

平成 30 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

高速パルス通電加熱による
超高温核燃料物性測定技術の開発

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構が実施した平成 28-30 年度「高速パルス通電加熱による超高温核燃料物性測定技術の開発」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	iv
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.2 平成 28 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-1
2.3 平成 29 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-2
2.4 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-3
3. 業務の実施内容及び成果	3-1
3.1 設計・製作 (H28~H30)	3-1
3.1.1 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作 (H28~H29)	3-1
3.1.2 新型加熱機構の設計・製作 (再委託先：産総研) (H28~H29)	3-1
3.1.3 既存装置の新型装置への改修 (原子力機構、 再委託先：産総研) (H29~H30)	3-2
3.2 装置基礎特性確認試験 (H29~H30)	3-3
3.2.1 試料未装荷加熱試験 (再委託先：産総研) (H29~H30)	3-3
3.3 高融点酸化物加熱試験 (H28~H29)	3-4
3.3.1 高融点酸化物加熱試験 (原子力機構、再委託先：産総研) (H28~H29)	3-4
3.3.2 加熱後試料分析 (再委託先：東北大学) (H28~H29)	3-5
3.4 ウラン酸化物加熱試験 (H28-29：再委託先：福井大学、H30：原子力機構、 再委託先：福井大学、東北大学) (H28~H30)	3-5
3.5 試料作製 (再委託先：東北大学) (H28~H30)	3-8
3.6 研究推進 (H28~H30)	3-9
4. 結言	4-1
4.1 設計・製作 (H28~H30)	4-1
4.2 装置基礎特性確認試験 (H29~H30)	4-3
4.3 高融点酸化物加熱試験 (H28~H29)	4-3
4.4 ウラン酸化物加熱試験 (H28~H30)	4-4
4.5 試料作製 (H28~H30)	4-5
4.6 研究推進 (H28~H30)	4-5

表一覧

表 2. 1-1 業務全体計画	5-1
表 3. 4-1 安定化ジルコニアの多段階パルス通電加熱条件	5-1
表 3. 4-2 (U, Ce)O ₂ の多段階パルス通電加熱条件	5-1

図一覧

図 3. 1. 3-1 多段階パルス通電加熱試験におけるタングステン棒の温度及び電力の時間変化	6-1
図 3. 2. 1-1 W 基板上に製膜した 3 種類のアリミナ担持層上での 480°C と 700°C での CNT 製膜処理後の外観写真	6-1
図 3. 2. 1-2 W 基板上に製膜した 3 種類のアリミナ担持層上に成長した CNT 黒化膜の分光反射率	6-2
図 3. 2. 1-3 CNT 被覆タングステン管試料を装着する手順の概略	6-3
図 3. 2. 1-4 CNT 被覆タングステン管の内側温度 (赤線) と外側温度 (青線) の定常温度保持時間に対する変化	6-4
図 3. 4-1 典型的なパルス通電加熱試験の温度及び投入電力データ	6-5
図 3. 4-2 酸化物試料を入れた W チューブのパルス通電加熱試験配置	6-5
図 3. 4-3 解析モデルと有限要素法のメッシュ分割	6-6
図 3. 4-4 COMSOL 解析結果の一例	6-6
図 3. 4-5 試料軸方向温度分布の時間変化	6-7
図 3. 4-6 酸化物を含む W チューブ試料の多段階 PID 制御	6-7
図 3. 4-7 酸化物を含む W チューブ試料の熱容量の温度変化	6-8
図 3. 4-8 W 棒の多段階パルス通電加熱データ	6-8
図 3. 4-9 エンタルピーの温度変化	6-9
図 3. 4-10 W 棒の比熱評価結果	6-9
図 3. 4-11 ジルコニアを入れた W チューブの多段階パルス通電加熱結果	6-10
図 3. 4-12 多段階パルス通電加熱試験から求めた安定化ジルコニアの比熱及び文献値	6-11
図 3. 4-13 UO ₂ -CeO ₂ 系 (a) 及び UO ₂ -PuO ₂ 系 (b) の相図	6-11
図 3. 4-14 加熱試験後の試料断面図	6-12
図 3. 4-15 (U, Ce)O ₂ 試料の多段階パルス通電加熱試験結果	6-13
図 3. 4-16 パルス通電加熱試験後の試料外観	6-14
図 3. 5-1 混合酸化物粉末の作製フロー	6-15
図 3. 5-2 混合溶液作製と共沈過程	6-16
図 3. 5-3 焙焼・還元炉と生成物	6-16
図 3. 5-4 沈殿物、焙焼物、還元物及び焼結体の XRD プロファイル	6-17
図 3. 5-5 還元物及び焼結物の格子定数	6-18
図 3. 5-6 (U, Ce)O ₂ ペレット外観	6-18
図 3. 5-7 W チューブ、端栓及びジルコニア丸棒スペーサー	6-18

略語一覧

- ・ CNT : Carbon Nanotube (カーボンナノチューブ)
- ・ CVD : Chemical Vapor Deposition (化学蒸着)
- ・ MFC : Mass Flow Controller (マスフローコントローラ)
- ・ SA : Severe Accident (シビアアクシデント、過酷事故)
- ・ sccm : Standard Cubic Centimeter per Minutes (標準状態での流量 (cm³/min))
- ・ パルス通電加熱物性測定技術 (システム、装置)
 - ： 高速パルス通電加熱による超高温核燃料物性測定技術 (システム、装置)
- ・ FTIR : Fourier transform infrared spectrometer (フーリエ変換型赤外分光分析装置)
- ・ 原子力機構 (JAEA) : 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構
- ・ 産総研 (AIST) : 国立研究開発法人 産業技術総合研究所
- ・ 東北大学 : 国立大学法人 東北大学
- ・ 福井大学 : 国立大学法人 福井大学

概略

原子力発電を今後日本で継続するためには、高い安全性を確保し一般社会の理解を得ることが緊急の課題である。原子力分野におけるシビアアクシデント研究（以下、SA研究）においては、過渡事象や過酷事故時に想定される燃料挙動の解明が重要な課題と位置づけられており、2011年に発生した福島第一原子力発電所事故以降、この研究課題は事故時の炉内状況の把握、事故後のデブリの取出し工法の検討等の観点から大きく注目されている。この中でも超高温状態の燃料の熱的・動的挙動の解明は最重要課題の一つとなっており、これらを精緻に予測するため計算機シミュレーションの利用が進められている。また、これまでに評価例が極めて少ない 2000 K 以上の超高温状態における原子炉内の燃料の伝熱/流動現象の予測が期待されている。このような計算機シミュレーションの予測精度を向上させるためには、シミュレーション技術としての数学モデルや計算機の能力の向上に加え、事故時の炉心での伝熱解析において必須の計算パラメータである熔融状態を含む超高温領域における燃料の正確な物性値（比熱容量、熱伝導率/熱拡散率、密度/熱膨張率、放射率、粘度、表面張力等）が求められている。

市販の測定機器が対象とする試料の上限温度は概ね 1950 K 程度であり、これ以上の温度域では対象とする試料と測定する熱物性値等を考慮して、測定機器の設計・製作を独自に行う必要がある。さらに 2500K を超える温度域の熱物性測定においては、従来の測定手法では試料を超高温で一定温度に保持して物性を測定するため、「試料と装置構成部材の反応」、「構成部材や雰囲気との反応に伴う試料組成の変化」、「試料の蒸発」、「装置部品の劣化」等の測定技術上困難な課題が超高温領域の燃料挙動に関する精度の高い評価に対し長期にわたって大きな障壁となっていた。

本研究は超高温域での熔融酸化物の物性測定を実現するため、原子力以外の分野において開発が進められてきたフィードバック制御パルス通電加熱物性測定技術に新たに予備加熱機構を組み合わせることで熔融酸化物の短時間局所平衡状態を実現することを特徴とする世界で初めての高温物性測定技術を用いて、超高温状態や熔融状態の酸化物燃料の比熱容量等の熱物性値を正確に測定する方法を開発することを目的として実施した。

本研究ではフィードバック制御パルス通電加熱物性測定技術を応用し、酸化物燃料の超高温域における物性測定を実施するために以下の特徴を有する測定装置の開発を行う。

- 従来のパルス通電加熱物性測定技術は導電性試料に直接電流を印加して加熱し、種々の物性値を測定する技術であり、絶縁体である酸化物試料に対しては直接の適用ができない。そこで、導電性を有するタングステン製試料容器（以下、W 製容器）に酸化物試料を装荷した状態で試料容器を通電加熱することにより試料を間接的に加熱する機能を有する。
- 酸化物試料を室温から超高温である融点以上に加熱するため、試料を装荷した W 製容器を予備加熱（以下、1 次加熱）することで容器内の試料を融点近くまで加熱したのち、さらに、試料容器をパルス通電加熱（以下、2 次加熱）することで酸化物試料を融点以上に加熱するとともに比熱等の熱物性値を熱量法の原理により測定する機能を有する。
- 加熱中の試料温度を放射温度計により連続的に測定するとともに試料容器に印加する電流と電圧を同時に測定し、得られた温度とジュール熱の履歴から酸化物試料の融点、比熱容量、熔融エンタルピーを導出する機能を有する。

○放射温度計には温度測定の確度・精度を考慮して信頼性の高い単色放射温度計を採用する。
また、放射温度計の測定精度は測定対象物の放射率に左右されることから、測定対象物となる W 製容器の観測位置の表面にカーボンナノチューブ（以下、CNT）の成膜を施すことによって放射率がほぼ 1 となるような加工を施し、温度測定の確度・精度を向上させる。

本研究期間の研究成果を以下に示す。

【タングステン製試料容器の製作：H28-29】 従来のパルス通電加熱装置で使用されるタングステン製試料容器は両端が開放されており、熔融体の保持が困難であること、測温孔を有さないため放射温度計による温度計測に誤差が生じること等の問題があった。これらの問題に対応するため、**【新型加熱機構の設計・製作】**にて後述する 3 通りの加熱方法（1. 高周波誘導加熱、2. 試料容器への直接通電による抵抗加熱、3. ヒーターによる間接加熱）を検討した。

