

プルトニウム-ウラン混合原料粉末の
実効熱伝導率

(研究報告)

2004年7月

核燃料サイクル開発機構
東海事業所

本資料の全部または一部を複製・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)

2004

プルトニウム－ウラン混合原料粉末の実効熱伝導率

(研究報告)

加藤 正人¹⁾ 砂押 剛雄²⁾ 青野 茂典¹⁾

要旨

マイクロ波脱硝によって得られた 1:1MOX 原料粉末について、プルトニウムの自己発熱を利用して雰囲気ガスと原料粉末の熱伝導率をあわせた実効熱伝導率を評価した。実効熱伝導率は、雰囲気ガスの種類と粉末特性をパラメータとして測定し、Ar 中、大気中、He 中で、それぞれ、0.00060～0.0011、0.00077～0.0013、0.0014～0.0024 w/cm²℃と低い熱伝導率が得られた。また、実効熱伝導率は、O/M の低下により大きく低下することがわかった。

得られた結果は、Hamilton の式により解析し、O/M、かさ密度、比表面積、平均粒径、雰囲気ガスの熱伝導率及び温度をパラメータとした評価式を得た。作成した実効熱伝導率の解析式は、実験結果を±20%のバラツキで表すことができる。

-
- 1) プルトニウム燃料センター 製造加工部 技術開発室
 - 2) 検査開発株式会社

Effective Thermal Conductivity of Plutonium and Uranium Mixed Raw Powder

(Research Document)

Masato Kato¹⁾ Takeo Sunaoshi²⁾ Shigenori Aono¹⁾

Abstract

The effective thermal conductivity of plutonium and uranium mixed raw powder (1:1MOX) together with thermal conductivity of gas in atmosphere was measured using self heat generation of plutonium. The effective thermal conductivity was evaluated the influence of thermal conductivity of gas and powder properties. The experimental results in Ar, air and He atmosphere are very small value which are 0.00060~0.0011, 0.00077~0.0013 and 0.0014~0.0024 w/cm°C, respectively.

The data in this work were analyzed by Hamilton's equation, which made the equation reproducing the effective thermal conductivity for MOX powder as a function of O/M, specific surface area, average particle size and temperature. The equation reproduce the experimental data in range of $\pm 20\%$ error.

1) Fuel Technology Engineering Section, Plutonium Fuel Fabrication Division,
Plutonium Fuel Center

2) Inspection Development Corporation

目次

1.はじめに	1
2.実験方法	2
2.1 試料	2
2.2 測定装置	2
2.3 測定方法	2
3.結果	4
3.1 実効熱伝導率の評価	4
3.2 測定結果の不確定さの評価	4
3.3 かさ密度とガス熱伝導率の影響	4
3.4 O/M の影響	5
3.5 粉末物性の影響	5
4.考察	6
4.1 実効熱伝導率の解析式	6
4.2 解析式の適用	7
4.3 λd 及び x の評価	7
4.4 O/M の影響	7
4.5 温度依存性の推定	8
4.6 解析式による MOX 粉末の温度解析	9
5.おわりに	11
参考文献	12

表目次

表 1	原料粉末分析結果	13
表 2	試料-1 の試験結果	14
表 3	試験-2 の試験結果	15
表 4	試料-3 の試験結果	16
表 5	試料-4 の試験結果	17
表 6	計算に用いた MOX 粉末のパラメータ	18
表 7	直径 10cm 円筒モデルによる各パラメータの中心温度への影響	19

図目次

図 1	原料粉末の SEM 写真×30000	20
図 2	測定容器図	21
図 3	測定データ (試料-2 かさ密度: 2.83 (g/cm ³) Ar 雰囲気中)	22
図 4	試料-1 の径方向温度分布測定結果	23
図 5	試料-2 の径方向温度分布測定結果	24
図 6	試料-3 の径方向温度分布測定結果	25
図 7	試料-4 の径方向温度分布測定結果	26
図 8	計算温度と実測温度の比較	27
図 9	実効熱伝導率へ及ぼすかさ密度とガスの種類の影響	28
図 10	実効熱伝導率へ及ぼす O/M の影響	29
図 11	実効熱伝導率へ及ぼす粉末物性の影響	30
図 12	$\lambda d=0.05\text{W/cmK}$ とした場合の λe^* の測定結果と計算結果の比較	31
図 13	各試料の x と $\lambda e[\text{実験値}]/\lambda e[\text{計算値}]$ の関係	32
図 14	λd の O/M 依存性データ	33
図 15	実験結果と計算結果の比較	34
図 16	実効熱伝導率の粒子体積分率依存性	35
図 17	熱伝導率へ及ぼす密度の影響	36
図 18	$\lambda/\lambda_{t=30\text{C}}$ の変化	37
図 19	実効熱伝導率の温度依存性	38
図 20	直径 10cm の円筒モデルによる MOX 粉末の温度評価	39

1. はじめに

プルトニウム原料粉末は、崩壊熱による自己発熱があるため、保管中や製造工程において原料粉の温度上昇が起こる。サイクル機構の MOX 燃料製造工場では、原料粉の保管中の温度上昇を抑制するために容器内面にフィンのついた容器を用いている[1]。粉末重量で 9.9kg の原料が入った P16 フィン付中間貯蔵容器では、容器中心で 100°C 以上に達する。このような原料の温度上昇は、O/M のドリフト、粉末物性の変化、バイダーや潤滑剤の分解、工程設備の過熱などを引き起こす恐れがある[2-4]。そのため、温度上昇を評価することは、燃料製造施設や設備を設計する上で重要である。特に、商業ベースの大規模な MOX 燃料製造工場では、1 ロットの取扱量が大きいため、温度上昇が大きくなる。また、先進燃料として進めているマイナーアクチナイドを含有した燃料製造では、原料の発熱量が大きいため、燃料製造設備設計にあたっては、十分に考慮する必要がある。

プルトニウム粉末は、原料粉ごとに同位体組成が変化し、単位重量当たりの発熱量が大きく変化する。原料の発熱は、特に Pu-238 の寄与が大きく、プルトニウム中に 1~2% しか含まれていないが、発熱は、全発熱量の 80% 以上が Pu-238 に起因している。原料粉末のかさ密度は 2.5~4.0g/cm³ であり、体積分率に換算すると 20~30% と、気体の体積の方が多く、気体の熱伝導率の影響が大きいと考えられる。また、原料については、比表面積、粒径や O/M などが影響することが予想される。原料粉末の崩壊熱からの温度上昇を評価するためには、原料粉末の熱伝導率が必要であるが、MOX 粉末について熱伝導率を系統的に測定した報告はない。

原料粉末の熱伝導率は、気体中に粒子を分散させた 2 成分系と考えることができる。2 成分系の熱伝導率の評価は、固体-固体、固体-液体、固体-気体系で報告されており、特に固体-固体系の試験は、複合材料の熱伝導率を評価する目的で多くの試験が行われている[5-9]。2 成分系の熱伝導率について、理論的及び実験的な評価は、分散材料が球形の場合について Maxwell、L.Rayleigh、Bruggeman、Meredith らによって報告[5-6]された。さらに、非球形の分散粒子については、Fricke、Johnson、Hamilton らによってモデル化[6-9]されている。これらの中で、Hamilton が提案した式は、粒子の粒径や比表面積に相当する項を含んでおり、プルトニウム粉末への適用が期待される。

本試験では、原料粉末の比表面積、かさ密度、O/M と、ガスの種類をパラメータとして、ガスの熱伝導率と MOX 粒子の熱伝導率を組み合わせた実効熱伝導率 λ_e を測定し、実効熱伝導率の解析式を評価することを目的とする。

2. 実験方法

2.1 試料

試験には、マイクロ波脱硝で得られた 1:1MOX 原料粉末を用いた。表 1 に各試料の熱処理条件、Pu,U 含有率、同位体組成比、O/M、比表面積、平均粒径、水分量、発熱量を示す。Pu、U 含有率は、水分量及び酸素量を考慮した値である。また、各試料の O/M、比表面積及び平均粒径は、熱処理を施すことによって、変化させた。

試料-1 及び試料-3 は、O/M が 2.03 と 2.05 とほぼ等しく、比表面積は $2.52\text{m}^2/\text{g}$ と $3.73\text{m}^2/\text{g}$ である。試料-2 及び試料-4 は、いずれも O/M が 2.28 と酸化され、比表面積は $4.33\text{m}^2/\text{g}$ と $3.36\text{m}^2/\text{g}$ である。

図 1 に試料を熱処理し比表面積及び平均粒径を変化させた SEM 像を示す。同一ロットの試料-2~4 は、比表面積が小さくなるほど、平均粒径が大きくなる傾向にある。試料-1 は、比表面積が最も小さいが、平均粒径は試料-3 と-4 の間である。

2.2 測定装置

粉末の実効熱伝導率測定は、プルトニウムの α 崩壊による発熱を利用して、円筒容器内、径方向の温度分布を測定することによって評価した。図 2 に測定容器図及び測温抵抗体の位置を示す。測定容器は、金属円筒（内径： $\phi 40\text{mm} \times 100\text{mm}$ 肉厚：10mm）の熱伝導の大きい銅製で、3 分割できる構造とし、上下に断熱材（ベークライト）を設け、径方向に比べて上下には熱が逃げにくい構造とした。温度センサーには、熱電対より測定精度（ $\pm 0.01^\circ\text{C}$ ）が 1 桁良い直径 $\phi 1.0\text{mm}$ 、温度測定範囲 8.0mm の測温抵抗体（Pt-100）を用いた。各測温抵抗体の位置は、測定容器中心と測定容器壁面 3 ヶ所及び測定容器中心から距離の異なる 3 ヶ所、計 7 ヶ所で評価する。また、測定容器内は真空ガス置換できる構造とした。温度を記録するレコーダは、CHINO 製の 0.01°C まで測定可能な記録計を用いて、測温抵抗体からの温度データを随時取込む。

2.3 測定方法

試験は、O/M 及び比表面積、平均粒径が異なる表 1 の試料-1~4 について、大気、He、Ar、He+Ar (1:1) 中で、以下の手順に従い測定した。測定容器中心の測温抵抗体より各測温抵抗体までの距離を実測する。測定容器内への充填量は、1 つの試料に対してかさ密度を 3 パラメータ実施するため、それらを考慮した重量を充填後、所定の高さになるまでタップし蓋を閉める。次に、測定容器内全体へガスを充填させるため、真空ガス置換を繰返し 2 回行う。真空ラインのバルブを開けロータリーポンプを起動させ 30 分程度真空引きを行い、真空ラインのバルブを閉め所定のガスを大気圧になるまで置換する。各測温抵抗体温度指示値が平衡に達するまで温度データを記録する。測定終了後に、容器内の原料粉末の高さを測定して、試料重量、容器内径及び充填高さからかさ密度を算出し、均一に充填されていると仮定して評価した。

それぞれの雰囲気ガスの熱伝導率[10]を以下に示す。（注： 30°C における熱伝導率）

大気： $2.64\text{e-}4$ (w/cm $^\circ\text{C}$)

He： $1.51\text{e-}3$ (w/cm $^\circ\text{C}$)

Ar： $1.78\text{e-}4$ (w/cm $^\circ\text{C}$)

He+Ar (1:1)： $8.43\text{e-}4$ (w/cm $^\circ\text{C}$)

得られた径方向の温度分布より実効熱伝導率を算出する。円筒モデル内で均一に発熱する径方向の温度分布は、(2.1)式で求めることができる[11]。発熱密度は表 1 に示した各同位体の発熱量[12]と含有率、

かさ密度から算出できるため、径方向の温度分布を測定することによって、実効熱伝導率を求めることができる。

$$t(r) = t_o + \frac{q}{4\lambda_e} (R^2 - r^2) \cdot \cdot \cdot (2.1)$$

$t(r)$: 中心から距離 r の位置の温度

t_o : 外周部の温度

R : 容器の内半径

r : 中心からの距離

q : 発熱密度

λ_e : 実効熱伝導率

3. 結果

3.1 実効熱伝導率の評価

図 3 に試料-2 密度：2.83g/cm³ Ar 雰囲気中の測定データを示す。図は、真空ガス置換から各測温抵抗体温度指示値が平衡に達するまでの時間経過を示す。ロータリーポンプで測定容器内を真空引きしていくと約 1 時間で測定容器内中心温度は 100℃以上に達する。測定容器内にガスを置換すると急激に温度は下がりガスを置換してから約 1 時間でほぼ各測温抵抗体温度指示値は平衡に達した。各測温抵抗体温度指示値を見ると、測定容器中心の温度がもっとも高く約 61℃に達し、測定容器中心より測定容器壁面に近づくほど温度は低くなるのがわかる。

図 4～7 に各試料における容器径方向の温度分布を示す。各試料とも熱伝導率の低い Ar 中の測定が最も中心温度が高くなり、ガスの熱伝導率が良くなるに従って中心温度は低くなっている。図に示した温度分布より、(2.1)式を用いて実効熱伝導率を算出する。 q/λ_e を変数として図 4～7 の温度分布を最小二乗法により(2.1)式を用いてフィッティングした。発熱密度 q は、表 1 に示した原料粉末の Pu,U 含有率、同位体組成比から求めた発熱量と、かさ密度から求められるため、 λ_e を算出することができる。各測定において得られた λ_e を表 2～5 に示す。表には試料-1～4 における各雰囲気ガスごとの、かさ密度、発熱密度、測定容器中心から各測温抵抗体の距離、各測温抵抗体温度指示値、変数とした q/λ_e 、実効熱伝導率 λ_e を示す。

3.2 測定結果の不確かさの評価

本試験における実効熱伝導率の測定において、誤差の要因となるのは、①温度の測定誤差、②かさ密度の測定誤差と不均一性、③温度センサーの径方向位置の不確かさ及び④軸方向の熱の逃げである。センサー位置はすべての計算において同じ値を用いており、測定温度のバラツキは、①の温度の測定誤差に加えて、②及び③によって生じる温度のバラツキを加えた値として現れる。図 8 に各センサーの測定温度と、求められた λ_e を用いて(2.1)式から算出した温度の関係を示す。上記に示した誤差がない状態で測定した場合は、図 8 のデータはバラツキがなく、データは同一線上に位置するはずである。図中の測定温度のバラツキは、平均値の 0.96～1.05 の範囲であり、このバラツキを持った測定温度から算出される λ_e は、±6%の不確かさをもつことになる。

④の軸方向の熱の逃げについては、本測定では測定領域において軸方向の温度分布がないと仮定した評価となっている。本試験で得られた実効熱伝導率と、容器の寸法、材料の熱伝導率を考慮し、伝熱解析コード「TRUMP」により温度解析を行った。評価の結果、軸方向中心部で 1cm 以上の温度分布の平坦部があり、温度センサーの測定領域は 0.8cm であるため、軸方向の温度分布によって生じる誤差は、ほとんど無視できると考えられる。

