

JAERI-M
8892

レーザーフラッシュ法によるU-Pu混合
炭化物の熱伝導度測定

1980年6月

福島 奨・阿部 治郎

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

レーザーフラッシュ法によるU-Pu混合炭化物の熱伝導度測定

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

福島 奨・阿部 治郎

(1980年5月13日受理)

焼結増進のために0.1wt%Niを添加した($U_{0.8}, Pu_{0.2}$)Cについて、温度範囲450°~1600°Cでレーザーフラッシュ法によって熱拡散率を測定し、熱伝導度を求めた。その結果得られた熱伝導度は、500°~1600°Cで温度とともにほぼ直線的に増大し、450°Cで0.144W/cm°C、600°Cで0.158W/cm°C、1100°Cで0.185W/cm°C、1600°Cで0.212W/cm°Cであった。この結果は、最近の文献値と±10%以内で一致した。

レーザーフラッシュ法による熱拡散率の測定精度は、試料面の平行度に大きく依存する。このためU-Pu炭化物ペレットから平行度の優れた試料の作成法を考案した。

Thermal Conductivity Measurement of U-Pu Mixed
Carbide by Laser Flash Method

Susumu FUKUSHIMA and Jiro ABE

Division of Nuclear Fuel Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received May 13, 1980)

Thermal conductivity of sintered $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C$ added 0.1 wt.% Ni as a sintering aid was determined in the temperature range of from 450° to 1600°C by measurement of the thermal diffusivity by the laser flash method. The thermal conductivity increased linearly with the temperature; i.e. 0.144 W/cm °C at 450°C, 0.158 W/cm °C at 600°C, 0.185 W/cm °C at 1100°C and 0.212 W/cm °C at 1600°C. The values fall within ±10% of the values recommended in the reviews on $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C$.

Accuracy in the thermal diffusivity measurement by the laser flash method sensitively depends on plane parallelism of the specimens. A technique was derived of preparing the specimen with excellent parallel surfaces easily from a U-Pu mixed carbide pellet.

Keywords: Uranium-Plutonium Mixed Carbide, Thermal Conductivity,
Thermal Diffusivity, Laser Flash Method, Glovebox

目 次

| | |
|--------------------|---|
| 1. はじめに | 1 |
| 2. 実験方法 | 2 |
| 2.1 試料 | 2 |
| 2.1.1 試料調製 | 2 |
| 2.1.2 測定試料作成 | 2 |
| 2.2 装置および測定 | 4 |
| 2.2.1 装置 | 4 |
| 2.2.2 測定 | 4 |
| 3. 結果および考察 | 5 |
| 4. まとめ | 8 |
| 参考文献 | 9 |

Contents

| | |
|--------------------------------------|---|
| 1. Introduction | 1 |
| 2. Experimental Procedure | 2 |
| 2.1. Sample | 2 |
| 2.1.1. Sample Preparation | 2 |
| 2.1.2. Sample Formation | 2 |
| 2.2. Apparatus and Measurement | 4 |
| 2.2.1. Apparatus | 4 |
| 2.2.2. Measurement | 4 |
| 3. Result and Discussion | 5 |
| 4. Summary | 8 |
| References | 9 |

図 表 リ ス ト

- 図 1 焼結増進剤として 0.1 wt % Ni 添加した ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$)C の X 線回折図形
- 図 2 焼結増進剤として 0.1 wt. % Ni を添加した ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$)C ペレット (Ar 中 1500°C で 1 時間焼結後, 真空中 1600°C で 2 時間熱処理した) の顕微鏡写真
- 図 3 円柱状焼結ペレットからの試料切断手順
- 図 4 装置のブロックダイアグラム
- 図 5 理論密度 100% に標準化した ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$)C の熱拡散率の温度変化
- 図 6 理論密度 100% に標準化した ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$)C の熱伝導度の温度変化
- 図 7 ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$)C の熱伝導度に対する格子および電子伝導寄与分
- 表 1 熱伝導度測定前後における試料の特性
- 表 2 切断試料表面の反射率
- 表 3 切断試料の厚さ方向の平行度
- 表 4 理論密度 97.0% の ($U_{0.8}$, $Pu_{0.2}$)C 焼結体の熱拡散率および熱伝導度

Figure and Table Captions

- Fig. 1 X-ray diffraction pattern of $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$ with 0.1 wt.% Ni sintering aid
- Fig. 2 Microstructure of $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$ pellet with 0.1 wt.% Ni sintering aid, sintered at 1500°C for 1 h in Ar and annealed at 1600°C for 2 h in vacuum
- Fig. 3 Procedure of sample slicing from a cylindrical sintered pellet
- Fig. 4 Block diagram of the apparatus
- Fig. 5 Thermal diffusivity of $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$ normalized to 100% of theoretical density as a function of temperature
- Fig. 6 Thermal conductivity of $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$ normalized to 100% of theoretical density as a function of temperature
- Fig. 7 Lattice and electronic components of the thermal conductivity of $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$
- Table 1 Characteristics of the sample before and after thermal conductivity measurement
- Table 2 Refractivity at surface of the sample
- Table 3 Thickness of the sample
- Table 4 Thermal diffusivity and thermal conductivity of sintered $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$ with 97.0% of theoretical density

1. はじめに

U-Pu 混合炭化物燃料は高速増殖炉用新型燃料 (Advanced fuel) として有望視されている。その理由の一つに熱伝導度が混合酸化物燃料に比べて 3~5 倍高いことが挙げられている。しかし、熱伝導度は同じ炭化物系物質においても組成、不純物の種類およびその濃度、高次炭化物の第 2 相の量およびその形状、気孔の形状およびその大きさの分布などに依存する。ところが熱伝導度に及ぼすこれらの因子の定量的効果についてはほとんど解明されていない。とくに 1400°C 以上では皆無に近い¹⁾。このため U-Pu 混合炭化物系燃料の開発研究をすすめている原研大洗研究所燃料研究棟では、レーザフラッシュ法による熱伝導度測定装置を設計、製作し、その性能を非放射性物質を用いて明らかにした²⁾。その結果、レーザフラッシュ法は他の測定法に比べて試料が少量 (約 1 g) でよい、および測定時間が短い (数 10 秒) などの利点を持ち、貴重な Pu の節約および安全性の見地から、Pu 含有物質の測定に適した方法であることが判った。しかし、実際に U, Pu 炭化物を用いて、測定に供する試料の作成技術を確率すること、および適正測定条件を決定することは、一連の炭化物燃料の熱伝導度の研究を効率よくすすめるうえで欠くことのできない前段階である。とくに、つぎのような Pu 炭化物特有の問題点を解決する必要がある。

- (1) フラッシュ法によって測定される 1 次データの熱拡散率 (α) の測定精度は、次式からわかるように試料の厚さ (L) の精度の自乗で効いてくる³⁾。

$$\alpha = \frac{AL^2}{\pi t_{1/2}} \quad (1)$$

ここで、 A は定数、 $t_{1/2}$ は試料前面にレーザ照射後試料裏面の温度上昇が最高値の $1/2$ に達するまでの時間である。したがって、厚さの小さい試料 (U, Pu 炭化物の最適厚さ 1~2 mm) では試料の作成寸法精度 (とくに両面の平行度) が重要になる。一般に、測定に供する試料片は焼結ペレットのような固形体から加工 (研削, 切断および研磨) して作成する方法が採られる。グローブボックス (以下 GB と略す) 内で所定の小さな形状および寸法に試料を精度よく加工するためには、グローブによる作業性の悪さを考慮すると特別な精密加工装置が必要になる。

- (2) U, Pu 炭化物は化学的にきわめて活性な物質で、固体状のものを空気中で取扱った場合、室温においても酸素および水分と容易に反応して表面に炭酸化物および酸化物などの変質層を形成する。これらの変質物は炭化物に比べて熱伝導度が小さいので、測定値は見掛け上小さくなる。したがって、試料作成期間中の酸化による試料の変質を防ぐためには高純度不活性ガス雰囲気 GB が必要になる。(1), (2) で述べたような加工装置および GB を整備することは、製作費および製作に伴う労力がきわめて大きいので非現実的である。
- (3) U, Pu 炭化物固形体の平滑表面は、金属光沢をしているため照射レーザ光に対する反射率が大きい。その結果、レーザによって与えられた熱のうち試料表面で吸収される実効熱量が小さくなるため試料裏面での温度変化は小さくなり、測定精度は低下する。

レーザーフラッシュ法によるU-Pu混合炭化物の熱拡散率および熱伝導度の測定結果についてはすでに2, 3報告されているが,^{1,4)}いずれも欧米に限られている。しかも、これら測定値は他の測定法で測定した文献値に比べて小さい。

以上の理由から、上述した試料作成および測定上の問題点を解決し、実際に原研大洗研究所燃料研究棟で調製した(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体の熱伝導度を温度範囲450°~1600°Cで測定し、文献値と比較検討した。

