

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。 2001. 6. -6

[技術情報室]

# 燃焼度模擬混合酸化物燃料の炉外評価試験(VII)

## Dilatometer による熱膨張測定

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

Thermal Expansion Measurement by Dilatometer

1971年11月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001



# 燃焼度模擬混合酸化物燃料の炉外評価試験 (VII)

## Dilatometer による熱膨脹測定

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

期 間 1970年4月1日～1971年11月30日

目 的 混合酸化物燃料の燃焼に伴う熱膨脹変化を測定する。

要 旨 燃料の性質は照射の進行に伴う核分裂生成物の蓄積によって、燃料の使用限界を低下させる方向に変化していく。このような変化を炉外で模擬するため、20%PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>ペレットに代表的な固体状核分裂生成物として10種類の元素を混入し、燃焼度を50,000, 100,000, 150,000MWD/Tに模擬したペレット燃料の熱膨脹を室温から1,000°Cまでdilatometerによって測定した。

その結果、模擬FPを入れない、燃焼度ゼロの試料ペレット平均熱膨脹率  $11.58 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  に比べ50,000MWD/T模擬試料では  $12.12 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  で約4%の平均熱膨脹率の増加が、また150,000MWD/T模擬試料では  $12.38 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  で約6%の平均熱膨脹率増加が認められた。

50,000MWD/Tと100,000MWD/Tの試料の間には熱膨脹率の有意差は認められなかったが、100,000MWD/Tと150,000MWD/T模擬試料の間には有意差が認められ、150,000MWD/Tの方が高い膨脹率を示した。

\* 日立製作所日立研究所

# 目 次

1. ま え が き .....	1
2. 測定装置および方法 .....	1
3. 標準物質の熱膨脹 .....	3
4. 測 定 結 果 .....	4
5. $\alpha$ 線損傷の検討 .....	6
6. ま と め .....	9
7. 参 考 文 献 .....	9

## 1 まえがき

燃料の性質は照射の進行に伴い核分裂生成物の蓄積によって、燃料使用限界を低下させる方向に変化してゆく。この変化を把握するためには照射中の燃料特性を調べるか、あるいは照射済燃料についての測定を行なうことが必要である。またこれと平行して照射燃料の移動を解析するうえで役立つ炉外のデータも必要と考えられる。そのため、本シリーズでは20%PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>に代表的な固体状核分裂生成物として、La, Ce, Nd, Y, Sr, Ba, Zr, Mo, Ru, Pdの10元素を混入し、燃焼度を50,000, 100,000, 150,000 MWD/Tに模擬した燃料の炉外評価試験を実施してきた。これらの結果は照射試験結果と関連づけられるべきものである。

本報告は、これらの一環として燃焼度模擬燃料の室温から約1,000°Cまでの熱膨脹をDilatometerによって測定した結果についてまとめた。

## 2 測定装置および方法

熱膨脹の測定にはNUMCO製の横型熱膨脹計を改造して使用した。Fig. 1にその主要部分を示す。試料は直径5mm, 長さ10mm程度のペレット1枚を使用する。試料の製造法につい

