

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]

混合酸化物燃料の熱膨張データの評価

1974年8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

T
SN841-74-28
1974年8月

混合酸化物燃料の熱膨張データの評価



実施責任者 小泉 益 通 (プルトニウム燃料部開発課)
立花 利 道 (")
古屋 広 高 (")

要 旨

混合酸化物燃料 (U-30w/oPu)O₂ のバルクとしての熱膨張率は1970年にB. F. RU BIN (GE)等によって整理された半実験式を補正した式が、現在のところ最も信頼できると考えられる。この式を以下に示す。

$$\frac{\Delta L}{L} = 4.46 \times 10^{-4} + 6.736 \times 10^{-6} T + 3.010 \times 10^{-9} T^2$$

混合酸化物燃料の熱膨張データの評価

目 次

1. 要 約.....	1
2. 序 言.....	1
3. 方法の評価.....	2
1) 高温 X線による測定.....	2
2) デイラトメーターによる測定.....	2
3) 精密マイクロメーターテレスコープによる測定.....	2
4. 選定根拠	3
5. 結 論	4
6. 参考文献	5

1 要 約

混合酸化物燃料 (U-30w/o Pu)O₂ のバルクとしての熱膨張率は1970年にB. F. RUBIN (GE)¹⁾等によって整理された半実験式を補正した式が、現在のところ最も信頼できると考えられる。この式を以下に示す。

$$\frac{\Delta L}{L} = 4.46 \times 10^{-4} + 6.736 \times 10^{-6} T + 3.010 \times 10^{-9} T^2$$

2 序 言

混合酸化物の熱膨張測定はROTH and HALTMAN (NUMEC)が1965年にプルトニウム含有量を0~100%の広範囲での測定結果を報告し注目されている。これによると、測定範囲は100~1200℃であり、X線粉末回折法で測定している。

その後、1967年にROTH (NUMEC)が20w/o PuO₂-UO₂試料を使って、X線法によって熱膨張のO/M依存性²⁾を調べたところ、O/Mが1.93から2.01の間では、熱膨張率は最大約30%の差異が生ずることを指摘している。ROTH and HALTMANの測定試料のO/M比は2.01~2.13であった。

1970年にB. F. RUBIN等 (GE)¹⁾は混合酸化物の熱膨張はPuO₂とUO₂との重量比で重みをつけて平均した値が実験とよく一致することを見つけ、CONWAY, FINCEL and HEIN (GE)がUO₂を1000~2250℃の温度範囲で精密マイクロメーターテレスコープで直接測定した値³⁾とBRETT and RUSSELL (UKAEA)がディラトメーターでのPuO₂の熱膨張測定値とから、(U-25w/o Pu)O₂の熱膨張率を整理した。

その後、M. TOKAR (U. S. Los Alamos)が1973年にPuO₂を水冷型ディラトメーターで、1400℃まで測定した結果、BRETT and RUSSELL (UKAEA)の測定値 (R. T~1000℃)⁵⁾とは最大約3%の差異しかないことを示している。

3 方法の評価

1) 高温 X線による測定

この方法は石英あるいはW製バケット等の中に少量の試料を入れタングステンの電気抵抗により試料を加熱しながらX線によって格子定数を測定し、その値を熱膨張に換算する。… (文献6)

2) デイラトメーターによる測定

試料を電気炉で加熱し、熱膨張を差動トランスによって測定する。差動トランスは温度の影響により誤差を生ずるので測定するときは差動トランスと試料との間に適当な物質(例えば石英あるいはアルミナ棒)を中間体として使用している。… (文献5, 7)

この場合、試料の温度は通常熱電対で測定する。

3) 精密マイクロメーターテレスコープによる測定

試料の熱膨張による変位を光学的に観測する方法であり、試料が高温の状態でも測定誤差が少ない。…… (文献4)

1)の方法は高温まで測定できる利点はあるが、格子定数の変化をバルクの熱膨張に換算するとき不明確が生ずることと、温度を光高温計で測定するためあるいは試料中にまぜた物質の格子定数から温度を逆算するため試料の温度を正確につかむことができない。⁸⁾

2)の方法は中間体としての石英あるいはアルミナ棒に温度勾配が生ずるが、試料の加熱温度が変わるごとに温度勾配は異なることと、試料と中間体との接触が高温になるほど不明確になる欠点がある。

