

JAERI-Tech
2000-031



JP0050379



高燃焼度燃料ペレット融点測定装置の開発

2000年3月

原田克也・西野泰治・三田尚亮・天野英俊

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行　日本原子力研究所

高燃焼度燃料ペレット融点測定装置の開発

日本原子力研究所東海研究所ホット試験室

原田 克也・西野 泰治・三田 尚亮・天野 英俊

(2000年2月22日受理)

軽水炉技術の高度化計画に伴う燃料の高燃焼度化では、高燃焼度燃料の照射挙動を把握する必要がある。中でも燃料ペレットの融点等の熱物性値は、通常時及び事故時の安全性評価の観点から、きわめて重要な熱物性値である。

このためホット試験室では、平成2年度から科学技術庁からの委託により、高燃焼時における燃料の照射挙動を詳細に調べるための各種照射後試験装置の開発を行ってきているが、そのひとつとして、サーマルアレスト法により照射済 UO_2 ペレットの融点を求めるペレット融点測定装置を開発した。

本報は、ペレット融点測定装置の概要、本装置の性能を報告するとともに、本装置の特性を確認するため、標準試料（タンタル[Ta]、モリブデン[Mo]、アルミナ $[Al_2O_3]$ ）及び照射・未照射 UO_2 ペレットを用いて実施した特性試験結果をまとめたものである。

Development of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

Katsuya HARADA, Yasuharu NISHINO, Naoaki MITA and Hidetoshi AMANO

Department of Hot Laboratories
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 22, 2000)

In the extended fuel burn-up project of the light water reactor (LWR), the irradiation behavior of high burn-up fuels should be clarified. Data accumulation of thermal properties such as melting point of LWR fuel pellets is quite urgent from the view point of safety evaluation in the normal operation and accident conditions.

In the department of Hot Laboratories, several apparatuses have been developed for investigating the irradiation behavior of high burn-up fuels under the consignment of the Science and Technology Agency since 1990. The pellet Melting Temperature measurement apparatus was developed as one of them.

This paper describes outline and characteristec test of the apparatus, and measurements of melting point by using unirradiated and irradiated UO_2 pellets.

Keywords : LWR Fuel, Post Irradiation Examination, High Burn-up,
Irradiation Behavior, Thermophysical Property

目 次

1. まえがき	1
2. ペレット融点測定装置	1
2.1 融点測定の方法	1
2.2 ペレット融点測定装置の概要	2
2.3 融点測定の手順	6
2.4 タングステンカプセル溶接機	6
3. 特性試験と結果	7
3.1 加熱特性試験	7
3.1.1 測定条件	7
3.1.2 測定結果	7
3.2 タングステンカプセル溶接試験	7
3.2.1 試験条件	7
3.2.2 試験結果	8
3.3 標準試料による特性試験	8
3.3.1 測定条件	8
3.3.2 測定結果	8
3.4 照射・未照射 UO ₂ ペレットによる特性試験	8
3.4.1 測定条件	8
3.4.2 測定結果	9
4. 考察	9
4.1 加熱特性試験	9
4.2 標準試料特性試験	9
4.3 照射・未照射 UO ₂ ペレットによる特性試験	10
5. まとめ	10
謝辞	10
参考文献	11

Contents

1. Introduction	1
2. Pellet Melting Temperature Measurement Apparatus	1
2.1 Method of Melting Point Measurement	1
2.2 Outline of Pellet Melting Temperature Measurement Apparatus	2
2.3 Procedure of Melting Point Measurement	6
2.4 Tungsten Capsule Welding Machine	6
3. Characteristic Tests and Results	7
3.1 Heating Tests	7
3.1.1 Measurement Conditions	7
3.1.2 Results	7
3.2 Capsule Welding Tests	7
3.2.1 Test Conditions	7
3.2.2 Results	8
3.3 Test of Standard Sample	8
3.3.1 Measurement Conditions	8
3.3.2 Results	8
3.4 Test of Unirradiated and Irradiated UO ₂ Pellet	8
3.4.1 Measurement Conditions	8
3.4.2 Results	9
4. Discussion	9
4.1 Heating Tests	9
4.2 Tests of Standard Sample	9
4.3 Unirradiated and Irradiated UO ₂ Pellet	10
5. Summary	10
Acknowledgment	10
References	11

1. まえがき

近年、原子力発電技術の高度化の一環として、軽水炉燃料の高燃焼度化が計画され、高燃焼度時の燃料の健全性を確証することを目的とした照射後試験が強く要請されている。原研・ホット試験室では、これら高燃焼度時における燃料の照射挙動を詳細に究明するためのデータを取得する各種照射後試験装置の開発を、科学技術庁からの委託研究「高燃焼度燃料照射後試験設備整備」として、電源開発特別会計予算に基づき進めている。これらの装置開発は、平成2年度から10ヶ年計画され、燃料体の熱物性値測定及び表面観察・分析を行うための計7種類の照射後試験装置を開発・整備し、高燃焼度等の燃料の照射後試験に適用することを目的としている。

原子炉燃料は安全性の観点から燃料が溶融を起こさないことが設計条件になっている。一般に、 UO_2 の融点は高燃焼度になるにつれて低融点 FP の析出、O/U 比の変化等により低下すると言われている^{1), 2), 3), 4)}。しかし一方では、燃焼度依存性がほとんどないと言う報告もある^{5), 6)}。何れにしても照射済燃料に関する測定データは少なく、その値も 2,400°C~2,900°C の範囲でばらつきが大きい⁷⁾。そこで、照射済 UO_2 ペレットの融点データの精度・信頼性を向上させるために、高燃焼時における照射済 UO_2 ペレットの融点を高精度で測定するペレット融点測定装置を開発した。本報告書では、照射済燃料を取り扱うためホットセル内に設置したペレット融点測定装置の設計・製作、標準試料及び照射済燃料ペレットを用いたモックアップ試験について述べる。

2. ペレット融点測定装置

2.1 融点測定の方法

照射した UO_2 の融点については、古くは Christensen¹⁾ や Bates⁶⁾ のデータがよく引用されている。彼らが用いたタンゲステン”V型” フィラメント法は、くさび型（形状：幅 6.35 mm、厚さ 0.127 mm、V 角度 15°）のタンゲステン薄板の窪みに試料を数 100mg 置き、タンゲステン薄板を直接通電による水冷却型抵抗炉で加熱し、顕微鏡を覗きながら試料の融解を観察し、パイロメータで溶融する温度を測定するものである。この方法による装置は、試料の量が少なくてすむ、装置の構成が単純・小型である等の利点はあるが、試料の蒸発による試料温度測定用光学窓の曇りや O/U(化学組成) の変化の影響を受け、温度測定の再現性及び精度が低下するなどの欠点がある。また、照射済燃料を取り扱うため、加熱あるいは溶融時に蒸発した試料が加熱炉内の低温部に付着し、高放射性物質の汚染蓄積により保守・点検時における作業者の被ばくが問題となる。

これに対して Hausner⁷⁾ は、タンゲステンカプセル（外径 14.2 mm、内径 13.2 mm、高さ 12.7 mm）に封入した未照射 UO_2 ペレットを高周波誘導加熱炉で加熱し、 UO_2 ペレットを一定速度で加熱・冷却したときの溶融・凝固に伴う潜熱により温度曲線に生じる平坦部（プラトー）を検出する、いわゆるサーマルアレスト法に基づき融点を求めた。この方法では、タンゲステンカプセルに封入した試料を加熱するため、試料の蒸発や化学的変化による融点測定の誤差が少なく、放射性試料を用いた場合、試料蒸発・飛散による汚染もほとんどない。また、試料はタンゲステンカプセルに封入された状態で取り扱えるため、遠隔操作が容易であるなどの利点がある。一方、本測定法では、熱容量の大きなタンゲステンカプセルを使用するため、明確なサーマルアレストを得るに

は、ペレット1～2個分相当（約10～15g）のUO₂ペレットが必要となる。このため、燃料ペレットの径方向の微小エリアについての融点データを得ることは困難である。また、試料調製用にタンクステンカプセル溶接装置などの付帯設備が必要となる他、システムとして高周波インバータ、冷却器等が必要となり、かなり大がかりな装置となるなどの欠点もある。しかし、照射後試験の適用例として、Tachibanaら⁸⁾は、タンクステン封入によるサーマルアレスト法により、高速炉で照射した混合酸化物燃料の融点測定を行い、精度の良いデータを取得している。

したがって、本装置の測定法は、測定精度、遠隔操作性及び保守性を特に重視して、タンクステンカプセル封入によるサーマルアレスト法を採用した。

2.2 ペレット融点測定装置の概要

2.2.1 全体設計

以下に述べるような基本的構想に基づき、本装置の全体設計を行った。Table. 1に本装置の主な仕様を示す。

装置本体部はホットセル内に設置するため、高放射性試料の取り扱いを考慮した構造、遠隔操作性を考慮した構造、保守点検作業の容易性を考慮した構造に主眼を置き、また地震対策（水平震度0.36）、停電対策及び機器故障等によるインターロック等を考慮した設計とした。

融点はタンクステンカプセル封入によるサーマルアレスト法により測定する。試料の加熱は、高周波誘導加熱方式によりタンクステンカプセルを加熱し、間接的に試料を加熱溶解する。高周波加熱部のうち高周波加熱炉をホットセル内に、高周波発振機等をセル外に設置する。セル内に設置する加熱炉はセル内スペースの有効利用を図るため、小型、軽量、単純な構造のものとする。加熱炉の最高到達温度は、未照射 UO₂の融点とされている2,850°Cより約150°C高い3,000°Cとする。なお、マニプレータブーツ等が軟化しないように炉体表面温度を80°C以下とする。試料カプセルの昇降温速度は0～100°C/minの範囲で各々調整できる。また、高周波発振機よりホットセル内の加熱炉までの距離が長くなるため、発振機を出力60kWのSIインバータとする。冷却装置はセル内の加熱炉体を閉ループ方式により水冷却する。

炉内雰囲気は、真空中とし、高温時における真空度は0.13Pa以下とする。真空排気装置は真空ポンプ類の保守性を考慮した場合、セル外に設置することが望ましいが、試料カプセル付近における到達真空度、放射性物質による汚染防止、設置工事の容易さを考慮し、セル内設置とする。真空排気装置のバルブの開閉、真空ポンプ類の起動・停止等はシーケンサによる自動制御とする。

温度測定には赤外線放射温度計を用い、温度測定範囲を1,500～3,000+α°Cとし、サーマルアレスト法によって融点を検出するのに十分な温度応答速度と温度分解能を有するものとする。なお、放射温度計は放射線ダメージを受けやすいため操作室に設置し、ホットセル内の加熱チャンバー内に置かれた試料との温度測定用光路は、ミラー、プリズム等を用いて操作室側の放射温度計に導くものとする。