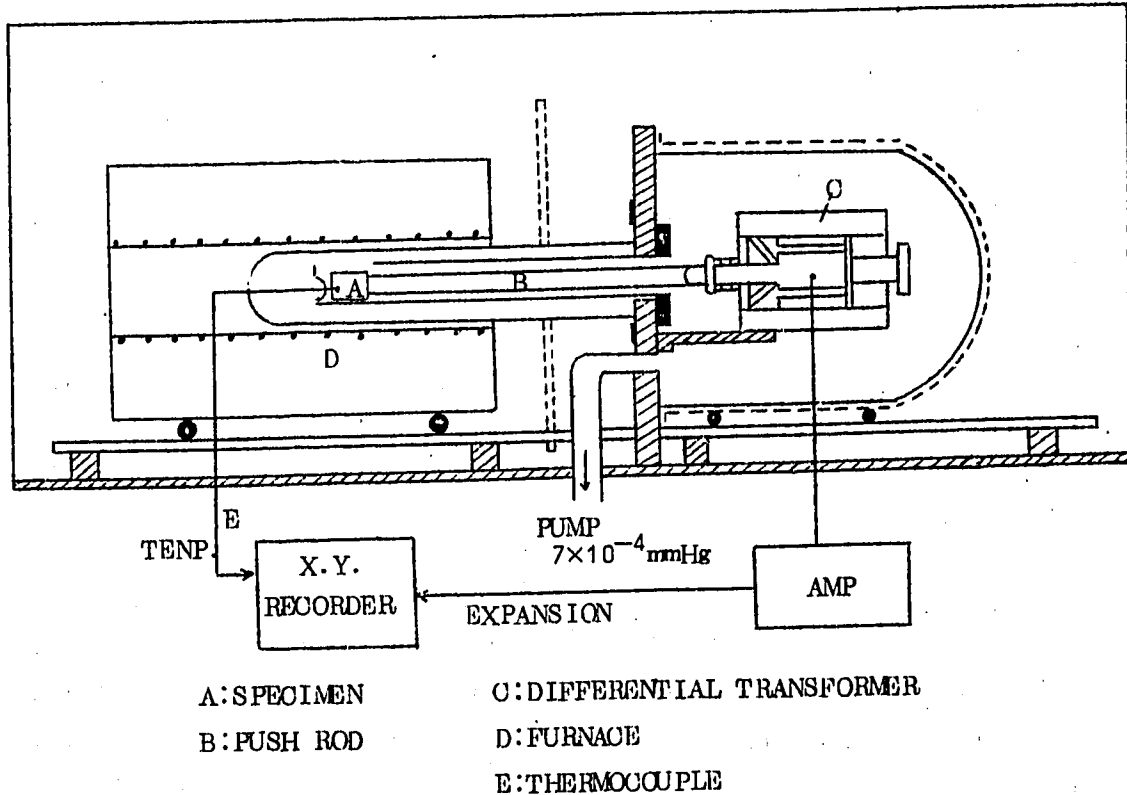
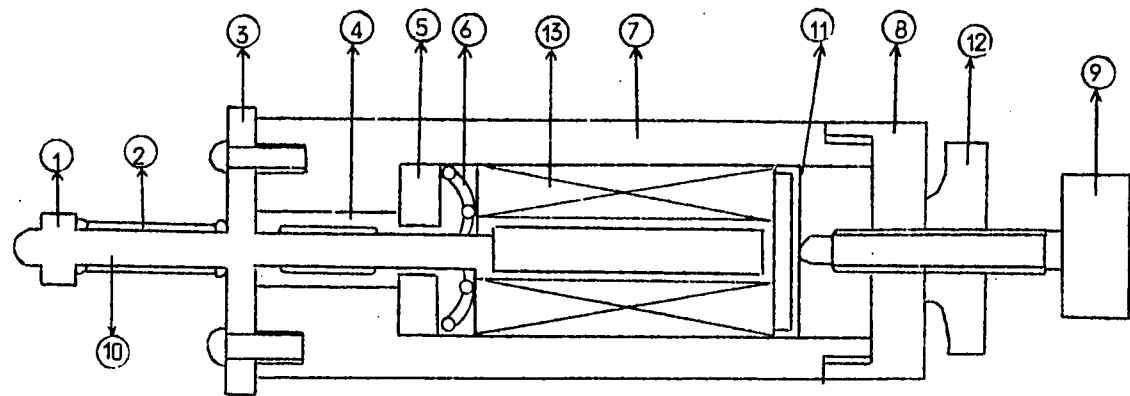


Figure 1. System for measurement of thermal expansion.

ては金子らが既に発表しているもので、ここでは触れない。試料の伸びの検出器として川崎製鉄製の差動トランスを用いた。検出器の詳細を Fig. 2 に示す。試料の伸びを検出器に伝達する



- ① カラー                      ⑤ 絶縁板                      ⑨ ゼロ調ネジ                      ⑬ 差動変圧器
  - ② スプリング                      ⑥ 円錐形スプリング                      ⑩ 鉄心軸
  - ③ 取付板                      ⑦ ケース                      ⑪ 端子カベ
  - ④ ブッシュ                      ⑧ 蓋                      ⑫ ロックナット
- 縮尺 1/1