3.3 かさ密度とガス熱伝導率の影響

図 9 に各試料の実効熱伝導率へ及ぼすかさ密度及びガスの種類の影響を示す。いずれの試料もかさ密度が大きくなるほど λ_e が大きくなっていることがわかる。図のかさ密度による変化は、MOX 粒子の熱伝導率が、ガスに比べて大きいいため、かさ密度が大きくなるほど λ_e が良くなると考えられる。ガスの中で最も熱伝導率の高い He は、常温で $1.51 \times 10^{-3} \text{W/cm}^{\circ}\text{C}$ である。50%Pu-MOX の熱伝導率は 95% TD のペレットにおいて 500℃で $0.032 \text{W/cm}^{\circ}\text{C}$ と報告[13]されており、室温付近では、より高い熱伝導率と予想される。また、ガスの種類による熱伝導率は、いずれの試料においても同様な傾向を示しており、熱伝導率の高いガス中ほど実効熱伝導率 λ_e も良くなっていることがわかる。これは、MOX 原料

粉末の熱伝導率にガスの熱伝導率が大きく影響することを示している。かさ密度から、粒子の体積分率を求めると約 20%程度であり、ガスの割合が大きいためガス熱伝導率が大きく影響すると考えられる。

3.4 O/M の影響

図 10 に比表面積が比較的近い試料-3 と-4 の実効熱伝導率のかさ密度による変化を示した。試料-3 と-4 の O/M は、それぞれ、2.05 と 2.28 である。図を見ると各雰囲気中の測定においても O/M が高いほど実効熱伝導率が約 3 割程度小さくなっている。

3.5 粉末物性の影響

図 11 に実効熱伝導率を比表面積に対してプロットした。O/M がほぼ等しい試料-1 と-3、及び試料-2 と-4 を線でつないだ。平均粒径は、 $0.531\sim 0.716\mu\text{m}$ とそれほど大きな違いはない。図 1 に示した SEM 観察結果では、原料粉末の表面の形態は、試料-1, -3, -4 は良く似ていることがわかる。しかし、各試料間において、実効熱伝導率と比表面積との間にはっきりとわかるような変化は観察できない。

4. 考察

4.1 実効熱伝導率の解析式

2成分系の熱伝導率の予測式は、多くの式が提案されており、R.C.Progelhof[18]らによりレビューされている。複合材料の熱伝導率の式として、積層平行モデル、積層垂直モデル、幾何学的平均モデルについて(4.1)~(4.3)式が提案されている。

$$\text{積層平行モデル} : \lambda_e = V_1 \lambda_1 + V_2 \lambda_2 \quad \dots \quad (4.1)$$

$$\text{積層垂直モデル} : 1/\lambda_e = V_1/\lambda_1 + V_2/\lambda_2 \quad \dots \quad (4.2)$$

$$\text{幾何学的平均モデル} : \lambda_e = \lambda_1^{V_1} \lambda_2^{V_2} \quad \dots \quad (4.3)$$

λ_e : 実効熱伝導率

λ_1, λ_2 : 相1及び2の熱伝導率

V_1, V_2 : 相1及び2の体積分率

また、様々な複合材料の熱伝導率を評価するためにいくつかの研究が行われている。Maxwell[5]は、連続した相中に不連続な球状粒子が分散した材料の熱伝導率を評価し、(4.4)式として報告した。

$$\lambda_{e^*} = (2 + \lambda_{d^*} - 2V_d(1 - \lambda_{d^*})) / (2 + \lambda_{d^*} + V_d(1 - \lambda_{d^*})) \quad \dots \quad (4.4)$$

$$\lambda_{e^*} = \lambda_e / \lambda_c, \quad \lambda_{d^*} = \lambda_d / \lambda_c$$

λ_e : 実効熱伝導率

λ_d : 分散粒子の熱伝導率

λ_c : 連続相の熱伝導率

V_d : 分散粒子の体積分率

Hamilton[9]は、Maxwell[5]の(4.4)式を改良して、分散粒子の粉末物性を考慮した(4.5)式を報告した。分散粒子の比表面積 S と粒径 d から、球状度 ϕ を(4.6)式で求め、熱伝導率を(4.5)式に適用した。

$$\lambda_{e^*} = ((3/\phi^x - 1) + \lambda_{d^*} - (3/\phi^x - 1)V_d(1 - \lambda_{d^*})) / ((3/\phi^x - 1) + \lambda_{d^*} + V_d(1 - \lambda_{d^*})) \quad \dots \quad (4.5)$$

$$\phi = (\text{真球の場合の表面積}) / (\text{分散粒子の表面積}) \quad \dots \quad (4.6)$$

ここで、 x は粒子の形状効果を表す定数で、Hamilton は $x=1$ のとき球状、 $x=2$ のとき楕円状と報告した。 ϕ と x の関係については次のように考えられる。分散粒子が球状の場合、 $\phi=1$ であるため、 $\phi^x = 1$ となる。真球に比べ比表面積が大きくなるほど ϕ は小さくなり、粒子の形状が球形から異なるほど x は大きくなる。従って、真球に比べ、比表面積が大きく形状が複雑になるほど ϕ^x は小さい値となる。また、E.Yamada and T.Ota[19]は、様々な形状の分散粒子の場合に適用できるように、(4.5)式を改良し、(4.7)式を得た。

$$\lambda_{e^*} = (K + \lambda_{d^*} - KV_d(1 - \lambda_{d^*})) / (K + \lambda_{d^*} + V_d(1 - \lambda_{d^*})) \quad \dots \quad (4.7)$$

K は、粒子の形状及び方向に依存する係数である。

(4.5)~(4.7)式は、粒子が互いに十分に離れているとの仮定が必要である。この仮定は $V_d > 0.2$ の領域では、粒子同士の干渉効果が現れ、実測とのズレが大きいとされている。Bruggeman[5]、Johnson[8]は、粒子間の干渉効果を考慮し、(4.8)式を報告した。

$$1 - V_d = (\lambda_e - \lambda_c) / (\lambda_d - \lambda_c) \cdot (\lambda_c / \lambda_d)^{1/(1+x)} \quad \dots \quad (4.8)$$

(4.8)式は、球状粒子及び楕円粒子の場合に適用され、 x は楕円粒子の長軸と短軸の比に依存する定数である。球の場合、 $x=2$ 、楕円の場合、2より大きくなることを示している。1:1MOX原料粉末の場合、上記の文献で整理されているデータに比べ分散粒子の粒径が小さく、比表面積が大きい。

4.2 解析式の適用

プルトニウム原料粉末の形状は定量的に表すことが不可能であり、代表的な値として、比表面積と平均粒度分布である。比表面積と粒径が式に入っている(4.5)(4.6)式をもとに熱伝導率の評価式を検討する。

$$\lambda_{e^*} = \left(\frac{3}{\phi^x - 1} + \lambda_{d^*} - \frac{3}{\phi^x - 1} V_d (1 - \lambda_{d^*}) \right) / \left(\frac{3}{\phi^x - 1} + \lambda_{d^*} + V_d (1 - \lambda_{d^*}) \right) \quad \dots (4.5)$$

$$V_d = (\text{かさ密度}) / (\text{理論密度} : 11.18\text{g/cc})$$

$$\phi = (\text{真球の場合の表面積}) / (\text{分散粒子の表面積}) \quad \dots (4.6)$$

V_d は、かさ密度と理論密度から求め、理論密度を 11.18g/cc とした。

ϕ の算出は、比表面積と平均粒度から算出できるが、粒子の密度は、理論密度 $\rho_{th}=11.18\text{g/cc}$ として評価する。よって、(4.6)式は(4.9)式で表すことができる。

$$\phi = (4\pi(d/2)^2) / \rho_{th} / (4\pi/3 \times (d/2)^3) / S = 6 / \rho_{th} / d / S \quad \dots (4.9)$$

d : 平均粒度 (cm)

ρ_{th} : 理論密度 (g/cm³)

S : 比表面積 (cm²/g)

(4.5)式をみると、未知数となるのは粒子の熱伝導率 λ_d と x の 2 つの値である。この 2 つの値を評価することによって、熱伝導率の解析式を評価する。

4.3 λ_d 及び x の評価

50%Pu-MOX の熱伝導率は、J.C.Weilbacher[13]により報告されており、95%TD のペレットにおいて 500°C で 0.032W/cm°C とした。室温付近では、0.05 W/cm°C 程度と予想される。高速炉 MOX 燃料の熱伝導率は Inoue が報告[20]し、(4.10)式で表すことができるとした。

$$\left. \begin{aligned} \lambda_{MOX} &= (0.06059 + 0.2754 \times (2-O/M)^{1/2} + 2.011 \times 10^{-4} \cdot T)^{-1} \\ &\quad + 4.715 \times 10^9 / T^2 \cdot \exp(-16361/T) \\ \lambda_{100\%} &= \lambda / (1 - 2.5 \cdot P) \end{aligned} \right\} \quad \dots (4.10)$$

λ : 熱伝導率、 T : 温度、 O/M : 酸素・金属比、 P : 気孔率

(4.10)式を用いて、室温の熱伝導率を算出すると約 0.07 W/cm°C となる。熱伝導率は、密度の低下で減少し、85%TD で 0.05W/cm°C 程度である。試験に用いた原料の熱伝導率としては、1 次粒子の密度が不明であるため、算出することができないが、100%TD の密度としても 0.05~0.07 W/cm°C と予想される。MOX 粒子の 100%TD の熱伝導率を 0.05W/cm°C とし、 x をパラメータとし近似した結果を図 12 に示す。 x を 0~ ∞ の範囲で近似したが測定結果を近似することができず、MOX 粒子の熱伝導率が大きく異なっているためと考えられる。

Hamilton[9]と E.Yamada and T.Ota[19]は、粒子が球状の場合、 $x=1$ としている。また、Hamilton は、粒子が偏球楕円の場合 $x=1.5$ 、長球楕円の場合 $x=2.0$ としている。そのため、 x を 1.5 から 0.5 刻みで増加させ、 λ_d をパラメータとして、測定結果を近似した。各試料について λ_d を一定とし、近似させた結果を図 13 に示す。 $x=2.5$ の場合、全データのバラツキがもっとも小さくなった。 $x=1$ の場合、粒子が球形、偏球楕円の場合 $x=1.5$ 、長球楕円の場合 $x=2.0$ であるため、 $x=2.5$ は、長軸と短軸の比がより大きな粒子に適用されると予想される。 $x=2.5$ として得られた試料-1~4 の λ_d は、それぞれ、0.004976、0.002322、0.003968、0.002410W/cm°C となり、100%TD の熱伝導率に比べ、1 桁小さい。このような低い λ_d は、原料粉のため結晶性が悪いことや、低密度の粒子の熱伝導率となっていると考

えられる。

4.4 O/M の影響

再処理工程から得られる原料粉末の O/M は 2.01 程度で、保管中に O/M は上昇することが報告されている。以前の 1:1MOX 粉末の酸化挙動に関する報告[17]において、1 : 1MOX を 100°C で保管した場合、20 時間程度の保管時間で O/M が 2.00 から 2.05 まで上昇することを示した。試料-2 は、原料粉末を大気中に長期間保管した試料であり、O/M は 2.28 に達している。また、本試験結果において、O/M の高い試料の実効熱伝導率は低くなることがわかった。そのため、保管中の原料粉末の O/M の上昇は、原料粉末の温度を上昇させることになり、温度の上昇は、原料粉末の酸化を促進すると考えられる。長期間にわたる原料粉末の保管は、原料の O/M の上昇に起因して保管温度の上昇を招くことが予想されるため、実効熱伝導率に及ぼす O/M の効果を検討する必要がある。

MOX の熱伝導率は、常温付近においてはフォノン伝導による熱伝導率が支配的[14]と報告されており、O/M の上昇は酸素イオンの増加により、フォノン散乱が増加するため熱伝導率が低下する。ハイパーstoichiometryの領域の熱伝導率測定は、 UO_{2+x} で行われており、X の増加で熱伝導率が低下することが D.G.Martin[15]、P.G.Lucuta[16]らにより報告されている。D.G.Martin[15]は、 UO_{2+x} の領域について熱伝導率の評価式を報告し、 $X < 0.05$ の範囲でよく合うことを報告した。300Kの熱伝導率評価式を(4.11)に示す。図 14 に文献と本試験結果から得られた MOX 粉末の熱伝導率の O/M 依存性を比較する。 UO_{2+x} の熱伝導率は、 $X=0.05$ までに急激に低下することがわかる。また、MOX 原料粉の O/M が 2.01~2.28 であり、この領域では、M4O9 相の析出も考えられる。このような領域での熱伝導率の測定結果はなく、モデル化することは困難である。そのため、O/M=2.01~2.28 の MOX 粉末の熱伝導率は、図よりほぼ一次直線で近似できるため、物理的な意味はないが λd と O/M の関係を(4.12)式として得た。

$$\lambda = ((0.035 + 7.26 X - 15.2 X^2 + 2.25 \times 10^{-4} \times 300)^{-1} + (83 - 1122X + 15905X^2) \times 10^{-12} \times 300^3 \dots) \quad (4.11)$$

X : X in UO_{2+x} 、 λ : 熱伝導率 W/m°C

$$\lambda d = 0.02233 - 0.008747 \cdot O/M \quad \dots \quad (4.12)$$

λd : 熱伝導率 W/cm°C、O/M : O/M 比

$x=2.5$ として (4.12)を(4.5)に代入して計算した実効熱伝導率と試験結果の比較をした結果を図 15 に示す。 $\lambda e^*[\text{計算}]/\lambda e^*[\text{実験}]$ は、0.8~1.2 の範囲内で計算値は実験結果をよく再現している。

図 16 に、大気中と He 中における実効熱伝導率の粒子体積分率依存性の計算結果を示す。また、図中には $x=1$ 、 $\phi = 1$ の球状粒子の場合も示す。Hamilton [9]らの式は、図中に示した球状粒子のような変化を表す式であるが、本試験の 1:1MOX 粉末は粒子の熱伝導率とガスの熱伝導率をほぼ直線で結ぶ関係になった。これは、MOX 粒子の場合、 ϕ が小さく ($\phi \approx 0.21$)、 x が 2.5 と大きいためで、粒子の大きな比表面積に起因していると考えられる。図中には測定結果も示すが、大気中の測定結果は、計算結果とよく一致するが、He 中の測定結果は、計算結果と一致しない。He 中の測定は、He の熱伝導率より小さい値のデータもあり、He の熱伝導率が良いため、熱電対間の温度差が小さいことや、He がリークしやすいことに起因して測定誤差が大きくなっていると考えられる。

Hamilton の式は、100%TD の粒子が接触せずに、連続した相内に粒子同士の干渉がない距離で分散

して存在する系において解析的に評価した式である。本試験では、粒子同士は接触しており、解析モデルとは大きく異なっている。本評価では、MOX 粒子の熱伝導率 λd が不明であるため、測定結果にあうように λd を求めて評価した。そのため、 λd には、粒子の密度に起因する誤差、粒子間の接触による熱伝導や粒子同士の干渉の効果なども含んだ値となっていると考えられる。