データ処理では、試料温度、高周波出力、真空度の生データの記録を行う他に、装置本体部がホットセル内、冷却器及び高周波電源が地下機械室、その他の制御装置が操作室と散在しているため、各機器の安全系統を集中管理する。

さらに、照射済 UO₂ペレットをタンクステンカプセルに封入するための遠隔操作型自動溶接機

を併せて開発する。なお、タンクステンカプセルの溶接方法は、電子ビーム溶接とTIG溶接の両手法について検討する。

2. 2. 2 装置

装置の構成は、高周波加熱部、真空排気部、温度計測部、データ処理部及び試料調整部であるタンクステンカプセル溶接機に大別できる。ペレット融点測定装置全体のブロック図をFig. 1に示す。

(1) 高周波加熱部

高周波加熱部は、加熱部、出力制御部および冷却装置より構成される。高周波誘導加熱炉と真空排気装置をセル内に、その他の機器を操作室等のセル外に設置する構想で各々の機器を設計した。

① 加熱部

加熱部は、炉の中心から、カプセル、サセプタ、高周波ワークコイル、反射板、チャンバーの順に配置される。カプセルは、内径14 mmφ、深さ35 mmの円筒容器で、UO₂ペレットの溶融温度に耐えるタンクステンで製作した。なお、試験時には試料の蒸発飛散防止のために、密封される。サセプタは、内径18 mmφ、深さ38 mmの円筒管で、高周波電流を効率よく引き出し、カプセルの均温を得るためのもので、材質はタンクステンである。また、熱放射損失を極力少なくするために、多重層のタンクステンの反射板をサセプタの上下に配置している。ワークコイルには銅製角パイプを使用し、パイプ内を冷却水で循環させている。チャンバーは、2分割した石英管を、中央の電極を兼ねた銅製フランジ（水冷構造）と上下のステンレス製フランジ（水冷構造）で挟み込んだ構造をしている。また、下部のフランジ部には赤外線放射温度計によってカプセル温度を計測するための石英窓を設けている。なお、温度測定していない時、試料等からの蒸発物質による石英窓の汚染を防止するためシャッターを石英窓の内側に取付けている。

加熱部の概念図をFig. 2に示す。

② 出力制御部

試料の加熱方法は、タンクステンカプセルに入れた UO₂ペレットを高周波により間接的に誘導加熱する。一般に2,500°Cを超える高温領域では高周波出力損失が大きくなる。本制御部では、ワークコイルの近傍に整合トランス（カレントトランス：CT）を置くことにより、ワークコイルとCTとのインピーダンスを均衡させ、効率よく高周波電流を引き出すことを可能とした。また、昇温あるいは降温時の温度データより融点を検出するには、融点近傍での昇降温速度を高精度に制御する必要がある。本装置では、高周波電源にSI（静電誘導型）トランジスタインバータを用いることで、その制御精度を±0.05%（3,000°C±1.5°C）以内とすることを可能とした。また、加熱制御はプログラマ温度調節器によって自動制御される。

SIトランジスタインバータの主な仕様は次のとおりである。出力制御部の概略図をFig. 3に示す。

電源入力：3相 200V AC±10% 最大85 kVA

高周波出力：最大定格 60 kW

連続定格 60 kW

発振周波数：約 13 kHz (中心周波数)

③冷却装置

冷却装置は高周波誘導加熱炉及び高周波発振機の冷却に使用する。事故時にホットセル内に設置している加熱炉を循環している冷却水が汚染し、配管より水の漏洩が生じた場合を想定し、セル内の加熱炉とコールドエリア（地下機械室）の高周波発振機を別系統とし、操作室と地下機械室にそれぞれ冷却装置を設置した。冷却装置の概略図を Fig. 4、また冷却水系統を Fig. 5 に示す。

(2) 真空排気部

真空排気部は真空ポンプ、真空計、配管等で構成され、ホットセル内に設置した。真空排気部の概略図を Fig. 6 に示す。また、Fig. 7 に本装置の真空排気系統を示す。

真空ポンプにはロータリーポンプと磁気浮上型ターボ分子ポンプを使用している。ロータリーポンプの排気側にはオイルミストトラップを取り付け、セル内へのオイルの飛散防止を行っている。また、高真空中側であるターボ分子ポンプへのオイル汚染を防止するため、自動リーク弁を設けている。本引き用の真空ポンプには、オイル、冷却水不用の磁気浮上型ターボ分子ポンプを使用し、高温試験時における炉内の到達真圧度は、0.13Pa 以下とした。

さらに、系内には、サーモカップル真空計及び電離真空計が備えられ、各部の真圧度が随時測定されるとともに、その値を加熱炉のインターロック制御に用いている。

(3) 温度計測部

UO_2 ペレットの融点が 2,850°C 近傍であることから、サーマルアレスト法により融点を求めるには、約 3,000°C の温度測定が要求される。本装置では、これに対応した温度計として光高温計である 2 色赤外線放射温度計（以下、2 色温度計という。）を用いた。

2 色温度計は放射線ダメージを避けるため、セル外（操作室）に配置することで検討した。したがって、壁貫通孔を使って温度計測用の光路をセル外に取り出す手法として、①ミラー、プリズム等を用いて光を反射する方法、及び②2 色温度計の集光部と検出部を切り離し、セル内の集光部から操作室の検出部に光ファイバーで伝送する方法、の 2 案について検討を行った。①は、壁貫通部からの放射線ストリーミングを防ぐために多段のミラー等を用いて直線的に回折することにより光路を導く。この方法では、光の反射回数が多くなり反射面での吸収損失が増加するとともに、光学系の光軸調整が複雑となり測定精度及び遠隔操作性とも低下し、本装置には適さない。これに対して②は、光ファイバーを自在に曲げることができることから、既設の配線用貫通孔を使用でき、①の問題がクリアできる。しかし、光ファイバーを使用する場合、光ファイバーの耐放射線性の問題がある。このため、ここでは $2.58 \times 10^{-3} \text{C/kg}$ の γ 線照射でも優れた伝送特性を有する純粹石英ファイバーを使用することにした。なお、光ファイバーには、外部損傷を防ぐためステンレス製フレキシブル被覆を施した。

セル内に配置される集光部は、未使用時にセル内の放射線雰囲気や、測定時の温度測定範囲外における試料からの放射線ダメージを少なくするため、鉛で遮へいする機構を設けた。データ取り込み開始あるいは終了時は、シャッター機構により遮へい物を開閉し光路を導くことを可能と

した。高周波加熱部に付設した集光部の外観を Photo 1 に示す。

超高温領域の温度測定器として、放射率や灰色減光の影響が少ない2波長方式 (Si 素子 : 0.8/0.97 μm) の2色温度計を用いた。また、試料温度を精度良く測定するために、試料をタンゲステンカプセルに封入し、試料の蒸発による光学窓の曇りを低減するとともに、タンゲステンカプセル底面に細管を取り付け、黒体模擬することにより、測定物の放射率による影響の低減化を図った。タンゲステンカプセルを Fig. 8 に示す。さらに、測定感度を高めるため、集光部の視野面積が可能な限り小さく (2 mm ϕ) なるように集光部と測定物の距離係数を設定して2色温度計を作製した。

2色温度計の主な仕様を以下に示す。

測定温度範囲 : 1500~3100°C

測定精度 : 1500~2000°C : 測定値の 1% (但し $\varepsilon \approx 1.0$ の場合)

2000~3100°C : 測定値の 2% •

分解能 : 2°C (1700°C未満)

1°C (1700°C以上)

応答時間 : 約 0.3 秒

なお、タンゲステンカプセル測温部と集光部との光軸調整は、次の手順により容易に可能な設計とした。

- ① 中心に 3 mm ϕ の穴を開けた位置決め用カプセルを加熱炉内の試料位置に置く。
- ② 2色温度計検出器の後方に He-Ne レーザーを取付ける。
- ③ 温度計測時とは逆の経路でレーザー光を集光部から加熱炉内に導く。
- ④ 位置決め用カプセルの穴の中をレーザー光が通過するように X-Y ステージで集光部の位置を調整する。

(4) データ処理部

データ処理部では、本装置が超高温装置であることから、万一誤操作及び異常が発生した場合でも安全を確保するため、高周波加熱部及び真空制御部と通信を行い、装置の状態監視、安全系のインターロック制御が可能な設計とした。

データ取込みソフトは、2色温度計、高周波発振器及び真空中度の出力をデータとして取込み、ハードディスクに格納するプログラムである。データ取り込みソフトの処理内容を以下に示す。

① 装置運転準備

装置運転準備の手順を CRT に表示し、対話方式により準備操作を進めることとした。全ての運転準備終了後、各項目についてチェックを行い、準備が整っていることが確認できる。なお、異常発生時は、その内容が CRT に表示される。測定準備及び測定中の異常アラーム系統図を Fig. 9 に示す。

試験日、試料名等のシステム管理ファイルを作成の後、昇降温レート、ターゲット温度、保持時間等の昇降温プログラム設定を行い、CPU からプログラム温度コントローラにデータが転送される。昇降温プログラムパターンは最大 20 ステップで、ステップ指定で繰り返し測定が可能である。

② 溶融点の測定

測定開始から終了までの一連の動作として、シャッターの開閉動作、2色温度計、高周波電流及び真空度データの取り込み、測定中の異常検出等、全てが自動で行なわれる。異常検出は2色温度計信号等のサンプリングの間（最小0.1秒毎）に、各プログラムコントローラに対してチェックを行い、異常が確認できる。また、CRT上に試験中の試料温度及び高周波電流の曲線を表示することができる。

③ 装置運転終了

装置運転終了時は、装置の運転準備と同様にCRTにその手順を表示し、対話方式により終了処理操作を進めることにより真空排気系等の誤操作防止を図った。

2.3 融点測定の手順

融点測定の手順は以下の通りである。

- ① 試料を必要量採取する。
- ② 採取試料の重量測定を行う。
- ③ タングステンカプセル底蓋の溶接を行う。
- ④ カプセルの溶接状態を確認する（写真撮影）
- ⑤ カプセルに上蓋を載せて加熱炉にセットし、昇温を行い、昇温状態の確認及びカプセルの脱ガス処理を行う。
- ⑥ カプセル内に試料を装填する。
- ⑦ カプセル上蓋の溶接を行う。
- ⑧ カプセルの溶接状態を確認する（写真撮影）
- ⑨ カプセル洗浄・乾燥を行う。
- ⑩ 測定試料を加熱炉チャンバーにセットし真空引きを行う。
- ⑪ 測定条件を入力する。
- ⑫ 融点測定を行う。

2.4 タングステンカプセル溶接機

高温時に試料から放出される放射性物質による高周波加熱炉の汚染蓄積の低減、及び測定中の酸素ポテンシャルの変化を防ぐため、照射済 U_0 ペレットをタングステンカプセルに封入するカプセル溶接機を製作した。本溶接機を製作するにあたり、溶接法として①電子ビーム溶接法と②TIG溶接法の両手法について検討した。

