

報告番号

※ 甲第1143号

## 主論文の要旨

題名 *Defects and Induced Densification in Neutron  
Irradiated Uranium Dioxide*

(=酸化ウラニの照射欠陥の挙動と照射焼きしり)

氏名 中江延男

## 主論文の要旨

報告番号

※甲第1143号

氏名

中江延男

二酸化ウラン( $UO_2$ )の熱中性子照射効果の基礎研究は、 $UO_2$ が現在軽水炉燃料として使用されているにもかかわらず非常に乏しい。本研究は、 $UO_2$ における照射欠陥の挙動と照射焼きしまりに対する有益な情報を得ることを目的として $UO_2$ の照射効果に関する基礎研究を行った。本研究の主な目的は、 $UO_2$ 燃料における焼きしまりの照射量依存性を低照射領域における実験結果から予測することである。

本研究の基礎となる格子間原子及び空格子濃度を推定するために格子定数、密度、気孔率の照射後変化を測定した。上記の他格子歪み、電気伝導度及び熱電能を含むこれらの物性値の照射量依存性を、 $1 \times 10^{14} \sim 1 \times 10^{19}$  fissions/cm<sup>3</sup>の照射領域で明確にしこれらの実験結果から焼きしまりに対するモデルを提案し、その照射量依存性を空格子濃度より予測した。

本研究に用いた試料は、水素雰囲気中1700°Cで焼結されたものを某メーカーから購入したものである。O/U比は、粒径が2.5  $\mu$ m, 5  $\mu$ mのものについてそれぞれ2.002, 2.004である。照射は、約 $1 \times 10^{18}$  fissions/cm<sup>3</sup>までの照射領域についてはJRR-2及び3で、また約 $1 \times 10^{19}$  fissions/cm<sup>3</sup>の照射は、JMTRで行った。照射温度はJRR-2, 3の場合は150°C以下であり、JMTRの場合は300°C程度と推定される。

本研究の結果を要約すると以下のようである。

# 主論文の要旨

報告番号 ※甲第 号 氏名 中江延男

## (1) 格子定数、格子歪み

格子定数の照射後変化には、明確な3段階(これを第1段階、第2段階、第3段階と呼ぶ)の存在を見出した。最初の2段階では格子定数は、それぞれの段階で増加し、飽和に達した。第3段階では格子定数は減少した。格子定数の増加は、一次欠陥及び二次欠陥の生成によるものであり、第3段階における減少は、不安定な格子間原子とこの段階で新たに生成された空格子との再結合によるものであると考えた。この第3段階でのモデルの妥当性を後で示す空格子濃度の推定により明らかにした。第1段階での一次欠陥の生成は、一次反応の速度式で、また第2段階の二次欠陥の生成及び第3段階での再結合は、二次反応の速度式で表現されると考え、この考え方に基き、各段階の格子定数の照射後変化に対して照射量依存式を提案した。そしてこれらの照射量依存式が実験結果を反映することを確かめ、さらには、1核分裂当り影響を受ける体積を、各段階において求めた。

格子定数変化に対するモデルの妥当性を確かめるため、種々の照射量で照射した  $UO_2$  の格子定数の回復実験を行った。第1段階での格子定数の伸びは  $500^\circ C$  までに完全に回復し、2種類の欠陥がこの段階で生成されることを明らかにした。第2段階まで照射した試料では  $500^\circ C$  では回復しないような安定な欠陥が生成されていること、また第3段階まで照射した試料では欠陥は照射中に幾分回復していることを明確にした。

# 主論文の要旨

報告番号 ※甲第 号 氏名 中江延男

一方、格子歪みは、 $1 \times 10^{15}$  fissions/cm<sup>3</sup>までの照射により、回復することを見い出した。この低照射領域における格子歪みの回復は UC、UN のような他のセラミック燃料では見い出されていない。この歪みの回復は  $UO_{2+x}$  の格子内に存在していた過剰酸素原子の照射による再配置によるものと考え、電気伝導度及び熱電能により検証した。その後、格子歪みは照射量と共に増加し、格子定数の減少する第3段階では格子歪みも減少することを見い出した。

## (2) 密度(体積)

密度測定は X<sub>γ</sub>-キシレン浸漬法により行った。

密度変化は、体積変化と直接対応づけられる。体積は約  $5 \times 10^{16}$  fissions/cm<sup>3</sup> で  $\Delta V/V$  が最大 1.77% まで増加することを見い出した。これは原子炉起動時での燃料ピンの長さ増加のピークと対応しており、この体積膨張は、ペレット-被覆管の機械的相互作用と関連を持つであろうと推察される。この体積膨張に対する FP ガス原子の影響は無視される。体積減少すなわち照射焼きしまりは、この体積増加の後に起ることを見い出した。体積変化の機構については、以下で議論する。

