

安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用 窒化物燃料サイクルに関する研究開発

(3) α 線自己照射損傷による結晶格子と焼結体膨張の相関

R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy

(3) Lattice and Bulk Expansion of Nitride Fuel Pellet by Self-irradiation Damage

*高野 公秀, 高木 聖也

原子力機構

燃料製造後の保管中に蓄積する格子欠陥と He 原子の燃料ふるまいへの影響に関する基礎知見取得のため、(Pu,Cm,Zr)N 窒化物燃料ペレットを焼結し、室温保管時の格子定数とペレット寸法の経時変化を測定した。

キーワード：マイナーアクチノイド, 核変換, 窒化物燃料, 自己照射損傷, 膨張

1. 緒言

マイナーアクチノイド (MA) を高濃度に含有した燃料には、製造後の保管中に α 線自己照射損傷による格子欠陥と He 原子の蓄積が速く進む。格子欠陥蓄積による結晶格子膨張はよく知られた現象であるが、バルク (焼結体) 寸法変化に関する既存知見はほとんどない。ここでは、主要な α 線源として ^{244}Cm を添加した窒化物燃料ペレットを焼結し、室温保管時の格子定数と寸法の経時変化の相関データを取得した。

2. 実験方法

$\text{Pu}_{0.80}\text{Cm}_{0.20}\text{O}_2$ 粉末から炭素熱還元法により $\text{Pu}_{0.80}\text{Cm}_{0.20}\text{N}$ 窒化物固溶体を調製した。これにボールミル粉碎した ZrN 粉末を混合して成型体を窒素気流中 1600°C で 6 時間加熱し、 $\text{Pu}_{0.24}\text{Cm}_{0.06}\text{Zr}_{0.70}\text{N}$ 固溶体を得た。これを乳鉢中で微粉碎し、成型体を 1700°C で 5.5 時間加熱することで、理論密度の 80% 以上のディスク状及びペレット状の焼結体を得た。加熱後速やかにディスク状試料を粉末化して室温での X 線回折測定を開始するとともに、ペレット状試料の寸法 (直径及び高さともに約 3.6 mm) を分解能 1 μm のデジタルマイクロメータで測定した。格子定数と寸法の経時変化データを約 3000 時間に渡って取得した。なお、試料中の金属元素全体に対する実効崩壊定数 λ は、 $5.61 \times 10^{-11} \text{ s}^{-1}$ である。

3. 結果と考察

格子定数とペレット寸法の初期値に対する変化を図 1 に示す。格子膨張は、理論式 $\Delta a/a_0 = A[1 - \exp(-B\lambda t)]$ によく則っており、膨張の飽和値を示す A 値として 4.93×10^{-3} を得た。ZrN を含まない CmN の室温での値が 4.31×10^{-3} [1] であるので、これよりも大きい。A 値の物理的解釈では、結晶格子内の金属原子密度に比例することが知られており、格子定数の小さい ZrN と固溶体化したことで金属原子密度が約 24% 増大したためと考えられる。一方、ペレット直径・高さともに格子膨張にほぼ同期して増大し、格子膨張より幾分大きな値に飽和した。

この類似性から、ペレット膨張の主要因は、フレンケル欠陥蓄積に伴う結晶格子膨張であると言える。今後さらに測定を継続し、格子膨張が飽和した状態において He 原子蓄積の影響で寸法変化が起こるか否か確認する予定である。

*本報告は、原子力機構が委託先として実施した平成 29 年度文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」の成果の一部です。

参考文献 [1] M. Takano, H. Hayashi, K. Minato, J. Nucl. Mater. 448 (2014) 66-71.

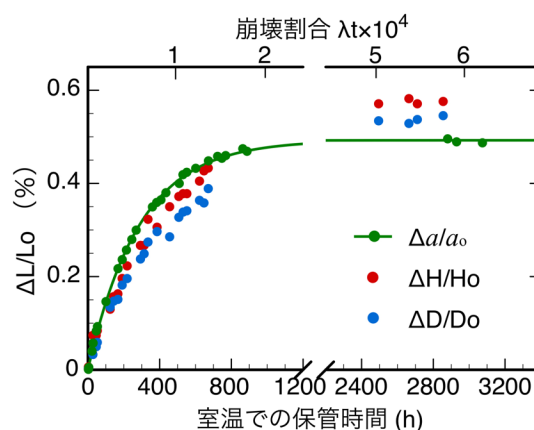


図 1 室温での格子定数とペレット寸法経時変化

*Masahide Takano and Seiya Takaki, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)