Figure 2 熱膨脹検出器

ため、途中に直径 3mm、肉厚 0.3mm の石英管を Push rod として用いてある。この Push rod は検出器のスプリング圧により、試料と検出器の間に浮いた状態でセットされるため、摩擦がない。電気炉の使用温度は 1,000°C 以下となっている。均熱部は中央部で約 100mm あるため、試料は十分均一に加熱されることを確認した。

測定はまず試料を内径 8mm の石英試料ホルダーにセットする。この試料ホルダーの先端は突起部をもつため試料面と点接触するようになっている。つぎに Push rod の軸心をベレットの中心に合わせるようにセットし、検出器のゼロ調節ネジを廻して、XYレコーダーの記録ペンの可動範囲を確認する。この状態でベリジャーをかぶせて真空に引く。真空度が  $7 \times 10^{-4}$  mmHg 程度になったら加熱を開始する。加熱は毎時 400°C 程度で行ない、冷却は毎時 150°C 位に自動的にコントロールされるよう工夫した。試料温度の測定は Pt-Pt 13% Rh 熱電対を試料側面に接触させるようにして行なった。

この測定では、試料を石英製の試料ホルダーにセットするので、測定値に対し補正が必要となる。補正量を知るため、まず石英ガラス(直径 6mm、長さ 10mm)を試料としてセットし加熱を行なった。電気炉のもつ温度分布内で石英試料と Push rod の伸びの合計と石英試料ホルダーの伸び量が同じであれば、石英以外の試料を測定したときの補正としては、試料の長さに対応する石英ガラスホルダーの伸びを試料の伸びに加えてやれば良いことになる。測定の結果、Fig. 3 の Blank test として示したように、960°C まで両者の伸び量は同じで

あったため、補正は上述した方法で行なえばよいことがわかった。なお、石英ガラスの RT~1,000°C の平均熱膨脹率は  $0.5 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$  を用いた。

### 3 標準物質の熱膨脹

測定装置の確認と精度を知るため、熱膨脹率が比較的良く知られている  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{UO}_2$ 、タングステンなどを標準試料として測定を行なった。その結果を Table 1. および Fig. 3 に示す。

Table 1. Thermal expansion coefficient for reference materials

(RT~1,000°C)

material	expansion coefficient ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	
	measured value	reference value
$\text{Al}_2\text{O}_3$	9.63	9.52 <sup>2)</sup>
$\text{UO}_2$	P-28	11.19 <sup>3)</sup>
	P-59	
Tungsten	5.50	5.28 <sup>2)</sup>
18% $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$	11.58	11.7 <sup>4)</sup>

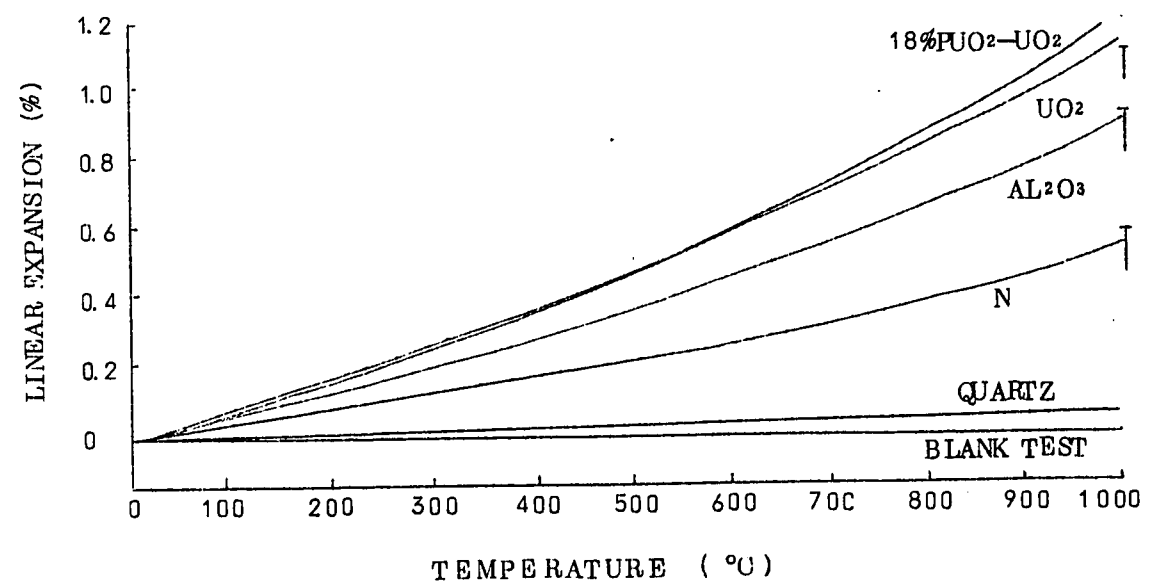


Figure 3. Thermal expansion of reference materials.