## (3) 電気伝導度、熱電能

電気伝導度、特に熱電能の照射後実験結果はほとんどない。

## 主論文の要旨

報告番号 ※甲第 号 氏名 中江延男

急激な伝導度の減少が  $1 \times 10^{15}$  fissions/cm<sup>3</sup> までの照射領域で起り、その後伝導度は  $1 \times 10^{18}$  fissions/cm<sup>3</sup> までゆるやかに増加し、 $1 \times 10^{18}$  fissions/cm<sup>3</sup> を越えた照射領域でさらに急激に増加することを見出した。一方熱電能は照射初期において減少し、その後  $6 \times 10^{17}$  fissions/cm<sup>3</sup> まで一定となり再び減少することを見出した。

伝導度及び熱電能の照射初期に減少する照射量範囲は格子歪みの減少する範囲と一致している。このことから伝導度、熱電能の照射による減少は主として格子間酸素原子-空格子複合体 ( $O_i - O_v - O_i$ ) の分解によると考える。伝導度及び熱電能の  $1 \times 10^{15}$  fissions/cm<sup>3</sup> 以上の照射領域での変化の挙動は未照射の  $UO_{2+x}$  の  $700^\circ\text{C}$  以上の温度範囲での変化の挙動とよく対応しており、とくに  $1.90 \times 10^{18}$  fissions/cm<sup>3</sup> の高照射における急激な伝導度の増加は、熱電能が正で P 型の伝導を示すことから P 型のエクストリニシクからイントリニシクへ変化するためと考え、電気的性質における照射効果と温度上昇効果が類似するものと推論された。

### (4) 照射欠陥濃度

$UO_2$  の核分裂片損傷の結果、多量の格子間原子及び空格子 (ウラン原子及び酸素原子の両方を含む) が生成される。この欠陥特に空格子濃度の推定は、照射下の燃料の拡散に関連する諸物性、例えば、拡散、焼きしまり、フリーフを理解する上で重要である。格子間原子及び空格子濃度は、先に

## 主論文の要旨

報告番号

※甲第

号

氏名

中江延男

示した格子定数及び体積変化の結果から結晶内での弾性連続体モデルによる式を用いることにより算出した。

格子間原子及び空格子は照射初期においてはほとんど同程度に増加し、一次欠陥の飽和後空格子は急激に増加した。この段階では格子間原子が粒境界、転位表面もしくは格子間原子集合体等のシンクへ逃散し、空格子とシンクに逃散した原子からなるショットキー型の欠陥が圧倒的に生成される。何故ならば先に述べた大きな体積増加は、このようなショットキー型の欠陥による以外には考えられないからである。高照射領域では格子間原子濃度は減少し、一方空格子濃度は一定もしくはわずかに減少する。またこの照射領域における多量の空格子が急激な体積減少(焼きしまり)に寄与するものと考えた。

### (5) 気孔率(焼きしまり)

焼きしまりの問題を明確にするためには、気孔のサイズ分布及び気孔率の照射前後での変化を知ることは重要である。径が $10\mu\text{m}$ 以下の小さな気孔はよく焼きしまることが観察され、小さな気孔の消滅が主に焼きしまりに寄与することが結論された。この結果は従来の研究者による報告とよく一致した。密度変化の測定において $1 \times 10^{17}$  fissions/cm<sup>3</sup>以上で密度増加(体積減少)を見出したが、この段階で気孔率の減少が顕著となることを見出し、この段階から焼きしまり(密度増加)が開始されていることを見出した。

本研究で得られた結果から照射焼きしまりに対して

# 主論文の要旨

報告番号

※甲第

号

氏名

中江延男

以下のような機構を考えた。照射焼きしめは照射による格子原子の気孔への促進拡散の結果気孔が縮小するため生じるという考え方である。この考察は気孔の直接観察により明確となっている。この機構は空格子濃度が非常に大きいという条件のもとに起こることが期待でき、焼きしめの照射量依存を密度変化( $\Delta d$ )、空格子濃度( $G$ )及び照射時間( $t$ )を用いる式により予測した。その理論式は以下のものである。

$$\Delta d = (\Delta d_s^S + \Delta d_c^S) - \Delta d_s^S \exp\{-k_s G (t - t_i)\} - \Delta d_c^S \exp\{-k_c (t - t_i)\}$$

この理論式はハルトニで提案された実験式とよく対応している。