2. 実験方法

2.1 試料

2.1.1 試料調製

以下に述べるU-Pu混合炭化物ペレットの全調製工程は、循環精製装置付高純度Arガス雰囲気GB(O₂:2ppm, H₂O:3ppm)内で行われた。U-Pu混合炭化物〔Pu/(U+Pu)=0.2〕はUO₂粉末、PuO₂粉末および黒鉛粉末(原子炉級天然黒鉛)(酸化物に対して2.95mole%)を機械混合し、その圧粉体を真空中、1500°Cで4時間反応するいわゆる炭素還元法によって調製した。ついで、U-Pu炭化物は粉碎(-250メッシュ)後、焼結増進剤として0.1wt.%Ni粉末および成型時の粘結潤滑剤としてポリエチレングリコール(6000)0.25wt.%を混入し、円柱状ペレット(12mmφ×約13mm高さ)に成型(4ton/cm²)した。成型体は高純度Arガス(O₂:2ppm以下, H₂O:3ppm以下)気流中、1500°Cで1時間焼結した。さらに、焼結ペレットは、レーザーフラッシュ法による熱拡散率測定条件(真空中、最高加熱温度1600°C)に合わせて真空中、1600°Cで2時間熱処理をした。その結果得られたペレットのかさ密度は、外形寸法および重量測定から求めた。また、X線回折試験および金相試験結果は、Fig. 1, 2およびTable 1に示すように主相は(U, Pu)Cであるが、微量の(U, Pu)₂C₃相および痕跡程度の(U, Pu)O₂相が共存している。X線回折はCu-Kα線を用いた粉末ディクラクトメータ法によって行った。回折時の粉末試料の酸化による変質を防ぐため、回折用試料は文献5)にすでに報告した方法によって作成した。格子定数は、高角度(2θ>90°)の各回折線から求めた $a=f(\cos^2\theta)$ をθ=90°に最小自乗法で外挿することによって求めた。成分元素の定量結果はTable 1に示したとおりである。UおよびPuは電位差適定法によって、CおよびOは文献6)および7)に述べられている高周波加熱電量法および不活性ガス融解電量法によってそれぞれ定量した。

2.1.2 測定試料作成

測定に供する試料は、普通のパネル型空気雰囲気GBをOnce-through方式でArガス(O₂:2ppm以下, H₂O:3ppm以下)で置換しながら円柱状焼結ペレットから次のような手順で作成した。作成中のGB内雰囲気ガス純度は、酸素濃度をセラミック式酸素メータで連続測定することによって調べた。その結果、試料作成期間中の酸素濃度は10ppm以下であっ

レーザフラッシュ法によるU-Pu混合炭化物の熱拡散率および熱伝導度の測定結果についてはすでに2, 3報告されているが,^{1,4)}いずれも欧米に限られている。しかも、これら測定値は他の測定法で測定した文献値に比べて小さい。

以上の理由から、上述した試料作成および測定上の問題点を解決し、実際に原研大洗研究所燃料研究棟で調製した(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体の熱伝導度を温度範囲450°~1600°Cで測定し、文献値と比較検討した。

2. 実験方法

2.1 試料

2.1.1 試料調製

以下に述べるU-Pu混合炭化物ペレットの全調製工程は、循環精製装置付高純度Arガス雰囲気GB(O₂:2ppm, H₂O:3ppm)内で行われた。U-Pu混合炭化物〔Pu/(U+Pu)=0.2〕はUO₂粉末、PuO₂粉末および黒鉛粉末(原子炉級天然黒鉛)(酸化物に対して2.95mole%)を機械混合し、その圧粉体を真空中、1500°Cで4時間反応するいわゆる炭素還元法によって調製した。ついで、U-Pu炭化物は粉碎(-250メッシュ)後、焼結増進剤として0.1wt.%Ni粉末および成型時の粘結潤滑剤としてポリエチレングリコール(6000)0.25wt.%を混入し、円柱状ペレット(12mmφ×約13mm高さ)に成型(4ton/cm²)した。成型体は高純度Arガス(O₂:2ppm以下, H₂O:3ppm以下)気流中、1500°Cで1時間焼結した。さらに、焼結ペレットは、レーザフラッシュ法による熱拡散率測定条件(真空中、最高加熱温度1600°C)に合わせて真空中、1600°Cで2時間熱処理をした。その結果得られたペレットのかさ密度は、外形寸法および重量測定から求めた。また、X線回折試験および金相試験結果は、Fig. 1, 2およびTable 1に示すように主相は(U, Pu)Cであるが、微量の(U, Pu)₂C₃相および痕跡程度の(U, Pu)O₂相が共存している。X線回折はCu-Kα線を用いた粉末ディクラクトメータ法によって行った。回折時の粉末試料の酸化による変質を防ぐため、回折用試料は文献5)にすでに報告した方法によって作成した。格子定数は、高角度(2θ>90°)の各回折線から求めた $a=f(\cos^2\theta)$ をθ=90°に最小自乗法で外挿することによって求めた。成分元素の定量結果はTable 1に示したとおりである。UおよびPuは電位差適定法によって、CおよびOは文献6)および7)に述べられている高周波加熱電量法および不活性ガス融解電量法によってそれぞれ定量した。

2.1.2 測定試料作成

測定に供する試料は、普通のパネル型空気雰囲気GBをOnce-through方式でArガス(O₂:2ppm以下, H₂O:3ppm以下)で置換しながら円柱状焼結ペレットから次のような手順で作成した。作成中のGB内雰囲気ガス純度は、酸素濃度をセラミック式酸素メータで連続測定することによって調べた。その結果、試料作成期間中の酸素濃度は10ppm以下であっ

た。

- (1) 円柱状(U, Pu)Cペレットを端面が側面に対して垂直な金属棒(直径:ペレットの直径より1~2mm大きい,長さ:300~500mm)にFig. 3(1), (2)に示すように瞬間接着剤で接着する。この円柱棒は小さいペレットを寸法的に補足して,後述する切断機の試料固定部への装着を容易にすることを目的としている。
- (2) 内径がペレットの直径より僅かに大きい(0.1~0.2mm)透明アクリル製円筒(高さ:ペレットの高さと同等または僅かに大きい,厚さ:約1mm)をFig. 3(3)に示すようにペレットに装着する。この円筒装着は,焼結U-Pu混合炭化物ペレットが硬くてもろいので,切断時の試料の破損を防止するための補強および軟質なアクリルによって切断刃の横すべりを防ぐことを目的としている。したがって,ペレットと円筒に隙間がある場合または両者の固定が不十分な場合は,少量の接着剤(たとえばセメダイン)で固定する。
- (3) 測定用試料は,ペレットをアクリル円筒とともに径方向にダイヤモンド切断機で切断することにより,ペレット中央部から採取した。この場合,ペレットを切断刃に対して垂直方向に移動して2回切断することによって薄い円板状試料1片が得られる。測定用試料に隣接した2個のペレット片はX線回折試験,化学分析および金相試験の試料として供した。切断機はダイヤモンド粉末(粒度:約150 μ m)埋込み刃(直径100mm ϕ ×厚さ0.3mm,コンティニウアス・リム型)を有する市販の小型でしかも低速運転(任意可変)型のものである。研削油には安全性を考慮して引火点が高く(154 $^{\circ}$ C)しかも蒸気圧が低い(室温で約 1×10^{-3} mmHg)非水溶性油(ユニロンオイル-CG)を使用した。油はあらかじめ金属ナトリウムで混入水分除去処理をした。切断時の刃にかかる荷重および刃の回転速度は,試料切断面の平滑度をそこなわないため30g以下および約50rpmがそれぞれ最適であった。この条件で直径約10mm ϕ の炭化物ペレットを切断するのに要した時間は30~40分であった。
- (4) 切断試料は有機溶媒(たとえばアセトン)中で短時間(約10秒)超音波洗浄することによって試料に付着した研削油および接着剤を除去した。
- (5) 試料は厚さ測定および秤量後気密容器に格納して熱伝導度測定GBに移動し,直ちに

Once-through方式によるArガス置換雰囲気中で試料加熱炉内に装荷し真空排気した。以上の手順で得られた円板状試料の切断面は,にぶい金属光沢をした平滑面であった。He-Neレーザー光(波長0.64 μ m,光径3mm ϕ)に対する鏡面反射率測定法によって測定した室温における切断面の反射率は,Table 2に示すように約68%で全面ほぼ均一であった。これは試料表面に照射したルビーレーザーエネルギーの約32%が吸収され,しかも全面で一様に吸収されることを示している。また,マイクロメータ(最小目盛 1×10^{-3} mm)で測定した試料の厚さのばらつきは,Table 3に示すように 3×10^{-3} mm以内であった。これは試料の厚さ方向の平行度の誤差に相当し,これによる熱拡散率の測定誤差は $\pm 1\%$ 以内である。以上の結果は,切断試料をそのまま測定に供して問題がないことを示している。研磨紙を用いての手研磨による試料切断面の仕上げは,試料が小さくまた作業性が悪いためかえって平滑度および平行度を悪くする原因となった。試料1片を作成するために損耗(切削油中に混入)したPu量は約0.1gであった。これはPu最少計量管理単位

