

JAERI-M
91-065

ウランシリサイドーアルミニウム
分散型燃料の熱伝導率測定

1991年4月

齋藤 順市・小森 芳廣・桜井 文雄・安藤 弘栄

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1991

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 日立高速印刷株式会社

ウランシリサイドーアルミニウム分散型燃料の熱伝導率測定

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

齋藤 順市・小森 芳廣・桜井 文雄・安藤 弘栄

(1991年3月13日受理)

J M T R では、濃縮度低減化計画の一環として低濃縮燃料の安全評価に資するため、ウランシリサイドーアルミニウム (U_3Si_2-Al) 分散型燃料の熱伝導率を室温から 400°C 近傍まで測定した。

熱伝導率は、熱拡散率、熱容量及び密度の積として求められる。従って、熱伝導率はこれら 3 つの物性を個々に測定して決定した。熱拡散率及び熱容量は、レーザーフラッシュ法により測定した。密度は、示差熱膨張計により測定した線膨張率から求めた。

測定の結果、 U_3Si_2-Al 分散型燃料の熱伝導率は温度上昇と共に僅かに増加し、300°C 近傍で最大に達する傾向が認められた。

Measurement of Thermal Conductivity of Uranium
Silicide - Aluminum Dispersion fuel.

Junichi SAITO, Yoshihiro KOMORI
Fumio SAKURAI and Hiroei ANDO

Department of JMTR Project
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received March 13, 1991)

In conjunction with reducing enrichment program for JMTR, thermal conductivity of uranium silicide - aluminum (U_3Si_2 -Al) dispersion fuel was measured in the temperature range of 25°C ~ 400°C for the safety evaluation of low enriched uranium fuel.

Since thermal conductivity is determined as the product of thermal diffusivity, heat capacity and density, these three properties were individually measured. Thermal diffusivity and heat capacity of the specimen were measured by the laser flash method. Temperature dependence of density was obtained by measuring the thermal linear expansion with differential dilatometer.

Obtained results show that conductivity of the U_3Si_2 -Al dispersion fuel slightly increases as temperature increases, and tends to reach the maximum around 300°C.

Keywords: Thermal Conductivity, Uranium Silicide, Dispersion Fuel,
Laser Flash Method, Low Enriched Uranium, JMTR

目 次

1.はじめに	1
2.試料	2
3. $\text{U}_3\text{Si}_2-\text{Al}$ 分散型燃料の熱伝導率	9
3.1 熱拡散率	9
3.1.1 測定方法	9
3.1.2 測定結果	10
3.2 熱容量	10
3.2.1 測定方法	10
3.2.2 測定結果	11
3.3 熱膨張率	11
3.3.1 測定方法	11
3.3.2 測定結果	12
3.4 熱伝導率	12
3.4.1 熱伝導率の導出方法	12
3.4.2 計算結果及び考察	12
4.まとめ	41
謝辞	41
参考文献	42

Contents

1. Introduction	1
2. Specimens	2
3. Thermal conductivity of U_3Si_2 -aluminum dispersion fuel	9
3.1 Thermal diffusivity	9
3.1.1 Measurement technique	9
3.1.2 Results of measurement	10
3.2 Heat capacity	10
3.2.1 Measurement technique	10
3.2.2 Results of measurement	11
3.3 Thermal expansion	11
3.3.1 Measurement technique	11
3.3.2 Results of measurement	12
3.4 Thermal conductivity	12
3.4.1 Equation of thermal conductivity	12
3.4.2 Results and discussion	12
4. Summary	41
Acknowledgements	41
References	42

1. はじめに

試験・研究炉用燃料の濃縮度低減化計画が1978年にアメリカ合衆国において開始されて以来、試験研究炉の燃料を高濃縮ウラン燃料から低濃縮ウラン燃料へ転換するために、高密度分散型燃料の開発が進められてきた。この間、研究炉の板状燃料として利用された高密度燃料は、ウランアルミナイト($UA1_x$)またはウランオキサイド(U_3O_8)をアルミニウム母材内に分散させたもので、燃料芯材のウラン密度はそれぞれ、 1.7 g/cm^3 及び 1.3 g/cm^3 であった。この2種類の分散型燃料は、現在も開発が進められており低濃縮ウラン採用のためこれらの燃料の製造限界、すなわち $UA1_x$ でウラン密度 2.4 g/cm^3 、 U_3O_8 で 3.2 g/cm^3 まで実証試験が行われている。特に、 $UA1_x$ については、実用可能なウラン密度として 2.3 g/cm^3 までの燃料の照射健全性が確認され商業ベースの製作技術が確立されている。

しかしながら、高出力を有する研究炉の多くは、ウラン密度が既に実用上の限度に近い高密度ウラン燃料を使用して運転されている。従って、これらの研究炉用燃料の濃縮度低減化にあたっては、炉の安全性や性能を低下させないことを前提として更に高い密度を有する燃料が必要となった。このような背景のもとで高密度燃料として最も有望視されていたウランシリサイドーアルミニウム(U_3Si_x-Al)分散型燃料の研究開発が国際的に進められてきた。ウランシリサイド燃料に関する開発及び試験の結果については、これまでに数多く発表されており、特に U_3Si_2-Al 分散型燃料は照射下で非常に安定な挙動を示すことが報告されている。⁽¹⁾

1988年に、米国の原子力規制委員会(NRC)は、オークリッジ研究炉(ORR)において実施された照射試験の結果等に基づいて、ウラン密度 4.8 g/cm^3 までの U_3Si_2-Al 分散型燃料は試験研究炉において十分な安全性を持って使用できる低濃縮ウラン燃料であると判定し、NRC管轄の試験炉においてこの U_3Si_2-Al 分散型燃料の使用を正式に認めている。また、欧洲諸国においてもこの燃料を使用して低濃縮ウラン燃料炉心への転換が現在進められている。

一方、日本国内においては、原研の材料試験炉(JMTR)においてウラン密度 4.8 g/cm^3 の U_3Si_2-Al 分散型燃料を用いた低濃縮ウラン燃料(LEU燃料： ^{235}U 濃縮度約20%)炉心への転換を図るための準備が進められている。

この U_3Si_2-Al 分散型燃料を、JMTRにおいて使用する場合には通常運転時は勿論のこと、運転時の異常な過渡変化時においてもその健全性を確認しなければならない。燃料の熱的安全性を評価するうえで、熱伝導率は非常に重要なパラメータとなり、特に運転時の異常な過渡変化時の評価においては、温度の上昇に伴う熱伝導率の変化を明確に把握する必要がある。

本報告は、劣化ウランを用いた U_3Si_2-Al 分散型燃料の熱伝導率測定に関するものである。

2. 試 料

本実験に用いた試料 (U_3Si_2 -A1分散型) は、Fig. 2.1 に示す工程で製作された。この図に示す通り試料は、すでに確立されているウランシリサイドーアルミニウム分散型燃料板の製造工程と同等の工程で製作された燃料板から、アルミニウム合金の被覆部を除去し、熱伝導率測定用の所定の形状寸法 (10 mm ϕ × 3 mmt, 15 mm L × 10 mm W × 3 mmt) に加工したものである。

ウランシリサイド (U_3Si_2) の製造には劣化ウランを用い、シリコン重量率は、 U_3Si_2 の化学量論的組成 7.3 wt % Si より僅かにシリコンに富んだ組成、7.4 wt %, 7.7 wt % 及び 7.9 wt % Si の 3 種類とした。このシリコン含有率を有するウランシリサイド燃料は、ORR 等において健全性が実証されている燃料であり、また、JMT-R 用シリサイド燃料の製作仕様の範囲 (7.4~7.9 wt % Si) を満足するものである。これらのウランシリサイドは、厳密には U_3Si_2 を主相とし 2 次相として USi が含まれており、USi の量は上記 3 種類のシリコン含有率に対応してそれぞれ、3 wt %, 12 wt %, 18 wt % である。このシリコン含有率範囲 (7.4~7.9 wt % Si) のウランシリサイドを用いた分散型燃料を一般に、 U_3Si_2 -A1 分散型燃料と呼称している。Table 2.1 及び Table 2.2 に使用した劣化ウランの化学成分と同位体成分をそれぞれ示す。また、アルミニウム母材の化学成分を Table 2.3 に示す。試料製作に使用された材料は、ウランを用いた以外は、実用燃料の製作に使用されるものと同材である。

試料の密度、ウランシリサイドの含有率、ウラン密度及び気孔率（製造時ボイド率）を Table 2.4 に示す。この表に示すとおりこれらの特性は、いずれのシリコン含有率の試料もほぼ同等であり、試料中のウランシリサイドの体積含有率は約 44 vol %、ウラン密度は約 4.9 g/cm³ 及び気孔率は約 7 % であった。

試料の金相写真を各 Si 含有率毎に Photo. 2.1 ~ 2.3 に示す。これらの写真において、白い部分がアルミニウム母材を、灰色の部分がウランシリサイドを及び黒い部分が気孔を示している。

また、実験精度を確認するため、上記試料と同形状寸法 (10 mm ϕ × 3 mmt) のアルミニウム製試料を製作し、実験に供した。

Table 2.1 Chemical Composition of the Depleted Uranium

Element	Content (ppm)
Al	< 14
B	< 0.2
C	440
Cd	< 0.4
Co	< 1
Cu	17
Fe	< 12
Li	< 2
Mg	< 4.5
N	35
O	67
Zn	< 20
U	Bal.

Table 2.2 Uranium Isotopic Composition in Depleted Uranium

Isotope of uranium	Content(wt.%)
U234	0.001
U235	0.195
U236	0.005
U238	99.799

Table 2.3 Chemical Composition of the Aluminum Matrix

Element	Content (wt. %)
Fe	0.26
Si	0.112
Cu	0.005
Zn	0.009
Mg	< 0.001
B	< 0.001
Li	< 0.001
Cd	< 0.001
Cr	< 0.001
Mn	0.002
Ti	0.018
Mo	0.0002
Al	Bal.

Table 2.4 Description of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

Si content in uranium silicide (wt. %)	Density (g/cm ³)	Volume fraction of uranium silicide (%)	U content (g/cm ³)	Porosity (%)
7.4	6.63	43.8	4.91	7.0
7.7	6.55	43.8	4.88	7.4
7.9	6.54	44.1	4.86	7.2