高周波誘導加熱を用いた方法については、試料容器として 2 重るつぼ型タングステン製試料容器を設計・製作し、本容器の性能評価を実施した。

直接通電による抵抗加熱を用いた方法については、これまでチューブ型タングステン製試料容器（以下、チューブ型 W 製容器）をチャンバー内へ水平に設置していたが、熔融体の保持が困難なこと等の問題があったため、端栓付きのチューブ型 W 製容器を製作した。

上記、高周波誘導加熱及び直接通電による抵抗加熱を用いた方法はどちらも試料容器を縦置きにする必要があったことから、既存のチャンバーを改良して当該容器を縦置きに設置できるようにした。

【新型加熱機構の設計・製作：H28-29】 本研究では、パルス通電加熱技術を活用した熱量法によりタングステン製の試料容器に装荷した酸化物試料の熔融状態における比熱容量を測定するため、測定前に試料容器を融点付近の温度にあらかじめ加熱する機能を備えた新型のパルス通電加熱装置を開発する必要がある。試料容器を予備的に加熱する手段として、以下の 3 つの方法を検討した。

- (1) 高周波誘導加熱
- (2) 試料容器への直接通電による抵抗加熱
- (3) ヒーターによる間接加熱

多角的に予備加熱方法の開発を行う事で確実に目標を達成するため、これらの候補について実験的な評価を行い、最適な予備加熱方法を選定することとした。

まず、(1) 高周波誘導加熱は、パルス通電加熱技術と組み合わせるためには試料チャンバーや試料ホルダー部品について大幅な改造が必要となるため、予算、期間の観点から導入は見送ることとした。(3) ヒーターによる間接加熱についても試料チャンバー内に電気ヒーターを配するためには、これらの部材を保護するための冷却機構や断熱材を大掛かりに導入する必要があり、予算、期間の観点から導入は見送った。(2) 試料容器への直接通電による抵抗加熱は、加熱電流回路に大容量の直流電源を並列に接続させることで容易に設計・開発が可能である。また、予備加熱機構に必要な直流電源の仕様の評価において、アルミナ試料を融点直下まで加熱する事ができることが分かったため、本方法を採用した。

本研究にて開発する測定システムに使用する高速放射温度計の仕様を満たすため、LumaSense Technologies/Impac 社の高速放射温度計（型式 IGA740 MB25）を導入した。本放射温度計を用いてタングステンの半球全放射率を測定し、本高速放射温度計は十分に機能することを確認した。

前述で選定した直接通電抵抗加熱による予備加熱中に高温に曝されることになる試料電極を保護するため、従来の電極を大径試料電極に交換した。今後の測定において電極部がさらに高温になることを考慮して水冷試料電極も作製した。また、2 重るつぼ型タングステン製試料容器を加熱するために同軸端子型の試料電極を作製した。

放射温度計による試料温度の計測精度向上を目的として、CNT 成膜技術の高度化を実施し、CNT 成膜の前処理工程となる触媒担持層形成を金属円筒内面へ施すため、磁気粘性流体を利用した内面研磨技術を開発した。また、CNT 成膜の均一性を左右する触媒担持層の構造評価のため、走査型オージェ電子分光装置を用いて触媒担持層最表面のアルミニウムの分布を定量的に評価した。さらに平成 28~29 年度に整備・開発を行った大型試料成膜用 CVD 炉を用いて、放射率が高い CNT 集合体を得る最適な成膜条件を決定した。

【既存装置の新型装置への改修：H30】 測定中に試料容器が破損して融体試料が漏出することは極力避ける必要がある。従来の装置では、1 回の実験で設定できる目標温度は 1 点だけであるため、試料を溶融した上で熱物性の温度依存性を評価するためには何度もパルス通電加熱実験を繰り返す必要があり、2000 K 以上の温度上昇と下降を多数回繰り返すことになり試料セルに亀裂が度々発生した。そこで、本研究では新たに 1 回のパルス通電加熱実験中に複数の目標温度に保持可能な制御プログラムを開発した。また、1 回の実験において予備加熱電源による通電加熱と多段階パルス通電加熱を中断なく連続して実行するため、両加熱過程を高速で切り替える大容量の半導体スイッチを試料と予備加熱電源の間の回路中に導入した。

【試料未装荷加熱試験：H29-30】 タングステン製試料容器の形状候補として(1)チューブ型と(2)2 重るつぼ型の 2 種類を想定し、それぞれ試料未装荷の状態で作備加熱機構の性能評価を行った。その結果、チューブ型 W 製容器は試料電極の破断なく予備加熱ができ、パルス通電加熱時の到達温度の短縮が可能であることが分かった。一方、2 重るつぼ型 W 製容器は軸方向に顕著な温度分布が発生するため、実際に試料を装荷して比熱測定を行うことは困難と判断された。

【既存装置の新型装置への改修】 において示された、1 回の実験において予備加熱電源による通電加熱と多段階パルス通電加熱を中断なく連続して実行するため、新たに開発した多段階パルス通電加熱システムを用いて模擬試料セルであるタングステン棒について加熱試験を行い、システムの性能評価を行った。これより、連続的に設定した各温度点ではいずれも定常状態に到達しており、各温度ステップ間のエンタルピー変化量から比熱を算出した結果、タングステンの比熱の推奨値と良い一致を示した。

また、CNT 成膜に必要な鉄微粒子触媒を基材表面に安定的に定着させるため、事前にアルミナ担持層を成膜する必要がある。アルミナ担持層の成膜方法として、サンドブラスト

(SB) 処理後に電子ビーム真空蒸着を行う成膜方法と標準的な電子ビーム真空蒸着法があり、これらの方法の特徴と優位性の評価を行った。この結果、SB 処理後に電子ビーム真空蒸着を行ったアルミナ担持層上の CNT が最も低い反射率を示したことから、SB 処理後に電子ビーム真空蒸着を行う成膜方法を採用した。

さらに、CNT 黒化膜被覆タングステンチューブ模擬試料の加熱試験により、加熱時のチューブ外側と内側の温度差について評価した。試験は CNT 黒化膜を被覆したタングステンチューブを加熱し、所定の温度に保持した際の熱電対にて測定したチューブ内側温度と放射温度計にて測定したチューブ外側温度を比較することによって実施した。この結果、適切な温度保持時間を設定することで CNT 黒化膜被覆タングステンチューブの外側の温度と内側の温度がほぼ一致することから、放射温度計によるチューブ外側の温度を測定することによりチューブ内部の試料温度の測定が可能であることを確認した。

【高融点酸化物加熱試験：H28-29】 本研究の初期には、試料と試料容器間の接触熱伝達を改善する目的で、厚さ 20 μm の銅箔を試料中央部に巻いてパルス通電加熱を実施した。試験では銅の融点以上まであらかじめ加熱を行うことで、銅が熔融し試料とチューブ型タングステン製試料容器間の熱伝導が向上することを狙った。その結果、加熱中に試料容器が破断したものの、アルミナの融点以上までパルス通電加熱を実施することに成功し、温度データ及び投入電力を取得することができた。しかし、加熱を繰り返す間に熔融した銅が容器の端部へ移動して沈着し、電流の流れが変化して局所加熱が生じ、試料容器が破損すると推定されたことから、本方法の採用には至らなかった。

本研究の中期から後期にかけてアルミナ及びジルコニアの 2 種を試料に用いてパルス通電加熱を実施した。また、高温保持時に発生した試料容器の破断を回避するために、試料電圧を測定するための電圧プローブを改良した。アルミナ加熱試験では、アルミナが熔融温度まで加熱されていることを確認し、取得されたデータの解析からアルミナ融点直下の定圧比熱容量を算出した。文献値からのずれは $\pm 15\%$ 程度であった。ジルコニア加熱試験でも試料の熔融が確認され、データ解析の結果から定圧比熱容量及び熔融エンタルピーの両者ともに文献値からのずれが大きいと評価された。

【加熱後試料分析：H28-29】 本研究初期には、接触熱伝達の改善の目的で中央部に銅箔を巻きつけた試料のパルス通電加熱後の試料の断面観察及び X 線回折測定を実施した。その結果、熔融した銅箔は試料容器端部の比較的低温の箇所に移動、沈着し、そこで電流の流れが変化して局所加熱が発生し試料容器が破断すると考えられた。また、アルミナ試料には未熔融の箇所が多く観察され、さらに試料が移動した形跡があった。

本研究の中期には、測定後のアルミナ及びジルコニア試料の断面観察及び X 線回折測定を実施した。その結果、アルミナ試料の試験では試料容器の割れや変形はなく健全に加熱されたことが確認され、試料が熔融したことが確認された。試料と試料容器の境界の化学反応は確認されず、空隙も見られなかったことから密着性は良好であり、熱伝達が良いことが分かった。ジルコニア試料の試験でも試料容器の割れや変形はなく健全に加熱されたことが確認され、試料が熔融したことが確認された。試料と試料容器の境界部での化学反

応も見られず、密着性も良好であった。これらの結果から、本パルス通電加熱装置は酸化物核燃料の溶融に十分な性能を有していることが示された。

【ウラン酸化物加熱試験：H28-30】 本研究の初期から中期にかけて、高融点酸化物加熱試験等を通してウラン酸化物の加熱試験に関する事前調査を行った。その結果、試験実施時のウラン酸化物による汚染コントロールに関して、真空排気時の空気の流路の考慮が必要なが分かった。また、アルミナは絶縁体であるのに対し、酸化ウランは半導体であるため、加熱に必要な電流及び時間の増大、試料内温度分布の偏り、温度制御の不安定化等が懸念された。また、ウラン酸化物加熱試験ではチューブ型タングステン製試料容器の破損等によって放射性物質の飛散が懸念されるため、装置全体をクリーンブース内に設置するとともに、試料容器内部の養生を実施する措置をとることとした。高融点酸化物加熱試験においてジルコニアが溶融し、各種データが取得できたことから、融点がジルコニアと同様に高い二酸化ウランでも測定が十分に可能と判断された。また、液体状態では比熱容量は一定であると予想されるため、評価手法に大きな修正は不要と判断した。