に相当する。手順(1)~(4)に伴う試料の酸化による変質はX線回折試験では認められなかった。

2.2 装置および測定

2.2.1 装置

本研究で使用したレーザーパルス法による熱拡散率測定装置のブロックダイアグラムはFig. 4に示すとおりで、その詳細は文献(2)ですでに報告した。構成装置のうち試料加熱炉のみをGB内に格納し、その他の構成機器はGB外に設置しているので定常測定操作が容易である。レーザーにはルビーレーザー(光束径10mmφ、波長6943Å)を使用している。レーザー照射に伴う試料表面の温度変化は液体窒素冷却型PbS光電導セルによって検出されるので、検出感度が高い。試料表面温度の時間変化は高速記憶器に一旦記憶させたあと記録計に記録する。また、レーザーの発射点($t=0$)を検出する回路を設けているので、温度変化曲線からの $t_{1/2}$ 読みとり精度が高い。試料温度はPt-20%Rh/Pt-40%Rhの熱電対で校正した二色光温計によって測定する。その結果、純鉄およびAXM-5Q黒鉛(米国POCO社製、密度:1.69g/cm³)を標準試料として測定した熱拡散率は、温度500°C~1800°Cで文献値と3%以内で一致した。

2.2.2 測定

α 線による自己損傷がPu含有物質の熱伝導度に及ぼす効果については明らかでない。しかし、格子定数、格子の振動スペクトルおよび電気伝導度は、 α 粒子の通過に起因する多くの格子欠陥の生成によって影響を受けることが報告されている⁸⁾。したがって、格子および電子伝導の寄与を受けるU-Pu炭化物の熱伝導度は自己損傷によって影響を受けることが考えられる。この理由から、試料は測定に先立ち自己損傷を回復するため試料加熱炉内で真空中(5.0×10^{-6} Torr以下)、1200°Cで2時間焼なまし処理をした。

熱拡散率は真空中($8.0 \times 10^{-7} \sim 6.0 \times 10^{-6}$ Torr)、温度範囲450°C~1600°C、温度間隔約50°Cで昇、降温両過程で測定した。測定時の試料温度は一定(1000°Cで±0.1°C以下)に保持した。熱拡散率は(1)式を用いて計算した。本研究では $t_{1/2}$ が40 msec以上になるように試料の厚さ(L)を決定している。これはレーザーパルス巾600 μ secに比べて50倍以上と十分に大きいのでパルス巾の効果は無視できる。(1)式のAは輻射による試料からの熱損失が小さくて、次の条件を満足するときは1.37に等しいとした⁹⁾。

$$\frac{\Delta T_{10t_{1/2}}}{\Delta T_{\max}} \geq 0.9$$

ここで、 $\Delta T_{10t_{1/2}}$ はレーザー照射10 $t_{1/2}$ 後の試料表面の温度変化、 ΔT_{\max} はレーザー照射に伴う試料表面の最大温度変化である。一方、輻射による熱損失が大きい($\Delta T_{10t_{1/2}}/\Delta T_{\max} < 0.9$)とき、AはCowanの方法¹⁰⁾によって決定した。

一般に、レーザーフラッシュ法による熱伝導度測定では、試料表面におけるレーザー光の吸収を高

めかつ吸収熱量を一樣にするために試料照射面にコロイド状炭素塗布または炭素を真空蒸着する方法が採られる。しかし、真空中、高温(1000°C以上)では炭素被膜の剥離および消失が起る。また、1200°C以上では試料と炭素との反応が無視できなくなる。このため本研究では切断したまゝの試料で測定した。

3. 結果および考察

温度範囲450°~1600°Cで測定した(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの熱拡散率の温度変化をTable 4に示す。試料の厚さの温度変化は、AndrewおよびLatimer¹¹⁾が推奨している温度範囲25°~1400°Cにおける(U_{0.8}, Pu_{0.2})C_{0.95}+0.1%Niの線熱膨張係数を用いて求めた。また、温度範囲1400°~1600°Cについては外挿法により求めた線熱膨張係数から計算した。Fig. 5は、MoserおよびKruger⁴⁾が提案している次式のようなMaxwellの改良式を用いて100%理論密度(以下、TDと略す)に熱拡散率の温度変化を示す。

$$\alpha_T = (1 + 0.5 p) \alpha_M \quad (2)$$

ここで、 α_T は100%TDの熱拡散率、 α_M は測定熱拡散率、 p は気孔率である。Fig. 5に示したMoserらの結果は7.48%TDの(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体(C: 4.66 wt.%, O: 0.202 wt.%, N: 0.0206 wt.%)で、ルビーレーザーを用いたフラッシュ法によって測定し、(2)式を用いて100%TDに標準化している。本研究結果は、Moserらの結果に比べて500°Cで約14%、1000°Cで約19%および1600°Cで約25%大きい。しかも、測定値のばらつきが小さい。LewisおよびKerrisk¹⁾は、Moserらの低密度試料に(2)式を適用して100%TDに熱拡散率を標準化することは精度的に疑しいことを指適している。

昇、降温両過程で測定した熱拡散率はよい一致を示している。これは測定前後における試料の重量およびTable 1に示したようにX線回折結果に違いが認められないことと合せて、測定中に試料の顕著な組成変化がなかったことを示している。この結果は測定前後でPu濃度が0.7wt.%減少したため昇、降温過程で測定値に履歴が生じたWheelerらの結果¹²⁾と異なる。この理由として本研究に供した試料は、あらかじめ測定条件と同じ条件で十分に熱処理されたので平衡状態にあったためと考えられる。

(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの熱伝導度は次の関係式を用いて測定した熱拡散率(α_M)から求め、その結果をTable 4に示した。

$$K = 4.186 \alpha_M D C_p \quad (3)$$

ここで、 K は熱伝導度(W/cm·°C)、 D は密度(g/cm³)、 C_p は比熱(cal/g·°C)である。密度の温度変化は前述したAndrewらの線熱膨張係数を用いて計算により求めた。また、(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの比熱はTetenbaumら¹³⁾によって推奨されている比熱を用いた。この比熱は(U, Pu)C固溶体にKopp則が適用できると仮定して、次式により彼等が推奨しているU CおよびPu Cの比熱を用いて算出されている。

$$C_p = \sum_i x_i C_{pi} \quad (4)$$

めかつ吸収熱量を一樣にするために試料照射面にコロイド状炭素塗布または炭素を真空蒸着する方法が採られる。しかし、真空中、高温(1000°C以上)では炭素被膜の剝離および消失が起る。また、1200°C以上では試料と炭素との反応が無視できなくなる。このため本研究では切断したまゝの試料で測定した。

3. 結果および考察

温度範囲450°~1600°Cで測定した(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの熱拡散率の温度変化をTable 4に示す。試料の厚さの温度変化は、AndrewおよびLatimer¹¹⁾が推奨している温度範囲25°~1400°Cにおける(U_{0.8}, Pu_{0.2})C_{0.95}+0.1%Niの線熱膨張係数を用いて求めた。また、温度範囲1400°~1600°Cについては外挿法により求めた線熱膨張係数から計算した。Fig. 5は、MoserおよびKruger⁴⁾が提案している次式のようなMaxwellの改良式を用いて100%理論密度(以下、TDと略す)に熱拡散率の温度変化を示す。

$$\alpha_T = (1 + 0.5 p) \alpha_M \quad (2)$$

ここで、 α_T は100%TDの熱拡散率、 α_M は測定熱拡散率、 p は気孔率である。Fig. 5に示したMoserらの結果は7.48%TDの(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体(C:4.66wt.%, O:0.202wt.%, N:0.0206wt.%)で、ルビーレーザーを用いたフラッシュ法によって測定し、(2)式を用いて100%TDに標準化している。本研究結果は、Moserらの結果に比べて500°Cで約14%、1000°Cで約19%および1600°Cで約25%大きい。しかも、測定値のばらつきが小さい。LewisおよびKerrisk¹⁾は、Moserらの低密度試料に(2)式を適用して100%TDに熱拡散率を標準化することは精度的に疑しいことを指適している。

昇、降温両過程で測定した熱拡散率はよい一致を示している。これは測定前後における試料の重量およびTable 1に示したようにX線回折結果に違いが認められないことと合せて、測定中に試料の顕著な組成変化がなかったことを示している。この結果は測定前後でPu濃度が0.7wt.%減少したため昇、降温過程で測定値に履歴が生じたWheelerらの結果¹²⁾と異なる。この理由として本研究に供した試料は、あらかじめ測定条件と同じ条件で十分に熱処理されたので平衡状態にあったためと考えられる。