しかし差動トランス一式を水冷することによって差動トランスの温度の影響をなくすと同時に中間体の温度を低くおさえる方法は信頼度が高い。⁵⁾

3)の方法は試料の熱膨張による変位を精度の高い望遠鏡を使用して光学的に測定するので方法1), 2)よりも外部的な誤差因子が少なく理想的な方法であると考えられる。

4 選定根拠

混合酸化物の熱膨張率に影響する因子は次の項目が示される。

- ① プルトニウム富化度
- ② O/M比
- ③ 密度
- ④ 照射
- ⑤ 温度

このうち①プルトニウム富化度、②O/M比と⑤温度の熱膨張に対する影響は大きい³⁾が③密度と④照射の影響は小さいといわれている。

BOTH and HALTMANがプルトニウム富化度を0~100%まで変えて行ったX線による熱膨張の測定は試料のO/M比が2.01~2.13までの巾があり信頼性が薄い。¹⁾

また、P. G. PALLMERは $(U_{0.75}Pu_{0.25})O_2$ の格子定数の熱膨張を1600℃までX線回折によって測定したが、このとき試料の温度は試料中に混入したモリブデン粉末の格子定数から推定したが光高温計による測定との差異が生じたため温度の測定信頼性に欠ける。⁸⁾

BBETT and RUSELLは PuO_2 を25~1000℃までダイヤトメーターで測定した。⁹⁾

この後に、M. TOKAR等はダイヤトメーターの欠点である温度の影響を除くため水冷式を採用し、 PuO_2 (O/M比=2.00±0.02)の熱膨張をR・T~1400℃まで測定した結果、BBETT等の測定結果と殆んど差はなかった。従って、M. TOKAR等の測定とBBETT等の測定結果とも信頼性が高いと思われる。

一方、CONWAY等は UO_2 の熱膨張を精密マイクロメーターで1000℃から2250℃まで測定しており、この結果を1000℃から室温まで外挿すると、上記に述べた信頼度の高いBBETT等の結果およびM. TOKARのデータと一致している。

PuO_2-UO_2 と UO_2 の熱膨張率は400~500℃では殆んど差はないといわれていること¹⁾からCONWAY等の UO_2 の測定結果は信頼されうると考えられる。

5 結 論

1. UO_2 および PuO_2 の熱膨張率はそれぞれ CONWAY 等と BRETT 等および M. TOKAR^{3,5)} の測定値が最も信頼される。

これをそれぞれ第 1 図に示す。

2. $\text{UO}_2 - 20, 25\text{w/o PuO}_2$ の熱膨張率は RUBIN 等が CONWAY と BRETT 等の測定値を整理した値が最も信頼される。これを第 2, 3 図および第 1 表に示す。

$\text{UO}_2 - 20\text{w/o PuO}_2$,

$$\frac{\Delta L}{L} = 4.36 \times 10^{-4} + 6.793 \times 10^{-6} T + 2.92 \times 10^{-9} T^2 \dots\dots\dots(1)$$

