

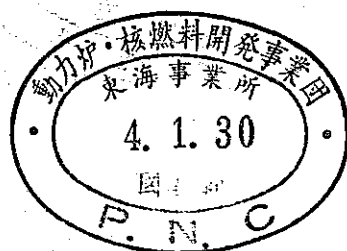
燃烧度模擬混合酸化物燃料の炉外評価試験(VI)

融点測定

Out of Pile Simulation Testing of $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ Fuels to High Burnup

Melting Points Measurement

1971年11月



動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

この資料は、社内における検討、周知を目的とする社内資料です。

燃焼度模擬混合酸化物燃料の炉外評価試験 (VI)

融 点 測 定

| | |
|-------|----------|
| 実施責任者 | 小 泉 益 通 |
| 報 告 者 | 鹿 島 貞 光 |
| | 新 保 勝 利* |
| | 照 沼 俊 弘 |
| | 小 松 純 治 |
| | 松 本 憲 一 |

期 間 1970年4月1日～1971年1月15日

目 的 混合酸化物燃料の燃焼に伴う融点の変化を知る。

概 要 FP蓄積による融点の変化を知るため、20% PuO_2 - UO_2 に代表的な固体状FP元素を10種類混入して、燃焼度を50,000～150,000 MWD/Tに模擬した燃料の融点を測定した。使用した炉はV型フィラメント炉で、約1.5 Kg/cm^2 の5% H_2 - He ガス中で測定を行なった。温度測定はグローブ・ボックスのホマライト^と炉の石英ガラスを通し、200mmの望遠レンズを付けた2色式温度計を用いて行なった。温度測定の際、試料の直接観察とともにサーマル・アレストを取った。

試料測定の結果、50,000 MWD/Tまでは融点にほとんど変化は見られず、50,000～150,000 MWD/Tまではほぼ直線的に低下する傾向がある。100,000 MWD/Tでは約15°C、150,000 MWD/Tでは約60°Cの低下が見られた。

また125,000 MWD/Tの燃焼に相当する量の固体状FP元素を7種類入れた UO_2 について同様の測定を行なった結果、約140°Cの融点の低下が認められた。

* 日立製作所日立研究所

目 次

| | |
|---------------------|---|
| 1. ま え が き | 1 |
| 2. 測定装置と測定法 | 1 |
| 3. 温度計の較正 | 4 |
| 4. 燃焼度模擬燃料の測定結果 | 5 |
| UO_2 | |
| (1) $-PuO_2 - Fp's$ | 5 |
| (2) $UO_2 - Fp's$ | 7 |
| 5. 考 察 | 7 |
| 6. 参 考 文 献 | 8 |

1 ま え が き

プルトニウム燃料部試験課では、 PuO_2 — UO_2 混合酸化物燃料の照射に伴なり物性値変化を知るため、燃焼度模擬燃料を製造し各種の試験・測定を行なってきた。

試料の製造は20% PuO_2 — UO_2 共沈混合粉末に、50,000, 100,000, 150,000 MWD/Tの燃焼に相当する量の固体状Fp元素を10種類添加し、ボール・ミルで4 hr 混合を行なった。成型はバインダ無しで1.5 t/cm²のプレス圧で行ない、予備燃焼は N_2 —5% H_2 ガス中650°C 8 hr、^{本燃焼}燃焼は同じく1,600°C 2 hrである。

最後にFpの固溶・析出等の状況を実際に原子炉中で燃焼した燃料に近似するため、2,200°Cで2時間、モリブデンカプセルに入れ加熱した。

これら試料のXMA測定や熱拡散率測定結果についてはすでに報告されているが、ここでは融点の測定結果について報告する。

2 測定装置と測定法

1) 測定装置

装置の概略を図-1に示す。

溶解炉は電極および炉壁を水冷した内容積3ℓ程度のV型フィラメント炉で、電気出力は最高20V 400Aである。炉には真空操作のための回転真空ポンプ、および炉内ふんい気調節のためのパイプラインがついており、バルブを介してBox外のポンベよりガスを導入できる。この実験では試料の酸化を防ぐため約1.5 Kg/cm²の5% H_2 —He ガスを使用した。