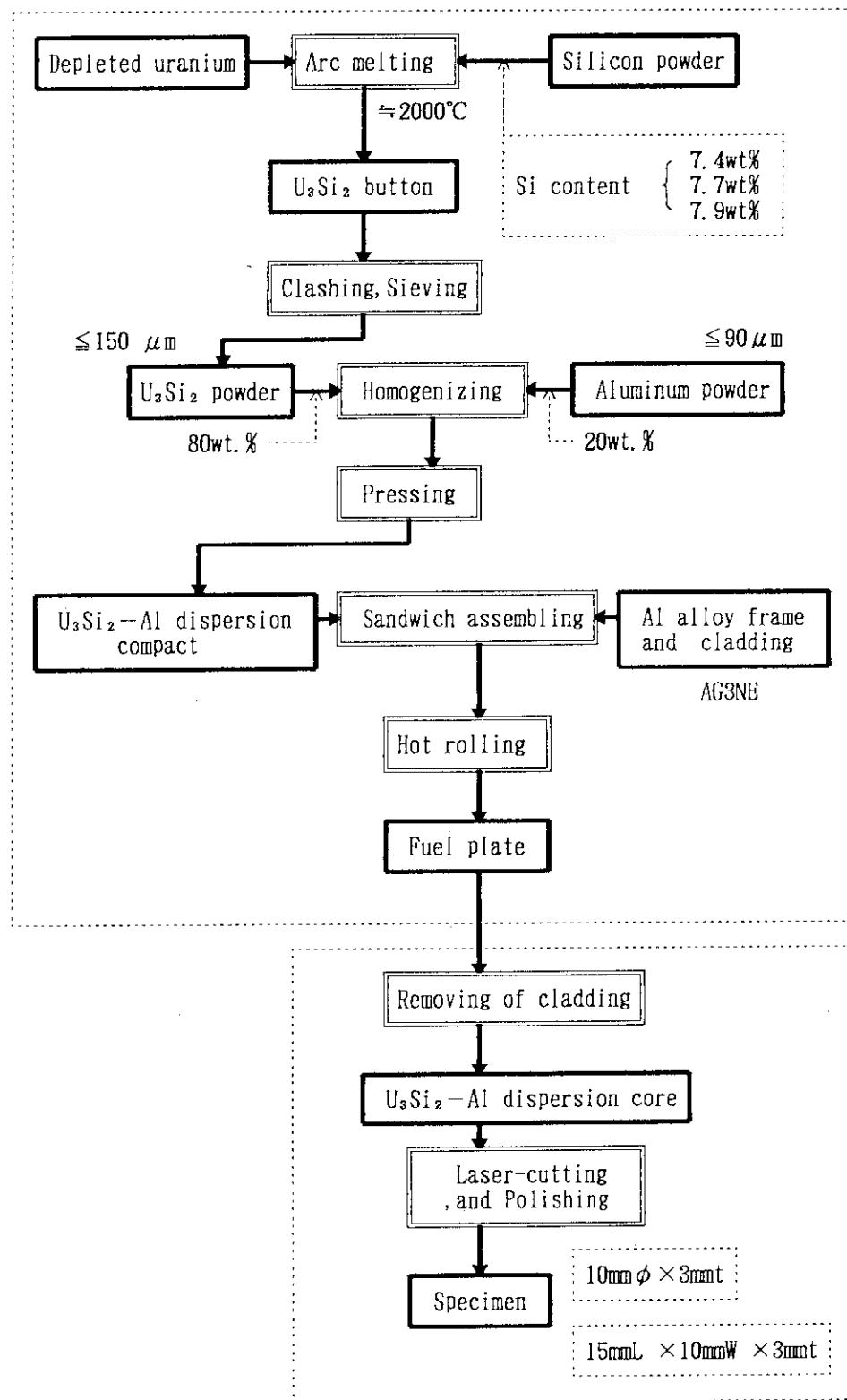
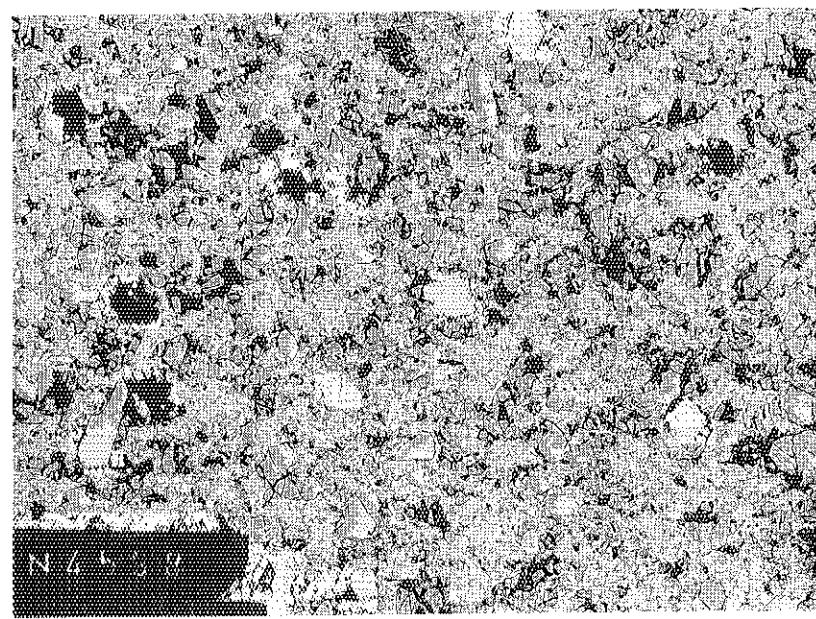
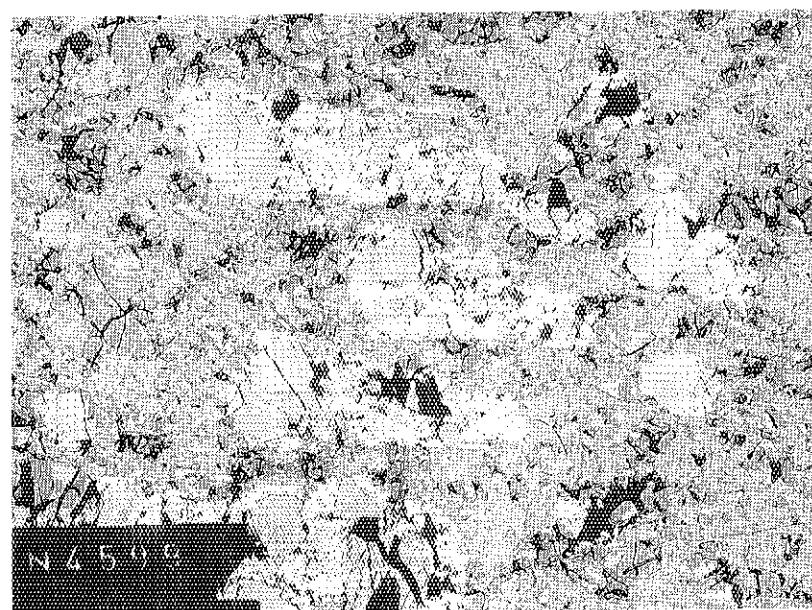


Fig. 2.1 Fabrication Process of Specimens for Thermal Conductivity Measurement

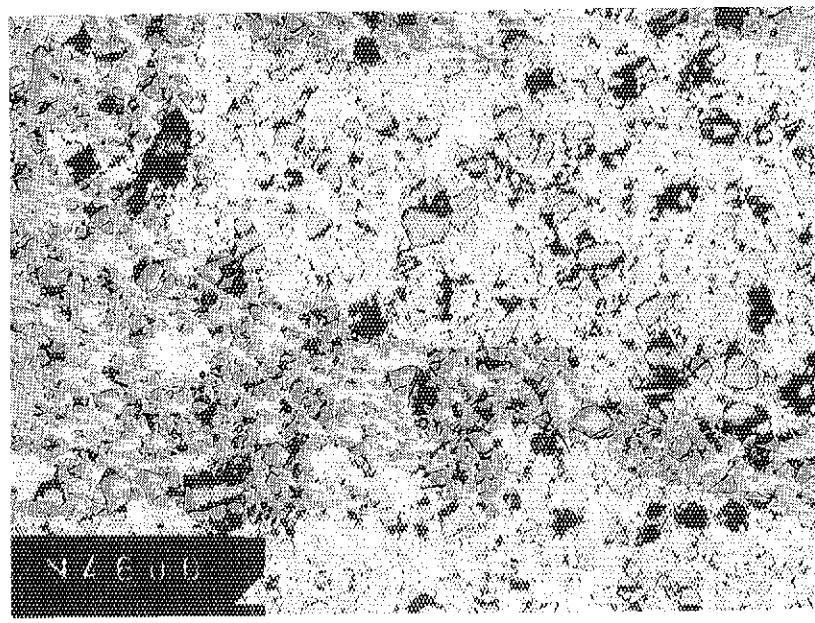


400 μm

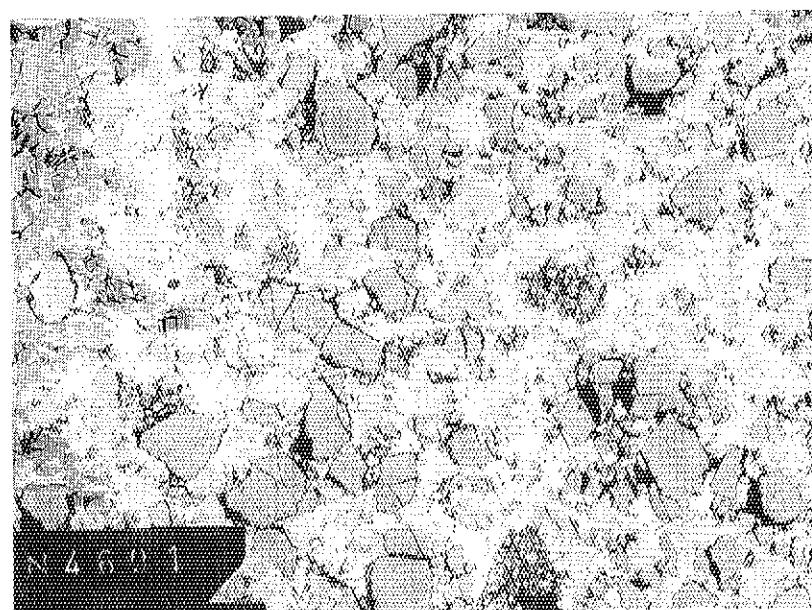


200 μm

Photo. 2.1 Microstructure of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Specimen (7.4wt.%Si in Uranium Silicide)



400 μm

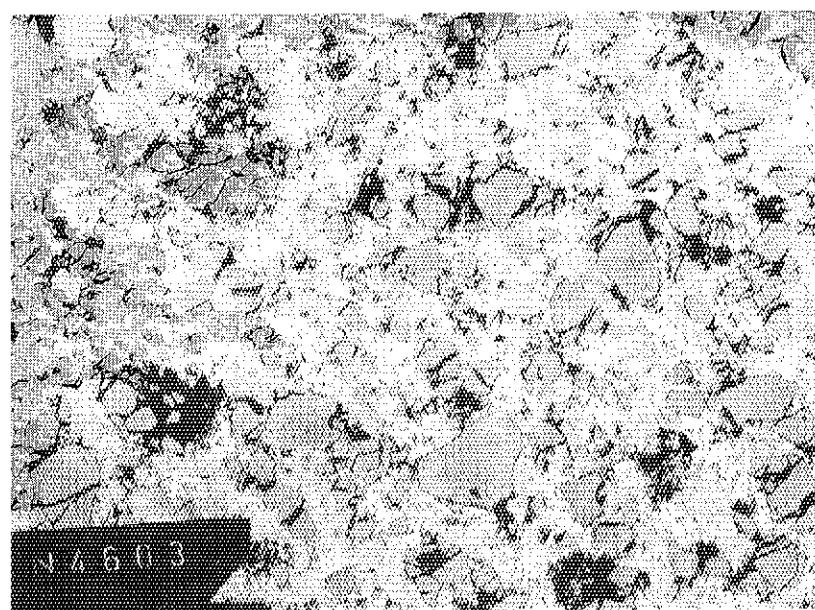


200 μm

Photo. 2.2 Microstructure of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Specimen (7.7wt.%Si in Uranium Silicide)



400 μm



200 μm

Photo. 2.3 Microstructure of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Specimen (7.9wt.%Si in Uranium Silicide)

3. U_3Si_2 -Al分散型燃料の熱伝導率

本実験では試料の熱拡散率及び熱容量を測定し、これらの測定データと密度のデータより熱伝導率を求めた。熱拡散率及び熱容量はレーザーフラッシュ法により測定した。また密度は、示差熱膨張測定から得られた熱膨張率より補正して求めた。

3.1 热扩散率

3. 1. 1 測定方法

測定はレーザーフラッシュ法による熱定数測定装置を使用して行った。装置の概念図を Fig. 3.1 に示す。

レーザーフラッシュ法では、試料の上面にパルス的にレーザー光を照射してエネルギーを与える、照射直後からの試料裏面における温度履歴を測定する。測定された温度履歴の例を Fig. 3-2 に示すが、温度変化の最大値の $1/2$ に達するまでの時間 $t_{1/2}$ を測定することにより次式から熱拡散率 α が導かれる。

$$\alpha = 0.1388 \times \frac{L}{t_{1/2}} \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここで α : 热拡散率

L : 試料厚さ

$t_{1/2}$ ：温度変化が最大値の $1/2$ に達する時間

原理的には上式より求められるが、実験上は上式が成立するような理想状態に常に保つことは困難であり、特に温度が高い領域ではデータの解析上でなんらかの補正を行う必要がある。本測定では、最近、高橋ら⁽²⁾により開発されたレーザーフラッシュ法のための対数法をデータの解析に適用した。また、レーザー照射によるエネルギー吸収効果をあげるために試料にカーボンコーティングを行った。

主な測定条件を以下に示す。

測定 雾開氣：真空中

測定温度：室温から430°Cの範囲で5温度条件

測定回数 : 1 試料につき 1 温度条件で 3 回の繰り返し測定

測定試料寸法：10 mm ϕ × 3 mm t

測定試料数：各シリコン含有率毎に3個で計9個

3.1.2 測定結果

アルミニウム試料の測定結果をTable 3.1に示す。また、この結果を文献値⁽³⁾と比較してFig. 3.3に示す。測定のばらつきを考慮しても±5%以内の精確度で文献値と良好な一致を示すことが確認された。

U₃Si₂-Al分散型試料に関して、各々のシリコン含有率を持つ試料に対し3試料ずつ熱拡散率測定を行った結果をTable 3.2に示す。また、測定結果を各シリコン含有率毎に温度に対してプロットしてFig. 3.4に示す。但しプロットした点は3回繰り返しデータの平均値である。この結果から試料間でのばらつきが若干あることがわかる。更に、測定前後における試料の寸法重量測定結果をTable 3.3に示すが、その変化率は最大でも0.1%程度であり、測定中に寸法、重量に有意な変化は認められなかった。

シリコン含有率毎の熱拡散率を比較すると、7.9 wt% Si 試料が他の試料に比較して若干低い値を示しているものの、試料間のばらつきを考慮すると有意な差はないものと考えられる。

これらの結果をもとに、各シリコン含有率毎に温度の1次式の逆数を最小2乗法によりあてはめた結果をTable 3.4に示す。

3.2 熱容量

3.2.1 測定方法

熱容量測定は熱拡散率測定と同じ装置を使用した。但し、試料裏面の温度履歴測定は温度の絶対値が必要であることから熱電対を試料にスポット溶接して行った。

測定される温度履歴の例をFig. 3.5に示すが、温度履歴曲線をレーザー照射時まで外挿することによりレーザーエネルギー照射による試料温度上昇ΔTを測定する。熱容量C_pはΔTを用いて次の式から導かれる。

$$C_p = \frac{\Delta Q}{m \cdot \Delta T} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

ここで ΔQ : 照射エネルギー

m : 試料質量

ΔT : 試料温度上昇

ΔQの測定は、Fig. 3.1で示したレーザーエネルギーモニターを予め標準試料により較正して行う。本測定での較正曲線をFig. 3.6に示す。

主な測定条件を以下に示す。

測定雰囲気 : 真空中

測定温度 : 室温から430°Cの範囲で5温度条件

測定回数 : 1試料につき1温度条件で3回の繰り返し測定

測定試料寸法 : 10mmφ×3mm

測定試料数 : 各シリコン含有率毎に3個で計9個

熱容量の室温時における熱容量に対する昇温時の熱容量の相対的な値の測定（相対測定）は熱拡散率測定と同じであるが、室温における熱容量の絶対値の測定はレーザーエネルギーの吸収効果を一定に保つため、Fig. 3.7 に示すようにカーボン製の受光板を使用した。この受光板はレーザーエネルギーモニター較正時と同一のものを使用することにより常に同一の吸収効率を得るようにした。また、受光板と試料の間の熱的な接触を良好にするためにシリコングリスを使用した。受光板及びシリコングリスについては文献値⁽⁴⁾を用いて熱容量の補正を行った。

3.2.2 測定結果

アルミニウム試料について熱容量測定を行った。Table 3.5 に室温における絶対値測定結果を示す。この結果をもとに相対測定した結果を較正して Table 3.6 に示す。この結果を温度に対してプロットして Fig. 3.8 に示すが、文献値⁽⁵⁾と比較して ± 5 %以内の精確度で一致していることが確認された。

U_3Si_2-Al 分散型試料に関して、シリコン含有率の異なる試料の室温における熱容量絶対値測定の結果を Table 3.5 に示す。この結果をシリコン含有率に対してプロットして Fig. 3.9 に示すが、シリコン含有率が増加するに従い熱容量が僅かに増加する傾向が認められる。

上記の結果をもとに相対測定した結果を較正して Table 3.7 に示す。これらの結果を各シリコン含有率毎に温度に対してプロットして Fig. 3.10 に示す。但し、プロットされている点は 3 回繰り返し測定データの平均値である。この図から、いずれのシリコン含有率の試料においても温度の上昇に伴い熱容量が僅かに増加する傾向が認められる。また、試料間でのばらつきが若干あることがわかる。

この測定結果をもとに各シリコン含有率ごとに温度の 2 次式を最小 2 乗法によりあてはめた結果を Table 3.8 に示す。

3.3 熱膨張率

3.3.1 測定方法

測定は示差型熱膨張測定装置を使用した。装置の概念図を Fig. 3.11 にまた試料部の断面図を Fig. 3.12 に示す。この装置では標準試料と測定試料を左右対称に配置して加熱することにより、試料以外の熱膨張を相殺させることができ、高い測定精度を有することが特徴である。

主な測定条件を以下に示す。

標準試料 : Y_2O_3 (イットリア)

雰囲気 : 高純度アルゴン

押さえ荷重 : 10g

昇降温速度 : 2°C/min.