$\text{UO}_2 - 25\text{w/o PuO}_2$,

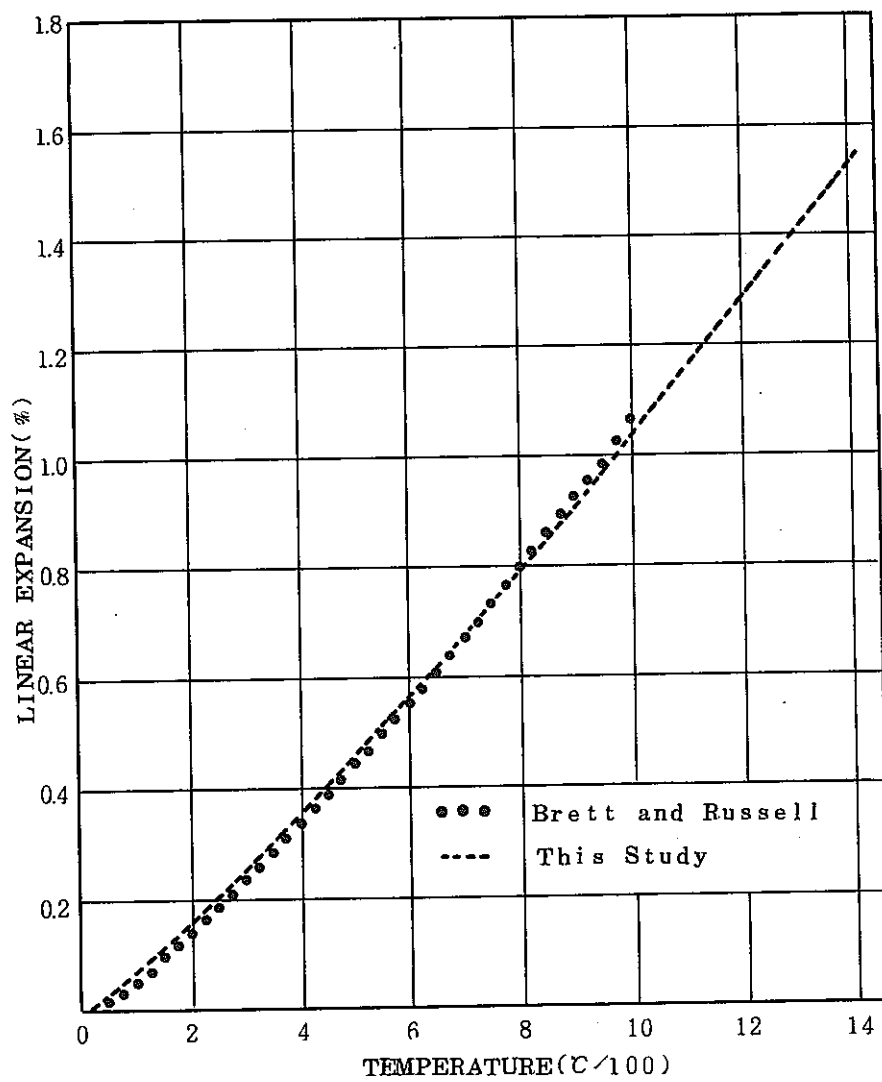
$$\frac{\Delta L}{L} = 4.41 \times 10^{-4} + 6.765 \times 10^{-6} T + 2.965 \times 10^{-9} T^2 \dots\dots\dots(2)$$

3. $\text{UO}_2 - 30\text{w/o PuO}_2$ については上記の式に重量比で補正した次式が現在最も信頼されると考えられる。(第 3 図*印)

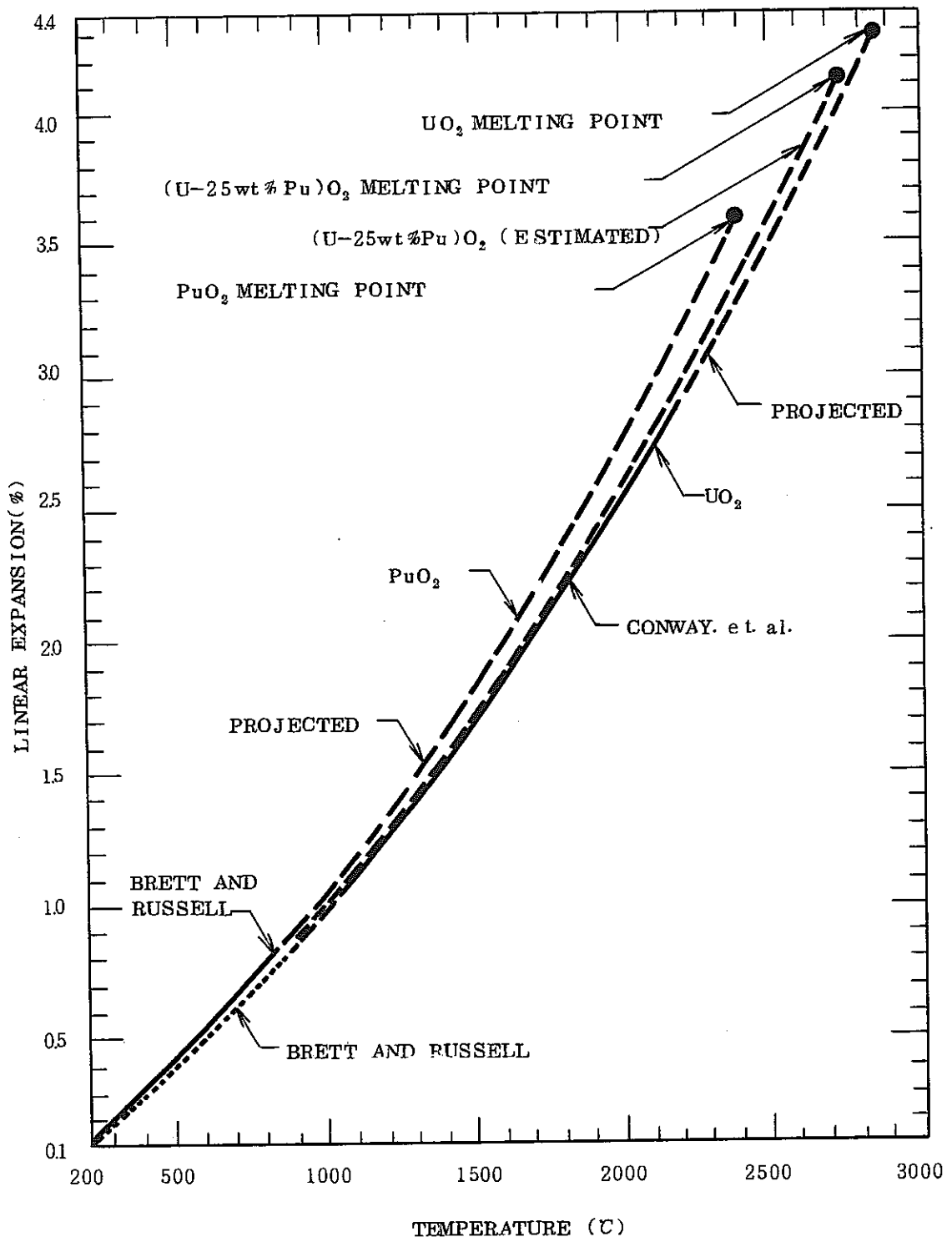
$\frac{\Delta L}{L} = 4.46 \times 10^{-4} + 6.736 \times 10^{-6} T + 3.010 \times 10^{-9} T^2 \dots\dots\dots(3)$

