

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 -

(核燃料サイクル機構 契約業務報告書)

2002 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

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)
2002

2002 年 2 月

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 -

(核燃料サイクル機構 契約業務報告書)

水野峰雄 高阪裕二 小川伸太

要 旨

本試験では熱伝導度測定用の振動充填燃料焼結体を製作する条件を把握するため、転動造粒法で作製した UO_2 粒子の円板状充填層をクリープ試験機を使用して高温に保持して定常荷重負荷をかけた粒子焼結試験を実施し、以下の結果を得た。

1700℃、7MPa の温度 / 圧縮荷重条件下で約 2 時間 30 分保持する事により、充填粒子層に 4.5～4.7% の焼きしまり歪量が生じ、粒子ネック比：約 40% まで粒子間焼結を進行させられる事が判った。

焼きしまり歪量が大きくなると粒子ネック比が大きくなる関係が確認された事より、基本的に焼きしまり歪量の調整により目的とする粒子ネック比の焼結体を製作できる見通しを得た。

粒子充填層の焼きしまり歪量は充填粒子粒径に依存し、粒径が大きい程、焼きしまり歪量は大きくなった。これは粒径増大による接触点数減少に伴う局所応力の増大によるものと考えられた。

充填粒子の粒径が小さくなると、粒子充填層肉厚（荷重負荷）方向に比して半径方向の粒子ネック比が小さくなり、粒子が分離し易くなる傾向が認められた。

焼結試験前後の結晶粒径測定結果より、粒子焼結による結晶粒径の有意な変化は認められなかった。

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：核燃料サイクル機構 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 2002

Thermal conductivity measurement of sintered Vibro-packed fuel (1)
- Study on sample preparation method -

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

Mineo Mizuno , Yuji Kosaka , Shinta Ogawa

Abstract

An experimental study was carried out in order to grasp the sintering condition of the Vibro-packed fuel bed. A disc shaped bed of UO_2 particles manufactured by the tumbling granulation method was sintered in constant load and temperature using a creep examination machine. The following results were obtained.

Sintering for about 2 hours and 30 minutes under the temperature of 1700 and the compression load condition of 7MPa generated 4.5 - 4.7% strain of the bed and about 40% neck ratio between particles.

Larger neck ratio was observed in larger sintering strain bed. This result implies the aimed neck ratio can be prepared by the adjustment of the sintering strain.

Sintering strain of the bed was depend on the particle size. In case of the large size particle, sintering strain became large. It was considered that it was based on the increase of local stress caused by the reduction of contact points according to particle diameter increase.

When the particle diameter becomes small, the particle neck ratio perpendicular to the load direction became small in comparison with the load direction, and the tendency that a particle becomes easy to separate was recognized.

From the grain size measurement result of particle before and after a sintering experiment, no significant change of the crystal grain size was recognized.

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 粒子焼結試験	1
2.2.1 試験装置	1
2.2.2 試験方法及び条件	1
2.2.3 評価	2
3 . 試験結果	7
3.1 試験用粒子の検査	7
3.2 粒子焼結試験	7
4 . 考察	34
5 . おわりに	40
付録	41

表目次

表 2.1 クリーブ試験機 装置仕様	3
表 2.2 粒子焼結試験条件	4
表 3.1 焼結試験用粒子の検査結果	10
表 3.2 粒子焼結試験における歪量測定結果	10
表 3.3 粒子焼結試験における粒子ネック比測定結果	11
表 3.4 焼結試験前後の粒子結晶粒径測定結果	12
表 4.1 粒子焼結体のネック比と焼きしまり歪量の関係	37

図目次

図 2.1 クリーブ試験機測定原理図	5
図 2.2 粒子焼結試験における試験体構造	6
図 3.1 予備試験における試験体温度履歴及び歪量変化	13
図 3.2 本試験における試験体温度履歴及び歪量変化	14
図 4.1 粒子ネック比の焼きしまり歪量依存性評価模式図	38
図 4.2 粒子ネック比の焼きしまり歪量依存（解析値）と試験データの比較	39

写真目次

写真 3.1	粒子（粒径：600～710 μm ）の外観 SEM 写真	15
写真 3.2	粒子（粒径：500～600 μm ）の外観 SEM 写真	15
写真 3.3	粒子（粒径：425～500 μm ）の外観 SEM 写真	16
写真 3.4	試験装置外観写真	17
写真 3.5	予備試験後の試験装置内部写真	17
写真 3.6	予備試験後の試験体外観写真	17
写真 3.7	予備試験後の試験体内粒子充填層上面写真	18
写真 3.8	予備試験後の粒子充填層外観(1)	18
写真 3.9	予備試験後の粒子充填層外観(2)	18
写真 3.10	予備試験後の粒子充填層下面	19
写真 3.11	予備試験後の粒子充填層側面	19
写真 3.12	予備試験後の粒子充填層破面外観	19
写真 3.13	本試験後の試験体内粒子充填層上面	20
写真 3.14	本試験後の粒子充填層外観(1)	20
写真 3.15	本試験後の粒子充填層外観(2)	20
写真 3.16	本試験後の粒子充填層下面	21
写真 3.17	本試験後の粒子充填層側面	21
写真 3.18	本試験後の粒子充填層破面外観	21
写真 3.19	予備試験後の粒子充填層（縦断面）金相写真	22
写真 3.20	予備試験後の粒子充填層（横断面）金相写真	22
写真 3.21	予備試験後の粒子焼結部（縦断面）金相写真(1)	23
写真 3.22	予備試験後の粒子焼結部（縦断面）金相写真(2)	24
写真 3.23	予備試験後の粒子焼結部（横断面）金相写真(1)	25
写真 3.24	予備試験後の粒子焼結部（横断面）金相写真(2)	26
写真 3.25	本試験後の粒子充填層（縦断面）金相写真	27
写真 3.26	本試験後の粒子充填層（横断面）金相写真	27
写真 3.27	本試験後の粒子焼結部（縦断面）金相写真(1)	28
写真 3.28	本試験後の粒子焼結部（縦断面）金相写真(2)	29
写真 3.29	本試験後の粒子焼結部（横断面）金相写真(1)	30
写真 3.30	本試験後の粒子焼結部（横断面）金相写真(2)	31
写真 3.31	本試験使用粒子（焼結試験前）のエッチング後金相組織	32
写真 3.32	本試験使用粒子（焼結試験後）のエッチング後金相組織	33

1. はじめに

粒子充填燃料では粒子同士の焼結で粒子間接触面積が増大すると、実効的な熱伝導率向上効果により燃料温度は低下するものと考えられる。

本試験では熱伝導度測定用の振動充填燃料焼結体を製作する条件を把握するため、転動造粒法で作成した UO_2 球状粒子を使用して「試料作成方法の検討」を実施した。

2. 実施内容

2.1 試験用粒子の検査

転動造粒法により作成した試験用 UO_2 球状粒子について、

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

の実施により、下記性状を含む粒子特性を確認した。

- ・ 粒子径：80～800 μm 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ほぼ 95%TD である事。

2.2 粒子焼結試験

2.2.1 試験装置

粒子焼結試験には図 2.1 に測定原理図、表 2.1 に装置仕様を示す、クリープ試験機を使用する。 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 に示す。

2.2.2 試験方法及び条件

粒子焼結試験は所定試験条件での焼結状態（粒子ネック比）の測定及び粒子ネック比に及ぼす粒子サイズの影響把握を目的として 1) 予備試験と 2) 本試験 に分けて 2 回実施した。また本試験用粒子については金相試験により焼結試験前後の結晶粒径を測定した。

主要な試験条件は表 2.2 にまとめた。粒子焼結試験手順を以下に示す。

UO_2 球状粒子を焼結試験治具内（内径：30.1mm）に約 5mm の厚さとなると概算された 24g を充填し、充填高さ及び充填率を測定する。（充填率を約 65% と仮定して、充填層体積(3.5cc)及び粒子焼結密度：95%TD、理論密度：10.96g/cm³ より 粒子充填量は $3.5 \times 0.65 \times 10.96 \times 0.95 =$ 約 24g)

UO₂ 球状粒子を充填した焼結試験治具をクリーブ試験機にセットし、雰囲気を UO₂ の化学量論比が変化することのない安全ガス (Ar - 5%H₂) に置換し一定流量 (~ 80cc/min) でガスフローさせる。

焼結試験体を所定試験温度まで昇温する。試験温度は UO₂ ペレットの製造実績より、UO₂ 粒子の焼結を進行させる上で十分と考えられ、また装置の最高使用温度 (1800) 以下である 1700 とする。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。)

試験温度到達後、焼結試験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。初期負荷荷重は先行試験結果 (付録 1) を参考に試験体への負荷応力が約 7MPa となる、500kg に設定する。

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、焼結試験体に衝撃が加わらない様に行う。

焼結試験は粒子焼きしまり歪量及び焼結程度に及ぼす粒子サイズの影響を調べるため、先行試験と同一試験時間(154 分間)実施する。所定試験時間到達後に荷重負荷を中止し、降温を開始する。

負荷荷重は最小 0.1kg の重錘で微調整できる。(負荷荷重は重錘重量の 10 倍となるので、荷重増大量の最小単位は 1kg)

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

焼結試験体を円板中心近傍を通る線で分割した上、縦断面及び横断面金相試料を調製し、金相試験により粒子の焼結状態 (ネック比) を測定する。

2.2.3 評価

試験後の焼結試験体の外観観察及び断面金相試験により焼結状態の均一性、大粒子ネック比、微細クラックの発生状況等について評価する。

また粒子焼きしまり歪量と粒子ネック比の関係に及ぼす粒径の影響を評価する。

表 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 ₂ ,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 デジタル ）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±10μm）
試料温度及び変位記録 方法	チャートレコーダー	

表 2.2 粒子焼結試験条件

試験名	試験温度 ()	試験時間 (min)	負荷荷重 (kg)	負荷応力 (MPa)	使用粒子	初期充 填層厚 (mm)	初期充 填密度*2 (%TD)
予備試験	1700	154	500	7.0	粒径 500 ~ 600 μ m (24g)	4.85	63.5
本試験	1700	154	500	7.0	粒径 425 ~ 500 μ m (24g)	4.90	62.8
先行試験 (参考)	1700	154	500	7.0	粒径 300 ~ 425 μ m (24g)	4.47*1	68.8
備考	*1 焼結試験後の焼結体厚さ実測値 (4.30mm) + 焼きしまり歪量 (0.17mm) より算出 *2 充填層直径: 30.1mm (治具クリアランス 0.1mm を含む) として計算 ・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% H ₂ フロー (約 80mL/min)						

