

8-4 燃料設計のためのデータベース構築に向けて

- ZrN を希釈材としたTRU 窒化物固溶体の熱伝導率評価式の作成に成功 -



図 8-11 $(\text{Zr}_{0.58}\text{Pu}_{0.21}\text{Am}_{0.21})\text{N}$ 焼結体
グローブボックス内で撮影した直径約 3 mm の高密度焼結体です。

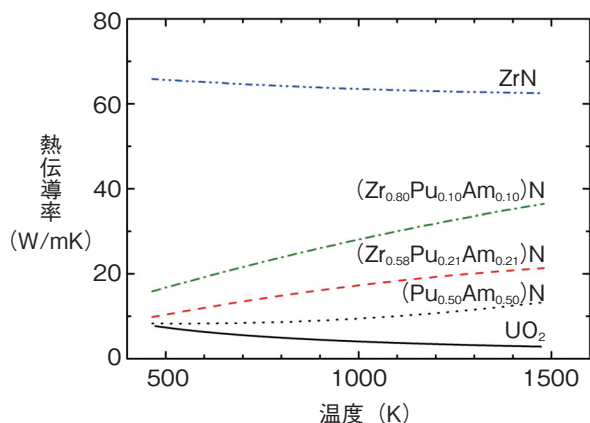


図 8-12 ZrN を希釈材としたTRU窒化物固溶体の熱伝導率
熱伝導率の評価を行うため、理論密度に換算して比較しています。

原子力発電所の使用済燃料には、長寿命放射性核種であるマイナーアクチノイド (MA: Np, Am, Cm) が含まれており、その処理方法が長期にわたる原子力エネルギー利用の課題のひとつとされています。その中で、加速器駆動変換システム (ADS) を用いた長寿命核種の核変換技術は課題解決の有力候補のひとつです。

ZrN を希釈材とした MA や Pu を含む窒化物 (TRU 窒化物) 固溶体は ADS 燃料の候補材料として提案されており、実用燃料設計のために必要な熱伝導率データベースの整備は急務となっています。このような背景から、ZrN を希釈材とした TRU 窒化物固溶体を調製し、熱拡散率と比熱を実測した上で熱伝導率を算出し、温度及び ZrN の含有率をパラメータとした熱伝導率評価式を作成しました。

(1) 原料酸化物の炭素熱還元による TRU 窒化物調製
(2) Zr 金属から水素化物経由で調製した高純度 ZrN との混合・加熱 (3) 微粉碎・加圧成型後の N_2 -4% H_2 気流中での焼結という工程を経て、ZrN を希釈材とした TRU 窒化物固溶体の高密度焼結体を作製しました (図 8-11)。作製した焼結体を用いて、レーザフラッシュ法により熱拡散率を、投下型熱量計により比熱を測定し、その測定値から熱伝導率を算出しました。

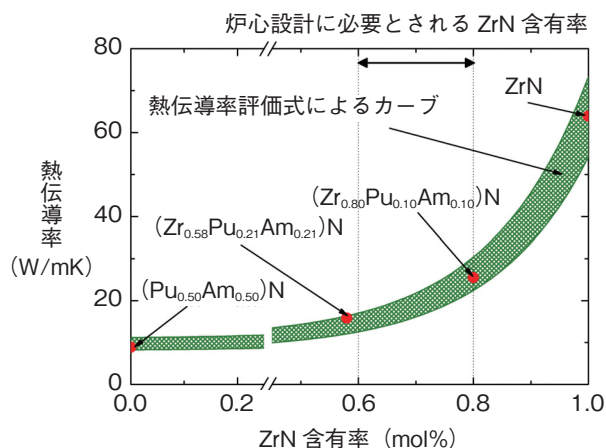


図 8-13 873 K における熱伝導率の ZrN 含有率依存性
各測定温度において ZrN 含有率依存性を評価することで、熱伝導率評価式を作成することができます。

$$\lambda = A + B \exp(x/C)$$

λ : 理論密度に換算した熱伝導率, x : ZrN 含有率, T : 温度

$$A = 4.7624 + 1.3937 \times 10^{-2} T - 1.4543 \times 10^{-5} T^2 + 5.6365 \times 10^{-9} T^3$$

$$B = -0.15962 - 4.2325 \times 10^{-4} T + 9.1965 \times 10^{-7} T^2$$

$$C = -9.8103 \times 10^{-3} + 2.3662 \times 10^{-4} T - 3.2471 \times 10^{-8} T^2$$

図 8-14 $(\text{Zr}_x\text{Pu}_{(1-x)/2}\text{Am}_{(1-x)/2})\text{N}$ の熱伝導率評価式
A, B, C は温度の関数で 873 K 以上で実験値と良く一致します。

ZrN を希釈材とした TRU 窒化物固溶体の熱伝導率 (図 8-12) は、通常の酸化燃料等とは異なり、温度上昇に伴って増加することが分かりました。これは窒化物固溶体の特徴として、熱伝導において電子伝導の寄与が大きいためと考えられます。また、ZrN を希釈材として用いることで、熱伝導率は更に増加するため、ZrN を希釈材とした TRU 窒化物燃料は熱的特性に優れた燃料と言えます。

各測定温度における熱伝導率の ZrN 含有率依存性 (図 8-13) を評価することで、 $(\text{Zr}_x\text{Pu}_{(1-x)/2}\text{Am}_{(1-x)/2})\text{N}$ の熱伝導率評価式 (図 8-14) を作成しました。この評価式は実験結果を良く再現するとともに、炉心設計に必要とされる ZrN 含有率 (60~80 mol%) においては、TRU 組成によることなく熱伝導率を実用的な精度で予測できることを示しました。以上のように、ZrN を希釈材とした TRU 窒化物固溶体の熱伝導率と比熱を世界で初めて取得し、熱伝導率の評価式を作成することにより、実用燃料設計のために必要なデータベースの構築が飛躍的に前進し、今後の ADS の炉心設計及び燃料開発に大いに貢献することが期待されます。

●参考文献

Nishi, T. et al., Thermal Conductivities of Zr-Based Transuranium Nitride Solid Solutions, Journal of Nuclear Science and Technology, vol.48, no.3, 2011, p.359-365.