

## 振動充填燃料焼結体の熱伝導度測定試験(2)

-熱伝導度測定方法の検討-

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

2003年 2月

ニュークリア・デベロップメント株式会社

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

電話：029-282-1122(代表)  
ファックス：029-282-7980  
電子メール：jserv@jnc.go.jp

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)  
2003

2003 年 2 月

## 振動充填燃料焼結体の熱伝導度測定試験(2)

## - 熱伝導度測定方法の検討 -

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

水野峰雄 高阪裕二 小川伸太

## 要 旨

粒子焼結による振動充填燃料の熱伝導度向上効果を調べるため、粒子焼結体の熱伝導度測定方法の検討を進めている。平成 13 年度は、粒子焼結体の製作条件を把握するための粒子焼結試験を実施した。

本年度は平成 13 年度実施の試験で得られた粒子焼結条件と粒子ネック比の関係をを用いて粒子焼結体を製作し、熱伝導度測定試験後の検査により、ほぼ目標どおりの粒子ネック比の焼結体が得られる事を確認した。

平板比較法熱伝導度測定装置を製作し、ヘリウム雰囲気下において、測定試料平均温度を 800 以上に昇温し、試料肉厚温度差を 50 ~ 250 の範囲で任意に設定できる事を確認した。

標準試料による較正試験により、平板比較法熱伝導度測定装置による熱伝導度測定値の 95%信頼幅(2 $\sigma$ )は $\pm 8\%$ と評価された。

焼結体密度 63%TD の粒子焼結体の温度範囲 800 ~ 1100K における熱伝導度として、1.56 ~ 1.85W/(m $\cdot$ K)の測定結果を得た。粒子焼結体の熱伝導度測定結果については、今後、粒子焼結体の厚さ、充填密度、ネック比等をパラメータとした熱伝導度測定試験により、検証を進めて行くべきものと考えられる。

(今後の課題)

粒子焼結体熱伝導度に及ぼす下記影響因子の把握

粒子ネック比

粒子充填状態(粒子サイズ、サイズ数、充填密度)

粒子焼結体厚さ

雰囲気(ガス種、圧力)

---

本報告書はニュークリア・デベロップメント(株)が核燃料サイクル開発機構との契約により実施した業務成果に関するものである。

機構担当課室：東海事業所 環境保全・研究開発センター

先進リサイクル研究開発部 プルトニウム燃料開発グループ

ニュークリア・デベロップメント(株)

February 2003

Thermal conductivity measurement of sintered Vibro-packed fuel (2)  
- Study on thermal conductivity measurement method -

(Document Prepared by Other Institute, Based on the Contract)

Mineo Mizuno , Yuji Kosaka , Shinta Ogawa

Abstract

The measurement method of the thermal conductivity has been studied on the sintered UO<sub>2</sub> particles bed to investigate the necking effects on the thermal conductivity of the Vibro-packed fuel. In 2002, an experimental study was carried out in order to grasp the sintering condition of UO<sub>2</sub> particles fuel bed.

In this work, disc shaped bed of UO<sub>2</sub> particles were sintered using the creep test equipment in the test conditions determined according to the previous study in 2002, in which the relation between sintering strain and necking ratio was obtained. It is confirmed that the target of the necking ratio is achieved according to the measured results on the ceramography of the sintered UO<sub>2</sub> particles.

The thermal conductivity measurement apparatus is constructed based on the Plate Comparison Method. It is certified that the test sample can be heated up beyond 800 and, the temperature difference of the sample in thickness direction can be controlled in a range of 50 ~ 250 in He atmosphere at 1atm.

The results of characteristic survey of the apparatus indicate that the uncertainties of the thermal conductivity measurements are within  $\pm 8\%$  as 95% confidence limit (2 ) by using the reference material samples.

The experimental results show that the thermal conductivity of the sintered UO<sub>2</sub> particles bed (density:63%T.D.) are in the range of 1.56 ~ 1.85 W/(m•K) at the temperature of 800 ~ 1100K. It is considered that the further parametric survey should be required to evaluate the effects of the sample thickness, density and necking ratio on the thermal conductivity results of the sintered UO<sub>2</sub> particles bed.

(Future tasks)

Survey of the effects of following factors on thermal conductivity of the sintered Vibro-packed fuel bed,

neck ratio between particles

particles packing conditions(Particle size, particle size distribution, density)

thickness of the sintered fuel bed

atmosphere ( gas species , pressure )

---

This work was performed by NDC under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison: Plutonium Fuel Technology Group, Advanced Fuel Recycle Technology Division, Waste Management and Fuel Cycle Research Center, Tokai Works JNC Nuclear Development Corporation.

## 目 次

1 . はじめに	1
2 . 実施内容	1
2.1 試験用粒子の検査	1
2.2 粒子焼結体の製作	2
2.2.1 試験装置	2
2.2.2 試験方法及び条件	2
2.3 熱伝導度測定試験	4
2.3.1 試験装置	4
2.3.2 試験方法及び条件	4
2.4 粒子焼結体の検査	7
2.4.1 比表面積測定	7
2.4.2 重量・厚さ測定	7
2.4.3 粒子ネック比測定	7
3 . 試験結果	21
3.1 試験用粒子の検査	21
3.1.1 SEM 外観	21
3.1.2 比表面積測定	21
3.1.3 O/U 比測定	21
3.1.4 液浸密度測定	21
3.2 粒子焼結体の製作	21
3.2.1 粒子充填高さ及び充填密度	21
3.2.2 粒子充填層温度履歴及び歪量	22
3.2.3 粒子焼結体焼結密度	22
3.2.4 粒子焼結体外観	22
3.3 熱伝導度測定試験	23
3.3.1 標準試料による較正	23
3.3.2 粒子焼結体の熱伝導度測定	24
3.4 粒子焼結体の検査	25
3.4.1 比表面積測定	25
3.4.2 重量・寸法測定	25
3.4.3 粒子ネック比測定	25

4 . 考察 .....	61
4.1 標準試料による較正試験結果について.....	61
4.2 粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果について.....	62
5 . おわりに.....	63
6 . 参考文献.....	64

## 表目次

表 2.1-1	焼結体製作用粒子特性	8
表 2.2-1	クリーブ試験機 装置仕様	9
表 2.2-2	粒子焼結試験条件	10
表 2.3-1	平板比較法熱伝導度測定装置仕様	10
表 2.3-2	カオウル 1700HA ボード (断熱材) の熱伝導度	11
表 2.3-3	標準試料による較正試験用試料一覧	11
表 2.3-4	石英ガラスの熱伝導度	12
表 2.3-5	安定化 $ZrO_2$ ( $Y_2O_3$ 2.4%) の熱伝導度文献データ	12
表 2.3-6	標準試料による較正試験における試料組合せ	13
表 2.3-7	熱伝導度測定試験の実施項目及び試験条件	13
表 3.1-1	粒子焼結体製作用 $UO_2$ 粒子の製造時データ	26
表 3.2-1	粒子焼結体製作試験条件	26
表 3.2-2	粒子焼結体製作試験における歪量測定結果	27
表 3.2-3	粒子焼結体の厚さ及び重量測定結果	27
表 3.3-1	標準試料による較正試験 の測定結果	28
表 3.3-2	標準試料による較正試験 の測定結果	29
表 3.3-3	標準試料による較正試験 の測定結果	30
表 3.3-4	標準試料による較正試験 の測定結果	31
表 3.3-5	粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果	32
表 3.4-1	熱伝導度測定後の粒子焼結体比表面積測定結果	33
表 3.4-2	熱伝導度測定後の粒子焼結体寸法重量測定結果	33
表 3.4-3	粒子焼結体のネック比測定結果	33

図目次

図 2.2-1 クリーブ試験機装置概念図	14
図 2.2-2 粒子焼結試験における試験体構造	15
図 2.2-3 粒子ネック比の焼きしまり歪量依存（評価モデルによる計算値）と 試験データの比較（H13 年度実施の粒子焼結試験結果）	16
図 2.3-1 平板比較法熱伝導測定装置構造	17
図 2.3-2 石英ガラスの熱伝導度の温度依存性	18
図 2.3-3 安定化ジルコニアの熱伝導度の温度依存性	18
図 3.2-1 粒子焼結体製作試験における温度履歴及び歪量変化	34
図 3.2-2 粒子焼結体製作試験における歪量変化の比較	35
図 3.3-1 標準試料による較正試験 における試料温度履歴	36
図 3.3-2 標準試料による較正試験 における試料温度履歴	37
図 3.3-3 標準試料による較正試験 における試料温度履歴	38
図 3.3-4 標準試料による較正試験 における試料温度履歴	39
図 3.3-5 石英ガラスの熱伝導度測定値と計算値の比較	40
図 3.3-6 $ZrO_2$ 熱伝導度測定値と文献値の比較	41
図 3.3-7 厚さの異なる $ZrO_2$ 試料の熱伝導度測定値と文献値の比較	42
図 3.3-8 粒子焼結体の熱伝導度測定試験における試料温度履歴	43
図 3.3-9 粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果	44



## 写真目次

写真 2.3-1	ZrO <sub>2</sub> (4mmt) 試料外観	19
写真 2.3-2	ZrO <sub>2</sub> (5mmt) 試料外観	19
写真 2.3-3	石英ガラス(4mmt、グラファイト・コーティング) 試料外観	20
写真 3.1-1	粒子焼結体製作用粒子の SEM 外観	45
写真 3.2-1	粒子焼結体製作試験後のダイス内粒子充填層外観	46
写真 3.2-2	ダイス取外し後の粒子焼結体外観	46
写真 3.2-3	試験後の粒子焼結体外観	47
写真 3.2-4	粒子焼結体からの脱落粒子外観	47
写真 3.2-5	斜め上方より観察した粒子焼結体外観	48
写真 3.2-6	粒子焼結体側面外観	48
写真 3.2-7	直上方向より観察した粒子焼結体上面	49
写真 3.2-8	直上方向より観察した粒子焼結体下面	49
写真 3.3-1	熱伝導度測定試験前の中間均熱板外観	50
写真 3.3-2	熱伝導度測定試験前の粒子焼結体外観	50
写真 3.3-3	熱伝導度測定試験前の上部均熱板外観	50
写真 3.3-4	熱伝導度測定試験前の上部加熱ヒーター外観	51
写真 3.3-5	熱伝導度測定試験前の上部断熱材外観	51
写真 3.3-6	熱伝導度測定試験後の上部断熱材外観	52
写真 3.3-7	熱伝導度測定試験後の上部加熱ヒーター外観	52
写真 3.3-8	熱伝導度測定試験後の上部均熱板外観	52
写真 3.3-9	熱伝導度測定試験後の粒子焼結体外観	53
写真 3.3-10	熱伝導度測定試験後の中間均熱板外観	53
写真 3.3-11	熱伝導度測定試験後の粒子焼結体上面	54
写真 3.3-12	熱伝導度測定試験後の粒子焼結体下面	54
写真 3.3-13	熱伝導度測定試験後の粒子焼結体側面	54
写真 3.4-1	熱伝導度測定試験後の粒子焼結体 (縦断面、径方向中心近傍) 金相写真	55
写真 3.4-2	熱伝導度測定試験後の粒子焼結部 (縦断面) 金相写真(1)	56
写真 3.4-3	熱伝導度測定試験後の粒子焼結部 (縦断面) 金相写真(2)	57
写真 3.4-4	熱伝導度測定試験後の粒子焼結体 (横断面、肉厚中心近傍) 金相写真	58
写真 3.4-5	熱伝導度測定試験後の粒子焼結部 (横断面) 金相写真(1)	59
写真 3.4-6	熱伝導度測定試験後の粒子焼結部 (横断面) 金相写真(2)	60

## 1. はじめに

粒子充填燃料は炉内において長時間高温に保たれるため、初期状態である点接触の状況から、焼結によって粒子間の接触面積が増え、面接触の状態(粒子間ネッキングの状態)に移行すると考えられる。燃料粒子と充填ガスの熱伝導度は前者の方が1桁ほど大きいいため、粒子間ネッキングは燃料の実効的な熱伝導度を大きくし、燃料中心の温度を低下させる効果があると考えられる。

そこで、本熱伝導度測定試験においては粒子充填層のネッキングの状態が異なる試料を作製し、実効的な熱伝導度を測定することによりネッキングと熱伝導度の相関を求める。

しかしながら、焼結した充填体の熱伝導度測定手法は測定対象に合わせて検討する必要があり、試験における開発要素として下記が挙げられる。

- (1) ネッキングの異なる熱伝導度測定用試料調製
- (2) ネッキングした充填体の熱伝導度測定方法の検討

熱伝導度測定試験は下記の3段階に分け、本年度の試験においては 2)の項目を二酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)球状粒子を用いて実施する。

- 1) 熱伝導度測定試料作製方法の検討
- 2) 粒子充填燃料焼結体の熱伝導度測定手法の検討
- 3) 粒子充填燃料焼結体の熱伝導度測定

## 2. 実施内容

### 2.1 試験用粒子の検査

転動造粒法により作製した試験用 UO<sub>2</sub> 球状粒子について、以下の試験を実施する。

SEM による外観観察

ふるい分級

比表面積測定

液浸密度測定

O/M 比測定

これらの試験により、下記性状を含む粒子特性を確認する。

- ・ 粒子径: 10 ~ 1000  $\mu\text{m}$  の範囲内で選択した 1 種類の平均粒子径に対して、粒径変動幅が  $\pm 20\%$ 以内である事。
- ・ 粒子の焼結密度平均値が 93%TD 以上である事。
- ・ O/M 比が  $2.00 \pm 0.01$  の範囲にある事
- ・ 粒子の直径と短径の比が 1.5 以内である事

試験に使用する球状  $\text{UO}_2$  粒子を 表 2.1-1 に示す。

## 2.2 粒子焼結体の製作

### 2.2.1 試験装置

粒子焼結体製作には図 2.2-1 に測定装置概念図を示す H13 年度試験と同一のクリープ試験機を使用する。表 2.2-1 にクリープ試験機の装置仕様を示す。 $\text{UO}_2$  球状粒子を充填する焼結試験治具の構造・寸法及び材質を 図 2.2-2 に示す。

粒子充填層上面と上部圧縮板の間に入れたタングステン固着防止板については固着防止板とダイスの間隙を極力小さくするため、加工精度の高い放電加工法 ( $\pm 0.1\text{mm}$ ) により製作する。

### 2.2.2 試験方法及び条件

表 2.1-1 の粒子及び 2.2.1 節 に示した試験装置 を用いて充填体を作成し、粒子焼結体を作成する。主要な試験条件は 表 2.2-2 に示すが、雰囲気、試験温度ならびに初期負荷応力条件は H13 年度試験で使用したものと同一とし、目標焼きしまり歪量は H13 年度試験結果<sup>1)</sup>として得られた粒子ネック比と焼きしまり歪量の関係(図 2.2-3)より、粒子ネック比が約 40% になると推定される、約 5% に設定した。

粒子充填量: 29g では、充填率を約 65%、粒子焼結密度: 96%TD 及び理論密度:  $10.96\text{g}/\text{cm}^3$  を仮定した場合の充填層体積: 3.5cc より、充填高さは 約 6mm と概算され、粒子中間粒径: 約 550  $\mu\text{m}$  より、粒子充填層数は 12 層程度になると推定された。粒子焼結試験手順を以下に示す。

#### 焼結試験治具への粒子充填

$\text{UO}_2$  球状粒子を焼結試験治具内(内径: 30.1mm) に約 6mm の厚さとなると概算された 29g を充填し、上部圧縮版を載せた状態で、ハンマーによるダイス外周のタッピングを行う。タッピング 10 回毎に充填高さを上部圧縮版上面の 90° 間隔での 4 点で測定しながら、充填高さが有意に変化しなくなるまでタッピングを行い、充填高さ測定値(充填層体積)、粒子焼結密度、理論密度:  $10.96\text{g}/\text{cm}^3$  より充填率を算出し、充填率が 60% 以上である事を確認する。

充填高さ測定にはマイクロメータ ( $\pm 0.01\text{mm}$ ) を使用する。

#### 焼結試験治具のセット

$\text{UO}_2$  球状粒子を充填した焼結試験治具をクリープ試験機にセットし、雰囲気を  $\text{UO}_2$  の化学量論比が変化することのない安全ガス ( $\text{Ar} - 5\%\text{H}_2$ ) に置換し一定流量 ( $\sim 80\text{cc}/\text{min}$ ) でガスフローさせる。

#### 昇温

粒子焼結体を所定試験温度まで昇温する。試験温度における荷重負荷時間を正確に把握するため、試験体昇温中は荷重負荷用重錘を荷重除荷装置によりリフトアップする事により、試験体への荷重負荷を行わない。

(昇温中の試験体負荷荷重は焼結試験体上面に置く治具重量:約 215g のみ。)

#### 荷重負荷

試験温度到達後、粒子焼結体に所定の軸方向圧縮荷重を負荷し軸方向歪量を測定、記録する。

荷重負荷は、荷重除荷装置でリフトアップする事により除荷していた重錘を電動で低速で降下させる事により、粒子焼結体に衝撃が加わらない様に行う。

荷重負荷初期歪量は、レコーダー上で荷重負荷後の歪量変化を観察し、歪量が時間に対する比例関係より離れ、増大速度が小さくなり始めた時点における歪量(デジタル計読取値)とした。

#### 歪量変化測定

焼結試験では上記の試験温度、荷重条件下での粒子充填体高さ歪量の経時変化測定を、H13 年度試験結果よりネック比が約 40%になると推定される焼きしまり歪量(約 5%)に到達するまで実施し、所定歪量到達後に荷重負荷を中止し、降温を開始する。

焼きしまり歪量は、全歪量と荷重負荷初期歪量の差より求めた。

#### 焼結試験治具取出

室温までの試験体降温後、焼結試験治具をクリープ試験機から取出した上、粒子焼結体を焼結試験治具より取り外す。

#### 粒子焼結体特性データ取得

粒子焼結体の外観を観察した後、寸法測定を行い、焼結体厚さが粒子直径の 7 倍以上である事を確認する。

下記 2.3 の熱伝導度測定試験後に粒子焼結体が入る大きさのガラス容器を使用して比表面積を測定する。さらに金相断面観察によるネック比測定を実施する。

## 2.3 熱伝導度測定試験

### 2.3.1 試験装置

測定試験で使用した、平板比較法熱伝導度測定装置の構造配置を図 2.3-1、装置仕様を表 2.3-1 に示す。本装置では平板比較法(定常法)を使用し、熱電対を中央部に装着した 3 枚の Mo 製均熱板の間に熱伝導度既知の試料および測定試料を挟んで重ね、上面及び下面のヒーター加熱量の差により、試料肉厚方向の定常熱流を作り出し、下式により測定試料の熱伝導度を決定するものである。断熱材には 1700 までの耐熱性を有する、セラミック・ファイバー(カオウール 1700HA ボード)を使用した。断熱材熱伝導度(カタログ値)を表 2.3-2 に示すが、600~800 における熱伝導度は He ガス熱伝導度<sup>2)</sup>の約 1/3 となっている。

$$k_2 = k_1 \cdot (L_2 / L_1) \cdot (T_1 / T_2) \quad (2.3-1)$$

$k_1$  : 熱伝導度既知試料の熱伝導度 (W/(m・K))

$k_2$  : 測定試料の熱伝導度 (W/(m・K))

$L_1$  : 熱伝導度既知試料の肉厚(m)

$L_2$  : 測定試料の肉厚(m)

$T_1$  : 熱伝導度既知試料の肉厚方向温度差 (K)

$T_2$  : 測定試料の肉厚方向温度差 (K)

本装置では雰囲気ガスの対流による熱の散逸を抑えるため、上部ヒーターを高温側、下部ヒーターを低温側とし、下部ヒーターの下方にはヒートシンクを設けた。また試料外側には試料径方向表面温度と同一温度に保つことにより径方向の熱移動を抑制するためのガードヒーターを設けた。

図 2.3-1 中に示したように、熱電対は熱伝導度既知試料及び測定試料の肉厚温度差を測定するための均熱板(3枚)の中央部に装着したほか、均熱板内の径方向温度差を測定するため、熱伝導度既知試料と測定試料の間に位置する均熱板の外周部の 1カ所に装着した。またガードヒーター内面に、ガードヒーター内面温度調整用の熱電対を装着した。