これらの結果から、本測定結果は文献値とほぼ等しいことがわかり、また再現性の良いことを確認した。なお測定精度は±3%以内である。

4 測定結果

燃焼度模擬 PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> 燃料の熱膨脹曲線の典型的な結果を Fig. 4 に示す。

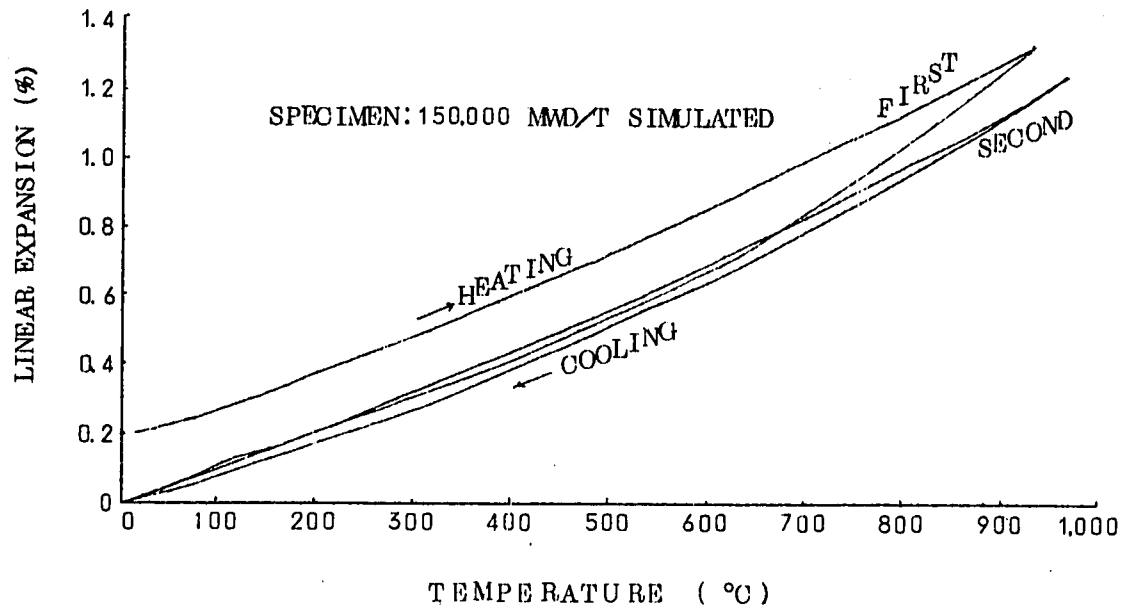


Figure 4. A typical thermal expansion curve for simulated sample.

第1回目の曲線で示されるように、測定中にペレットが0.1~0.3%の範囲で収縮する現象がみられた。同じ試料を同一セット状態で再測定しても、第1回目に観察された収縮はみられない。この収縮現象の生じた原因として、(1)ペレットが焼結する場合、(2)ペレットが測定中に酸化する場合あるいは、(3)Puのα崩壊による格子のゆがみが加熱によって解放され、試料の長さが元に戻ることに伴う収縮が考えられる。この検討結果は後述するが、その結果、Puのα崩壊に起因するα線損傷の消滅が原因と考えられた。このためペレット本来の熱膨脹率としては第2回目の値を採るのが妥当と思われる、測定結果は第2回目の値で処理することとした。Table 2. に室温から1,000°Cまでの熱膨脹曲線から計算した平均熱膨脹率を示す。Fig. 5 はこれらの結果を燃焼度に対しプロットしたものである。第2回目の結果に着目し局部的にみた場合、50,000 MWD/Tでは模擬FPの入らないペレットの平均熱膨脹率より約4%ほど高くなっている。しかし、50,000 MWD/Tと100,000 MWD/T模擬ペレットの間には5%の危険率で有意差がなかった。100,000 MWD/Tと150,000 MWD/Tの間では有意差が認められ、150,000 MWD/TでFPの入らないペレットに対し約6%高くなっている。ただし、1,000°Cまでの平均熱膨脹率が150,000 MWD/Tペレットで高々6%であったということは、測定精度や測定値のバラツキなどを考え合せてみると、全体としては熱膨脹率におよぼす

