のレンズ状気孔は融点近くの高温度部よりもむしろ $2,000^{\circ}\sim 2,300^{\circ}\text{C}$ 近辺に多数存在しているのが認められた。(Photo. 3 (a))

One hole among many holes drilled at various depths was accidentally corresponded to the position of columnar grain growth.

Temperature, at which columnar grain growth initiated, was measured by optical pyrometer through the hole drilled inside UO_2 compact

Photo. 4

Columnar Grain and Lenticular Voids

Photo. 5

IV. クラックの発生とその形状

原子炉に UO_2 燃料を入れた場合、核分裂によって発生した熱のため急激な歪を生じ、焼結ペレット型燃料では、径方向あるいは周囲方向に割れを生じ、熱伝導率などの性質に影響を及ぼすことが知られている。振動充填燃料の場合、いまだ詳細な照射データが少ないので、十分な解析は不可能であるが、Evans⁽⁷⁾ の照射結果の断面写真によると、焼結ペレット燃料やスウェージ燃料ほど周囲方向のクラックがはっきりとは認められていない。

Photo. 2 は中心加熱した振動充填燃料の横断面であって、中心軸から放射状にクラックが発生している。Photo. 6 で、中心部と外縁部との中間にあたる部分

に同心円状に不連続なクラックの存在が認められる。

Transverse Cross Section of Center-line Heated Specimen

Photo. 6

Photo. 7 は同じ試料の縦断面であって、径方向のクラックが軸方向で約 $4\sim 7\text{ mm}$ の間隔で発生しているのが認められる。また、径方向のクラックは UO_2 充填体が焼結固化している部分にだけ存在するものであって、粉末の状態にある外縁部を貫通しているわけではない。

Longitudinal Cross Section of Center-line Heated Specimen

Photo. 7

焼結ペレット燃料に関する炉中照射試験、あるいは炉外評価試験の結果によると、中心部から発達した径方向クラックは、大体において外縁部を貫通した外表面にまで到達するものが多く、照射した燃料棒を切断

すると、照射温度がさほど高くない場合でも、焼結ペレットが細く割れて被覆管の内部から外へ出てくるものである⁽⁴⁾。また、径方向クラックは中心部付近に辺在する大きい fused UO_2 粉末の内部を貫くようなものではなく、むしろサイズの小さい high-fired UO_2 粉末の粒子群が焼結固化した部分を貫くものや、あるいは大きい fused UO_2 粉末と小さい粉末の固化した部分との間隙に存在しているのが認められた。(Photo. 6)

このように振動充填燃料体の特徴あるクラックが発生した原因には、つぎのような可能性が考えられる。

- (1) 中心加熱第1サイクルにおいて、中心温度の急激な上昇と共に熱歪が発生してクラックを生じた。
- (2) 加熱第1サイクルで焼結した部分は、ちょうど焼結ペレットと同じように熱歪抵抗が小さくなることが考えられるので、それ以後の2回目あるいは3回目のサイクルにおける熱衝撃で割れた。
- (3) 高温部分では、焼結収縮が進むため各所に空隙を生じた。径方向では、焼結収縮した UO_2 部分は外縁部に向って質量移動する形をとり、中心部に空洞を残す結果を生じた。もちろん中心部が融点以上に達したものについては、溶融による空洞の発生を考える必要がある。なお、溶融ゾーンの判定については別報に記述する。

上記の3項目にわたる可能性を検討するため、中心加熱実験とは別に熱衝撃実験を行ない、異なる立場からのデータを得た。

Fig. 2 は、外国加熱方式による熱衝撃実験の試料配置を示すもので、試料を急熱する必要から高周波炉を使用した。アルミナ焼結体の台の上に、アルミナの粉末を約5mmの厚さに敷き、その上に試料Sを設置した。試料Sの周りに設置したモリブデン筒を高周波誘導加熱することにより、試料Sの外周に輻射熱を与えた。なお、試料Sやモリブデン筒はシリカの筒の中に設置されており、加熱は常時 10^{-4}mmHg の真空中で行なわれた。 T_s , T_c は熱電対の位置を示す。 T_c の位置としては、底面よりもむしろ試料に孔をあけて、中心部に挿入するという考えももちろんあったが、焼結ペレットの場合は、孔を開けたことによって微細なクラックが入る可能性もあると考えられるので、この実験では、上記のように外表面に熱電対を設置したわけである。試料の割れるまでの時間は、透明シリカ筒を通して観測測定した。Table 2 は、焼結ペレットの割れるまでの時間を記録したもので、急熱した場合、あ

る限度以上の歪がかかると割れることを示している。

Fig. 2 Outline of Apparatus for Measuring Thermal Shock Resistance

Table 2 Thermal Shock Test of Sintered UO_2 Pellet

Sample No.	T_s ($^{\circ}\text{C}$)	T_c ($^{\circ}\text{C}$)	$T_c - T_s$ ($^{\circ}\text{C}$)	Time necessary for cracking (min)
1	965	600	365	30
2	915	485	430	20.5
3	840	440	400	19
4	940	580	360	28.5
5	820	440	380	19