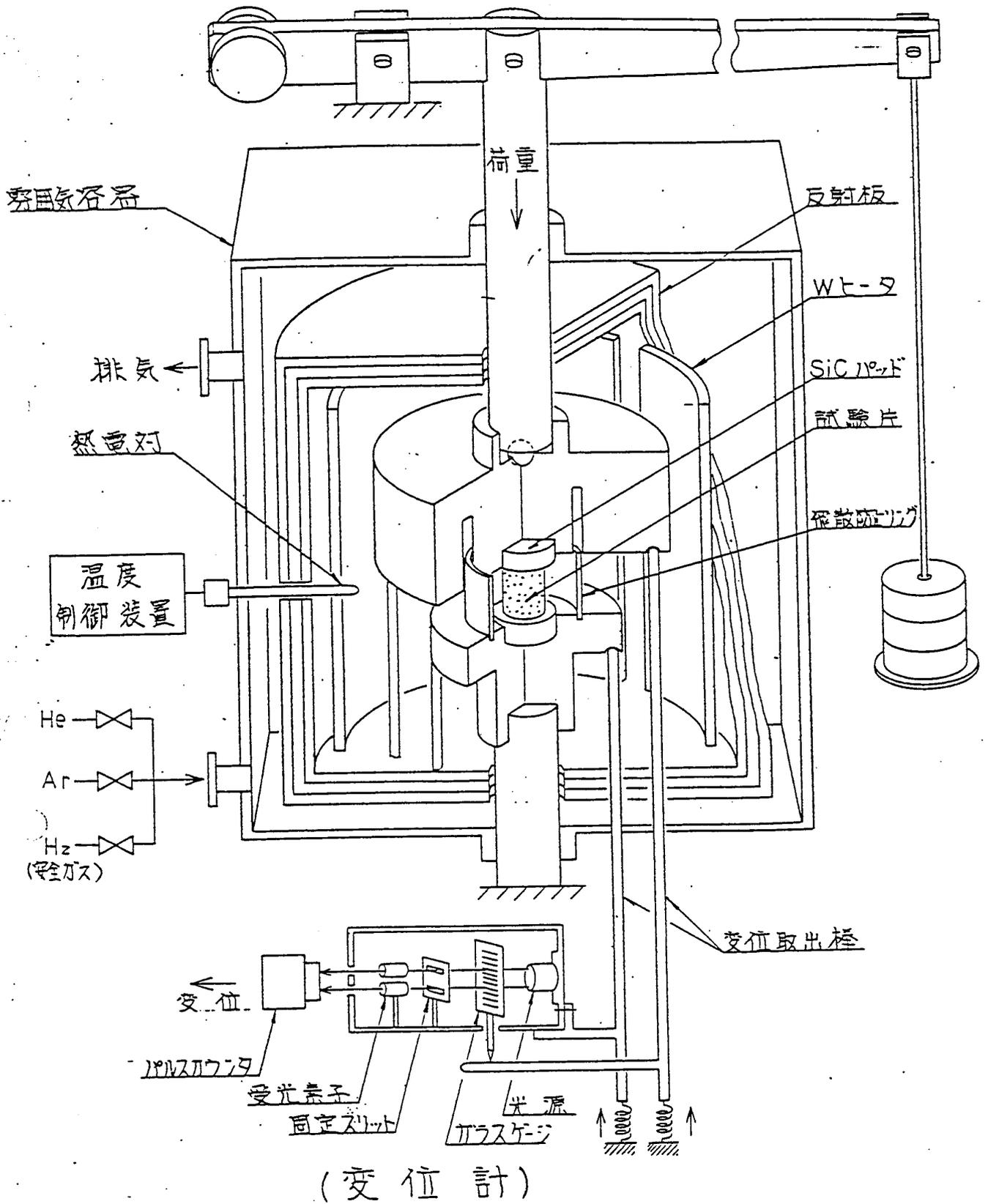


図 2.1 クリープ試験機測定原理図

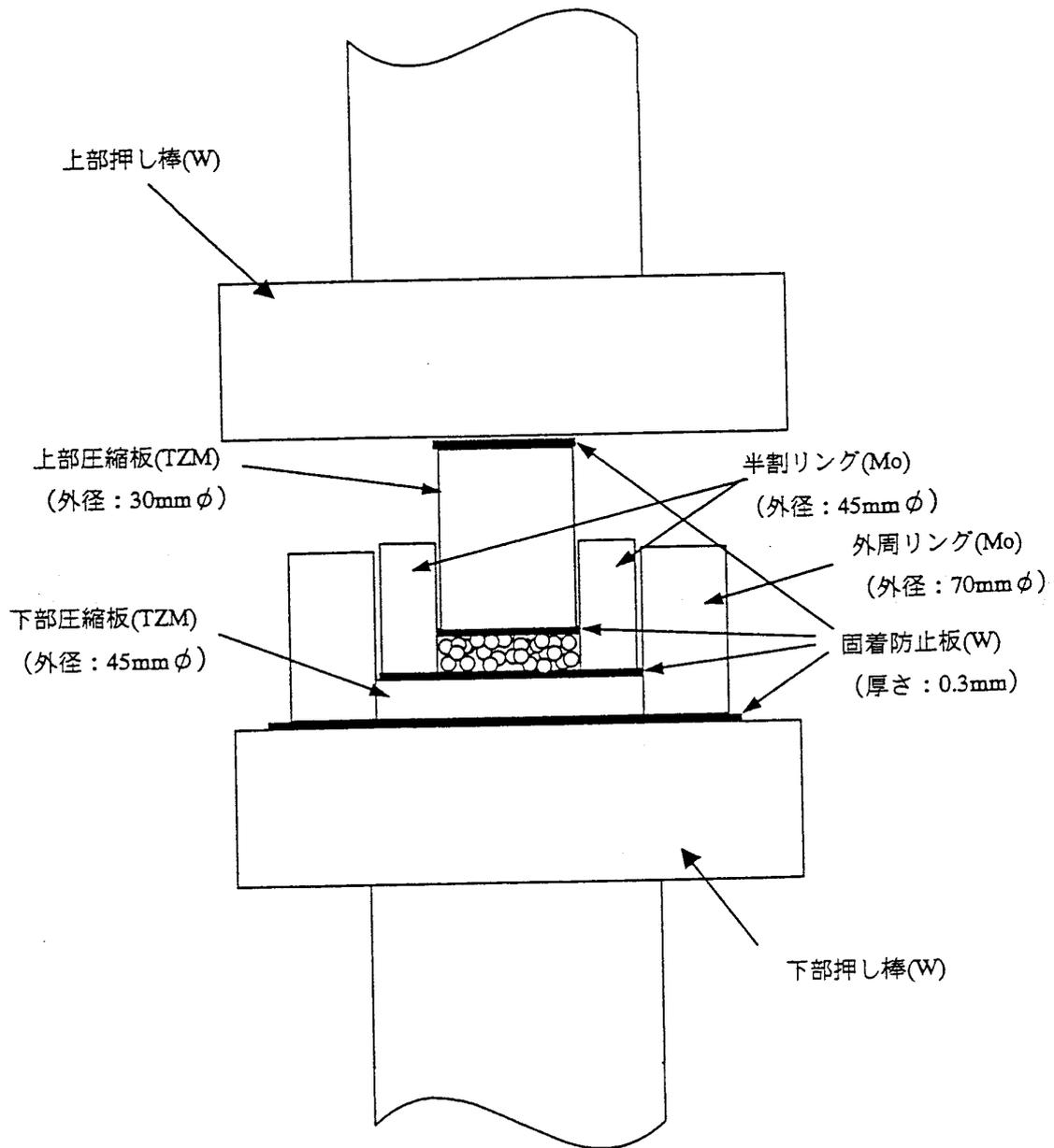


図 2.2 粒子焼結試験における試験体構造

3. 試験結果

3.1 試験用粒子の検査

試験用粒子の液浸密度測定結果，比表面積測定結果等を表 3.1 に示す。

粒子 ~ の外観SEM写真を写真 3.1~写真 3.3 に示すが，粒子形状には大きな差違は認められなかった。

3.2 粒子焼結試験

(試験体温度履歴及び歪量)

- ・ 予備試験及び本試験における試験体温度履歴及び歪量変化をそれぞれ図 3.1，図 3.2 に示す。

図 3.1 では荷重負荷時の初期歪量は 0.15mm と先行試験結果（付録資料）における 0.28mm に比較して約 1/2 となった。また図 3.2 における荷重負荷時の初期歪量は 0.23mm と上記の中間の値を示した。これらの初期歪量は充填粒子径が小さい程大きくなる関係にあり，その理由として，小粒径粒子では粒子接触点数が多いため 1 接触点当たりの粒子間接触力が小さくなり，移動し易かった事が考えられる。

- ・ 予備試験における全歪量から荷重負荷時の初期歪量を除いた焼きしまり歪量は 0.23mm と先行試験時 0.17mm に比較して増大した。また本試験における焼きしまり歪量は 0.22mm と上記の中間の値を示し，荷重負荷時の初期歪量と同様に充填粒子径に依存する事が判った。これは充填粒子の径が増大した事により接触点数減少 局所応力の増大によるものと考えられる。
- ・ 試験後充填層密度の計算には焼結体厚さ測定により求めた試験後充填層厚を使用した。
- ・ 予備試験及び本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，並びに試験後充填層密度等を表 3.2 にまとめた。

(試験体の状態)

- ・ 予備試験実施後，試験体を試験装置から取り出す際の装置外観，装置内部の状況を写真 3.4~写真 3.6 に示す。写真 3.5 及び写真 3.6 では上部押し棒の下面に上部圧縮板が固着しているのが観察される。上部圧縮板はプライヤで軽い力を加える事で上部押し棒から分離した。本試験においても予備試験と同様に，試験後に上部押し棒の下面に上部圧縮板が固着しているのが観察された。

(粒子焼結体外観)

1) 予備試験

- ・予備試験における上部圧縮板を除いた試験体内の粒子充填層上面を写真 3.7 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。
- ・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 3.8 及び写真 3.9 に示す。写真 3.8 でダイス取り外し時に粒子が比較的多く分離した部分はダイスギャップ部との対面位置に位置し、半径方向圧縮荷重が小さくなったためと考えられる。 充填層表面から分離脱落する粒子は先行試験時に比較して少なく、これは焼結がより進行したためと考えられる。
- ・写真 3.10 に示す粒子焼結体の下面外観、写真 3.11 に焼結体側面外観を示すが、下面では上面と同様に粒子の平坦化が観察された。 また粒子焼結体分割後の破面外観を写真 3.12 に示すが、破面には特に粒子が脱落し易くなっている部分はなく、粒子焼結体全体にわたり均一な焼結が生じているのが観察された。

2) 本試験

- ・本試験における上部圧縮板を除いた試験体内の粒子充填層上面を写真 3.13 に示す。 充填層上面の一部の粒子が上部圧縮板側の固着防止板に付着し、剥離しているのが観察された。 上部圧縮板側の付着粒子の付着状態は弱く、容易に固着防止板より分離した。
- ・写真 3.14 及び写真 3.15 に試験体より取り出した粒子充填層の外観を示す。写真 3.14 では予備試験と同様にダイスのギャップ部との対面位置部では粒子の分離が比較的多くなっており、また上面の一部には粒子数層の剥離が観察された。
- ・写真 3.16 及び写真 3.17 に示す粒子充填層下面及び側面には特に粒子が脱落し易くなっている部分は観察されなかった。
- ・粒子充填層は上方より中心部に局所的な力を加える事でほぼ同サイズの試料に分割された。 粒子充填層の破面外観を写真 3.18 に示す。

(粒子ネック比)

- ・予備試験及び本試験では充填粒子径以外の圧縮荷重、試験時間、温度を先行試験と同一とし、粒子ネック比への充填粒子粒径の影響を調べた。
- ・予備試験における粒子ネック比測定に使用した金相写真を写真 3.19 ~ 3.24 に示す。 粒子ネック比を算出するための粒子直径は写真 3.21 の縦断面（上面近傍、中間、下面近傍、倍率：x50）及び写真 3.23 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 3.22（縦

断面，上面近傍，中間，下面近傍）及び写真 3.24（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 1mm 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，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 3.3 に示した。

- ・本試験における粒子ネック比測定には金相写真 3.25～3.30 を使用した。粒子ネック比を算出するための粒子直径は写真 3.27 の縦断面（上面近傍，中間，下面近傍，倍率：x50）及び写真 3.29 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 3.28（縦断面，上面近傍，中間，下面近傍）及び写真 3.30（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 である。
- ・予備試験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：41%，横断面：41%）と同程度となり，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）近傍のものが得られた。
- ・これに対し本試験では縦断面と横断面でネック比に 2 倍以上の差違（縦断面ネック比：38%，横断面ネック比：17%）が生じ，予備試験に比較し粒子の分離が生じ易くなったものと推定される。

（結晶粒径）

本試験での充填粒子を対象に焼結試験前後の粒子結晶粒径を測定した。

結晶粒径測定に際しては研磨後にエッチング処理を行った試験前粒子（1 個）及び縦断面金相試料の粒子焼結部（1 カ所）の 300 倍金相写真を使用した。

測定対象とした試験前粒子及び粒子焼結部の金相写真（100 倍及び 300 倍）をそれぞれ写真 3.31 及び写真 3.32 に示す。また 300 倍金相写真より，長さ 80mm の直線が横切る粒界数測定を 15 測定 x 3 回 実施した。

結晶粒径測定結果を表 3.4 に示すが，粒子結晶粒径には 焼結試験前後で有意な変化は認められなかった。また 300 倍金相写真での比較においても粒子焼結部における結晶粒成長は特に認められなかった。

表 3.1 焼結試験用粒子の検査結果

粒子 No	粒径 (μm)	充填粒子重量(g)	密度(%TD)	比表面積 (m^2/g)	備考
	600 ~ 710 粒径中間値 : $655 \mu\text{m} \pm 7\%$	-	94.9	0.004	保管試料
	500~600 粒径中間値 : $550 \mu\text{m} \pm 9\%$	24.0	93.8	0.005	予備試験に使用
	425~500 粒径中間値 : $463 \mu\text{m} \pm 8\%$	24.0	94.9	0.005	本試験に使用

(参考) 先行試験における使用粒子粒径 : $300 \sim 425 \mu\text{m}$

表 3.2 粒子焼結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	試験後充填層厚 ^{*1}	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		初期充填密度	試験後充填密度 ^{*2}
	(min)	(kg)	(MPa)	(mm)	(mm)	(mm)	(%)	(mm)	(%)	(mm)	(%)	(%TD)	(%TD)
予備試験	154	500	7.0	4.85	4.60	0.15	3.1	0.38	7.8	0.23	4.7	63.5	66.9
本試験	154	500	7.0	4.90	4.65	0.23	4.7	0.45	9.2	0.22	4.5	62.8	66.2
先行試験(参考)	154	500	7.0	4.47	4.30	0.28	6.3	0.45	10.1	0.17	3.8	68.8	71.6

*1 焼結体厚さ実測値

*2 試験後充填層厚とダイス内径 : 30.1mm , 理論密度 : $10.96\text{g}/\text{cm}^3$ より算出。

表 3.3 粒子焼結試験におけるネック比測定結果

試験名	試験時間	負荷応力	粒子間焼結幅最大				粒子直径				ネック比			
	(min)	(MPa)	(μm)				(μm)				(%)			
			縦断面		横断面		縦断面		横断面		縦断面		横断面	
予備試験	154	7.0	上面	260	外周	220	上面粒子	520	外周粒子	510	上面	50	外周	43
			中間	200	中間	120	中間粒子	580	中間粒子	550	中間	34	中間	22
			下面	230	中心	230	下面粒子	590	中心粒子	400	下面	39	中心	58
											平均	41 ± 7*	平均	41 ± 10*
本試験	154	7.0	上面	150	外周	70	上面粒子	550	外周粒子	510	上面	27	外周	14
			中間	180	中間	100	中間粒子	510	中間粒子	480	中間	35	中間	21
			下面	270	中心	80	下面粒子	520	中心粒子	500	下面	52	中心	16
											平均	38 ± 10*	平均	17 ± 3*

* 3データの標準偏差

表 3.4 焼結試験前後の粒子結晶粒径測定結果

	焼結試験前 結晶粒径 (μm)	焼結試験後 結晶粒径 (μm)
第 1 回測定	17.2	15.4
第 2 回測定	18.1	16.9
第 3 回測定	17.2	18.5
平均値	17.5	17.0