本研究の後期には、後述する試料作製にて作製した $(U, Ce)O_2$ 試料を福井大学附属国際原子力工学研究所にてパルス通電加熱装置を用いて加熱・溶融試験を実施した。加熱条件は $(U_{0.7}Ce_{0.3})O_2$ 試料の融点よりも 100~200 K 程度高い温度設定とした。

最初の多段階パルス通電加熱測定を実施した結果、試料の溶融が確認されたが、試料の不均一性のため、局所的に加熱が生じた。試料断面の顕微鏡観察を実施したところ、試料が溶融したことが確認でき、また、試料中に大きな空洞が発生していることも判明した。

次の加熱測定では長時間の脱ガスをを行い試料中の残留ガスの影響を排除した上で、予備加熱温度を上昇させ試料内温度の不均一を緩和し、多段階パルス通電加熱を実施した。本試験では PID 制御による温度保持が各段階で正常に実施することができた。また、3000 K 以上でも温度保持ができていること、降温過程において熱停留点も見られることから試料溶融状態を保持しながらの加熱に成功したことが分かる。また、試験後試料の外観写真からは試料容器がほぼ健全な状態で多段階パルス通電加熱が実施できたと言える。

今後は、予備加熱温度の上昇と脱ガス処理に加えて、試料の理論密度比を上げること、W チューブと試料のギャップを小さくすることによって、より良好な $(U, Ce)O_2$ 試料の加熱試験が達成できると考えられる。

【試料作製：H28-30】 本研究の初期は、炉内の酸素ポテンシャルを制御しながら高温で酸化物の焼結が可能となる装置を整備した。中期には、この装置を用いて、酸化物燃料の模擬物質として結晶構造及び物性が類似しているセリウム酸化物の焼結体を作製した。後期には、混合酸化物燃料の模擬試料として $(U, Ce)O_{2-x}$ の焼結体を作製した。焼結体の X 線回折測定 (XRD) の結果からは蛍石型結晶構造のピークが観測され、格子定数からは $Ce/(U+Ce)$ 比が 0.3 の文献値と近い値を示した。これらをチューブ型タングステン製試料容器にジルコニア棒とともに挿入し、タングステン製の端栓を取り付けてパルス通電加熱試験用試料とした。

【研究推進：H28-30】 本研究期間の初期から中期にかけて、研究代表者を中心として各研究機関間における連携を密に行い、各研究項目の結果を共有することで、それぞれの成果についてフィードバック及び意見交換を行いながら効果的に研究を進めた。これにより、計画された業務は予定通り遂行できた。また、各年度で得られた成果を日本原子力学会年次大会及び日本熱物性学会シンポジウムで発表するとともに、多段階パルス通電加熱による比熱測定手法については、特許申請を行った（特願 2018-240252：比熱とエンタルピー変化の測定方法及び測定装置）。

1. はじめに

本研究では、原子力界の SA 研究等において重要となる超高温領域、さらに熔融温度領域までを対象とした酸化物核燃料の熱的・動的挙動を精緻に予測するために、計算機シミュレーションの計算パラメータとして重要な熔融状態を含む超高温領域の燃料の正確な物性評価に関する測定技術開発として、短時間局所平衡状態を実現できるフィードバック制御パルス通電加熱技術をベースに新たに予備加熱機構を組み合わせた新しい加熱技術を開発し、酸化物核燃料の超高温領域の熱物性測定に応用する。

高温域の酸化物核燃料の正確な物性評価において、固体状態での酸化ウランの熱物性に関してはスピン分極を考慮した格子振動モデルに基づく第一原理計算による比熱容量の導出[1]、Bruggeman-Fricke モデルを利用した熱伝導率の導出[2]、Einstein-Debye 近似モデルを利用した簡易的な比熱容量の導出[3]等が報告されているが、これらの数値解析的な導出方法はいずれも実験的に得られた測定値に合うように調整することで信頼性の担保がなされている。

熔融状態の酸化ウランの熱物性に関しては、1993 年に Ronchi らにより報告された準非接触レーザー急速加熱技術を利用した比熱容量の測定結果が唯一の報告と言える[4]。Ronchi らの測定では、加圧容器中のタングステン製の針先に保持された直径 0.5~1 mm のウラン酸化物の球体を 4 方向からレーザー加熱し、その温度変化と投入熱量から比熱容量を見積もったものであるが、レーザーによる投入熱量は試料表面の反射率や幾何学的形状が複雑に関与するため正確な見積もりは非常に困難である。さらに、2011 年以降に熔融状態における酸化ウランの熱物性値を実験的に測定したという報告は皆無であり、数値解析による導出すら試みられたという報告は存在しない。

原子力をはじめとする各分野において採用されてきた超高温領域における物性測定手法では、試料と試料容器との反応による試料の変化、蒸発による試料組成/重量の変化及び測定機器への影響等に起因した測定誤差が誘発され、特に熔融状態の燃料についてはこれらが顕著となり、これまでにこれらの誤差を低減する努力はなされてきたものの、抜本的に解決する方法はなかった。

本研究において開発する測定方法では、超高温状態での試料保持時間を短時間にするこゝで従来の測定において前述した問題を抜本的に解消するとともに正確な温度・投入熱量の決定を実現することで、信頼性の高い熔融核燃料の熱物性値（比熱容量・熔融エンタルピー等）を決定することができる。一方で、これまでに開発されてきたフィードバック制御パルス通電加熱技術は金属等の導電体を対象としており、従来方式では絶縁体である酸化物試料の測定には適用できないという課題がある。

上記の課題に対して、導電性のタングステン試料容器を新たに採用する。この試料容器中に酸化物試料を封入し、試料容器に通電することによって試料を間接的に加熱する方法を新たに試みる。この間接加熱方法では酸化物試料と発熱する試料容器との接触熱抵抗を可能な限り下げる必要があるとともにパルス電流のエネルギーを効率的に測定温度範囲に充当させる必要がある。前者の試料-試料容器間の接触熱抵抗を低減させる方策として試料と試料容器の間に銅箔を挟み込むことで接触熱抵抗を低減させる方法を試みる。後者のパルス電流のエネルギーの効率化に対する方策として 2 段階の加熱方式を世界で初めて開発する。1 段階目は酸化物試料を室温から融点直下まで加熱するための予備加熱（以下、1 次加熱）を目的とし、その後、2 段階目として試料を熔融のための追加加熱と融体の熱物性測定を目的としたパルス通電加熱（以下「2 次加熱」という。）を行う。試料及び試料容器を融点付近の温度までの加熱を予備加熱機構が担うことによ

て、熱物性測定を行う温度域におけるパルス通電はその加熱パワーを熱物性測定に集中させることができるため、効率の良い測定が可能となる。また、本手法では、試料を急速加熱して室温状態にある試料を数秒で加熱溶融することが可能になるため、従来の長時間加熱に起因する問題を回避できるとともに試料に投入したエネルギーはジュール熱として正確に決定できるため、Ronchi らによる測定の際に問題となったレーザによる投入加熱量の見積りの誤差を排除できる。

これらの技術開発においては、これまで原子力機構が蓄積してきた酸化物核燃料の物性測定技術に関するノウハウと産総研が有するパルス通電加熱技術の開発において確立した複合的な加熱を行う制御ノウハウを統合させることで効率的な開発を行う。

参考文献

- [1] Y. Yun, D. Legut, and P.M. Oppeneer, "Phonon spectrum, thermal expansion and heat capacity of UO₂ from first-principles", *Journal of Nuclear Materials*, vol.426, 109 (2012).
- [2] J.A. Webb and I. Charit, "Analytical determination of thermal conductivity of W-UO₂ and W-UN CERMET nuclear fuels", *Journal of Nuclear Materials*, vol.427, 87 (2012)
- [3] B.A. Mamedov, "Accurate analytical evaluation of heat capacity of nuclear fuels using Einstein-Debye approximation", *Nuclear Engineering and Design*, vol.276, 124 (2014).
- [4] C. Ronchi, J.P. Hiernaut, R. Selfslag, and G.J. Hyland, "Laboratory Measurement of the Heat Capacity of Urania up to 8000 K: I. Experiment", *Nuclear Science and Engineering*, vol.113, 1 (1993).