4.5 温度依存性の推定

本試験の測定では、原料粉末の中心と外側の温度変化は数十℃であるが、実際の燃料製造工程では、設備が大型になるため原料の温度は数百度まであがることが予想される。そのため、熱伝導率の温度依存性について評価する必要がある。

(4.5)において、温度依存性が現れる項は、 λc と λd の 2 つである。 λc は、温度依存性として、各ガスについて(4.13)として報告[10]されている。 λc の温度依存性として(4.13)式を(4.5)式に代入して用いる。 t は温度(℃)である。

$$\left. \begin{array}{l} \text{大気} : 0.00024147 + 7.5581 \times 10^{-7} \cdot t \\ \text{Ar} : 0.00016395 + 4.651 \times 10^{-7} \cdot t \\ \text{He} : 0.0014419 + 2.209 \times 10^{-6} \cdot t \end{array} \right\} \quad (4.13)$$

λd の温度依存性について検討する。MOX の熱伝導率は、常温から 1000℃程度までは、フォノン伝導が支配的であるため、温度上昇に伴い熱伝導率が低下する。図 17 に(4.10)式を用いた MOX の熱伝導率の依存性を示した。図は密度をパラメータとして示した。MOX の熱伝導率は、密度が低くなるほど熱伝導率は小さくなり、温度に依存する変化量も小さくなることがわかる。室温の λd を 1 とした場合、 λd の温度依存性を図 18 に求めた。図 18 に示すように、いずれの密度においても、1 つの曲線で示すことができ、 λd の温度依存性を式(4.14)で表すことができる。

$$[\lambda d]t = \lambda d \times (0.9583 + 0.001669 \cdot t)^{-1} \quad (4.14)$$

$[\lambda d]t$: 温度 t の粒子熱伝導率、 λd : (4.12)式より得られる粒子熱伝導率、 t : 温度(℃)

よって、原料粉末の実効熱伝導率の温度依存性は、(4.13)及び(4.14)を用いて、以下のように表すことができる。

$$\left. \begin{array}{l} \lambda e^* = \frac{((3/\phi^x - 1) + \lambda d^* - (3/\phi^x - 1)Vd(1 - \lambda d^*))}{((3/\phi^x - 1) + \lambda d^* + Vd(1 - \lambda d^*))} \quad \dots (4.5) \\ \phi = 6/\rho_{th}/d/S \\ \lambda d^* = [\lambda d]t/\lambda c \\ [\lambda d]t = \lambda d \times (0.9583 + 0.001669 \cdot t)^{-1} \quad \dots (4.14) \\ \lambda d = 0.02233 - 0.008747 \cdot O/M \quad \dots (4.12) \end{array} \right\}$$

図 19 に実効熱伝導率の温度依存性を示した。 $d=0.5 \mu m$ 、 $S=5m^2/g$ 、 $Vd=0.2$ とし、大気中と He 中の O/M による違いを示した。大気中の変化は温度に対して大きな変化はないが、He 中は、 λc の温度依存性の効果により、温度が高いほど大きくなっている。

4.6 解析式による MOX 粉末の温度解析

前述の式を用いて、直径 10cm の円柱モデルにより温度評価を行なった。評価に用いた基準の原料のデータを表 6 に示す。評価結果を表 7 及び図 20 に示す。再処理から得られた MOX 原料は、Pu-241 の崩壊により Am-241 が保管中に増加する。Am 含有率が増えた場合、単位体積の発熱量が増加するため、

中心温度は大きく上昇する。原料粉は、保管中に O/M が上昇することが知られている。O/M が、2.01 から 2.28 まで上昇した場合、粒子の熱伝導率が悪くなるため、中心温度は高くなる。かさ密度が増えた場合は、実効熱伝導率が良くなるが、発熱密度が高くなる効果が大きく、中心温度は高くなる傾向である。比表面積及び粒子径は、大きくなると実効熱伝導率をよくするため、中心温度を下げる効果がある。

本試験では、熱伝導率の測定時にガスを置換するとき、中心温度が 120℃程度まで上昇した。直径が 10cm の容器の場合に内部を真空にした場合、中心温度は 400℃以上の高温に達すると予想される。

5. おわりに

マイクロ波脱硝で得られた 1:1MOX 原料粉末について、プルトニウムの α 崩壊による発熱を利用して実効的熱伝導率を測定し、原料粉末特性の影響について評価した。その結果、以下のことがわかった。

- (1) 原料粉末の実効熱伝導率は、Ar 中、大気中、He 中で、それぞれ、0.00060~0.0011、0.00077~0.0013、0.0014~0.0024 w/cm²°C の実効熱伝導率が得られた。また、実効熱伝導率は、O/M の増加により大きく低下することがわかった。測定温度のバラツキから評価した実効熱伝導率の不確かさは±6%である。
- (2) 得られた結果は、Hamilton の式により解析し、O/M、かさ密度、比表面積、平均粒径、雰囲気ガスの熱伝導率及び温度をパラメータとした以下に示す評価式を得た。

$$\lambda e^* = \frac{((3/\phi^x - 1) + \lambda d^* - (3/\phi^x - 1)Vd(1 - \lambda d^*))}{((3/\phi^x - 1) + \lambda d^* + Vd(1 - \lambda d^*))}$$

$$\phi = 6/\rho_{th}/d/S$$

$$\lambda d^* = [\lambda d]t/\lambda c$$

$$[\lambda d]t = \lambda d \times (0.9583 + 0.001669 \cdot t)^{-1}$$

$$\lambda d = 0.02233 - 0.008747 \cdot O/M$$

作成した実効熱伝導率の解析式は、室温での実験結果を±20%のバラツキで表すことができ、計算で得られる実効熱伝導率に対して、0.8 を乗じた値を用いて熱解析を実施することにより十分に安全側の設計が可能と考えられる。

本試験により、MOX 粉末の実効熱伝導率について、系統的に整備できた。マイナーアクチナイド元素が含有した原料粉末など、高発熱の原料粉末を保管する容器の熱解析に利用することが期待される。

参考文献

- [1]大島博文: “プルトニウム転換技術開発施設、プルトニウム試験運転報告—MOX 粉末の熱的性質について—”, PNC ZN845 84-05,(1984)
- [2]R.Eichler,et al: “The Variables to Influence the Temporal Drift of Stoichiometry in FBR Mixed Oxide Fuel” ,J.Nucl.Mater.,Vol.124,p.9,(1984)
- [3]久芳明慈,他: “MOX ペレット製造工程における O/M ドリフト確認試験報告書—MH 粉末使用時の原料調整工程における MOX 粉末の O/M ドリフトの評価—”, PNC ZN8410 97-047,(1997)
- [4]加藤正人,他: “プルトニウム—ウラン混合酸化物の自己照射欠陥” ,サイクル機構技報,No.17,p.75,(2002)12 月
- [5]A.E.Powers: “AEC-Report,Conductivity in Aggregates” ,KAPL-2145,(1961)
- [6]金成克彦,小沢文夫: “充てん材配合エポキシ樹脂の熱伝導率” , Netsu.Bussei.,Vol.3,No.2,p.106-111,(1989)
- [7]H.Fricke: “A Mathematical Treatment of the Electric Conductivity and Capacity of Disperse Systems” ,Phys.Rev.Vol.24,p.575-587,(1924)
- [8]F.A.Johnson: “ The Thermal Conductivity of Aqueous Thoria Suspensions ” ,A.E.R.E. R/R2578,(1958)
- [9]R.L.Hamilton,O.K.Crosser: “ Thermal Conductivity of Heterogeneous Two-Component Systems” ,I&EC Fundamentals,Vol.1,No.3,(1962)
- [10]日本機械学会:伝導工学資料 (改訂版第 3 版) ,p.300-301,(1975)
- [11]丸善(株):基礎伝熱工学,(1960)
- [12]U.S.Department of Energy: “DOE STANDARD” ,(1998)
- [13]J.C.Weilbacher: “Mesure de la Diffusivite Thermique des Oxydes Mixtes D’uranium et de Plutonium” ,Commissariat a L’energie Atomique,Rapport CEA-R-4572,(1974)
- [14] Y.Philipponneau: “Thermal Conductivity of (U,Pu)O_{2-x} Mixed Oxide Fuel” , J.Nucl.Mater.,Vol.188,p.194-197,(1992)
- [15] D.G.Martin: “A Re-Appraisal of the Thermal Conductivity of UO₂ and Mixed (U,Pu) Oxide Fuels” ,J.Nucl.Mater.,Vol.110,p.73-94,(1982)
- [16] P.G.Lucuta,et al: “Thermal Conductivity of Hyperstoichiometric SIMFUEL” , J.Nucl.Mater.,Vol.223,p.51-60,(1995)
- [17]加藤正人,他: “プルトニウム—ウラン混合原料粉末の酸化挙動” ,JNC TN8400 2003-013,(2003)
- [18]R.C.Progelhof,et al: “Methods for Predicting the Thermal Conduivity of Composite Systems:A Review” ,Polymer Engineering and Science,Vol.16,p.615-625,(1976)
- [19]E.Yamada,T.Ota: “ Effective Thermal Conductivity of Dispersed Materials ” ,Warme-und Stoffubertragung13,p.27-37,(1980)
- [20]M.Inoue: “Thermal Conductivity of Uranium-Plutonium Oxide Fuel for Fast” , J.Nucl.Mater.,Vol.282,p.186-195,(2000)

表1 原料粉末分析結果

試料No.		試料-1	試料-2	試料-3	試料-4
熱処理条件		-	熱処理なし	750℃ Ar-5%H ₂ 雰囲気	750℃ 大気雰囲気
Pu含有率(%)		41.477	40.029	40.825	40.311
U含有率(%)		43.868	43.761	44.631	44.069
同位体組成比 (%) 発熱量 (w/g)	Pu-238	0.567	1.024	1.421	
	Pu-239	1.93E-03	63.773	59.665	
	Pu-240	7.13E-03	25.942	27.387	
	Pu-241	3.29E-03	5.121	6.038	
	Pu-242	1.16E-04	4.140	5.489	
	U-234	1.81E-04	0.090	0.115	
	U-235	6.02E-06	0.239	0.236	
	U-236	1.77E-06	0.030	0.028	
	U-238	8.58E-09	99.641	99.621	
Am-241	0.115	3.68	4.06		
O/M		2.03	2.28	2.05	2.28
比表面積(m ² /g)		2.52	4.33	3.73	3.36
平均粒径(体積メディアン径)(μm)		0.631	0.531	0.551	0.716
水分(PPM)		3000	7000	<500	<500
発熱量(w/g MOX)		5.51E-03	6.42E-03	6.55E-03	6.46E-03

表2 試料-1の試験結果

試験条件			密度 (g/cm ³)	q : 発熱密度 (w/cm ³ MOX)	測温抵抗体位置(cm)			温度測定位置								①→壁面 Σ温度差 (°C)	q/λ _e	λ _e (w/cm °C)
比表面積 (m ² /g)	雰囲気	密度			①~②	①~③	①~④	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧			
2.52	大気	小	2.24	1.24E-02	0.91	1.36	1.73	43.47	41.44	36.76	33.87	Σ :	32.17	31.54	11.30	11.852	1.05E-03	
		中	2.47	1.36E-02				40.71	38.73	33.92	31.05	Σ :	29.28	27.51	11.43	11.999	1.13E-03	
		大	2.70	1.49E-02				42.25	40.22	35.46	32.73	Σ :	31.01	29.59	11.24	11.769	1.27E-03	
	He	小	2.33	1.29E-02				35.44	34.36	31.71	30.10	Σ :	29.21	28.83	6.23	6.5693	1.96E-03	
		中	2.56	1.41E-02				36.98	36.03	33.67	32.26	Σ :	31.56	30.57	5.42	5.7389	2.46E-03	
		大	2.70	1.49E-02				38.01	37.03	34.50	33.08	Σ :	32.20	31.10	5.81	6.1165	2.44E-03	
	Ar	小	2.33	1.29E-02				46.48	43.75	37.50	33.64	Σ :	31.21	30.36	15.27	15.97	8.08E-04	
		中	2.56	1.41E-02				49.96	47.11	40.58	36.69	Σ :	34.08	32.49	15.88	16.568	8.51E-04	
		大	2.70	1.49E-02				48.63	45.81	39.59	35.99	Σ :	33.36	31.43	15.27	15.848	9.40E-04	

表3 試料-2の試験結果

試験条件			密度 (g/cm ³)	q : 発熱密度 (w/cm ³ MOX)	测温抵抗体位置(cm)			温度測定位置								①→壁面 Σ温度差 (°C)	q/λe	λe (w/cm °C)
比表面積 (m ² /g)	雰囲気	密度			①~②	①~③	①~④	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧			
4.33	大気	小	2.60	1.67E-02	0.91	1.36	1.73	50.06	46.32	38.03	32.93	Σ :	29.16	26.81	20.90	21.683	7.70E-04	
		中	2.83	1.82E-02				55.09	51.35	42.87	37.91	Σ :	34.17	31.53	20.92	21.714	8.38E-04	
		大	2.88	1.85E-02				55.20	51.84	43.24	38.17	Σ :	34.82	32.14	20.38	21.392	8.65E-04	
	He	小	2.63	1.69E-02				39.47	37.81	33.01	30.31	Σ :	28.53	26.85	10.94	11.551	1.46E-03	
		中	2.83	1.82E-02				45.08	43.24	38.13	35.29	Σ :	33.48	31.60	11.60	12.242	1.49E-03	
		大	2.88	1.85E-02				46.62	44.66	39.80	36.88	Σ :	35.14	32.81	11.48	12.079	1.53E-03	
	Ar	小	2.63	1.69E-02				57.45	52.40	42.16	35.60	Σ :	30.49	28.00	26.96	27.781	6.08E-04	
		中	2.83	1.82E-02				61.51	56.61	46.00	39.70	Σ :	34.91	32.30	26.60	27.534	6.61E-04	
		大	2.94	1.89E-02				63.36	58.61	47.99	41.49	Σ :	37.33	33.92	26.03	27.173	6.96E-04	
	He+Ar	小	2.60	1.67E-02				46.16	43.44	36.41	32.38	Σ :	29.47	27.52	16.69	17.466	9.56E-04	
		中	2.83	1.82E-02				48.52	45.83	38.71	34.66	Σ :	32.02	30.05	16.50	17.358	1.05E-03	
		大	2.94	1.89E-02				54.67	51.70	44.62	40.29	Σ :	37.71	34.60	16.96	17.81	1.06E-03	