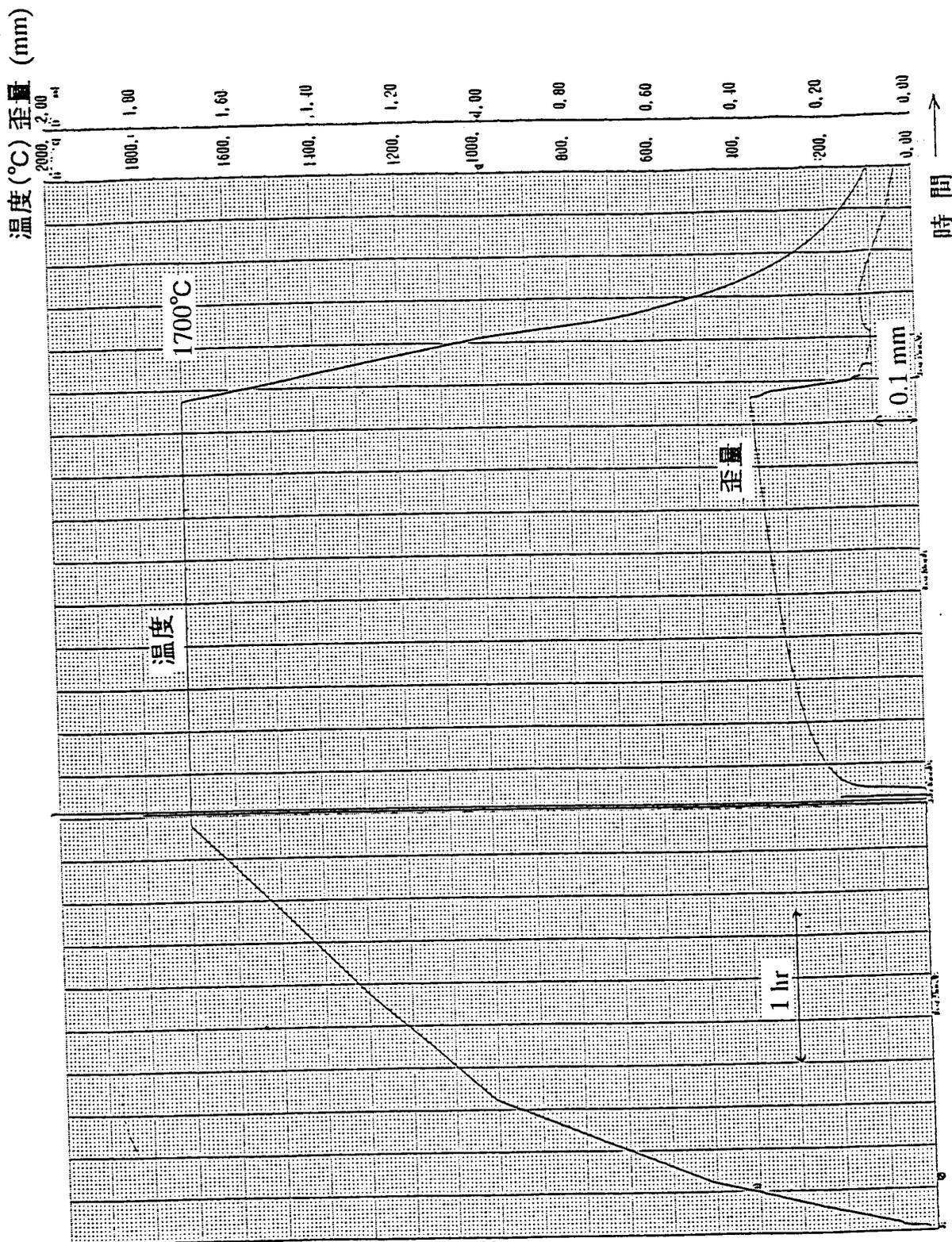


図 3.1 予備試験における試験体温度履歴及び歪量変化

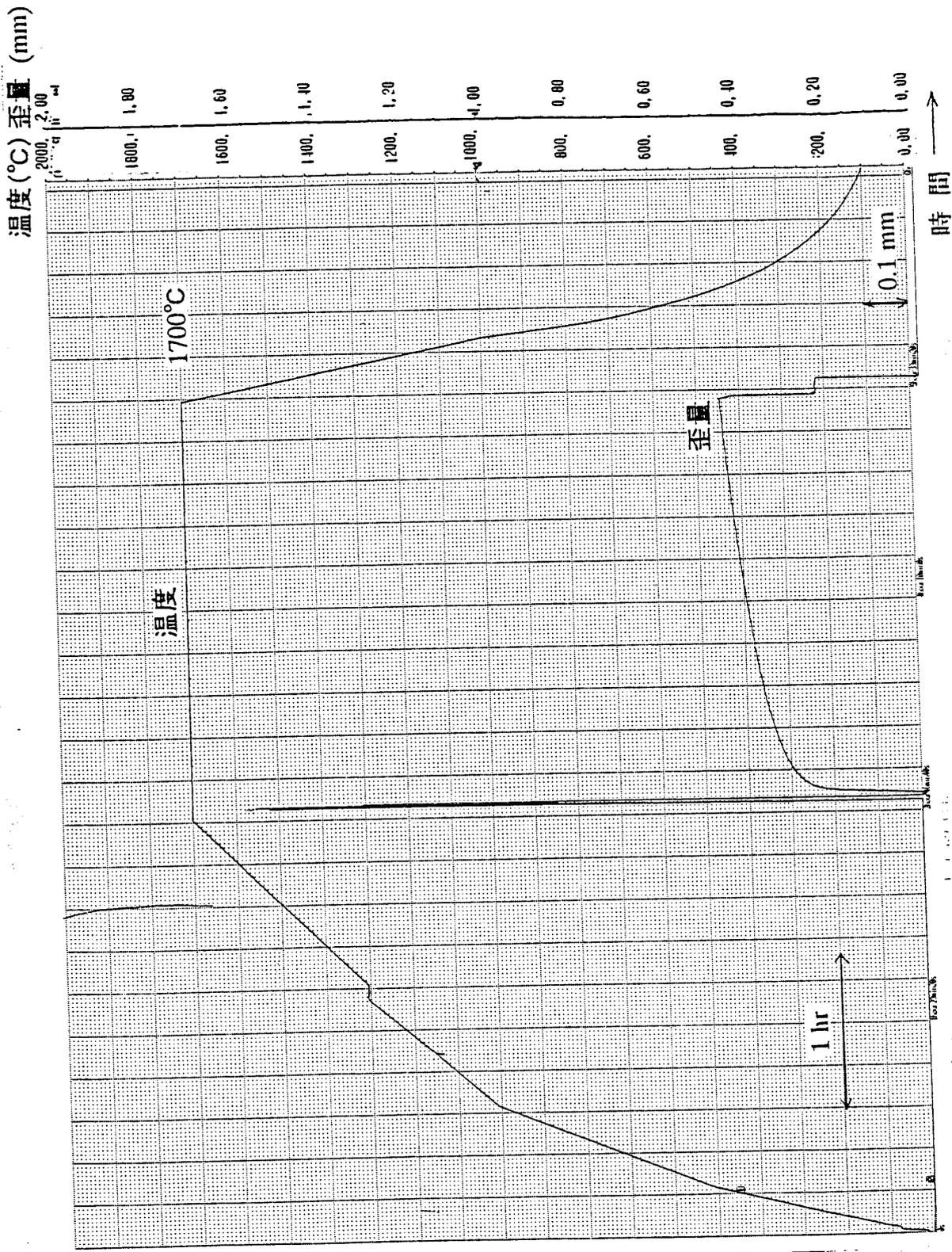


図 3.2 本試験における試験体温度履歴及び歪量変化



写真 3.1 粒子① (粒径 : 600~710 μ m) の外観SEM写真

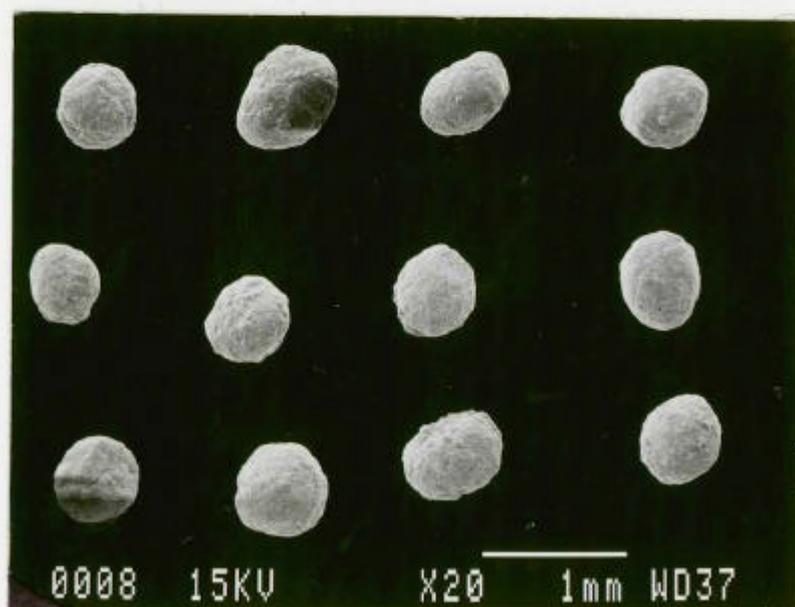


写真 3.2 粒子② (粒径 : 500~600 μ m) の外観SEM写真

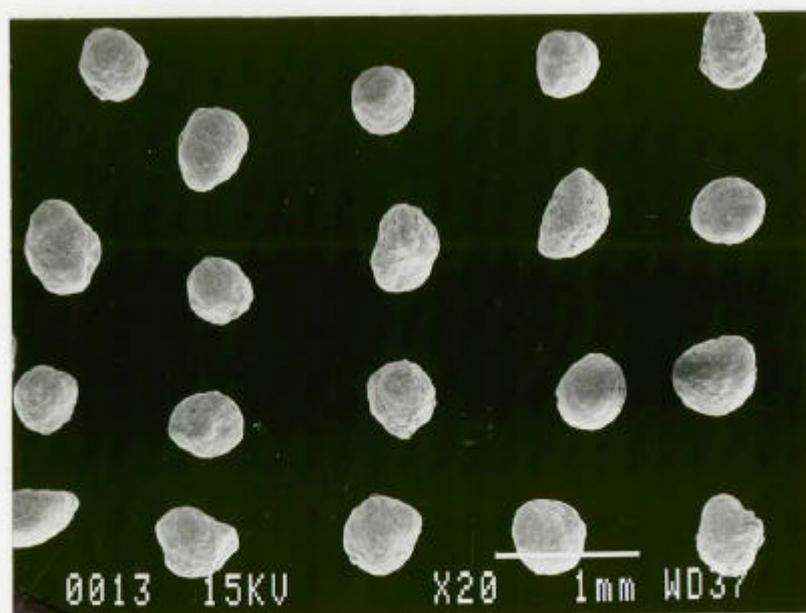


写真 3.3 粒子③ (粒径 : 425~500 μ m) の外観SEM写真



写真 3.4 試験装置外観

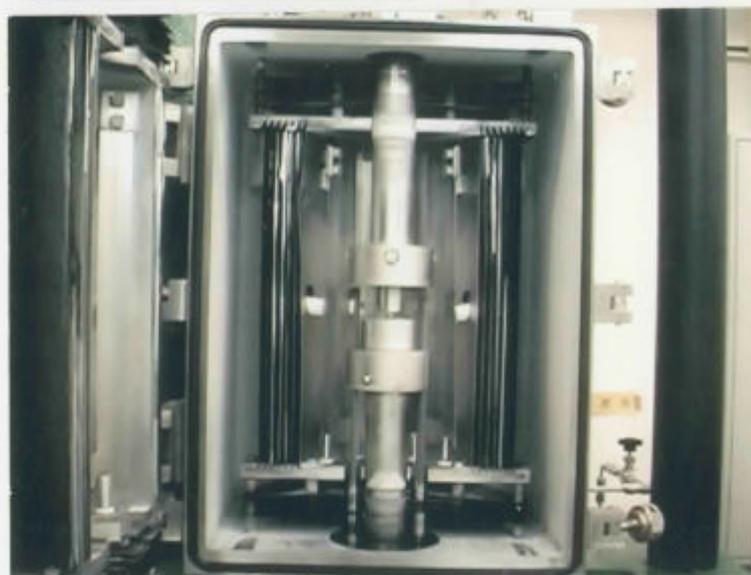


写真 3.5 予備試験後の試験装置内部



写真 3.6 予備試験後の試験体外観



写真 3.7 予備試験後の試験体内粒子充填層上面

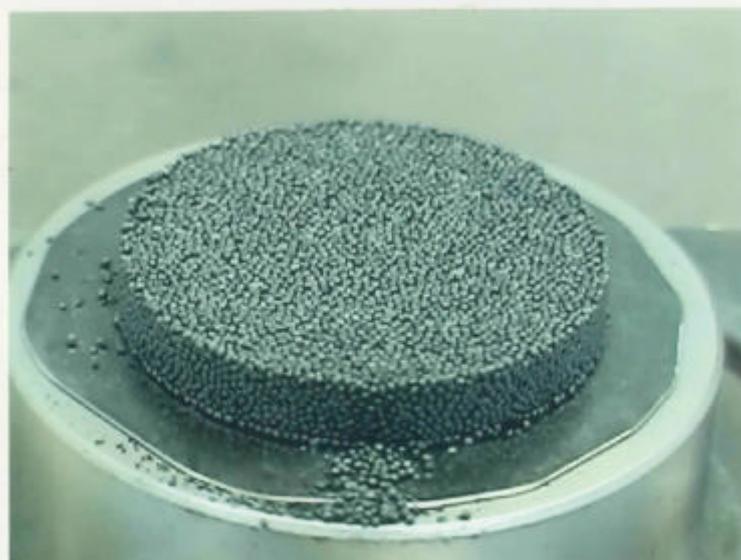


写真 3.8 予備試験後の粒子充填層外観(1)

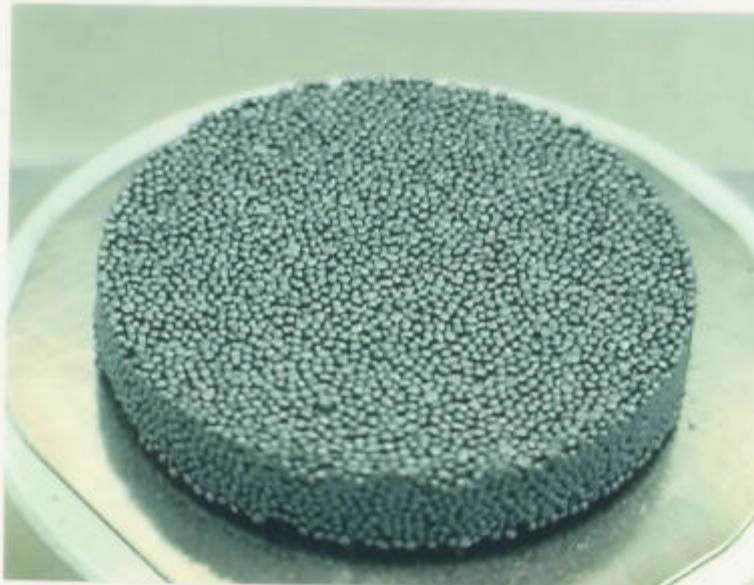


写真 3.9 予備試験後の粒子充填層外観(2)