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画を表 2.1-1 に示す。本業務は平成 28 年度から 3 ヶ年の計画で実施し、本業務の前半には、導電性の試料容器である大電流同軸端子型タングステン製試料容器の設計・製作、新型加熱機構の設計・製作として加熱系、計測系の改良を行う。また、既存の試験装置において代表的な酸化物試料であるアルミナ(Al_2O_3)を試料とした通電加熱試験を実施し、試験後の試料の状態を評価することによって酸化物試料の加熱試験の方策について検討する。また、新型加熱機構を備えた装置において核燃料を模擬した試料として不定比性を有するセリウム酸化物(CeO_2)の作製を実施する。

本業務の後半は、新型加熱機構を備えた装置と大電流同軸端子型タングステン製試料容器を組み合わせたシステムにおいて、セリウム酸化物を試料とした通電加熱試験を実施し、得られた測定データから新型加熱装置の特性を確認する。その後、新型加熱機構を備えたパルス通電加熱物性測定装置を福井大学に移設し、ウラン酸化物を試料とした加熱試験を実施する。

2.2 平成 28 年度の成果の目標及び業務の実施方法

平成 28 年度の計画の概要を以下に示す。

2.2.1 設計・製作

(1) 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作

新型装置の加熱方式に対応する大電流同軸端子型タングステン製試料容器（同軸端子型 W 製容器）の製作を行う。当該容器の製作に当たっては、製作実績の豊富な高周波誘導加熱用のタングステン製試料容器を参考に実施する。

(2) 新型加熱機構の設計・製作（再委託先：産総研）

試料温度測定の正確性を向上させるために高速放射温度計の導入及び加熱システムの改良を行うとともに試料容器表面へのカーボンナノチューブ成膜技術の高度化を行う。また、同軸端子型 W 製容器の加熱制御システムの基礎設計を行う。

2.2.2 高融点酸化物加熱試験

(1) 高融点酸化物加熱試験

既存のパルス通電加熱装置を用いてアルミナの超高温加熱試験を実施する。本試験では、チューブ型 W 製容器にアルミナペレットを装荷し、アルミナの融点近傍まで急速加熱を行い、試料温度や印加電流等のデータを取得する。

(2) 加熱後試料分析（再委託先：東北大学）

加熱試験後の試料を切断し、断面観察及び X 線回折測定を実施する。断面金相観察結果から試料熔融状態を把握するとともに試料とチューブ型 W 製容器の化学反応の有無について評価する。また X 線回折測定結果から試料の構造変化及び化学反応相の確認を行う。

2.2.3 ウラン酸化物加熱試験（再委託先：福井大学）

2.2.2(1)及び(2)の試験に立会い、試料のハンドリング等について調査し、ウラン酸化

物加熱試験時における注意項目等をまとめる。また、測定パラメータに試料物性が及ぼす影響について評価し、次年度以降の試験計画を立案する。

2.2.4 試料作製（再委託先：東北大学）

次年度以降で用いる高品質のセリウム酸化物及びウラン酸化物を作製するため、既存の雰囲気制御管状炉に酸素分圧制御装置を取り付け、酸素ポテンシャルを制御しながら高温で酸化物の焼結が可能となる装置を整備する。

2.2.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密に行い、情報、知見、データを共有しながら研究を進める。実施に当たっては、高融点酸化物加熱試験の結果を装置の設計・製作に適切にフィードバックすることにより効果的に研究開発を遂行する。

2.3 平成 29 年度の成果の目標及び業務の実施方法

平成 29 年度の計画の概要を以下に示す。

2.3.1 設計・製作

(1) 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作（原子力機構）

試料の溶融に対応したタングステン製試料容器を製作するとともに、既存のパルス通電加熱装置を改良するための設計・製作を実施する。また、設計・製作に当たっては平成 28 年度のパルス通電加熱試験の結果を適切に反映する。

(2) 新型加熱機構の設計・製作（再委託先：産総研）

試料温度測定の正確性を向上させるために高速放射温度計の導入及び加熱システムの改良を行うとともに試料容器表面へのカーボンナノチューブ成膜技術の高度化を行う。また、パルス通電加熱システムへ予備加熱機構を実装するために必要なタングステン製試料容器の端子部等の基礎設計と製作を行う。

(3) 既存装置の新型装置への改修（原子力機構）

試料溶融状態でパルス通電加熱試験を行うために既存のパルス通電加熱装置を改修する。

2.3.2 装置基礎特性確認試験

(1) 試料未装荷加熱試験（再委託先：産総研）

設計・製作及び改修を行った装置について、その加熱特性等の性能を確認するために、試料未装荷の状態で作動確認試験を実施する。

2.3.3 高融点酸化物加熱試験

(1) 高融点酸化物加熱試験（原子力機構及び再委託先：産総研）

パルス通電加熱装置を用いてセラミックス試料の超高温加熱試験を実施する。本試験ではタングステン製の試料容器に円柱状試料を装荷し、パルス通電による急速加熱を行い、試料温度や印加電流等のデータを取得する。（原子力機構）

また、得られた電流、温度データから比熱、融点及び融解エンタルピーが算出できることを確認し、それらを文献値と比較することで測定精度評価を行う。（原子力機構、産総研）

(2) 加熱後試料分析（再委託先：東北大学）

加熱試験後の試料を切断し、断面観察及び X 線回折測定を実施する。断面金相観察結果から高温時の試料熔融状態を把握するとともに試料とタングステン製容器の化学反応の有無について評価する。また X 線回折測定結果から試料の構造の変化及び化学反応相の同定を行う。

2.3.4 ウラン酸化物加熱試験（再委託先：福井大学）

2.2.2(1)及び(2)の試験に立会い、試料容器内の試料の加熱状態や測定データの解析方法について調査し、次年度のウラン酸化物加熱試験の準備を行うとともに、測定データの評価手法の検討を行う。

2.3.5 試料作製（再委託先：東北大学）

平成 28 年度に整備した試料作製装置を使用し、加熱試験に用いる円柱状酸化物試料を作製する。平成 29 年度は、酸化物燃料の模擬物質として、結晶構造及び物性が類似しているセリウム酸化物を作製する。

2.3.6 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密に行い、情報、知見、データを共有しながら研究を進める。実施に当たっては、パルス通電加熱試験の結果を装置の設計・製作に適切にフィードバックすることにより効果的に研究開発を遂行する。

2.4 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法

平成 30 年度の計画の概要を以下に示す。

2.4.1 設計・製作

(1) 既存装置の新型装置への改修（原子力機構、再委託先：産総研）

超高温領域における高融点酸化物試料の測定を実現するために、既存のパルス通電加熱装置の加熱制御機構に改良を加え、試料を熔融するために必要なパルス通電加熱の回数を極力削減させて、試料セルの破損を防止することを目指す。

2.4.2 装置基礎特性確認試験

(1) 試料未装荷加熱試験（再委託先：産総研）

実際に用いるタングステン試料セル表面に黒化膜（カーボンナノチューブ膜）を成膜するための方法を確立するとともに黒化膜の構造・物性評価を行う。また、高温温度測定を実施し有用性を確認する。

2.4.3 ウラン酸化物加熱試験（原子力機構、再委託先：東北大学及び再委託先：福井大学）

ウラン混合酸化物加熱試験に先立ち、高融点酸化物のパルス通電加熱試験及び有限要素法による伝熱解析を実施し、試験条件の詳細な検討を実施する。（原子力機構、東北大学、福井大学）

上記の検討結果をもとにパルス通電加熱によるウラン混合酸化物の急速加熱試験を行い、試料温度や印加電流等のデータを取得する。加熱試験後の試料は切断した後、断面の分析を実施し溶融状態を評価する。（福井大学）

2.2.4 試料作製（再委託先：東北大学）

平成 28 年度に整備した試料作製装置を使用し、加熱試験に用いる円柱状ウラン混合酸化物試料を作製する。

2.4.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密に行い、情報、知見、データを共有しながら研究を進める。実施に当たっては、共有した情報、知見、データを加熱試験に適切にフィードバックすることにより効果的に研究開発を遂行する。

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 設計・製作 (H28～H30)

3.1.1 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作 (H28～H29)

既存のパルス通電加熱装置で使用されるタングステン製試料容器は、両端が開放されており溶融体の保持が困難であること、測温孔を有さないため放射温度計による温度計測に誤差が生じること等の問題があった。そこで平成 28 年度は上記の問題を解決し、高周波誘導加熱等の予備加熱を考慮した試料容器として、2 重のつぼ型タングステン製試料容器を設計・製作した。本容器の性能評価結果は「3.2.1 試料未装荷加熱試験」で記載する。

平成 28 年度のパルス通電加熱試験では、チューブ型のタングステン製試料容器をチャンバー内へ水平に設置し使用していたが、当該容器は溶融体の保持が困難なことや試料から発生したガスが抜けにくいことが問題となった。そこで平成 29 年度は、端栓付きのチューブ型タングステン製試料容器を製作し、既存のチャンバーを改良して当該容器を縦置きに設置できるようにした。本容器は「3.3.1 高融点酸化物加熱試験」で使用され、アルミナ及びジルコニアを容器の破損がない状態で溶融することが可能となった。

各容器の性能評価試験及び高融点酸化物加熱試験の結果から、2 重のつぼ型タングステン製試料容器よりもチューブ型タングステン製試料容器が技術開発上の課題が少なく、高融点酸化物の溶融が可能であり、比熱容量の測定に適していると判断されたため、平成 30 年度はチューブ型タングステン製試料容器を用いてウラン酸化物加熱試験を実施することとした。

3.1.2 新型加熱機構の設計・製作 (再委託先：産総研) (H28～H29)

本研究では、パルス通電加熱技術を活用した熱量法によりタングステン製の試料容器に装荷した酸化物試料の溶融状態における比熱容量を測定するため、試料容器を融点直下の温度にあらかじめ加熱する機能を新たに備えた新型のパルス通電加熱装置を開発する必要がある。試料容器を予備加熱する手段としては、以下の 3 つの方法が考えられる。

- (1) 高周波誘導加熱
- (2) 試料容器への直接通電による抵抗加熱
- (3) ヒーターによる間接加熱

多角的に予備加熱方法の開発を行う事で確実に目標を達成するため、これらの候補について実験的な評価を行い、最適な予備加熱方法を選定することとした。

まず、高周波誘導加熱は、室温から 2000℃まで概ね数十秒で加熱する事ができるため、本研究で必要とする予備加熱方法としては理想的であるが、パルス通電加熱技術と組み合わせるためには装置チャンバーや試料ホルダー部品について大幅な改造が必要となるため、高周波誘導加熱の導入は見送ることとした。ヒーターによる間接加熱についても既存のパルス通電加熱装置の試料チャンバー内に別途電気ヒーターを配するためには、これらの部材を保護するための冷却機構や断熱材を大掛かりに導入する必要が問題となり導入は見送った。試料容器への直接通電による抵抗加熱は、既存のパルス通電加熱装置の加熱電流回路に大容量の直流電源を並列に接続させることで容易に設計・開発が可能である。そこで、予備加熱機構に必要な直流電源の仕様を評価したところ、タングステン製試料容器内のア