各熱電対指示温度(5点)は測定時間 10 秒毎に、同時にデジタルレコーダーに記録した。

### 2.3.2 試験方法及び条件

#### 1) 標準試料による較正

試験に使用した較正用試料一覧を表 2.3-3 に、試料外観写真を写真 2.3-1~写真 2.3-3 に示す。試験には熱伝導度既知の標準試料として、石英ガラス(高純度溶融石英ガラス、住金石

英製) を直径 30mm、高さ 4mm の円板に加工したものを使用した。石英ガラスには熱輻射による熱移動を防止するため、上面および下面にグラファイト・コーティングを施した。石英ガラスの熱伝導度の温度依存データを表 2.3-4 に示す。表 2.3-4 のデータは、800K における石英ガラスの熱伝導度文献値<sup>3)</sup> 2.17 (W / (m·K)) に近い値となっている。表 2.3-4 のデータより作成した石英ガラス熱伝導度の温度依存式を以下に、またその温度依存性を図 2.3-2 に示す。

$$k_G = 4.24 \times 10^{-7} \cdot T^2 + 8.49 \times 10^{-4} \cdot T + 1.40 \quad (2.3-2)$$

但し、 $k_G$  : 石英ガラス熱伝導度 (W / (m·K))

T : 温度 ( )

測定対象試料には、上記標準試料と同一材質および形状寸法の石英ガラス、および熱伝導度として同種材料の文献値を使用できる安定化 ZrO<sub>2</sub> [ 5.5 wt% (3.0 mol%) Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ] を使用した。測定 ZrO<sub>2</sub> 試料と同一の酸化物 [ 2.4wt% (1.4 mol%) Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ] を添加した安定化 ZrO<sub>2</sub> の熱伝導度文献値<sup>3)</sup>を表 2.3-5 に示す。

表 2.3-5 のデータをもとに作成した安定化 ZrO<sub>2</sub> の熱伝導度の温度依存式を (2.3-3)式に、温度依存性を 図 2.3-3 に示す。

$$k_Z = 5.49 \times 10^{-7} \cdot T^2 - 1.54 \times 10^{-3} \cdot T + 3.18 \quad (2.3-3)$$

但し、 $k_Z$  : ZrO<sub>2</sub> 熱伝導度 (W / (m·K))

T : 温度 ( )

表 2.3-6 に、熱伝導度測定試験で使用した標準試料 / 測定試料の組合せ及び測定目的を示す。

試験では振動充填燃料が実際に使用される条件となる、He ガスを雰囲気として使用した。He ガスの圧力は 1atm とした。

熱伝導度測定時の試料温度は、500 ~ 800 で 100 間隔で 4 レベルに設定し、試料肉厚温度差は 50 に設定した。標準試料による較正の試験手順を下記に示す。

#### 標準試料のセット

熱伝導度既知試料 (例: 石英ガラス、ZrO<sub>2</sub> 等) を熱伝導度測定装置試験体部の標準試料及び未知試料部に組み込み、熱電対及びヒーター配線接続を確認する。

#### 雰囲気置換

ベルジャーの蓋を閉め、真空ポンプによりベルジャー内を排気した上、真空度  $1 \times 10^{-2}$  torr を確認した上で、He ガスで置換する。

#### 測温記録開始

レコーダーによる熱電対指示値の記録を開始する。

#### 試料加熱ヒーター昇温

試料加熱ヒーター(上下)への通電加熱により試料平均温度及び肉厚温度差を調整する。

#### ガードヒーター昇温

ガードヒーターへの通電によりガードヒーター内面温度を上昇させ、下部均熱板中心温度と同一となるように調整する。

#### 定常状態到達の確認

各熱電対指示値の1分間の変化が1以内となった時点で定常状態に到達したものとし、到達時刻を記録する。

## 2) 粒子焼結体の熱伝導度測定

2.2 で作製した粒子焼結体の熱伝導度を測定する。測定は不活性ガス(He)雰囲気中で実施し、熱伝導度は500~1000の間で2水準、試料中の温度差を5倍程度変化させた2水準で合計3点測定する。使用する測定機の熱流方向及び熱流に垂直な平面上に生じた温度分布を計測し、試料内部に生じた温度分布を見積もる。主要な試験条件は表2.3-7にまとめた。

粒子焼結体の熱伝導度測定試験の手順を以下に示す。

#### 標準試料及び粒子焼結体のセット

熱伝導度既知試料及び粒子焼結体を平板比較法熱伝導度測定装置の試験体部に組み込み、熱電対及びヒーター配線接続を確認する。

#### 雰囲気置換

ベルジャーの蓋を閉め、真空ポンプによりベルジャー内を排気し、真空度が $1 \times 10^{-4}$  torr以上となった事を確認した上、Heガスで置換する。

#### 測温記録開始

レコーダーによる熱電対指示値の記録を開始する。

#### 試料加熱ヒーター昇温

試料加熱ヒーター(上下)への通電加熱により試料平均温度及び肉厚温度差を調整する。

#### ガードヒーター昇温

ガードヒーターへの通電によりガードヒーター内面温度を上昇させ、中間均熱板外周温度と同一となるように調整する。

#### 定常状態到達の確認

各熱電対指示値の1分間の変化が1以内となった時点で定常状態に到達したものとし、到達時刻を記録する。

## 2.4 粒子焼結体の検査

熱伝導度測定試験後の粒子焼結体について下記項目の検査を行う。

### 2.4.1 比表面積測定

粒子焼結体の比表面積測定は焼結前粒子の比表面積との比較により、粒子焼結による比表面積の変化を把握するために実施する。

測定には比表面積測定装置 (BET) を使用し、粒子焼結体が入る内径 35mm のガラス容器を使用して行う。

### 2.4.2 重量・厚さ測定

熱伝導測定後の粒子焼結体の重量および厚さ測定し、測定試験前後での変化の有無を調べる。

重量測定には電子天秤を使用する。粒子焼結体の厚さは、マイクロメータにより、粒子焼結体の中心及び外周部(90°間隔で4点)の計5カ所の平均により求める。

### 2.4.3 粒子ネック比測定

粒子焼結体の外観及び金相観察を行い、粒子の割れの有無、充填状態及び焼結状態の均一性を確認し、熱流方向に生じたネック比を測定する。

粒子ネック比を算出するための粒子直径は縦断面金相写真(上面近傍、中間、下面近傍、倍率:x50)において最も焼結が進んだ粒子焼結部の粒子直径を使用する。焼結部の幅は上記焼結部を倍率:x150で撮影した写真上で測定する。

粒子直径は片側の粒子が変形している場合には形状が円形に近い粒子、また大きさの異なる粒子が焼結している場合には大きい側の粒子について、焼結部を外した直交する2方向の直径測定値を平均してもとめる。



表 2.1-1 焼結体製作用粒子特性

粒子 No	粒径 ( $\mu\text{m}$ )	充填粒子重量(g)	密度(%TD)	比表面積 ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	備考
粒子	500~600 粒径中間値 : 550 $\mu\text{m}$	29.0	96.2	0.006	ネック比: 約 40%を 目標
参考	500~600 粒径中間値 : 550 $\mu\text{m}$	24.0	93.8	0.005	H13 年度 予備試験 に使用
	425~500 粒径中間値 : 463 $\mu\text{m}$	24.0	94.9	0.005	H13 年度 本試験に 使用

表 2.2-1 クリープ試験機 装置仕様

項目	仕様	備考
最大負荷容量	3000kg 縦型単テコ荷重式 レバー比 1:10	荷重精度：±0.5%
試料加熱方式	タングステンヒーター抵抗 加熱	ヒーター出力：200V 40Kw
試料最高加熱温度	1800	均熱性：軸方向 20mm の範囲で±20
試料加熱雰囲気	不活性ガス (Ar, N <sub>2</sub> , He), 安全ガス	ガス流量計目盛：10 ~ 100cc/min
炉内温度測定方式	熱電対 (W-W/Re) または 放射温度計 (DGS500 デジ スコプ) 切替方式	試験温度が熱電対 (W-W/Re) の測温上限値 (~2300 , 測温 精度：±1%) を上回る場合に 放射温度計 (測温範囲：600 ~ 3000 ) を使用。 炉内の均温性 (軸方向 20mm の範囲で±20 以内) は、複数 (Max : 3 本) の熱電対により 測定。
試料温度制御方式	プログラム調節計 によるヒーター電力制御	サイリスタ電力調節器
変位測定装置	リニアゲージによる圧縮板 間距離測定方式	測定レンジ：0 ~ ±5mm , 0 ~ ±2mm , 0 ~ ±1mm , 0 ~ ±0.5mm の 4 段階 測定精度：レンジフルスケルの ±1% (最小レンジで ±10 μm)
試料温度及び変位記録 方法	チャートレコーダー	

表 2.2-2 粒子焼結試験条件

項目	粒子充填量(g)	試験雰囲気及び流量(cc/min)	試験温度( )	初期負荷応力(MPa)	目標ネック比(%)	目標焼きしまり歪量(%)	試験時間(min)	備考
粒子焼結体製作	約 29.0	Ar+5%H <sub>2</sub> 約 80	1700	7	約 40	約 5	-	熱伝導度測定用

表 2.3-1 平板比較法熱伝導度測定装置仕様

項目	仕様	備考
試料加熱方式	抵抗ヒーター加熱	試料上部/下部加熱ヒーター： 15V - 300W、 ガードヒーター：100V - 1kW
試料最高温度	~ 1000	測定試料を高温側に配置
試料加熱雰囲気	不活性ガス ( Ar または He )	max 1 気圧
温度測定方式	熱電対 ( PR13 : Pt-Pt/Rh )	熱電対数 ( 5 本 )
試料温度制御方式	プログラム調節計 によるヒーター電力制御	サイリスタ電力調節器
試料温度記録方法	デジタルレコーダー	

表 2.3-2 カオウール 1700HA ボード(断熱材)の熱伝導度

温度 ( )	熱伝導度(W/ ( m・K ) )	備考
200	0.05	He ガス熱伝導度 <sup>2)</sup> 800K - 0.307 (W/m・K) 1000K - 0.363 (W/m・K)
600	0.10	
800	0.12	
1000	0.15	
1200	0.17	

( 600 以下は、カオウールボード共通の熱伝導度 )

表 2.3-3 標準試料による校正試験用試料一覧

No	試料名	形状寸法	備考
1	石英ガラス	30mm × 4mmt	測定試料 / 標準試料 (2 枚) 肉厚実測値 : 4.03mm
2	ZrO <sub>2</sub>	30mm × 4mmt	測定試料 / 標準試料 (2 枚) 肉厚実測値 : 4.03mm
3	ZrO <sub>2</sub>	30mm × 5mmt	測定試料 (肉厚の影響確認用 1 枚) 肉厚実測値 : 5.03mm

表 2.3-4 石英ガラスの熱伝導度

温度( )	熱伝導度 ( W/(m/K) )
0	1.32
100	1.49
200	1.63
300	1.74
400	1.84
500	1.95
600	2.07
700	2.20
800	2.33
900	2.45
1000	2.58
1100	2.79
1200	3.16

表 2.3-5 安定化 ZrO<sub>2</sub> (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:2.4%)の熱伝導度文献データ<sup>3)</sup>

温度 ( )	熱伝導度(W/ ( m · K) )
27	3.10
227	2.95
527	2.45
927	2.25
1427	2.10

表 2.3-6 標準試料による校正試験における試料組合せ

試験 No	標準試料名	測定試料	目的
	石英ガラス (4mmt)	石英ガラス (4mmt)	測定値の信頼性評価 (同一材料)
	石英ガラス (4mmt)	ZrO <sub>2</sub> (4mmt)	測定値の信頼性評価 (異種材料)
	ZrO <sub>2</sub> (4mmt)	ZrO <sub>2</sub> (4mmt)	肉厚の影響確認
	ZrO <sub>2</sub> (4mmt)	ZrO <sub>2</sub> (5mmt)	肉厚の影響確認

表 2.3-7 熱伝導度測定試験の実施項目及び試験条件

項目	測定試料	実施内容	測定試料肉厚方向温度中央値 ( )	標準試料および測定試料の肉厚温度差合計( )
標準試料による 校正試験	熱伝導度既知の 固体材料 (標準試料)	平板比較法による熱伝導度測定の測定精度評価	約 540 ~ 840	50
熱伝導度測定試験	粒子焼結体	粒子焼結体の熱伝導度測定	約 625	50
			約 725	250
			約 825	50

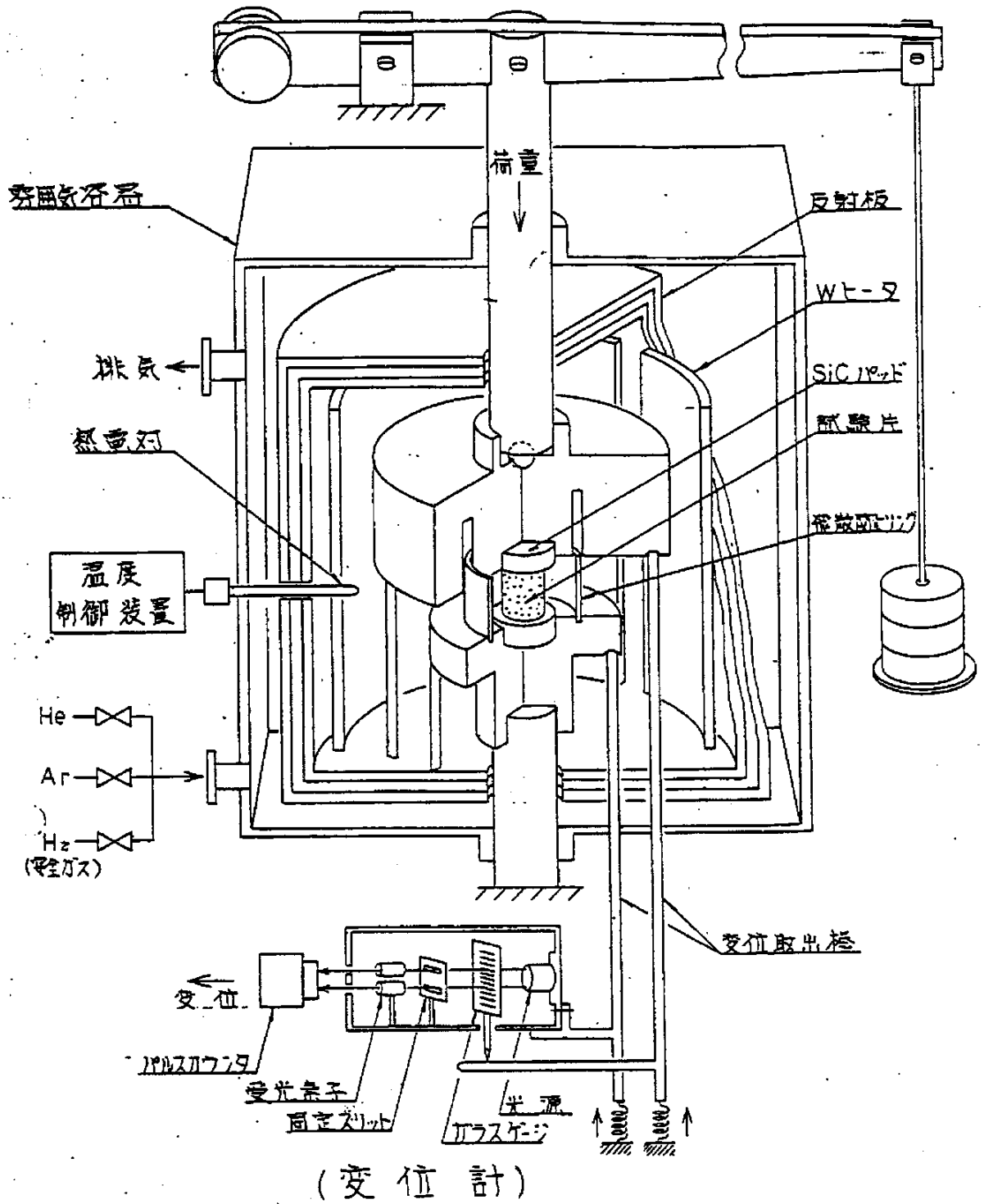
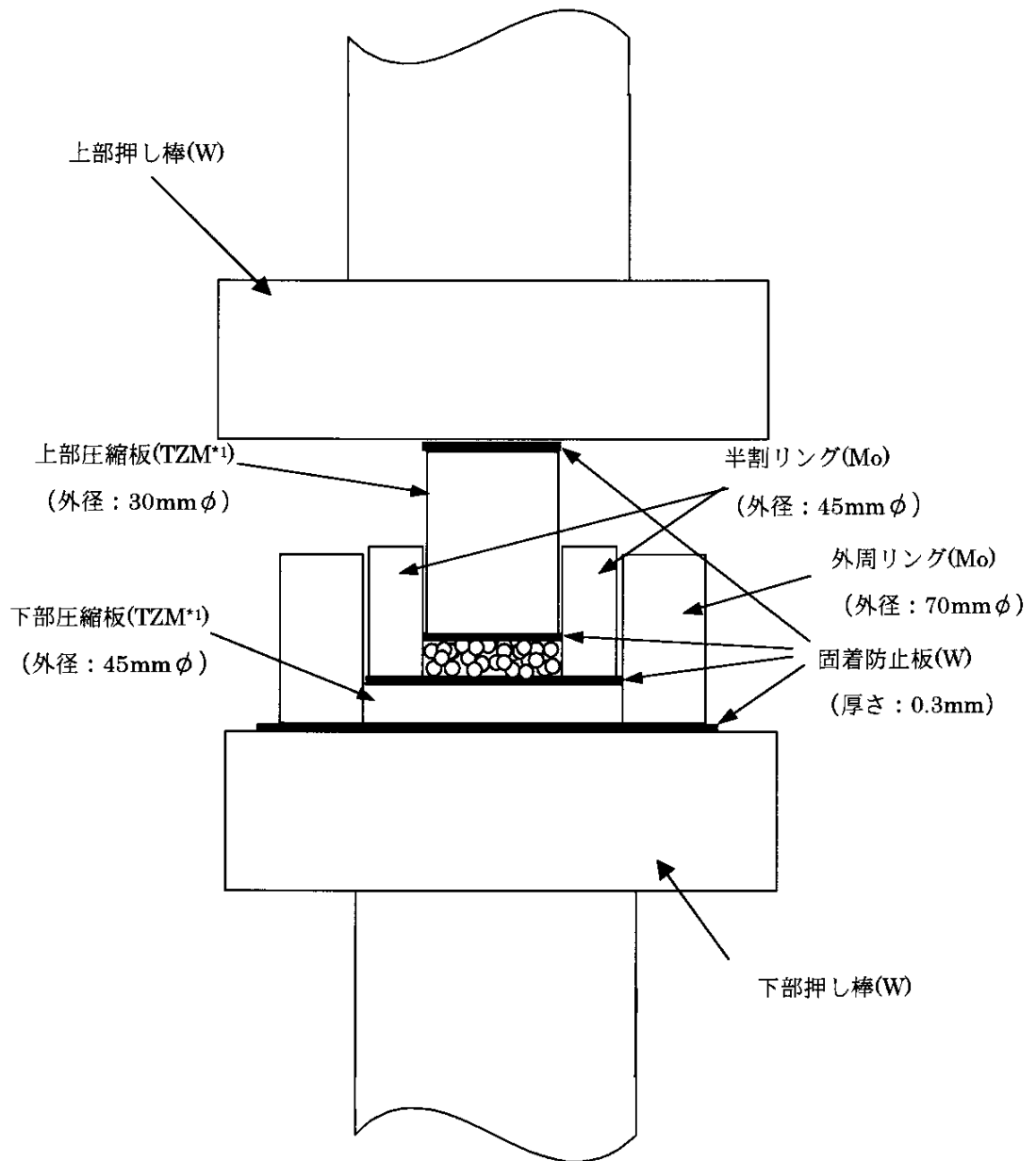