模擬燃焼度の影響はあまり大きくなく、むしろ影響は少なかったといえるのではないかとと思われる。

なお、第1回目の値は収縮量に若干バラツキがあり、結果もバラツキている。また、FPの入っていないペレットは製造後あまり時間が経っていないため、self-damageの影響がなく、第1回目、第2回目が重なっている。

Table 2. Thermal expansion coefficient for simulated specimen to irradiated PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> at high burnup.

Specimen		Expansion Coefficient ( $\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	
		first run	second run
18%PuO <sub>2</sub> -UO <sub>2</sub>	R-1	12.91	11.99
	R-2	11.82	11.64
	R-3	11.68	11.37
	R-4	11.28	10.67
	R-5	11.54	11.34
50,000 MWD/T Simulated	E-2	13.02	12.08
	E-3	13.46	12.18
	E-5	12.70	12.48
	E-6	13.46	11.96
	E-7	12.95	11.92
100,000 MWD/T Simulated	C-1	12.62	12.11
	C-3	13.09	12.09
	C-6	12.89	12.10
	C-7	13.70	12.46
	C-8	13.57	12.22
150,000 MWD/T Simulated	A-2	13.93	12.29
	A-3	13.24	12.46
	A-5	13.86	12.41
	A-6	13.05	12.12
	A-7	13.48	12.60

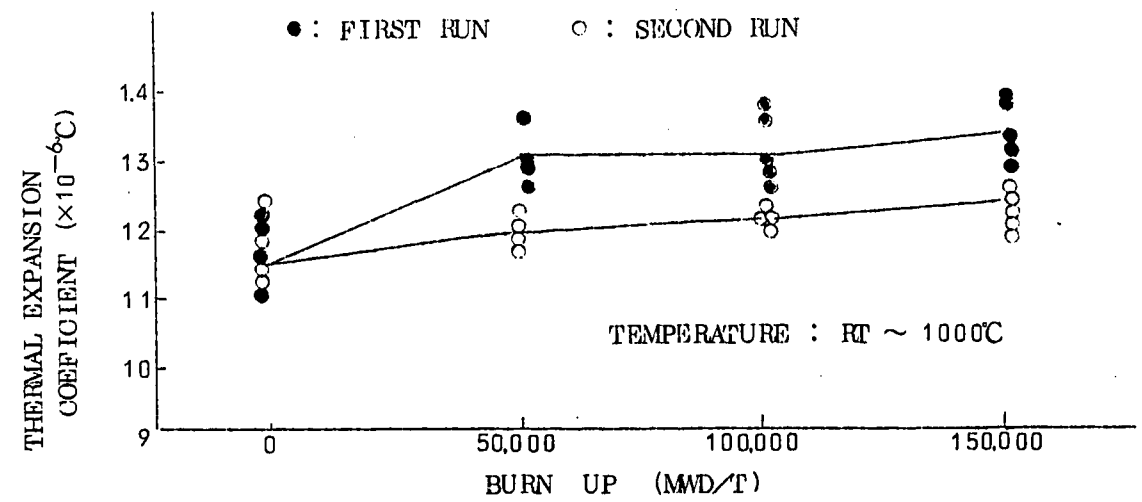


Figure 5. Thermal expansion coefficient of simulated sample vs burnup.