(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの熱伝導度は次の関係式を用いて測定した熱拡散率(α_M)から求め、その結果をTable 4に示した。

$$K = 4.186 \alpha_M D C_p \quad (3)$$

ここで、 K は熱伝導度(W/cm·°C)、 D は密度(g/cm³)、 C_p は比熱(cal/g·°C)である。密度の温度変化は前述したAndrewらの線熱膨張係数を用いて計算により求めた。また、(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの比熱はTetenbaumら¹³⁾によって推奨されている比熱を用いた。この比熱は(U, Pu)C固溶体にKopp則が適用できると仮定して、次式により彼等が推奨しているU CおよびPu Cの比熱を用いて算出されている。

$$C_p = \sum_i x_i C_{pi} \quad (4)$$

こゝで、 x_i および C_{pi} はそれぞれ i 成分のモル割合および比熱 ($\text{cal/mol} \cdot ^\circ\text{C}$) である。U, Pu 炭化物の熱伝導度の密度補正についてはいくつかの関係式が提案されているが、定説がない。このため本研究では、炭化物において最も多くの研究者によって用いられている次のような Maxwell-Eucken の関係式を用いて、100%TD に標準化した。

$$K_T = \frac{1+p}{1-p} K_M \quad (5)$$

こゝで、 K_M は測定熱伝導度、 K_T は 100%TD の熱伝導度である。その結果得られた熱伝導度の温度変化は、Fig. 6 に示すように温度とともに増大した。これら熱伝導度の値を $K = a + bT + cT^2$ の形で表わされる 2 次式に最小自乗法で適合すると次式のようになる。

$$K = (0.1012 \pm 0.0024) + (1.05 \pm 0.05) \times 10^{-4} T - (2.48 \pm 0.22) \times 10^{-8} T^2 \quad (\text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C}) \quad (6)$$

こゝで、 $450^\circ \leq T \leq 1600^\circ\text{C}$ で、各かっこ内の第 2 項は確率誤差である。

U, Pu 炭化物の熱伝導度において測定値と文献値を定量的に比較するためには、組成、不純物 (種類, 濃度), 共存相 (種類, 量, 大きさ, 形状および分布) および気孔 (量, 大きさ, 形状および分布) などの試料特性を定量的に評価する必要がある。しかも、従来報告されている U-Pu 混合炭化物の熱伝導度はかなり大きな範囲に渡っている。このため Fig. 6 中に比較のため示した文献値は、最近の総説で推奨されているものである。いずれも従来報告されている文献値を評価してまとめられており、次式で与えられている。また、これらはすべて 100%TD に標準化されている。

Lewis および Kerrisk¹⁾ の推奨値は最も新しくしかも従来報告されている全文献値を評価した結果である。信頼精度として $\pm 15\%$ を与えている。

$$500^\circ < T \leq 2300^\circ\text{C} \\ K = 0.1276 + 8.71 \times 10^{-5} T - 1.88 \times 10^{-8} T^2 \quad \text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C} \quad (7)$$

Fulkerson ら¹⁴⁾ は熱伝導に対する電子の寄与および格子の寄与をそれぞれ考察し、次式を提唱している。精度についての記述はないが、満足する文献値は限られている。また適応温度範囲は約 800°C 以下である。

$$K = \frac{L_0 T \times 10^{-2}}{\rho} + \frac{1.97 \times 10^{-1}}{T} \quad \text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C} \quad (8)$$

こゝで、 L_0 は理論的なローレンツ数 ($2.45 \times 10^{-6} \text{W} \cdot \Omega / ^\circ\text{K}^2$), ρ は電気抵抗 (Ω), T は温度 ($^\circ\text{K}$) である。

Washington¹⁵⁾ の推奨式は次のとおりで、その信頼精度は $\pm 15\%$ 以内である。

$$500^\circ < T < 1900^\circ\text{C} \\ K = 0.16 + 3.4 \times 10^{-5} (T - 500) \quad \text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C} \quad (9)$$

その他、Schmidt¹⁶⁾ は具体的な熱伝導度の式を提唱していないが、次のような範囲の値を推奨している。

$$200^\circ\text{C}: 0.13 \sim 0.18 \quad \text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C} \\ 900^\circ\text{C}: 0.14 \sim 0.17 \quad \text{W/cm} \cdot ^\circ\text{C}$$

1200°C: 0.17~0.20 W/cm. °C

以上述べたように推奨値の間でも大きな違いがある。とくに高温になるほど著しくなる。信頼精度(±15%)内ではほぼ一致しているが、(8)式は(6)式に比べて500°Cで約5%, 1000°Cで約9%, 1500°Cで約11%小さい。(7)式は(6)式に比べて500°Cで約11%, 800°Cで約16%とさらに小さい。Schmidtの推奨値は(7)式とほぼ一致しているが、600°C以上では(6)および(8)式に比べて10~20%小さい。

本研究の結果は、LewisおよびWashingtonの推奨値の信頼精度の範囲内(±15%)にある。とくに、温度範囲600~1200°CではWashingtonが推奨している(8)式とよい一致を示している。500~800°Cでは、Fulkersonらが推奨している(7)式およびSchmidtの推奨範囲とほぼ一致している。前述したMoserらは測定した熱拡散率から熱伝導度を計算していないが、著者らが彼等の測定値からTetenbaumら¹⁴⁾およびAndrewら¹¹⁾によってそれぞれ推奨されている(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの比熱および線熱膨張係数を用いて(3)式により計算した結果に比べて本研究結果は20~25%大きい。

U, Pu炭化物は金属的性質を有しているので、その熱伝導度は次式で表わされるように電子伝導の成分(K_e)と格子伝導の成分(K_f)の合計と考えることができる。

$$K = K_e + K_f \quad (10)$$

WilliamsおよびFulkerson¹⁷⁾によると(10)式は、高温において次式で近似的に表わされる。

$$K = \frac{L(T)T}{\rho} + \frac{\eta_1}{T} \quad (11)$$

ここで、L(T)は温度Tにおけるローレンツ関数、ρは電気抵抗、η₁は定数である。しかも、Fulkersonら¹⁵⁾は、(U, Pu)CにおいてL(T)は理論的なローレンツ数、L₀、にほぼ等しいことを実験的に確認している。このため、LearyおよびJohnson¹⁸⁾によって報告されている(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの電気抵抗温度変化を用いて、温度範囲450~800°Cにおける熱伝導度に対する格子伝導の寄与分(K_f)を計算した。その結果は、Fig. 7に示したようにFulkersonらが理論的に考察して求めた結果とよい一致を示している。一方、本結果は温度とともに僅かに増大している。これは計算において試料特性に大きく依存する電気抵抗に文献値を用いたこと、あるいはL(T)に温度に依存しないL₀を用いたことが原因していると考えられる。Fig. 7には、Rewisら¹⁾によって推奨されているUC_{1.0}の熱伝導度および電気抵抗を用いて(11)式により求めたUC_{1.0}の熱伝導度に対する格子伝導の寄与分の温度変化を示した。UC_{1.0}および(U_{0.8}, Pu_{0.2})Cの格子伝導の寄与分の比較から20mol.%PuC固溶による格子伝導成分の減少は、温度範囲500~800°Cで最大約0.01W/cm. °Cであることがわかる。これらは熱伝導度の約5%に相当する。

Learyら¹⁸⁾およびWittenbergら¹⁹⁾は、UCおよび(U, Pu)Cの熱伝導度が焼結増進剤として添加した少量のNiによって低下することを報告している。この原因としてNi添加によって主相に比べて熱伝導度が小さい(U, Pu)₂C₃相が生成するためと考えることができる。しかし、(U, Pu)₂C₃の熱伝導度について定量的なことは現在わかっていない。Rewis¹⁾らが推奨しているU₂C₃+15mol.%UCの熱伝導度はUC_{1.0}の熱伝導度に比べて温度範囲500~1750°Cで28~55%小さい。また、約2000ppm以上の酸素を含有する(U, Pu)

Cの熱伝導度は著しく減少することが多くの研究者によって報告されている^{4,13,20,21)}。この二つの結論は、本測定に供した試料には焼結増進剤として0.1 wt. % Niを添加し、しかも酸素3500 ppmを含有しているので、その熱伝導度は低下する傾向にあることを示している。また、(U, Pu)Cに比べて熱伝導度が小さいUO₂相が微量ながら存在することも定性的に熱伝導度が低下する原因と考えられる。

Johnson²²⁾はU-Pu炭化物の熱伝導度に及ぼす密度の効果を系統的に調べている。その結果、次のようなMaxwell-Euckenの改良式によく適合することを報告している。

$$K_M = \frac{1-P}{1+\beta P} K_T \quad (12)$$

ここで、 β は試料中の気孔の形状および分布に依存する定数で、Johnsonは温度範囲100°~1000°Cで単相の(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体に対し約4を推奨している。しかし、LewisおよびKerrisk¹⁾は(12)式に基づいて密度を補正した熱伝導度はやゝ大き過ぎることを指摘している。事実、高密度試料(97%TD)で得られた本研究結果を(12)式を用いて100%TDに標準化した場合は、(5)式を用いた場合に比べて約9%も大きくなる。このように気孔を含む焼結体の熱伝導度は密度の補正方法によって大きく違ってくる。しかも、Johnsonの結果は密度の補正において温度および気孔の形状、分布などを考慮する必要があることを示している。

500°C付近で熱伝導度が推奨式(7)、(8)および(9)式に比べて僅かに下回っている。これは非定常法で求めた熱伝導度が定常法によって求めた熱伝導度と比べて室温から約500°Cの温度範囲で、Moser¹²⁾およびWittenberg¹⁹⁾の結果を除き低くなる傾向と一致している。その原因については現在解明されていない。

4. ま と め

レーザーフラッシュ法によって測定した温度範囲450°~1600°Cにおける(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体(焼結増進剤として0.1 wt. % Ni添加)の熱伝導度は次のとおりである。