図 2.2-1 クリープ試験機装置概念図



\*1 Mo に 0.5 wt% Ti、0.08 wt% Zr を添加した固溶強化型 Mo

図 2.2-2 粒子焼結試験における試験体構造



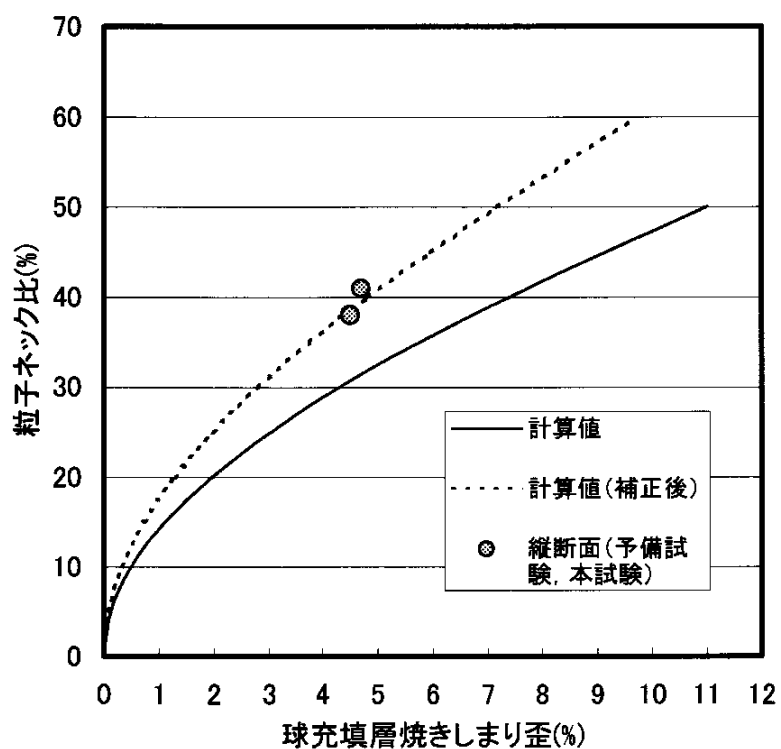


図 2.2-3 粒子ネック比の焼きしまり歪量依存 (評価モデルによる計算値) と試験データの比較 (H13 年度実施の粒子焼結試験結果)

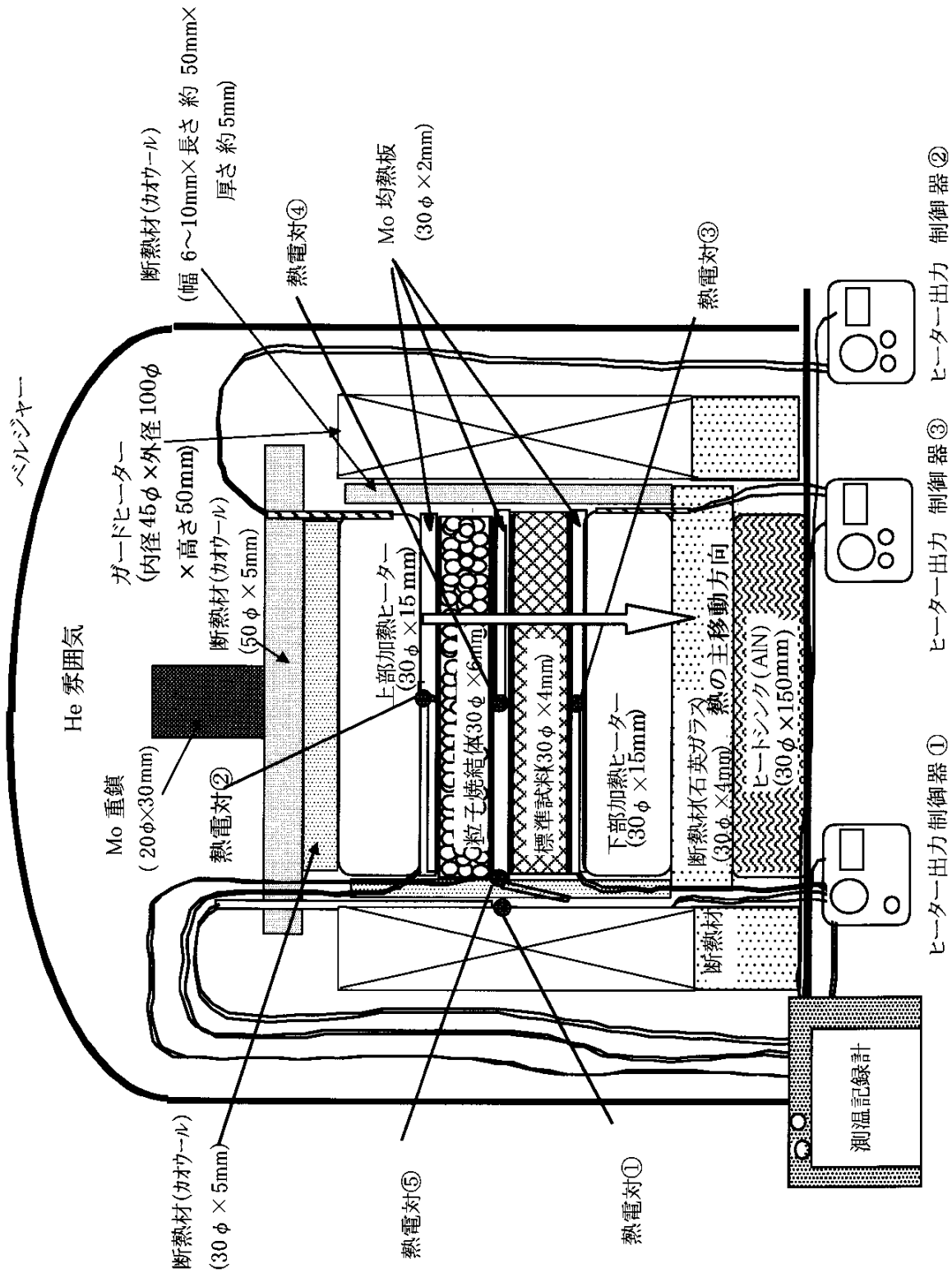


図 2.3-1 平板比較法熱伝導度測定装置構造

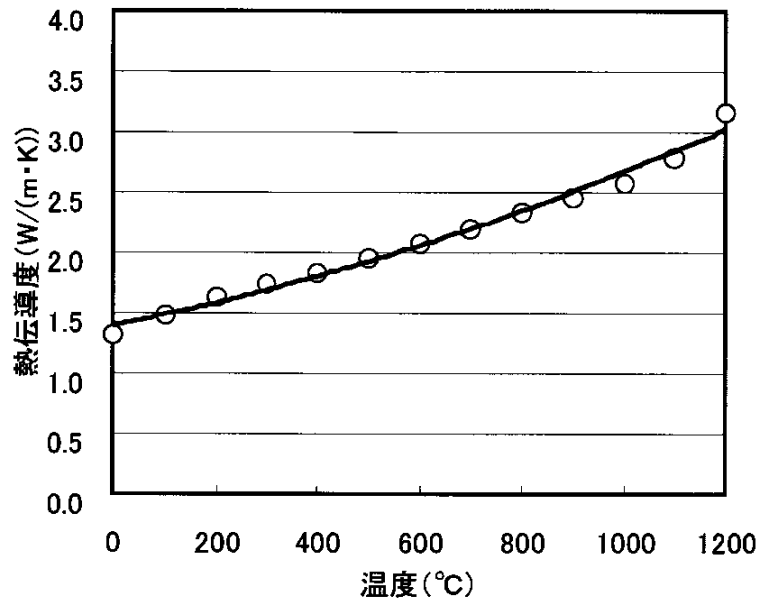


図 2.3-2 石英ガラスの熱伝導度の温度依存性

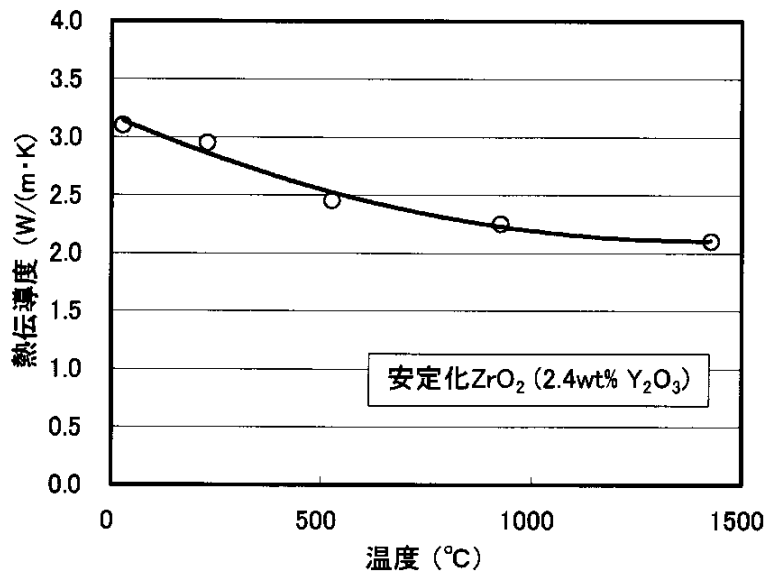


図 2.3-3 安定化ジルコニアの熱伝導度の温度依存性

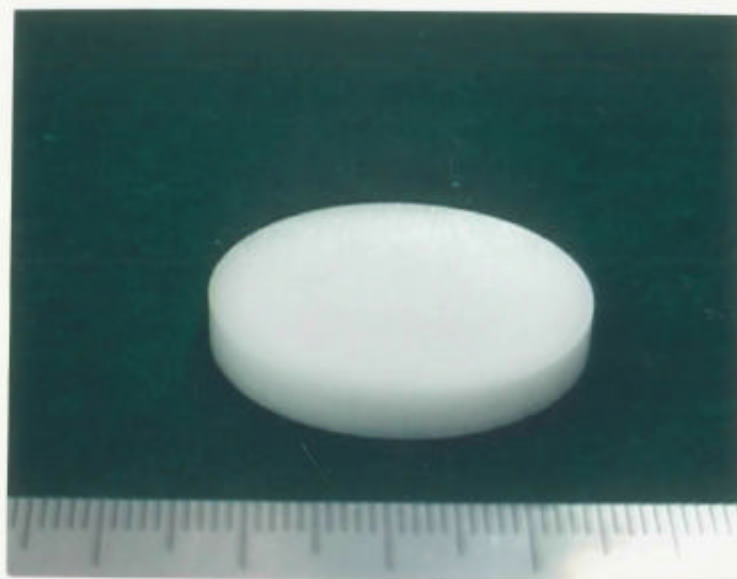


写真 2.3-1 ZrO<sub>2</sub> (4mmt) 試料外観

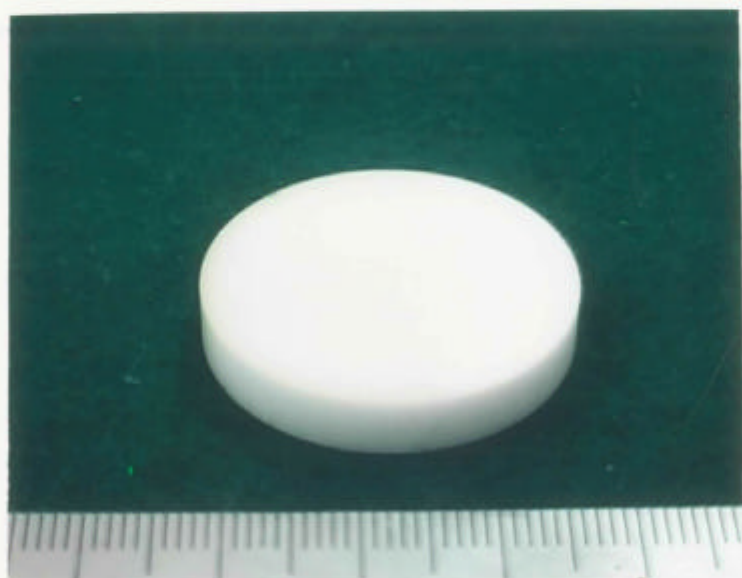


写真 2.3-2 ZrO<sub>2</sub> (5mmt) 試料外観

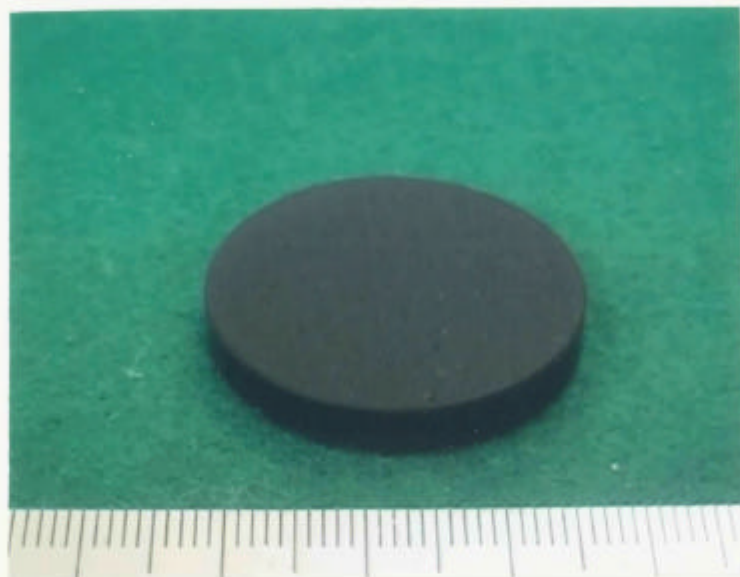


写真 2.3-3 石英ガラス(4mmt、グラファイト・コーティング) 試料外観

### 3. 試験結果

#### 3.1 試験用粒子の検査

転動造粒法で作製した  $\text{UO}_2$  粒子のふるい分級により、粒子焼結体製作用に粒径範囲:500 ~ 600  $\mu\text{m}$ (中間粒径:550  $\mu\text{m}$ )の粒子を採取し、下記製造時データを取得した。

##### 3.1.1 SEM 外観

粒径範囲: 500 ~ 600  $\mu\text{m}$  のふるい分級後の  $\text{UO}_2$  粒子(16 個)の倍率:20 倍での SEM 外観写真を 写真 3.1-1 に示す。 写真 3.1-1 では、粒子形状は真球とはかなり異なるが、長径と短径の比は 1.5 倍以内にあるものと判定される。

##### 3.1.2 比表面積測定

比表面積(BET)測定装置を使用して粒子約 24g での比表面積測定を実施し、粒子比表面積として 0.006  $\text{m}^2/\text{g}$  を得た。

(H13 年度に実施した粒子焼結予備試験(使用粒子:500 ~ 600  $\mu\text{m}$ )の比表面積測定値:0.005  $\text{m}^2/\text{g}$  )

##### 3.1.3 O/U 比測定

酸化重量法により粒子焼結体製作に使用する粒子の O/U 比を測定した結果、2.01 であった。

##### 3.1.4 液浸密度測定

粒子約 24g の液浸密度測定値は 96.22%TD であり、目標とした 93%TD 以上である事を確認した。

上記データは表 3.1-1 にまとめた。

#### 3.2 粒子焼結体の製作

##### 3.2.1 粒子充填高さ及び充填密度

焼結治具内に充填し、タッピング(60 回)による充填高さ安定後の粒子充填高さ測定値及び充填密度計算値を 表 3.2-1 に示す。 表 3.2-1 では粒子焼結体製作における充填密度は 58.2%TD と H13 年度予備試験(63.5%)に比較して低くなった。

その理由として、本試験での使用  $\text{UO}_2$  球状粒子と H13 年度予備試験で使用した粒子の 500 ~ 600  $\mu\text{m}$  の粒径範囲での粒径分布の差が考えられるが、上記粒径分布は実測されていないため、その特定はできていない。

### 3.2.2 粒子充填層温度履歴及び歪量

粒子焼結体製作試験(粒子充填量:29.0g)における粒子充填層の温度履歴及び歪量変化を図 3.2-1 に示す。図 3.2-1 では荷重負荷時の歪量は 0.31mm(4.8%)と H13 年度予備試験における 0.15mm(3.1%)に比較して大きめの値となった。粒子焼結体製作試験と H13 年度予備試験における歪量変化の比較を図 3.2-2 に示す。

粒子焼結体製作試験における荷重負荷時の歪量が H13 年度予備試験時に比較して大きくなった理由として、初期充填密度が H13 年度予備試験では 63.5%であったのに対し、粒子焼結体製作試験では 58.2%と低かった事により、荷重負荷時のリロケーション量が大きくなった事が考えられる。

粒子焼結体製作試験では、初期歪発生終了後の焼きしまり歪量が 4.8%に到達するまでに要した時間は約 120 分と、H13 年度予備試験における焼きしまり歪量 4.7%への到達所要時間 154 分に対して短くなった。

上記の一定の焼きしまり歪量に到達する時間が短くなった原因としては、初期充填密度が低下した事による充填粒子間の接触点数減少、局所応力の増大の効果が考えられる。

粒子焼結体製作試験における歪量測定記録より求めた、荷重負荷時初期歪量、焼きしまり歪量、全歪量を表 3.2-2 にまとめた。

### 3.2.3 粒子焼結体焼結密度

粒子焼結体製作試験で製作された粒子焼結体の厚さ、重量ならびにこれらの寸法・重量測定値を使用して求めた、焼結体密度を表 3.2-3 に示すが、焼結体密度として、63.0%TD が得られた。

### 3.2.4 粒子焼結体外観

粒子焼結体製作試験に上部圧縮板を除いた試験体内の粒子充填層上面を写真 3.2-1 に示す。充填層上面は圧縮による粒子の平坦化が認められたが、H13 年度実施の本試験で観察された上面の一部粒子の剥離は生じなかった。

粒子充填層外周のダイスを取り外した状態の充填層外観を写真 3.2-2 ~ 写真 3.2-3 に、脱落粒子外観を写真 3.2-4 に示す。ダイス取り外し時に充填層表面から分離脱落する粒子は粒子への径方向圧縮荷重が小さくなる充填層側面のダイス隙間部に面する部分に限られ、脱落粒子重量は 0.2g と充填粒子重量の 0.8% であった。斜め上方より見た粒子焼結体外観を写真 3.2-5 に、側面を写真 3.2-6 に示すが、写真 3.2-6 から粒子焼結体が約 12 層の粒子で構成されているのが確認された。写真 3.2-7 及び写真 3.2-8 にそれぞれ直上方向から見た粒子焼結体の上面及び下面外観を示すが、上面及び下面では特に差違は認められず、均一な焼結状態となっていることが観察された。

### 3.3 熱伝導度測定試験

#### 3.3.1 標準試料による較正

石英ガラス(4mmt) (標準試料) / 石英ガラス(4mmt) (測定試料)

標準試料および測定試料に熱伝導度が既知で形状寸法が同一の石英ガラスを使用した試験における試料温度履歴を図 3.3-1 に示す。図 3.3-1 では、昇温開始後 2~3 分間で標準試料および測定試料ともに、所定温度に到達し、最大 10 数 程度オーバーシュートした後、8~10 分で安定した。

定常状態であることは各熱電対の指示温度が 1 分間につき  $\pm 1$  の範囲内で安定したことにより判定し、次の測定温度条件への昇温を開始した。2 回目以降の昇温においても昇温速度および安定化に要する時間は合計 10 分程度であった。

試験 は熱伝導度の大きい He ガス雰囲気で行ったため、断熱性の観点から試料平均温度 800 の可否について確認した。試験 の結果において、標準試料下面温度は 800 に到達し、使用した装置で 800 までの熱伝導度測定が可能であることを確認した。

図 3.3-1 に示した試料温度履歴より求めた、各測定温度での装置内の定常温度分布および熱伝導度測定値を表 3.3-1 にまとめた。表 3.3-1 では、標準試料と測定試料の間の均熱板における中央部と径方向外周部の温度差は、0.8~2.4 であり、温度勾配の比較では試料径方向は肉厚方向の 1/30 以下であることが判った。測定試料上面および標準試料下面は均温な試料加熱ヒーターにより加熱され、試料内の径方向温度勾配はより小さくなると推定されることより、測定値への有意な影響はないものと考えられる。表 3.3-1 より、測定試料の熱伝導度測定値は石英ガラスの熱伝導度計算値と -5%~+1%の範囲で一致し、熱伝導度計算値を真値とした場合の標準誤差 ( ) として 0.08 W/(m·K) が計算された。図 3.3-5 に石英ガラスの熱伝導度測定値と計算値の比較を示す。図 3.3-5 の測定値には 95%信頼幅 (2 ) を示した。