5  $\alpha$ 線損傷の検討

Fig. 4で示された第1回目のペレットの収縮現象について考察した。ペレットが収縮する原因は先に述べたように、一つはペレットが焼結したために収縮すると考えられるが、1,600°Cで焼結したUO<sub>2</sub>ペレットにはこの現象はなかった。また、Fig. 6に示すように18% PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> 1,700°C焼結体を960°Cで3時間保持したとき、はじめの30分は収縮しているが、その後は一定となった。

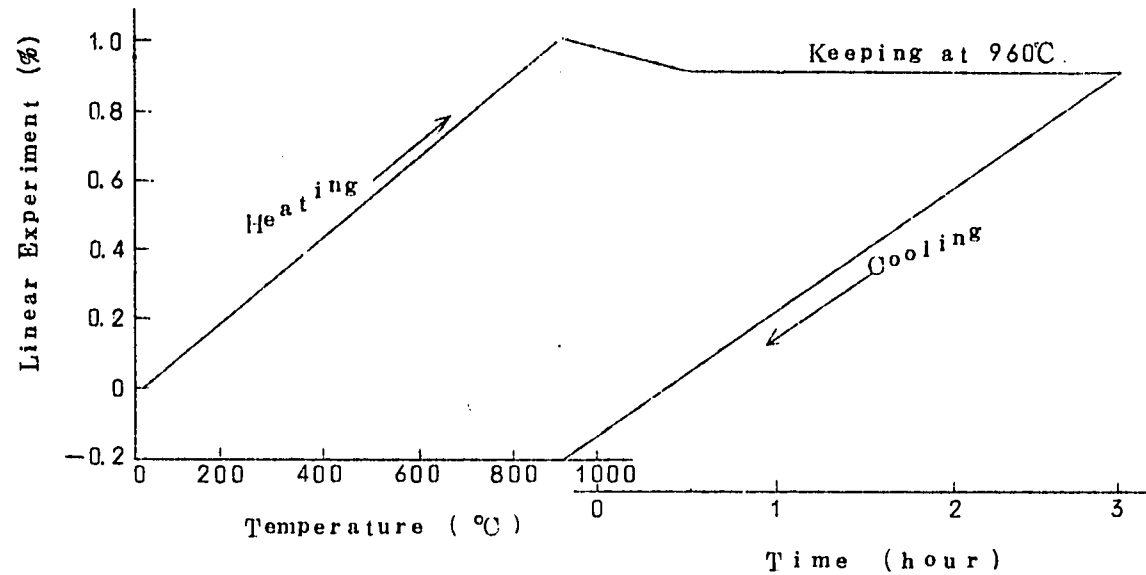


Figure 6. Effect of annealing on PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Pellet at elevated temperature

焼結が進行するとすれば、30分でそれが飽和するとは考えられない。したがって、2,200°Cで2時間加熱処理されている模擬FP入ペレットの収縮は、焼結によるものではないと考えるのが妥当と思われる。つぎに、O/Mが大きくなる場合、熱膨脹率は小さくなることわかっている。しかし、Table 3に示したように測定前後でO/M比は変わらず、収縮の原因とはならない。

Table 3  
O/M ratio of specimens

specimen	O/M ratio
before measurement	1,985~1,995
after measurement	1,990~1,995

したがって、ペレットの収縮現象はPuの $\alpha$ 崩壊で放出される $\alpha$ 粒子の照射により格子にゆがみを生じ、常温ではペレット全体が膨脹し、測定時の加熱によってゆがみが解放され、ペレ

トの長さが元に戻ったとみるのが最も妥当と思われる。

Fig. 7はPuO<sub>2</sub>粉末の焼鈍効果を示すもので、これによるとself-damageは温度上昇とともに急激に焼鈍され、700~800°Cになると90%以上焼鈍されるとしている。このことからFig. 6では昇温中およびはじめの30分の保持で、焼鈍が完了したとみることができる。

本実験で得られた収縮量をTable 4に示した。これから18% PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>ペレットでも、焼結後20hしか経っていないものは、0.06%しか収縮しないが10日経過したものは0.15%、45日で0.13%と経時変化のあることが示される。