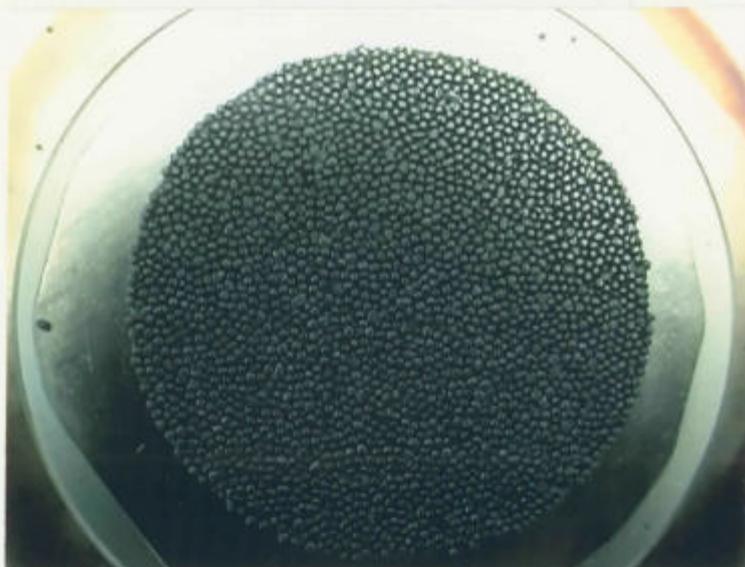


写真 3.10 予備試験後の粒子充填層下面

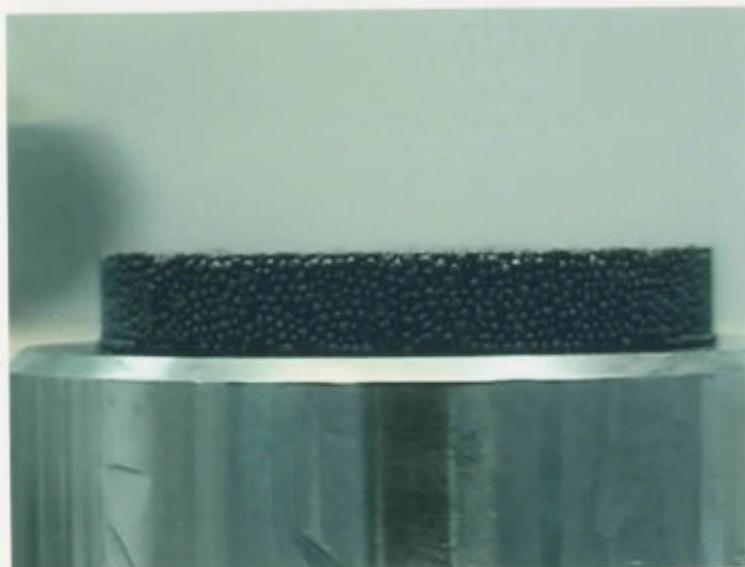


写真 3.11 予備試験後の粒子充填層側面

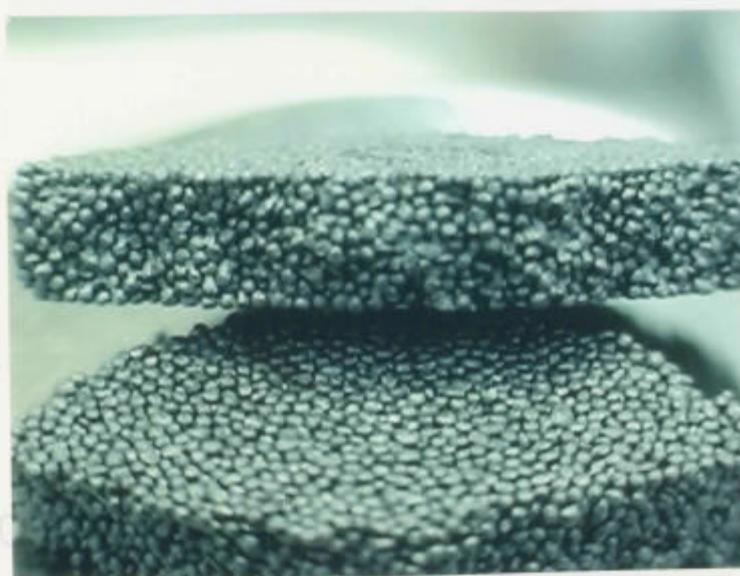


写真 3.12 予備試験後の粒子充填層破面外観



写真 3.13 本試験後の試験体内粒子充填層上面



写真 3.14 本試験後の粒子充填層外観(1)



写真 3.15 本試験後の粒子充填層外観(2)

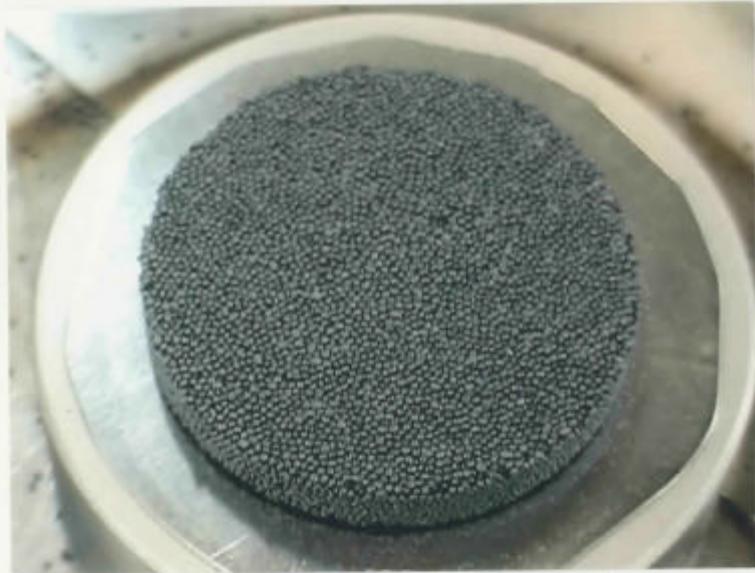


写真 3.16 本試験後の粒子充填層下面

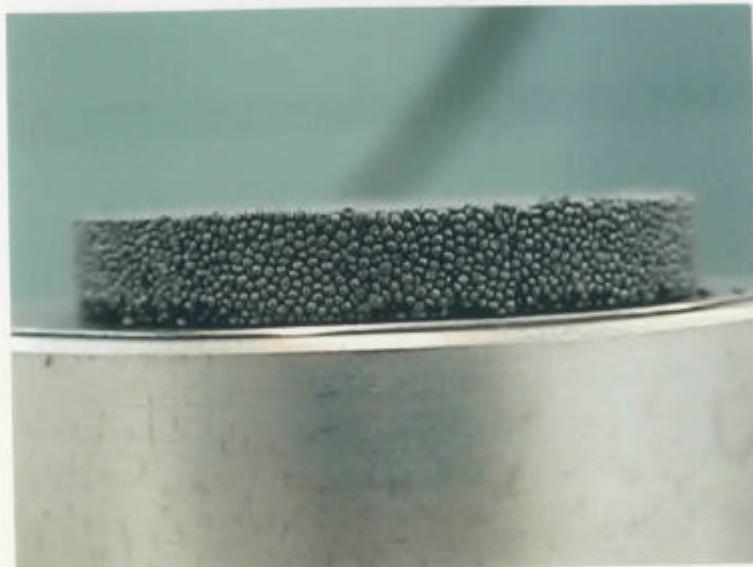


写真 3.17 本試験後の粒子充填層側面

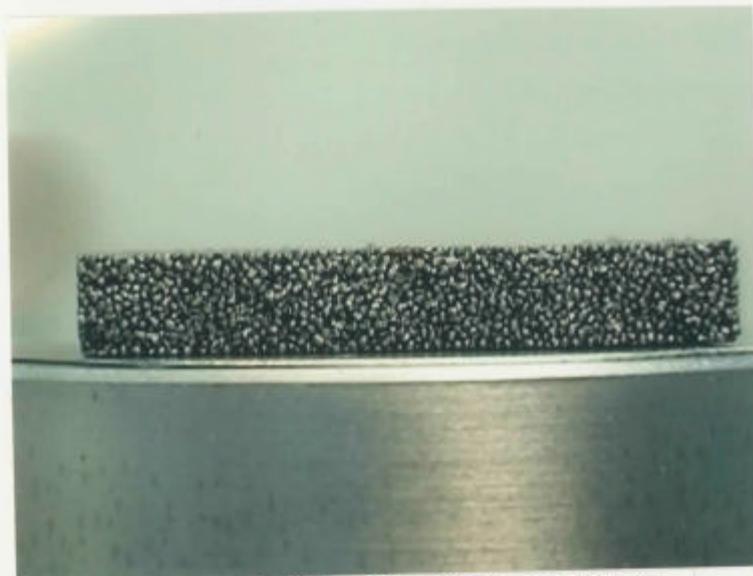
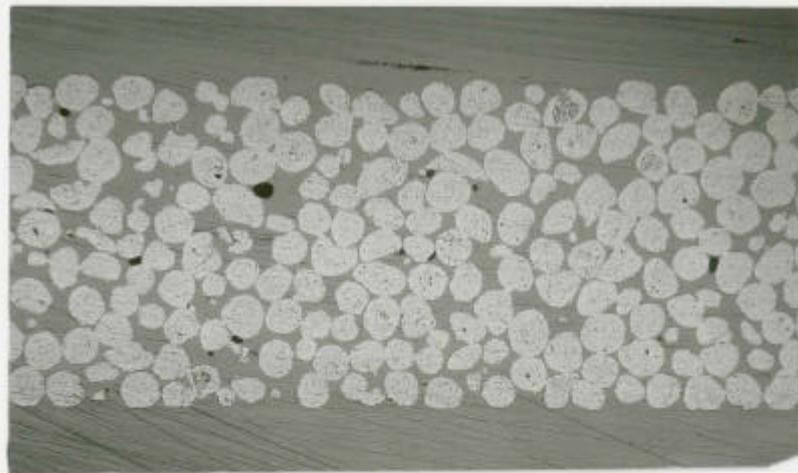


写真 3.18 本試験後の粒子充填層破面外観

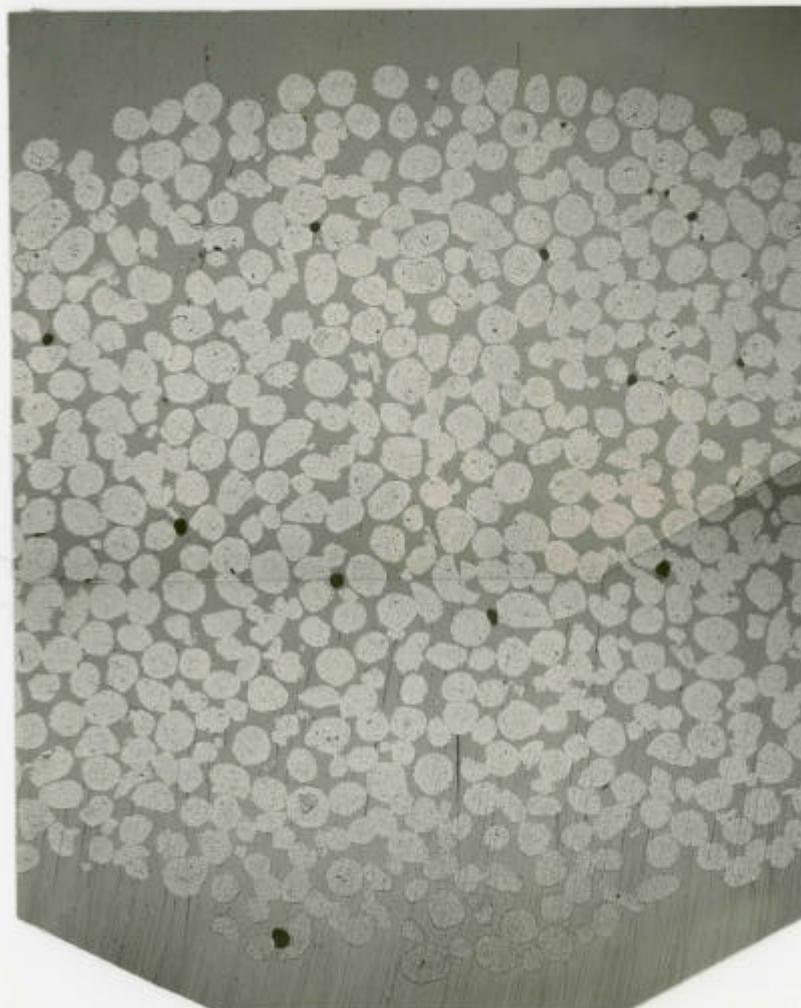


上面

下面

1mm

写真 3.19 予備試験後の粒子充填層(縦断面)金相写真



外周部

中間部

中心部

1mm

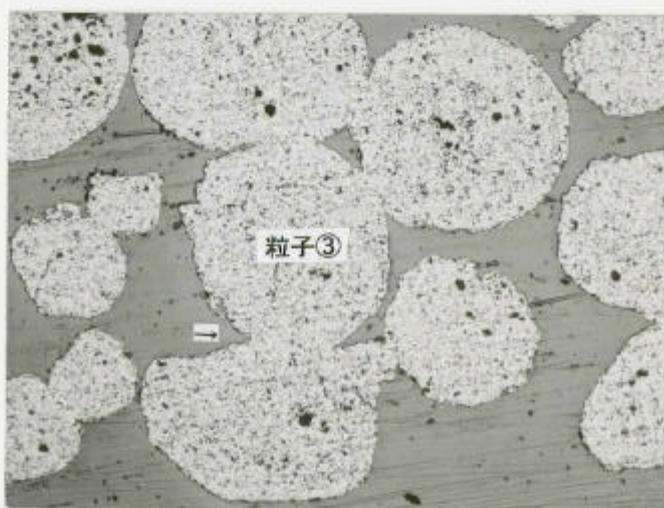
写真 3.20 予備試験後の粒子充填層(横断面)金相写真



上面近傍



中間部

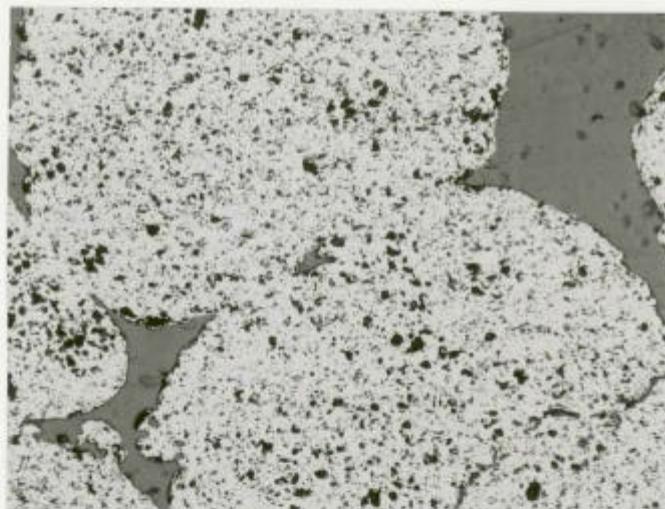


下面近傍

↑は測定粒子焼結部

200 μ m

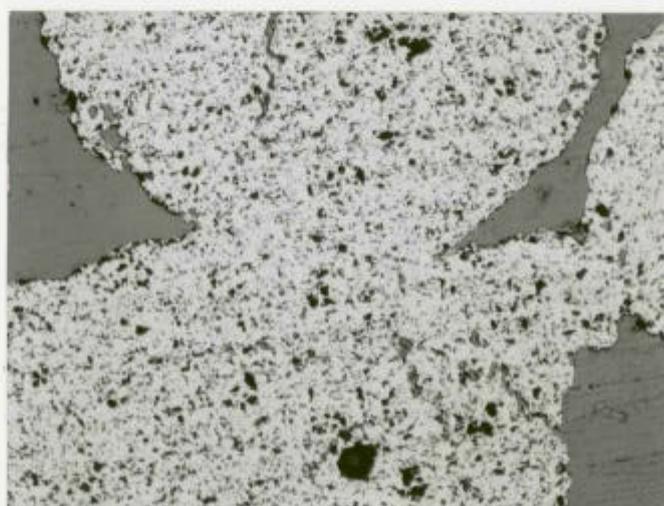
写真 3.21 予備試験後の粒子焼結部(縦断面)金相写真(1)