また試料の温度測定のために、V型フィラメントの真上、および真横に約30 mmφの石英の覗き窓がある。

温度の測定には^{S社}製の2色式温度計を用いた。この温度計は波長 λ_1 , λ_2 なる2つの光(実際は赤と緑)の量比より温度を測定する原理を用いているため、放射比の補正などが不要であるため使用が簡単で、かつ精度良い測定が行なえる。

(2) 測定値

温度の測定はグローブ・ボックスのホマライトと炉の石英製覗き窓を通して行なった。被測温体の測温部分の大きさは約1 mmφであり、試料近傍のフィラメントの温度を測る方法をとった。フィラメントの温度を測ったのは、試料の熱伝導が悪いのと放熱のため、小さな試料を使っても試料に温度勾配がついてしまい、かつ熔融はフィラメントとの接触部から始まるから最高温度の部分の測るのがより真の融点に近いと思われるからである。フィラメントの温度と試料との温度を比較すると、試料が金属の場合には10~40°Cの温度差があるが、セラミックの場合には100°Cを越す場合もある。

温度差は試料とフィラメントとの間にばかりでなく、フィラメント各部でちがいがあ

フィラメントの温度分布の一例を図-2に示す。この様に温度差があるため再現性の良い測定を行なうには試料を常に同一個所に置き、同一個所の温度を測ることが必要である。

今回の実験では温度測定上の個人誤差をなくすため、試料の直接観察とともにサーマルアレストを取った。アレストを取る方法の概略を図-1に示したが、このサーマルアレストとは、V型フィラメントにかゝる二次電圧を整流してX-YレコーダーのX軸に、2色式温度計の出力電圧をY軸に入れることにより得られる。つまりヒータ周囲の熱吸収が大きいため、フィラメントに流れる一定電流に対してフィラメント温度はつねに一定となる。一定速度でフィラメント電流を増加していけば試料の融解潜熱のため、電圧—温度曲線上にアレストが生じる。このサーマル・アレストはメタリックな試料では明確に現われなかったが、 Al_2O_3 や UO_2 、 PuO_2-UO_2 等でははっきり得られた。サーマルアレストの例を図-3に示す。