ルミナ試料を融点直下まで加熱する事ができることが分かったため、本研究における予備加熱方法に採用した。

本研究にて開発する測定システムに使用する高速放射温度計は下記の仕様を有することが必要である。

- ・測定温度範囲：773～2773 K を含む
- ・応答時間：10 μ s 以下
- ・測温精度：測定値の1 %以下
- ・測定ターゲット直径：1.5 mm 以下
- ・作動距離：100 mm 以上

そこで、上記の仕様を満たすLumaSense Technologies/Impac 社の高速放射温度計（型式IGA740 MB25）を導入した。本放射温度計を用いてタングステンの半球全放射率を測定し、過去の測定結果と比較したところ、導入した高速放射温度計は十分に機能していると判断した。

前述で評価・選定した直接通電加熱による予備加熱手法及び新規に導入した高速放射温度計を既存の測定システムに組み込むとともに、予備加熱中に高温に曝されることになる試料電極を保護するため、従来の銅製電極を大径試料電極に交換した。溶融酸化ウランの測定においては電極部にはさらに高温の試料が接続することを考慮して水冷試料電極も作製した。また、「3.1.1 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作」で作製した2重るつぼ型タングステン製試料容器を加熱するために同軸端子型の試料電極を作製した。本試料電極は2重るつぼ型試料容器だけでなく、従来の棒状試料や単管試料を加熱するための試料ホルダーを共用することができる仕組みとした。

放射温度計による試料温度の計測精度向上を目的として、CNT 成膜技術の高度化を実施した。その結果、CNT 成膜の前処理として実施する触媒担持層形成を金属円筒内面へ施すため、磁気粘性流体を利用した内面研磨技術を開発した。また、CNT 成膜において触媒担持層の構造は、CNT 成膜の均一性を左右する重要な要素のひとつであるため、走査型オージェ電子分光装置を用いて、触媒担持層最表面のアルミニウムの分布を定量的に評価した。平成28～29年度に整備・開発を行った大型試料成膜用CVD炉を利用して、最適なCNT成膜条件を探索した結果、放射率が高いCNT集合体を得る最適な成膜条件を以下と決定した。

- ・成膜温度：630 $^{\circ}$ C
- ・アセチレン流量：100 sccm
- ・窒素流量：900 sccm
- ・炉内ゲージ圧力：-0.046 MPa

3.1.3 既存装置の新型装置への改修（原子力機構、再委託先：産総研）（H29～H30）

平成29年度は「3.1.1 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作」で設計・製作した端栓付きチューブ型タングステン製容器を既存のパルス通電加熱装置に組み込むために、当該装置のチャンバー部を縦置き型に改修した。また、真空排気装置、放射温度計等のチャンバー付属部品は既存のものを流用した。

測定中に試料容器が破損して融体試料が漏出することは極力避ける必要がある。従来の

フィードバック制御パルス通電加熱装置では、1 回の実験で設定できる目標温度は 1 点だけであるため、容器の試料を溶融した上で熱物性の温度依存性を評価するためには何度もパルス通電加熱実験を繰り返す必要があった。そのため、2000 K 以上の温度上昇と下降を多数回繰り返すことによって試料容器に亀裂が度々発生した。そこで、平成 30 年度は新たに 1 回のパルス通電加熱実験中に複数の目標温度に保持可能な制御プログラムを開発した。また、1 回の実験において予備加熱電源による通電加熱と多段階パルス通電加熱を中断なく連続して実行するため、両加熱過程を高速で切り替える大容量の半導体スイッチを試料と予備加熱電源の間の回路中に導入した。

新たに開発した多段階パルス通電加熱システムを用いてタングステン棒について加熱試験を行い、システムの性能評価を行った。実験条件は下記のとおりである。

- ・ 評価用試料：タングステン棒
- ・ 試料直径：2.79 mm
- ・ 試料長さ：100 mm
- ・ 電圧プローブ間隔：18.94 mm
- ・ 加熱雰囲気：真空 (10^{-3} Pa)
- ・ 予備加熱温度：約 1000 K
- ・ 温度制御ステップ数：6 点 (1400、1600、1800、2000、2200 及び 2400 K)

図 3.1.3-1 に多段階パルス通電加熱実験におけるタングステン棒の温度と電力の時間変化の一例を示す。温度を表す赤線が示すように、設定した 6 点の温度はいずれも定常状態に到達しており、本システムで目的とする多段階の温度制御が問題なく実施できることが分かった。ここで取得したデータの解析結果は「3.4 ウラン酸化物加熱試験」において記載する。

3.2 装置基礎特性確認試験 (H29~H30)

3.2.1 試料未装荷加熱試験 (再委託先：産総研)

平成 29 年度は、タングステン製試料容器の形状候補として(1)チューブ型と(2)2 重るつぼ型の 2 種類を想定し、試料未装荷の状態で予備加熱及びパルス通電加熱試験を実施することで予備加熱機構の性能評価を行った。その結果、チューブ型のタングステン製試料容器は、試料電極の破断なしで問題なく予備加熱ができ、パルス通電加熱時の到達温度の短縮が可能であることが分かった。一方、2 重るつぼ型のタングステン製試料容器は、軸方向に顕著な温度分布が発生するため、実際に試料を装荷して比熱測定を行うことは困難と判断された。

CNT 成膜に必要な鉄微粒子触媒を基材表面に安定的に定着させるため、本研究では 3 次元物体表面への成膜が容易な SB 処理によるアルミナ担持層の成膜を行うが、本方法によるアルミナ担持層と標準的な電子ビーム真空蒸着法で成膜したアルミナ担持層との性能比較は過去に行われていない。そこで平成 30 年度は、電子ビーム真空蒸着と SB 処理でそれぞれ成膜したアルミナ担持層及びにそれらの上に成膜した CNT 膜の構造と特性を比較して、両者の担持層成膜法としての特徴と優位性を評価した。実験には、W と Si 板を成膜基板に使用し、基板表面に 4 つの区画を設け、その中の 3 区画に以下に述べるようにそれぞれ異

なる製膜法でアルミナ担持層を成膜した。1 区画には粒径が約 50 μm のアルミナ微粒子を用いた約 30 秒間の SB 処理によるアルミナ不連続膜を製膜し、残りの 2 区画には金属 Al と $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ を蒸着源とした電子ビーム真空蒸着により厚さ 20 nm のアルミナ連続膜をそれぞれ製膜した。図 3.2.1-1 に W 基板上に製膜した 3 種類のアルミナ担持層上での 480°C と 700°C での CNT 製膜処理後の外観写真を示す。この写真中の下方二区画は電子ビーム真空蒸着によるアルミナ担持層であるが、480°C においてコールタール状の副産物が発生していることが分かる。この種の副産物は最終的にはより高温の 700°C で成長する CNT 成膜層の下部に埋まってしまうと考えられるが、CNT 成長に何らかの悪影響を及ぼす可能性がある。その後、700°C で成長させた CNT 黒化膜の分光反射率の測定結果を図 3.2.1-2 に示す。SB 処理と $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ を蒸着源とした電子ビーム真空蒸着によるアルミナ担持層上の CNT が最も低い反射率を示しており、SB 処理によるアルミナ膜が標準的な手法で作成した膜と同等に担持層として機能することが判明した。

また平成 30 年度は、CNT 黒化膜被覆タングステンチューブ模擬試料の加熱試験も実施した。本試験では、タングステン製の試料セル表面に放射率がほぼ 1 である CNT を成膜し、放射温度計により試料セル内の融体試料温度を決定するため、実際にタングステン管の外表面に CNT を製膜し、管内側の温度を内部に溶接した熱電対の温度と比較しながら外表面の温度を放射温度計で測定する実験を行った。図 3.2.1-3 の写真は CNT 被覆タングステン管試料を装着する手順の概略を示しており、管内部に熱電対を溶接するため、縦に分割した管試料の内側に熱電対を溶接したのちに、もう片方の半割れ管を装着した。実験条件は下記のとおりであり、所定の温度に保持した際の熱電対による管内側温度と放射温度計による管外側温度を比較した。

- ・評価用試料：タングステン管（外径 6 mm、内径 4 mm、長さ 100 mm）
- ・電圧プローブ間隔：18.9 mm
- ・加熱雰囲気：低真空（100 Pa）
- ・温度保持輝度温度：1200 K（保持真温度：1218 K）
- ・窓材：フッ化カルシウム（赤外透過率：約 0.9）

結果の一例として、図 3.2.1-4 に CNT 被覆タングステン管の内側温度（赤線）と外側温度の定常温度保持時間に対する変化を示す。この図から分かるように定常温度保持時間が長くなるにつれて外側と内側の温度差は急激に減少しており、適切な温度保持時間を設定することで、CNT 被覆タングステン管の外側の温度と内側の温度はほぼ一致することになり、結果として、放射温度計による管外側の温度測定により管内部の融体試料の温度を測定可能であることを確認した。

3.3 高融点酸化物加熱試験（H28～H29）

3.3.1 高融点酸化物加熱試験（原子力機構、再委託先：産総研）（H28～H29）

平成 28 年度は、チューブ型タングステン製試料容器の中央部に厚さ 20 μm の銅箔を巻いたアルミナペレットを挿入した試験試料を用いてパルス通電加熱を実施した。また、銅箔は試料と試料容器間の接触熱伝達を改善する目的で用いられ、銅の融点（1084°C）以上まであらかじめ加熱を行うことで、銅が溶融しアルミナペレットとチューブ型タングステン

製試料容器間の熱伝導が向上することを狙った。その結果、加熱中に試料容器が破断したものの、アルミナの融点以上までパルス通電加熱を実施することに成功し、温度データ及び投入電力を取得することができた。