タングステン溶接の場合、一般には電子ビーム溶接が行われる。①は、エネルギー密度が高く、溶接制御性が良いと言うメリットがある。しかし、高い加速電圧が必要であることや、真空装置や冷却装置が必要となり、大きな設備となってしまうデメリットもある。そのため本手法による設備をセル内に設置することは適さない。また、初期コストも大きい。これに対して②による設備はコンパクトに製作することができ、また、初期コストが小さいと言うメリットがあり、①の問題がクリアできる。このため、溶接手法はTIG溶接法を採用した。しかし、本溶接法の溶接雰囲気はHeガス雰囲気のため、大気圧でHeガス置換した場合、高温時にカプセルの内圧が高くな

ってしまい、測定結果に影響を及ぼす可能性が懸念された。

そこで、カプセルを溶接した場合と、カプセルを溶接しない場合における融点測定への影響を調べた。Al₂O₃、HfO₂、Y₂O₃、Mo、Ta を用いた測定結果を Fig. 10 に示す。結果は、両方ともに一つの直線上にプロットされており、カプセルの内圧が高くても、融点測定値に影響を及ぼさないことが確認され、アーク溶接法を用いても問題がないことが確認された。

カプセル溶接機はホットセル内においてヘリウムアーク溶接法により、照射済 UO₂ ペレット片をタングステンカプセルに封入する遠隔操作型の TIG 溶接機である。溶接機本体部の外観を Photo 2 に示す。

溶接機本体部はトーチ、チャック部、チャンバー等から構成され、ホットセル内に搬入し、作業架台上に据え置き状態で使用するものである。未使用時は、電気配線、真空及びヘリウムガス供給管をコネクタの部分で切り離し、移動することができる。また、トーチの交換、トーチとタングステンカプセルのギャップ調整もマニプレータ操作で容易に行える構造とした。チャック部は銅製で、溶接時の冷し金の効果を有している。タングステンカプセルの着脱とチャンバーの開閉はマニプレータ操作によるが、真空引き一ヘリウムガス置換、余熱、本溶接、熱処理等のすべての溶接行程が自動遠隔操作で行うことができる。

3. 特性試験と結果

本装置をホットセル内に設置後、主要部である高周波加熱炉の高周波投入電力と加熱温度の関係（加熱性能）を確認するために、空カプセルを使用した加熱特性試験を実施するとともに、標準試料及び照射・未照射 UO₂ ペレットを用いた特性試験を実施した。標準試料及び未照射 UO₂ ペレットを用いた特性試験では、融点測定精度確認、温度補正用データの採取を目的として行った。

3.1 加熱特性試験

3.1.1 測定条件

本試験において試料は空のタングステンカプセルを使用した。カプセルは、底蓋のみ溶接を行い、上蓋は載せただけの状態とした。測定雰囲気は真空 (6.7×10^{-3} Pa 以下 [測定開始時])、昇温速度は約 25°C/min である。

3.1.2 測定結果

加熱特性試験を行った制御電圧—温度曲線を Fig. 11 に示す。横軸は高周波の制御電圧で、縦軸は温度である。高周波の制御電圧は、高周波入力電流の相対値を示している。一般に 3000°C 付近の高温領域では、投入電流に対して温度が飽和してしまうが、本装置では、高周波の制御電圧を増加させたときの試料温度が 3000°C まで非常に直線性良く加熱されていることが判る。

3.2 タングステンカプセル溶接試験

3.2.1 試験条件

本試験においての試験条件は以下の通りとした。

- ① 雰囲気：ヘリウムガス 1 気圧（溶接時ヘリウムガスフロー）
- ② 溶接針—カプセル間ギャップ：1 mm
- ③ 予備加熱電圧：40A
- ④ 本溶接電圧：70A
- ⑤ 回転速度：1.6 rpm
- ⑥ アフターブロータイム：10 分

3.2.2 試験結果

溶接を行ったカプセルの写真を Photo 3 に示す。上記の条件で溶接を行った結果は、溶接後のビード部に溶接割れ等の欠陥は認められず、一様に良好であった。

3.3 標準試料による特性試験

3.3.1 測定条件

本試験では、Al₂O₃、Mo 及び Ta を標準試料として用いた。Al₂O₃については、粒径約 3 mm の粒状試料を、Mo 及び Ta については、棒状の試料をカプセルの形状に合うように加工して使用した。Photo 4 に各試料の外観写真を示す。

試料重量は Al₂O₃ については約 4g、Mo については約 26g、Ta については約 38g、測定雰囲気は真空 (6.7×10^{-3} Pa 以下 [測定開始時])、昇降温速度は約 25°C/min である。

3.3.2 測定結果

Al₂O₃ 試料の融点測定を行った時間—温度曲線を Fig. 12 及び 13 に示す。この曲線上において、試料の融解潜熱に伴うプラトー（サーマルアレスト）が生じることを確認した。また、降温時の曲線においても、過冷却後にピークが生じることがわかった。これらの結果から、昇温及び降温時のいずれの曲線からも融点を検出することができた。

本測定における融点は、昇温時において最初に融解潜熱により現れるプラート一部分の開始点とした。検出した融点は昇温時で 2,000°C、降温時で 2,028°C と降温時が高い結果となった。しかし、一度溶解した試料の再昇温を行うと、昇温時は約 20°C 高く、降温時は 1 回目と同程度の結果となつた。

また、Mo 及び Ta 試料の融点測定を行った時間—温度曲線を Fig. 14 及び 15 に示す。この曲線上において、試料の融解潜熱に伴うプラートを確認した。降温時の曲線においては、過冷却による明確なピークはみられず、昇温時の曲線からのみ融点を検出することができた。検出した融点は、Mo 試料が 2,646°C、Ta 試料が 3,041°C となった。

本測定における融点は、Al₂O₃ の時と同様に、昇温時において最初に融解潜熱により現れるプラート一部分の開始点とした。

これら Mo、Ta 試料の融点データと文献値を Fig. 16 に示す様に比較することにより、測定温度の校正式を得ることができる^{5), 9)}。

3.4 照射・未照射 UO₂ ペレットによる特性試験

3.4.1 測定条件

照射・未照射 UO_2 ペレットについては、ペレットの粉碎片を使用した。Photo 5 に試料の外観写真を示す。試料重量は 13g～15g、測定雰囲気は真空 (6.7×10^{-3} Pa 以下 [測定開始時])、昇温速度は約 25°C/min である。

3. 4. 2 測定結果

(1) 未照射 UO_2 ペレットの融点測定結果

融点に及ぼす燃焼度依存性を明らかにするためのリファレンスデータ取得のために、未照射 UO_2 ペレットの融点を測定した。Fig. 17 に測定を行った時間一温度曲線を示す。昇温時の曲線においては、 Al_2O_3 試料ほど明瞭ではないが、サーマルアレストを検出することができた。また、降温時の曲線においても、同様に過冷却後のピークを検出することができた。

本測定における融点は、標準試料測定の時と同様に昇温時において最初に融解潜熱により現れるプラト一部分の開始点とし、標準試料の測定結果から得られた温度較正式より得られた融点は 2,850°C であった。

(2) 照射済 UO_2 ペレットの融点測定結果

融点に及ぼす燃焼度依存性を明らかにするため、燃焼度が 3.0 及び 4.5 Gwd/t の UO_2 ペレットの融点を測定した。Fig. 18 及び 19 に測定を行った時間一温度曲線を示す。

本測定における融点は、標準試料測定の時と同様に最初に融解潜熱により現れるプラト一部分の開始点とし、標準試料の測定結果から得られた温度較正式より得られた融点は燃焼度 3.0 Gwd/t の試料は 2,839°C、4.5 Gwd/t の試料は 2,848°C であった。

4. 考察

4. 1 加熱特性試験

加熱特性試験において、高周波の制御電圧を増加させたときの試料温度は、3000°Cまで非常に直線性良く加熱されていることが判る。これは一般に 3000°C付近の高温領域では、投入電流に対して温度が飽和してしまうのであるが、本装置では、ワークコイルの近傍に整合トランジスタを置くことによって効率よく高周波電流を引き出し、また、高周波電源に SI トランジスタインバータを用いることで、制御精度を高くしたことによるものと言える。これにより、本装置は UO_2 ペレットの融点測定に必要な加熱性能を有していることが判った。

4. 2 標準試料特性試験

Al_2O_3 試料については、昇温時の曲線をみると、サーマルアレストが現れる部分が多少凸凹になる傾向があることが判る。これは一度融解した試料を再測定すると凸凹消えることから、測定試料形状の影響によるものと思われる。また、降温時のデータが昇温時と比べると約 30°C 高く、さらに再昇温した融点データが一度目と比べて約 20°C 高い傾向にあるが、これについては現在検討中であり、本測定では、融点検出は昇温時のみを行い、繰り返し測定は行わないこととした。

Mo 及び Ta 試料については、昇温時の曲線をみると、サーマルアレストが現れる部分が段になる傾向があることが判る。これは Al_2O_3 試料の時と同様に、測定試料形状の影響によるものと思われる。

4. 3 照射・未照射 UO₂ペレットによる特性試験

照射・未照射 UO₂ペレットを用いた測定データをこれまでに報告されている UO₂の融点データと共にプロットしたのがFig. 20 である。図上の直線で表されているデータは現在の燃料設計において、最高温度の制限値として用いられている Christensen¹⁾の融点データである。現在、本装置を用いての照射・未照射 UO₂ペレットにおける融点測定データは、この3点しかないため、はっきりとしたことは言えないが、UO₂ペレットの融点は、4.5 GWD/t までは、燃焼度の違いによる大きな変化はないと言う傾向があることが分かった。また、山之内ら⁵⁾の報告とも比較的良い一致を示した。

5. まとめ

原研・ホット試験室では高燃焼度時における燃料の照射挙動を詳細に究明するための照射後試験装置としてペレット融点測定装置を開発し、ホットセル内に設置した。装置については、加熱炉部、真空排気部、温度計測部、冷却装置及びタンクステンカプセル溶接機の各部に工夫を凝らすことによって、操作性及び保守性に優れた装置とすることができた。特性試験では、まず装置の加熱性能試験を行い、高温領域でも十分精度良く加熱できることを確認した後、標準試料を用いて装置の測定精度を確認し、また二色温度計の温度補正に必要な換算式が得られた。さらに照射・未照射 UO₂ペレットを対象として測定を行い、照射後試験に対応できることを確認した。

謝 辞

本稿をまとめるにあたり多くのご助言を与え、ご指導してくださった古平ホット試験室長、新藤ホット試験室次長、金井塚実用燃料試験課長を始め、関係者諸氏に対して深く感謝に意を表します。