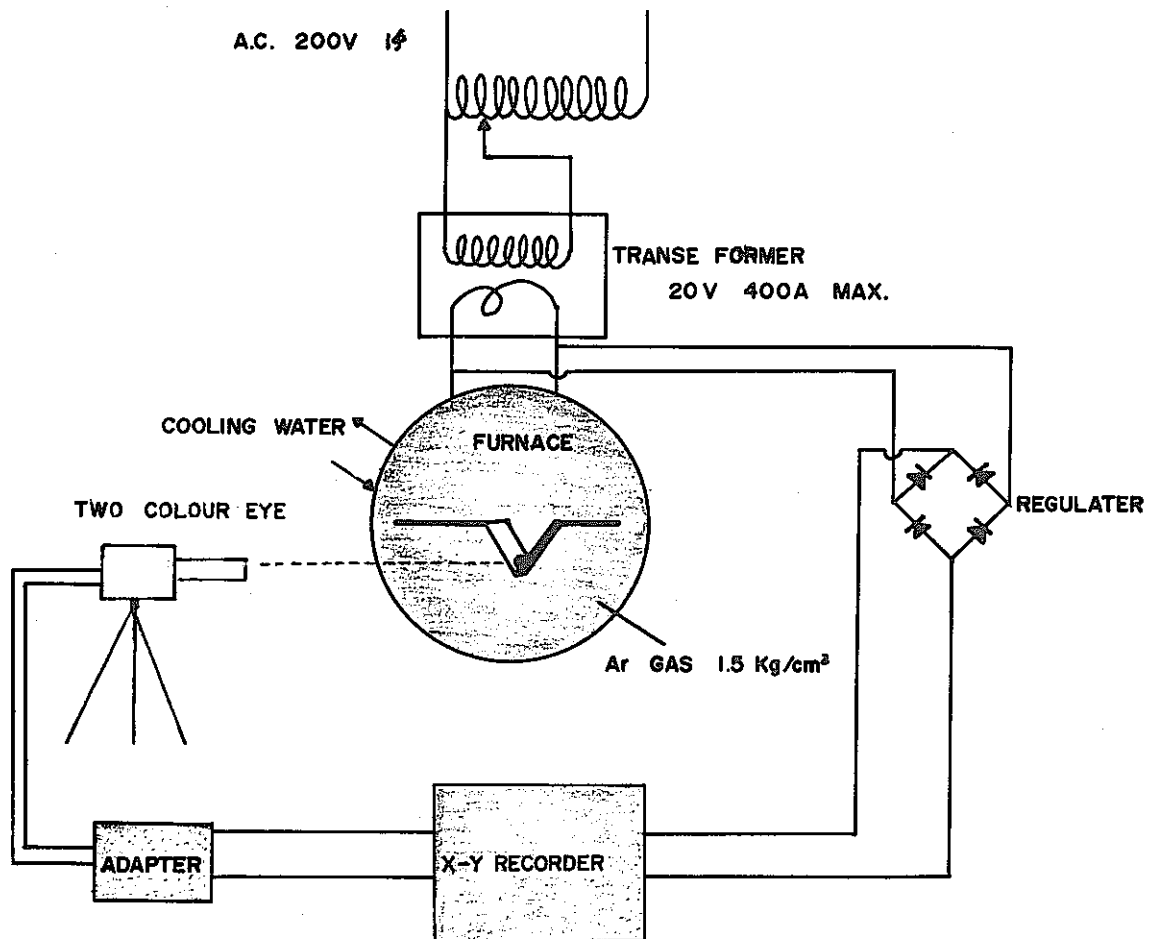


図-1 融点測定装置概略図

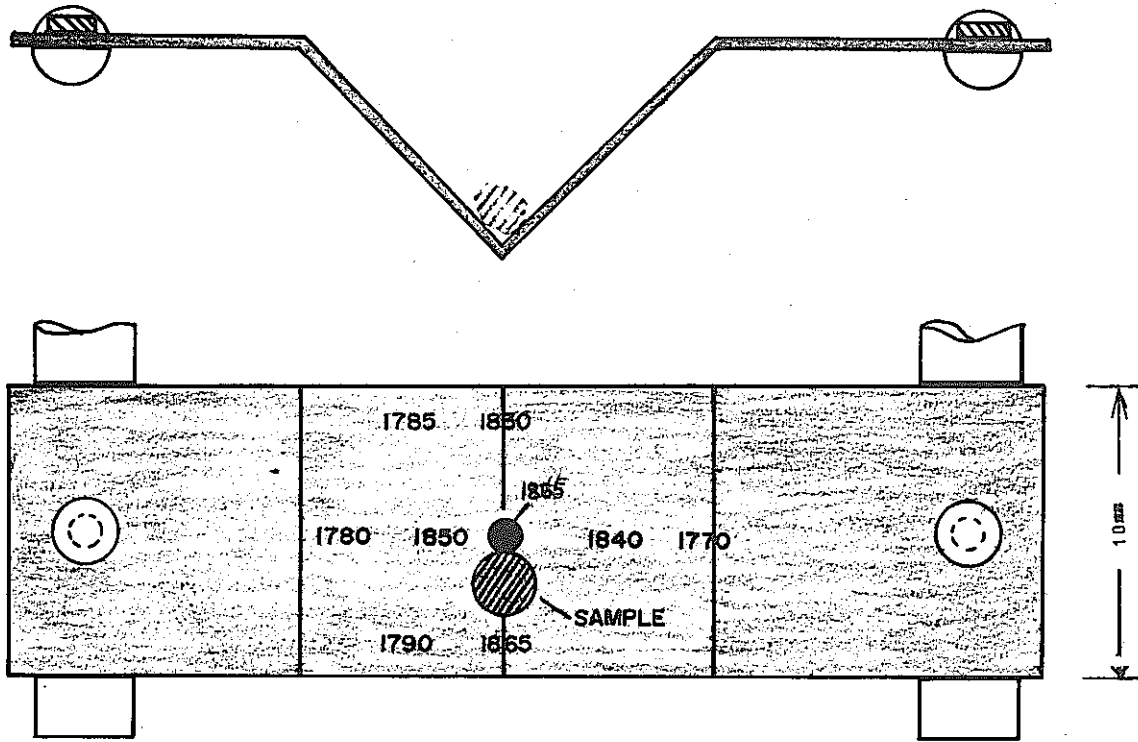


図-2 フィラメント上の温度分布

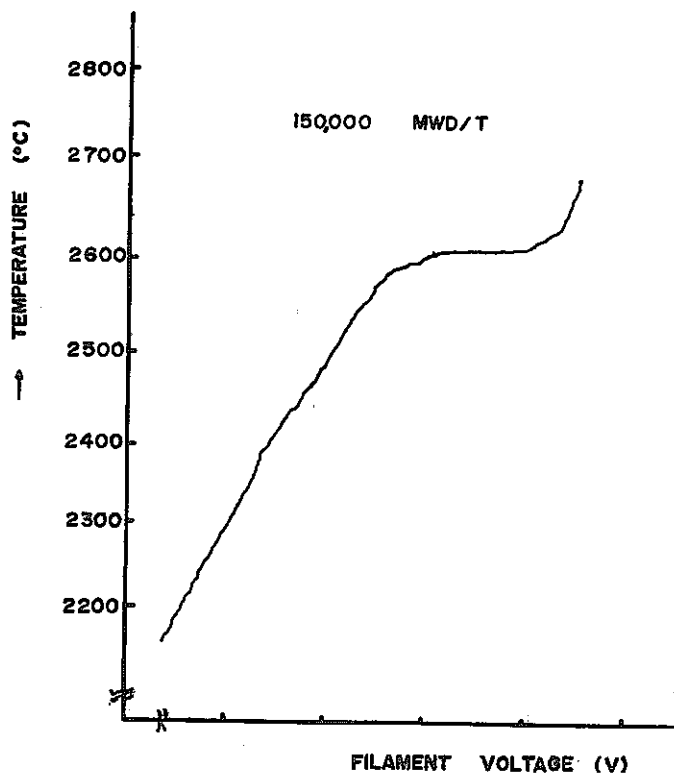


図-3 サーマル・アレストの一例

3 温度計の較正

使用した2色式温度計は105 mmの望遠レンズ用に較正されていた。これに200 mm望遠レンズを付けて使用するため温度計の較正を行なった。

測定方法は上述した。使用した温度標準試料は表-1の4種類である。試料の大きさは Al_2O_3 , Mo, Taは1~2 mmφ程度の小片を, Irは0.5 mmφの線を2 mmℓ程度に切ったものを使用した。

表-1 標準試料の融点測定結果

| 物質名 | 融点(文献値) | 測定値 | |
|-----------|--------------|------|------|
| Al_2O_3 | 2050 ± 15 °C | 1830 | |
| | | 1840 | |
| | | 1830 | |
| Ir | 2445 ± 20 °C | | 2260 |
| | | | 2240 |
| | | | 2250 |
| Mo | 2625 ± 15 °C | 2500 | 2550 |
| | | 2470 | |
| | | 2570 | 2540 |
| Ta | 2996 ± 50 °C | 2840 | |
| | | 2860 | |
| | | 2860 | |

Al_2O_3 を除いては他は金属なので明確なサーマル・アレストは取れないため、温度計の指針の動きによる温度読取の遅れを防ぐため観察者が温度計の指針および目盛板をポラロイドカメラで撮影する方法を取った。

測定値を表-1に、較正線を図-4に示す。標準試料として使用したMoは測定値のバラツキが大きく、信頼できる値が得られなかった。測定値がばらついたのは、MoとWとの間に反応が起ったためと思われる。

装置および較正值の検討のため、 UO_2 の融点を測った結果、 2830 ± 25 °Cという値が得られた。この値はLyon and Bailly,¹⁾ およびHein²⁾らがタングステンカプセルに封じ込みサーマル・アレスト法により測定した値と非常に良く一致する。