平成 29 年度は、アルミナ及びジルコニアの 2 種を試料に用いてパルス通電加熱を実施した。前年度に採用した試料への銅箔の巻き付けは、「3.3.2 加熱後試料分析」の結果に基づいて、本試験では採用しなかった。また、前年度の試験において高温保持時に発生した試料容器の破断を回避するために、試料電圧を測定するための電圧プローブを改良した。アルミナ加熱試験では、アルミナが熔融温度まで加熱されていることが確認され、得られた温度、印加電流等のデータからアルミナ融点直下の定圧比熱容量を算出し、文献値からのずれは±15%程度と評価された。ジルコニア加熱試験では、アルミナ加熱試験と同様に、試料の熔融が確認された。得られた温度、印加電流等のデータから定圧比熱容量及び熔融のエンタルピーを算出したが、両者ともに文献値からのずれが大きいと評価された。

3.3.2 加熱後試料分析（再委託先：東北大学）（H28～H29）

平成 28 年度は、「3.3.1 高融点酸化物加熱試験」でパルス通電加熱を実施したアルミナ試料の断面観察及び X 線回折測定を実施した。その結果、熔融した銅箔は試料容器内に均一には存在せず、試料容器端部の比較的低温の箇所に移動し沈着していること、アルミナ試料について未熔融状態の箇所が多く観察され、アルミナ試料の移動した形跡があったことが確認された。また、チューブ型タングステン製容器の破断の原因は、局所加熱による熔融であることが分かった。アルミナペレットに巻き付けていた銅箔は少量のため、パルス通電加熱時の抵抗には影響を与えないと考えていたが、加熱を繰り返す間に熔融した銅は容器の端部へ移動し、銅の融点付近となる位置に沈着した。この位置で電流の流れが変化し局所加熱が生じたものと推定される。

平成 29 年度は、「3.3.1 高融点酸化物加熱試験」でパルス通電加熱を実施したアルミナ及びジルコニア試料の断面観察及び X 線回折測定を実施した。その結果、アルミナ試料はチューブ型タングステン製容器の加熱後の外観観察から、チューブの割れや変形はなく健全に加熱されたことが確認された。また、試料中央部は白色からガラス状に変化しており、アルミナの熔融が見られた。加熱試料とチューブ型タングステン製試料容器の境界での化学反応は確認されず、空隙も見られなかったことから密着性は良好であり、熱伝達が良いことが分かった。ジルコニア試料は加熱後の外観観察から、割れや変形はなく健全に加熱されたことが分かった。また、アルミナ試料と同様に試料中央部は白色からガラス状に変化しており、熔融が確認された。試料とタングステン製試料容器の境界部での化学反応も見られず、密着性も良好であった。これらの結果から、本パルス通電加熱装置は酸化物核燃料の熔融に十分な性能を有していることが示された。

3.4 ウラン酸化物加熱試験（H28-29：再委託先：福井大学、H30：原子力機構、再委託先：福井大学、東北大学）（H28～H30）

平成 28 年度は、ウラン酸化物の加熱試験に関する事前調査を行い、当該試験における特有の事象について整理した。その結果、試験実施時のウラン酸化物による汚染コントロールに関して、真空排気時の空気の流路の考慮が必要なが分かった。また、アルミナと酸化ウ

ランでは熱物性値に大きな差がなく、測定への支障は融点が高いこと以外に少ないと判断された。一方、アルミナは絶縁体であるのに対し、酸化ウランは半導体であるため、加熱に必要な電流及び時間の増大、試料内温度分布の偏り、温度制御の不安定化等が懸念された。

平成 29 年度は、「3.3.1 高融点酸化物加熱試験」において、試料容器内の試料の加熱状況や測定データの解析方法を調査し、ウラン酸化物加熱試験の準備及び測定データの評価手法の検討を実施した。その結果、ウラン酸化物加熱試験ではチューブ型タングステン製試料容器の破損等によって放射性物質の飛散が懸念されるため、装置全体をクリーンブース内に設置するとともに、試料容器内部の養生を実施する措置をとることとした。また、「3.3.1 高融点酸化物加熱試験」においてジルコニアが溶融し、各種データが取得できたことから、融点がジルコニアと同様に高い二酸化ウランでも測定が十分に可能と判断された。また、液体状態では比熱容量は一定であると予想されるため、評価手法に大きな修正は不要と判断した。

平成 30 年度は高融点酸化物のパルス通電加熱試験及び有限要素法による伝熱解析を実施し、試験条件の詳細な検討を実施するとともに、これらの検討結果をもとにパルス通電加熱によるウラン混合酸化物の急速加熱試験を行い、試料温度や印加電流等のデータを取得した。以下にその詳細を示す。

図 3.4-1 に典型的なパルス通電加熱試験データを示す。金属試料に対してはこの赤い破線で示した部分のデータを用いて比熱を計算することができる。図 3.4-2 に酸化物試料を入れた W チューブのパルス通電加熱試験構成図を示す。この試料に対しては図 3.4-1 の様な温度領域では比熱を測定することはできない。その理由は、温度変化領域では内部の酸化物温度が W チューブ表面温度に追従しないためである。温度が変化している領域では必ず試料内部に温度差が生じている。試料内部の温度分布と時間変化を知るために、有限要素法による伝熱解析を実施した。図 3.4-3 に 軸対称 2 次元の解析モデルと有限要素法のメッシュ分割を示す。解析には汎用工学シミュレーションソフトウェア COMSOL Multiphysics® (以下「COMSOL」という。)を用いた。図 3.4-1 に示したパルス通電加熱試験の条件をもとに実施した COMSOL 解析の例を図 3.4-4 に示す。ZrO₂ 試料の中心から外側の W チューブ表面までの温度を等高線として示している。最初は、W チューブのみの温度が上昇しているが、徐々に酸化物内部の温度が上昇している様子が示されている。4000 msec で出力を停止した後、徐々に W チューブ表面の温度が下がり始め 4305 msec になると試料の温度がほぼ均一になるのが分かる。本シミュレーション結果から、PID 制御を行うことで試料温度をほぼ均一に保つことができることが分かる。図 3.4-5 に軸方向温度分布の時間変化を示す。6000 msec が経過した後でも、試料中心付近の 4 cm の範囲 (物性測定領域) の試料温度は一定であることが分かる。以上により、COMSOL による解析によって径方向及び軸方向の温度分布を一定とすることができることが分かった。これにより、パルス通電加熱法を用いて酸化物の物性測定が可能であることが示された。

酸化物を含む W チューブ試料では、上記で述べたように試料温度の均一化を図った上で物性を測定しなければならない。そのため図 3.4-6 に示すような多段階 PID 制御を行う。PID 制御によって温度が均一化された試料の熱容量を Q_0 、 Q_1 、 Q_2 、…とすると(3-4-1)式、(3-4-2)式のように表される。

$$Q_1 = Q_0 + \int_{t_0}^{t_1} \{I(t)V(t) - A\sigma_s \varepsilon (T(t)^4 - T_0^4)\} dt \quad (3-4-1)$$

$$Q_2 = Q_0 + Q_1 + \int_{t_2}^{t_3} \{I(t)V(t) - A\sigma_s\varepsilon(T(t)^4 - T_0^4)\} dt \quad (3-4-2)$$

ここで、 Q_n は試料の熱容量、 t_n は時間、 $I(t)$ は時刻 t における試料電流、 $V(t)$ は時刻 t における試料電圧、 A は試料表面積、 ε は放射率、 σ_s はステファン・ボルツマン定数及び $T(t)$ は時刻 t における試料温度を示す。(3-4-1)式の被積分関数の第一項はパルス通電による入力熱量であり、第二項はWチューブ表面からの放射による放熱量である。比熱はこのようにして計算した図3.4-7の熱容量の曲線を温度で微分することによって計算できる。

上記で示した比熱評価方法の妥当性を確認するために、「3.1.3 既存装置の新型装置への改修」で実施したW棒の多段階パルス通電加熱試験のデータを評価した。図3.4-8に実験データを示す。このデータをもとに(3-4-1)式及び(3-4-2)式を用いて Q_0 、 Q_1 、 Q_2 、…を次々に計算した。PID制御中の温度保持区間では、パルス通電による入力熱量と放熱が等しいため、積分項はゼロになる。パルス通電による入力熱量は電流データと電圧データから計算できるため、この区間の放熱量を計算することができる。この値は図3.4-8に黒い線で示している。昇温区間の放熱量はこれらの値を内挿して求めた。また、昇温区間の正味の熱量はパルス通電による入力熱量から、この区間の放熱量を減ずることで計算できる。図3.4-8の黄色く塗られた領域がこれに相当する。図3.4-9は、熱量の計算結果を示す。図3.4-10は熱量の温度変化から求めたW棒の比熱である。図3.4-10には、Codataで推奨されているWの比熱を示しているが、今回の評価値はこれに近い値を示している。これより、今回開発した評価方法の妥当性が確認された。

ウラン酸化物加熱試験に先立ち、安定化ジルコニア (3mol%Y₂O₃ 添加 ZrO₂) の多段階パルス通電加熱試験 (表3.4-1に加熱条件を記載) を実施し、上述の比熱評価方法を適用することで熔融状態のセラミックス試料の比熱容量が算出可能か試みた。図3.4-11に試験時の温度及び投入電力データを示すが、各保持温度においてPID制御ができていないこと、降温過程で熱停留点が観察されることから安定化ジルコニアを熔融状態で温度保持しながら加熱できていたことが分かる。さらに(3-4-1)式及び(3-4-2)式を用いて得られたデータから定圧比熱を算出することができた。その結果を図3.4-12に文献値 (Codataで推奨されているZrO₂の比熱容量) とともに示す。Codata推奨値は安定化ジルコニアではなく純ジルコニアのものであり、1500 K以上の高温領域のデータがないため単純に比較はできないが、本試験で得られた比熱容量は文献値と大きく乖離していないことが分かる。