石英ガラス(4mmt) (標準試料) /  $ZrO_2$ (4mmt) (測定試料)

標準試料に石英ガラス(4mmt)、測定試料に異種材料である  $ZrO_2$ (4mmt)を使用したときの試料温度履歴を図 3.3-2 に示す。試験 における試料各部の昇温の経時変化の状況は試験 におけるものと殆ど同一であった。図 3.3-2 に示した試料温度履歴よりもとめた、各測定温度での装置内の定常温度分布および熱伝導度測定値を表 3.3-2 にまとめた。

表 3.3-2 の熱伝導度測定値を文献値と比較したものを図 3.3-6 に示す。図 3.3-6 では、熱伝導度測定値は 500~800 で文献値を下回ったが、全体として、文献値と同様に温度とともに下降する温度依存傾向を示した。



ZrO<sub>2</sub>(4mmt) (標準試料) / ZrO<sub>2</sub>(4mmt) (測定試料)

標準試料および測定試料に同一寸法形状のZrO<sub>2</sub>試料を使用した試験における試料温度履歴を 図 3.3-3 に示す。 図 3.3-3 ではガードヒーター内面温度(熱電対 )の指示温度に 1~2 のふらつきが観察されたが、均熱板の熱電対指示温度は安定であった。

図 3.3-3 に示した試料温度履歴よりもとめた、各測定温度での装置内の定常温度分布および熱伝導度測定値を表 3.3-3 にまとめた。

均熱板中央部と表面の温度差は試験におけるものと同程度の 0.0~1.6 であった。

表 3.3-3 より、測定試料の熱伝導度測定値は ZrO<sub>2</sub>の熱伝導度計算値と -8%~+6%の範囲で一致した。

ZrO<sub>2</sub>(4mmt) (標準試料) / ZrO<sub>2</sub>(5mmt) (測定試料)

試験 では測定試料に ZrO<sub>2</sub>(5mmt)を使用し、試験 における ZrO<sub>2</sub>(4mmt)の測定値との比較により、熱伝導度測定値に及ぼす試料肉厚の影響を調べた。

標準試料および測定試料に同一寸法形状の ZrO<sub>2</sub> 試料を使用した場合の試料温度履歴を 図 3.3-4 に示す。 図 3.3-4 に示した試料温度履歴よりもとめた、各測定温度での装置内の定常温度分布および熱伝導度測定値を表 3.3-4 にまとめた。均熱板中央部と表面の温度差は試験 におけるものに近い、1.1~2.4 であった。

表 3.3-4 より、測定試料の熱伝導度測定値と ZrO<sub>2</sub>の熱伝導度計算値との差は -5%~+0%と測定温度による変動は試験 に比較して小さいものとなった。

図 3.3-7 に試験 および試験 における熱伝導度測定値の比較を示す。 図 3.3-7 では肉厚 4mm の試料と 5mm の試料とで熱伝導度測定値に有意な差は認められなかった。

### 3.3.2 粒子焼結体の熱伝導度測定

標準試料に石英ガラス(4mmt)を使用し、測定試料を粒子焼結体(5.88mmt)とした時の試料温度履歴を 図 3.3-8 に示す。 図 3.3-8 に示した試料温度履歴より求めた、各測定温度での装置内の定常温度分布および熱伝導度測定値を表 3.3-5 にまとめた。 図 3.3-9 に粒子焼結体の熱伝導度測定結果と、100 %TD UO<sub>2</sub>の熱伝導度文献値<sup>6)</sup>の比較を示す。 図 3.3-9 より、粒子充填密度 63%TD の粒子焼結体の熱伝導度測定値は、試料平均温度 630 ~ 833 の範囲において、全体として温度とともに緩やかに下降し、100 %TD UO<sub>2</sub>の熱伝導度に対して 43~51%の比率となる結果が得られた。 測定試験前の装置組立時の試験体外観を写真 3.3-1~写真 3.3-5 に示す。また測定試験後の試料取出時の試験体外観を写真 3.3-6~写真 3.3-10 に示すが、上部均熱板および中間均熱板の外周部に若干の着色が認められたものの粒子焼結体外観には変化は認められなかった。

測定試験後の粒子焼結体の上面、下面ならびに側面を写真 3.3-11~写真 3.3-13 に示す。

測定試験後の粒子焼結体の重量および寸法の測定結果を 3.4 節 に示すが、有意な変化は認められず、測定試験後に粒子の脱落が認められなかったことより、測定試験中に粒子焼結体

の酸化および形状変化は生じなかったものと判定される。

### 3.4 粒子焼結体の検査

#### 3.4.1 比表面積測定

熱伝導度測定試験後の粒子焼結体の比表面積測定結果を、焼結前粒子の比表面積測定結果とともに、表 3.4-1 に示す。表 3.4-1 では、粒子比表面積はネック比約 40%の焼結体とすることにより、焼結前粒子に比較して約 1 / 2 に減少した。

#### 3.4.2 重量・寸法測定

熱伝導度測定試験後の粒子焼結体の重量および寸法測定結果を表 3.4-2 に示す。

表 3.4-2 では、測定試験前後で粒子焼結体の重量および寸法には特に変化は認められなかった。

#### 3.4.3 粒子ネック比測定

熱伝導度測定試験後の粒子焼結体の断面金相写真を写真 3.4-1 ~ 3.4-6 に示す。粒子ネック比を算出するための粒子直径は写真 3.4-2 の縦断面（上面近傍，中間，下面近傍，倍率：x50）及び写真 3.4-5 の横断面（外周，中間，中心，倍率：x50）において最も焼結が進んだ粒子焼結部の粒子（写真中に番号で示す）直径より求めた。焼結部の幅は上記焼結部を倍率:x150 で撮影した，写真 3.4-3（縦断面，上面近傍，中間，下面近傍）及び写真 3.4-6（横断面，外周，中間，中心）より測定した。横断面の焼結体肉厚方向位置は上面より約 3mm（肉厚中心近傍）である。

粒子直径は片側の粒子が変形している場合には形状が円形に近い粒子について，焼結部を外した直交する 2 方向の直径測定値を平均してもとめた。粒子焼結部のネック比測定結果（焼結部長さ / 粒子直径）を表 3.4-3 に示した。

表 3.4-3 では粒子焼結部ネック比は負荷応力が異なる縦断面と横断面でネック比が（縦断面：38%，横断面：38%）と同程度であり，かつ所期の目標であった最大ネック比：40%（熱伝導解析における粒子焼結体とペレットの境界）近傍となっていることが判った。

表 3.1-1 粒子焼結体製作用  $\text{UO}_2$  粒子の製造時データ

試験名	粒子重量 (g)	粒径範囲 ( $\mu\text{m}$ )	比表面積 ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	O/M (-)	液浸密度 (%TD)
粒子焼結体製作	29.0	500 ~ 600	0.006	2.01	96.22

表 3.2-1 粒子焼結体製作試験条件

試験名	温度 荷重負荷条件					粒子充填条件		
	試験温度	目標焼き しまり歪量	試験 時間	負荷荷 重	負荷応力	充填量	初期充 填層厚	初期充 填密度
	( )	(%)	(min)	(kg)	(MPa)	(g)	(mm)	(%TD)
粒子焼結 体製作	1700	約 5%	約 120	500	6.93*1	29.0	6.43	58.2
備考	・粒子充填後のタッピングは充填層厚が安定する 60 回とした。 ・試験雰囲気は Ar + 5% $\text{H}_2$ フロー (約 80mL/min) *1 上部圧縮板断面積: 7.07 $\text{cm}^2$ より計算							

表 3.2-2 粒子焼結体製作試験における歪量測定結果

試験名	試験時間	負荷荷重	負荷応力	初期充填層厚	荷重負荷時初期歪量		荷重除荷時までの総歪量		荷重除荷時までの焼きしまり歪量	
	(min)	(kg)	(MPa)	(mm)	(mm)	(%)	(mm)	(%)	(mm)	(%)
粒子焼結体製作	120	500	6.93	6.43	0.31	4.8	0.62	9.6	0.31	4.8

表 3.2-3 粒子焼結体の厚さ及び重量測定結果

試験名	初期充填層厚 (mm)	焼結後の 粒子焼結体厚さ (mm)	重量 (g)	焼結体密度 (%TD)
粒子焼結体製作	6.43	5.88	28.8	63.0

表3.3-1 標準試料による較正試験①の測定結果

試験名		試験①		備考
標準試料	石英ガラス	厚さ(mm)	4.03	
測定試料	石英ガラス	厚さ(mm)	4.03	
測定No	②	③	④	熱電対指示温度は定常状態最終1分間の平均値
(a) 熱電対①(°C)	499.9	600.2	700.5	ガードヒーター内面温度
(b) 熱電対②(°C)	550.1	649.5	749.8	測定試料上面温度
(c) 熱電対③(°C)	500.9	601.0	700.6	標準試料下面温度
(d) 熱電対④(°C)	525.8	624.9	724.8	測定試料下面/標準試料上面温度(ディスク中心)
(e) 熱電対⑤(°C)	525.0	623.4	723.2	測定試料下面/標準試料上面温度(ディスク外周)
標準試料肉厚温度差(°C)	24.9	23.9	24.2	(d) - (c)
測定試料肉厚温度差(°C)	24.3	24.6	25.0	(b) - (d)
標準試料平均温度(°C)	513.3	612.9	712.7	((d) + (c))/2
測定試料平均温度(°C)	537.9	637.2	737.3	((b) + (d))/2
標準試料熱伝導度 (W/m/K)	1.95	2.08	2.22	石英ガラス熱伝導度*1
測定試料熱伝導度測定値 (W/m/K)	2.00	2.02	2.15	(j) × (測定試料厚さ) / (標準試料厚さ) × (f) / (g)
測定試料熱伝導度計算値 (W/m/K)	1.98	2.11	2.26	石英ガラス熱伝導度*1
(k)/(L)	1.01	0.96	0.95	(L)を真値とした場合のσ(標準誤差): 0.08 (W/(m・K))

\*1 石英ガラス熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 4.24E-7 \cdot T^2 + 8.49E-4 \cdot T + 1.40$ , T: 温度(°C)

\*2 ZrO<sub>2</sub>熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 5.49E-07 \cdot T^2 - 1.54E-03 \cdot T + 3.18$ , T: 温度(°C)

表3.3-2 標準試料による較正試験②の測定結果

試験名	試験②			備考
	石英ガラス	厚さ(mm)	4.03	
標準試料	4.03			
測定試料	4.03			
測定No	①	②	③	④
熱電対①(°C)	500.7	600.2	700.5	800.9
熱電対②(°C)	550.1	650.4	750.7	851.0
熱電対③(°C)	500.0	600.2	700.5	800.3
熱電対④(°C)	528.3	626.6	725.8	825.0
熱電対⑤(°C)	527.9	625.8	724.4	823.3
標準試料肉厚温度差(°C)	28.3	26.4	25.3	24.7
測定試料肉厚温度差(°C)	21.8	23.8	24.9	26.0
標準試料平均温度(°C)	514.1	613.4	713.2	812.6
測定試料平均温度(°C)	539.2	638.5	738.2	838.0
標準試料熱伝導度 (W/m/K)	1.95	2.08	2.22	2.37
測定試料熱伝導度測定値 (W/m/K)	2.54	2.31	2.26	2.25
測定試料熱伝導度計算値 (W/m/K)	2.51	2.42	2.34	2.28
(k)/(L)	1.01	0.96	0.96	0.99
石英ガラス熱伝導度*1				
(j) × (測定試料厚さ) / (標準試料厚さ) × (f) / (g)				
ZrO <sub>2</sub> (密度:6.1g/ml)熱伝導度*2				
平均値:0.98				

\*1 石英ガラス熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 4.24E-7T^2 + 8.49E-4T + 1.40$ , T: 温度(°C)\*2 ZrO<sub>2</sub>熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 5.49E-07T^2 - 1.54E-03T + 3.18$ , T: 温度(°C)

表3.3-3 標準試料による校正試験③の測定結果

試験名		試験③			備考
標準試料		ZrO2	厚さ(mm)	4.03	
測定試料		ZrO2	厚さ(mm)	4.03	
測定No		①	②	③	④
(a)	熱電対①(°C)	500.4	600.6	701.1	801.3
(b)	熱電対②(°C)	550.1	651.2	751.0	850.2
(c)	熱電対③(°C)	500.3	601.1	700.5	801.7
(d)	熱電対④(°C)	525.8	625.0	725.0	825.0
(e)	熱電対⑤(°C)	525.8	625.0	724.2	823.4
(f)	標準試料肉厚温度差(°C)	25.5	24.0	24.5	23.3
(g)	測定試料肉厚温度差(°C)	24.3	26.2	26.0	25.2
(h)	標準試料平均温度(°C)	513.1	613.0	712.8	813.4
(i)	測定試料平均温度(°C)	537.9	638.1	738.0	837.6
(j)	標準試料熱伝導度 (W/m/K)	2.53	2.44	2.36	2.29
(k)	測定試料熱伝導度 (W/m/K)	2.66	2.23	2.22	2.12
(L)	測定試料熱伝導度計算値 (W/m/K)	2.51	2.42	2.34	2.26
	(k)/(L)	1.06	0.92	0.95	0.93
					平均値:0.97

\*1 石英ガラス熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 4.24E-7 \cdot T^2 + 8.49E-4 \cdot T + 1.40$ , T: 温度(°C)

\*2 ZrO<sub>2</sub>熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 5.49E-07T^2 - 1.54E-03T + 3.18$ , T: 温度(°C)

表3.3-4 標準試料による校正試験④の測定結果

試験名	試験④			備考
	ZrO2	厚さ(mm)	4.03	
標準試料	ZrO2	厚さ(mm)	4.03	
測定試料	ZrO2	厚さ(mm)	5.03	
測定No	①	②	③	④
熱電対①(°C)	499.9	600.2	700.5	800.9
熱電対②(°C)	550.7	649.5	749.8	849.8
熱電対③(°C)	499.9	599.7	700.5	800.0
熱電対④(°C)	522.1	621.7	721.8	821.8
熱電対⑤(°C)	521.0	620.1	719.5	819.4
標準試料肉厚温度差(°C)	22.2	22.0	21.3	21.8
測定試料肉厚温度差(°C)	28.6	27.8	28.0	28.0
標準試料平均温度(°C)	511.0	610.7	711.2	810.9
測定試料平均温度(°C)	536.4	635.6	735.8	835.8
標準試料熱伝導度 (W/m/K)	2.54	2.44	2.36	2.29
測定試料熱伝導度 (W/m/K)	2.46	2.41	2.24	2.23
測定試料熱伝導度計算値 (W/m/K)	2.51	2.42	2.34	2.28
(k)/(L)	0.98	1.00	0.95	0.98
				平均値:0.98

\*1 石英ガラス熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 4.24E-7 \cdot T^2 + 8.49E-4 \cdot T + 1.40$ , T: 温度(°C)

\*2 ZrO<sub>2</sub>熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 5.49E-07 T^2 - 1.54E-03 T + 3.18$ , T: 温度(°C)



表3.3-5 粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果

試験名		粒子焼結体熱伝導度測定		備考	
標準試料		石英ガラス	厚さ(mm)	4.03	
測定試料		UO <sub>2</sub>	厚さ(mm)	5.88	
測定No		①	②	③	
(a)	熱電対①(°C)	619.2	697.6	816.9	
(b)	熱電対②(°C)	649.5	850.0	850.2	
(c)	熱電対③(°C)	600.1	599.4	800.1	
(d)	熱電対④(°C)	618.4	694.2	816.0	
(e)	熱電対⑤(°C)	619.5	698.3	816.9	
(f)	標準試料肉厚温度差(°C)	18.3	94.8	15.9	
(g)	測定試料肉厚温度差(°C)	31.1	155.9	34.2	
(h)	標準試料平均温度(°C)	609.2	646.8	808.1	
(i)	測定試料平均温度(°C)	634.0	772.1	833.1	
(j)	標準試料熱伝導度 (W/m/K)	2.07	2.13	2.36	
(k)	測定試料熱伝導度 (W/m/K)	1.78	1.89	1.60	
(L)	測定試料熱伝導度計算値 (W/m/K)	4.03	3.62	3.47	
(k)/(L)		0.44	0.52	0.46	
上部加熱ヒータ—電圧／電流		電圧(V)	4	9	6
		電流(A)	9	12	10
		電力(W)	36	108	60
下部加熱ヒータ—電圧／電流		電圧(V)	6	3	9
		電流(A)	11	7	11
		電力(W)	66	21	99
					電圧×電流による計算値
					電圧×電流による計算値

\*1 石英ガラス熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 4.24E-7 \cdot T^2 + 8.49E-4 \cdot T + 1.40$ , T: 温度(°C)

\*2 ZrO<sub>2</sub>熱伝導度:  $k(W/(m \cdot K)) = 5.49E-07 \cdot T^2 - 1.54E-03 \cdot T + 3.18$ , T: 温度(°C)

表 3.4-1 熱伝導度測定後の粒子焼結体比表面積測定結果

測定試料	重量	粒径範囲	比表面積	ネック比	備考
	(g)	( $\mu\text{m}$ )	( $\text{m}^2/\text{g}$ )	(%)	
UO <sub>2</sub> 粒子	23.96	500 ~ 600	0.006	0.0	
粒子焼結体	28.78	500 ~ 600	0.003	38	

表 3.4-2 熱伝導度測定後の粒子焼結体寸法重量測定結果

	粒子焼結体重量 (g)	厚さ(mm)	備考
熱伝導度測定試験前	28.79	5.88	厚さは5点測定平均
熱伝導度測定試験後	28.79	5.88	同上

表 3.4-3 粒子焼結体のネック比測定結果

試験名	試験時間 (min)	負荷 応力 (MPa)	粒子間焼結幅最大 ( $\mu\text{m}$ )				粒子直径 ( $\mu\text{m}$ )				ネック比 (%)			
			縦断面		横断面		縦断面		横断面		縦断面		横断面	
			上面	外周	中間	中心	上面 粒子	中間 粒子	外周 粒子	中心 粒子	上面	中間	外周	中心
粒子 焼結 体 製 作	120	7.0	180	190	470	550	550	550	38	42	35	41		
			230	240	550	580	580	580	42	41				
			210	210	630	540	540	540	33	39				
									平均	38 ± 3.7*	平均	38 ± 2.5*		