上面近傍



中間部



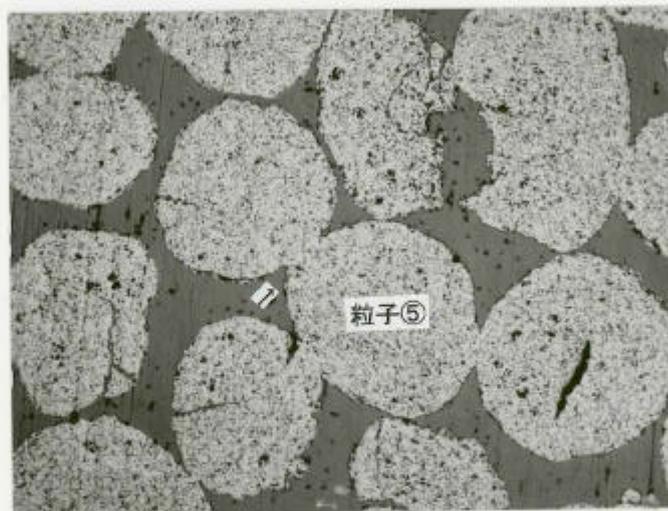
下面近傍

100 μ m

写真 3.22 予備試験後の粒子焼結部(縦断面)金相写真(2)



外周部



中間部

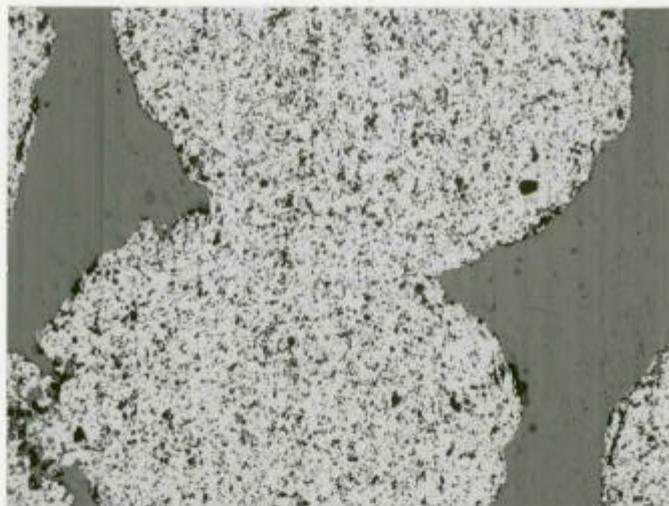


中心部

↑は測定粒子焼結部

200 μm

写真 3.23 予備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 μm

写真 3.24 予備試験後の粒子焼結部(横断面)金相写真(2)

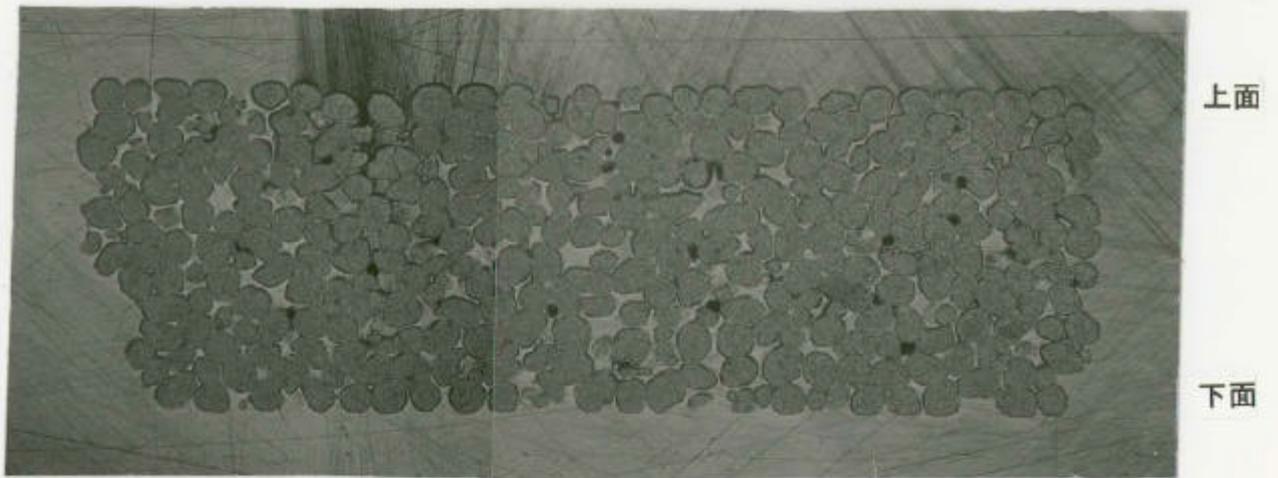


写真 3.25 本試験後の粒子充填層(縦断面)金相写真

1mm

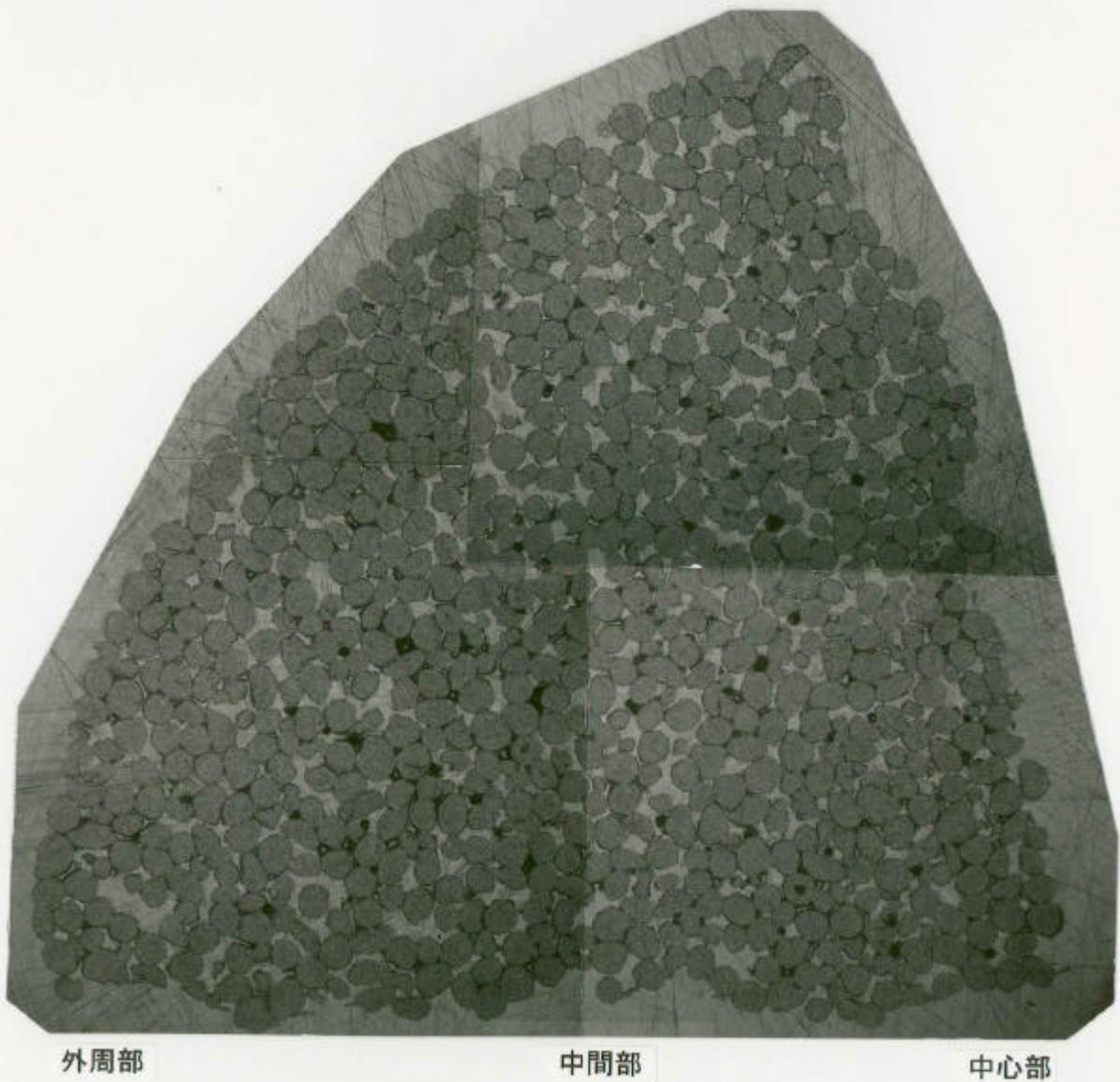
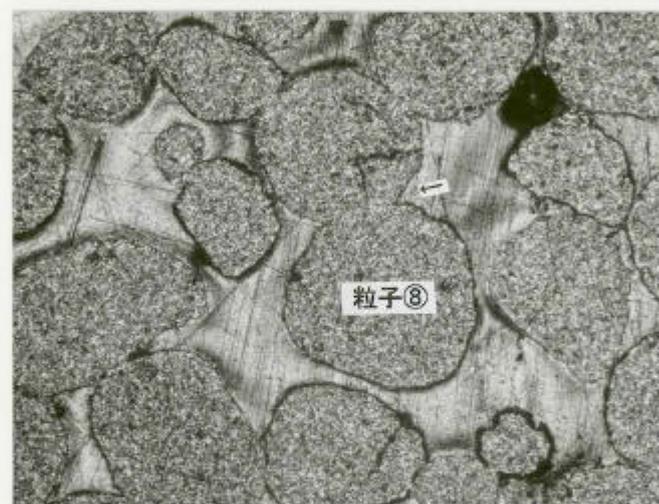


写真 3.26 本試験後の粒子充填層(横断面)金相写真

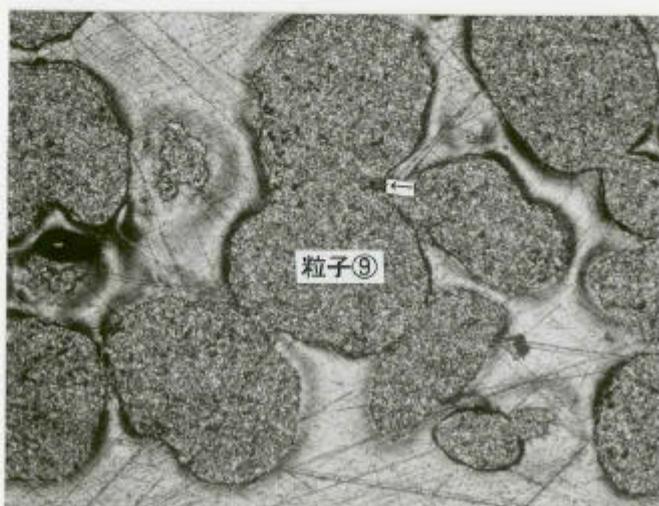
1mm



上面近傍



中間部

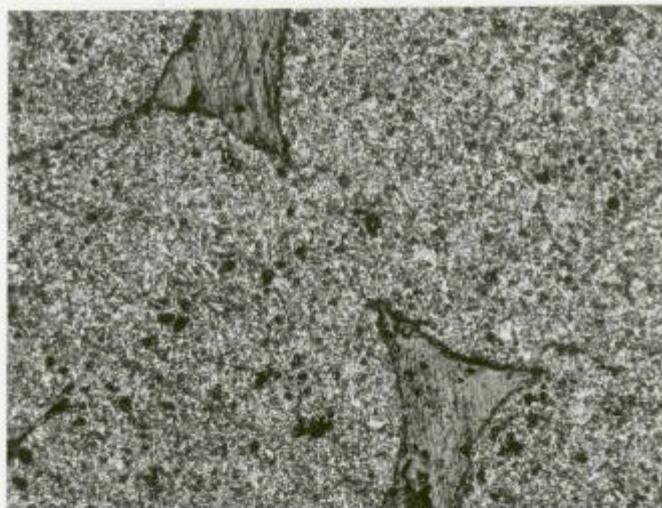


下面近傍

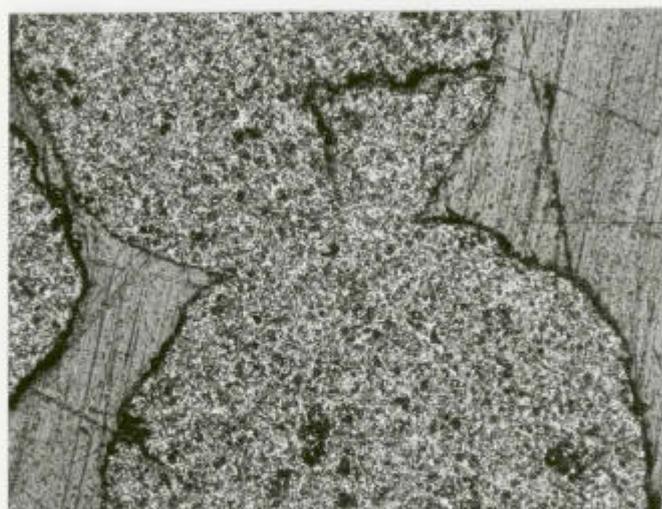
↑は測定粒子焼結部

200 μ m

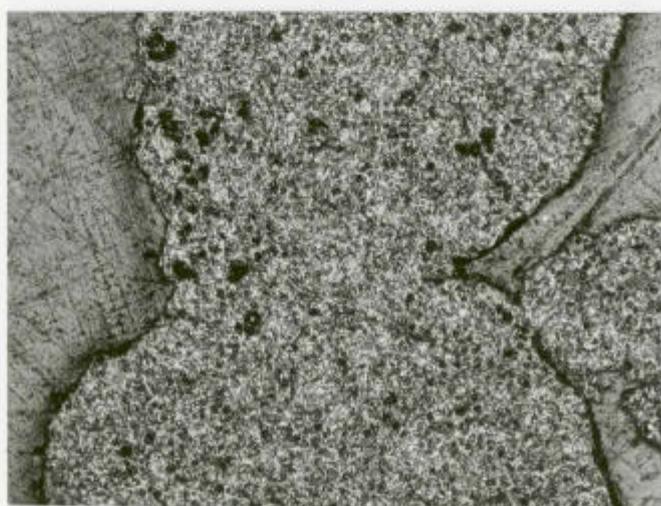
写真 3.27 本試験後の粒子焼結部(縦断面)金相写真(1)