参 考 文 献

1. B.F. Rubin et al. ;Summary of (U, Pu)O₂ properties Fabrication Method, GEAP-13582, P. 19 (1970)
2. J.Both and M.E.Hubert et al. ;The effects of stoichiometry on the thermal Expansion of 20w/o PuO₂ -UO₂ Fast Reactor fuel, Trans. Am. Nucl. Soc., 10(1967)457
3. J. Roth and E. K. Haltman;Thermal expansion of Coprecipitated(U, Pu) O₂ powders by X-ray diffraction technique, NUMEC-2389-9, Oct. (1965)
4. J. B. Conway, R. M. Fincel, and R. A. Hein;The Thermal Expansion and Heat Capacity of UO₂ to 2000 C, Trans. Am. Nucl. Soc., 6(1963)1, P. 153
5. M. Tokar, A. W. Nutt, and T. K. Keenan;Linear Thermal expansion of Plutonium Dioxide, Nucl. Tech. 17(1973)147.
6. R. J. Desando, W. C. Wyder, R. R. Eckstein, and W. R. Amos;Thermal Expansion of ²³⁸PuO₂ Plasma-formed microspheres, J. Nucl. Mat. 36(1970)24-243
7. K. Shimo, S. Kashima, T. Terunuma, and J. Komatzu etc. ;Out of pile simulation testing of PuO₂ -UO₂ Fuels to high Burnup. SN 841-71-39(1971)
8. P. G. Pallmer;Lattice expansion of UO₂ -PuO₂, BNWL-1349-1, P. 227. (1970)
9. N. H. Brett, and L. E. Russell;The thermal expansion of PuO₂ and some other Actinide oxides between room temperature and 1000 C, Proc. 2nd Intern. Conf. Plutonium Metallurgy, Grenoble, France, April 19-22, PP. 397(1960)
10. R. P. Nelson;Thermal expansion of mixed UO₂ -PuO₂. BNWL-473, 41(1967)
11. P.J. Baldock et al. ;The X-ray thermal expansion of near-stoichiometric UO₂, J. Nucl. Mat. 18(1966)305-313