表4 試料-3の試験結果

試験条件			密度 (g/cm ³)	q : 発熱密度 (w/cm ³ MOX)	測温抵抗体位置(cm)			温度測定位置								①→壁面 Σ温度差 (°C)	q/λe	λe (w/cm °C)
比表面積 (m ² /g)	雰囲気	密度			①~②	①~③	①~④	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧			
3.73	大気	小	2.53	1.66E-02	0.91	1.36	1.73	46.85	45.52	39.05	35.25	Σ :	32.66	30.48	14.19	15.238	1.09E-03	
		中	2.75	1.80E-02				44.81	43.64	37.09	33.46	Σ :	31.07	28.35	13.74	14.848	1.21E-03	
		大	2.93	1.92E-02				47.47	46.34	39.78	35.91	Σ :	33.52	30.27	13.95	15.119	1.27E-03	
	He	小	2.52	1.65E-02				40.25	39.63	35.60	33.31	Σ :	31.83	29.79	8.42	9.1365	1.81E-03	
		中	2.74	1.79E-02				40.35	39.75	35.51	33.20	Σ :	31.72	29.44	8.63	9.3922	1.91E-03	
		大	2.93	1.92E-02				42.16	41.53	37.11	34.57	Σ :	33.04	29.90	9.12	9.9433	1.93E-03	
	Ar	小	2.53	1.66E-02				49.55	48.04	40.20	35.55	Σ :	32.46	30.05	17.09	18.405	9.02E-04	
		中	2.74	1.79E-02				47.92	46.39	38.57	34.12	Σ :	31.00	28.55	16.92	18.179	9.85E-04	
		大	2.93	1.92E-02				50.27	48.75	40.82	36.22	Σ :	33.22	29.66	17.05	18.386	1.04E-03	
	He+Ar	小	2.53	1.66E-02				45.68	44.51	38.59	35.12	Σ :	32.72	30.50	12.96	13.923	1.19E-03	
		中	2.75	1.80E-02				46.05	44.97	39.05	35.74	Σ :	33.56	30.85	12.49	13.487	1.33E-03	
		大	2.92	1.91E-02				47.37	46.23	39.81	36.14	Σ :	33.77	30.63	13.60	14.705	1.30E-03	

表5 試料-4の試験結果

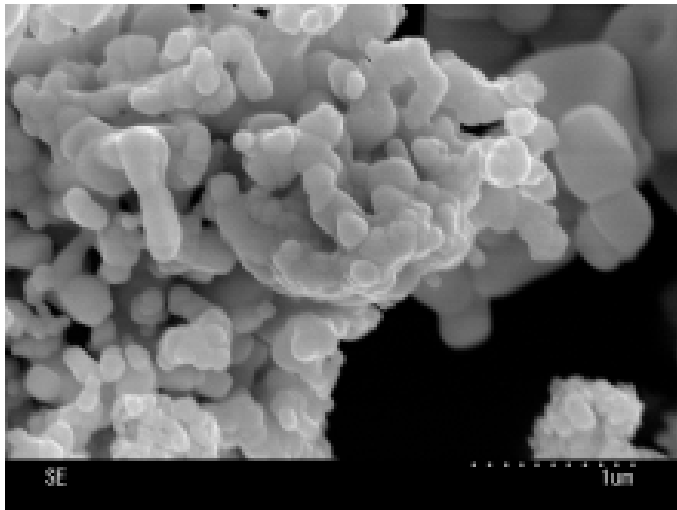
試験条件			密度 (g/cm ³)	q : 発熱密度 (w/cm ³ MOX)	測温抵抗体位置(cm)			温度測定位置								①→壁面 Σ温度差 (°C)	q/λe	λe (w/cm °C)
比表面積 (m ² /g)	雰囲気	密度			①~②	①~③	①~④	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧			
3.36	大気	小	2.79	1.80E-02	0.91	1.36	1.73	54.22	50.82	42.54	37.88	Σ :	34.33	31.92	19.89	20.711	8.69E-04	
		中	2.92	1.89E-02				48.87	45.64	37.45	32.55	Σ :	29.26	26.77	19.61	20.561	9.19E-04	
		大	3.06	1.98E-02				47.34	43.93	35.51	30.90	Σ :	27.65	25.00	19.69	20.584	9.62E-04	
	He	小	2.75	1.78E-02				46.91	44.60	38.59	35.20	Σ :	32.74	30.81	14.17	14.831	1.20E-03	
		中	2.92	1.89E-02				43.44	41.10	34.71	31.01	Σ :	28.61	26.65	14.83	15.63	1.21E-03	
		大	3.06	1.98E-02				43.42	40.77	34.13	30.49	Σ :	27.99	25.69	15.43	16.158	1.23E-03	
	Ar	小	2.76	1.78E-02				55.57	52.03	41.97	36.76	Σ :	33.00	30.69	22.57	23.736	7.50E-04	
		中	2.92	1.89E-02				56.26	52.44	42.82	37.16	Σ :	33.40	30.79	22.86	23.972	7.88E-04	
		大	3.06	1.98E-02				51.11	47.09	37.37	31.93	Σ :	28.12	25.24	22.99	24.013	8.25E-04	
	He+Ar	小	2.75	1.78E-02				49.40	46.33	38.92	34.54	Σ :	31.30	29.17	18.10	18.859	9.44E-04	
		中	2.92	1.89E-02				46.31	43.43	35.77	31.35	Σ :	28.36	26.26	17.95	18.859	1.00E-03	
		大	3.06	1.98E-02				45.79	42.70	35.02	30.80	Σ :	27.85	25.20	17.94	18.766	1.06E-03	

表6 計算に用いたMOX粉末のパラメータ

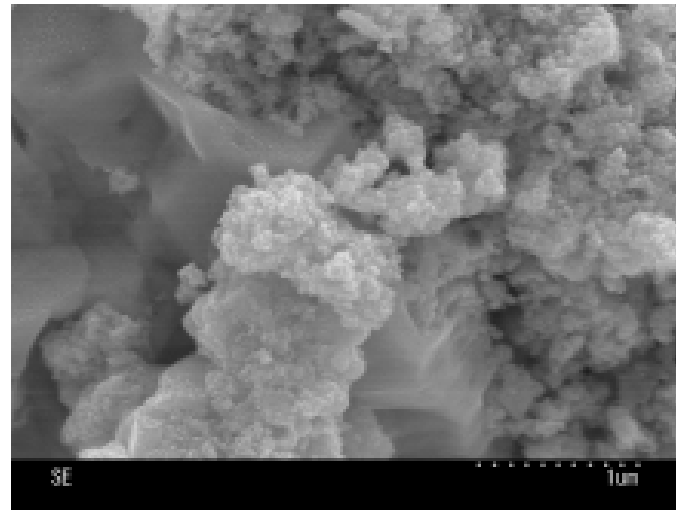
原料の各同位体の発熱量と組成割合		
同位体	発熱量(w/g)	含有割合(%)
Pu-238	5.67E-01	1.024
Pu-239	1.93E-03	63.773
Pu-240	7.13E-03	25.942
Pu-241	3.29E-03	5.121
Pu-242	1.16E-04	7.820
U-234	1.81E-04	0.090
U-235	6.02E-06	0.239
U-236	1.77E-06	0.030
U-238	8.50E-09	99.641
Am-241	1.15E-01	0.00
かさ密度	2 g / c c	
比表面積	3 m ² /g	
平均粒径	0.3 μ m	

表7 直径10cm円筒モデルによる各パラメータの中心温度への影響

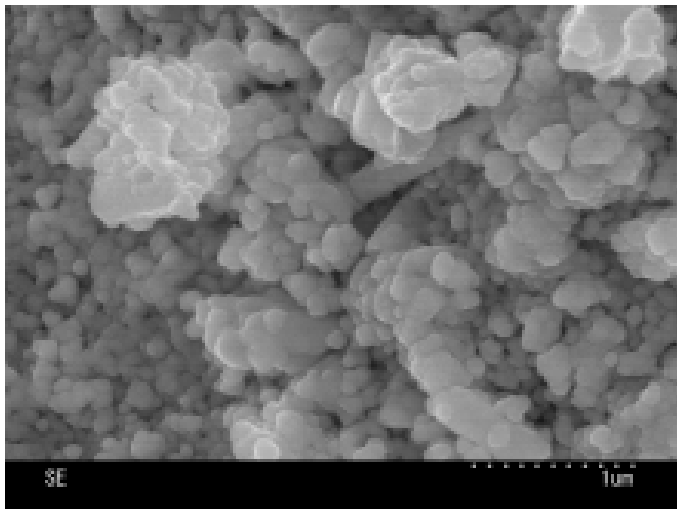
パラメータ	実効熱伝導率変化	発熱変化	中心温度
Am 濃度 : 0 → 5%	→ 変化なし	↗ 上昇	↗ 上昇
O/M : 2.01 → 2.28	↘ 低下	→ 変化なし	↗ 上昇
かさ密度 : 2 → 3.5 g/cc	↗ 上昇	↗ 上昇	↗ 上昇
比表面積 : 3 → 6 m ² /g	↗ 上昇	→ 変化なし	↘ 低下
粒径 : 0.3 → 0.6 μm	↗ 上昇	→ 変化なし	↘ 低下



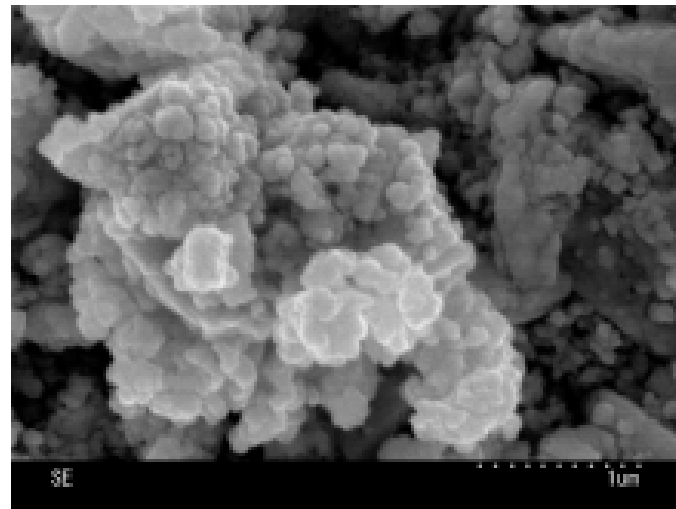
(a) 試料-1 (比表面積 : 2.52ℓ/g)



(b) 試料-2 (比表面積 : 4.33ℓ/g)



(c) 試料-3 (比表面積 : 3.73ℓ/g)



(d) 試料-4 (比表面積 : 3.36ℓ/g)