上面近傍



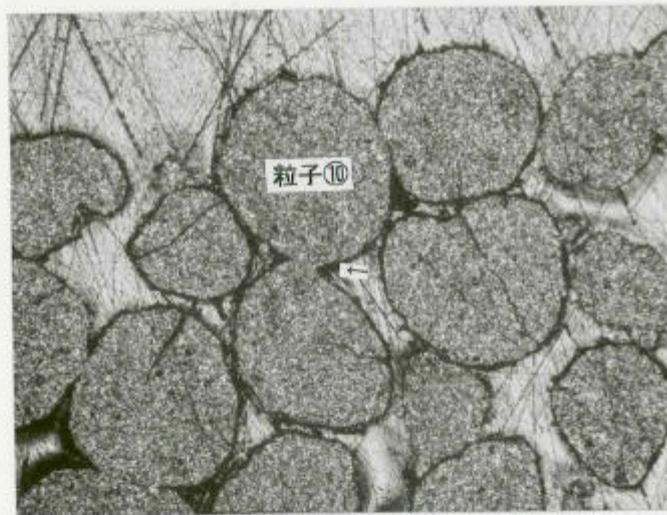
中間部



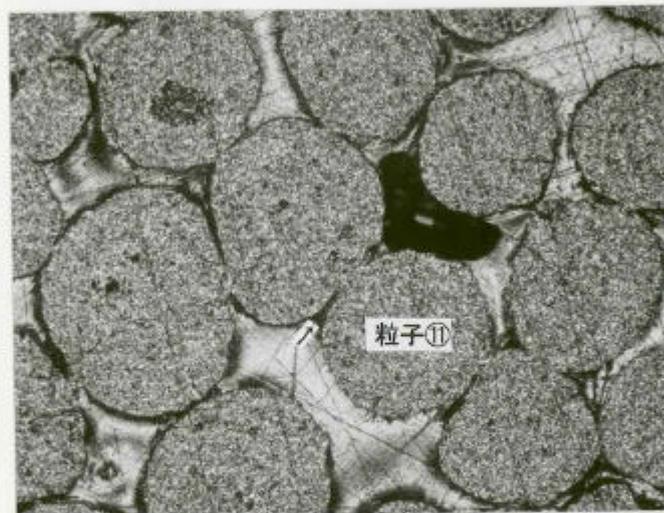
下面近傍

100 μ m

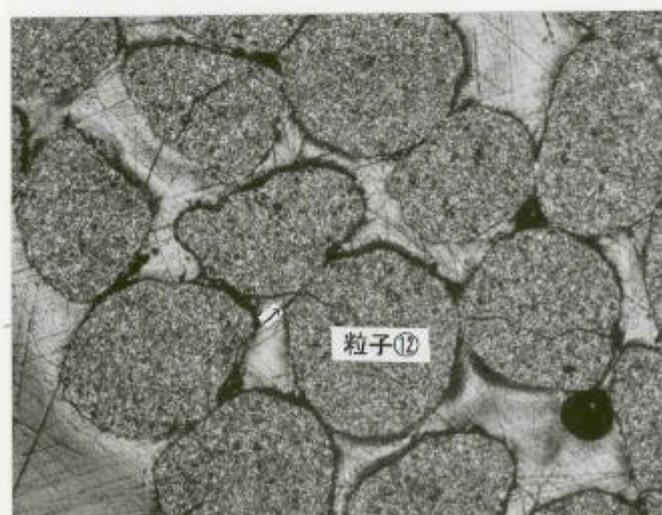
写真 3.28 本試験後の粒子焼結部(縦断面)金相写真(2)



外周部



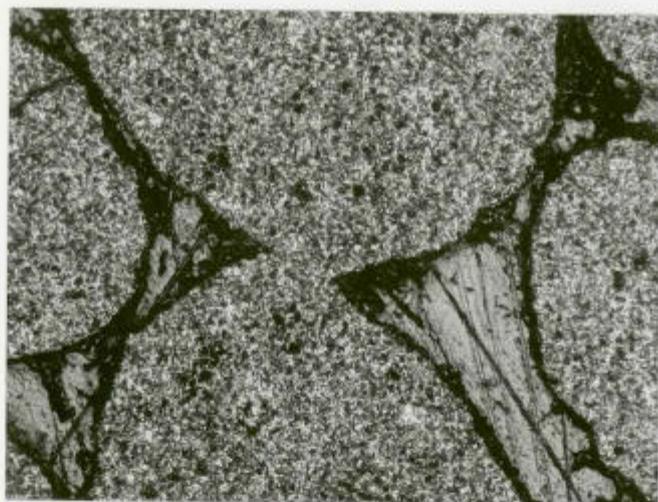
中間部



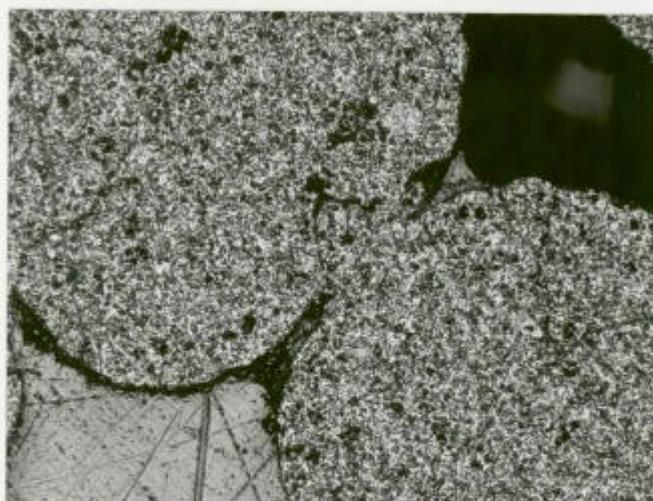
中心部

↑は測定粒子焼結部
200 μm

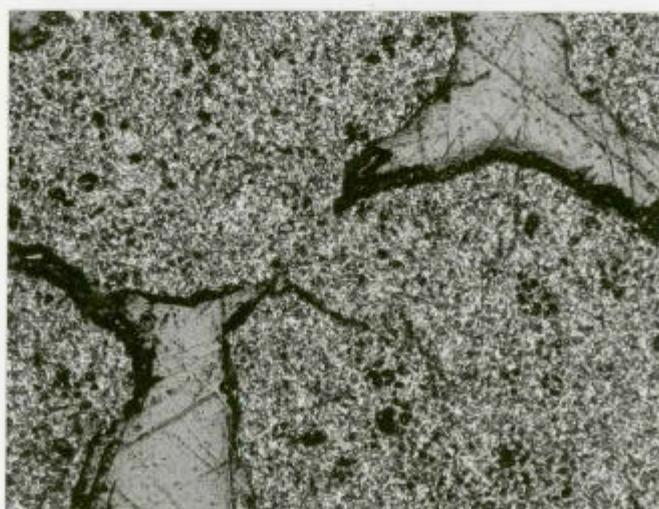
写真 3.29 本試験後の粒子焼結部(横断面)金相写真(1)



外周部



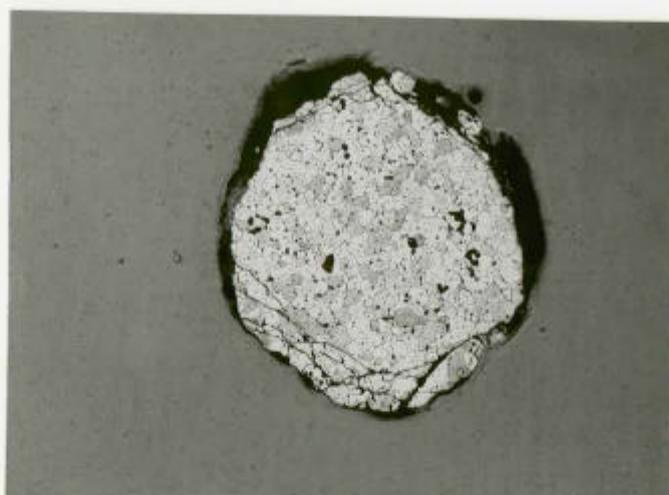
中間部



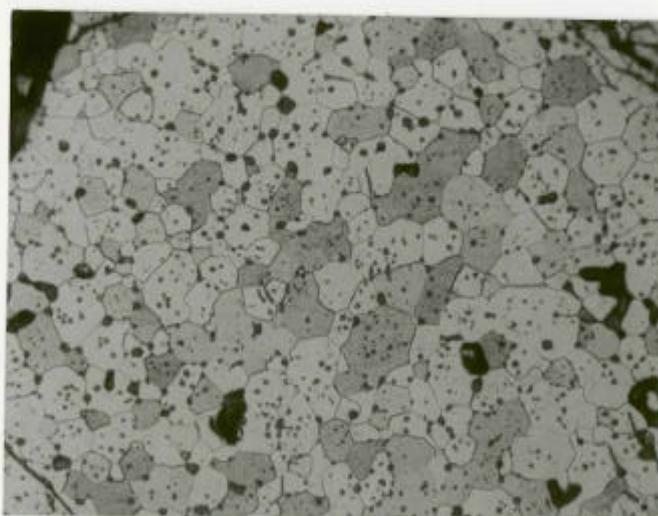
中心部

100 μ m

写真 3.30 本試験後の粒子焼結部(横断面)金相写真(2)

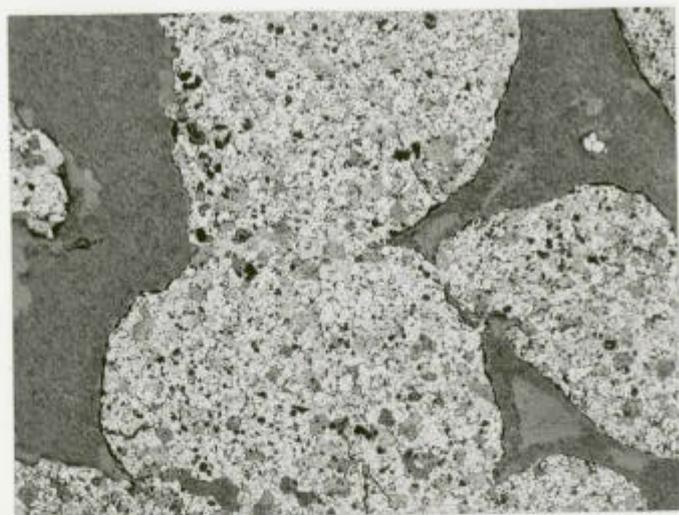


100 μm

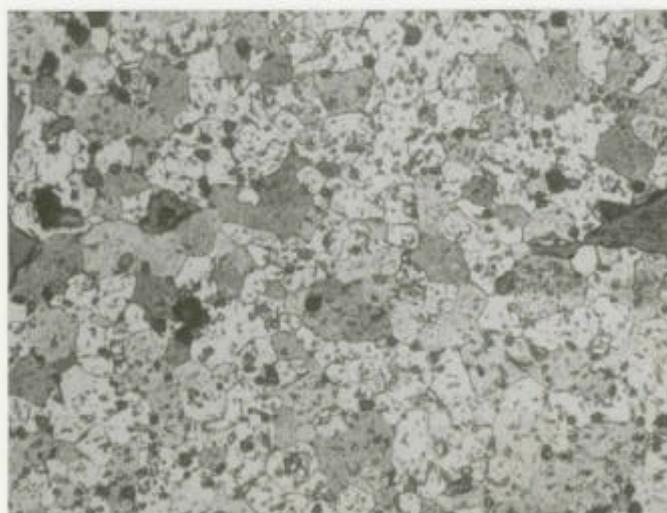


50 μm

写真 3.31 本試験使用粒子(焼結試験前)のエッチング後金相組織



100 μm



50 μm

写真 3.32 本試験使用粒子(焼結試験後)のエッチング後金相組織

4. 考察

(粒径による焼結状態への影響について)

- ・ 先行試験，予備試験並びに本試験における充填粒子粒径，荷重負荷時初期歪量並びに焼きしまり歪量の関係は下表に示す通りとなった。

項目	結果
充填粒子粒径	先行試験<本試験<予備試験
荷重負荷時初期歪量	先行試験>本試験>予備試験
焼きしまり歪量	先行試験<本試験<予備試験

- ・ 充填粒子粒径が小さくなると荷重負荷時初期歪量が増大する原因として小粒径粒子の方が大粒径粒子に比較して粒子接触点数が多い事により，荷重負荷時の粒子間接触力が小さくなり，移動し易かった事が考えられる。
- ・ 充填粒子粒径が大きくなると焼きしまり歪量が増大するのは，大粒径粒子では小粒径粒子に比較して接触点数が減少し，局所応力が増大するためと考えられる。

(粒径測定値について)

- ・ 表 3.3 中の本試験における粒子直径測定値が 480 ~ 550 μm と粒子分級に使用したふるい目 (425 ~ 500 μm) を一部上回る値となっている理由として下記が考えられる。

測定に際して極力大粒径粒子の焼結部を選定した事により，ふるい目の精度上限 (JIS Z8801-1994，ふるい目 500 μm の許容最大 + 値 : 69 μm) に近い粒径測定値となった。

(粒子充填層の方向による粒子ネック比の差違について)

- ・ 予備試験では縦断面と横断面で粒子ネック比がほぼ同じ値であったの対し，本試験では大きな差違 (縦断面>横断面) が有った。

その理由として，予備試験では本試験に比較して大きい粒子を使用した事により焼きしまり歪量が大きくなり，縦方向の粒子直径減少が半径方向の粒子直径増大を引き起こした結果，半径方向の粒子接触圧が本試験より増大して半径方向の粒子焼結を進行させた事，及び接触点数が少ない事より半径方向接触点での局所応力が大きくなった事が考えられる。