- (1) 熱伝導度は、 $K=0.1012+1.05\times 10^{-4}T-2.48\times 10^{-8}T^2$ W/cm. °Cで表わされるように温度とともに増大した。すなわち、450°Cで0.144 W/cm. °C、600°Cで0.158 W/cm. °C、1100°Cで0.184 W/cm. °C、1600°Cで0.212 W/cm. °Cであった。これらの熱伝導度は最近の文献推奨値と信頼精度(±15%)内の±10%以内で一致した。また、測定値のばらつきは5%以内であった。
- (2) 20 mol. % PuC 固溶による熱伝導度に対する格子伝導の寄与分の減少は5%以下であった。

U-Pu炭化物を対象としたレーザーフラッシュ法による熱伝導度測定用試料の作成方法を考案した。その結果、円柱状焼結体から普通のパネル型GB内で、市販の小型低速回転切断機によって試料の変質およびPuの損耗が少く、しかも加工精度の高い円板状試料が容易に作成できた。

Cの熱伝導度は著しく減少することが多くの研究者によって報告されている^{4,13,20,21)}。この二つの結論は、本測定に供した試料には焼結増進剤として0.1 wt.% Niを添加し、しかも酸素3500 ppmを含有しているので、その熱伝導度は低下する傾向にあることを示している。また、(U, Pu)Cに比べて熱伝導度が小さいUO₂相が微量ながら存在することも定性的に熱伝導度が低下する原因と考えられる。

Johnson²²⁾はU-Pu炭化物の熱伝導度に及ぼす密度の効果を系統的に調べている。その結果、次のようなMaxwell-Euckenの改良式によく適合することを報告している。

$$K_M = \frac{1-P}{1+\beta P} K_T \quad (12)$$

ここで、 β は試料中の気孔の形状および分布に依存する定数で、Johnsonは温度範囲100°~1000°Cで単相の(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体に対し約4を推奨している。しかし、LewisおよびKerrisk¹⁾は(12)式に基づいて密度を補正した熱伝導度はやゝ大き過ぎることを指摘している。事実、高密度試料(97%TD)で得られた本研究結果を(12)式を用いて100%TDに標準化した場合は、(5)式を用いた場合に比べて約9%も大きくなる。このように気孔を含む焼結体の熱伝導度は密度の補正方法によって大きく違ってくる。しかも、Johnsonの結果は密度の補正において温度および気孔の形状、分布などを考慮する必要があることを示している。

500°C付近で熱伝導度が推奨式(7)、(8)および(9)式に比べて僅かに下回っている。これは非定常法で求めた熱伝導度が定常法によって求めた熱伝導度に比べて室温から約500°Cの温度範囲で、Moserら¹²⁾およびWittenberg¹⁹⁾の結果を除き低くなる傾向と一致している。その原因については現在解明されていない。

4. ま と め

レーザーフラッシュ法によって測定した温度範囲450°~1600°Cにおける(U_{0.8}, Pu_{0.2})C焼結体(焼結増進剤として0.1 wt.% Ni添加)の熱伝導度は次のとおりである。

- (1) 熱伝導度は、 $K=0.1012+1.05\times 10^{-4}T-2.48\times 10^{-8}T^2$ W/cm. °Cで表わされるように温度とともに増大した。すなわち、450°Cで0.144 W/cm. °C、600°Cで0.158 W/cm. °C、1100°Cで0.184 W/cm. °C、1600°Cで0.212 W/cm. °Cであった。これらの熱伝導度は最近の文献推奨値と信頼精度(±15%)内の±10%以内で一致した。また、測定値のばらつきは5%以内であった。
- (2) 20 mol.% PuC 固溶による熱伝導度に対する格子伝導の寄与分の減少は5%以下であった。

U-Pu炭化物を対象としたレーザーフラッシュ法による熱伝導度測定用試料の作成方法を考案した。その結果、円柱状焼結体から普通のパネル型GB内で、市販の小型低速回転切断機によって試料の変質およびPuの損耗が少く、しかも加工精度の高い円板状試料が容易に作成できた。

謝 辞

本実験の遂行にあたり終始ご指導いただいた燃料工学部下川純一部長，同部岩本多実次長並びに同部プルトニウム燃料研究室渡辺齊室長に深く感謝の意を表します。また，U-Pu 混合炭化物ペレットの調製にご協力いただいたプルトニウム燃料研究室の鈴木康文，笹山竜雄，荒井康夫の各氏並びに試料の化学分析にご協力をいただいた同研究室の前多厚氏に厚く感謝いたします。

参考文献

- 1) H.D.Lewis and J.F.Kerrisk; LA-6096 (1976)
- 2) 福島 奨, 阿部治郎, 栗原正義; JAERI-M 8299 (1979)
- 3) W.J.Parker, R.J.Jenkins, C.P.Butler and G.L.Abott; J.Appl. Phys., 32, 1679 (1961)
- 4) J.B.Moser and O.L.Kruger; "Thermal Diffusivity of Actinide Compounds," Proc. 7th. Conf. on Thermal Conductivity, National Bureau of Standards, Spec. Pub. 302 (1968), pp. 461~468
- 5) 福島 奨; JAERI-M 8718 (1980)
- 6) 半田宗男, 前多 厚, 塩沢憲一; JAERI-M 8414 (1979)
- 7) 半田宗男, 前多 厚, 矢幡 昭; JAERI-M 8406 (1979)
- 8) K.Mendelssohn, E.King, J.A.Lee, M.H.Rand, C.S.Griffin and R.S.Stre-
et; "Self Irradiation Damage in Transuranic Elements and
Compounds" in Plutonium 1965, Ed. A.E.Kay et al., Proc. 3rd
Intern. Conf. on Plutonium, London, November 22-26, 1965,
pp. 189~204
- 9) R.C.Heckman; J.Appl. Phys., 44, 1455 (1973)
- 10) R.D.Cowan; J.Appl. Phys., 34, 1909 (1963)
- 11) J.F.Andrew and T.W.Latimer; "Properties of Solid Solution
Uranium Plutonium Carbides", in Carbides in Nuclear Energy,
Vol.1, Ed.L.R.Russell, Macmillan, London, 1964, pp.373~391
- 12) M.J.Wheeler, E.King, C.Manford and H.J.Hedger; J.Brit.Nucl.Energy
Soc., 10, 55 (1971)
- 13) M.Tetenbaum, A.Sheth and W.Olaon; ANL-AFP-8 (1975)
- 14) W.Fulkerson, T.G.Kollie, S.C.Weaver, J.P.Moore and R.K.Williams;
"Electrical and Thermal Properties of the NaCl Structured
Metallic Actinide Compounds", in Plutonium 1970 and Other
Actinides, Santa Fe, NM, October 5-9, 1970, Nuc.Met., Met. Soc.
AIME, 17 (1970), pp. 374-384
- 15) A.B.G.Washington; TRG-R-2236 (1973)

- 16) H.E.Schmidt ; " Thermal Conductivity ", in KFK-1111, VII, 1 (1969)
- 17) R.K.Williams and W.Fulkerson ; " Thermal Conductivity, Proc. 8th Conf.", Ed. C.Y.Ho and R.E.Taylor, Plenum Press, New York, 1969, pp.389~456
- 18) J.A.Leary and K.W.Johnson ; " Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Carbide Fuels ", in Plutonium Fuels Technology, Proc. 1967, Nuclear Met. Symp., Scottsdale, AZ, October 4-6, 1967, Nuc. Met., Met. Soc. AIME, 13, (1968), pp. 309-321
- 19) L.J.Wittenberg and G.R.Grove ; MLM-1244 (1964)
- 20) B.A.Hayes and M.A.DeCrescente ; PWAC-480 (1965)
- 21) K.Richter, W.Bartscher, U. Benedict, J.F.Gueugnon, H.Kutter, C.Sari and H.E.Schmidt ; EUR 6154 EN (1978)
- 22) K.W.R.Johnson and J.A.Leary ; Trans. Amer. Nucl. Soc., 12, 591 (1969)

Table 1 Characteristics of the sample before
after thermal conductivity measurement

| | |
|-----------------------|--|
| A. Before measurement | |
| Density %TD | 97.0 |
| Carbon wt.% | 4.55 |
| Oxygen wt.% | 0.378 |
| Pu/(U+Pu) % | 19.86 |
| Metallography | Major (U,Pu)C Miner (U,Pu) ₂ C ₃ |
| X-ray diffraction | Major (U,Pu)C a =4.9642±0.0003A Very weak (U,Pu) ₂ C ₃ Trace (U,Pu)O ₂ |
| B. After measurement | |
| X-ray diffraction | Major (U,Pu)C a =4.9644±0.0004A Very weak (U,Pu) ₂ C ₃ Trace (U,Pu)O ₂ |

Table 2 Refractivity at surface of
the sample

| Measured Point | Refractivity (%) |
|----------------|------------------|
| 1 | 68.5 |
| 2 | 68.0 |
| 3 | 68.3 |
| 4 | 68.1 |
| 5 | 68.7 |
| 6 | 68.5 |
| 7 | 68.3 |
| 8 | 67.9 |
| 9 | 68.5 |
| 10 | 68.3 |
| Average | 68.3 |