測定温度領域 : 室温～約 400°C

測定試料寸法 : 15 mm L × 10 mm W × 3 mm t

測定試料数 : 各シリコン含有率毎 3 個で計 9 個

3.3.2 測定結果

50°C毎の測定結果をTable 3.9に示す。このデータを基に、基準温度を25°Cとし最小二乗法により温度の3次式をあてはめた結果をTable 3.10に示す。この結果を用いて、400°Cまでの温度範囲で熱膨張率及び熱膨張係数を計算した結果をTable 3.11に示す。この結果から熱膨張係数はいずれの試料においてもほぼ一定であり、 $21 \sim 23 \times 10^{-6}$ (1/°C) の範囲にあることがわかる。ここで得られた熱膨張率のデータを基に温度上昇に伴う密度変化を補正して以下に示す熱伝導率を求めた。

3.4 热伝導率

3.4.1 热伝導率の導出方法

热伝導率 κ は測定した熱拡散率、熱容量及び密度により以下の式から計算により導出した。

$$\kappa(T) = \alpha(T) \cdot C_p(T) \cdot \rho(T) \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

但し、 $\alpha(T)$: 热拡散率 (Table 3.4 の式使用)

$C_p(T)$: 热容量 (Table 3.8 の式使用)

$\rho(T)$: 密度 (Table 3.10より補正)

T : 温度

3.4.2 計算結果及び考察

室温 (25°C) から 400°Cまでの 100°C 每における計算結果を各シリコン含有率についてTable 3.12に示す。またこの結果を温度に対してプロットしてFig. 3.13に示す。いずれのシリコン含有率についても温度の上昇に伴い熱伝導率が上昇し、300°C近傍で最大値を示す傾向が認められる。7.9 wt% Si の試料については他の試料に比較して若干熱伝導率が小さい傾向が認められるが、測定精度を考慮すると3種類のシリコン含有率の試料の間での有為な差は無いものと考えられる。本実験で求めた熱伝導率(全試料の平均値)は、室温で約48 W/(m·K) 及び 300°Cで最大値約51 W/(m·K) であった。従って、燃料の熱的評価において、熱伝導率は室温の値を採用すれば安全側に評価すると考えられる。

熱伝導率の測定精度については3.4.1項に示した式より3つの測定値の不確定幅により決められる。熱拡散率及び熱容量については±5%の不確定幅を有することから最大でも±10%以内の不確定幅であると考えられる。また、密度の不確定幅が最大でも±1%以内と考えられることにより、本測定における熱伝導率の不確定幅は±11%以内と考えられる。この不確定幅は、測定装置の精度及び試料間のばらつきによる不確定幅の両者を含んだものである。

本測定結果の60°Cにおける値について、ORN Lのデータ⁽⁶⁾と比較してFig. 3.14に示す。この図からわかるように本測定に用いたウランシリサイドーアルミニウム分散型燃料の熱伝導率は、ORN Lのデータから得られた最適化曲線の値よりも約20%高い値を示している。ORN Lのデータの詳細をTable 3.13⁽⁶⁾に示すが、同一温度における熱伝導率の値は、測定試料のウ

ランシリサイド含有率及び気孔率に大きく依存している。本試験で測定を行った試料は、いずれのシリコン含有率の試料においてもウランシリサイドの体積含有率が約44%であり、Table 3.13中の試料番号CERCA#1, #2に近いことがわかる。気孔率については本試験で測定した試料では約7%であることから、Maxwell-Euckenの補正式^(*)により4%に補正を行っても、60°Cにおいて7.4wt% Si, 7.7wt% Si, 7.9wt% Siにつき各々52, 53, 50W/(m·K)の値であり、これらの値はORN Lのデータの59W/(m·K)に比較すると約10~15%程度低い値である。この結果は本測定の不確定幅を考慮しても若干低い傾向である。これは試料の組成が、ウランシリサイド含有率が小さく連続相を形成している状態では添加物（ここではウランシリサイド及び気孔）の増加と共に単調に変化するが、本測定試料のような組成領域ではアルミニウムとウランシリサイド及び気孔が各々約半分ずつとなり、いずれの相も不連続相となり易い領域であり、試料の微細構造（ウランシリサイド及び気孔の分布状態や形状等）による影響が大きくなつたためと考えられる。

また、Table 3.13に示したORN Lの測定試料の内、本測定試料に近い組成の試料をみると325 Mesh（約40μm）以下の微細燃料粒子の量により若干影響を受けていることがわかる。試料CS 140とCS 142を比較すると、ほぼ同じ組成で微細粒子の量が0から25wt%に増加しているが、熱伝導率には全く影響していない。これに対し試料CERCA#1, #2では、Fig. 3.14でもわかるように、本来この組成で推定される熱伝導率（約40W/(m·K)）より著しく高い結果が得られている。これは微細粒子の量が40wt%以上と多く、そのために母材となるアルミニウムが連続相を形成し易くなつたためと推定される。本研究で測定した試料は、Fig. 2.1でも示したように実用燃料と同等の工程により製造され、燃料粒子及びアルミニウム粒子については、その粒度がそれぞれ150μm以下、90μm以下に制御されて製造されている。これらの試料はORN Lの測定試料と比較するとCS 140とCERCA#1, #2の中間的な位置にあると考えられる。

従って、本測定でえられた複数の試料の測定結果の不確定幅を考慮しておけば、今回同等の製造工程で製造される燃料についても、その熱伝導率がORN Lの最適化曲線を下回ることはないと推定される。

*; Maxwell-Eucken の補正式

$$\frac{k}{k_0} = \frac{1 - P}{1 + \beta \cdot P}$$

ここで、 k : 気孔率 P の熱伝導率

 k₀ : 気孔率 0 の熱伝導率

 P : 気孔率

 β : 補正係数（ここでは0.5を使用）

Table 3.1 Measured Results for Thermal Diffusivity of Aluminum Specimen

Temperature T (°C)	Thermal Diffusivity α (cm ² /s)
23. 1	1. 0447
23. 1	1. 0282
23. 3	1. 0162
116. 3	0. 9792
119. 2	0. 8963
121. 7	0. 9484
241. 3	0. 8746
240. 7	0. 8955
241. 1	0. 8948
327. 4	0. 8551
328. 1	0. 8924
328. 7	0. 8427
436. 9	0. 7926
436. 8	0. 8277
436. 1	0. 8086

Table 3.2 Measured Results for Thermal Diffusivity of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

7.4wt.%Si *			7.7wt.%Si*			7.9wt.%Si*		
Specimen No	Temp. (°C)	α^{**} (cm ² /s)	Specimen No	Temp. (°C)	α^{**} (cm ² /s)	Specimen No	Temp. (°C)	α^{**} (cm ² /s)
4 DA	22.3	0.2251	7 DB	24.3	0.2303	9 DB	24.7	0.2115
	22.1	0.2212		24.5	0.2306		24.7	0.2145
	22.5	0.2218		24.5	0.2294		24.7	0.2160
	103.4	0.2268		102.7	0.2309		103.0	0.2161
	107.3	0.2201		106.0	0.2307		105.5	0.2079
	112.2	0.2240		107.8	0.2247		107.5	0.2148
	217.4	0.2179		213.2	0.2218		212.9	0.2065
	218.4	0.2145		213.5	0.2209		212.8	0.2072
	220.3	0.2144		213.1	0.2180		212.9	0.2039
	317.9	0.2140		310.1	0.2157		308.8	0.2065
	318.3	0.2111		310.7	0.2172		310.6	0.2061
	318.3	0.2102		311.0	0.2154		311.0	0.2070
	426.3	0.2041		429.9	0.2132		429.6	0.2013
	426.5	0.2067		429.5	0.2125		429.3	0.1984
	426.6	0.2066		429.3	0.2149		429.1	0.2002
4 DD	25.7	0.2262	7 DC	20.8	0.2248	9 DC	22.7	0.2054
	25.9	0.2270		20.8	0.2196		22.9	0.2078
	25.7	0.2282		21.0	0.2293		22.9	0.2091
	102.7	0.2211		103.2	0.2213		99.6	0.2172
	105.2	0.2292		105.2	0.2185		102.7	0.2099
	107.3	0.2183		107.0	0.2226		106.6	0.2030
	213.2	0.2205		212.7	0.2198		211.2	0.2019
	213.4	0.2192		212.7	0.2191		210.9	0.2023
	213.4	0.2183		212.7	0.2197		210.9	0.2022
	309.9	0.2152		308.8	0.2157		308.0	0.2008
	310.9	0.2129		309.4	0.2189		308.6	0.2009
	311.3	0.2162		309.7	0.2166		308.7	0.2007
	429.3	0.2080		428.6	0.2142		427.6	0.1958
	428.6	0.2110		428.0	0.2086		427.6	0.1939
	428.3	0.2076		427.6	0.2100		427.1	0.1945
4 DH	17.2	0.2176	7 DD	24.9	0.2203	9 DD	22.7	0.2103
	17.7	0.2166		25.1	0.2240		22.7	0.2036
	18.2	0.2196		25.1	0.2227		22.7	0.2089
	84.0	0.2130		104.2	0.2197		104.5	0.2000
	89.4	0.2101		108.8	0.2069		106.8	0.1929
	93.9	0.2090		110.6	0.2151		108.8	0.2020
	197.5	0.2065		214.4	0.2154		213.4	0.2010
	199.5	0.2065		214.3	0.2117		213.4	0.2002
	201.0	0.2102		214.1	0.2123		213.4	0.2009
	295.5	0.2000		309.8	0.2076		310.6	0.1946
	296.2	0.1991		310.3	0.2096		310.9	0.1973
	296.7	0.1983		310.9	0.2124		311.3	0.1998
	420.5	0.1940		430.0	0.2076		429.5	0.1931
	422.1	0.1942		429.5	0.2057		429.1	0.1925
	423.0	0.1958		429.1	0.2079		428.8	0.1938

* : Si content (wt.%) in uranium silicide.

** : Thermal diffusivity.

Table 3.3 Dimensional and weight Changes of Specimen after Thermal Diffusivity Measurements

Specimen No	Si content in Uranium Sili- cide (wt.%)	Item	Before Measurement	After Measurement	Amount of Change	Change (%)
4 DA	7. 4	Diameter /mm	9. 970	9. 961	0. 009	0. 09
		Thickness /mm	2. 295	2. 901	- 0. 004	- 0. 14
		Weight /g	1. 5003	1. 5008	0. 0005	0. 03
4 DD	7. 4	Diameter /mm	9. 940	9. 940	0. 000	0. 00
		Thickness /mm	2. 968	2. 968	0. 000	0. 00
		Weight /g	1. 5364	1. 5360	- 0. 0004	- 0. 03
4 DH	7. 4	Diameter /mm	9. 791	9. 789	- 0. 002	- 0. 02
		Thickness /mm	2. 945	2. 950	0. 005	0. 17
		Weight /g	1. 4745	1. 4738	- 0. 0007	- 0. 05
7 DB	7. 7	Diameter /mm	9. 937	9. 934	- 0. 003	- 0. 03
		Thickness /mm	2. 917	2. 916	- 0. 001	- 0. 03
		Weight /g	1. 4795	1. 4791	- 0. 0004	- 0. 03
7 DC	7. 7	Diameter /mm	9. 981	9. 989	0. 008	0. 08
		Thickness /mm	2. 962	2. 963	0. 001	0. 03
		Weight /g	1. 5177	1. 5173	- 0. 0004	- 0. 03
7 DD	7. 7	Diameter /mm	9. 799	9. 988	0. 009	0. 09
		Thickness /mm	3. 009	3. 012	0. 003	0. 10
		Weight /g	1. 5424	1. 5417	- 0. 0007	- 0. 05
9 DB	7. 9	Diameter /mm	9. 951	9. 956	0. 005	0. 05
		Thickness /mm	2. 918	2. 920	0. 002	0. 07
		Weight /g	1. 4871	1. 4852	- 0. 0019	- 0. 13
9 DC	7. 9	Diameter /mm	9. 942	9. 940	- 0. 002	- 0. 02
		Thickness /mm	2. 899	2. 898	- 0. 001	- 0. 03
		Weight /g	1. 4779	1. 4775	- 0. 0004	- 0. 03
9 DD	7. 9	Diameter /mm	9. 960	9. 950	- 0. 010	- 0. 10
		Thickness /mm	2. 964	2. 967	0. 003	0. 10
		Weight /g	1. 5103	1. 5098	- 0. 0005	- 0. 03

Table 3.4 Approximate Expression with a function of temperature for Thermal Diffusivity of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

$$\alpha = \frac{1}{(B_0 + B_1 \cdot T)}$$

where α ; Thermal diffusivity ($\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)

T ; Temperature ($^\circ\text{C}$)

B_0 , B_1 ; Constants which are shown below

Si Content in uranium silicide(%)	Constants	B_0	B_1
7.4		4.469	10.443×10^{-4}
7.7		4.429	7.646×10^{-4}
7.9		4.750	7.896×10^{-4}

Table 3.5 Absolute Values of Heat Capacity for Aluminum and Uranium Silicide
- Aluminum Dispersion Fuel at Room Temperature

Aluminum		7.4wt.%Si **		7.7wt.%Si **		7.9wt.%Si **	
Temp. (°C)	C _p * (J/g·K)						
20.0	0.8380	21.6	0.3222	23.4	0.3357	22.6	0.3396
19.2	0.8473	21.6	0.3295	22.9	0.3325	22.5	0.3378
19.3	0.8442	21.4	0.3294	22.6	0.3357	22.6	0.3386
		21.4	0.3298				
		21.7	0.3288				

* : Heat capacity.