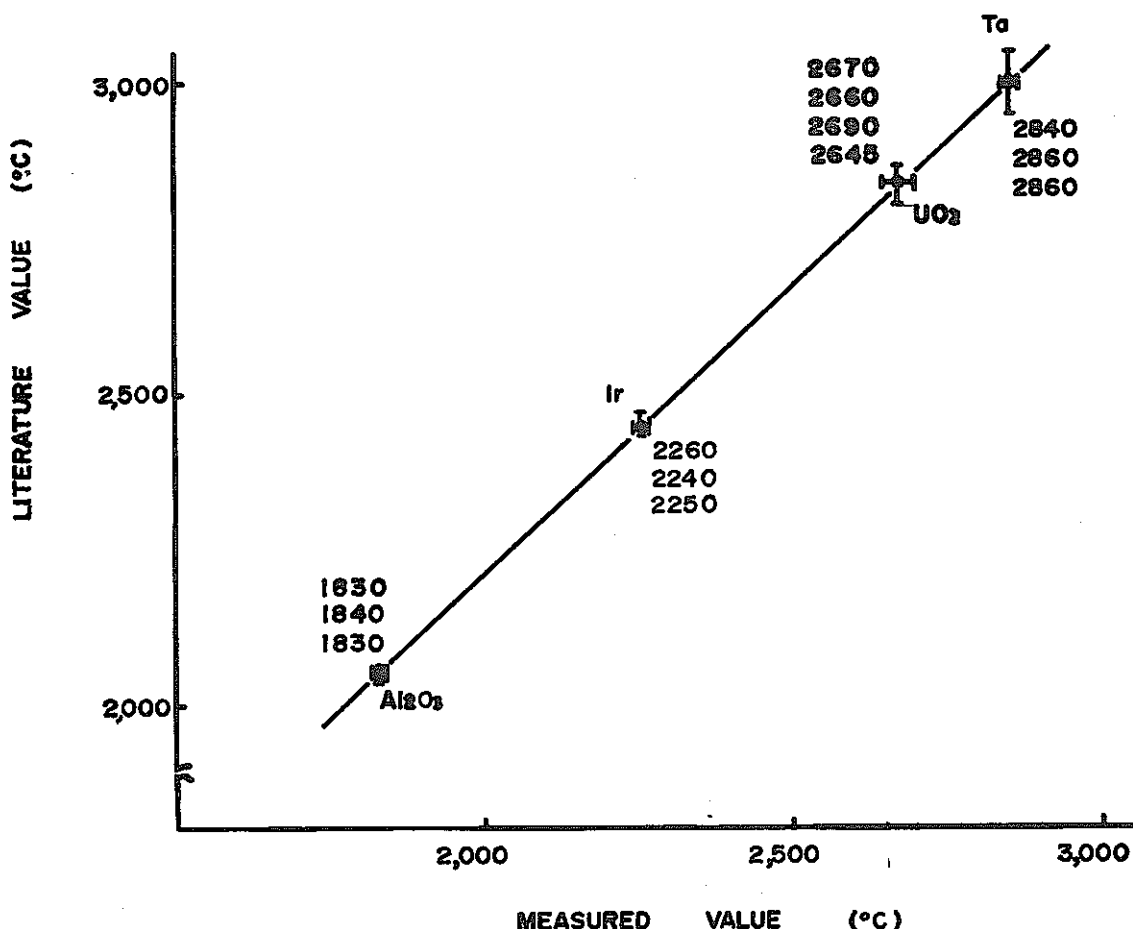


図-4 温度補正線

4 燃焼度模擬燃料の融点測定結果

(1) UO₂-FP

下社
 で製造した 125,000 MWD/T の燃焼に相当する UO₂ Pellet を入手出来たのでその融点測定を行なった。組成を表-2 に PuO₂-UO₂-FP 燃料と共に示す。試料の燃結雰
 囲気は Ar である。

測定法は前述した通りであるが、温度計は修理完了した動燃の 2 色式温度計を使用した。温度計の較正にはやはり Al₂O₃, Ir, Ta を使用した。

測定結果を表-3 に示す。測定は 3 回行なったが、かなり再現性の良い結果が得られた。当所で測定した UO₂ と FP 燃料との融点を比較すると、UO₂-FP では約 140 °C の低下が見られた。

表—2 $\text{UO}_2\text{-F}\cdot\text{P}$ および 20% $\text{PuO}_2\text{-UO}_2\text{-F}\cdot\text{P}$ の組成

| | 20% $\text{PuO}_2\text{-UO}_2\text{-F}\cdot\text{P}$ | | | $\text{UO}_2\text{-F}\cdot\text{P}$ |
|----|--|-------|-------|-------------------------------------|
| | 5 万 | 10 万 | 15 万 | 1.2.5 万 |
| La | 0.50 | 0.91 | 1.26 | 1.09 |
| Ce | 0.89 | 1.64 | 2.27 | 1.96 |
| Nd | 1.50 | 2.76 | 3.83 | 3.29 |
| Y | 0.23 | 0.42 | 0.59 | 0.51 |
| Sr | 0.42 | 0.77 | 1.07 | 0.92 |
| Ba | 0.36 | 0.66 | 0.92 | 0.79 |
| Zr | 1.56 | 2.87 | 3.99 | 3.43 |
| Mo | 1.59 | 2.92 | 4.06 | — |
| Ru | 1.27 | 2.33 | 3.23 | — |
| Pd | 0.47 | 0.86 | 1.20 | — |
| | 8.79 | 15.14 | 22.42 | |