Table 3 Thickness of the sample

| Measured point | Thickness (mm) |
|----------------|----------------|
| 1 | 1.200 |
| 2 | 1.201 |
| 3 | 1.201 |
| 4 | 1.202 |
| 5 | 1.201 |
| 6 | 1.202 |
| 7 | 1.199 |
| 8 | 1.200 |
| Average | 1.201 |

Table 4 Thermal diffusivity and thermal conductivity of sintered (U_{0.8},Pu_{0.2})C with 97.0% of theoretical density

| Temperature (°C) | Thermal Diffusivity (cm ² /sec) | Thermal Conductivity (w/cm. °C) |
|---------------------|--|---------------------------------------|
| 450 | 0.0437 | 0.137 |
| 450 | 0.0426 | 0.134 |
| 450 | 0.0432 | 0.136 |
| 450 | 0.0434 | 0.137 |
| 500 | 0.0456 | 0.144 |
| 500 | 0.0438 | 0.138 |
| 500 | 0.0441 | 0.139 |
| 550 | 0.0447 | 0.142 |
| 550 | 0.0451 | 0.143 |
| 605 | 0.0460 | 0.147 |
| 605 | 0.0471 | 0.150 |
| 605 | 0.0472 | 0.151 |
| 655 | 0.0473 | 0.152 |
| 655 | 0.0477 | 0.153 |
| 710 | 0.0469 | 0.151 |
| 710 | 0.0479 | 0.155 |
| 710 | 0.0478 | 0.154 |
| 760 | 0.0486 | 0.155 |
| 760 | 0.0485 | 0.155 |
| 815 | 0.0485 | 0.158 |
| 815 | 0.0484 | 0.158 |
| 870 | 0.0497 | 0.163 |

Table 4 continued

| Temperature (°C) | Thermal Diffusivity (cm ² /sec) | Thermal Conductivity (w/cm.°C) |
|---------------------|--|--------------------------------------|
| 870 | 0.0499 | 0.164 |
| 870 | 0.0497 | 0.163 |
| 920 | 0.0495 | 0.164 |
| 920 | 0.0493 | 0.163 |
| 965 | 0.0505 | 0.168 |
| 965 | 0.0495 | 0.164 |
| 1015 | 0.0509 | 0.170 |
| 1015 | 0.0501 | 0.167 |
| 1015 | 0.0511 | 0.171 |
| 1065 | 0.0506 | 0.170 |
| 1065 | 0.0508 | 0.171 |
| 1065 | 0.0511 | 0.172 |
| 1110 | 0.0514 | 0.174 |
| 1110 | 0.0504 | 0.172 |
| 1110 | 0.0507 | 0.171 |
| 1160 | 0.0511 | 0.173 |
| 1160 | 0.0526 | 0.178 |
| 1160 | 0.0518 | 0.176 |
| 1230 | 0.0519 | 0.177 |
| 1230 | 0.0510 | 0.174 |
| 1230 | 0.0534 | 0.182 |
| 1275 | 0.0542 | 0.186 |
| 1275 | 0.0535 | 0.184 |
| 1275 | 0.0533 | 0.183 |
| 1275 | 0.0535 | 0.184 |

Table 4 continued

| Temperature (°C) | Thermal Diffusivity (cm ² /sec) | Thermal Conductivity (w/cm. °C) |
|---------------------|--|---------------------------------------|
| 1335 | 0.0535 | 0.188 |
| 1335 | 0.0533 | 0.188 |
| 1335 | 0.0532 | 0.187 |
| 1395 | 0.0536 | 0.190 |
| 1395 | 0.0538 | 0.190 |
| 1395 | 0.0552 | 0.196 |
| 1460 | 0.0553 | 0.198 |
| 1460 | 0.0551 | 0.197 |
| 1460 | 0.0545 | 0.195 |
| 1530 | 0.0545 | 0.196 |
| 1530 | 0.0550 | 0.198 |
| 1530 | 0.0558 | 0.201 |
| 1590 | 0.0539 | 0.193 |
| 1590 | 0.0541 | 0.193 |
| 1590 | 0.0539 | 0.193 |

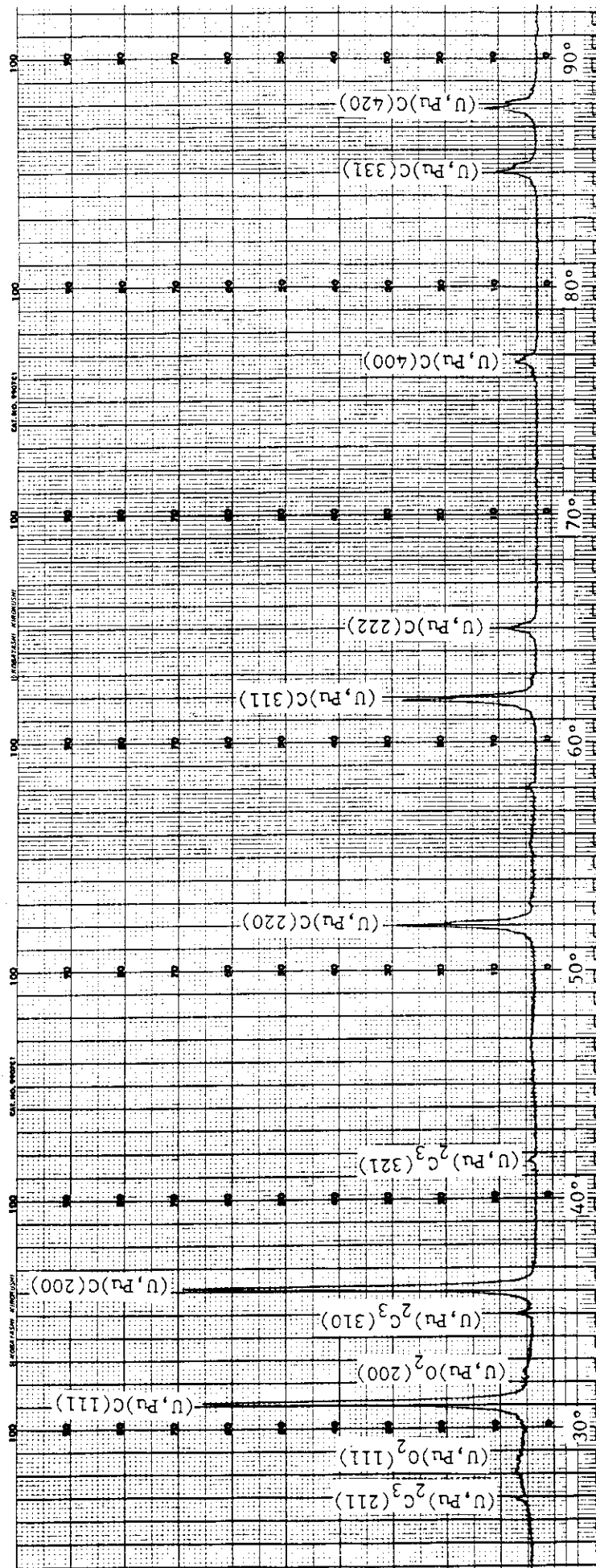


Fig. 1 X-ray diffraction pattern of $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C$ with 0.1 wt.% Ni sintering aid