参考文献

- 1) J. A. Christensen et, al. : Melting Point of Irradiated Uranium Dioxide ; Trans. ANS 7, 390 (1964)
- 2) J. L. Krankota, C. N. Craig : The Melting Point of Plutonia-Urania Mixed Oxides Irradiated to High Burnup ; GEAP-13515 AEC Res. and Dev. Report, July 1969
- 3) R. E. Latta, R. E. Fryxell : Determination of The Melting Point of UO_{2-x} ; Trans. ANS, 8, 375 (1965)
- 4) J. A. Christensen : Irradiation Effects on Uranium Dioxide Melting ; HW-69234 UC-25, Metals, Ceramics and Materuaks, March 1962
- 5) S. Yamanouchi et, al. : Melting Temperature of Irradiated UO_2 and $\text{UO}_2\text{-}2\text{wt\%Gd}_2\text{O}_3$ Fuel Pellets up to Burnup of about 30GWd/tU ; J. of Nucl. Sci. and Tech 25[6], pp.528-533 (Jun. 1988)
- 6) J. Lmabert Bates : Melting Point of Irradiated Uranium Dioxide ; J. of Nucl. Materials 36 (1970)
- 7) H.Hausner : Determination of The Melting Point of Uranium Dioxide ; J. of Nucl. Material. 15, 3 (1965)
- 8) T. Tachibana et, al. : Determination Melting Point of Mixed-Oxide Fuel Irradiated in Fast Breeder Reactor; J. of Nucl. Sci, and Tech. 22[2], pp.155-157 (Feb. 1985)
- 9) K. Konno, T. Hirosawa : Melting Temperature of Irrssiated Fast Reactor Mixed Oxide Fuels ; J. of Nucl. Sci. and Tech, Vol. 35, No.7, PP.494-501 (July 1998)

Table 1 Main Specification of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

Main Unit	
Method	Thermal Arrest Technique (Tungsten Capsule)
Heating Furnace	High Frequency induction Heating
Max. Temperature	3000°C
Temp. Measurement	Fiberglass Two-color Pyrometer
Measuring Range	1500°C~3100°C
Atomosphere	Vacuum($<1.3 \times 10^{-4}$ Pa)
Tungsten Capsule Welding Machine	
Atomosphere	Helium Gas
Welding Gap	1mm
Preheating Current	40A
Welding Current	70A
Turning Speed	1.6 rpm

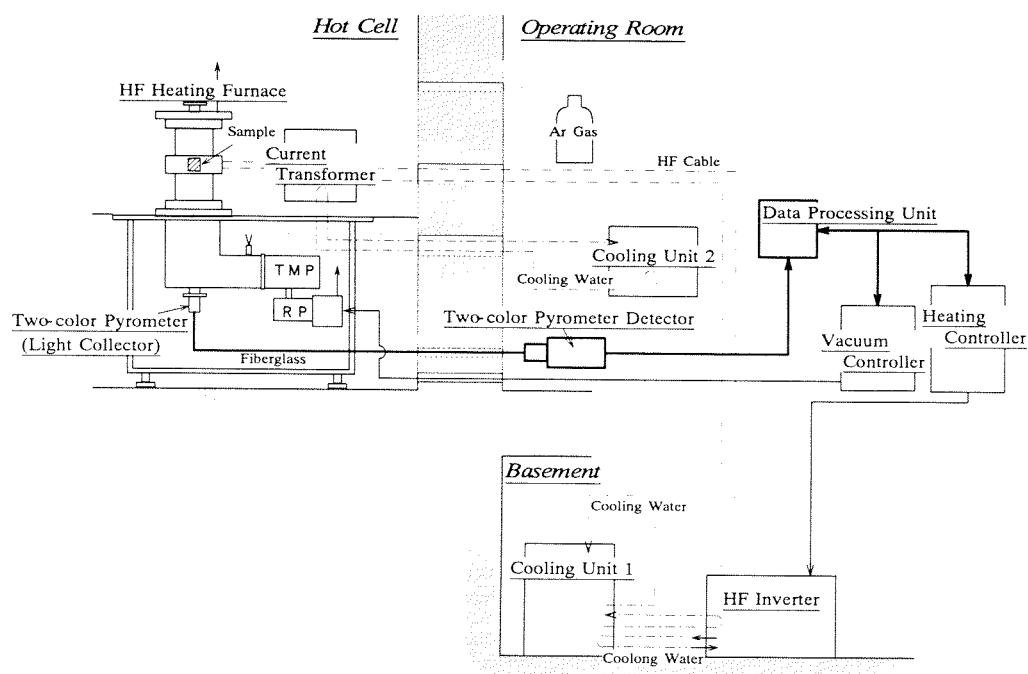


Fig.1 Block Diagram of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

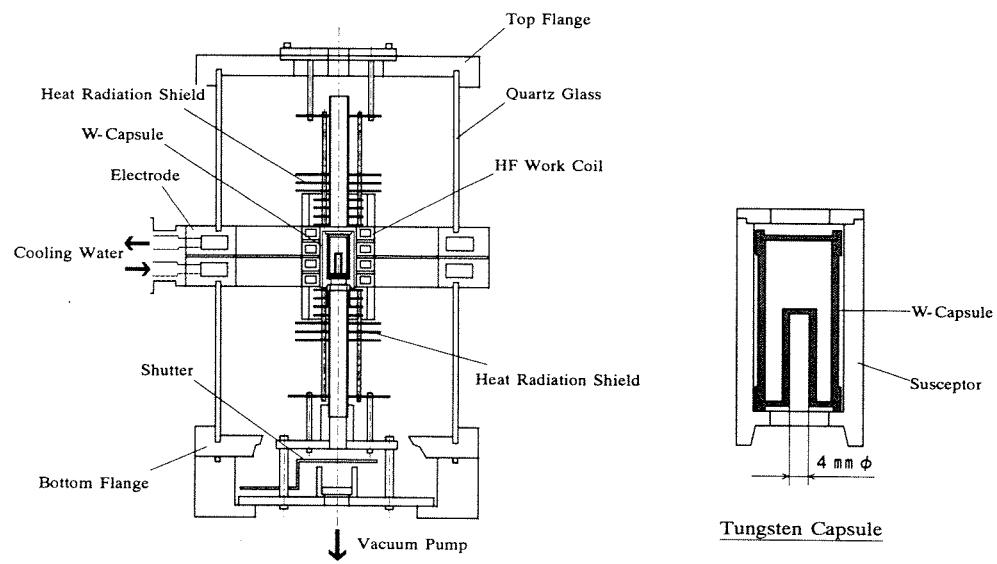


Fig.2 Heating System of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

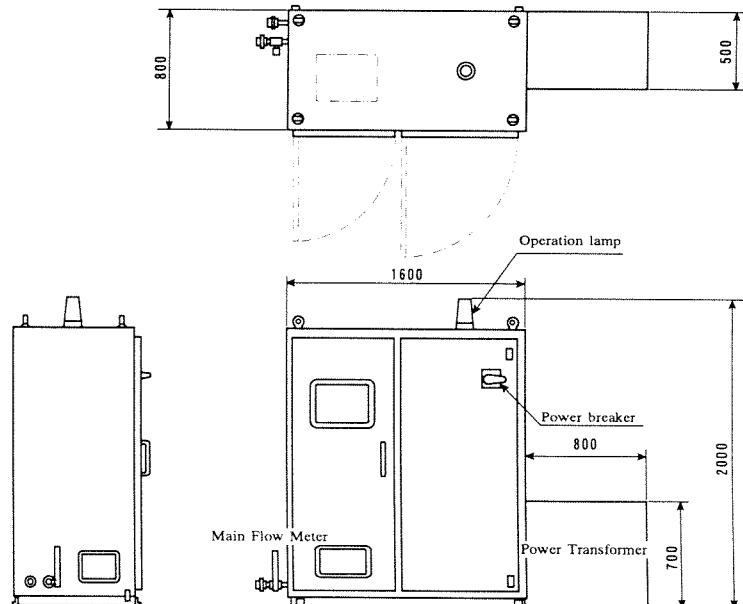


Fig.3 Output Control Unit of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