「3.5 試料作製」で作製した(U, Ce)_{0.2}試料を、福井大学附属国際原子力工学研究所に移設したパルス通電加熱装置を用いて加熱・熔融試験を実施した。加熱条件を表3.4-2に示す。図3.4-13に示す相図からは、(U_{0.7}Ce_{0.3})_{0.2}試料の融点 (3000 K程度) よりも100~200 K程度高い温度設定となっている。

加熱条件①の試験では試料の熔融が確認されたが、試料の不均一性のため、局部的に加熱が生じた。本試料は試験終了後にダイヤモンドワイヤー切断機で切断し、その断面を顕微鏡観察した。図3.4-14に断面の様子を示す。断面の様子より、試料は一度溶けて固まったことが分かった。その際、図中に示したようになりかなり大きな空洞が発生していることも判明した。また、Wチューブの一部では、試料の

ない空隙部分が存在するところもあった。今回作製した試料の密度が理論密度の7割程度であり、Wチューブと試料のギャップも片側200 μm程度あったため、熔融時に約50%の空隙ができたと推測される。

加熱条件②の試験は、長時間の脱ガスを行い試料中の残留ガスの影響を排除した上で、予備加熱温度を上昇させ試料内温度の不均一を緩和し、多段階パルス通電加熱を実施したものである。本試験結果を図3.4-15に示すが、PID制御による温度保持が各段階で正常に実施されていることが分かる。また、3000 K以上でも温度保持ができていて、降温過程において熱停留点も見られることから試料熔融状態を保持しながらの加熱に成功したことが分かる。また、試験後試料の外観写真を図3.4-16に示すが、試料容器がほぼ健全な状態で多段階パルス通電加熱が実施できたと言える。

今後は、予備加熱温度の上昇と脱ガス処理に加えて、試料の理論密度比を上げること、Wチューブと試料のギャップを小さくすることによって、より良好な(U, Ce)O₂試料の加熱試験が達成できると考えられる。

3.5 試料作製（再委託先：東北大学）（H28～H30）

平成28年度は、ウラン酸化物加熱試験で必要となる高品質の試料を作製するために、既存の雰囲気制御管状炉に酸素分圧制御装置を取り付け、炉内の酸素ポテンシャルを制御しながら高温で酸化物の焼結が可能となる装置を整備した。

平成29年度は、前年度整備した装置を用いて、酸化物燃料の模擬物質として結晶構造及び物性が類似しているセリウム酸化物の焼結体を作製した。得られた焼結体は焼結時に還元されてO/Ce比が低下したため、色が白色から濃紺色へと変化した。また、焼結体のX線回折測定結果からはCeO₂とCe₂O₃の2相が混在していると考えられた。

平成30年度は、混合酸化物燃料(U, Pu)O_{2-x}の模擬試料として(U, Ce)O_{2-x}固溶体を作製するために、UO₂とCeO₂の混合酸化物粉末を作製した。混合酸化物粉末の作製方法としては、一般に、2種類の酸化物粉末を機械的に混合する乾式法と前駆体の硝酸溶液の段階で混合した後、酸化物に転換する湿式法がある。今回は、実験室レベルで簡便であり、均一性確保が容易な方法である湿式法を用いた。

作製フローは、図3.5-1の通りである。まず、UとCeの硝酸塩をそれぞれ水に溶解してメタル濃度100 g/Lの水溶液を作製し、2種類の水溶液をCe:Uモル比で3:7で混合した。次に、混合水溶液を攪拌しながら、中和に対して大過剰(NH₄/NO₃モル比=10)の濃度28%のアンモニア水を急速に添加してUとCeの共沈物を作製した(図3.5-2)。共沈物はブフナー型ロートとろ紙を用いて吸引ろ過した後、ケーキを電熱器で約120℃で乾燥した。乾燥物は大気中700℃で焙焼し、さらに、Ar-4%H₂中700℃で還元することで、混合酸化物粉末に転換した(図3.5-3)。混合酸化物粉末は、還元雰囲気1500℃、4時間焼結した。図3.5-4に沈殿物、焙焼物、還元物及び焼結体のXRDプロファイルを示す。焼結物では蛍石型結晶構造のピークが見られる。図3.5-5に格子定数を示す。Ce/(U+Ce)比が0.3の文献値と近い値を示した。図3.5-6に作製した(U, Ce)O₂ペレット外観写真を示す。これらを図3.5-7に示すチューブ型タングステン製試料容器の中にジルコニア棒とともに挿入し、タングステン製の端栓を取り付けてパルス

通電加熱試験用試料とした。

3.6 研究推進 (H28~H30)

平成 28 年度及び平成 29 年度は、研究代表者を中心として各研究機関間における連携を密に行い、各研究項目の結果を共有することで、それぞれの成果についてフィードバック及び意見交換を行いながら効果的に研究を進めた。これにより、計画された業務は予定通り遂行でき、次年度の研究計画についてもより実効的な計画を策定することができた。また、各年度で得られた成果は、日本原子力学会年次大会及び日本熱物性学会シンポジウムで発表した。

平成 30 年度は、研究代表者を中心として各研究機関間における連携を密に行い、多段階パルス通電加熱システムの検討と評価（産総研）、高融点酸化物加熱試験と有限要素法による解析結果（東北大学）、ウラン酸化物加熱試験の測定データ（福井大学）等を共有することで、それぞれの成果についてフィードバック及び意見交換を行いながら効果的に研究を進めた。また、再委託先との打ち合わせを 5 月 10 日、8 月 24 日、9 月 20 日、12 月 14 日、2 月 21 日に行い、各研究項目の進捗状況やデータの共有を図った。これらによって計画された業務は予定通り遂行することができた。

今年度得られた成果は、日本原子力学会年次大会及び日本熱物性学会シンポジウムで発表するとともに、「3.1.3 既存装置の新型装置への改修」及び「3.4 ウラン酸化物加熱試験」で述べた多段階パルス通電加熱による比熱測定手法については、特許申請を行った（特願 2018-240252：比熱とエンタルピー変化の測定方法及び測定装置）。

4. 結言

本研究では、原子炉の過渡事象や過酷事故時に想定される燃料挙動を解析する計算機シミュレーションにおいて超高温状態での燃料の熱的・動的挙動の予測精度を向上させるために必要な計算パラメータである熔融状態を含む超高温領域における燃料の正確な物性値が測定可能な技術・装置の開発を目的とする。超高温領域における燃料の物性を測定する従来の手法では、試料を一定温度に長時間保持して物性を測定する必要があるため「試料容器との反応」、「蒸発による試料組成の変化」等の測定技術上解決が困難な問題が生じていた。そこで、原子力以外の分野において固体の導電性物質の高温熱物性測定技術として欧米や日本の国立計測標準研究所で開発が進められてきたパルス通電加熱法に予備加熱機構を組み合わせることで、熔融酸化物の短時間局所平衡状態を実現することを特徴とする酸化物燃料や熔融体の比熱等の超高温領域における熱物性値を正確に測定する技術を世界で初めて確立することを目指した。

これまでの研究開発を反映して、本研究機関の研究課題は以下のように設定した。

- ① 従来の測定装置に予備加熱機構を組み込むための装置及び試料容器の開発として、新型加熱機構の設計及び新型加熱機構に適用するタングステン製試料容器の試作
- ② 熔融試料やウラン酸化物試料の測定に対応するために、試料系ユニット・チャンバー部・チューブ型 W 製容器の配置の変更、予備加熱システムの具体化、測定精度の向上に係る開発。
- ③ ①、②の開発にともない、測定手法を適正化するための高融点酸化物の加熱試験や試験後の試料の分析とその結果の開発への反映。
- ④ ウラン酸化物加熱試験によるウラン酸化物の比熱容量等の熱物性値の測定。

このような課題について、「設計・製作」、「装置基礎特性確認試験」、「高融点酸化物加熱試験」、「ウラン酸化物加熱試験」、「試料作製」、「研究の推進」の観点から研究を進めた。以下にそれぞれの項目の結果についてまとめた。

4.1 設計・製作 (H28～H30)

4.1.1 大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作 (H28～H29)

従来のパルス通電加熱装置で使用されるタングステン製試料容器は両端が開放されており、熔融体の保持が困難であること、測温孔を有さないため放射温度計による温度計測に誤差が生じること等の問題があった。これらの問題に対応するため、3通りの加熱方法（1. 高周波誘導加熱、2. 試料容器への直接通電による抵抗加熱、3. ヒーターによる間接加熱）を検討した。

高周波誘導加熱を用いた方法については、試料容器として2重のつぼ型タングステン製試料容器を設計・製作し、本容器の性能評価を実施した。

直接通電による抵抗加熱を用いた方法については、これまでチューブ型タングステン製試料容器（以下、チューブ型 W 製容器）をチャンバー内へ水平に設置していたが、熔融体の保持が困難なこと等の問題があったため、端栓付きのチューブ型 W 製容器を製作した。

上記、高周波誘導加熱及び直接通電による抵抗加熱を用いた方法はどちらも試料容器を縦置きにする必要があったことから、既存のチャンバーを改良して当該容器を縦置きに設置できるようにした。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.1.2 新型加熱機構の設計・製作 (H28~H29)

本研究では、パルス通電加熱技術を活用した熱量法によりタングステン製の試料容器に装荷した酸化物試料の熔融状態における比熱容量を測定するため、測定前に試料容器を融点付近の温度にあらかじめ加熱する機能を備えた新型のパルス通電加熱装置を開発する必要がある。試料容器を予備的に加熱する手段として、以下の3つの方法を検討した。