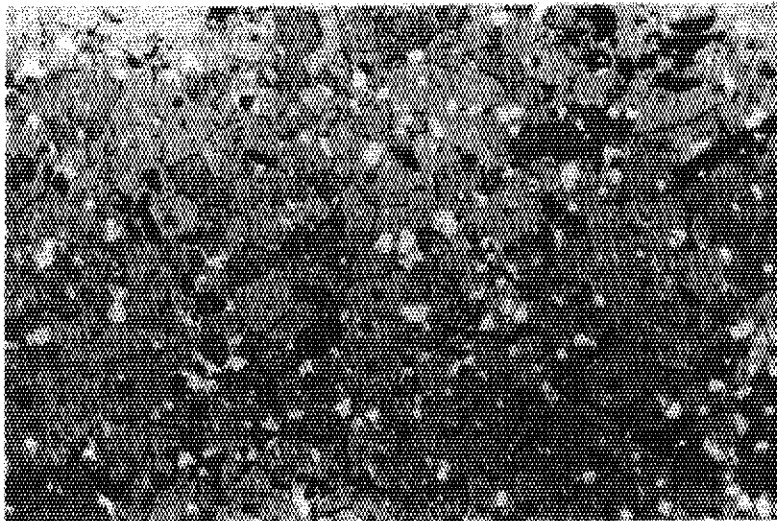
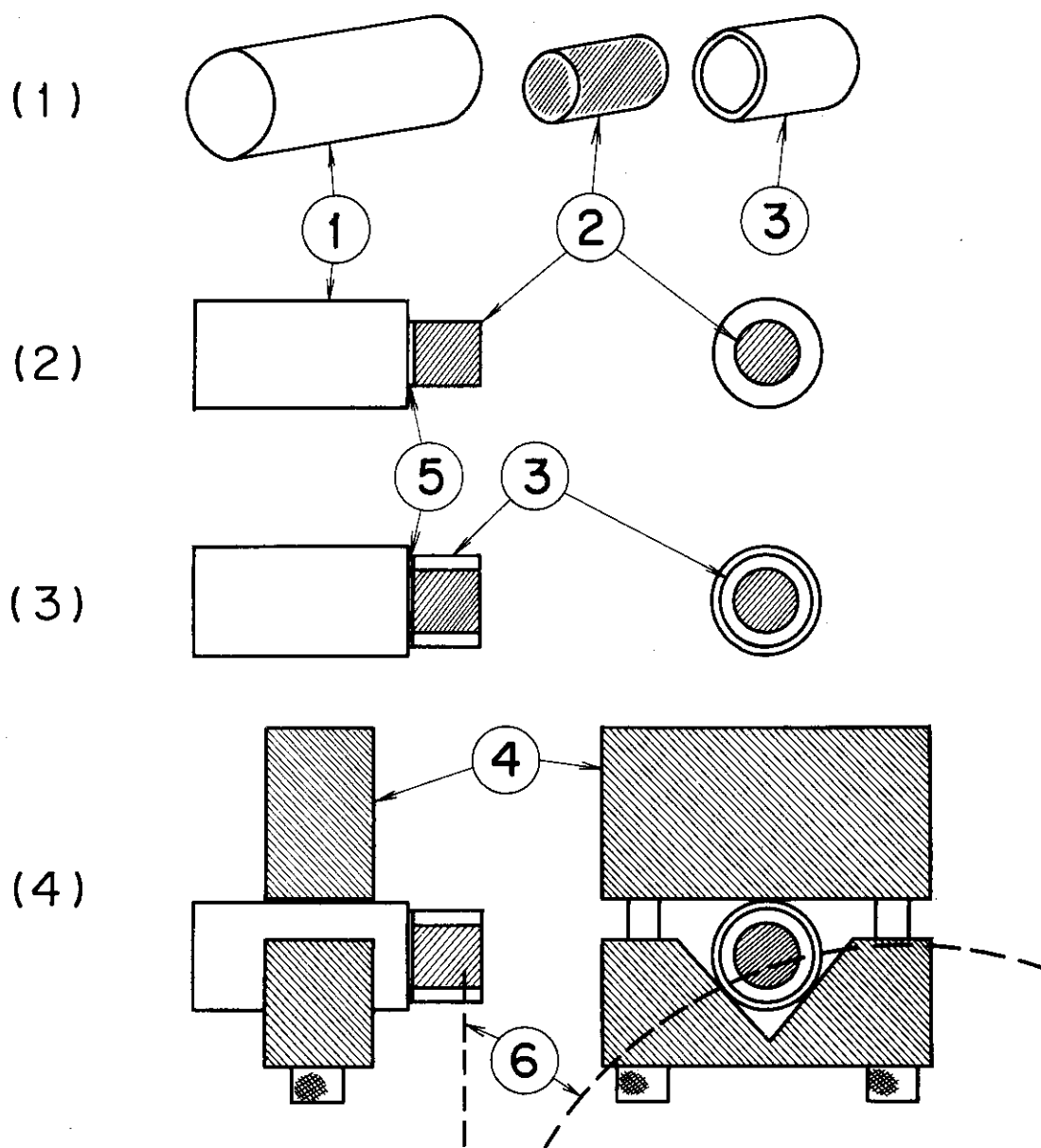


Fig. 2 Microstructure of $(U_{0.8},Pu_{0.2})C$ pellet with 0.1 wt.% Ni sintering aid, sintered at 1500°C for 1 h in Ar and annealed at 1600°C for 2 h in vacuum (x500)



- ① Metal bar
- ② Sample
- ③ Transparent acryl-resin tube
- ④ Chuck for sample
- ⑤ Binding agent
- ⑥ Diamond wafering blade