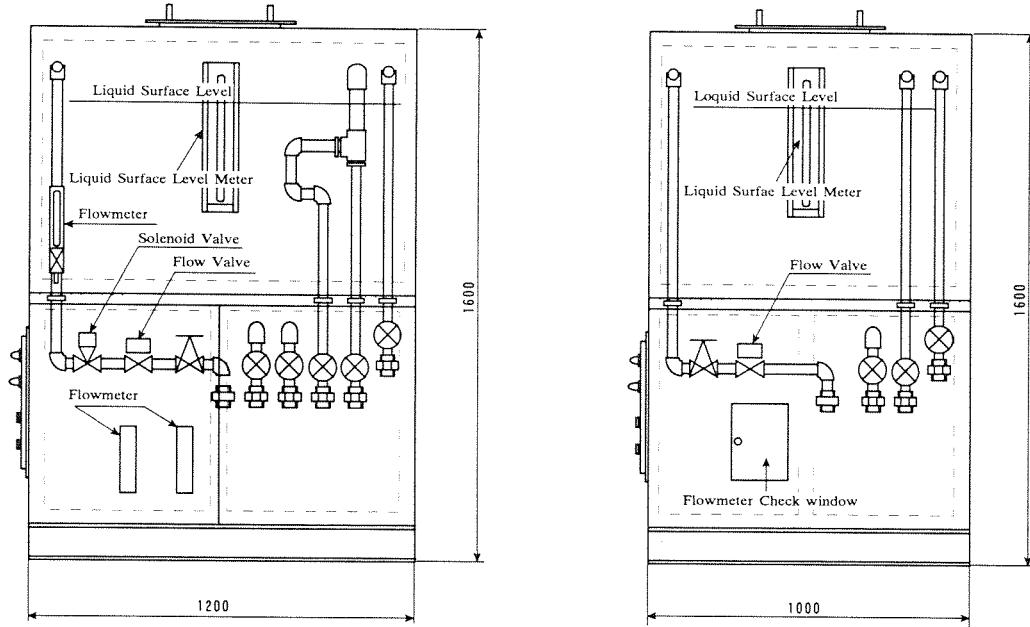


Fig.4 Cooling Unit of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

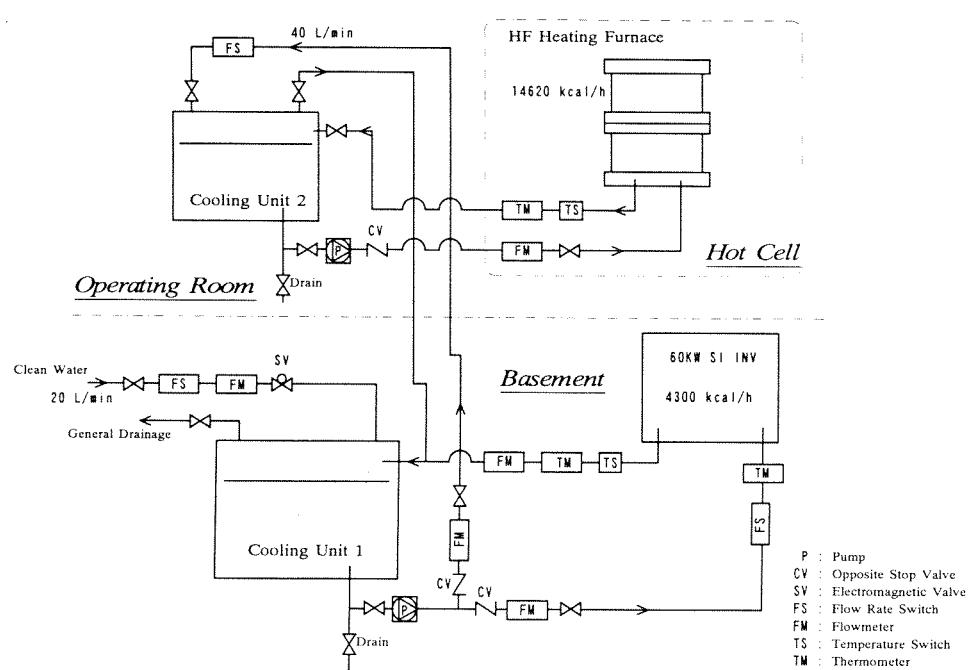


Fig.5 Cooling System of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

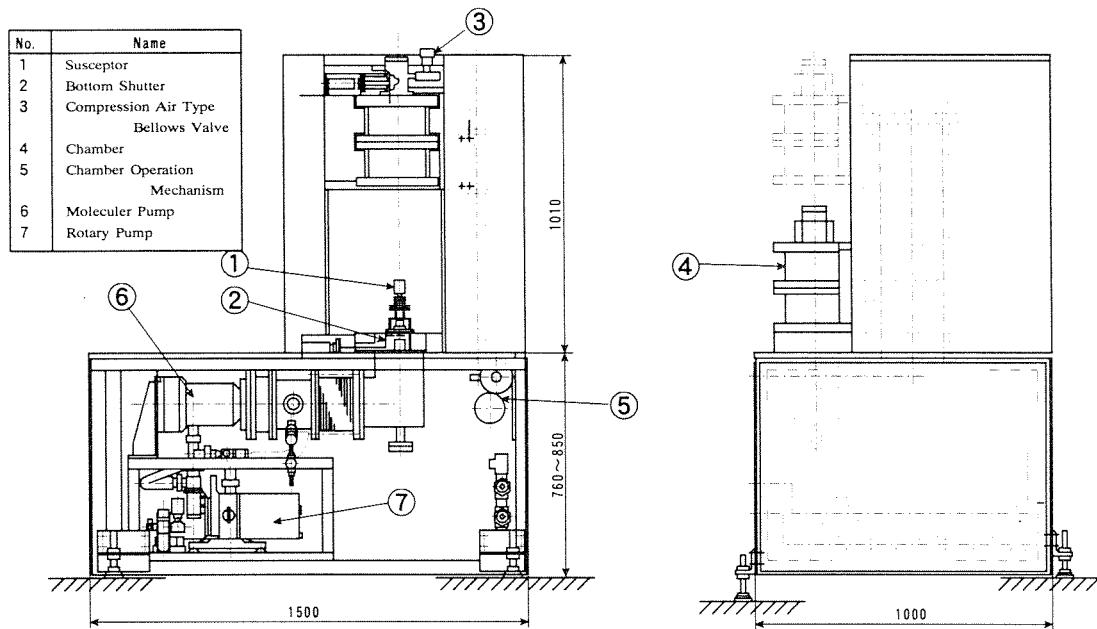


Fig.6 Vacuum Part of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

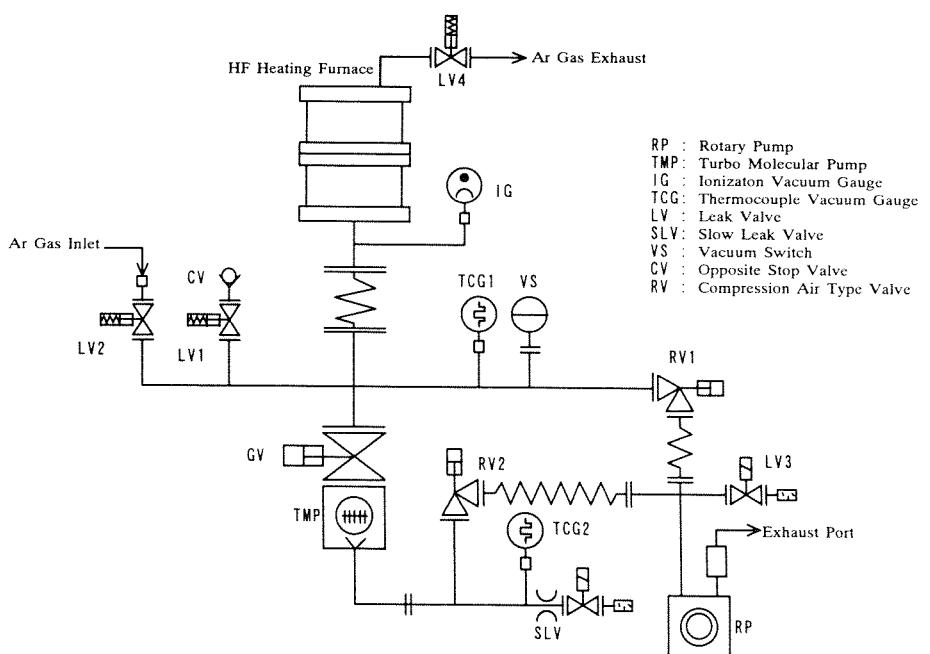


Fig.7 Vacuum System of Pellet Melting temperature measurement apparatus

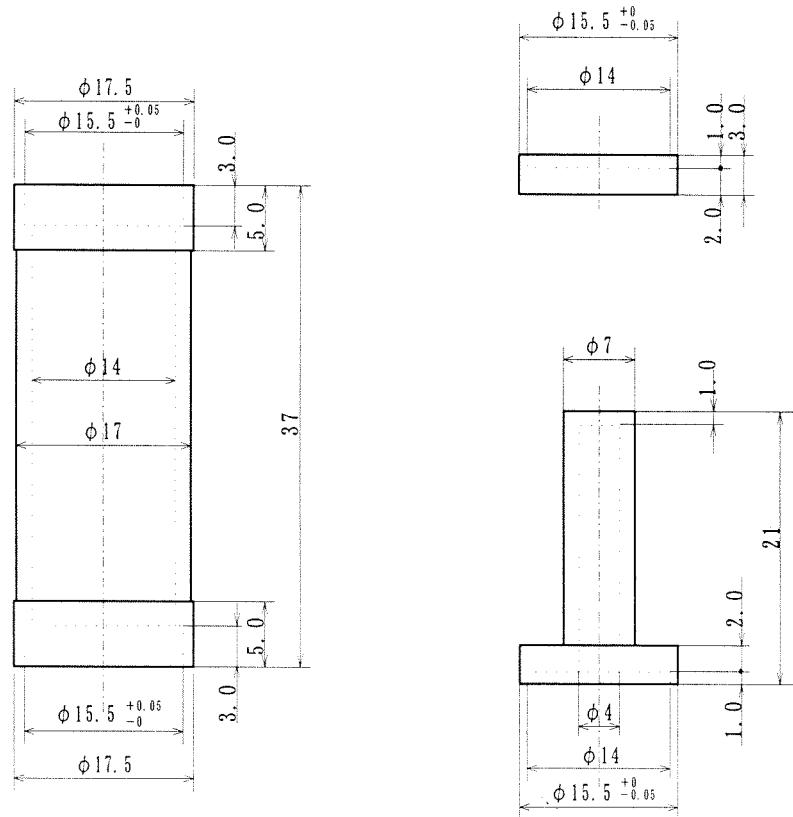


Fig.8 Tungsten Capsule

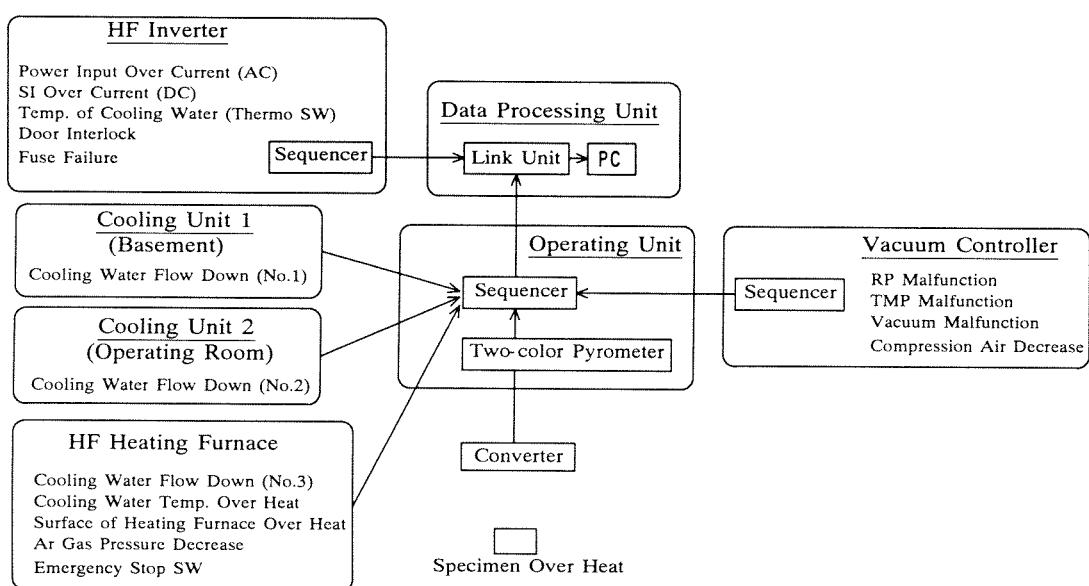


Fig.9 Alarm System of Pellet Melting Temperature measurement apparatus

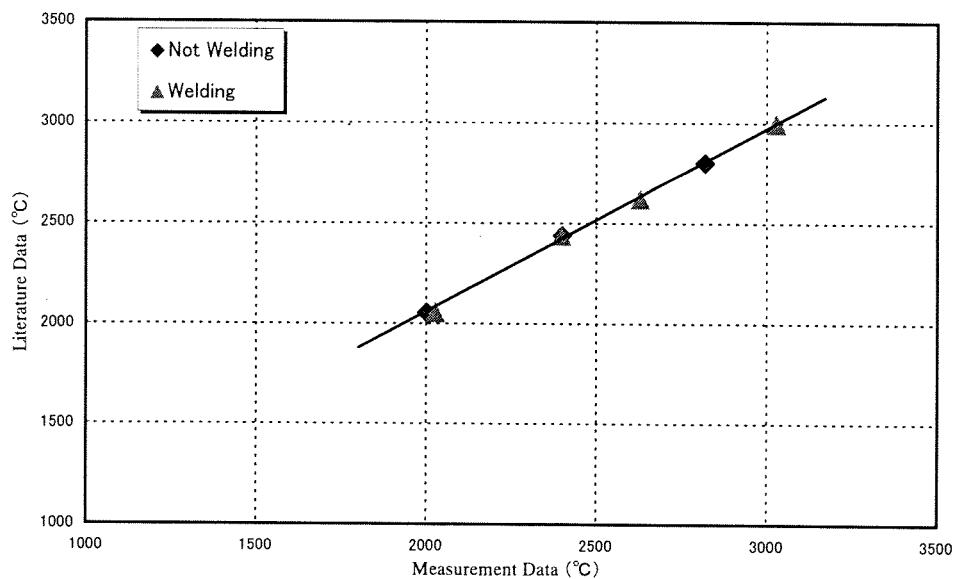


Fig.10 Effect of Internal Pressure on Melting Points
by Using Welded and Un-welded Capsules.