**: Silicon content(wt.%) in uranium silicide.

Table 3.6 Measured Results for Heat Capacity of Aluminum Specimen

Temperature T (°C)	Heat Capacity C_p (J/g · K)
25.4	0.8463
25.8	0.8361
25.9	0.8472
87.1	0.9009
90.8	0.8883
94.2	0.8843
203.9	0.9484
204.9	0.9531
205.8	0.9453
296.9	0.9570
296.8	0.9570
296.7	0.9608

Table 3.7 Measured Results for Heat Capacity of Uranium Silicide
- Aluminum Dispersion Fuels

7.4wt.%Si*			7.7wt.%Si*			7.9wt.%Si*		
Specimen No	Temp. (°C)	C _p ** (J/g·K)	Specimen No	Temp. (°C)	C _p ** (J/g·K)	Specimen No	Temp. (°C)	C _p ** (J/g·K)
4 DG	21.4	0.3272	7 DG	19.4	0.3346	9 DG	19.2	0.3371
	21.8	0.3299		20.1	0.3381		19.3	0.3397
	22.4	0.3265		20.2	0.3319		19.6	0.3393
	90.1	0.3457		84.7	0.3584		83.8	0.3567
	95.5	0.3485		89.7	0.3535		88.9	0.3632
	99.7	0.3434		93.9	0.3447		97.7	0.3587
	205.2	0.3637		200.5	0.3756		201.2	0.3821
	206.1	0.3632		202.3	0.3757		202.9	0.3799
	206.9	0.3622		203.8	0.3682		204.3	0.3842
	298.8	0.3724		296.6	0.3831		296.8	0.3890
	298.9	0.3674		297.6	0.3795		297.8	0.3947
	298.9	0.3704		298.3	0.3782		298.5	0.3868
	420.2	0.3713		419.9	0.3907		419.8	0.4063
	422.8	0.3832		422.4	0.3879		422.6	0.4052
	424.5	0.3853		424.3	0.3918		424.2	0.4026
4 DH	17.2	0.3273	7 DH	24.5	0.3322	9 DH	22.4	0.3438
	17.7	0.3250		24.9	0.3401		22.6	0.3361
	18.2	0.3314		25.1	0.3315		22.6	0.3362
	84.0	0.3498		87.7	0.3443		85.8	0.3600
	89.4	0.3532		92.7	0.3489		90.8	0.3609
	93.9	0.3488		97.1	0.3444		95.3	0.3582
	197.5	0.3696		201.9	0.3680		203.4	0.3750
	199.5	0.3697		203.3	0.3664		204.6	0.3757
	201.0	0.3741		204.4	0.3655		205.6	0.3715
	295.5	0.3769		295.4	0.3660		297.4	0.3734
	296.2	0.3747		296.4	0.3639		298.1	0.3761
	296.7	0.3765		297.0	0.3659		298.5	0.3737
	420.5	0.3912		421.5	0.3752		419.8	0.3932
	422.1	0.3871		423.1	0.3727		422.4	0.3918
	423.0	0.3911		423.9	0.3755		423.8	0.3924
4 DI	21.1	0.3281	7 DI	23.9	0.3374	9 DI	22.9	0.3394
	23.1	0.3263		24.7	0.3355		23.4	0.3430
	23.8	0.3293		25.0	0.3309		24.2	0.3337
	77.7	0.3450		62.7	0.3471		89.3	0.3671
	82.8	0.3403		67.3	0.3509		94.5	0.3696
	86.6	0.3466		71.2	0.3469		98.5	0.3594
	235.6	0.3832		197.8	0.3862		198.1	0.3802
	236.4	0.3723		199.6	0.3887		200.3	0.3780
	237.1	0.3823		201.1	0.3870		201.9	0.3755
	333.5	0.3916		294.8	0.4007		296.3	0.3819
	335.0	0.3938		295.7	0.3975		297.2	0.3832
	336.0	0.3871		296.2	0.3927		297.7	0.3767
	431.3	0.4007		399.8	0.4049		421.4	0.3941
	432.3	0.4021		401.8	0.4016		422.9	0.3932
	432.7	0.3976		402.8	0.4034		423.6	0.3930

* : Silicon content(wt.%) in uranium silicide.

** : Heat capacity.

Table 3.8 Approximate Expression with a function of Temperature for Heat Capacity of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

$$C_p = A_0 + A_1 \cdot T + A_2 \cdot T^2$$

where C_p ; Heat capacity ($J/g \cdot K$)

T ; Temperature ($^{\circ}C$)

A_0, A_1, A_2 ; Constants which are shown below

Si Content in uranium silicide(%)	Constants	A_0	A_1	A_2
7.4		0.3237	2.665×10^{-4}	-2.550×10^{-7}
7.7		0.3288	2.954×10^{-4}	3.693×10^{-7}
7.9		0.3367	2.454×10^{-4}	-2.551×10^{-7}

Table 3.9 Measured Results for Thermal Linear Expansion of Uranium Silicide
- Aluminum Dispersion Fuels

Si content(wt.%)	7.4				7.7				7.9			
	4 PB	4 PC	4 PD	7 PA	7 PB	7 PC	9 PA	9 PB	9 PC	9 PA	9 PB	9 PC
Specimen No	$\Delta L/L_0$ (%)											
Thermal linear expansion Temp. (°C)												
5 0	0.035	0.035	0.042	0.039	0.033	0.033	0.040	0.038	0.035			
1 0 0	0.147	0.141	0.150	0.151	0.139	0.140	0.146	0.148	0.143			
1 5 0	0.259	0.252	0.262	0.263	0.252	0.252	0.257	0.260	0.255			
2 0 0	0.370	0.367	0.374	0.377	0.365	0.365	0.372	0.373	0.368			
2 5 0	0.480	0.483	0.490	0.493	0.484	0.480	0.489	0.491	0.485			
3 0 0	0.592	0.601	0.607	0.614	0.602	0.599	0.606	0.609	0.605			
3 5 0	0.702	0.721	0.726	0.734	0.722	0.718	0.726	0.727	0.726			
4 0 0	0.815	0.841	0.850	0.859	0.842	0.838	0.847	0.848	0.846			

Table 3.10 Approximate Expression with a Function of Temperature
for Thermal Linear Expansion of Uranium Silicide -
Aluminum Dispersion Fuels

$$\Delta L/L_0 = A_0 + A_1 \cdot T + A_2 \cdot T^2 + A_3 \cdot T^3$$

where $\Delta L/L_0$; Thermal linear expansion (%)

T ; Temperature (°C)

A_0, A_1, A_2, A_3 ; Constants which are shown below

Si Content in uranium silicide(%)	Constants	A_0	A_1	A_2	A_3
7.4		-5.364×10^{-2}	2.137×10^{-3}	3.514×10^{-7}	-0.808×10^{-10}
7.7		-5.216×10^{-2}	2.068×10^{-3}	7.424×10^{-7}	-4.579×10^{-10}
7.9		-5.148×10^{-2}	2.037×10^{-3}	9.009×10^{-7}	-7.138×10^{-10}

Thermal linear expansion adjusted to 0 at 25°C.

Table 3.11 Calculated Values of Thermal Linear Expansion and Thermal Linear Expansion Coefficient for Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

Temp. (°C)	Si content in Uranium Silicide (wt. %)	7.4		7.7		7.9	
		$\Delta L/L_0^*$ (%)	α^{**} ($10^{-8}/^\circ\text{C}$)	$\Delta L/L_0^*$ (%)	α^{**} ($10^{-8}/^\circ\text{C}$)	$\Delta L/L_0^*$ (%)	α^{**} ($10^{-8}/^\circ\text{C}$)
5 0	0.0541	21.64	0.0530	21.20	0.0525	21.00	
1 0 0	0.1635	21.80	0.1616	21.55	0.1605	21.40	
1 5 0	0.2745	21.96	0.2732	21.86	0.2719	21.75	
2 0 0	0.3872	22.13	0.3875	22.14	0.3862	22.07	
2 5 0	0.5013	22.28	0.5041	22.40	0.5029	22.35	
3 0 0	0.6169	22.43	0.6227	22.64	0.6214	22.60	
3 5 0	0.7339	22.58	0.7430	22.86	0.7412	22.81	
4 0 0	0.8522	22.73	0.8645	23.05	0.8618	22.98	

* : Thermal linear expansion are calculated by the approximate expression in table 3.3.2.

** : Temperature basis for α calculation is 25°C.

Table 3.12 Thermal Conductivities of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

Si Content in Uranium -Silicide (wt%)	Temperature [T] (°C)	Thermal Diffusivity [α] (cm ² /s)	Heat Capacity [C _p] (J/g·K)	Density [ρ] (g/cm ³)	Thermal Conductivity [κ] (W/cm·K)
7.4	25	0.2225	0.3302	6.630	0.4870
	100	0.2187	0.3478	6.598	0.5017
	200	0.2138	0.3668	6.554	0.5139
	300	0.2091	0.3807	6.509	0.5181
	400	0.2046	0.3895	6.463	0.5152
7.7	25	0.2248	0.3360	6.551	0.4948
	100	0.2220	0.3546	6.519	0.5132
	200	0.2182	0.3731	6.475	0.5273
	300	0.2147	0.3842	6.430	0.5303
	400	0.2112	0.3879	6.384	0.5230
7.9	25	0.2097	0.3427	6.544	0.4701
	100	0.2071	0.3587	6.513	0.4837
	200	0.2038	0.3756	6.469	0.4950
	300	0.2005	0.3874	6.424	0.4990
	400	0.1974	0.3940	6.378	0.4961

Table 3.13 Thermal Conductivities of U₃Si₂-Aluminum Dispersions (6)

Sample Identification	Fraction of Fuel -325M Mesh, wt%	Fuel Volume Fraction, %	Porosity, ² vol%	Conductivity of Dispersion at 60°C, W/m·K	Thermal Conductivity of Dispersion at 60°C, W/m·K ²
CS148	15	13.7	1.9	181	0.148
CS106	15	32.3	6.0	78	0.029
CS140	0	39.4	9.2	40	0.014
CS141	15	37.0	9.3	48	5×10^{-4}
CS142	25	39.1	9.5	40	0.017
CERCA #1	41.5	46.4	4.0	59	0.161
CERCA #2	41.5	46.4	4.0	59	0.076
CS143	15	46.4	15.4	13.9	0.010

¹Determined on the thermal conductivity specimens using a radiographic technique.²Average value for the roll-bonded fuel plate.