\* 3データの標準偏差

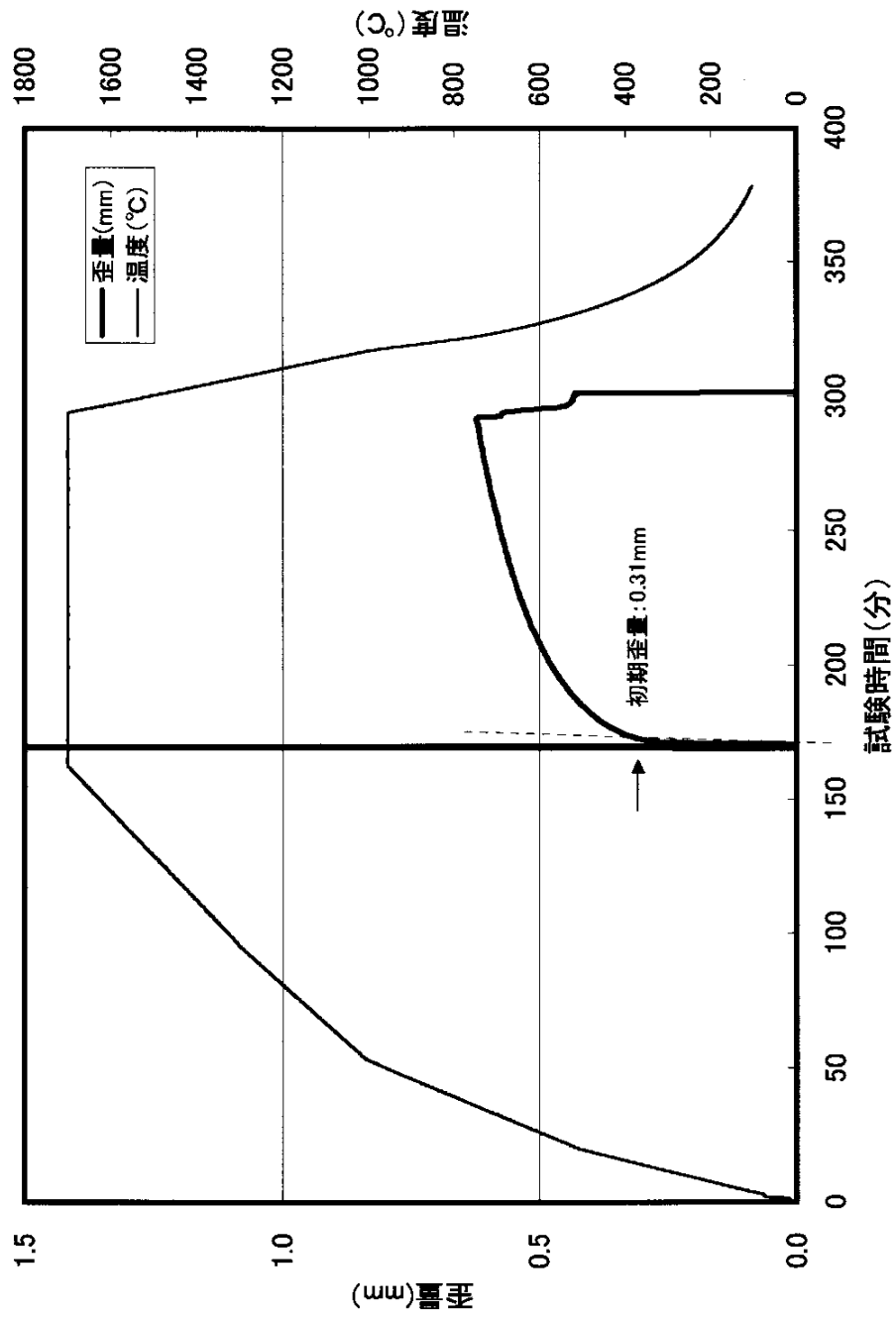


図3.2-1 粒子焼結体製作試験における温度履歴及び歪量変化

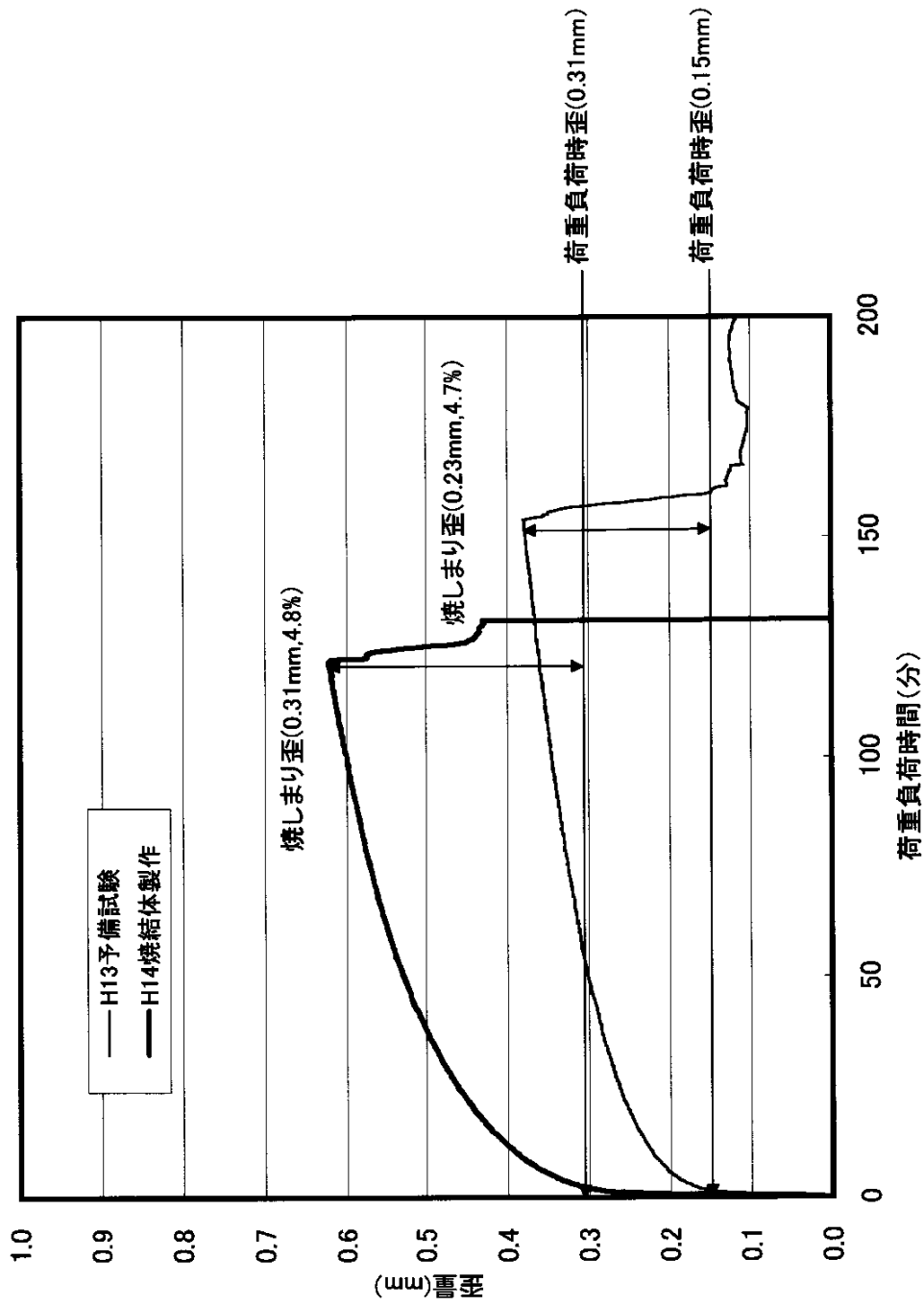


図3.2-2 粒子焼結体製作試験における歪量変化の比較

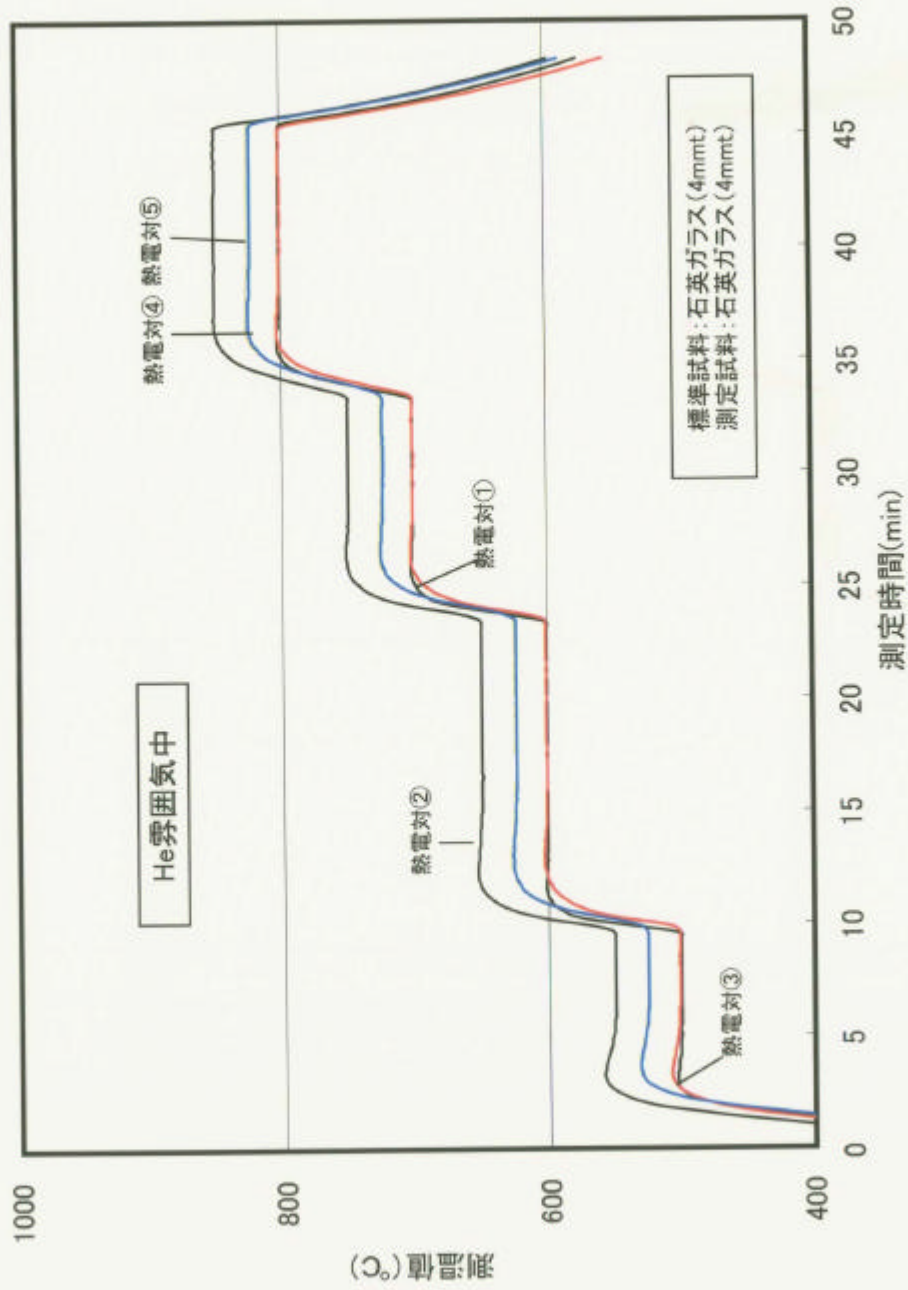


図3.3-1 標準試料による校正試験①における試料温度履歴

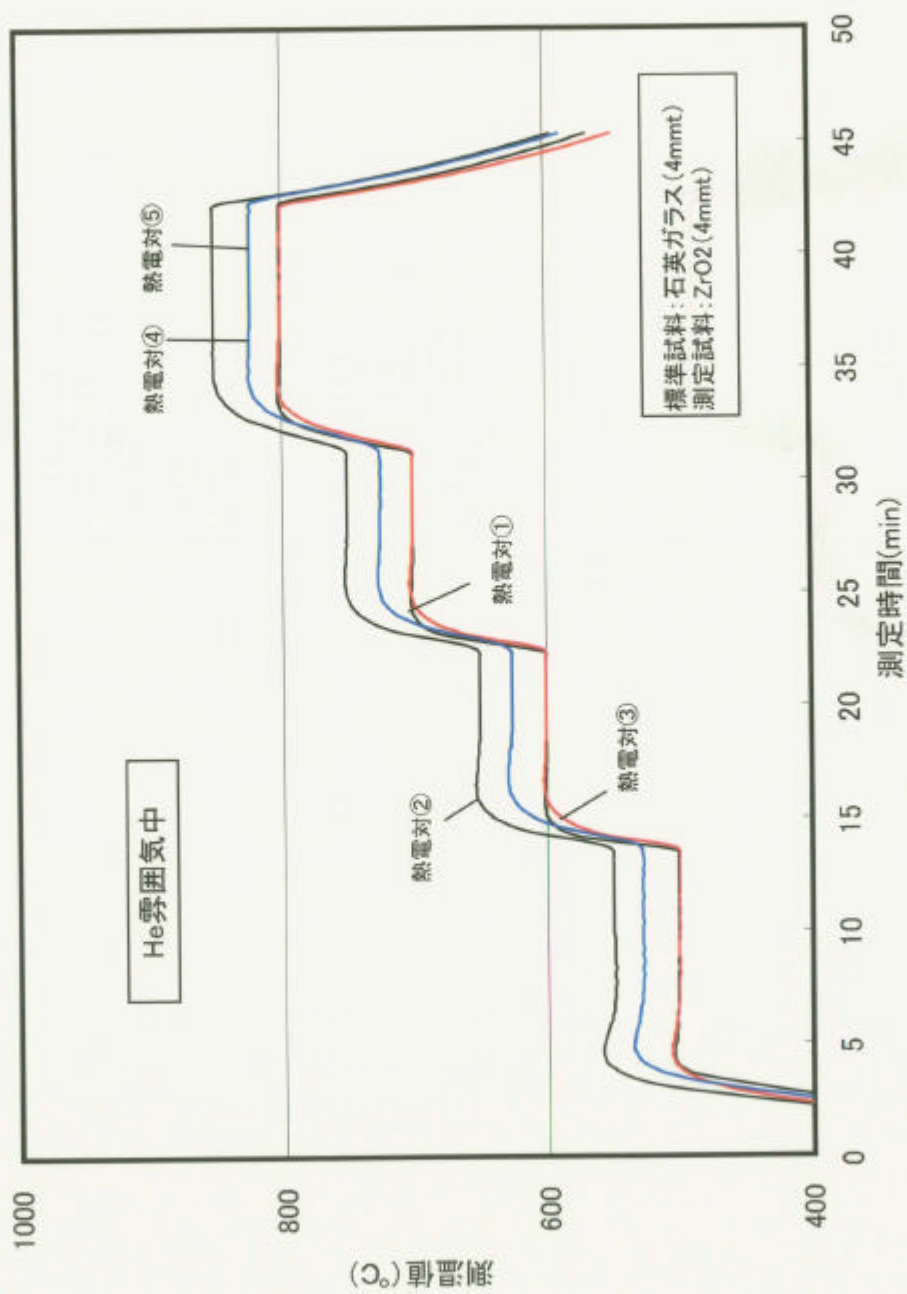


図3.3-2 標準試料による校正試験②における試料温度履歴

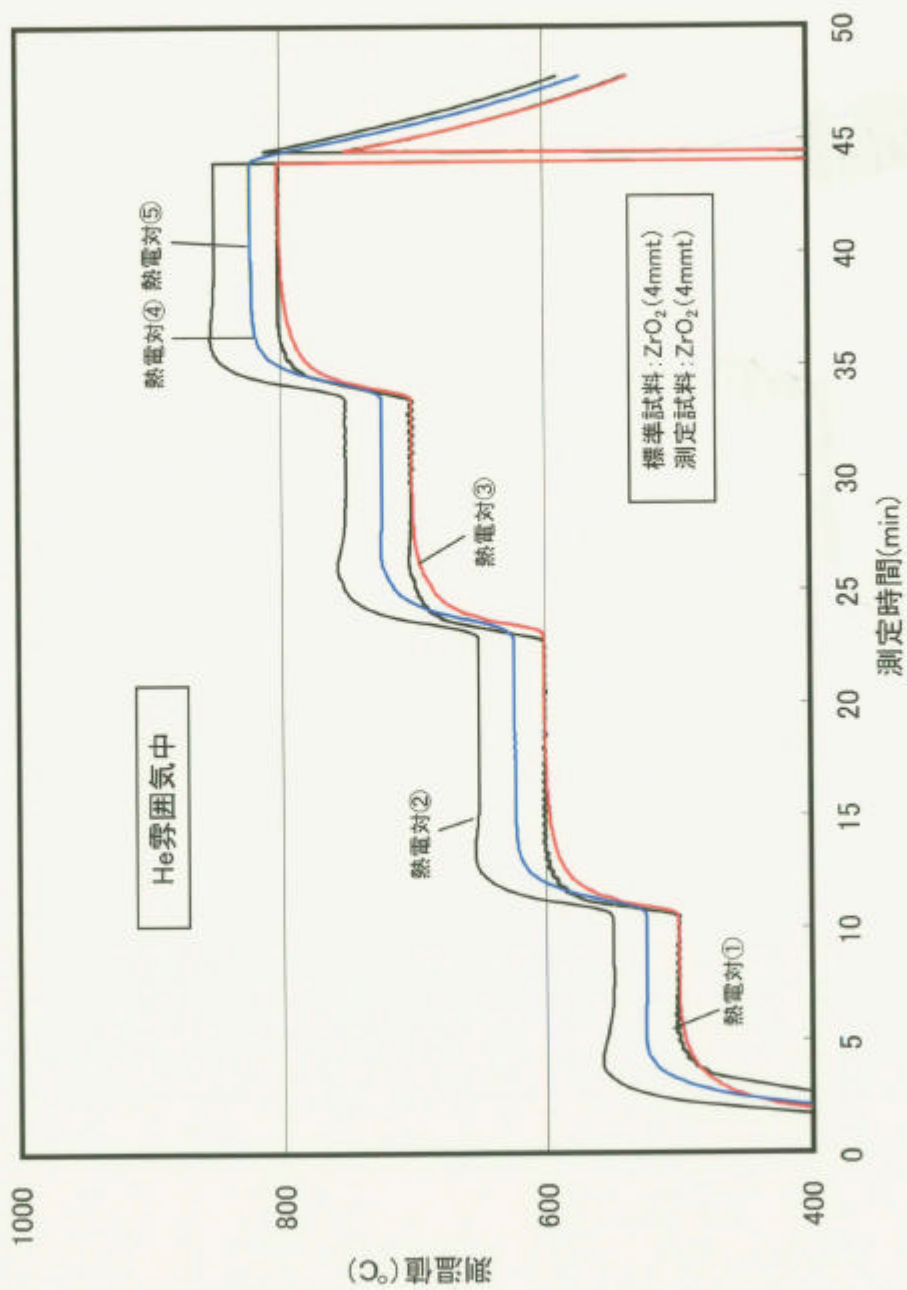


図3.3-3 標準試料による校正試験③における試料温度履歴

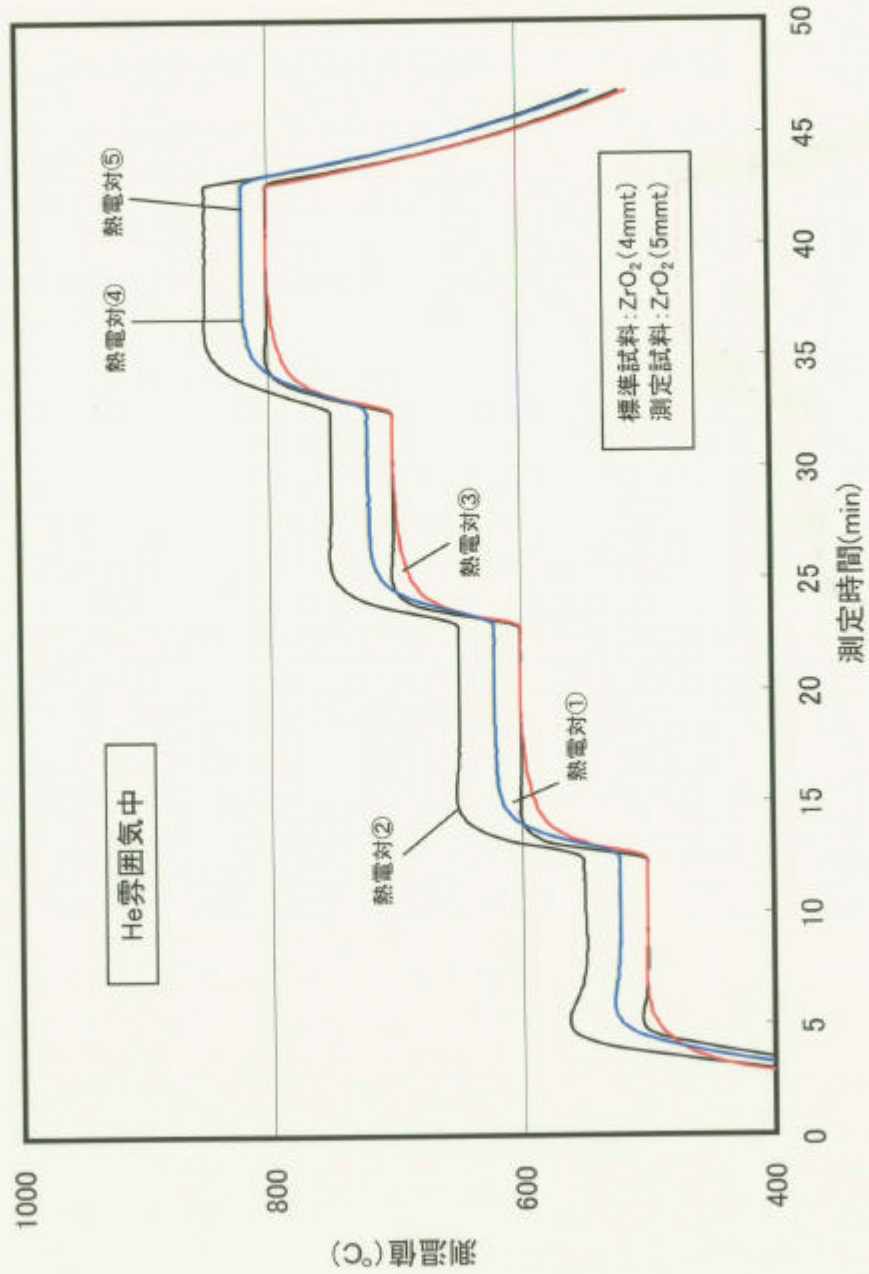


図3.3-4 標準試料による校正試験④における試料温度履歴