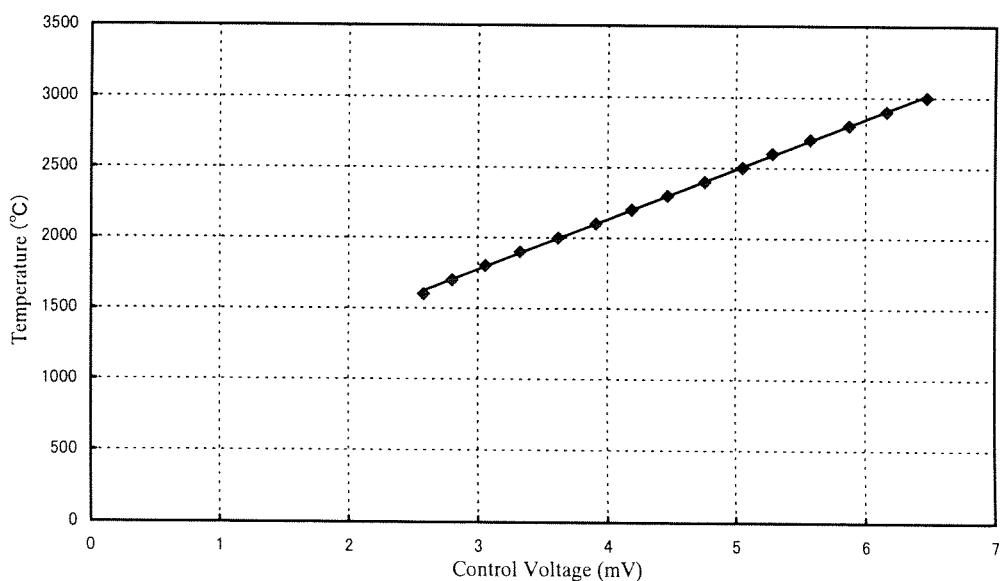


Fig.11 Control Voltage - Temperature Curve of Heating Test
(Heating Test of Tungsten Capsule)

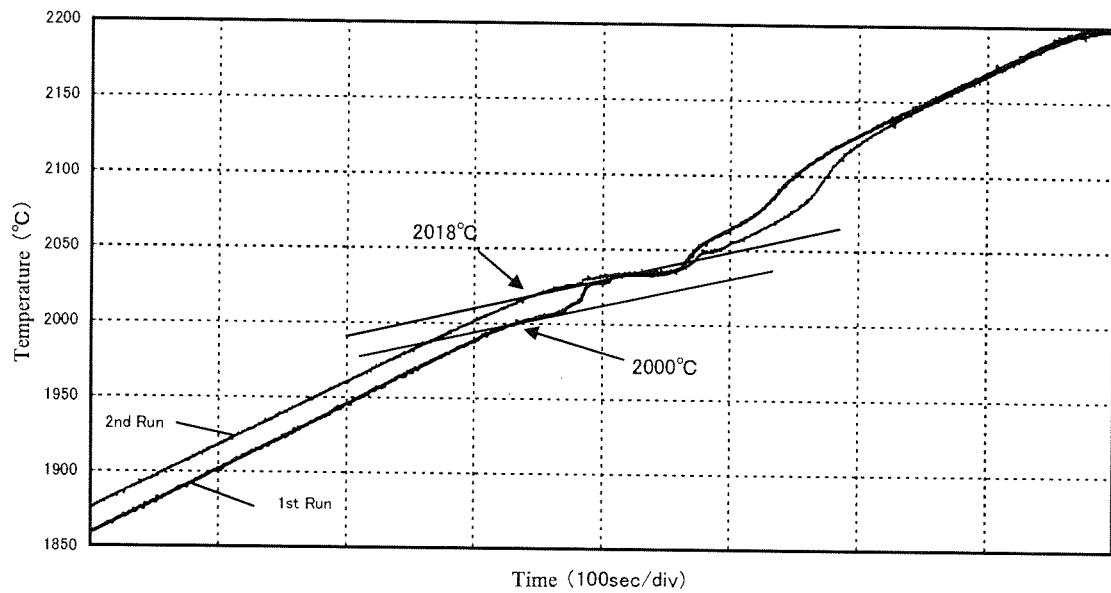


Fig.12 Melting Temperature Measurement Result of Al₂O₃ Sample (Heating Curve)

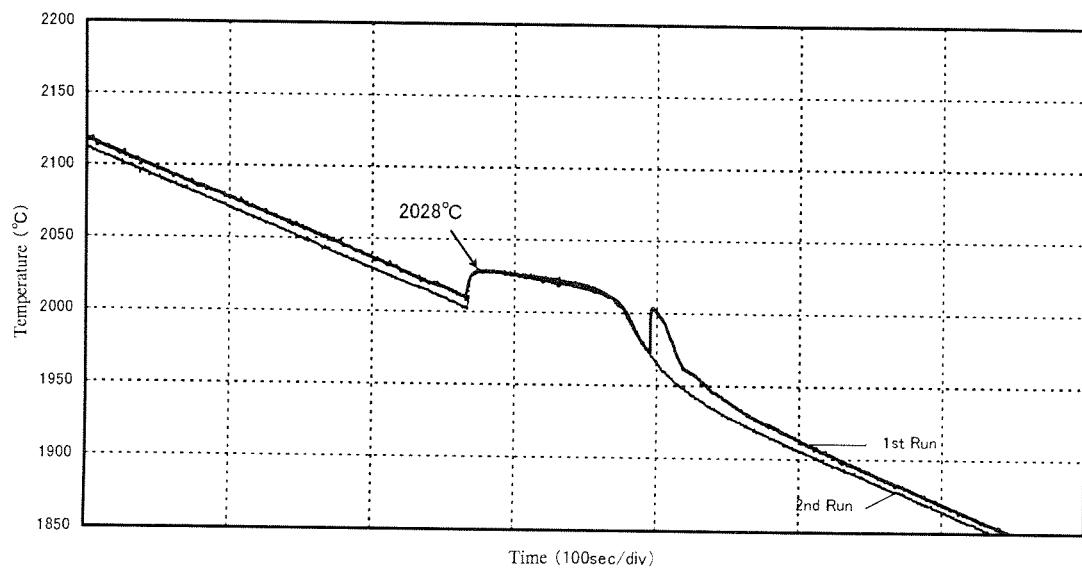


Fig.13 Melting Temperature Measurement Result of Al₂O₃ Sample (Cooling Curve)