図1 原料粉末のSEM写真×30000

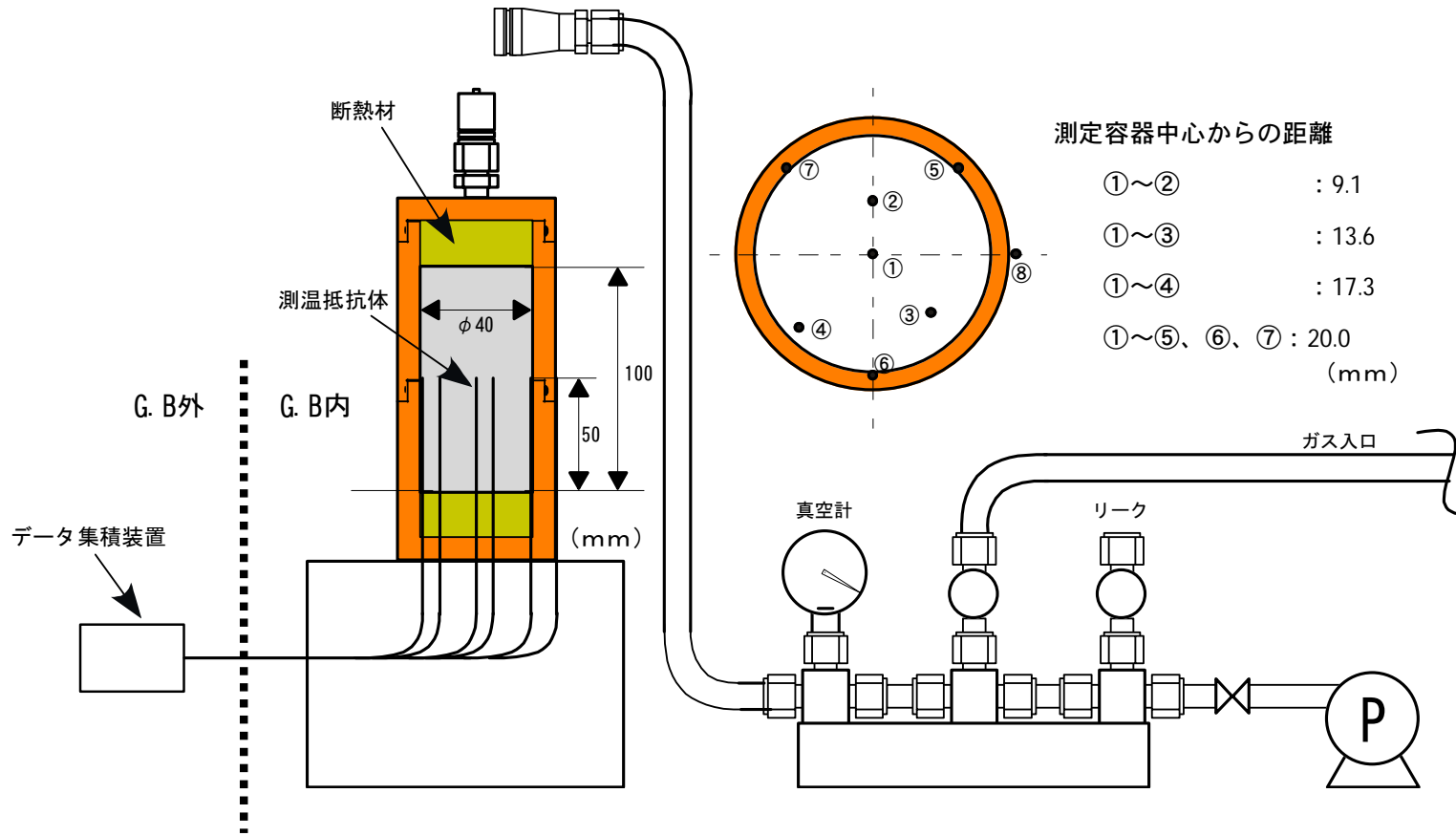


図2 測定容器図

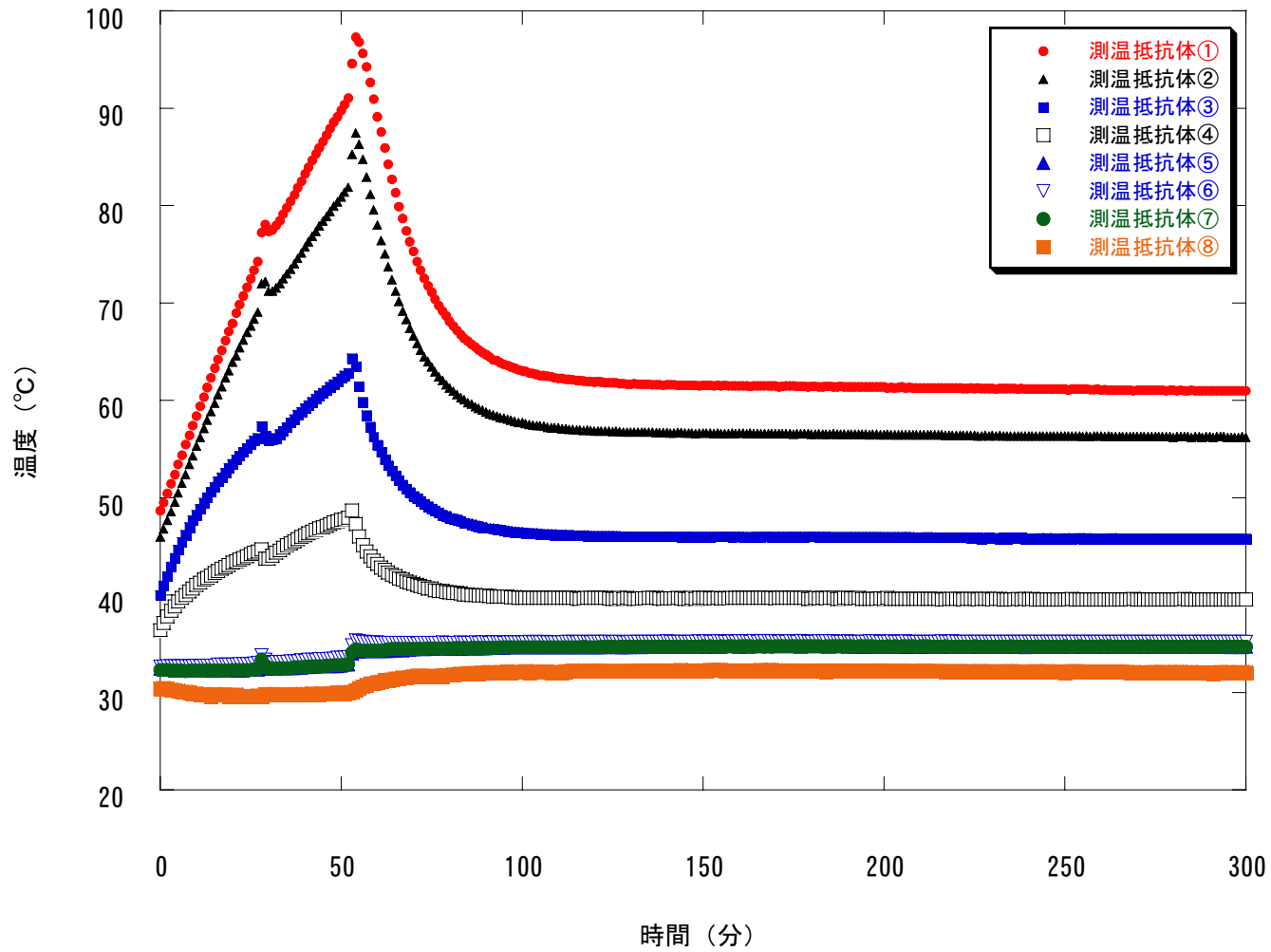


図3 測定データ (試料-2 かさ密度 : 2.83 (g)cmAr雰囲気中)