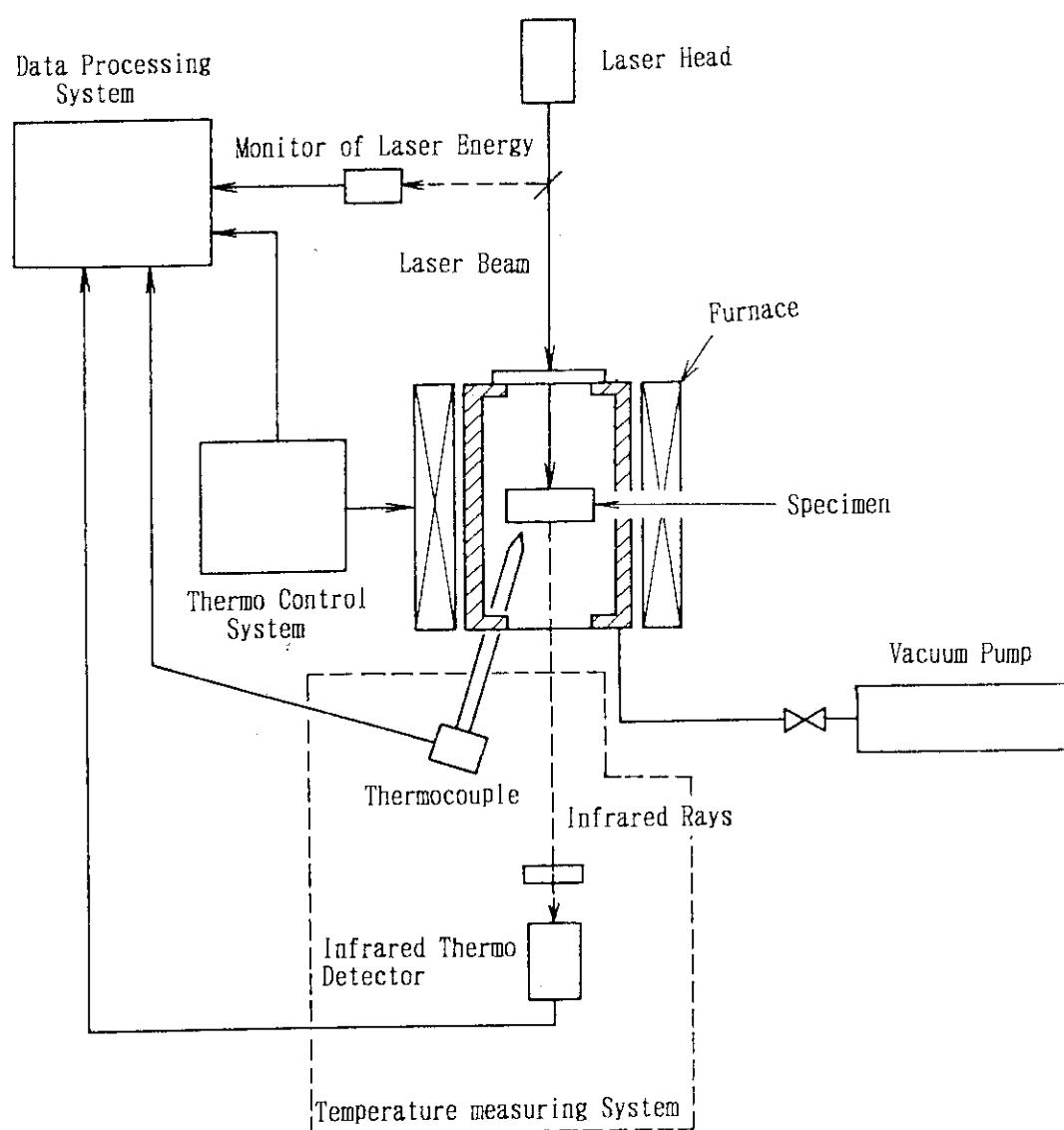


Fig. 3.1 Schematic of the Thermal Property Measuring System

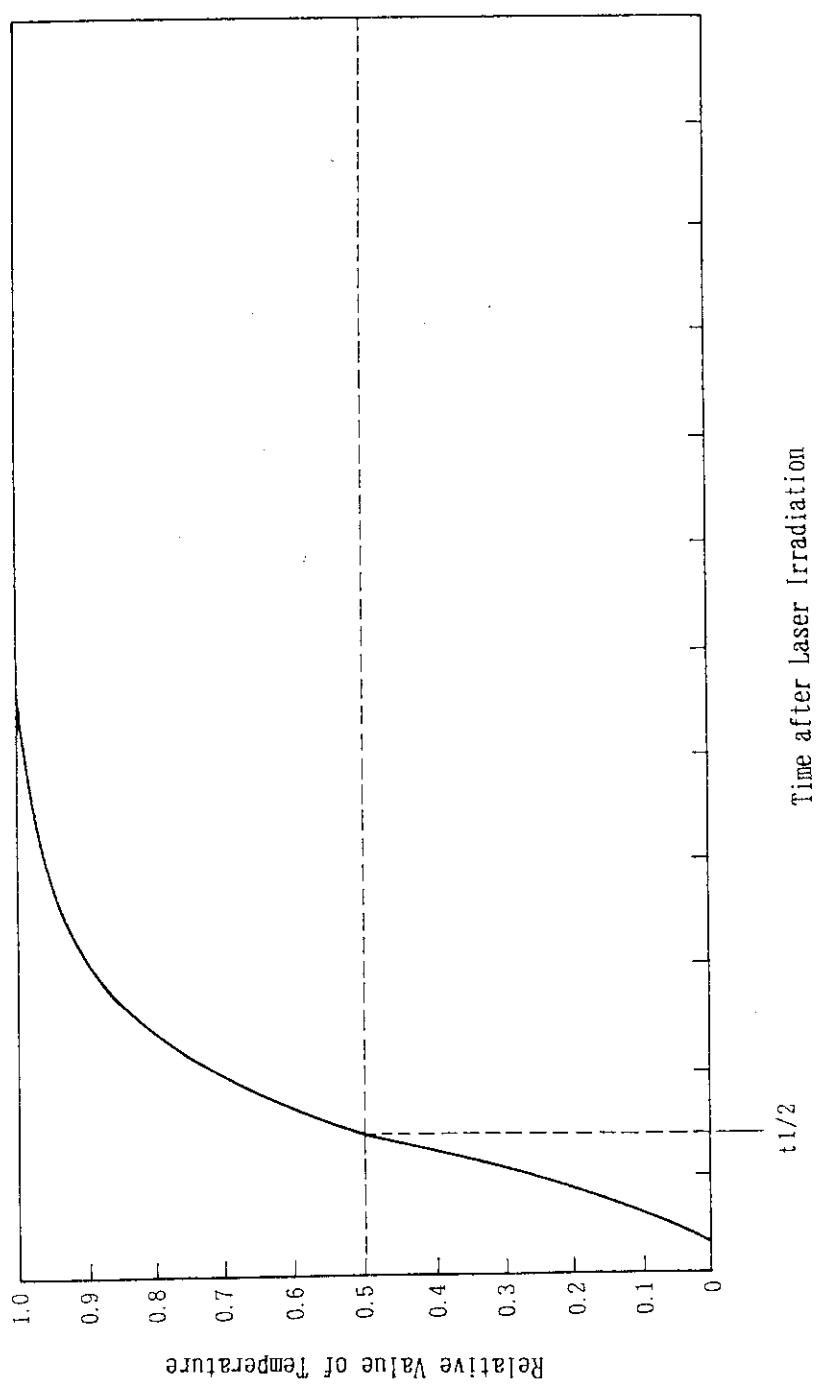


Fig. 3.2 Temperature Transient on the Reverse Side of the Specimen in Thermal Diffusivity Measurement

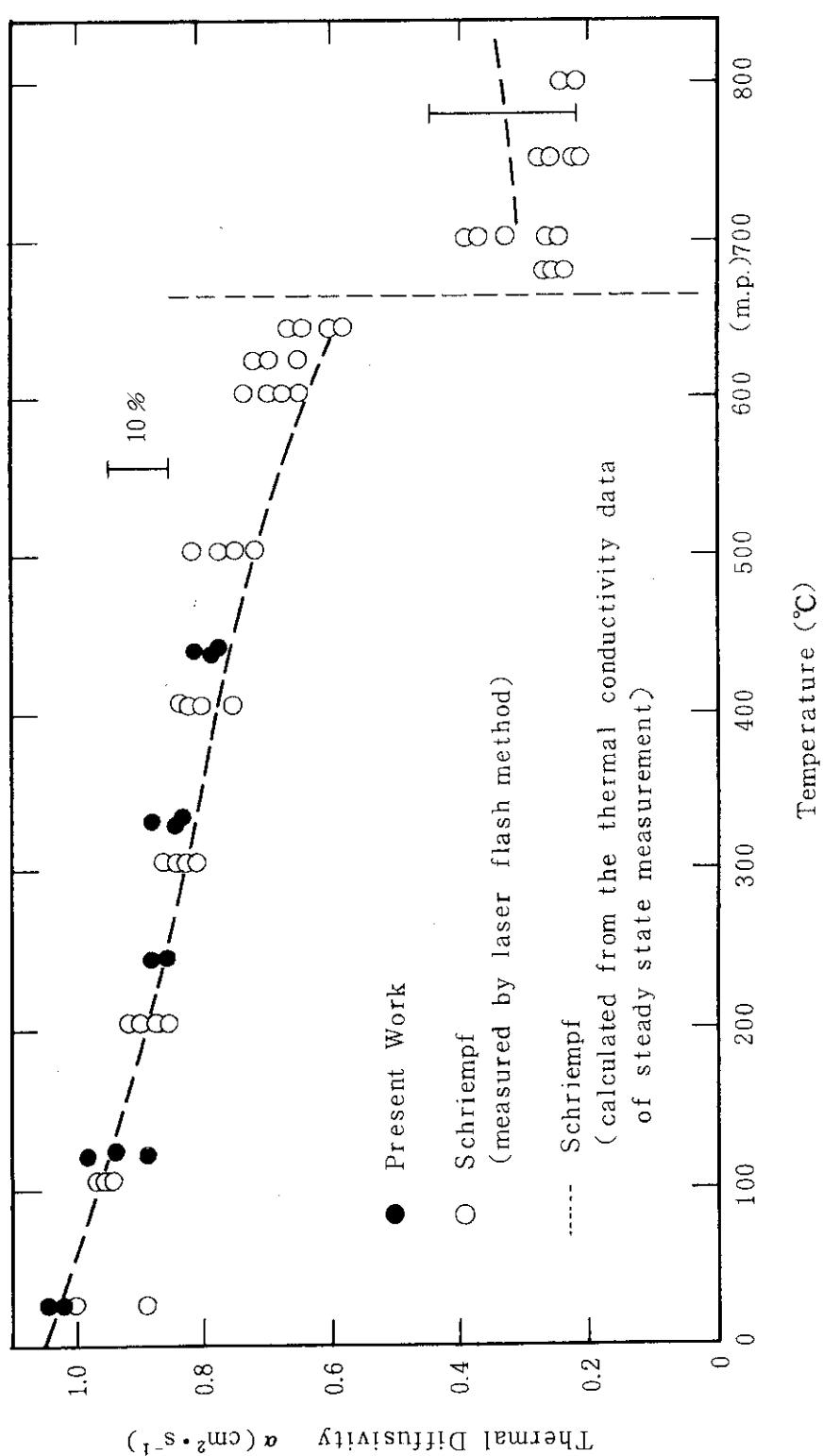


Fig. 3.3 Comparison of Measured Results with Other Data for Thermal Diffusivity of Aluminum

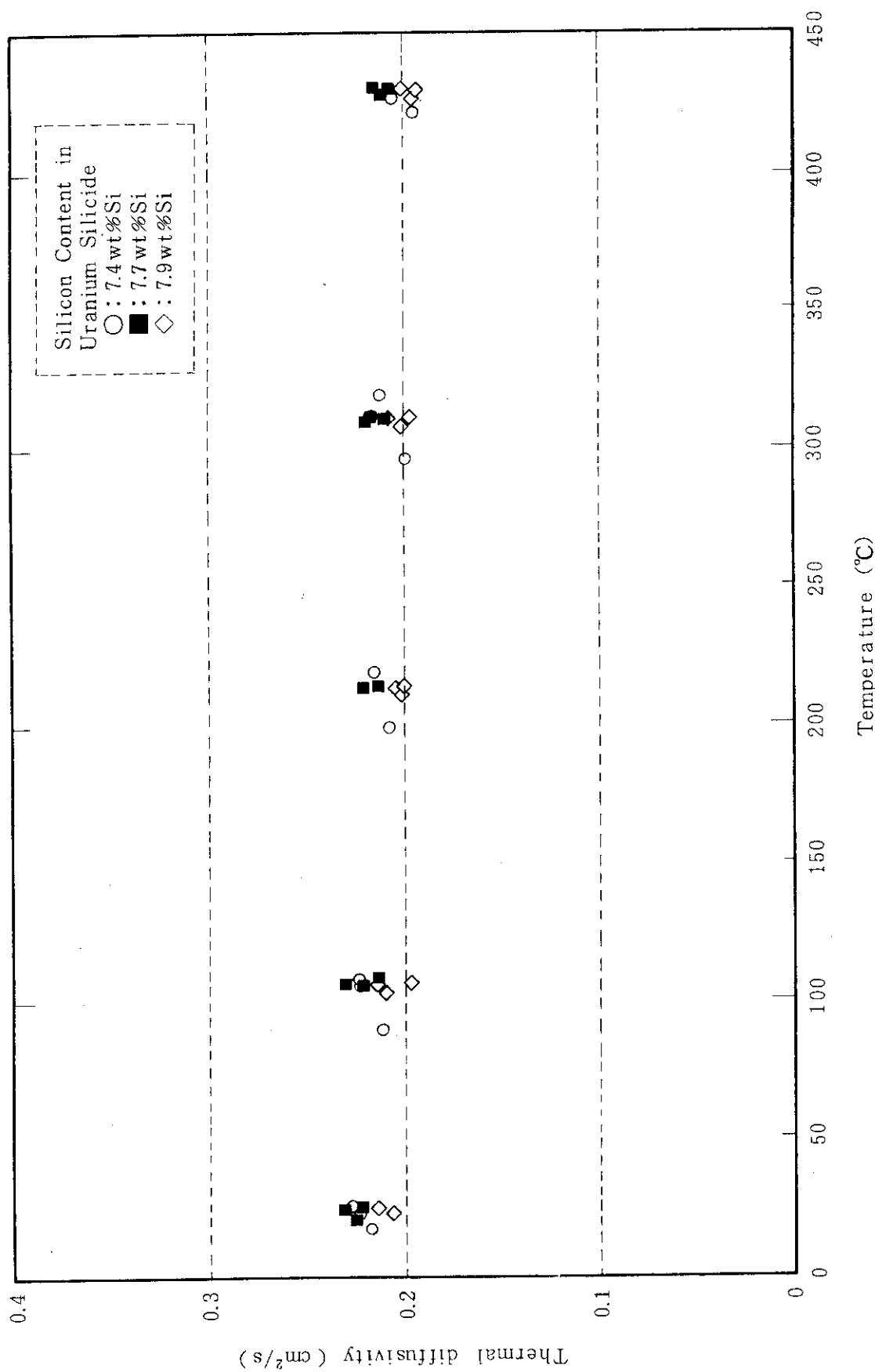


Fig. 3.4 Thermal Diffusivities of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