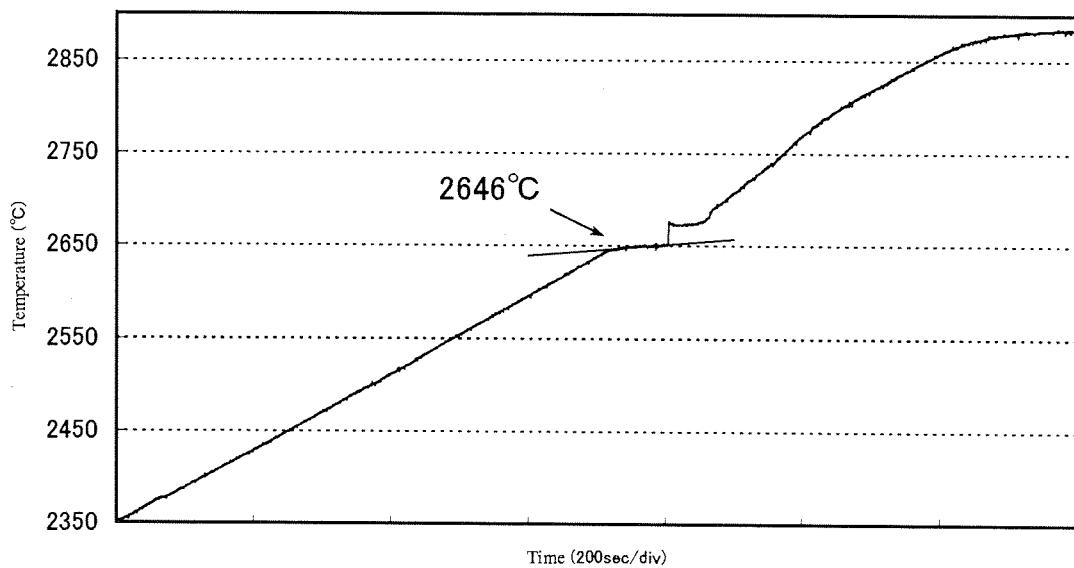


Fig.14 Melting Temperature Measurement Results of Mo Sample

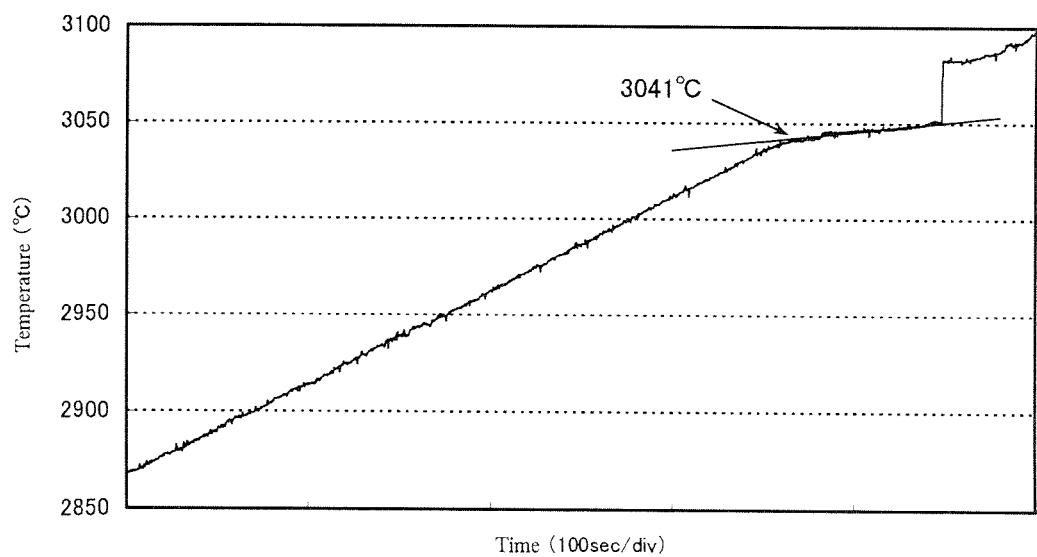


Fig.15 Melting Temperature Measurement Result of Ta Sample

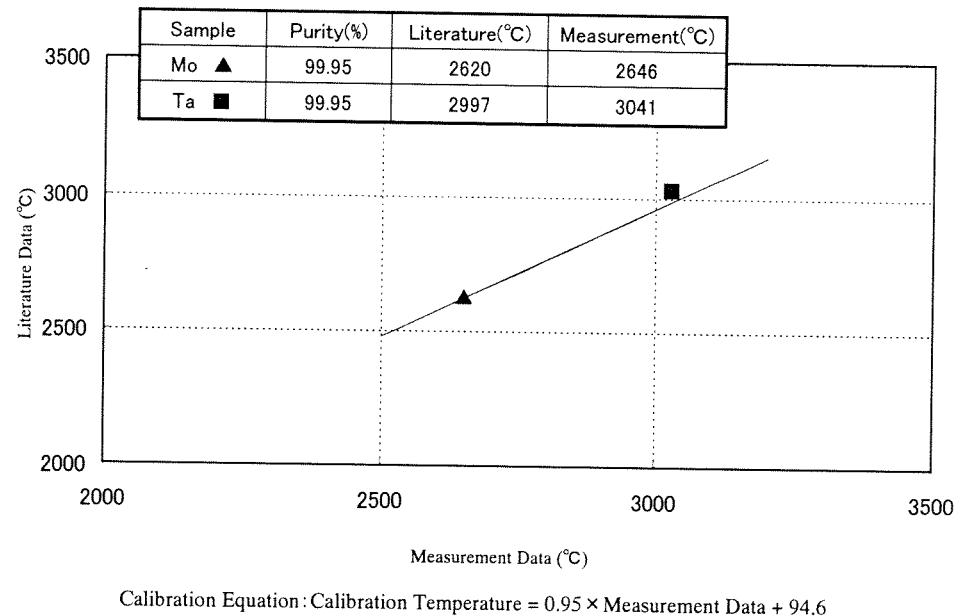
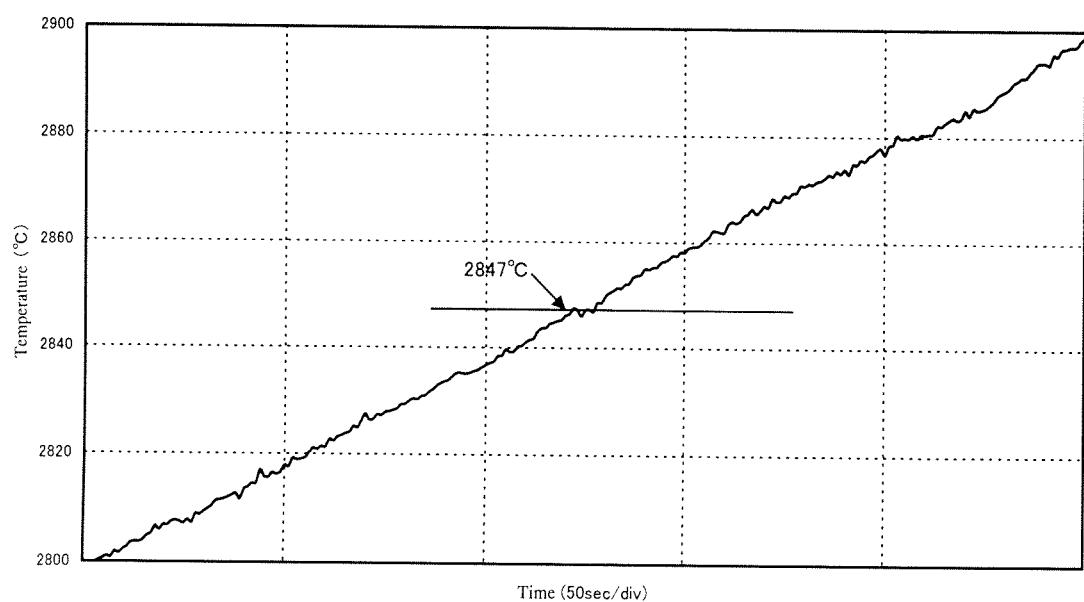


Fig. 16 Temperature Calibration curve for Molybdenum and Tantalum Specimens

Fig.17 Melting Temperature Measurement Result of Un-irradiated UO₂ Pellet

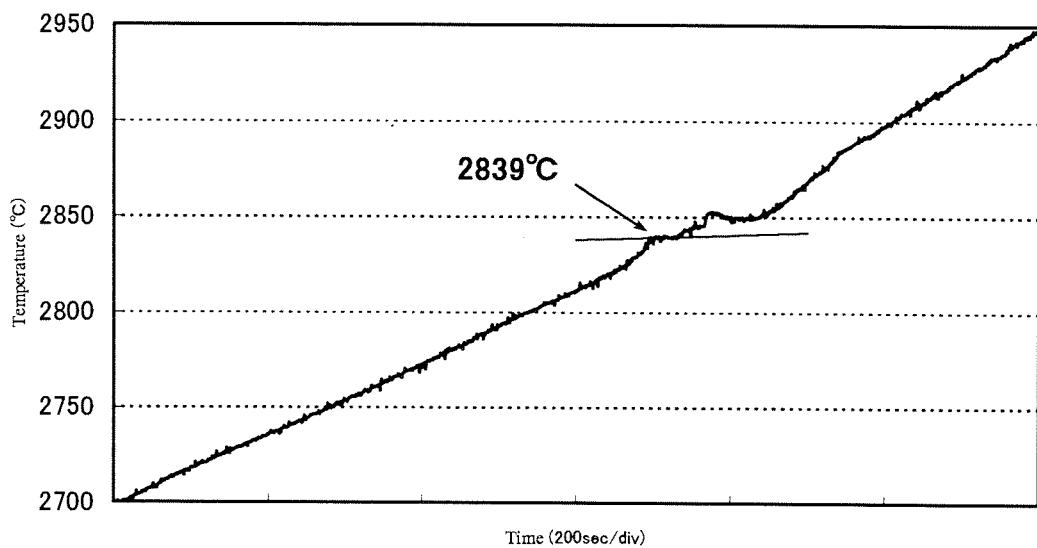


Fig.18 Melting Temperature Measurement Result of Irradiated UO₂ Pellet (Burnup : 30GWd/t)

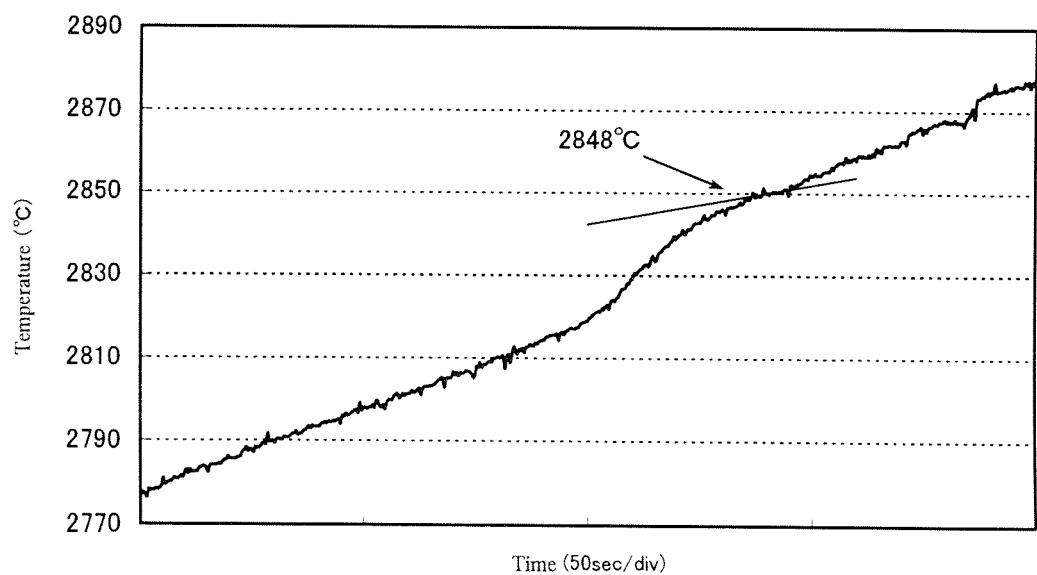


Fig.19 Melting Temperature Measurement Result of Irradiated UO₂ Pellet (Burnup : 45GWd/t)

This is a blank page.

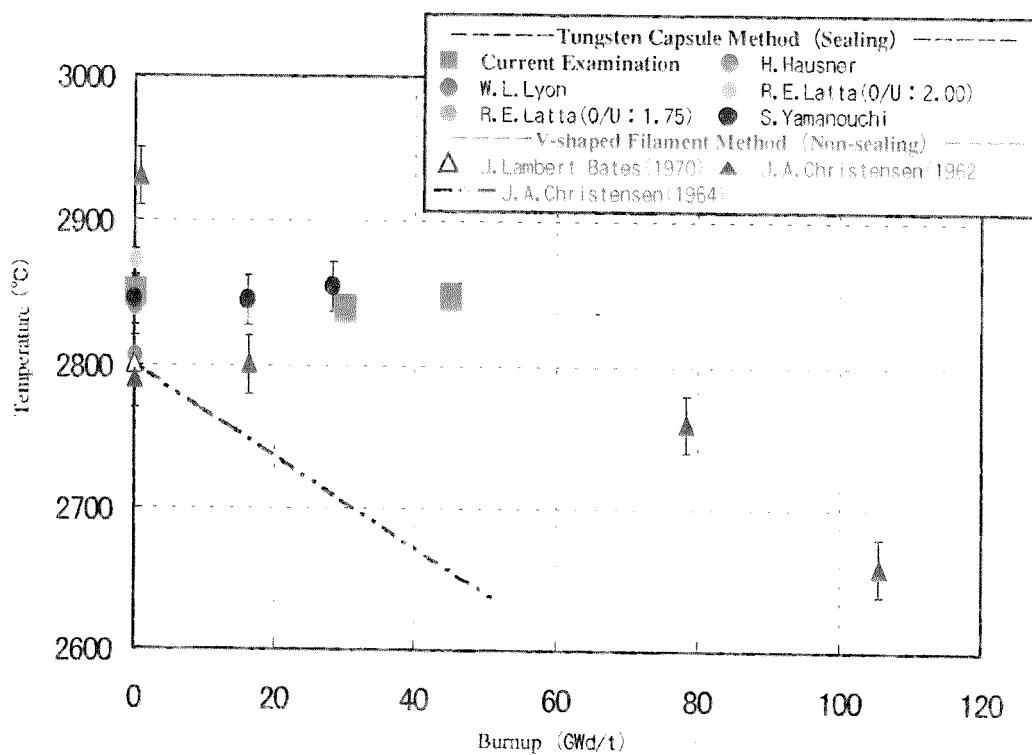
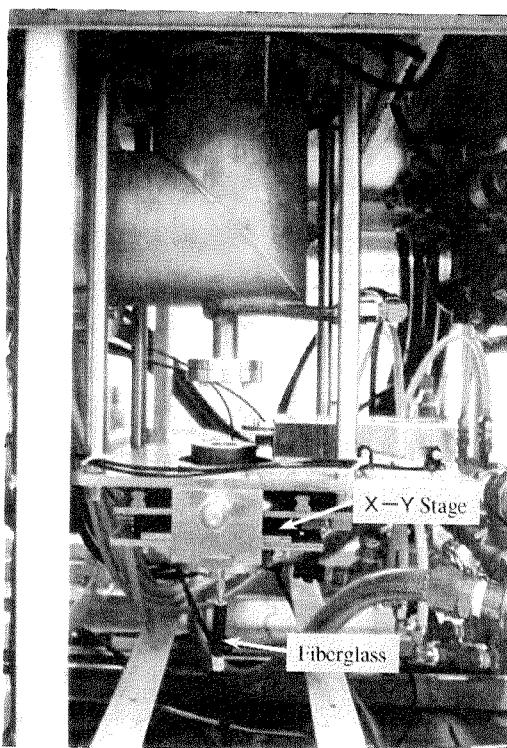
Fig.20 Melting Temperature of Irradiated and Un-irradiated UO₂ Pellet