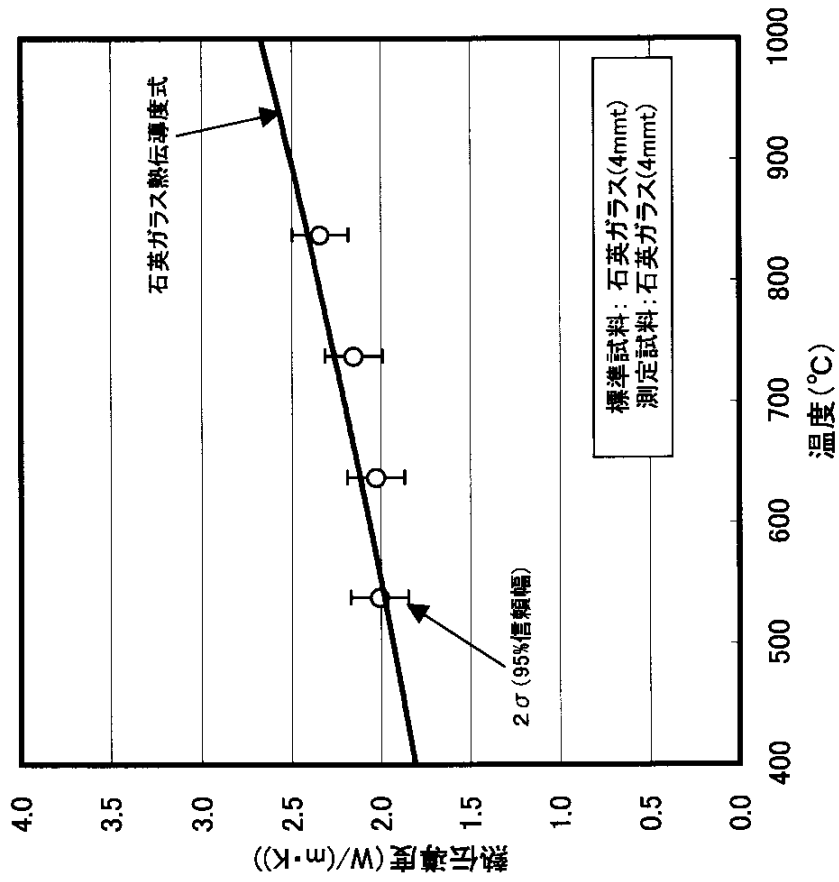


図 3.3-5 石英ガラスの熱伝導度測定値と計算値の比較

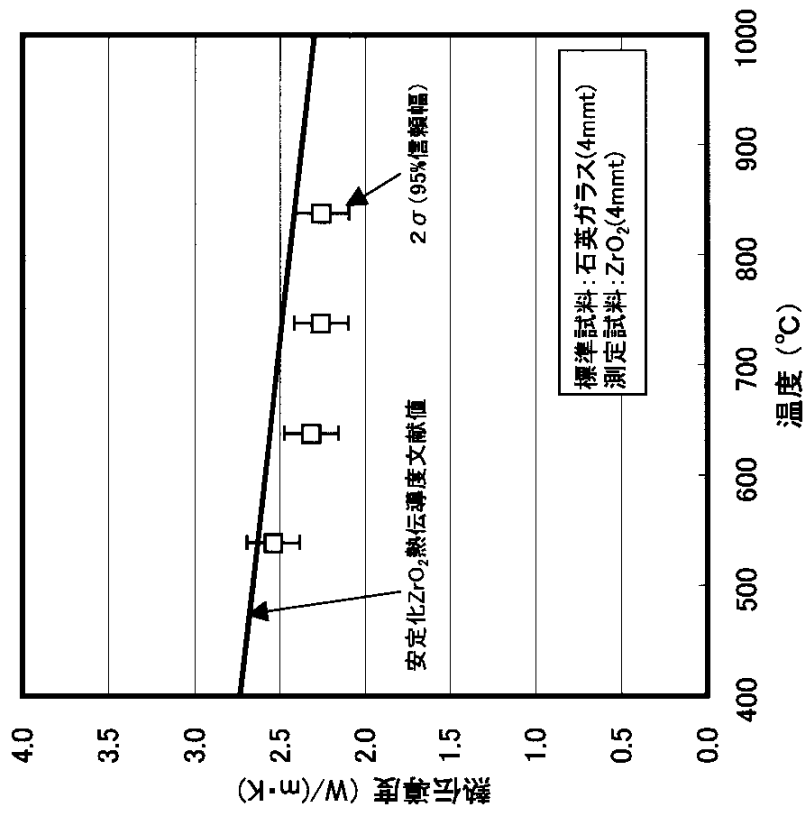


図3.3-6 ZrO<sub>2</sub>熱伝導度測定値と文献値の比較

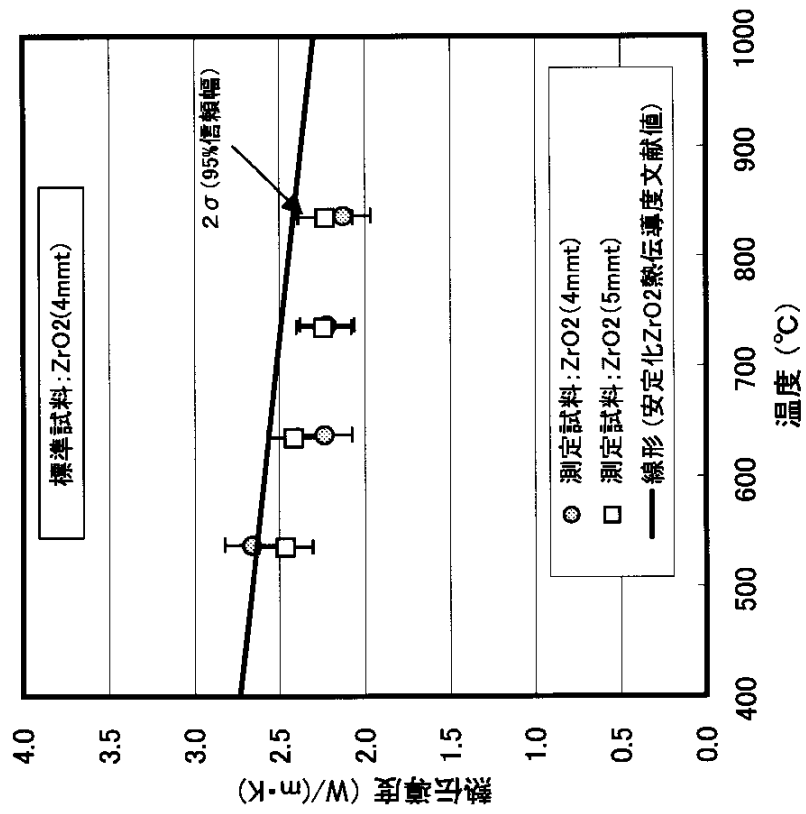


図3.3-7 厚さの異なるZrO<sub>2</sub>試料の熱伝導度測定値文献値の比較

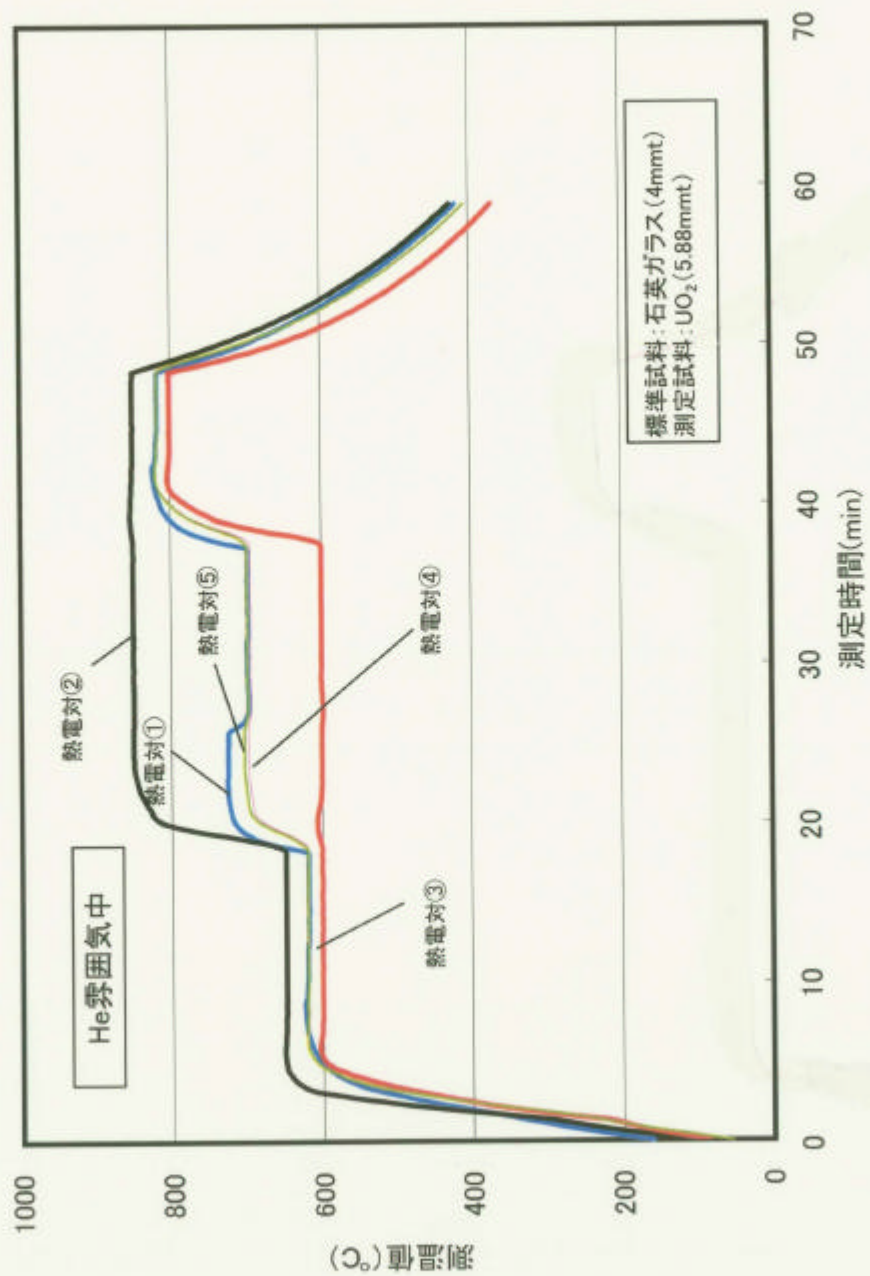


図3.3-8 粒子焼結体の熱伝導度測定試験における試料温度履歴

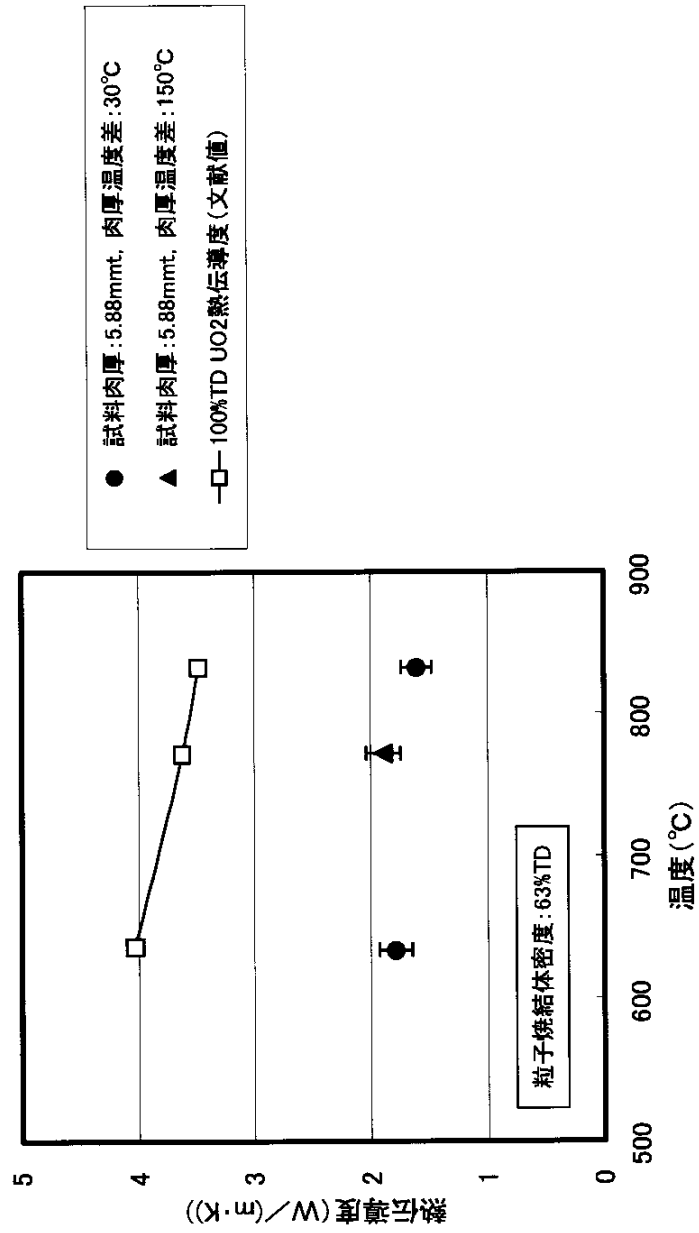
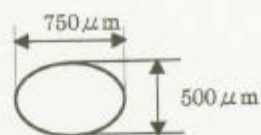


図3.3-9 粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果



粒子形状仕様上限  
(長径/短径: 1.5 以下)