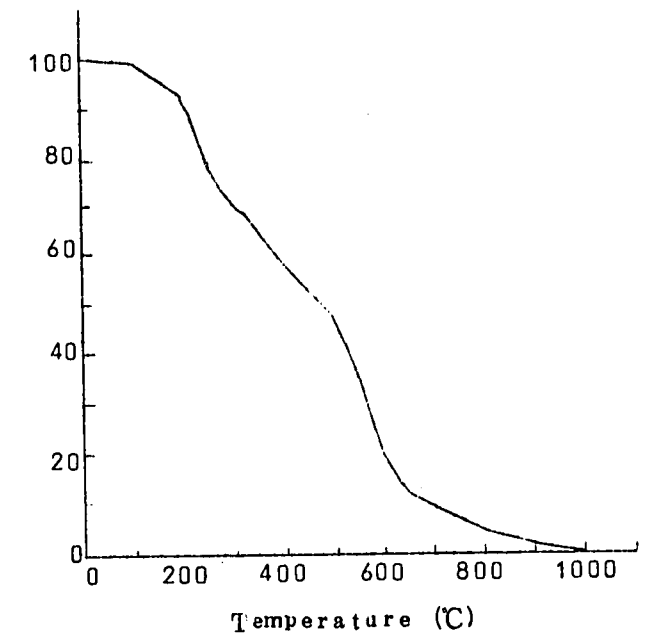


Figure 7 Annealing of self-damage in PuO<sub>2</sub><sup>6)</sup>

Table 4 Shrinkage in length of PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> sintered pellet.

Specimen	Shrinkage ( $\Delta L/L \times 100$ )		Shrinkage ( $\Delta a/a \times 100$ )
	first run	second run	
UO <sub>2</sub> Pellet	0.0	0.0	
18%PuO <sub>2</sub>			
-UO <sub>2</sub>			
Pellet			
20h after sintering	0.06	0.0	
10days after sintering	0.15	0.0	
45days after sintering	0.13	0.0	
50,000MWD/T simulated	0.24	0.02	
100,000MWD/T simulated	0.25	0.05	0.16
150,000MWD/T simulated	0.26	0.03	0.21
PuO <sub>2</sub> Powder			0.16 (after 600day)



模擬ペレットの場合は、製造後約1年経過したものであるが、いずれも0.25%程度の収縮を示した。高温X線廻折で得られた結果も0.2%前後となっている。これをFig. 8に示した。

またPuO<sub>2</sub>粉末の格子定数測定で得られた結果も示した。佐藤およびGriffinら<sup>6)</sup>の結果は、Pu-239の多い、いわゆるstandard gradeのPuO<sub>2</sub>粉末の経時変化を示したもので、この差はPuO<sub>2</sub>粉末の焼鈍から最初の基準となる格子定数(a)を測定するまでの時間差から来たものと考えられる。勿論、Pu同位体存在比の相違も若干あると考えられる。C. W. Bjorklundら<sup>7)</sup>は、半減期の短いPu238を添加し、

self-damageを測定しているが、200日位で膨脹が0.3%近くに達し、一年経過した時点では飽和している。また、Fig. 9に示したように、AmO<sub>2</sub>のself-damageは非常に短時間のうちに0.35%まで達するという報告<sup>6)</sup>もある。このように半減期が短かく、エネルギーの高いα線を放出する物質を含む燃料体の常温における膨脹は、standard gradeのPuでつくられた燃料より短時間のうちに膨脹し、しかも膨脹量も多いことが予想される。