Fig. 3 Procedure of sample slicing from a cylindrical sintered pellet

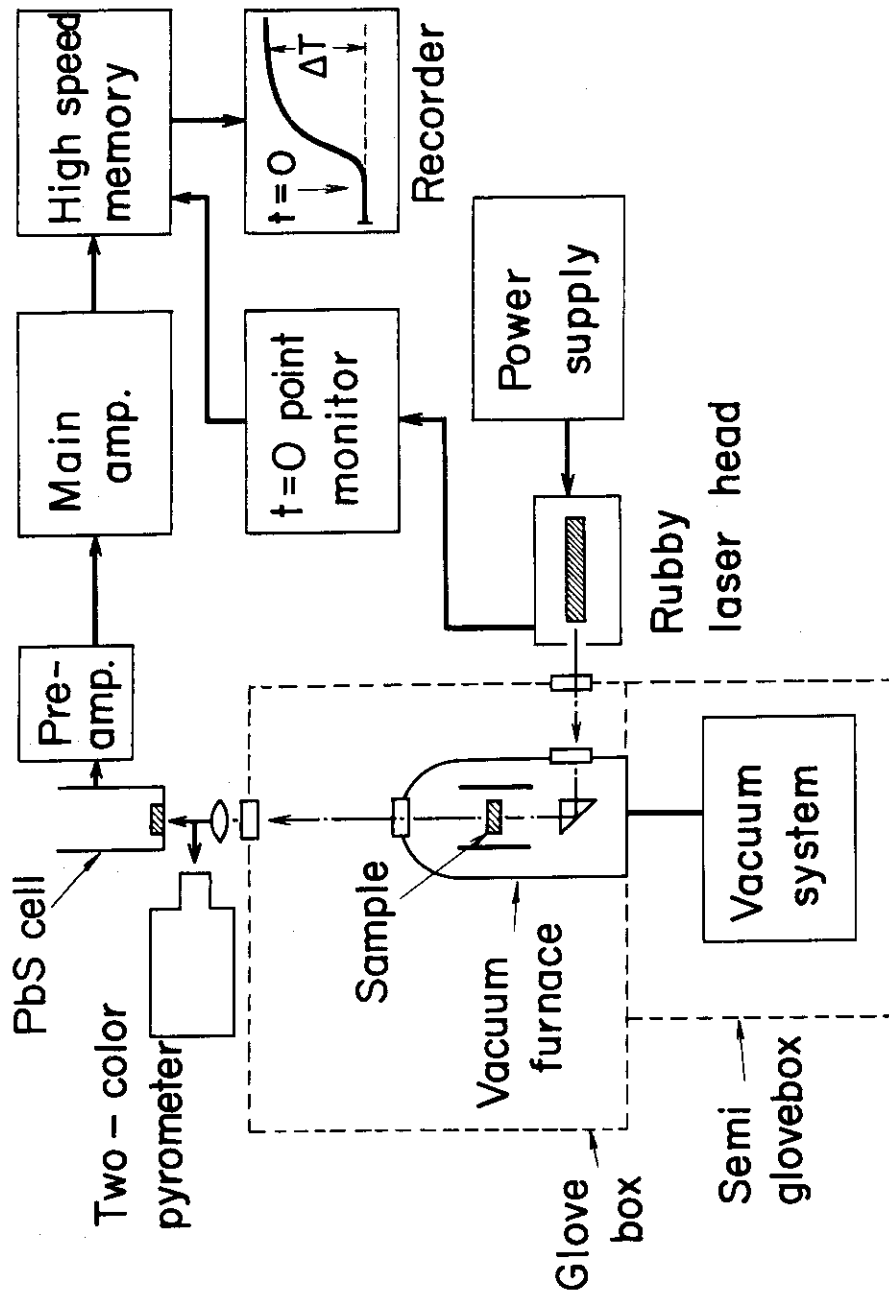


Fig. 4 Block diagram of the apparatus

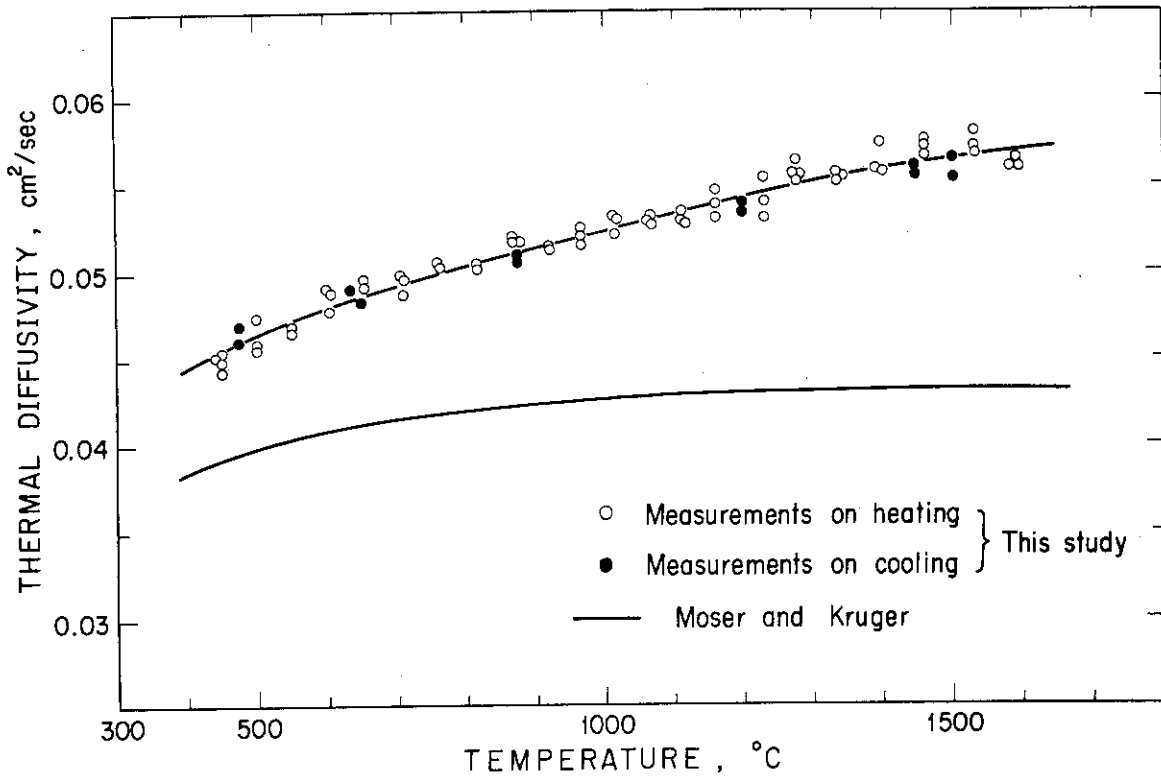


Fig. 5 Thermal diffusivity of $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C$ normalized to 100% of theoretical density as a function of temperature

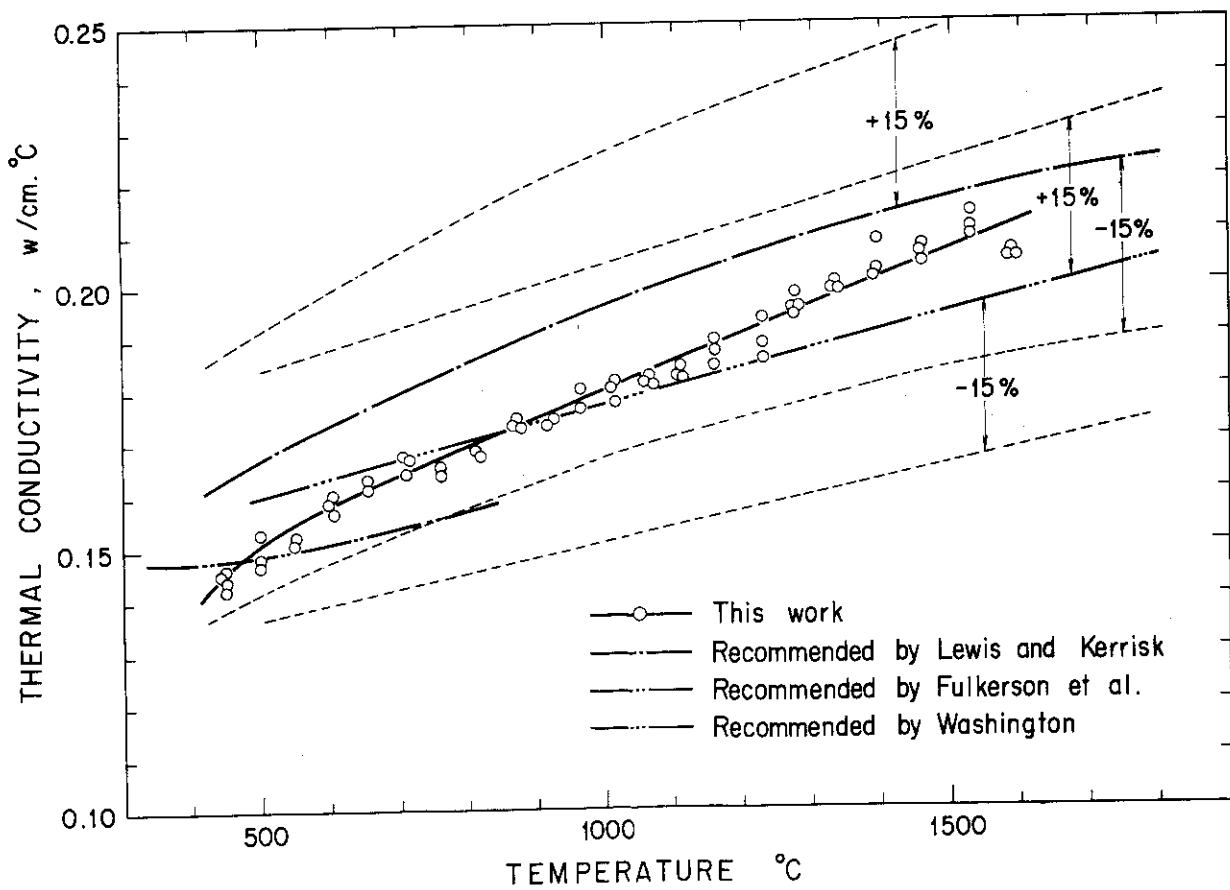


Fig. 6 Thermal conductivity of $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C$ normalized to 100% of theoretical density as a function of temperature

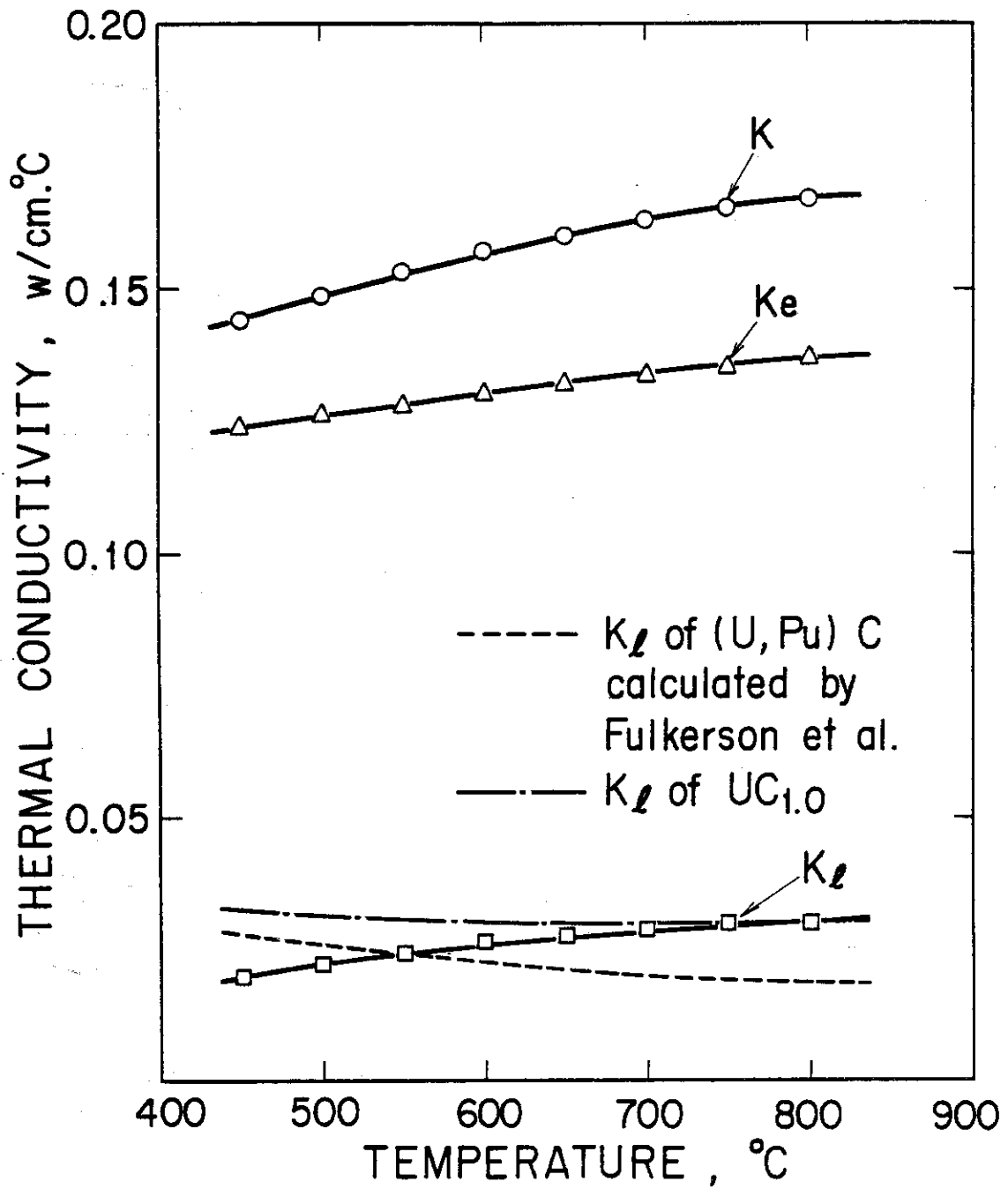


Fig. 7 Lattice and electronic components of the thermal conductivity of $(U_{0.8}, Pu_{0.2})C$