- ・ 上記より粒子焼結体の焼結状態を均一なものとし，分離粒子を少なくする上で

大粒径粒子の使用が有効と考えられる。

(ネック比の焼きしまり歪量依存性評価)

本検討では粒子焼結時のネック比と粒子充填層焼きしまり歪量の関係を、下記仮定に基づき簡易評価した。

粒子形状は真球とし充填層球は稠密配列をなす。

焼きしまり歪量の生じる接触点数(配位数)は荷重方向の6カ所とし、焼きしまり後も粒子体積は保存される。

粒子充填層焼きしまり歪量は粒子接触方向の粒子間距離変化により近似できる。

使用記号の意味を下記及び 図 4.1 に示す。

V_0 : 焼結前の粒子体積

V : 焼結後の粒子体積

V_a : 焼結による粒子体積減少分

a : ネック部半径

R_0 : 焼結前粒子半径

R : 焼結後粒子半径

α : ネック比 ($=a/R$) (4.1)

n : 配位数 (6)

とすると、

$$V_0 = 4 R_0^3 / 3 \quad (4.2)$$

$$V = 4 R^3 / 3 - n \cdot V_a \quad (4.3)$$

L_0 : 焼結前の充填層厚

L : 焼結後の充填層厚

$$\begin{aligned}
 V_a &= \int_a^R (R^2 - x^2) dx \\
 V_a &= R^3 - R^2 \sqrt{R^2 - a^2} - R^3/3 + \int_a^R \sqrt{R^2 - x^2} dx \\
 &= 2 R^3/3 - R^2 \sqrt{1 - \alpha^2} + R^3/3 \left[\sqrt{1 - \alpha^2} \right]^3 \\
 &= R^3/3 \left[2\sqrt{1 - \alpha^2} \cdot (2 + \alpha^2) \right] \quad (4.4)
 \end{aligned}$$

$$\text{ここで } f(\alpha) = 2 - \sqrt{1 - \alpha^2} \cdot (2 + \alpha^2) \quad (4.5) \quad \text{とおくと、} \quad V_a = R^3/3 \cdot f(\alpha) \quad (4.6)$$

$$V = 4 R^3 / 3 [1 - n/4 \cdot f(\alpha)] \quad (4.7)$$

体積が保存されると仮定すると、 $V_0 = V$ 及び式(4.1)、(4.2) より、 $(R_0/R)^3 = 1 - n/4 \cdot f(\quad)$ となり、粒子間距離は $2R_0 \sqrt{R^2 - a^2}$ に変化する。

充填層焼きしまり歪量は

$$\begin{aligned} (L_0 - L) / L_0 &= 1 - \sqrt{R^2 - a^2} / R_0 = 1 - R/R_0 \sqrt{1 - \quad^2} \\ &= 1 - \sqrt{1 - \quad^2} \cdot [1 - n/4 \cdot f(\quad)]^{-1/3} \end{aligned} \quad (4.8)$$

上記 (4.8) 式で配位数 $n=6$ とした場合の粒子充填層焼きしまり歪量と粒子ネック比の関係を予備試験及び本試験における縦断面ネック比測定値とともに図 4.2 に示す。

(粒子ネック比の異なる試料作成条件について)

図 4.2 では焼きしまり歪量：4% 近傍での粒子ネック比解析値と実測値に約 10% の差違が認められた。これは解析では評価モデルに真球及び稠密充填状態を仮定する等、実際の試験条件との違いが影響しているものと考えられる。

しかし解析によるネック比と焼きしまり歪量の関係が成り立つものとして、焼きしまり歪量に実測値による概略補正係数：0.65 を乗じる事により求めた曲線を図 4.2 中に破線で示した。

補正後のネック比と焼きしまり歪量の関係より評価した異なるネック比 (10% , 20% , 45%) の得られる焼きしまり歪量を表 4.1 に示す。但し 表 4.1 の記載値はデータ存在範囲を大きく離れて外挿したものであり、評価値の信頼性を高める上で小焼きしまり歪量領域での試験による確認が必要と考えられる。

表 4.1 粒子焼結体のネック比と焼きしまり歪量の関係
(焼結温度：1700 ， 負荷応力:7MPa ， 粒径：425 ~ 600 μm)

粒子ネック比(%)	焼きしまり歪量(%)
10	0.4
20	1.3
45	6

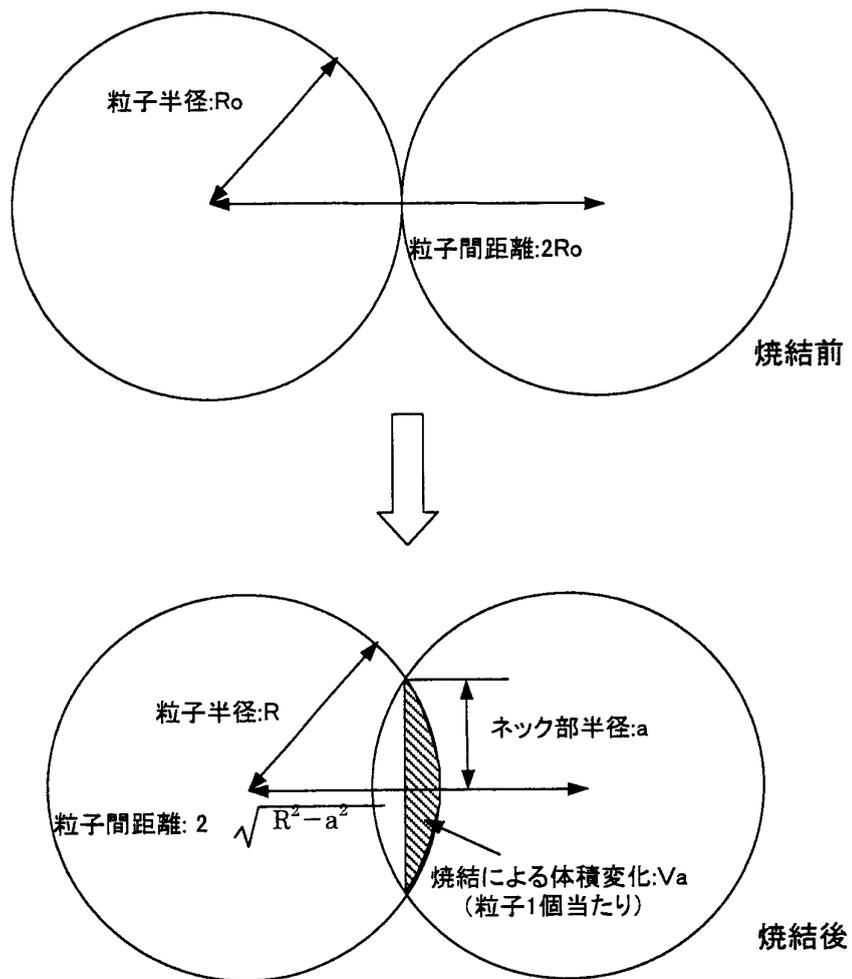


図4.1 粒子ネック比の焼きしまり歪依存性評価模式図

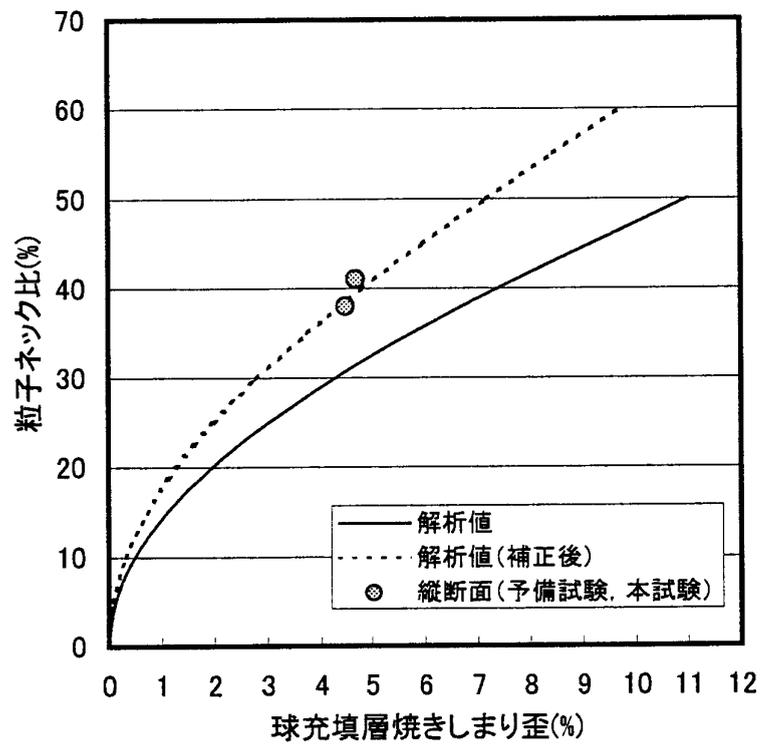


図4.2 粒子ネック比の焼きしまり歪依存(解析値)と試験データの比較

5. おわりに

本試験では熱伝導度測定用の振動充填燃料焼結体を製作する条件を把握するため、転動造粒法で作成した UO_2 粒子を使用してクリープ試験機により高温に保持した粒子充填層への荷重負荷による粒子焼結試験を実施し、以下の結果を得た。

1700℃、7MPa の温度 / 圧縮荷重条件下で約 2 時間 30 分保持する事により、充填粒子層に 4.5～4.7% の焼きしまり歪量が生じ、粒子ネック比：約 40% まで粒子間焼結を進行させられる事が判った。

焼きしまり歪量が大きくなると粒子ネック比が大きくなる関係が確認された事より、基本的に焼きしまり歪量の調整により目的とする粒子ネック比の焼結体を製作できる見通しを得た。

粒子充填層の焼きしまり歪量は充填粒子粒径に依存し、粒径が大きい程、焼きしまり歪量は大きくなった。これは粒径増大による接触点数減少、局所応力の増大によるものと考えられた。

充填粒子の粒径が小さくなると、粒子充填層肉厚（荷重負荷）方向に比して半径方向の粒子ネック比が小さくなり、粒子が分離し易くなる傾向が認められた。焼結試験前後の結晶粒径測定結果より、粒子焼結による結晶粒径の有意な変化は認められなかった。

粒子ネック比の焼きしまり歪量依存性の解析値に実測値による補正を加える事により、下表に示す粒子焼結体のネック比と焼きしまり歪量の関係を求めた。

粒子ネック比(%)	焼きしまり歪量(%)
10	0.4
20	1.3
45	6.0

(焼結温度：1700℃，負荷応力:7MPa，粒径：425～600μm)

振動充填燃料焼結体の熱伝導度測定試験(1)
「粒子焼結体作成方法の検討」 先行試験結果

1. 試験目的

- ・ 負荷応力条件：7MPa での UO_2 粒子充填層歪量及び粒子焼結程度の確認。

2. 試験条件

- ・ 試験体構成を図 2.1 に、主要試験条件、使用粒子を表 2.1 に示す。
- ・ 焼結試験は炉の加熱昇温により試験体温度が所定試験温度に到達後、荷重負荷を開始し、所定時間経過後、荷重を除荷した上で降温する。
- ・ 昇温時の負荷荷重は上部圧縮板重量（約 0.2kg）のみ。

3. 試験結果

（治具固着）

- ・ 全先行試験を通して試験後に粒子焼結体を取り出す上で障害となる治具の固着は発生しなかった。

（試験体温度履歴及び歪量）

- ・ 先行試験における試験体温度履歴及び歪量変化を図 3.1 に示す。
- ・ 先行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 3.1 にまとめた。

（粒子焼結状態）

- ・ 先行試験では充填層全体にわたる粒子間焼結が生じた。充填層表面から分離脱落する粒子は比較的少なく、焼結が顕著に進行したものと考えられた。試験後の粒子充填層外観及び破面を写真 3.1～3.4 に示す。
- ・ 先行試験における試験後の粒子焼結程度を確認するための金相試験結果を写真 3.5～3.6 に示す。写真 3.5～3.6 で測定した垂直断面及び水平断面における粒子焼結部のネック比（焼結部長さ / 粒子直径）を表 3.1 に示した。
- ・ 上述のネック比は負荷応力が異なる水平断面と垂直断面ではネック比に大きな差違（垂直断面>水平断面）が認められた。

表 2.1 粒子焼結 先行試験条件

試験名	試験温度 ()	試験時間 (min)	負荷荷重 (kg)	負荷応力 (MPa)	使用粒子	初期充填 層厚(mm)
先行試験	1700	154	500	7.0	粒径 300 ~ 425 μm (約 24g)	4.2
備考	*1 予備及び本試験で使用予定のないもの。 ・ 先行試験では充填層厚が安定する 40 回とした。 ・ 試験雰囲気は Ar + 5% H_2 フロー (約 80mL/min)					

表 3.1 先行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		試験時間:90 分までの焼きしまり歪量	
	(min)	(kg)	(MPa)	(mm)	(mm)	(%)	(mm)	(%)	(mm)	(%)	(mm)	(%)
先行試験	154	500	7.0	4.2	0.28	6.67	0.45	10.7	0.17	4.0	0.14	3.33

表 3.2 先行試験におけるネック比測定結果

試験名	試験時間	負荷応力	粒子間焼結幅最大		粒子直径		ネック比	
	(min)	(MPa)	(μm)		(μm)		(%)	
			垂直断面	水平断面	垂直断面	水平断面	垂直断面	水平断面
先行試験	154	7.0	150 ^{*1}	90 ^{*2}	330 ^{*1}	370 ^{*2}	44	24