Photo. 8 は熱衝撃実験で割れた焼結ペレットを示す。

焼結ペレットの中心にタングステン線を入れ、被覆管を覆わずに中心加熱すると、歪がある限界以上を越えたと思われる温度で割れてしまうのが認められた。

Sintered Pellet after Thermal Shock Test
Photo. 8

被覆管を覆った場合でも、一たん割れを生じた後は、熱歪に対する逃げが生じるので、同じような熱衝撃を2度3度繰り返しても、割れがさらに一層進むというようなことはなかった。

焼結ペレットの場合に対比して、同じ条件で粉末充填型燃料に熱衝撃を与えたところ、焼結ペレットとは異なり、クラックを生ずるようなことはなく、振動充填燃料を含めた粉末充填型燃料の熱歪抵抗の大きいことがわかった。

以上の実験結果を考慮して、振動充填燃料のクラック発生機構についても、もう1度検討してみると、つぎのようになる。振動充填燃料が中心温度の急激な上昇による熱歪によってクラックを生じるという、第1の可能性はまず考えなくてもよいようである。つぎに、第1回目のサイクルで焼結した部分が、第2回目以後に熱歪で割れるという、第2の可能性であるが、この可能性は考慮に入れる必要がある。第3の、焼結収縮による空隙がクラックとして認められるという考え方は、最も無理のない考え方であって、第2の可能性と共に振動充填燃料のクラックの生成機構として主要な役割を果たしていると考えられる。

V. 総 括

以上、述べてきた事柄を総括するとつぎのとおりである。

- (1) 中心加熱後の組織は、被覆管に近い低温部分では、製造時の組織すなわち粉末集合体の組織を示すが、中心に近づくにつれて高温になるため、次第に粉末集合体組織より焼結体組織に変化しているのが認められた。
- (2) 振動充填燃料体の柱状結晶粒領域で、焼結ペレット燃料の場合よりも大きいサイズのレンズ状気孔が認められた。このレンズ気孔は融点に近い部分よりも、むしろ2,000°~2,300°Cの温度にあった部分で、燃料の中心軸のまわりに環状に多数存在していることも認められた。
- (3) 径方向のクラックは、 UO_2 が焼結固化して

いる部分に存在するものであって、外縁部の焼結していない部分を貫通するものは認められなかった。

- (4) 燃料温度の上昇によって、径方向のクラックが燃料体の中心軸に垂直に生じたが、円周方向のクラックは焼結ペレットあるいはスウェージ燃料と異なり、外縁部に不連続に入っているのが認められた。なお、振動充填燃料体に見られるクラックは、熱歪によるクラックというよりも、焼結収縮によって生じた空隙と考えられる。

三菱原子力工業(株)研究所長 大井上 博博士は本報の公表を許可せられ、杉本一六研究所副長、渡辺孝章博士には本研究の遂行にあたり有益なご配慮を賜った。さらに、永田定義技師、相沢 剛氏、小田島 大夫氏には本研究の遂行に多大の援助を賜った。

以上の諸氏に対し、著者らは、ここに深甚なる謝意を表する。

なお、本研究は昭和38年度原子力平和利用補助金研究の一環として行なわれたものである。

(本研究は日本原子力学会昭和39年年会において口頭発表された。)

(1964年 9月14日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) V.B.LAWSON, J.R.MAC EWAN: AECL-994, (1960).
- (2) W.C.THURBER: CEND-153, Vol. II, 39 (1962).
- (3) R.C.BRAYER, B.E.MURTHA: CEND-153, Vol. I, 46 (1962).
- (4) K.NARUKI: J.Nucl. Sci. Technol., 1, [2], 65 (1964).
- (5) R.L.EICHINGER: CEND-153, Vol. I, 158 (1962).
- (6) S.TAKAHASHI, N.ASAMI: This Journal, 5, [2], 133~140 (1962).
- (7) E.A.EVANS: CEND-153, Vol. I, 3 (1962).
- (8) S.TAKAHASHI, et al.: This Journal, 6, [7], 393~399 (1964).
- (9) W.B.LEWIS, et al.: A/Conf., 28/P/19, (1964).

放 射 線 計 測 講 習 会 ・ テ キ ス ト

昨年3月23~26日開催の第2回講習会の講義テキストで、ご利用の会員には実費頒布しています。マルチ実習テキストもご希望の方には付録とします。お申込みは事務局へ。

1. 放射線検出器	2. 電子回路	3. 放射線測定概論	9. 多重波高分析器(一般)
4. 放射線および放射能標準			10. 多重波高分析器(動作と電子回路)
5. 放射線モニタリング	6. 原子炉核計装		11. 多重波高分析器(測定)
7. 炉物理計測	8. 応用放射線計測		1部 1,000円(会員外1,500円) 千70円