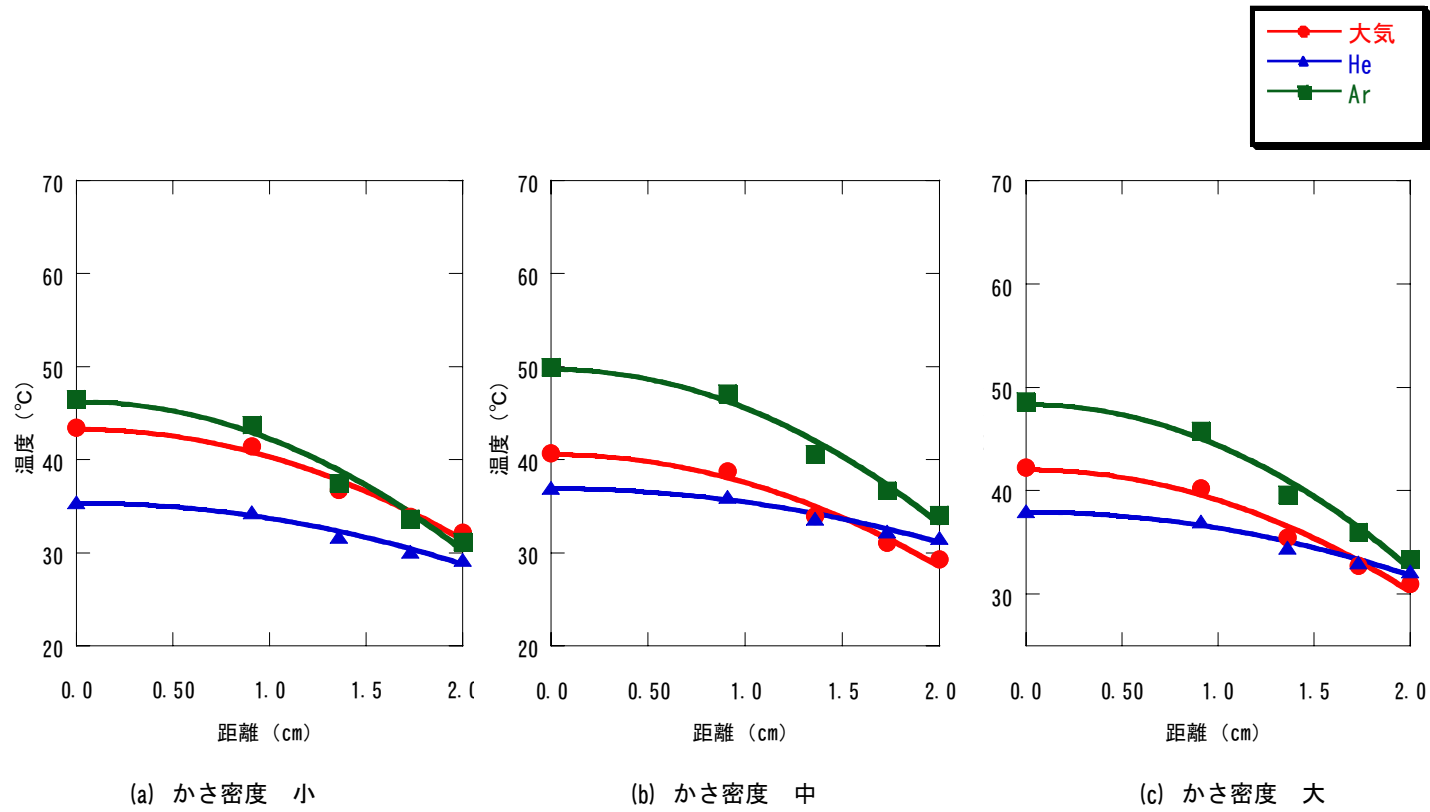


図4 試料-1の径方向温度分布測定結果

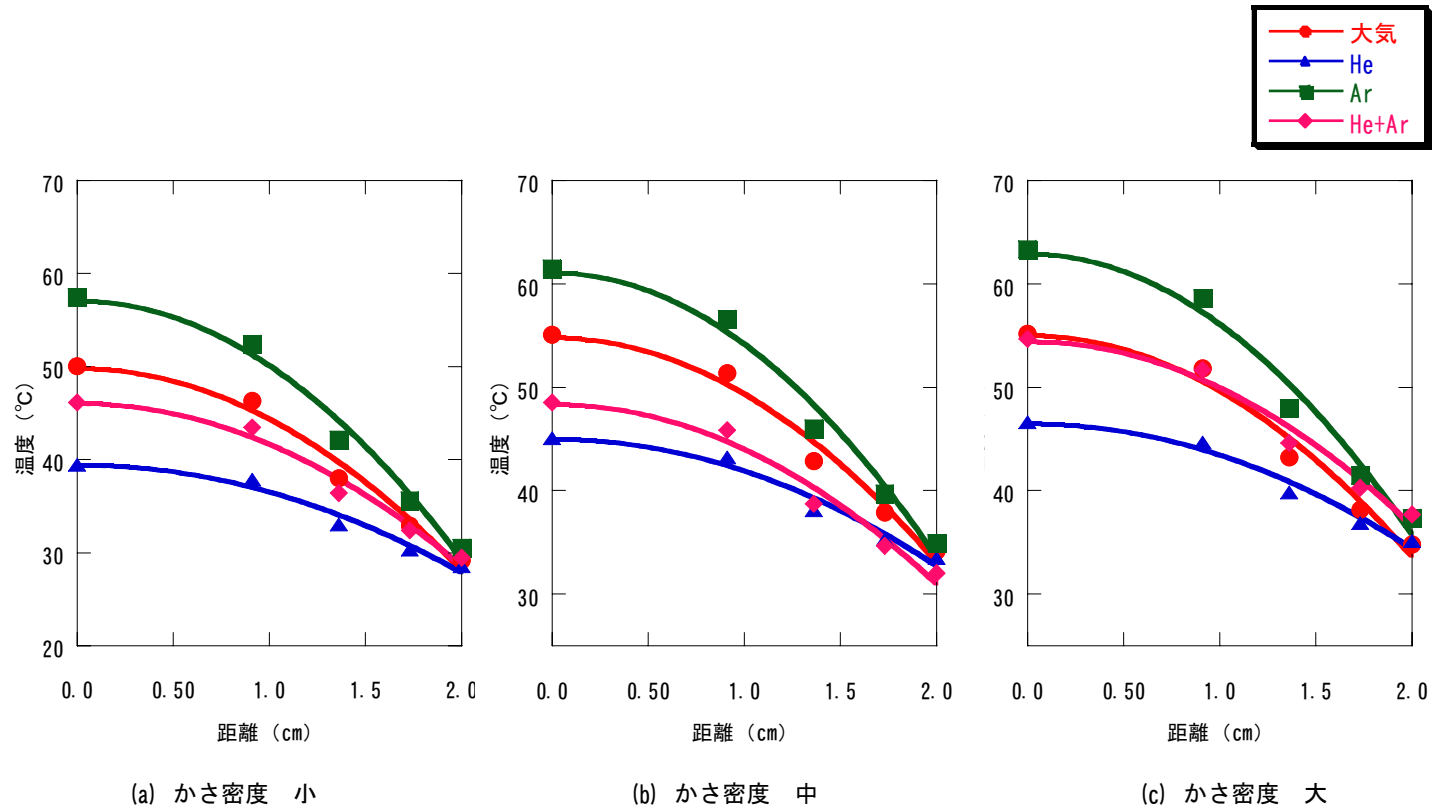


図5 試料-2の径方向温度分布測定結果

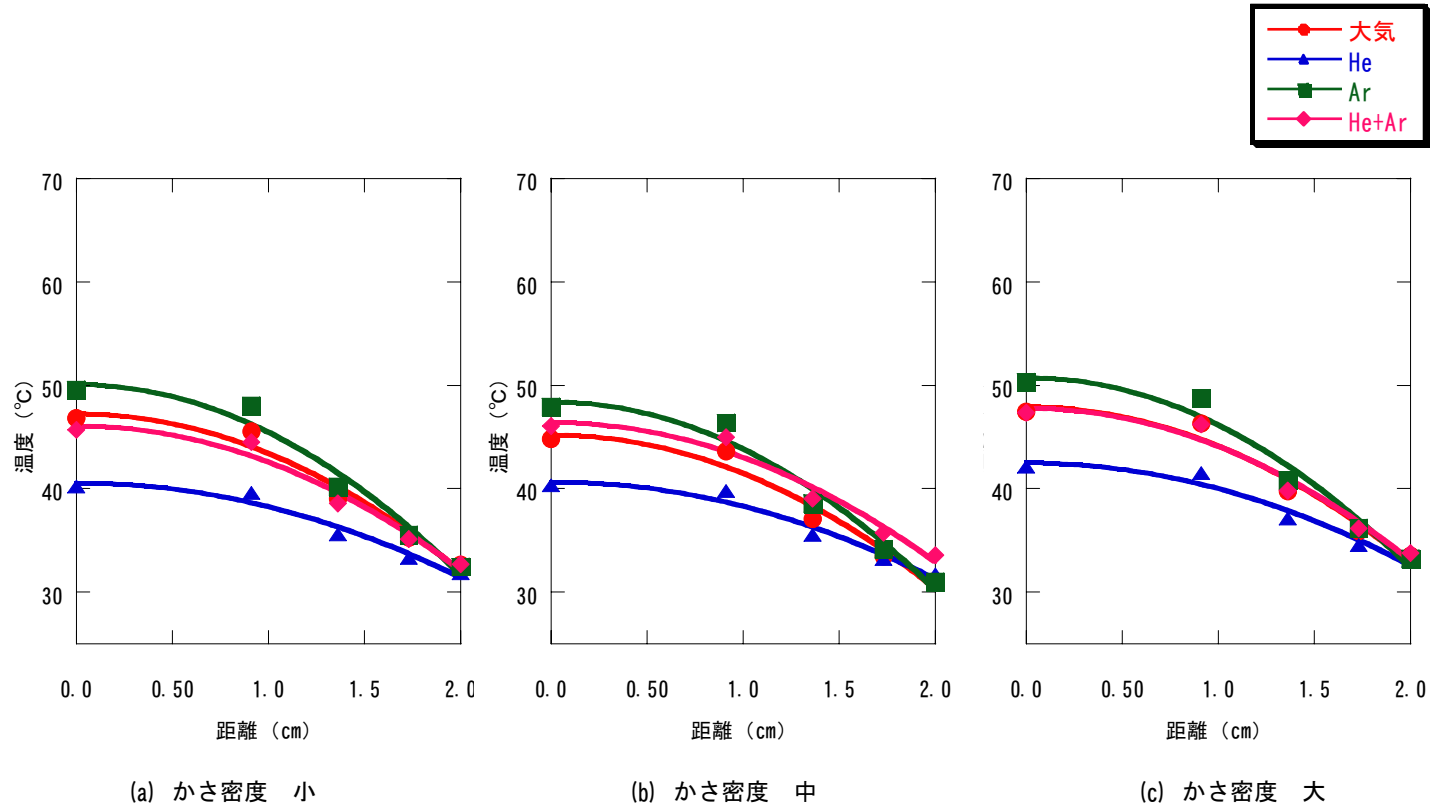


図6 試料-3の径方向温度分布測定結果

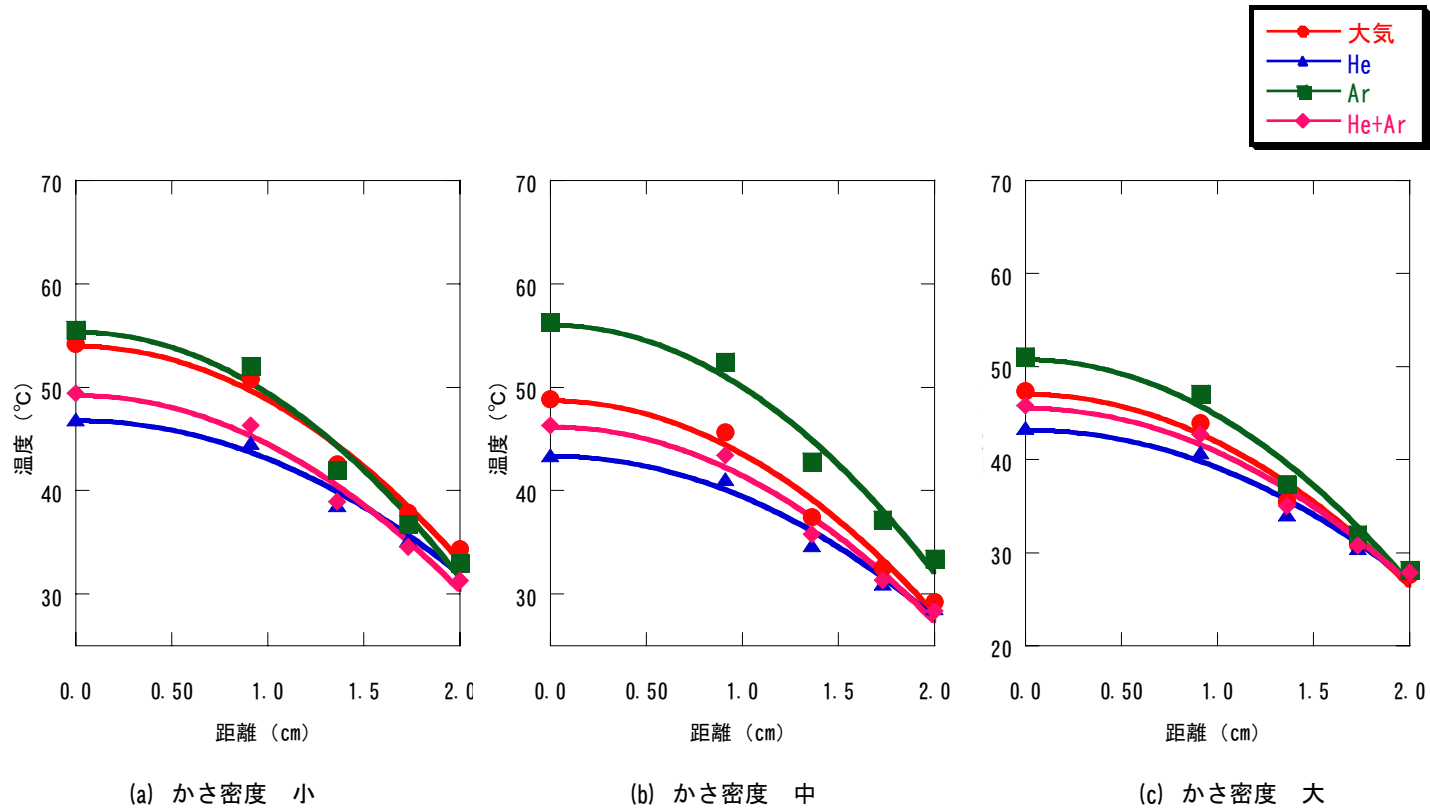


図7 試料-4の径方向温度分布測定結果

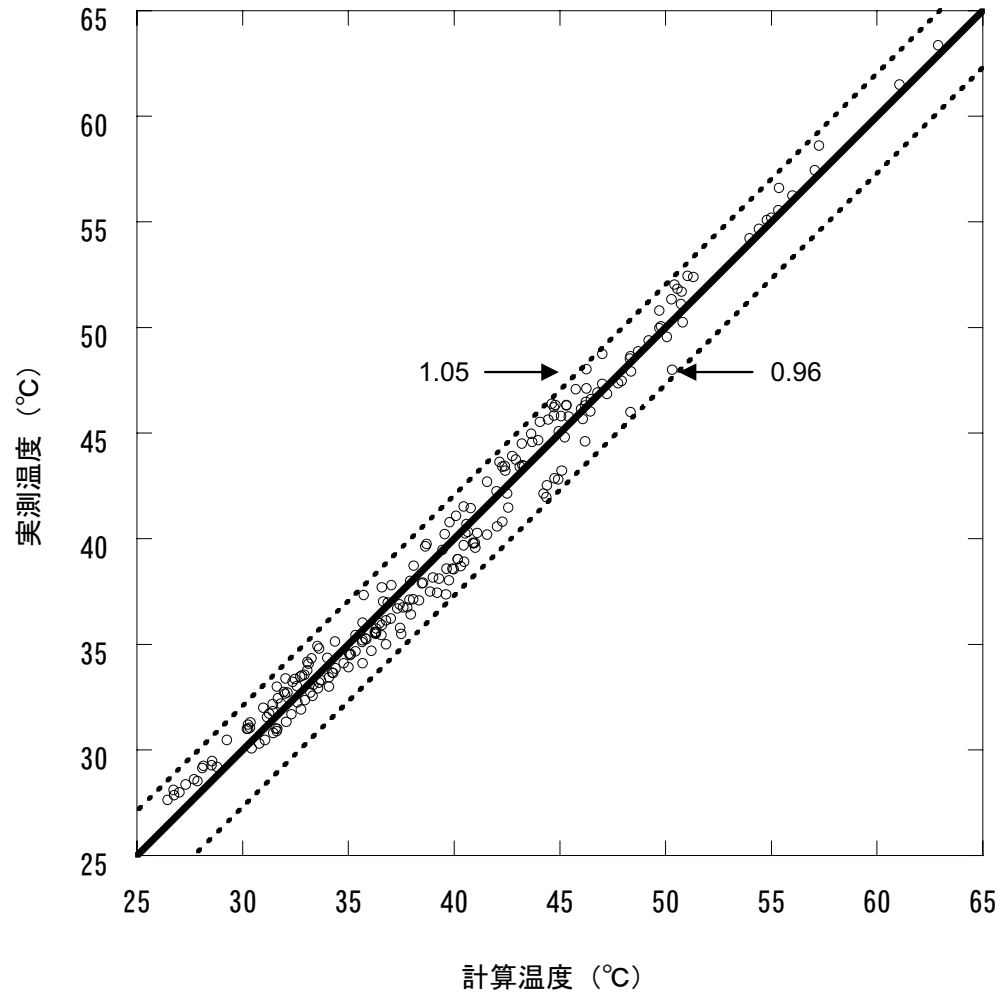
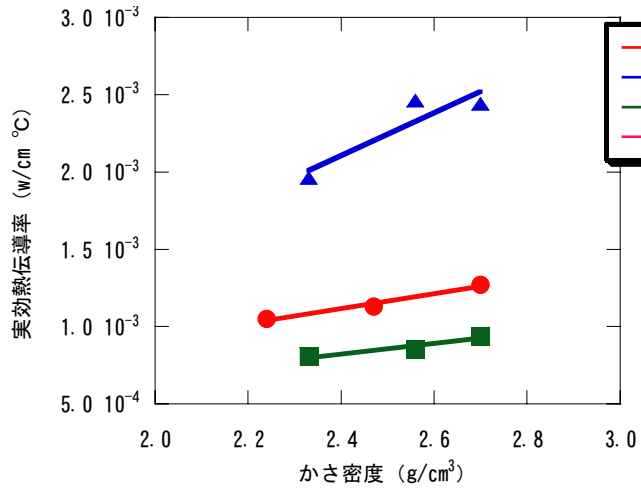
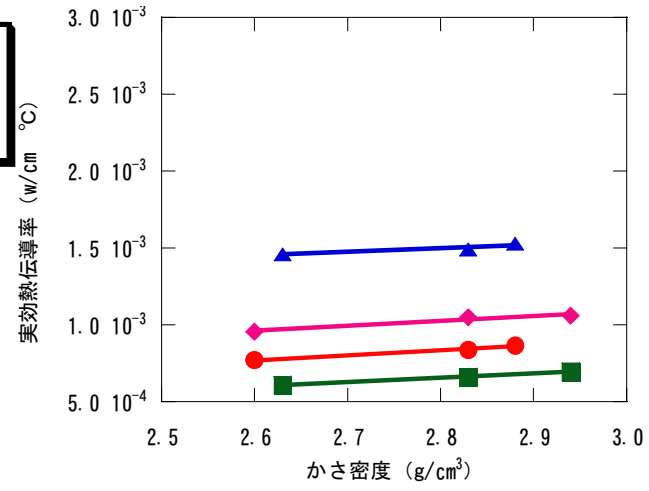