*1 : 写真 3.5 , *2 : 写真 3.6

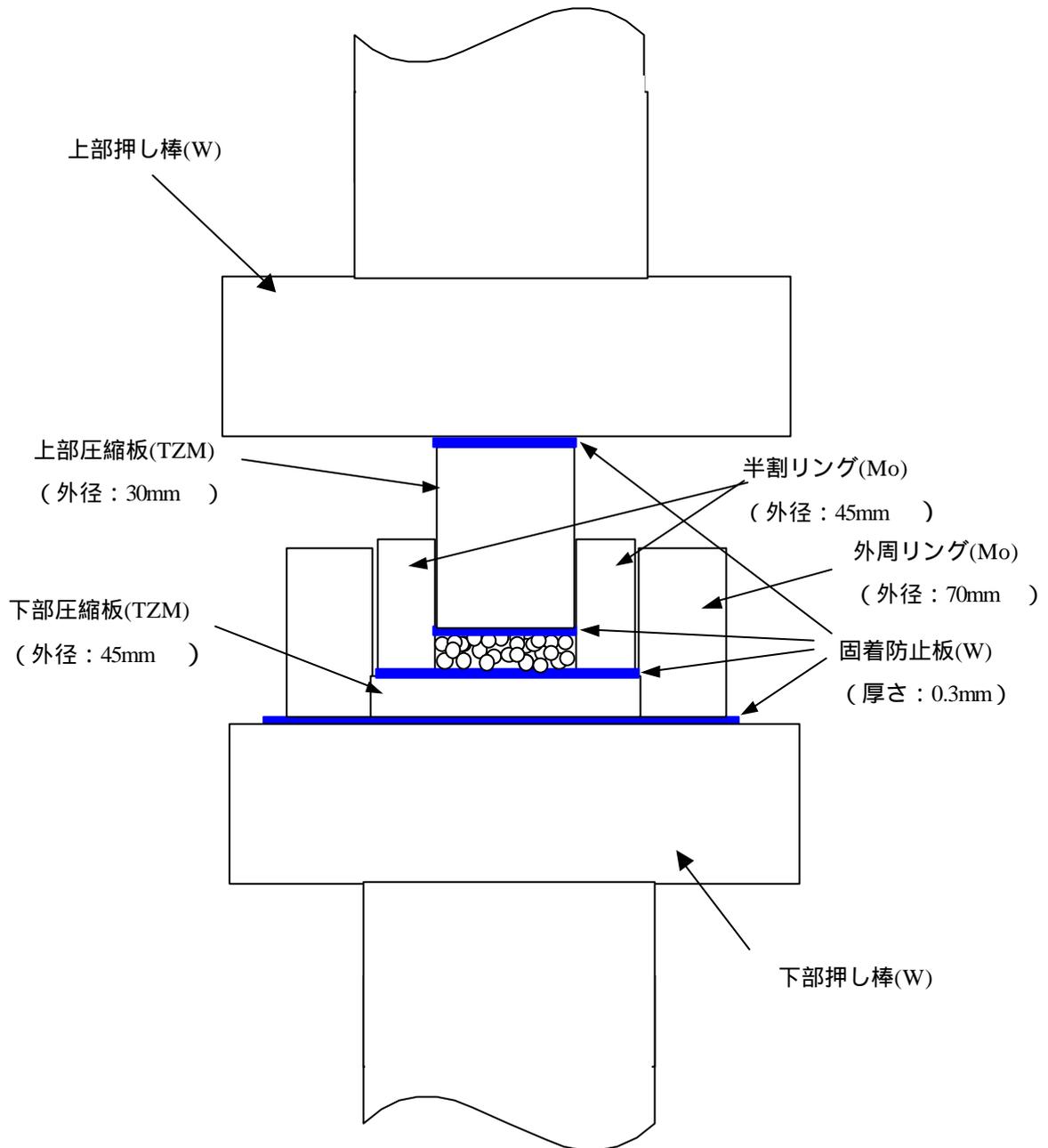


図 2.1 粒子焼結試験における試験体構造

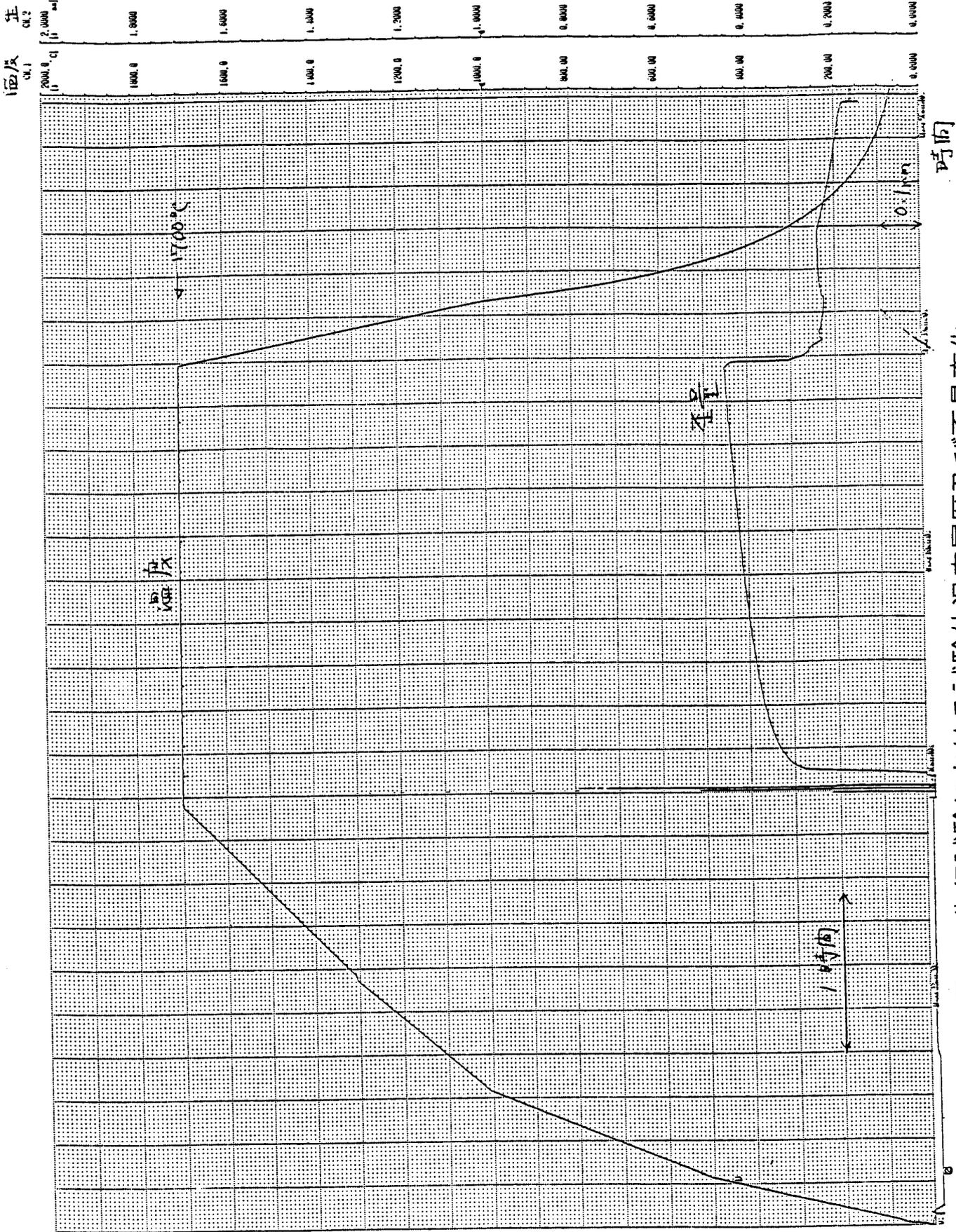


図 3.1 先行試験における試験体温度履歴及び歪み変化



写真 3.1 先行試験後の粒子充填層の固着状況（1）



写真 3.2 先行試験後の粒子充填層の固着状況（2）

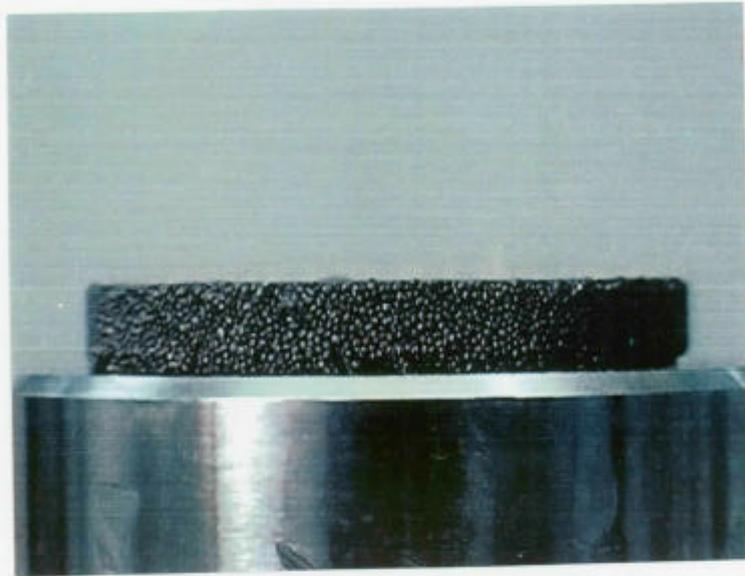


写真 3.3 先行試験後の粒子充填層側面

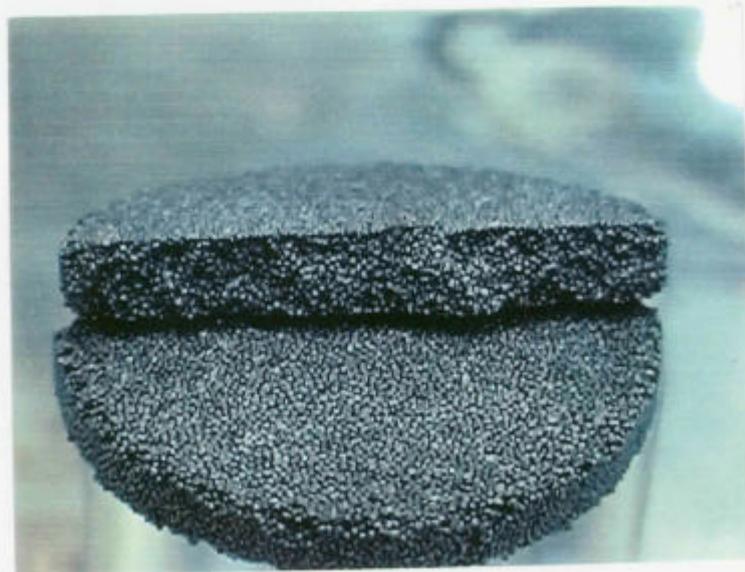


写真 3.4 先行試験後の粒子充填層破面

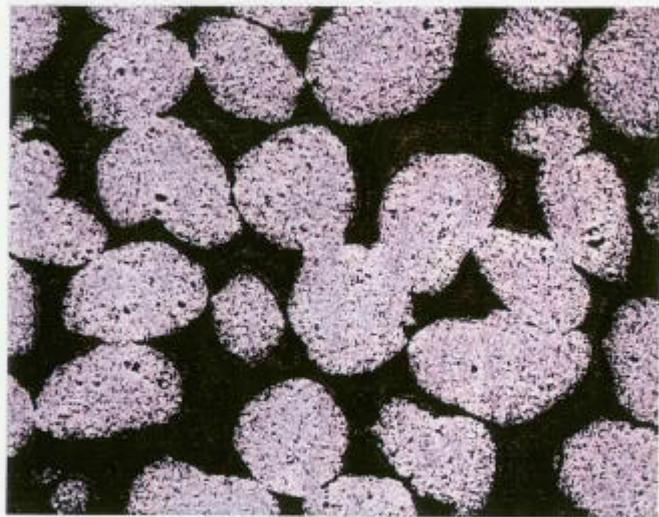
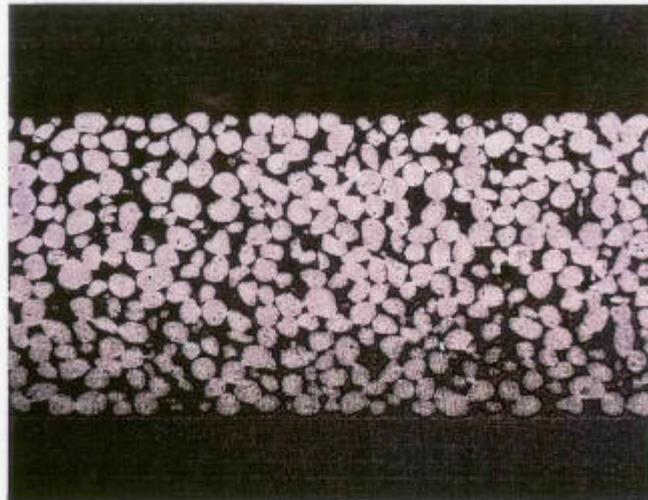
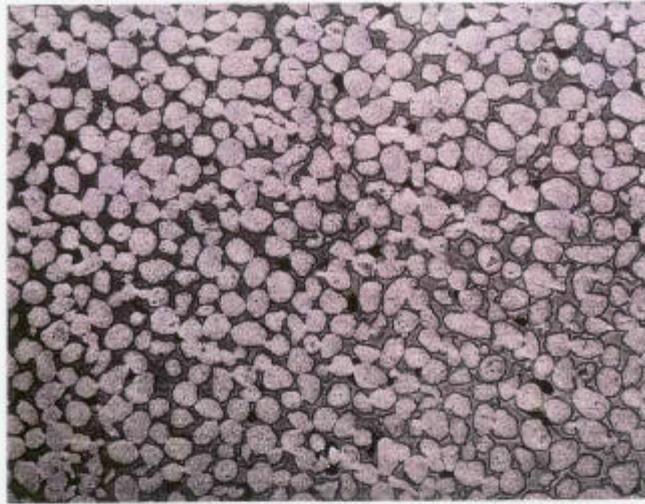


写真 3.5 先行試験後の粒子充填層（縦断面）金相写真

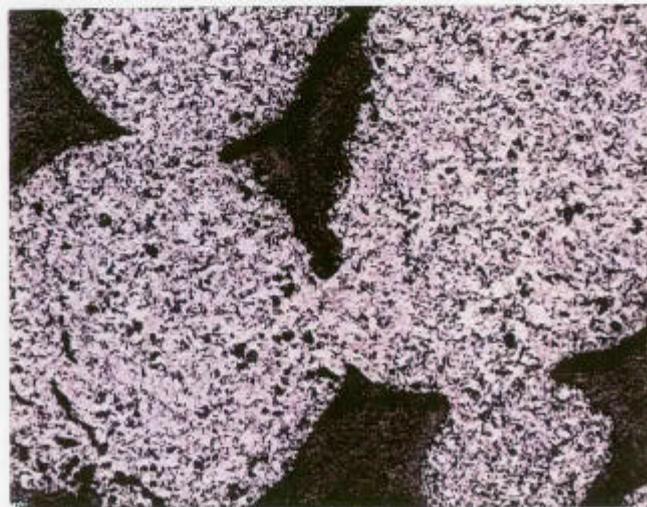
付-7 (47)



1mm



200 μ m



100 μ m

写真 3.6 先行試験後の粒子充填層（横断面）金相写真