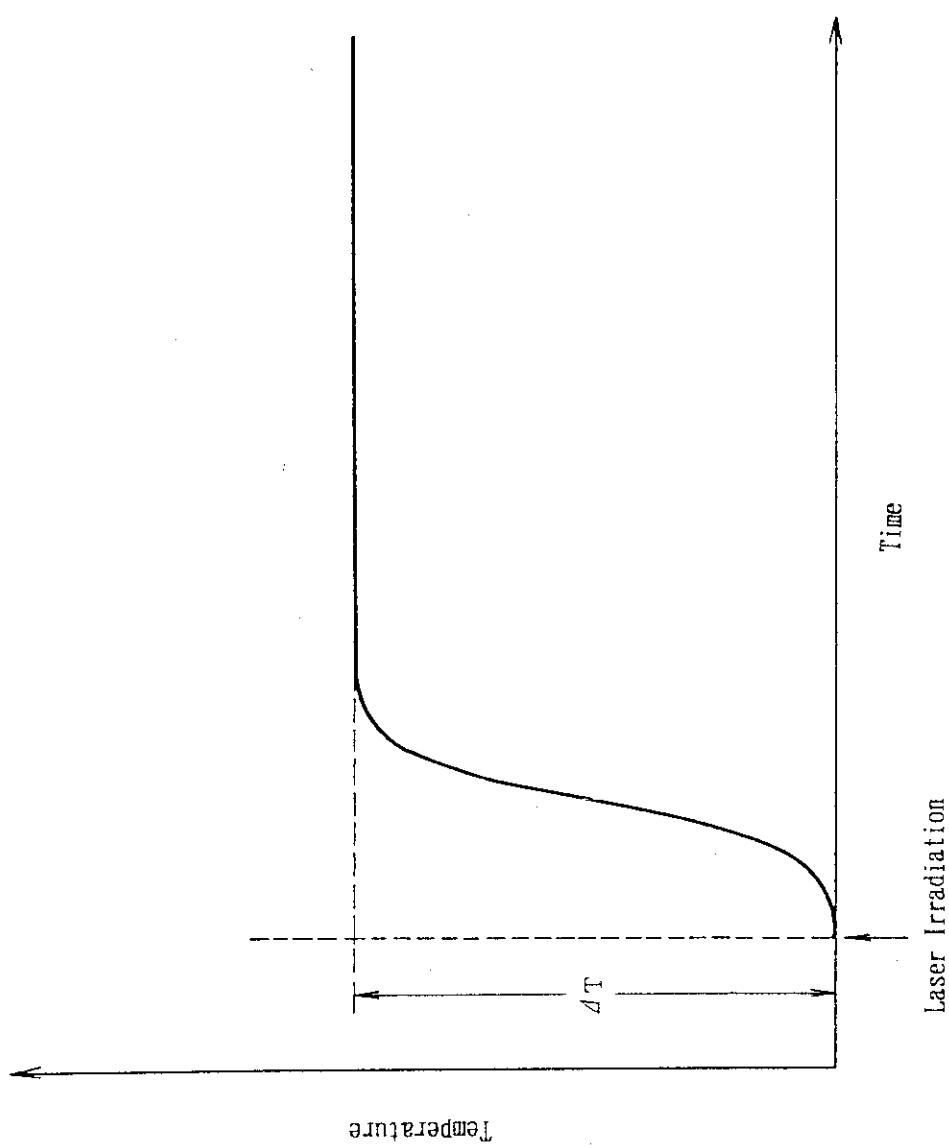


Fig. 3.5 Temperature Transient on the Reverse Side of the specimen in Heat Capacity Measurement