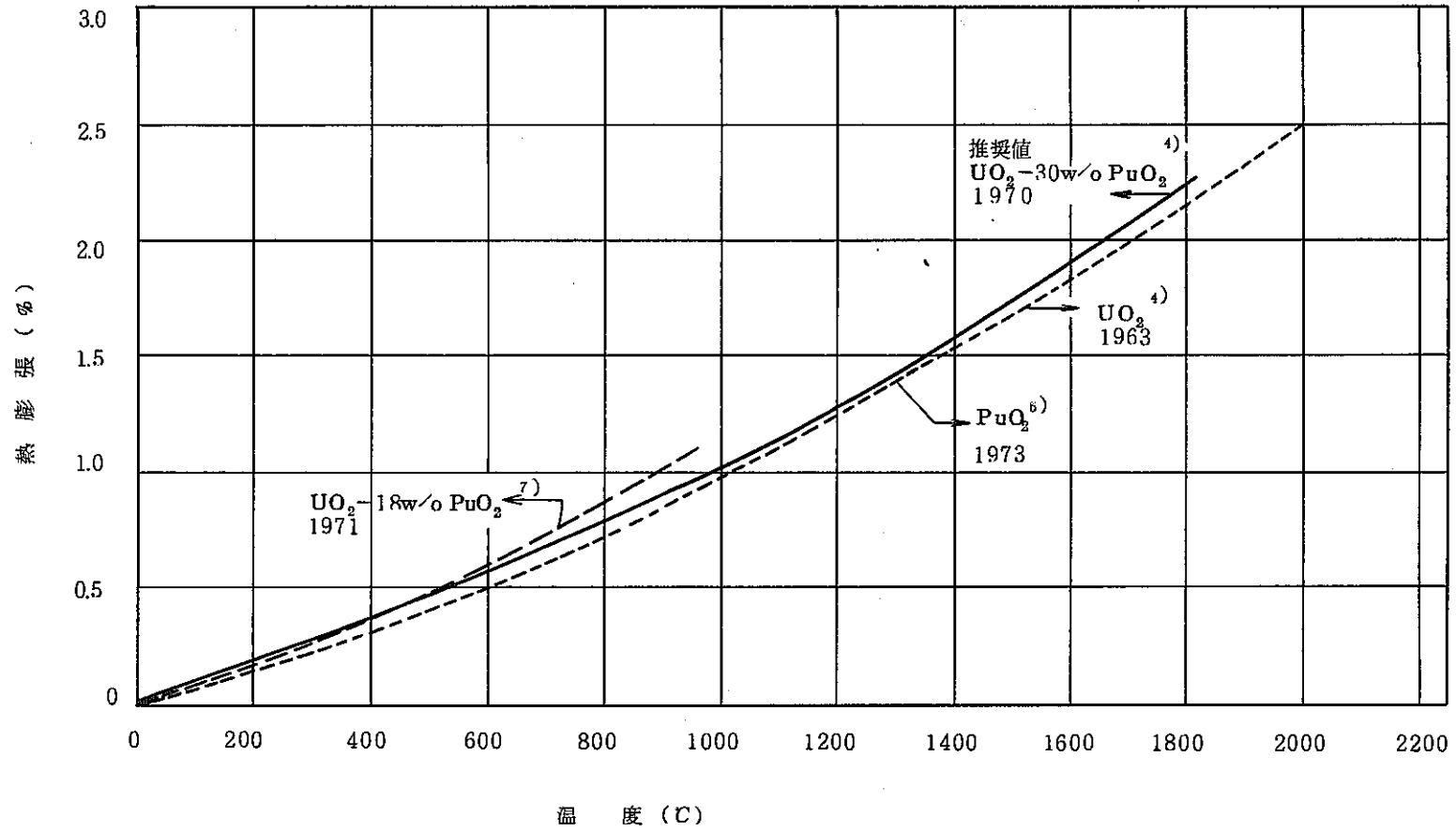
第1图 Linear expansion of stoichiometric PuO₂



第 2 图 THERMAL EXPANSION OF MIXED OXIDES

第1表 $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$ の熱膨張 ($\Delta l/l \times 100$)

試料 温度	PuO_2	18w/o $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$	$(\text{Pu}_{0.2} \text{U}_{0.8})\text{O}_2$	20w/o $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$	25w/o $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$	30w/o $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$
200°C	0.1582(%)	0.2134~0.2582(%)	0.204 (%)	(%)	(%)	(%)
400"	0.3541	0.4268~0.5164	0.408			
500"	0.4583	0.5335~0.6455	0.510	0.4565	0.4565	0.4566
800"	0.7915	0.8536~1.0328	0.816			
1000"	1.0302	1.067~1.291	1.020	1.0149	1.0171	1.0192
1200"	1.2788	-	-			
1400"	1.5262	-	-	1.5669	1.5723	1.5776
1600"	-	-	-	1.8780	1.8874	1.8929
1800"	-	-	-	2.2124	2.2176	2.2323
2000"	-	-	-	2.5702	2.5831	2.5958
備考	参考文献(5)より	参考文献(7)より	参考文献(10)より	(1)式参照 参考文献(8)より引用	(2)式より	参考文献(3)をもとに 補正計算(推奨値) (3)式参照



第3図 PuO_2 - UO_2 の熱膨張の温度依存性