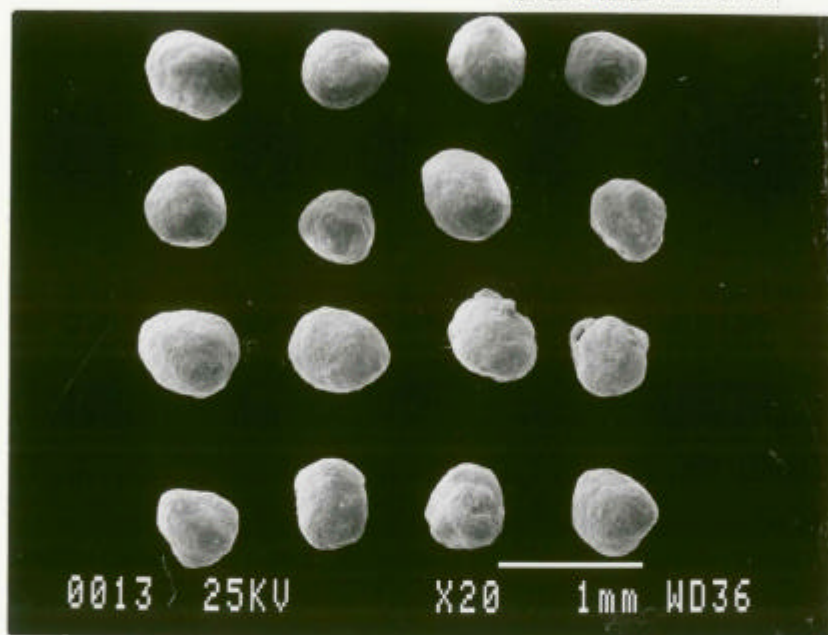


写真 3.1-1 粒子焼結体製作用粒子の SEM 外観

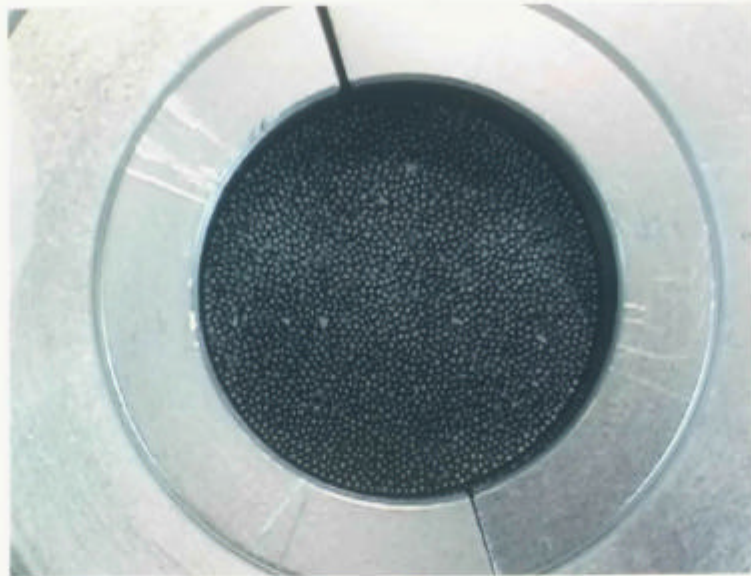


写真 3.2-1 粒子焼結体製作試験後のダイス内粒子充填層外観



写真 3.2-2 ダイス取外し後の粒子焼結体外観

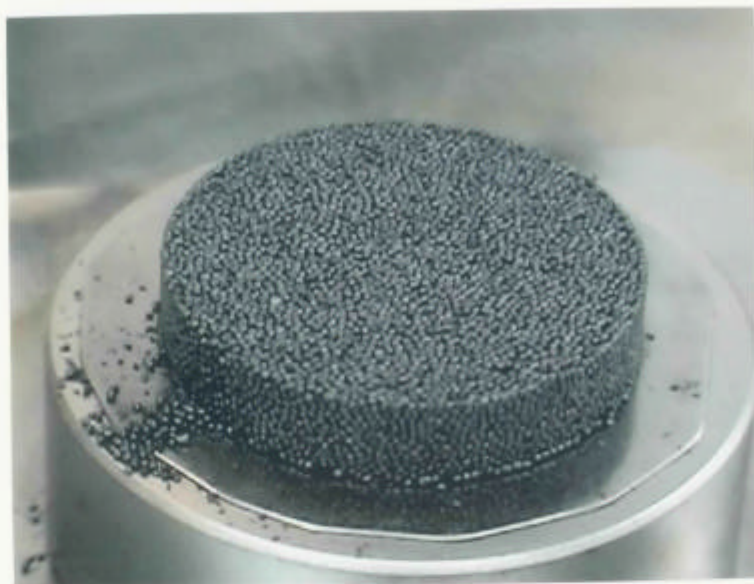


写真 3.2-3 試験後の粒子焼結体外観



写真 3.2-4 粒子焼結体からの脱落粒子外観



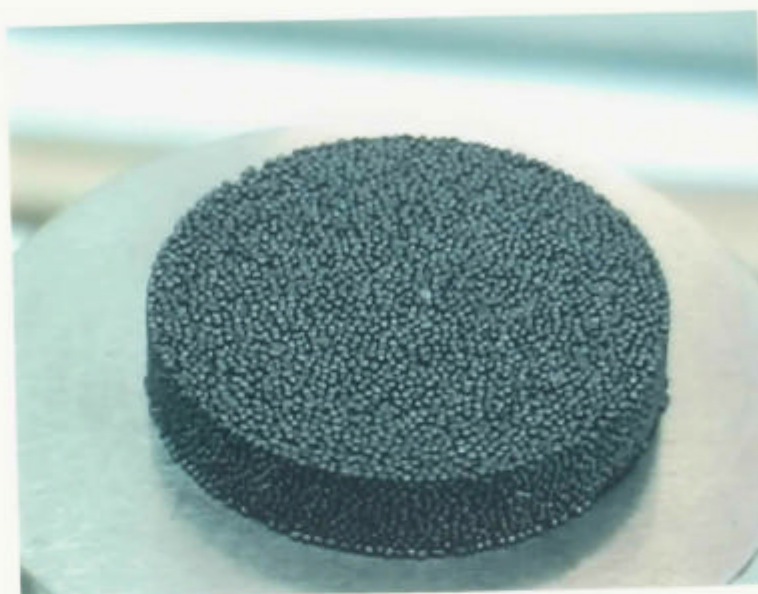


写真 3.2-5 斜め上方より観察した粒子焼結体外観

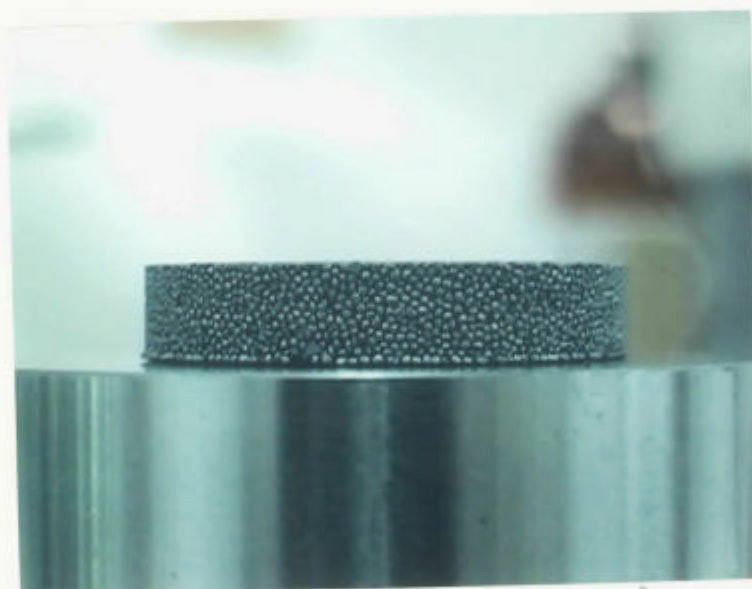


写真 3.2-6 粒子焼結体側面外観

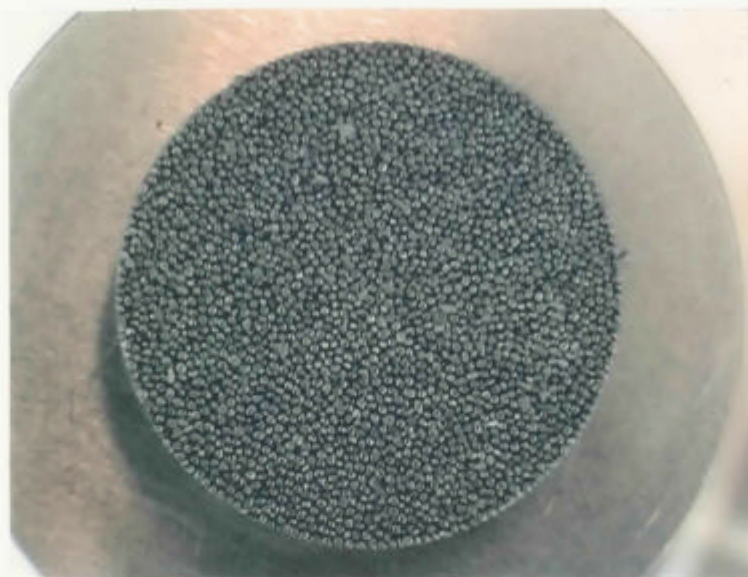


写真 3.2-7 直上方向より観察した粒子焼結体上面

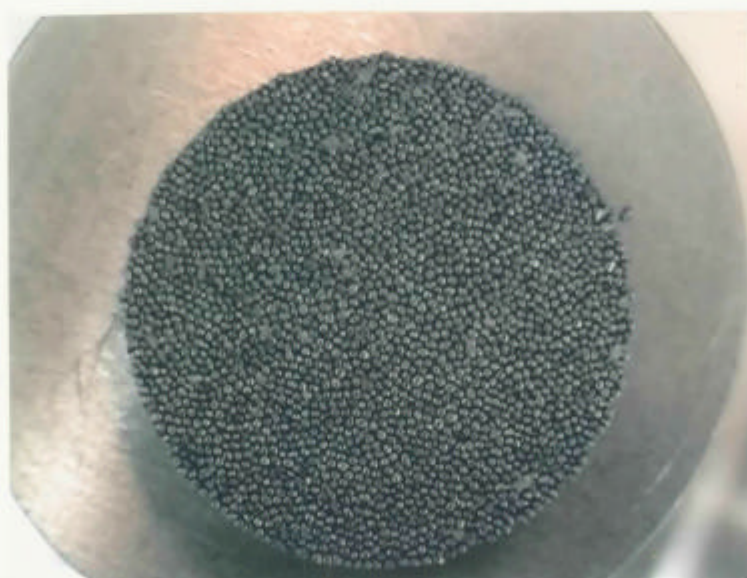


写真 3.2-8 直上方向より観察した粒子焼結体下面

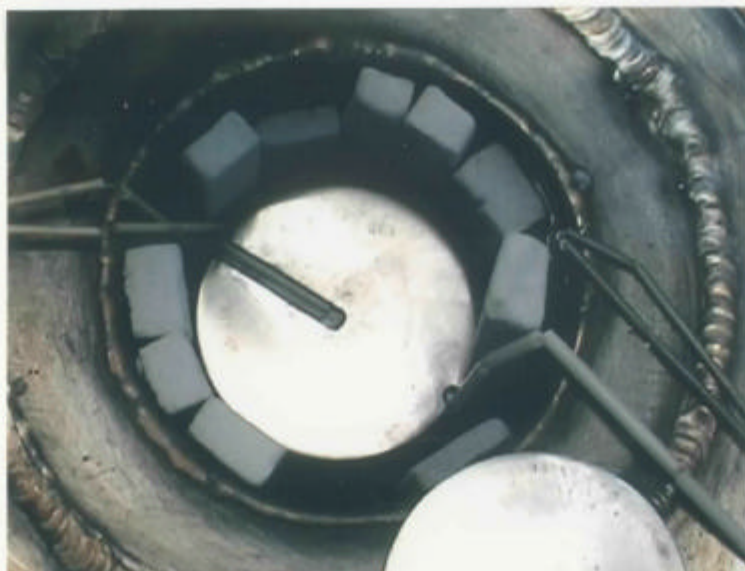


写真 3.3-1 熱伝導度測定試験前の中間均熱板外観



写真 3.3-2 熱伝導度測定試験前の粒子焼結体外観

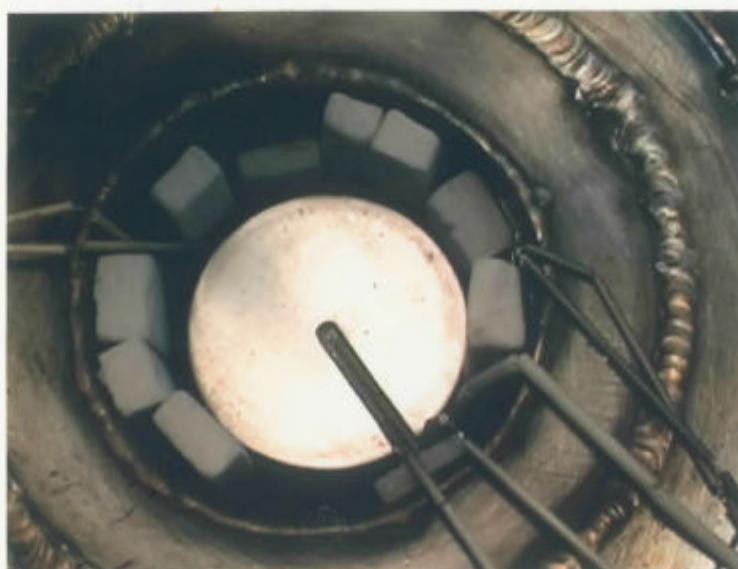


写真 3.3-3 熱伝導度測定試験前の上部均熱板外観

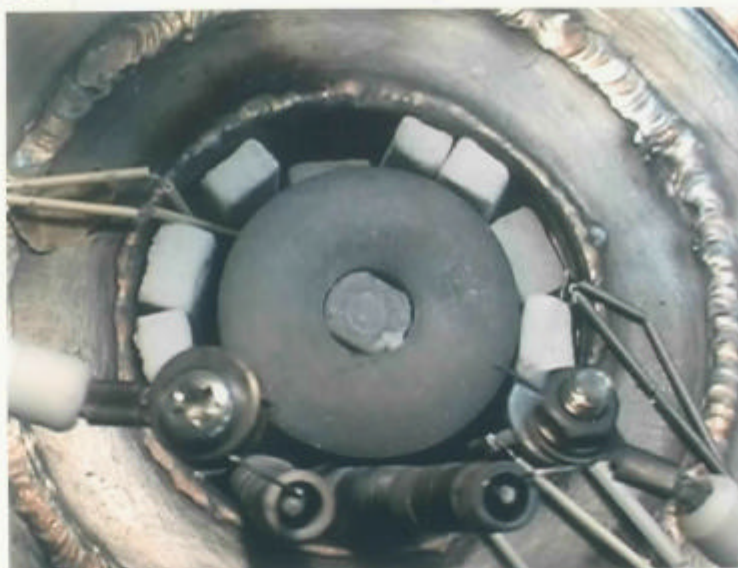


写真 3.3-4 熱伝導度測定試験前の上部加熱ヒーター外観



写真 3.3-5 熱伝導度測定試験前の上部断熱材外観



写真 3.3-6 熱伝導度測定試験後の上部断熱材外観



写真 3.3-7 熱伝導度測定試験後の上部加熱ヒーター外観



写真 3.3-8 熱伝導度測定試験後の上部均熱板外観



写真 3.3-9 熱伝導度測定試験後の粒子焼結体外観

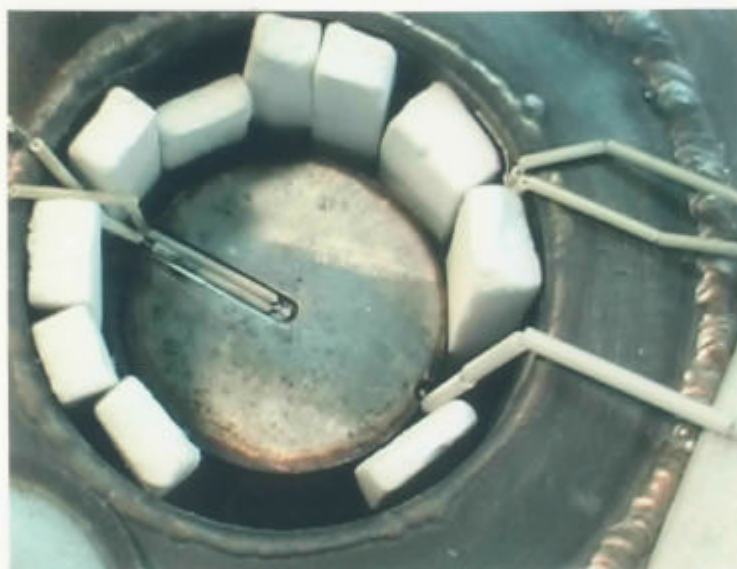


写真 3.3-10 熱伝導度測定試験後の中間均熱板外観



写真 3.3-11 熱伝導度測定試験後の粒子焼結体上面

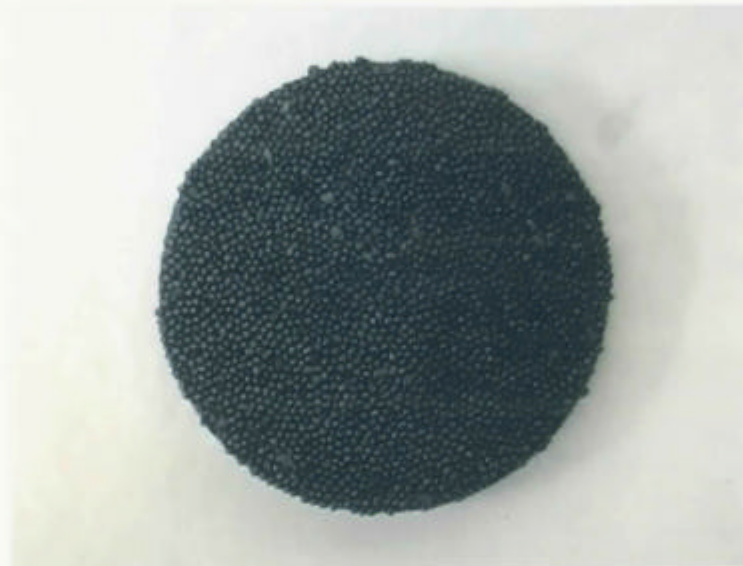


写真 3.3-12 熱伝導度測定試験後の粒子焼結体下面

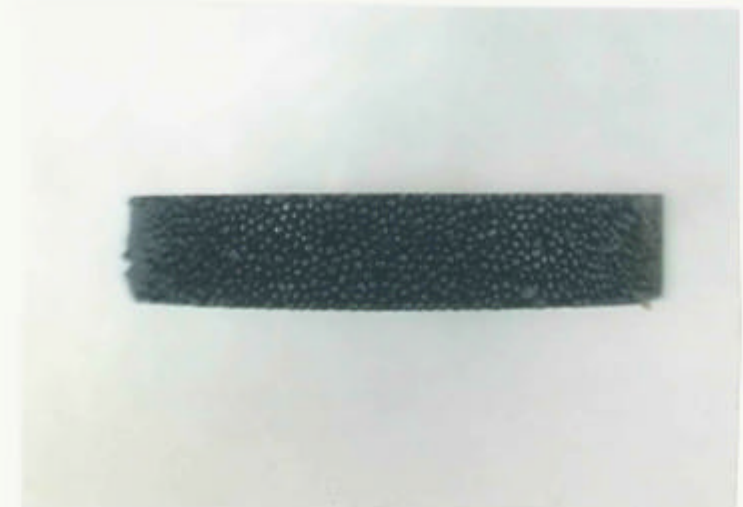


写真 3.3-13 熱伝導度測定試験後の粒子焼結体側面

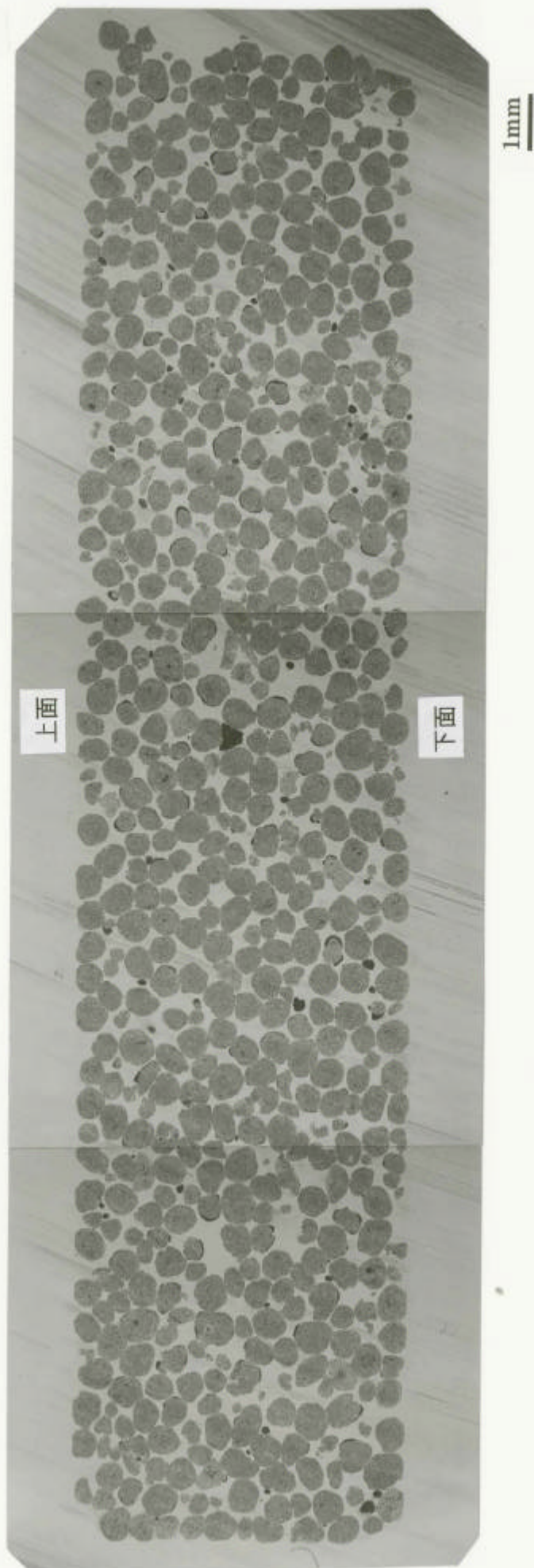
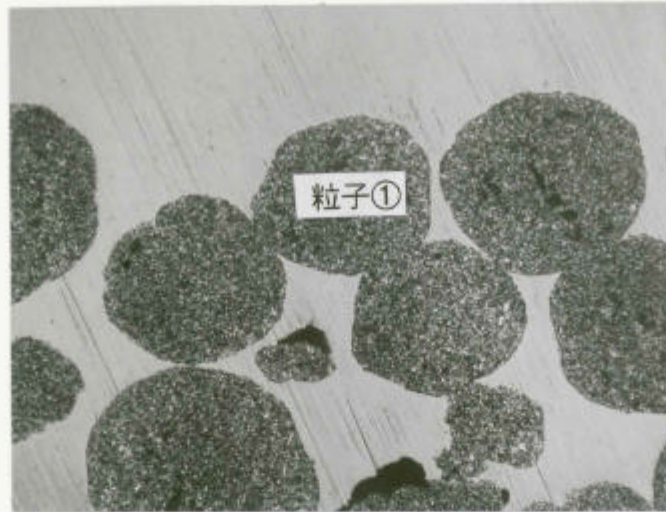
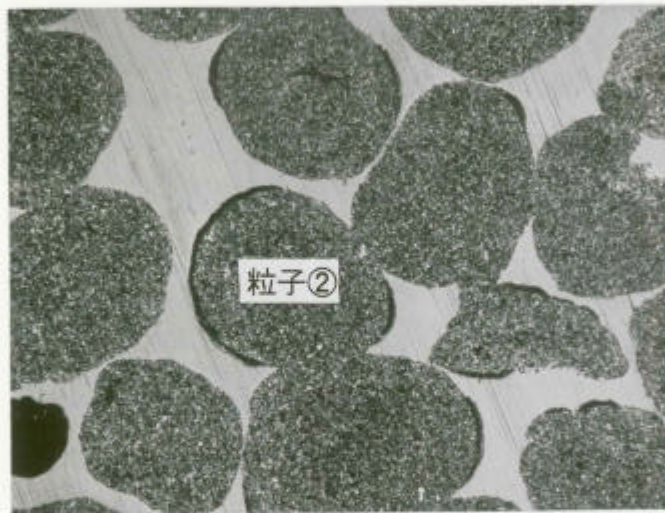