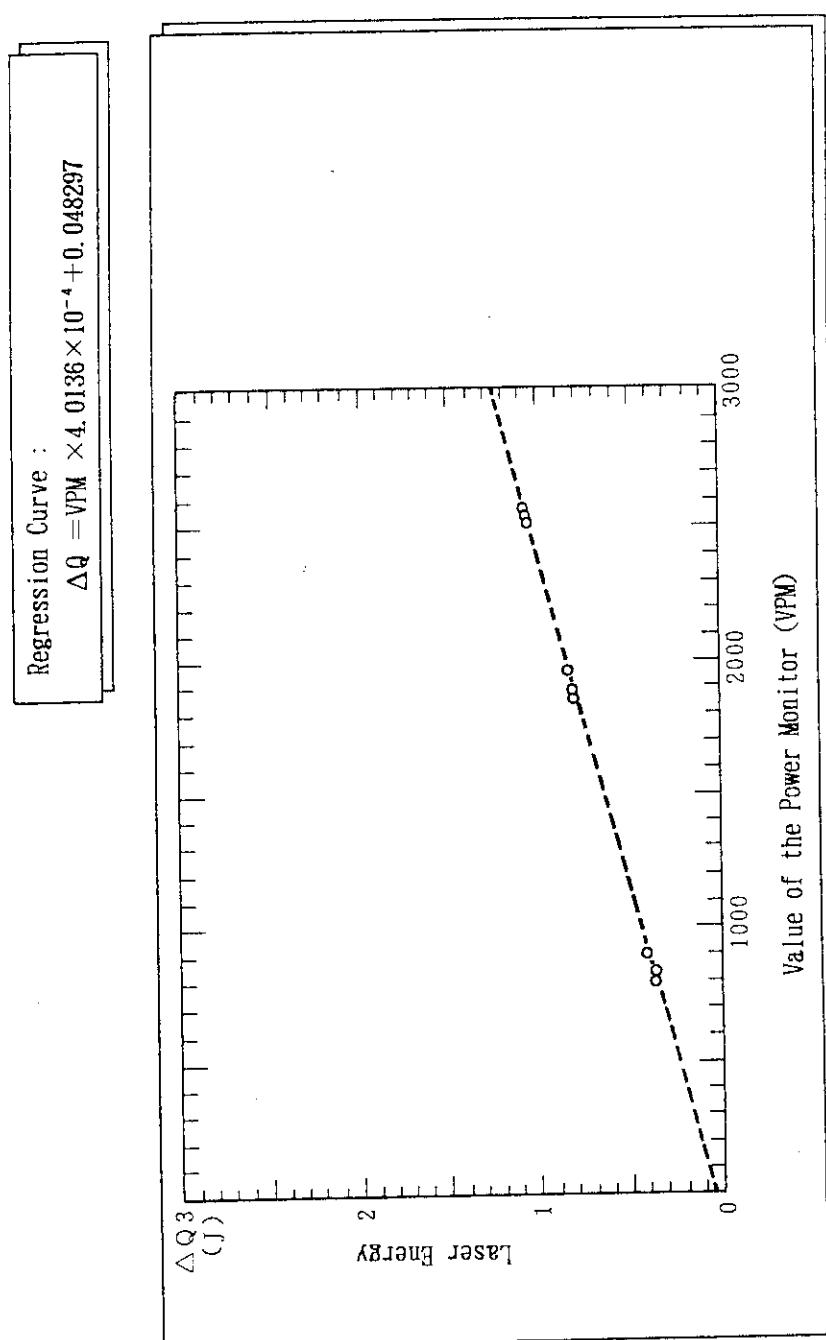


Fig. 3.6 Calibration Curve for Irradiated Laser Energy

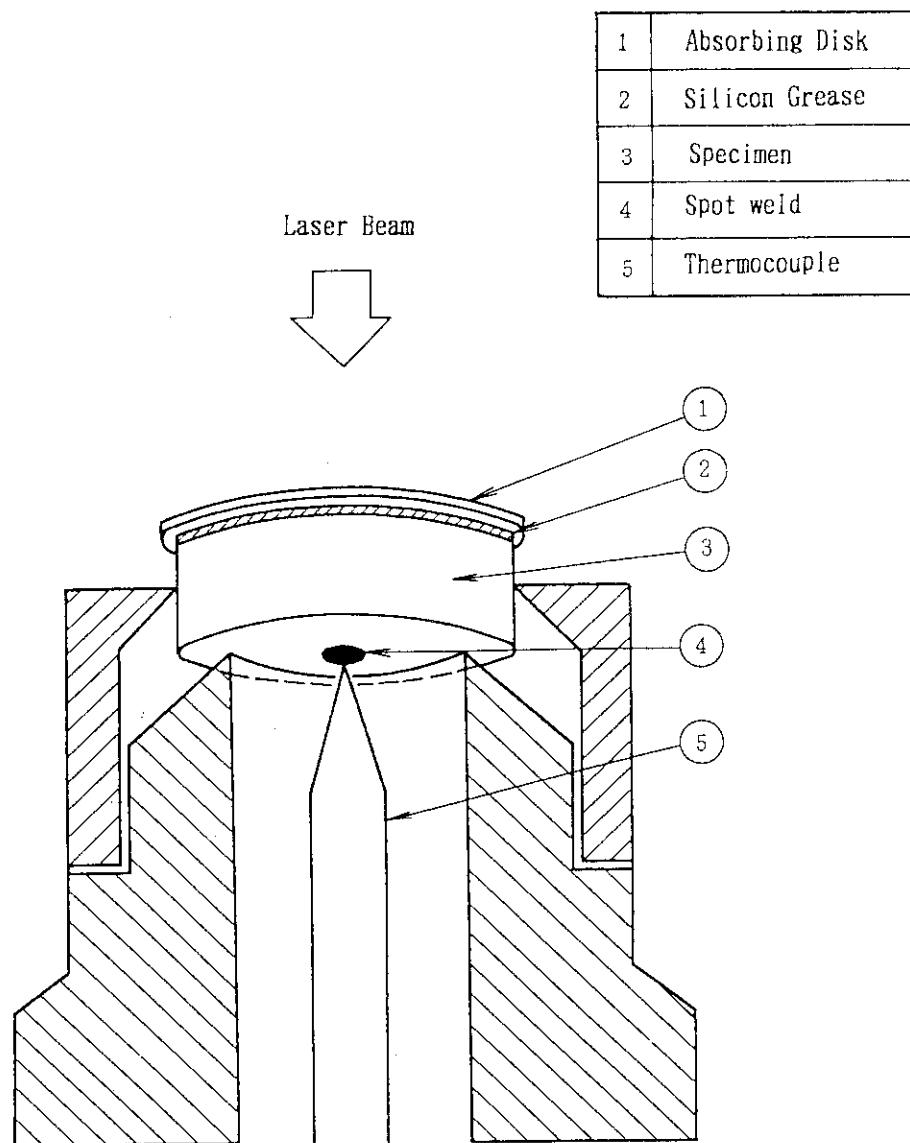


Fig. 3.7 Schematic of Sample Holding Assembly for Heat Capacity Measurement

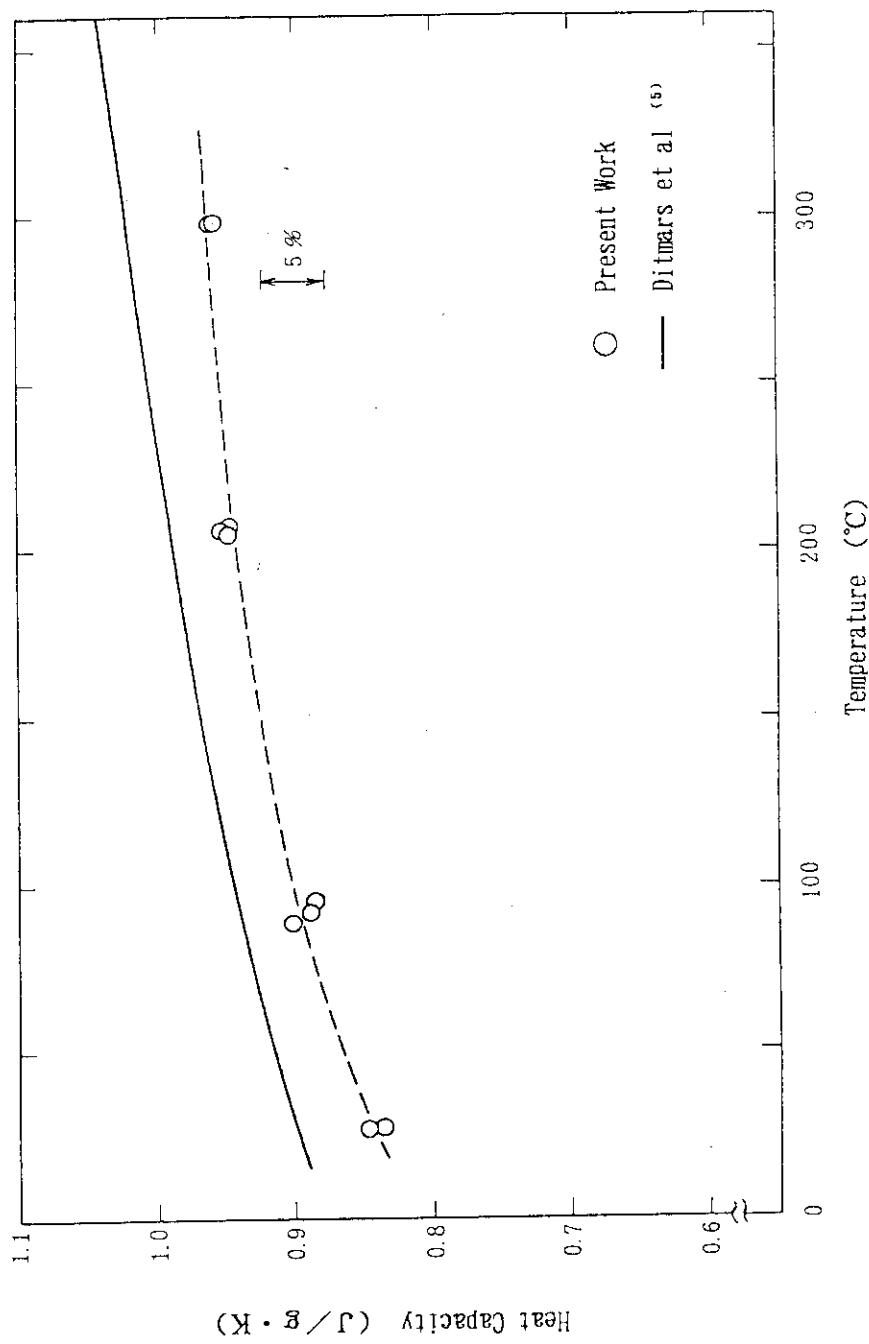


Fig. 3.8 Measured Results for Heat Capacity of Aluminum

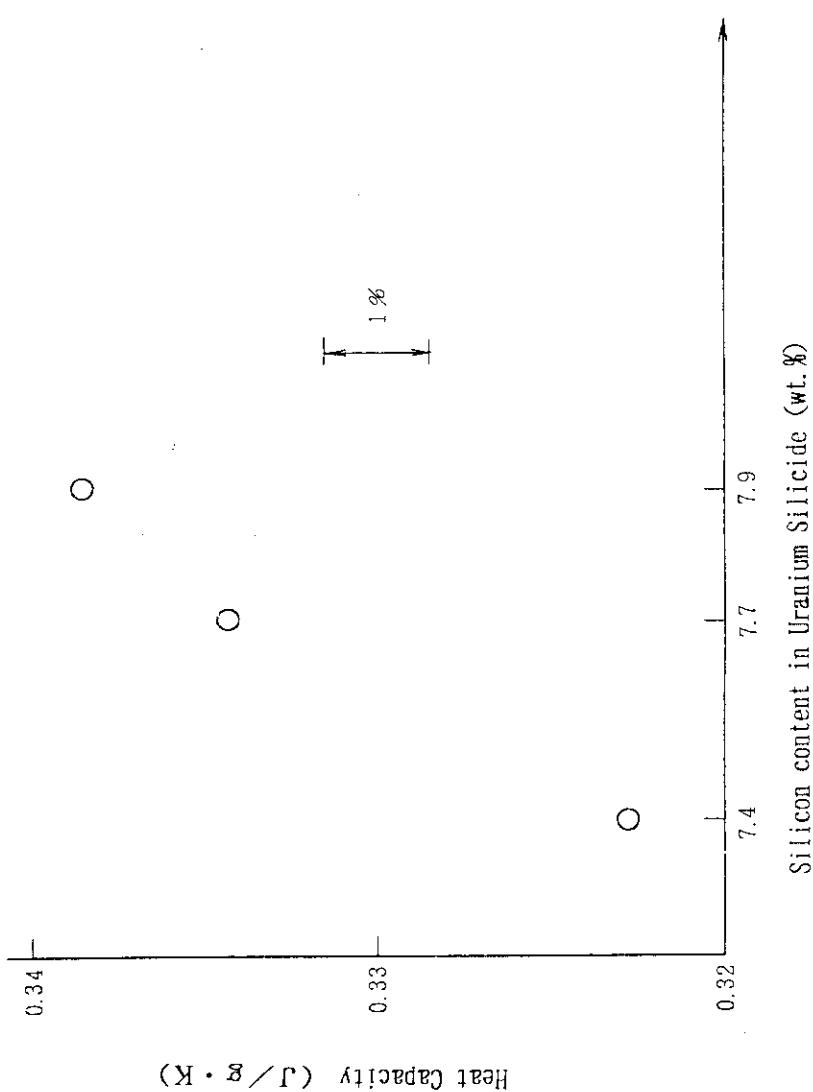


Fig. 3.9 Absolute Value of Heat Capacity for Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuel at Room Temperature

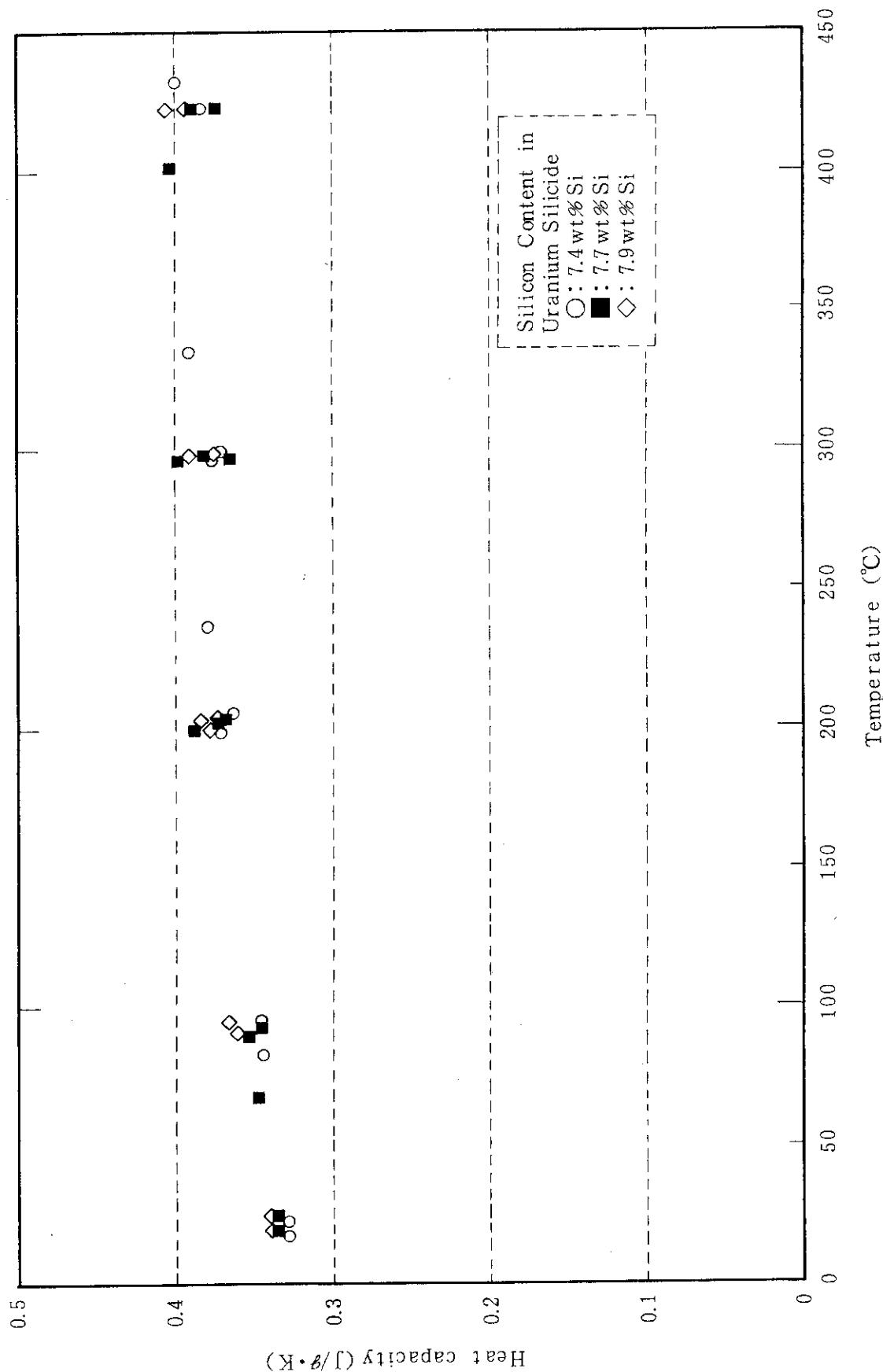


Fig. 3.10 Heat Capacities of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