Photo 1 Light Collector for Temperature Measurement

This is a blank page.

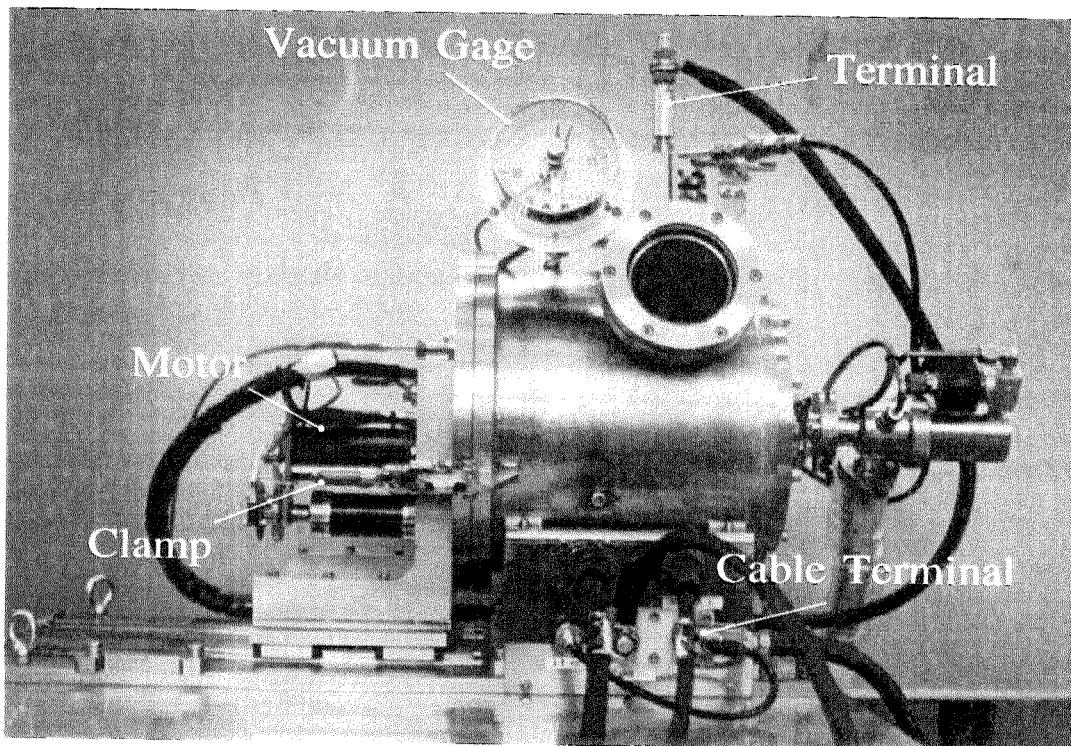


Photo 2 Tungsten Capsule Welding Machine

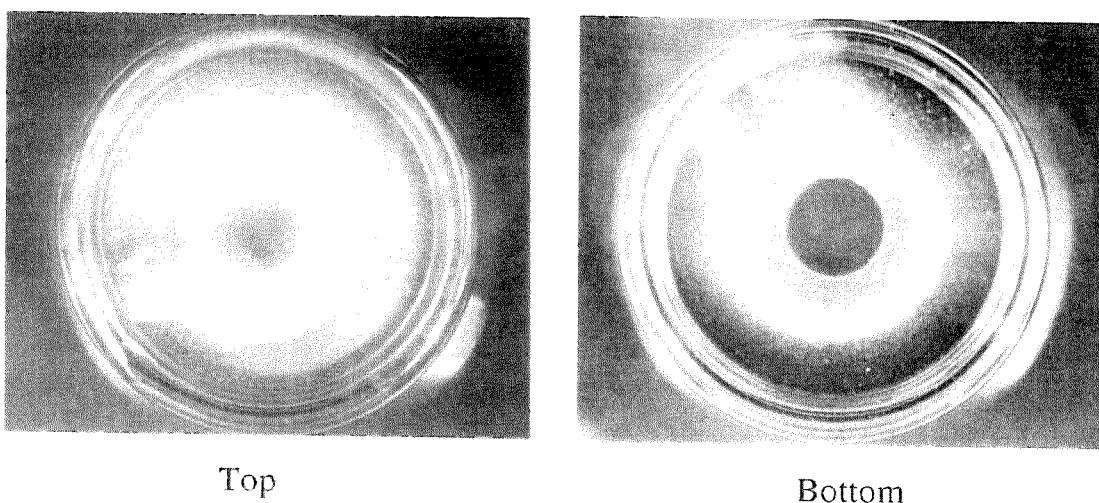


Photo 3 Condition of Tungsten Capsule After Welding

This is a blank page.

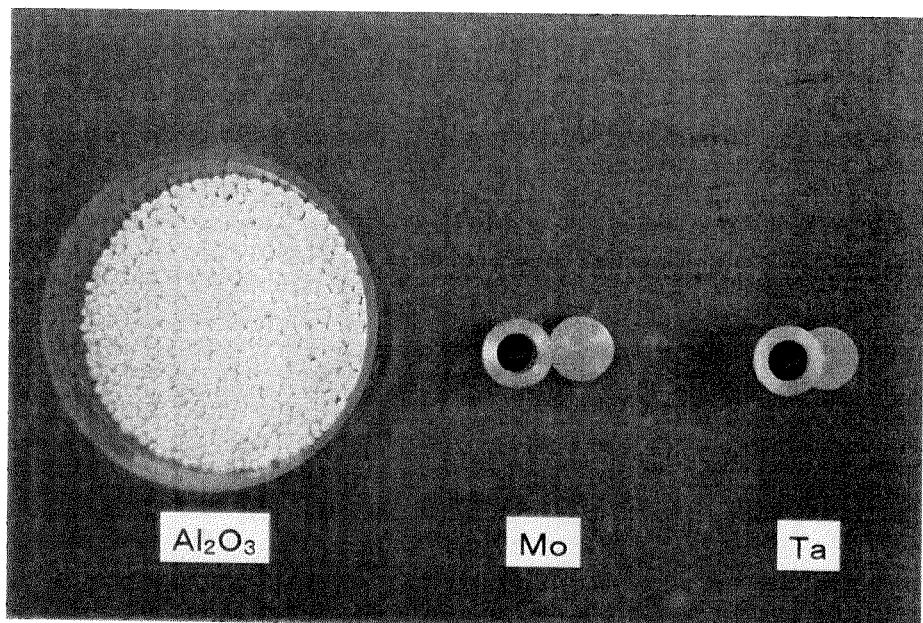


Photo 4 Standard Specimen

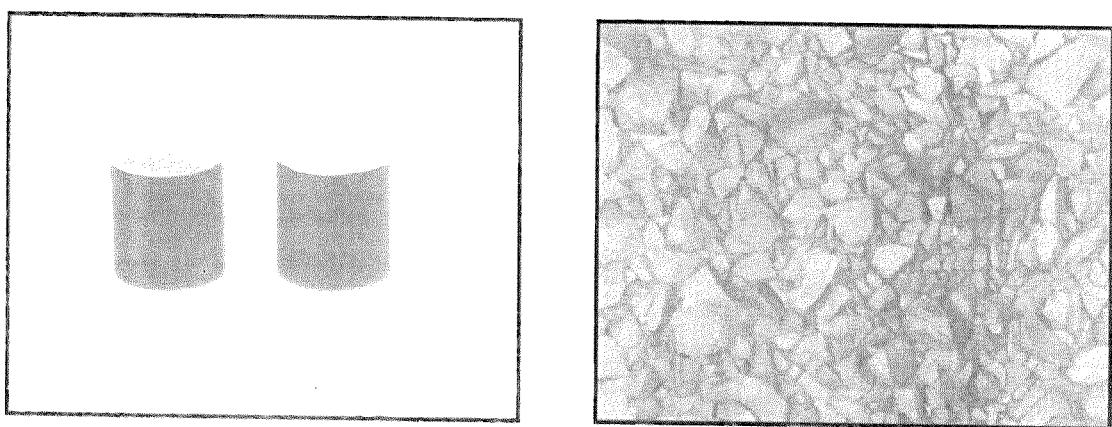


Photo 5 UO₂ Pellet

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光强度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
圧力、応力	ニュートン	N	m·kg/s ²
エネルギー、仕事、熱量	パスカル	Pa	N/m ²
工率、放射束	ジュール	J	N·m
電気量、電荷	ワット	W	J/s
電位、電圧、起電力	クロン	C	A·s
静電容量	ボルト	V	W/A
電気抵抗	アーティム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
ペーゼン	b
ペール	bar
ガル	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラード	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1および1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類される。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barn及び「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
	1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}	= 4.184 J(熱化学)
	9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{19}	= 4.1855 J(15 °C)
	3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}	= 4.1868 J(国際蒸気)
	4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}	仕事率 1 PS(仮馬力)
	1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}	= 735.499 W
	1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1	

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10^{-11}
	3.7×10^{10}	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10^{-4}	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

高燃效低燃耗へ、一歩進みます