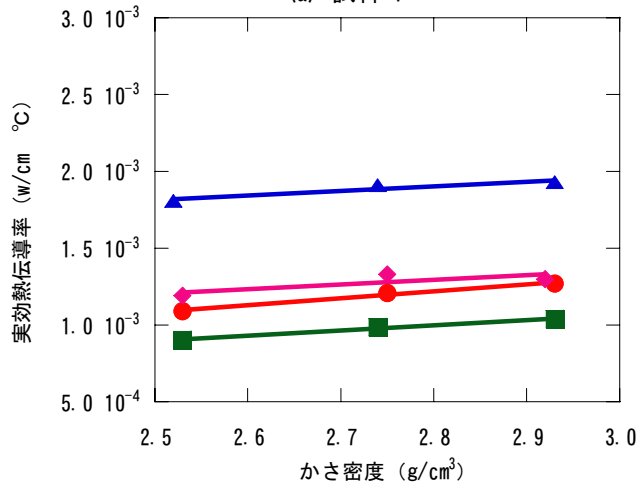
図8 計算温度と実測温度の比較



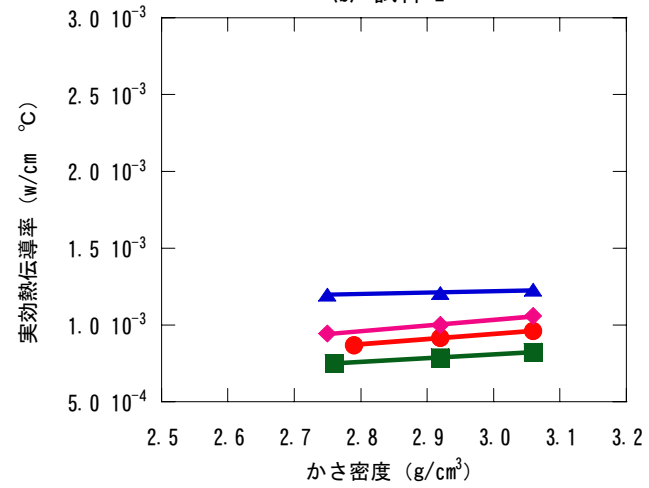
(a) 試料-1



(b) 試料-2



(c) 試料-3



(d) 試料-4

図9 実効熱伝導率へ及ぼすかさ密度とガスの種類の影響

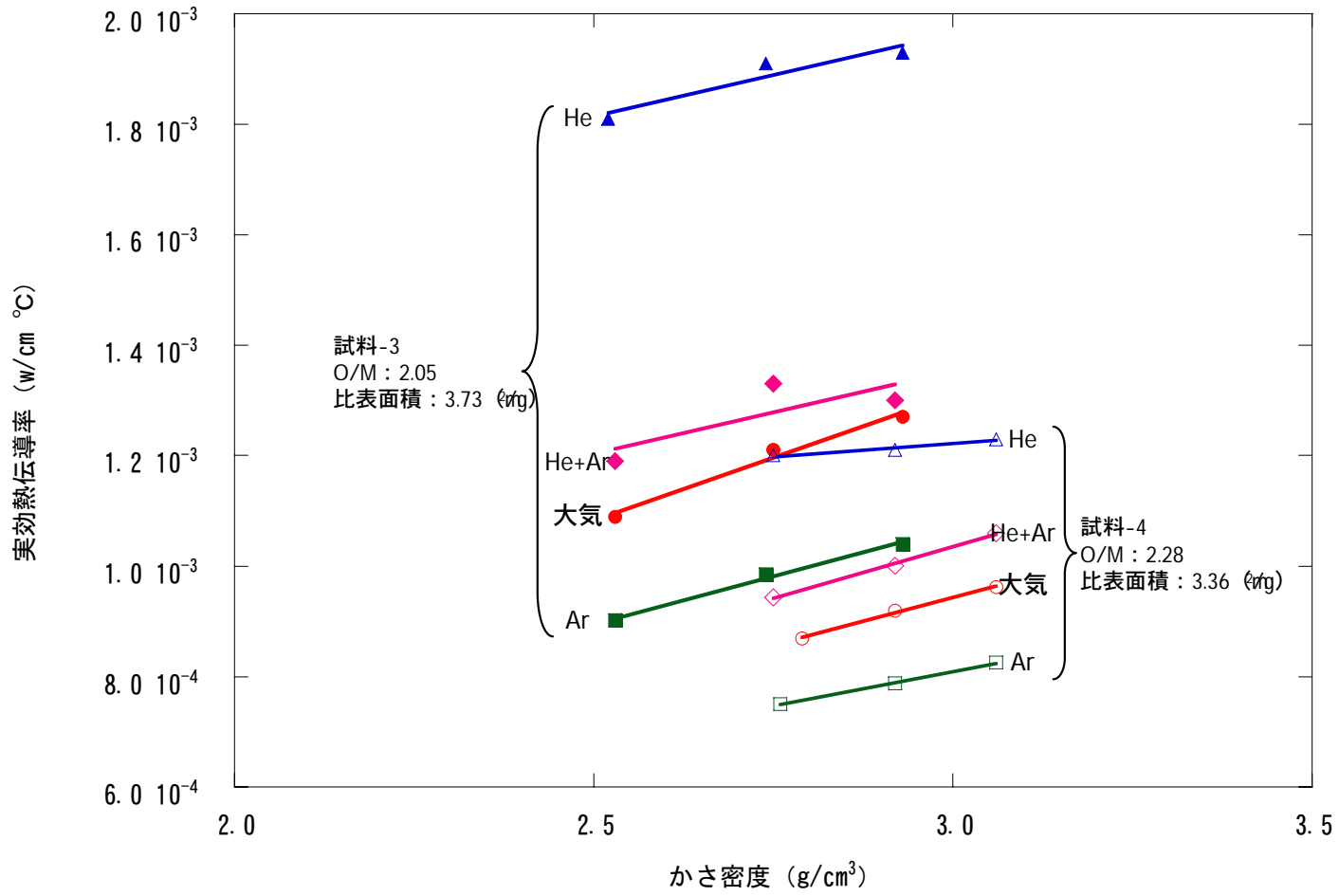


図10 実効伝導率へ及ぼすO/Mの影響

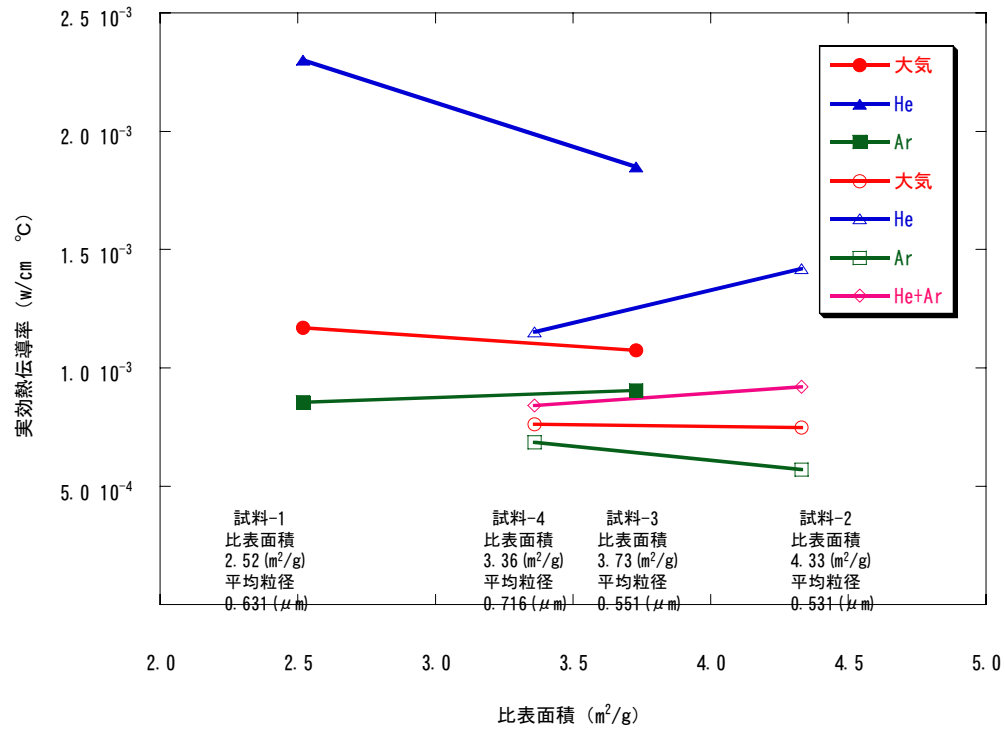


図11 実効熱伝導率へ及ぼす粉末物性の影響

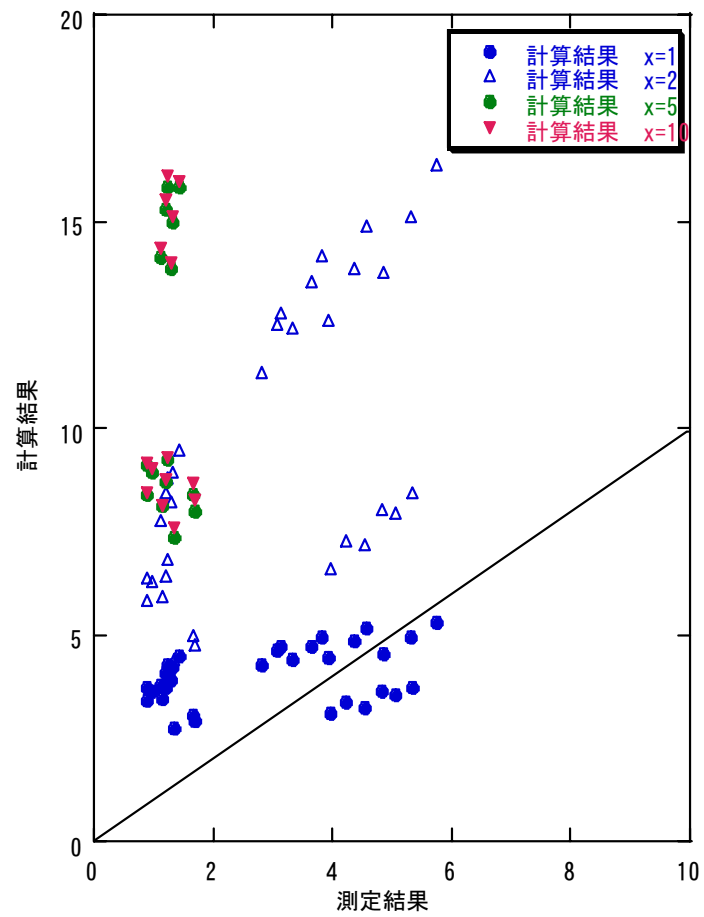


図12 $\lambda d=0.05W/cmK$ とした場合の λd の測定結果と計算結果の比較

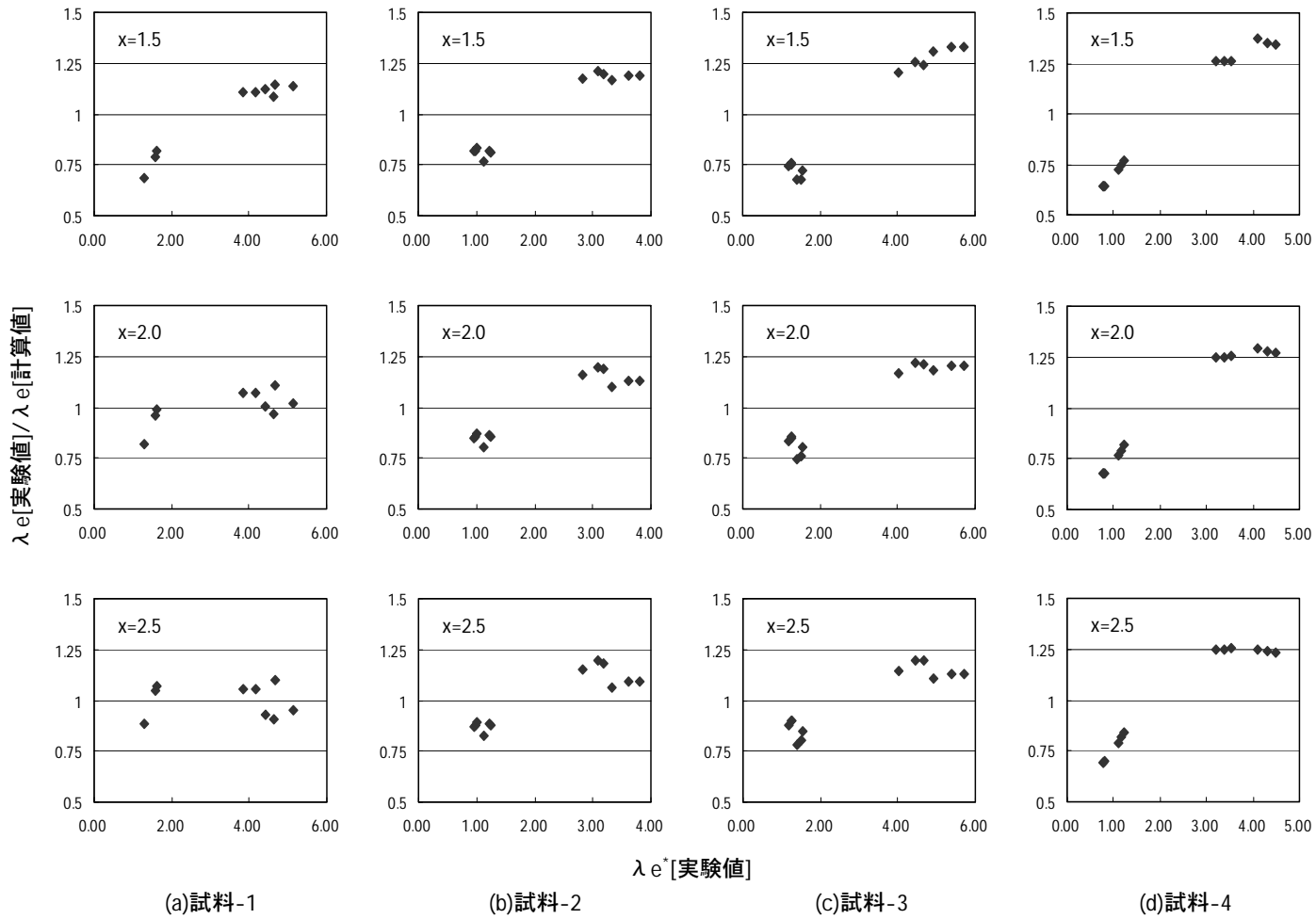


図13 各試料の x と λ_e [実験値]/ λ_e [計算値]の関係