写真 3.4-1 熱伝導度測定試験後の粒子焼結体 (縦断面、径方向中心近傍) 金相写真

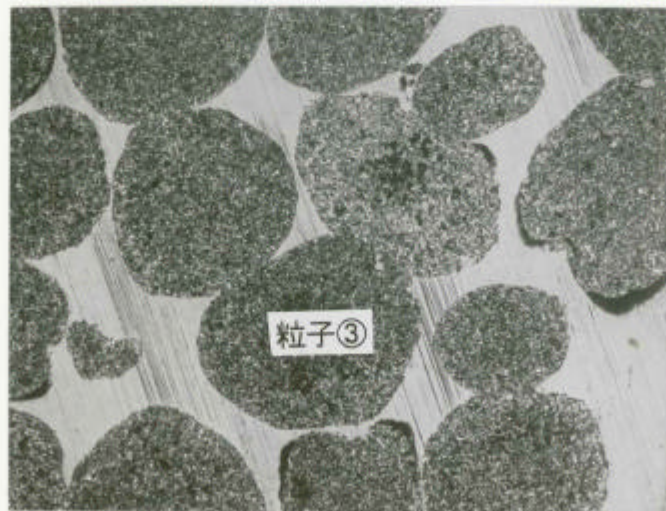




上面近傍



中間部



下面近傍

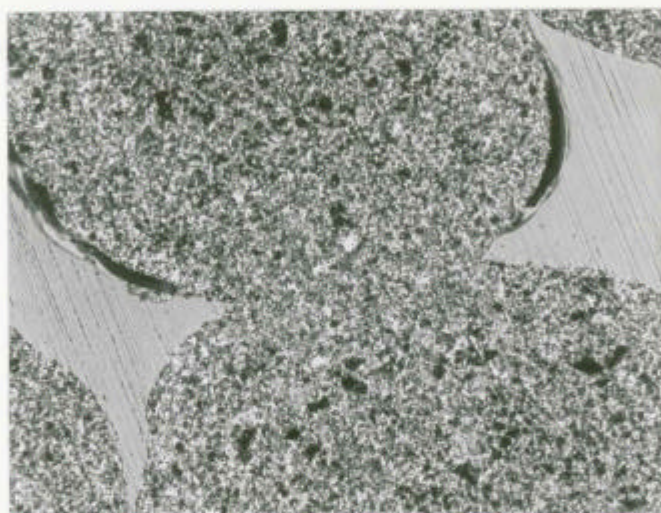
200  $\mu$ m

↑ はネック長測定粒子焼結部

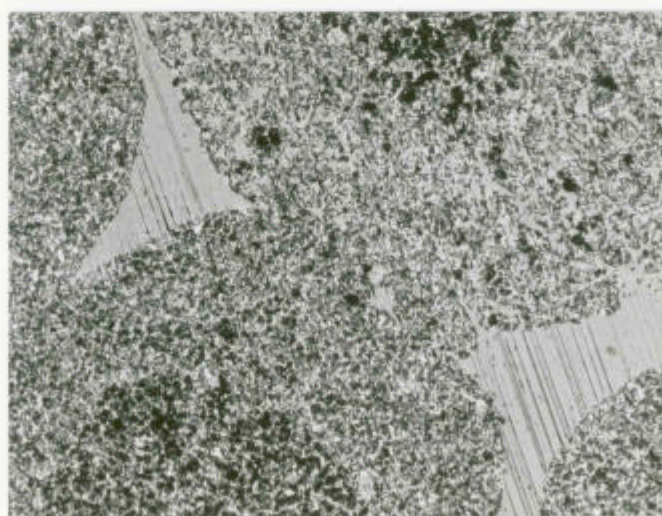
写真 3.4-2 熱伝導度測定試験後の粒子焼結部（縦断面）金相写真(1)



上面近傍



中間部



下面近傍

100  $\mu$ m

写真 3.4-3 熱伝導度測定試験後の粒子焼結部（縦断面）金相写真(2)

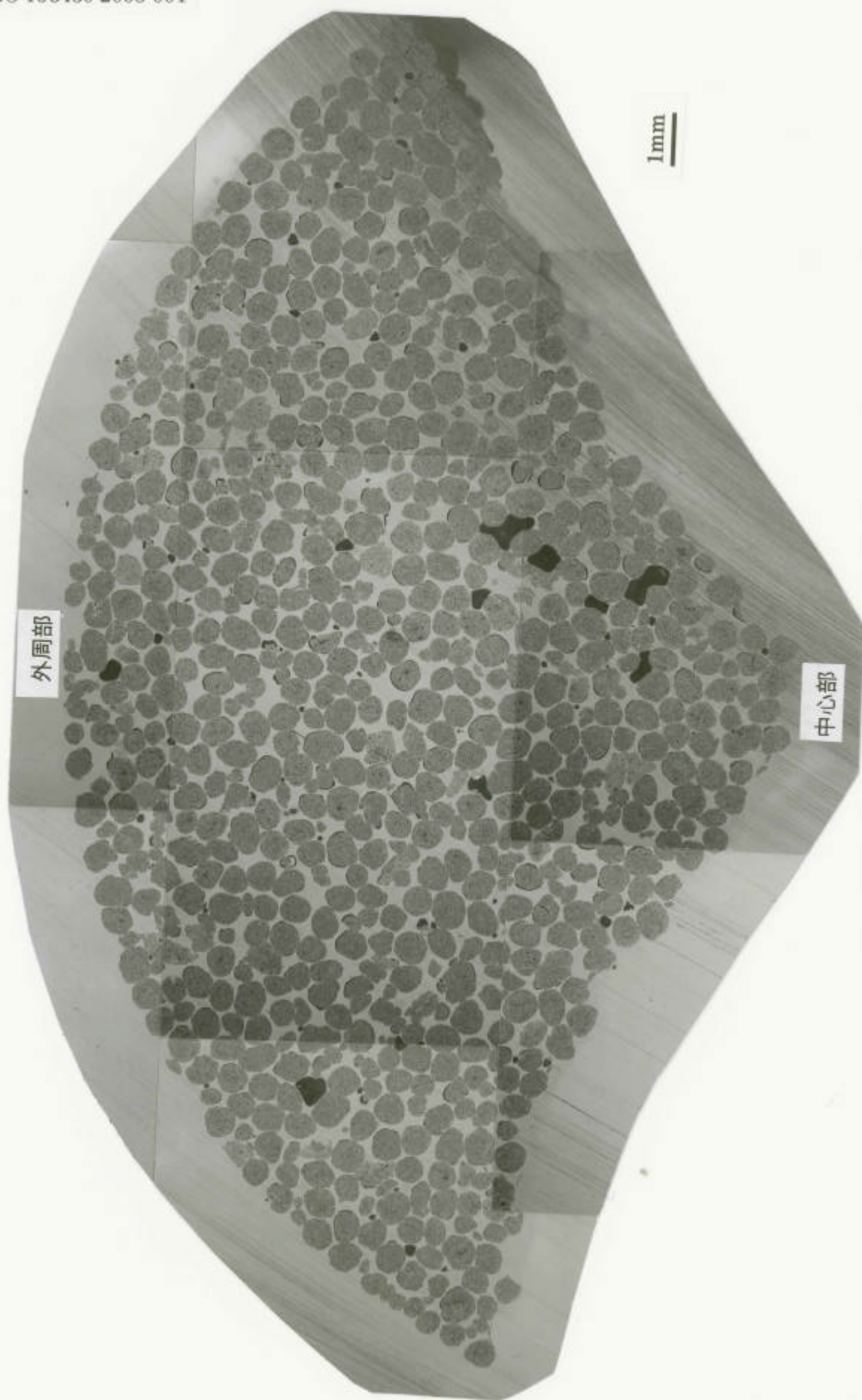
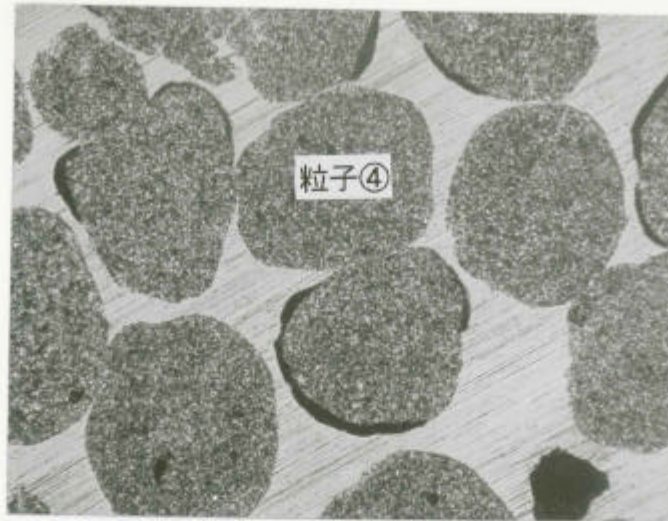
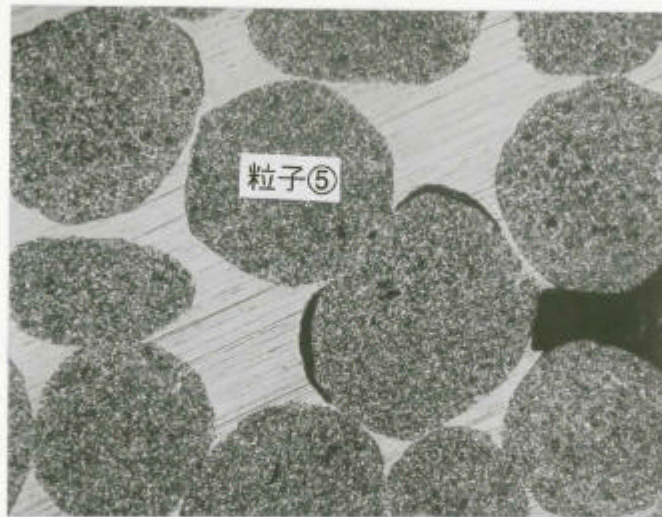


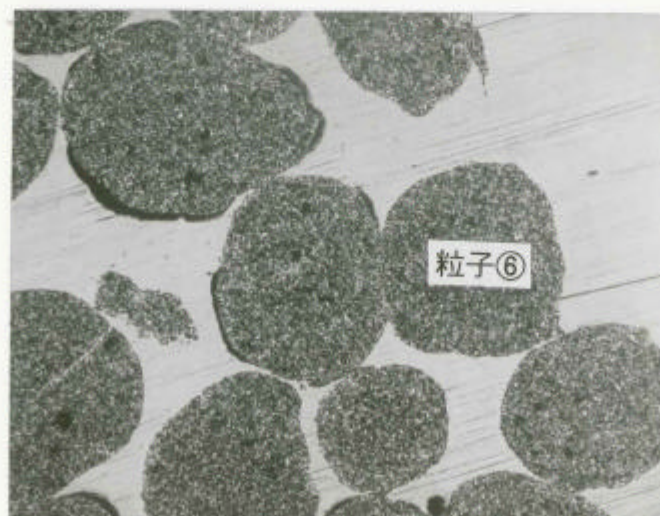
写真 3.4-4 熱伝導度測定試験後の粒子焼結体 (横断面、肉厚中心近傍) 金相写真



外周部



中間部

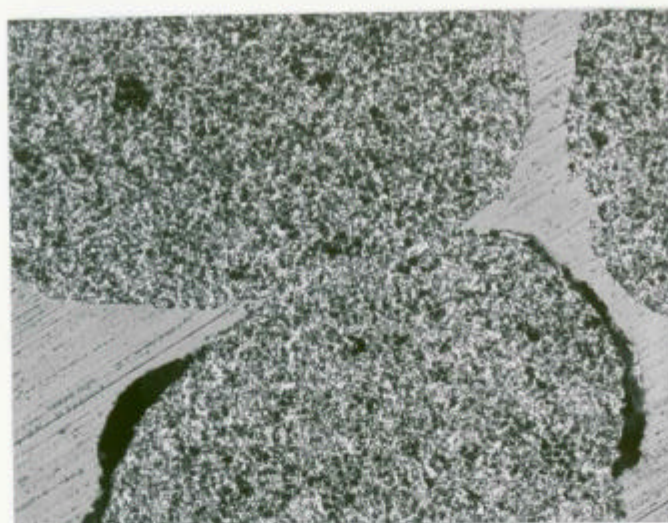


中心部

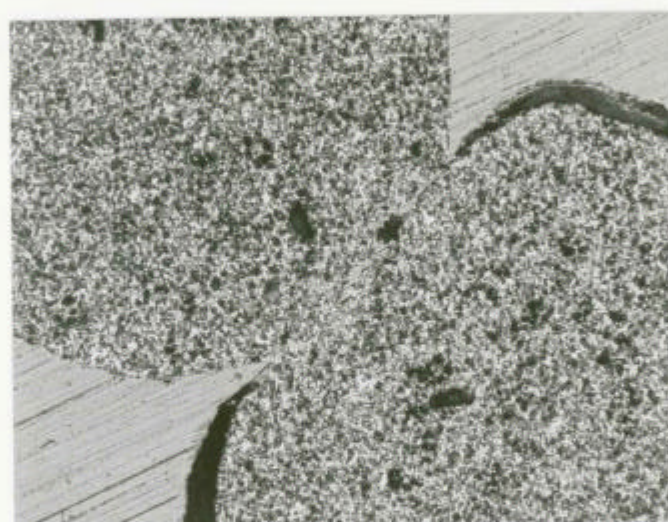
200  $\mu$ m

↑ はネック長測定粒子焼結部

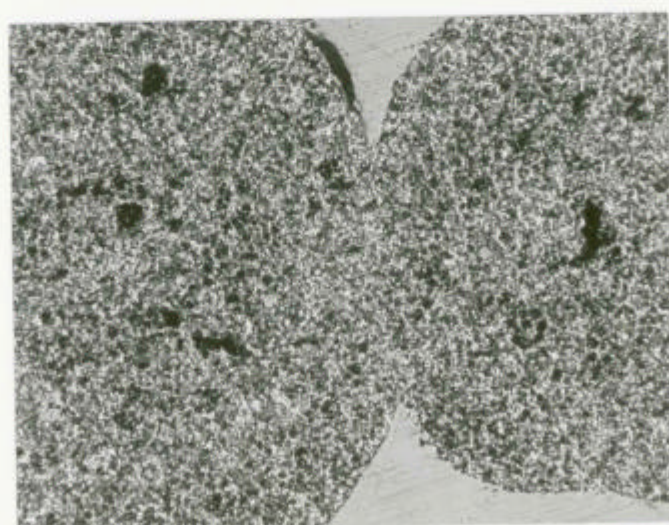
写真 3.4-5 熱伝導度測定試験後の粒子焼結部（横断面）金相写真(1)



外周部



中間部



中心部

100  $\mu$ m

写真 3.4-6 熱伝導度測定試験後の粒子焼結部（横断面）金相写真(2)

#### 4. 考察

##### 4.1 標準試料による較正試験結果について

###### 1) 試料昇温特性

平板比較法熱伝導度測定装置における試料昇温速度は、開始後 2～3 分間で標準試料および測定試料ともに 500 に到達するものであることが確認された。また試料温度が定常となるのに要する時間（1 分間の 5 点の熱電対指示温度の変化が  $\pm 1$  以内となった時点）は、昇温時間を含めても 8～10 分であることより、迅速な熱伝導度測定が可能であることが判った。

###### 2) 径方向試料均温性

標準試料と測定試料の間の均熱板における中央部と径方向外周部の温度差は、最大でも 2.4 と、温度勾配の比較では試料径方向は肉厚方向の 1/30 以下となることが確認された。測定試料上面および標準試料下面は均温なプレートヒーターにより加熱され、試料内の径方向温度勾配はより小さくなると推定されることより、測定値への有意な影響はないものと考えられる。

###### 3) 試料肉厚の影響

試料上面及び下面を研磨により平滑とした肉厚 4mm の試料と 5mm の  $ZrO_2$  試料の熱伝導度測定値には有意な差は認められなかった。本結果をレファレンスとし、この範囲で厚さを変化させた  $UO_2$  粒子焼結体の熱伝導度測定により、熱伝導度測定値に及ぼす、粒子焼結体接触面の接触熱抵抗の影響を評価できるものと考えられる。

###### 4) 熱伝導度測定値の温度依存性

測定試料を石英ガラスとした試験 では、熱伝導度測定値は試料温度により文献値との差の程度は異なるが、全体として文献値と同様に温度上昇とともに増大する温度依存性を示した。また測定試料を  $ZrO_2$  とした試験 ~ 試験 においても、熱伝導度測定値は文献値と同様に温度上昇とともに下降する温度依存性を示した。試料温度により熱伝導度測定値と文献値との差の程度が異なる原因となる可能性のあるものとして、測定試料からの径方向の熱損失の影響が考えられるが、上記 2) 径方向試料均温性 に示したように、均熱板における中央部と径方向外周部の温度差は最大でも 2.4 と、測定値に有意な影響を及ぼすものとは考えられないことより、現時点では原因は特定できていない。

###### 5) 測定精度

測定試料に熱伝導度既知の試料（石英ガラス）を使用した熱伝導度測定値と石英ガラスの熱伝導度の比較により、熱伝導度 1.94～2.35(W / (m · K)) に対して、（標準誤差）は 0.08(W / (m · K))（約 3～4%）と評価された。

平板比較法熱伝導度測定装置による熱伝導度測定値の 95%信頼幅（2 ）は  $\pm 8\%$  と概算され

るが、熱拡散率測定に広く使用されているレーザーフラッシュ装置による測定においても、照射レーザー光の不均一性、試料からの熱損失、試料肉厚非平行度の影響等を含めると測定精度は5～10%程度<sup>5)</sup>とされており、本装置の上記測定精度は測定装置として許容範囲にあるものと考えられる。

#### 4.2 粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果について

##### 1) 100%TD UO<sub>2</sub>の熱伝導度<sup>6)</sup>との比較

約40%のネッキングを生じさせた粒子焼結体の熱伝導度測定値(気孔率37%)は温度範囲800～1100Kにおいて0.44～0.52(100%TD UO<sub>2</sub>熱伝導度に対する比)の値となった。

上記測定結果については、今後、粒子焼結体の厚さ、充填密度、ネック比等をパラメータとした熱伝導度測定試験により、検証を進めていくべきものと考えられる。

##### 2) 試験体内の径方向均温性について

表3.3-5の粒子焼結体の熱伝導度測定試験結果において、標準試料と測定試料の肉厚温度差合計が50(2条件)では中間均熱板の中心と外周部の熱電対指示値の差はともに±0.9、肉厚温度差合計が250(1条件)においても熱電対指示値の差は3.9と均温性は良好であることが確認された。但し、外周部の熱電対指示値が中心のものを上回っており、その原因として、試料とガードヒーターギャップ内に装荷した断熱材の形状および充填状態のバラつきにより、試料とガードヒーターギャップ内の軸方向および径方向熱流に不均一が生じた可能性が考えられる。

5. おわりに

粒子焼結体製作試験では、H13 年度実施の試験で得られた粒子焼結条件と粒子ネック比の関係をを用いて粒子焼結体を製作し、熱伝導度測定試験後の検査により、ほぼ目標どおりの粒子ネック比の焼結体が得られる事を確認した。

平板比較法熱伝導度測定装置を製作し、He 雰囲気下において、測定試料平均温度を 800 以上に昇温し、試料肉厚温度差を 50 ~ 250 の範囲で任意に設定できる事を確認した。

標準試料による較正試験により、平板比較法熱伝導度測定装置による熱伝導度測定値の 95%信頼幅(2 $\sigma$ )は $\pm 8\%$ と評価された。

焼結密度 63%TD の粒子焼結体の温度範囲 800 ~ 1100K における熱伝導度として、1.56 ~ 1.85W/(m $\cdot$ K)の測定結果を得た。粒子焼結体の熱伝導度測定結果については、今後、粒子焼結体の厚さ、充填密度、ネック比等をパラメータとした熱伝導度測定試験により、検証を進めて行くべきものと考えられる。

(今後の課題)

粒子焼結体熱伝導度に及ぼす下記影響因子の把握

粒子ネック比

粒子充填状態(粒子サイズ、サイズ数、充填密度)

粒子焼結体厚さ

雰囲気(ガス種、圧力)



6 . 参考文献

- 1) 水野峰雄他、“振動充填燃料焼結体の熱伝導度測定試験(1)” - 試料作成方法の検討 - (核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書 JNC TJ8440 2002-003) (2002)
- 2) “化学便覧” 改訂3版 基礎編 日本化学会 丸善 (1984)
- 3) “熱物性ハンドブック” 日本熱物性学会編 養賢堂 (1990)
- 4) サムソノフ “最新酸化物便覧” 日ソ通信社 (1979)
- 5) 高橋洋一他、“レーザーフラッシュ法熱拡散率測定における新しい解析法 - 対数法 - の優位性”、熱測定 vol.15,No3,pp103 ~ 109 (1988)
- 6) 松本慎一郎、“高速原型炉燃料集合体及び炉心構成要素・設計用物性値集”, PNC ZN241 85-23,vol.1(1985)