(Cation %による)

Pellet 寸法は 5.5 mmφ 10 mmℓ

表—3 MWD/T 燃焼度模擬 $\text{UO}_2\text{-F}\cdot\text{P}$ の組成

| | 測定値 (°C) | 補正值 (°C) |
|------|----------|----------|
| 試料 1 | 2,650 | 2,690 |
| " 2 | 2,640 | 2,680 |
| " 3 | 2,670 | 2,710 |
| 平均 | 2,653 | 2,693 |

(2) 20% PuO₂ - UO₂ - F·P

50,000, 100,000, 150,000 MWD/T 燃焼度模擬燃料をMoカプセルより取出し、1~2mmφ程度の小片に割った試料を用いて融点を測定した。各試料の組成を表-2に示した。測定は1つの試料につき3~5回行なった。その結果を図-5に示す。各試料の測定に多少バラツキがあったが他はかなり再現性のよいデータが得られた。

これらの結果から、50,000 MWD/TまではF·Pの影響はほとんど現われず、50,000~150,000 MWD/Tの範囲では燃焼の進行にともない融点はほぼ直線的に低下する傾向が見られる。この融点の低下は100,000 MWD/Tで約15°C、150,000 MWD/Tで約60°Cであった。

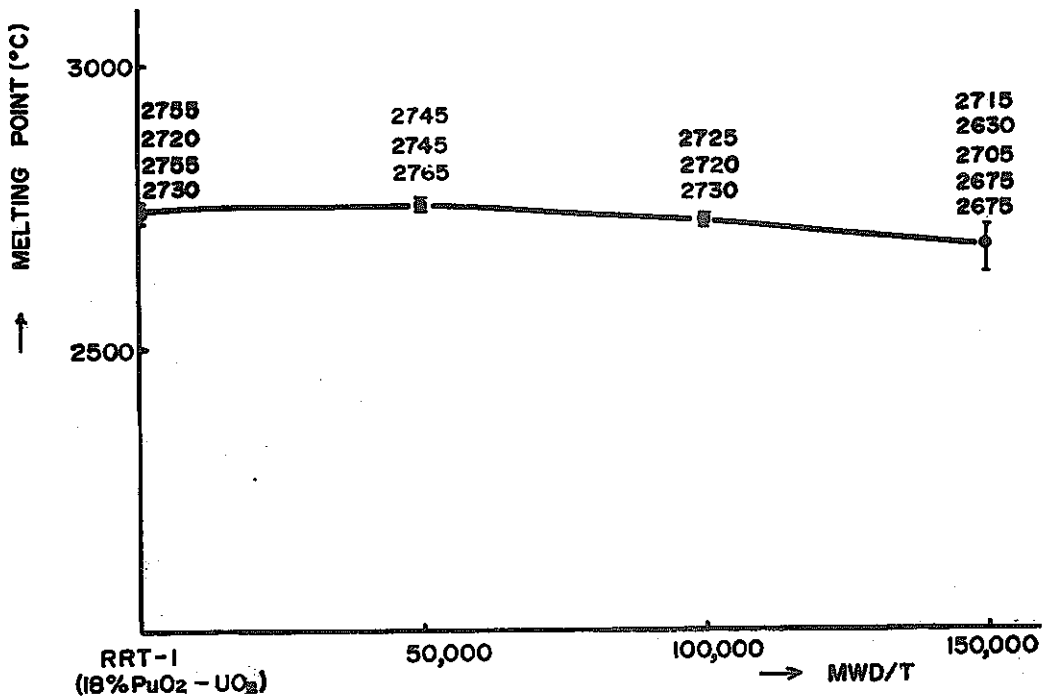


図-5 20% PuO₂ - UO₂ - F·Pの融点測定結果

5 考 察

燃料の照射にともなう物性値の変化を知るためのひとつとして模擬燃料の融点を測定したが、未照射燃料に対しUO₂ - F·Pで125,000 MWD/Tの燃焼で約140°C、20% PuO₂ - UO₂ - F·P 150,000 MWD/Tで約60°C融点が低下するという結果が得られた。