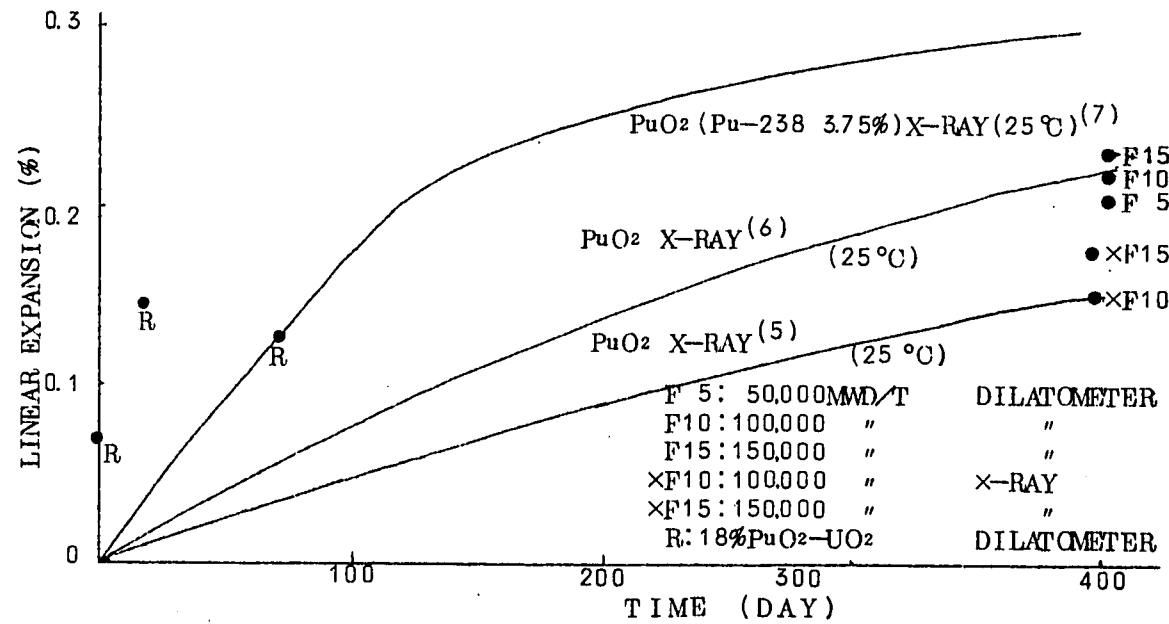


Figure 8. Effect of self-irradiation damage on the linear expansion in PuO<sub>2</sub> and (U, Pu)O<sub>2</sub>.

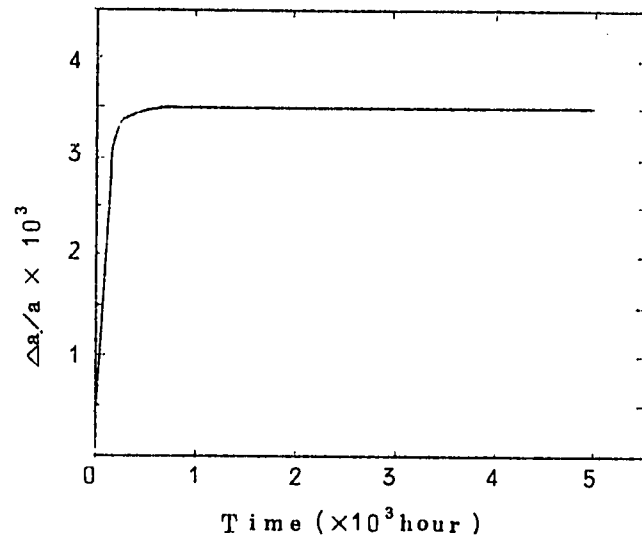


Figure 9. Self-damage in AmO<sub>2</sub> <sup>6)</sup>

6 まとめ

燃焼度を50,000, 100,000, 150,000MWD/Tc模擬した20%PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>燃料についてdilatometerを用いて1,000°Cまでの熱膨脹を測定した。その結果、模擬FPを入れない燃焼度零の試料ペレットの平均熱膨脹率 $10.58 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ に比べて50,000MWD/T模擬試料では $12.12 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ で約4%の平均熱膨脹率の増加が、また150,000MWD/Tの模擬試料では $12.38 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ で約6%の平均熱膨脹率増加がみとめられた。また100,000MWD/T試料と150,000MWD/T試料の間には熱膨脹率には有意差が認められ、150,000MWD/Tの方が高い膨脹を示した。然し50,000MWD/Tと100,000MWD/T試料の間には有意差が認められなかった。

測定を通じ、プルトニウムのα崩壊による自己放射線損傷の影響によるものと思われる熱膨脹率変化の現象が観察された。

7 参考文献

- 1) 金子ほか：昭和44年核燃料，炉材料分科会予稿集
- 2) P.T.J. Shaffer：Plenum Press Handbooks of High Temperature Materials, No. 1 Materials Index. (1964)
- 3) Krikorian, W.A.：Thermal Expansion of High Temperature Materials. UCRL-6132 (1960)
- 4) J. Roth, E.K. Halteman：Thermal Expansion of Coprecipitated (U, Pu) O<sub>2</sub> Powders by X-Ray Diffraction Techniques. NUMEC-2389-9 (1965)
- 5) 佐藤 政一：Unpublished work
- 6) C.S. Griffin et al：self-irradiation damage in transuranic elements & compounds. Plutonium 1965. P.189
- 7) C.W. Bjorklund et al：US/Japan Research Newsletters. No. 7 on Ceram. Nucl. Fuels, (1969)