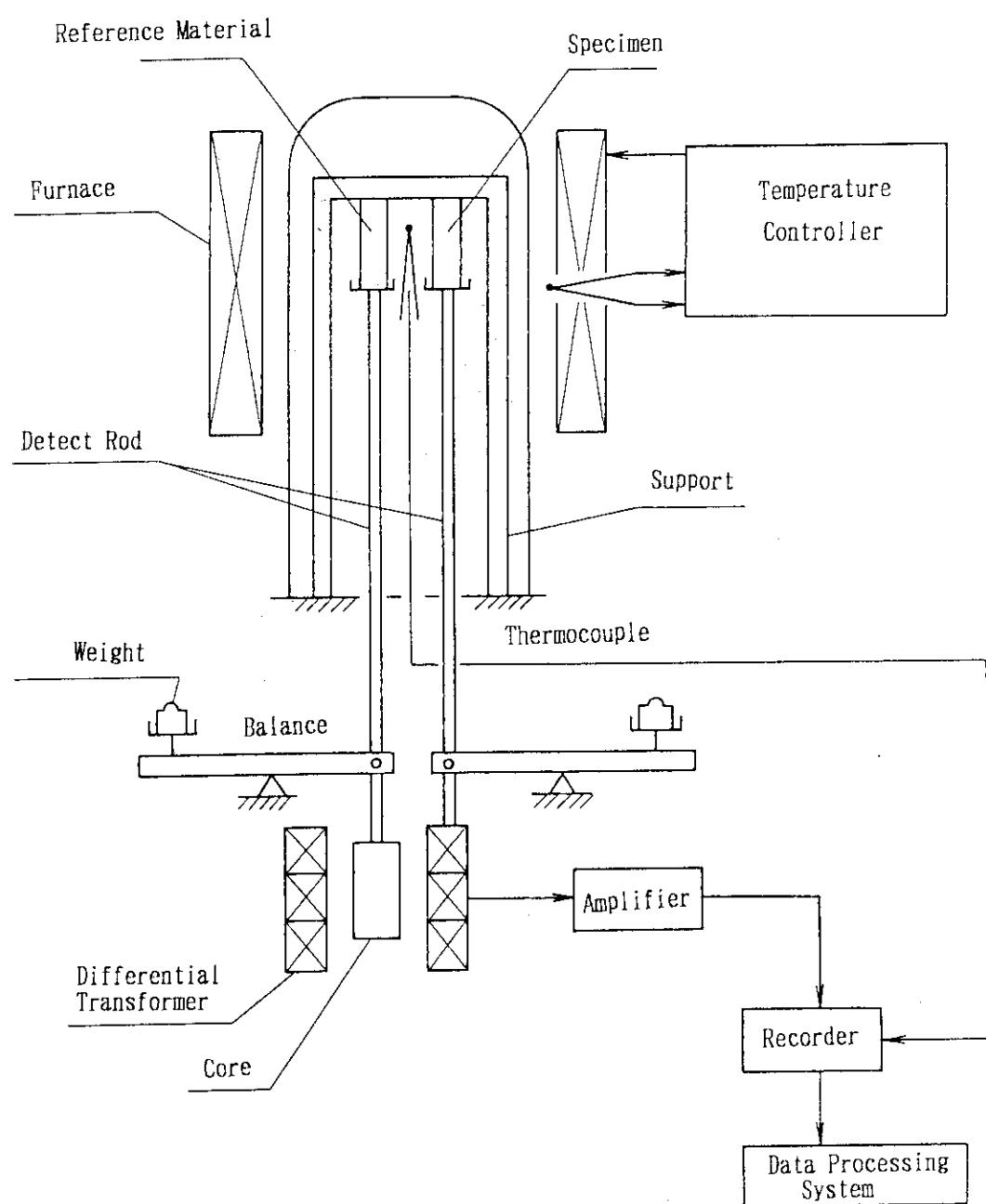


Fig. 3.11 Schematic of the Differential Dilatometer

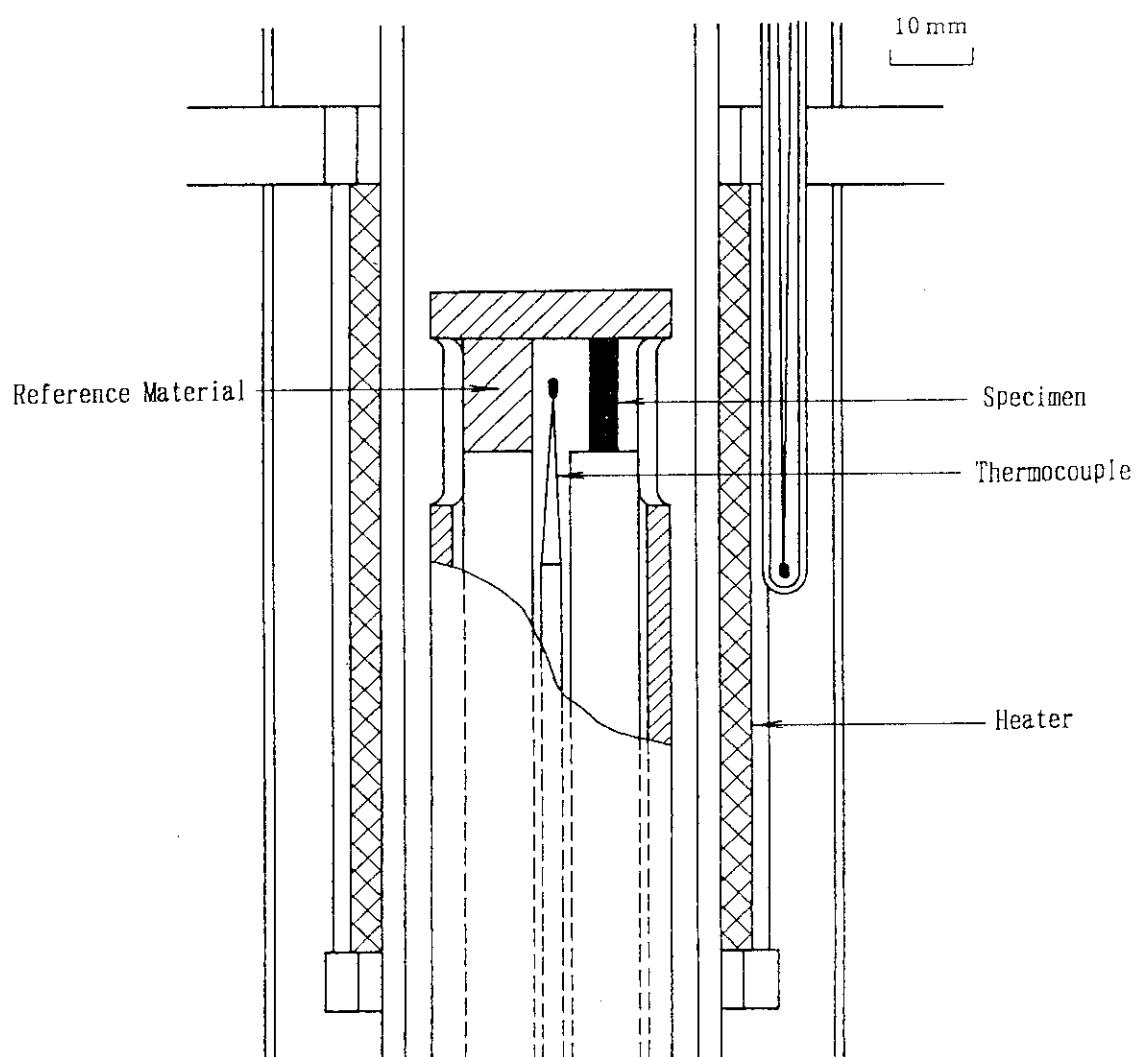


Fig. 3.12 Vertical Cross Section of the Differential Dilatometer

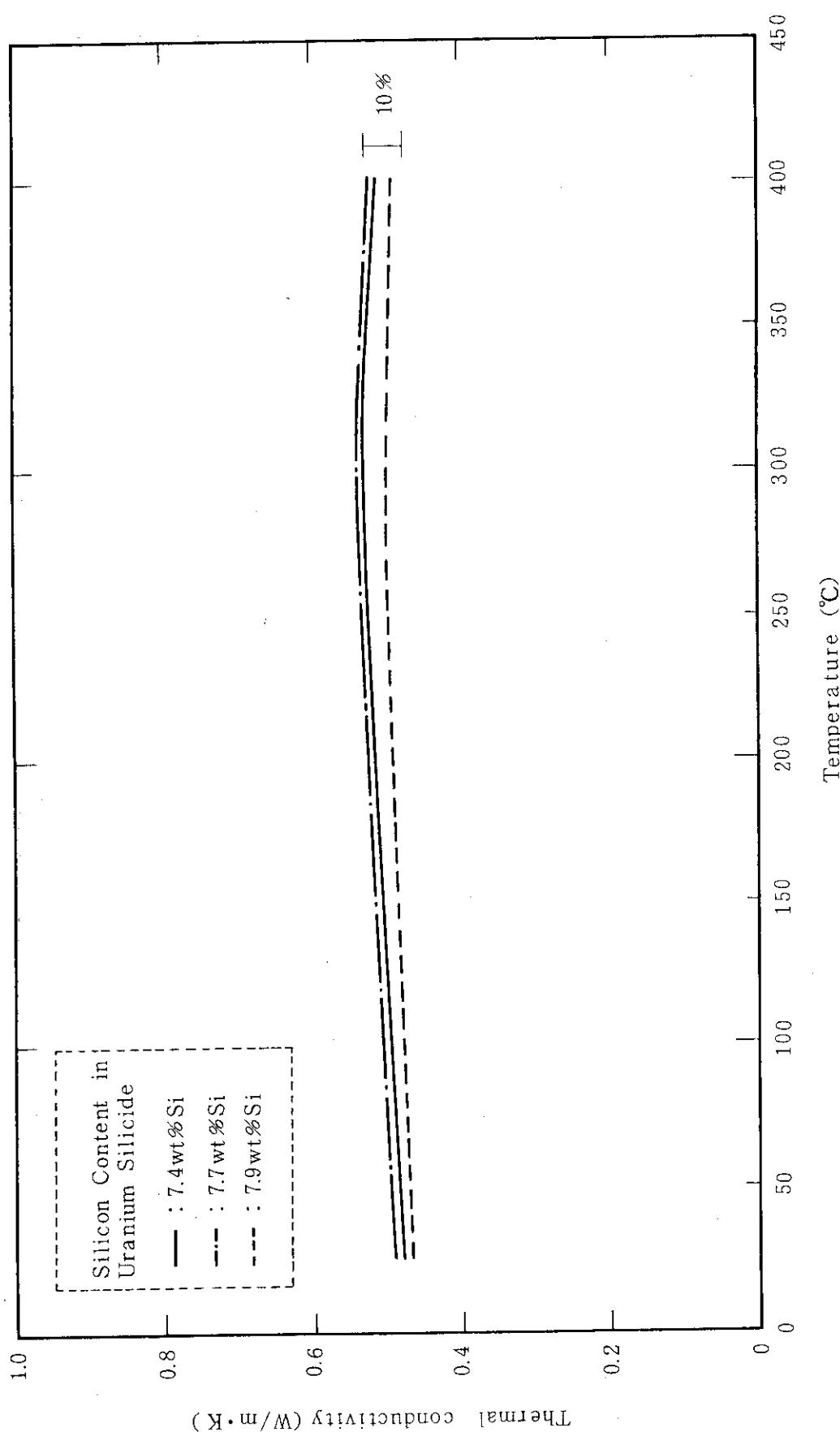


Fig. 3.13 Thermal Conductivities of Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuels

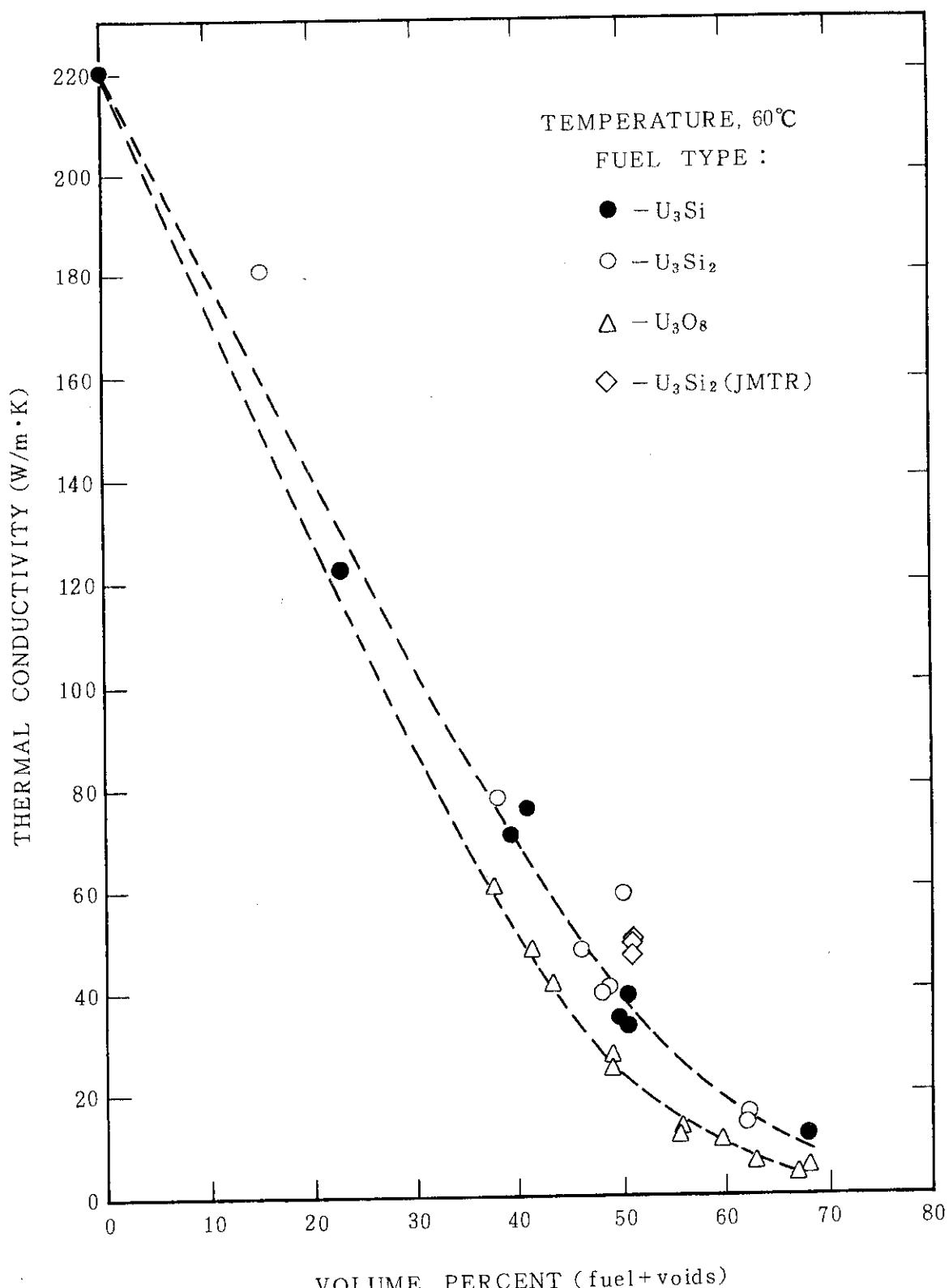


Fig. 3.14 Thermal Conductivities of Uranium Silicide- and U_3O_8 -Aluminum Dispersion Fuels as a Function of Volume Fraction of Fuel Plus Voids (Porosity).⁽⁶⁾

4. ま と め

シリコン含有率 7.4, 7.7, 7.9 wt% の 3 種類のウランシリサイドを用いたウランシリサイド－アルミニウム分散型燃料（ウラン密度：約 4.9 g/cm^3 , 気孔率：約 7%）について室温から 400°C 近傍の温度範囲で熱拡散率、熱容量及び熱膨張率測定を行い、これらの結果から熱伝導率を求め、以下の知見を得た。

- (1) 热拡散率は、3種類のシリコン含有率の間で有為な差は認められず、温度上昇とともに僅かに低下する傾向が認められる。
- (2) 热容量は、3種類のシリコン含有率の間で有為な差は認められず、温度上昇とともに僅かに増加する傾向が認められる。
- (3) 热膨張係数は、3種類のシリコン含有率の間で有為な差は認められず、 $21 \sim 23 \times 10^{-6}$ ($1/\text{ }^\circ\text{C}$) の範囲にある。
- (4) 热伝導率は、室温において約 $48 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ であり、温度上昇とともに僅かに大きくなる。また、 300°C 近傍で熱伝導率は最大に達する傾向を示し、その値は約 $51 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ である。

謝 辞

本報告書を製作するにあたり、二村嘉明材料試験炉部長、齋藤実材料試験炉部次長、中田宏勝前計画課長（現軽水炉将来技術開発計画特別チームサブリーダー）及び大岡紀一主任研究員には、シリサイド燃料に関する貴重な御意見を頂いた。また、ニュークリア、デベロップメント（株）の高阪裕二副主任研究員及び高田義彦専門部長には、物性測定に関する多大な御協力を頂いた。ここに深く感謝の意を表します。

4. ま と め

シリコン含有率 7.4, 7.7, 7.9 wt% の 3 種類のウランシリサイドを用いたウランシリサイド－アルミニウム分散型燃料（ウラン密度：約 4.9 g/cm^3 , 気孔率：約 7%）について室温から 400°C 近傍の温度範囲で熱拡散率、熱容量及び熱膨張率測定を行い、これらの結果から熱伝導率を求め、以下の知見を得た。

- (1) 热拡散率は、3種類のシリコン含有率の間で有為な差は認められず、温度上昇とともに僅かに低下する傾向が認められる。
- (2) 热容量は、3種類のシリコン含有率の間で有為な差は認められず、温度上昇とともに僅かに増加する傾向が認められる。
- (3) 热膨張係数は、3種類のシリコン含有率の間で有為な差は認められず、 $21 \sim 23 \times 10^{-6}$ ($1/\text{ }^\circ\text{C}$) の範囲にある。
- (4) 热伝導率は、室温において約 $48 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ であり、温度上昇とともに僅かに大きくなる。また、 300°C 近傍で熱伝導率は最大に達する傾向を示し、その値は約 $51 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ である。

謝 辞

本報告書を製作するにあたり、二村嘉明材料試験炉部長、齋藤実材料試験炉部次長、中田宏勝前計画課長（現軽水炉将来技術開発計画特別チームサブリーダー）及び大岡紀一主任研究員には、シリサイド燃料に関する貴重な御意見を頂いた。また、ニュークリア、デベロップメント（株）の高阪裕二副主任研究員及び高田義彦専門部長には、物性測定に関する多大な御協力を頂いた。ここに深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) "Safety Evaluation Report related to the Evaluation of Low-Enriched Uranium Silicide - Aluminum Dispersion Fuel for Use in Non-Power Reactors", NUREG-1313, (July, 1988).
- (2) 高橋洋一他: 「レーザーフラッシュ法熱拡散率測定における新しい解析法－対数法－の優位性」, Netsu Sokutei 15 (3) 103-109 (1988)
- (3) J. T. Schriempf, High Temperature - High Pressures, vol. 4, 411-416, 1972
- (4) Y. Takahashi et al., J. Chem. Thermodynamics 2 (1970) 847
- (5) D. A. Ditmars et al., International J. Thermophysics 6(5) 1985, 499
- (6) J. L. Snelgrove et al., "The use of U_3Si_2 dispersed in aluminum in plate-type fuel elements for research and test reactors", ANL/RERTR/TM-11, (1987)