これらの値は、PuO₂ - UO₂ ではG·EのC·N·Craig³⁾らが炉内照射した(Pu_{0.25} U_{0.75}) O_{2.00} についてV型フィラメント法により融点を測定した値、つまり8万MWD/Tでほとんど変化なく、200,000 MWD/Tで約80°C低下するという結果とよく一致する。

またUO₂ - F·PについてはCHRISTENSENがHANFORD⁴⁾およびWH⁵⁾で、実際に炉内

において最高 $95,000 \text{ MWD/T}$ および $45,000 \text{ MWD/T}$ に燃焼させた試料についての測定結果があるが、これらの結果では程度の差はあれ、いずれも燃焼の進行に伴って融点が低下する傾向をとらえている。

今回の測定結果ではたゞ一つの測定ではあるが、やはり低下の傾向を示している。測定結果を CHRISTENSEN の測定結果と共に図-6 に示した。

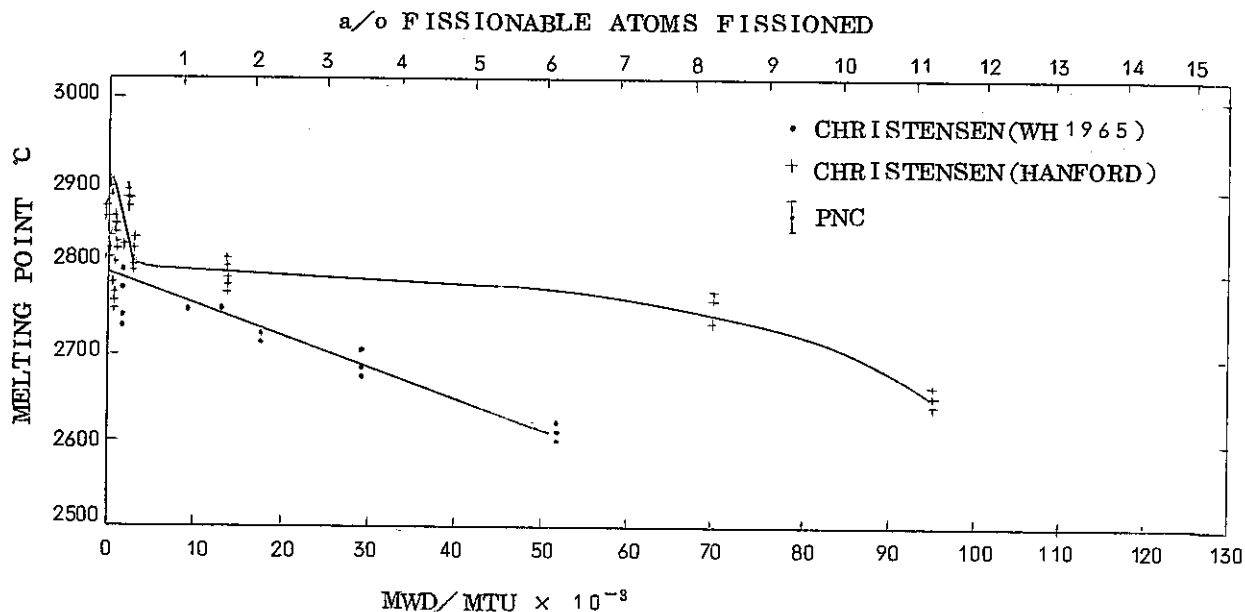


FIGURE 2

図6 MELTING POINT OF IRRADIATED URANIUM DIOXIDE

参 考 文 献

- 1) W. L. Lyon and W. E. Baily, J. Nucl. Mat., 22 (1967) 332-339
- 2) R. A. Hein, P. N. Flagella and J. B. Conway, J. Am. Ceram. Soc. 51 (1968) 291
- 3) GEAP-13515, AEC Research and Development Report 1969, By J. L. Krankota and C. N. Croig
- 4) Christensen, J. A., HW69234, 1962
- 5) " WCAP-6065