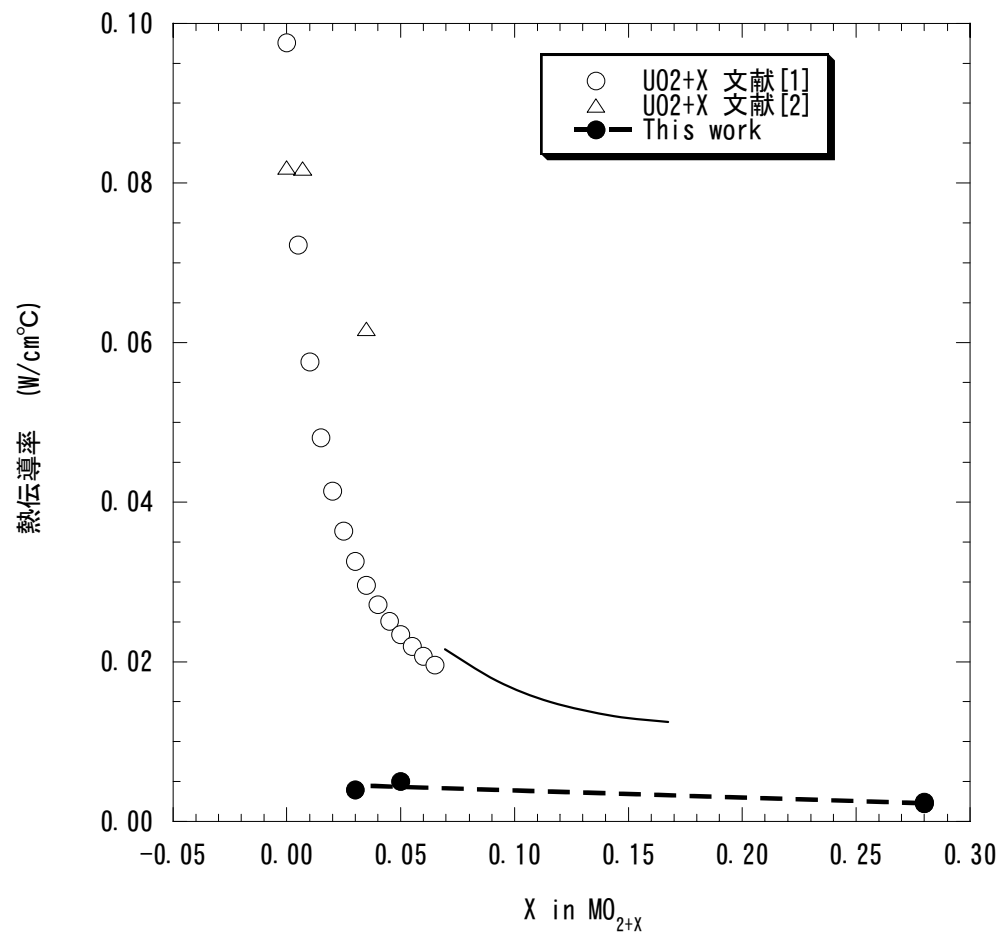


図14 λd のO/M依存性データ

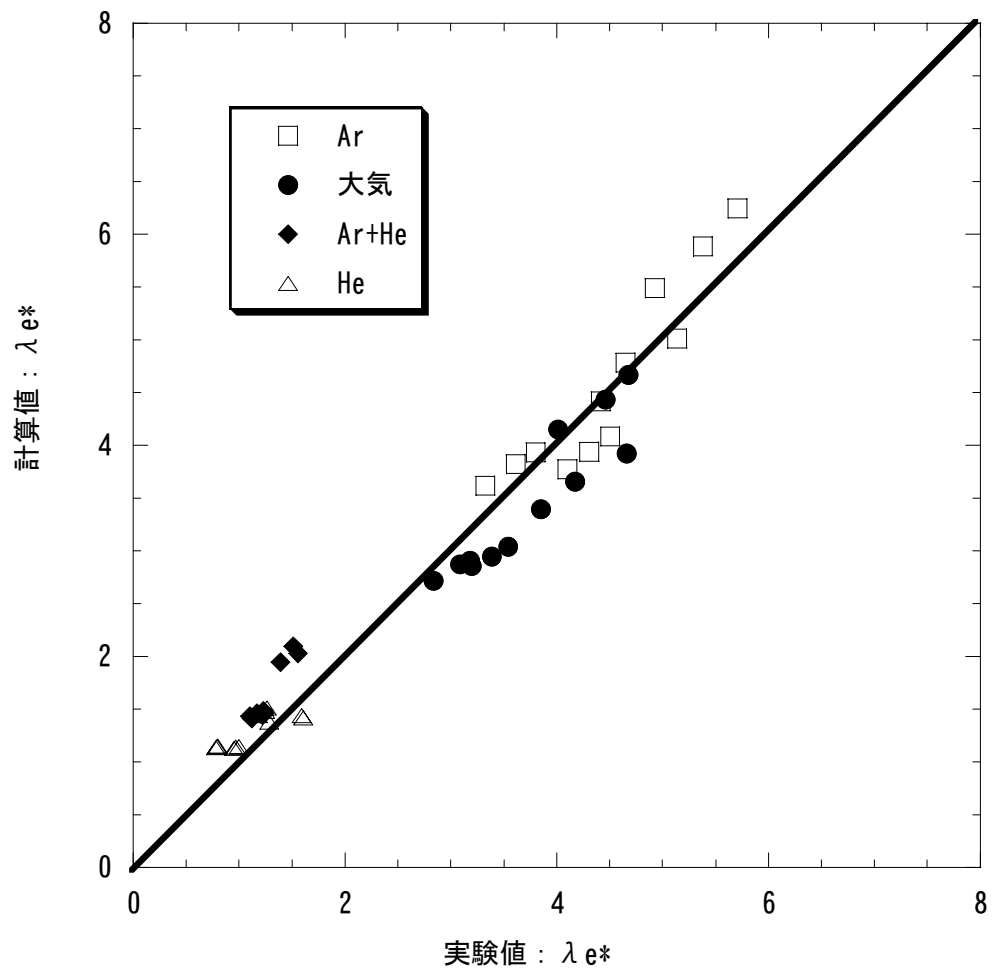


図15 実験結果と計算結果の比較

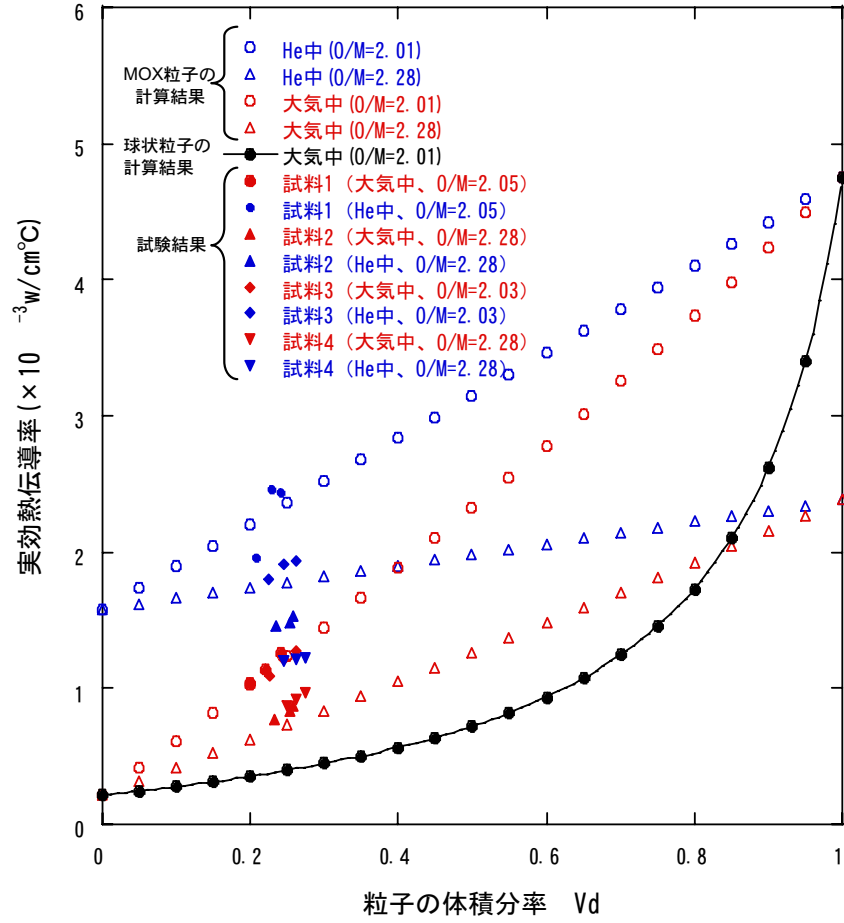


図16 実効熱伝導率の粒子体積分率依存性

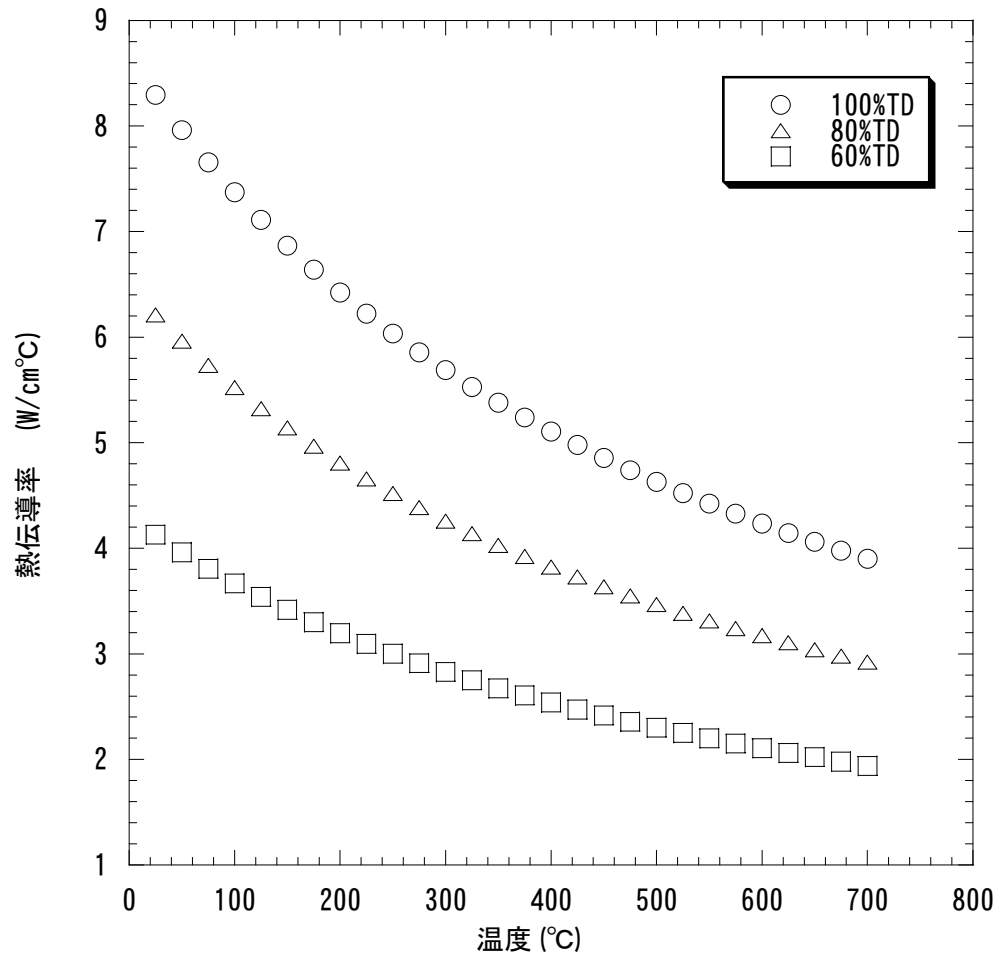


図17 熱伝導率へ及ぼす密度の影響

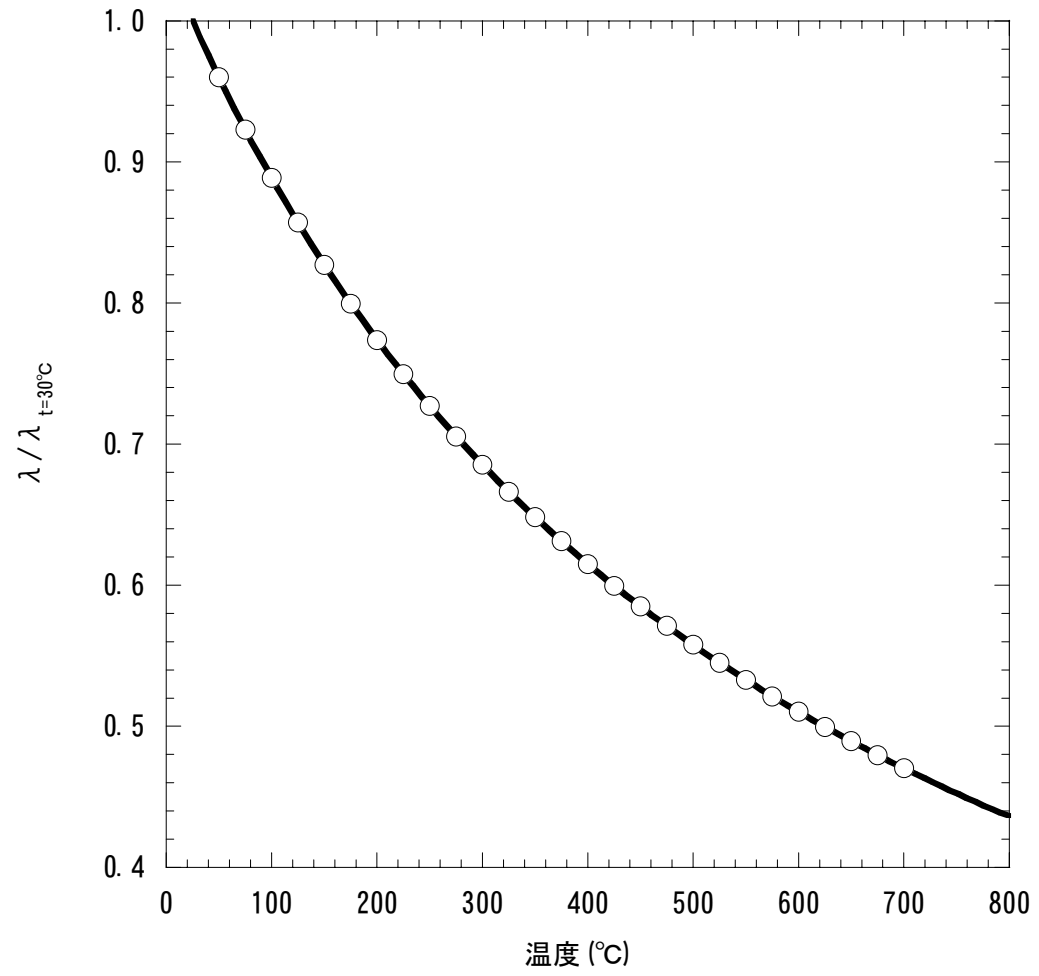


図18 $\lambda / \lambda_{t=30^\circ\text{C}}$ の変化

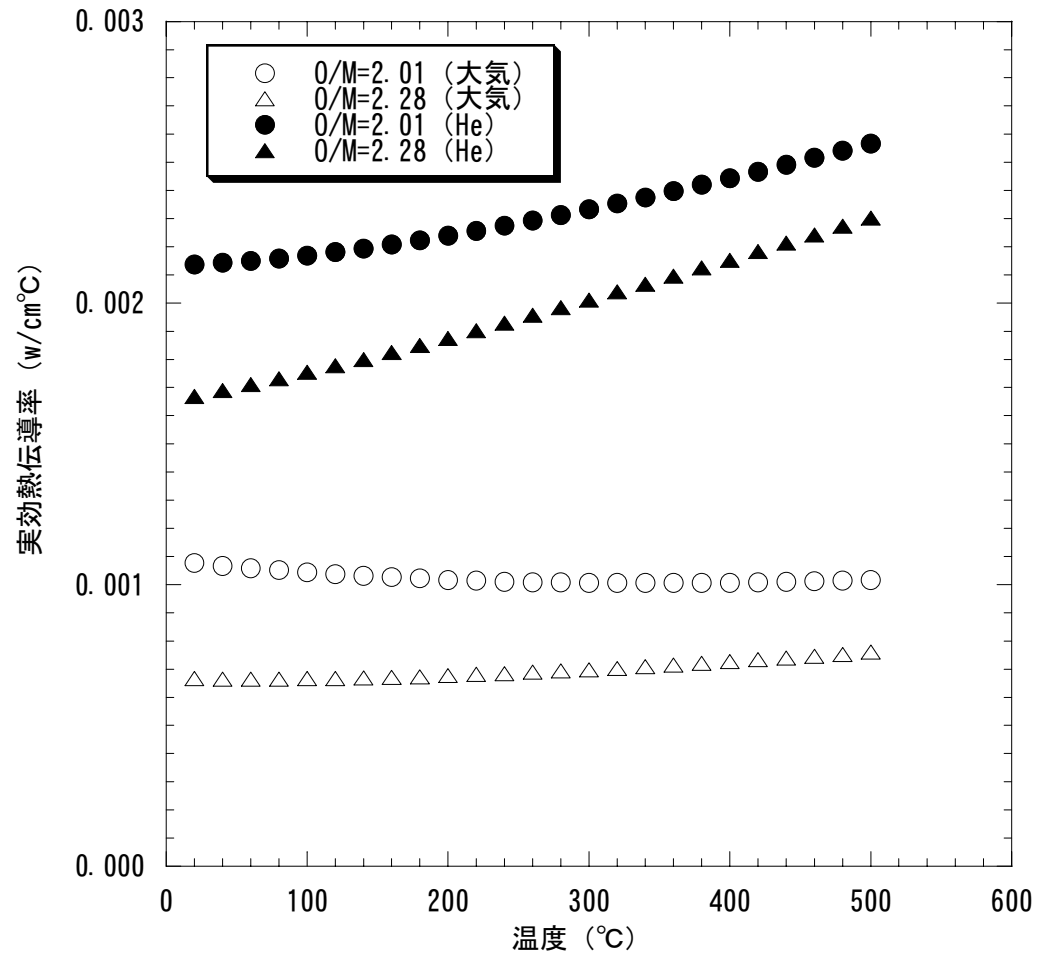


図19 実効熱伝導率の温度依存性

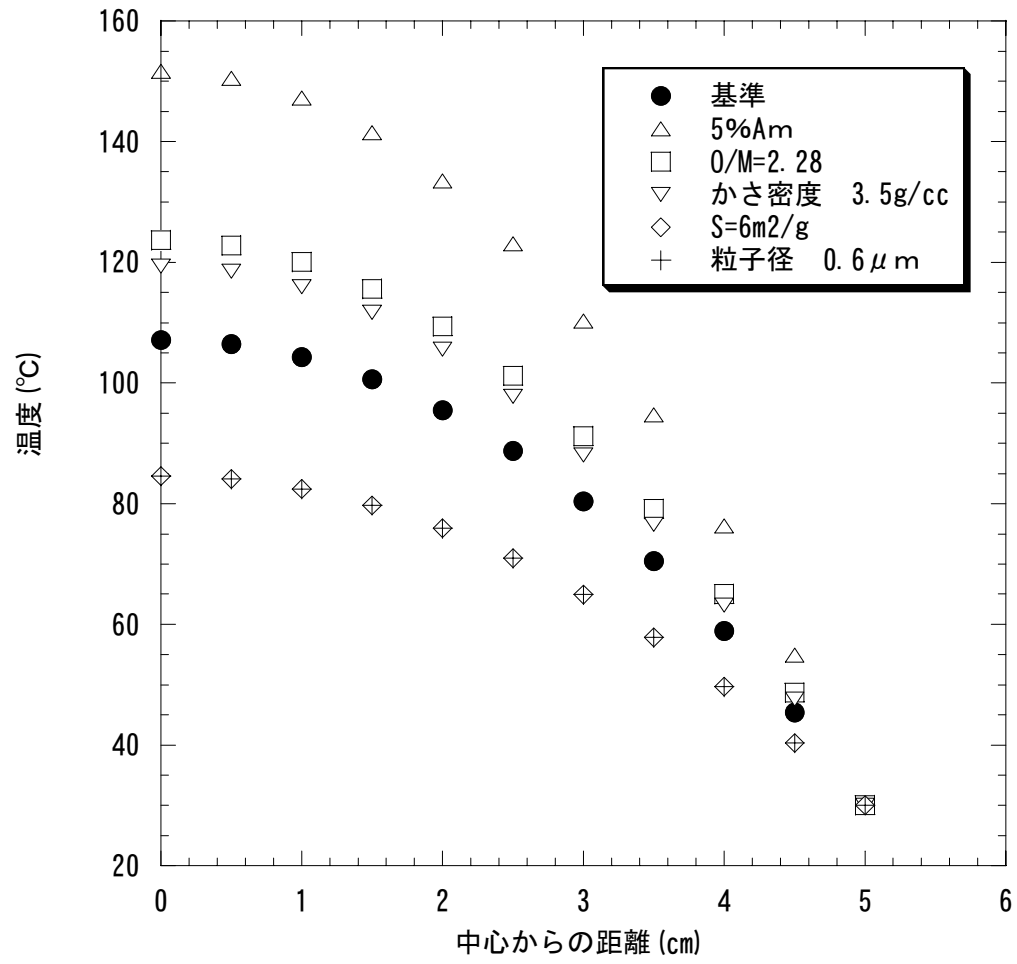


図20 直径10cmの円筒モデルによるMOX粉末の温度評価