- (1) 高周波誘導加熱
- (2) 試料容器への直接通電による抵抗加熱
- (3) ヒーターによる間接加熱

多角的に予備加熱方法の開発を行う事で確実に目標を達成するため、これらの候補について実験的な評価を行い、最適な予備加熱方法を選定することとした。

まず、(1)高周波誘導加熱は、パルス通電加熱技術と組み合わせるためには試料チャンバーや試料ホルダー部品について大幅な改造が必要となるため、予算、期間の観点から導入は見送ることとした。(3)ヒーターによる間接加熱についても試料チャンバー内に電気ヒーターを配するためには、これらの部材を保護するための冷却機構や断熱材を大掛かりに導入する必要があり、予算、期間の観点から導入は見送った。(2)試料容器への直接通電による抵抗加熱は、加熱電流回路に大容量の直流電源を並列に接続させることで容易に設計・開発が可能である。また、予備加熱機構に必要な直流電源の仕様の評価において、アルミナ試料を融点直下まで加熱する事ができることが分かったため、本方法を採用した。

本研究にて開発する測定システムに使用する高速放射温度計の仕様を満たすため、LumaSense Technologies/Impac 社の高速放射温度計 (型式 IGA740 MB25) を導入した。本放射温度計を用いてタングステンの半球全放射率を測定し、本高速放射温度計は十分に機能することを確認した。

前述で選定した直接通電抵抗加熱による予備加熱中に高温に曝されることになる試料電極を保護するため、従来の電極を大径試料電極に交換した。今後の測定において電極部がさらに高温になることを考慮して水冷試料電極も作製した。また、2重つぼ型タングステン製試料容器を加熱するために同軸端子型の試料電極を作製した。

放射温度計による試料温度の計測精度向上を目的として、CNT 成膜技術の高度化を実施し、CNT 成膜の前処理工程となる触媒担持層形成を金属円筒内面へ施すため、磁気粘性流体を利用した内面研磨技術を開発した。また、CNT 成膜の均一性を左右する触媒担持層の構造評価のため、走査型オージェ電子分光装置を用いて触媒担持層最表面のアルミニウムの分布を定量的に評価した。さらに平成 28~29 年度に整備・開発を行った大型試料成膜用 CVD 炉を用いて、放射率が高い CNT 集合体を得る最適な成膜条件を決定した。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.1.3 既存装置の新型装置への改修 (H29~H30)

測定中に試料容器が破損して融体試料が漏出することは極力避ける必要がある。従来の装置では、1 回の実験で設定できる目標温度は 1 点だけであるため、試料を熔融した上で

熱物性の温度依存性を評価するためには何度もパルス通電加熱実験を繰り返す必要があり、2000 K以上の温度上昇と下降を多数回繰り返すことになり試料セルに亀裂が度々発生した。そこで平成30年度は、新たに1回のパルス通電加熱実験中に複数の目標温度に保持可能な制御プログラムを開発した。また、1回の実験において予備加熱電源による通電加熱と多段階パルス通電加熱を中断なく連続して実行するため、両加熱過程を高速で切り替える大容量の半導体スイッチを試料と予備加熱電源の間の回路中に導入した。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.2 装置基礎特性確認試験 (H29～H30)

4.2.1 試料未装荷加熱試験

平成29年度は、タングステン製試料容器の形状候補として(1)チューブ型と(2)2重るつぼ型の2種類を想定し、それぞれ試料未装荷の状態で予備加熱機構の性能評価を行った。その結果、チューブ型W製容器は試料電極の破断なく予備加熱ができ、パルス通電加熱時の到達温度の短縮が可能であることが分かった。一方、2重るつぼ型W製容器は軸方向に顕著な温度分布が発生するため、実際に試料を装荷して比熱測定を行うことは困難と判断された。

平成30年度は、「既存装置の新型装置への改修」において示された、1回の実験において予備加熱電源による通電加熱と多段階パルス通電加熱を中断なく連続して実行するため、新たに開発した多段階パルス通電加熱システムを用いて模擬試料セルであるタングステン棒について加熱試験を行いシステムの性能評価を行った。これより、連続的に設定した各温度点ではいずれも定常状態に到達しており、各温度ステップ間のエンタルピー変化量から比熱を算出した結果、タングステンの比熱の推奨値と良い一致を示した。

また、CNT成膜に必要な鉄微粒子触媒を基材表面に安定的に定着させるため、事前にアルミナ担持層を成膜する必要がある。アルミナ担持層の成膜方法として、サンドブラスト(SB)処理後に電子ビーム真空蒸着を行う成膜方法と標準的な電子ビーム真空蒸着法があり、これらの方法の特徴と優位性の評価を行った。この結果、SB処理後に電子ビーム真空蒸着を行ったアルミナ担持層上のCNTが最も低い反射率を示したことから、SB処理後に電子ビーム真空蒸着を行う成膜方法を採用した。

さらに、CNT黒化膜被覆タングステンチューブ模擬試料の加熱試験により、加熱時のチューブ外側と内側の温度差について評価した。試験はCNT黒化膜を被覆したタングステンチューブを加熱し、所定の温度に保持した際の熱電対にて測定したチューブ内側温度と放射温度計にて測定したチューブ外側温度を比較することによって実施した。この結果、適切な温度保持時間を設定することでCNT黒化膜被覆タングステンチューブの外側の温度と内側の温度がほぼ一致することから、放射温度計によるチューブ外側の温度を測定することによりチューブ内部の試料温度の測定が可能であることを確認した。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.3 高融点酸化物加熱試験 (H28～H29)

4.3.1 高融点酸化物加熱試験 (H28～H29)

本研究の初期には、試料と試料容器間の接触熱伝達を改善する目的で、厚さ 20 μm の銅箔を試料中央部に巻いてパルス通電加熱を実施した。試験では銅の融点以上まであらかじめ加熱を行うことで、銅が溶融し試料とチューブ型タングステン製試料容器間の熱伝導が向上することを狙った。その結果、加熱中に試料容器が破断したものの、アルミナの融点以上までパルス通電加熱を実施することに成功し、温度データ及び投入電力を取得することができた。しかし、加熱を繰り返す間に溶融した銅が容器の端部へ移動して沈着し、電流の流れが変化して局所加熱が生じ、試料容器が破損すると推定されたことから、本方法の採用には至らなかった。

本研究の中期から後期にかけてアルミナ及びジルコニアの 2 種を試料に用いてパルス通電加熱を実施した。また、高温保持時に発生した試料容器の破断を回避するために、試料電圧を測定するための電圧プローブを改良した。アルミナ加熱試験では、アルミナが溶融温度まで加熱されていることを確認し、取得されたデータの解析からアルミナ融点直下の定圧比熱容量を算出した。文献値からのずれは $\pm 15\%$ 程度であった。ジルコニア加熱試験でも試料の溶融が確認され、データ解析の結果から定圧比熱容量及び溶融エンタルピーの両者ともに文献値からのずれが大きいと評価された。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.3.2 加熱後試料分析 (H28~H29)

本研究初期には、接触熱伝達の改善の目的で中央部に銅箔を巻きつけた試料のパルス通電加熱後の試料の断面観察及び X 線回折測定を実施した。その結果、溶融した銅箔は試料容器端部の比較的低温の箇所に移動、沈着し、そこで電流の流れが変化して局所加熱が発生し試料容器が破断すると考えられた。また、アルミナ試料には未溶融の箇所が多く観察され、さらに試料が移動した形跡があった。

本研究の中期には、測定後のアルミナ及びジルコニア試料の断面観察及び X 線回折測定を実施した。その結果、アルミナ試料の試験では試料容器の割れや変形はなく健全に加熱されたことが確認され、試料が溶融したことが確認された。試料と試料容器の境界の化学反応は確認されず、空隙も見られなかったことから密着性は良好であり、熱伝達が良いことが分かった。ジルコニア試料の試験でも試料容器の割れや変形はなく健全に加熱されたことが確認され、試料が溶融したことが確認された。試料と試料容器の境界部での化学反応も見られず、密着性も良好であった。これらの結果から、本パルス通電加熱装置は酸化物核燃料の溶融に十分な性能を有していることが示された。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.4 ウラン酸化物加熱試験 (H28~H30)

平成 28 年度及び平成 29 年度は、高融点酸化物加熱試験等を通してウラン酸化物の加熱試験に関する事前調査を行った。その結果、試験実施時のウラン酸化物による汚染コントロールに関して、真空排気時の空気の流路の考慮が必要なことが分かった。また、アルミナは絶縁体であるのに対し、酸化ウランは半導体であるため、加熱に必要な電流及び時間の増大、試料内温度分布の偏り、温度制御の不安定化等が懸念された。また、ウラン酸化

物加熱試験ではチューブ型タングステン製試料容器の破損等によって放射性物質の飛散が懸念されるため、装置全体をクリーンブース内に設置するとともに、試料容器内部の養生を実施する措置をとることとした。高融点酸化物加熱試験においてジルコニアが溶融し、各種データが取得できたことから、融点がジルコニアと同様に高い二酸化ウランでも測定が十分に可能と判断された。また、液体状態では比熱容量は一定であると予想されるため、評価手法に大きな修正は不要と判断した。

平成 30 年度には、後述する試料作製にて作製した $(U, Ce)O_2$ 試料を福井大学附属国際原子力工学研究所にてパルス通電加熱装置を用いて加熱・溶融試験を実施した。加熱条件は $(U_{0.7}Ce_{0.3})O_2$ 試料の融点よりも 100~200 K 程度高い温度設定とした。

最初の多段階パルス通電加熱測定を実施した結果、試料の溶融が確認されたが、試料の不均一性のため、局所的に加熱が生じた。試料断面の顕微鏡観察を実施したところ、試料が溶融したことが確認でき、また、試料中に大きな空洞が発生していることも判明した。

次の加熱測定では長時間の脱ガスを先行し試料中の残留ガスの影響を排除した上で、予備加熱温度を上昇させ試料内温度の不均一を緩和し、多段階パルス通電加熱を実施した。本試験では PID 制御による温度保持が各段階で正常に実施することができた。また、3000 K 以上でも温度保持ができていること、降温過程において熱停留点も見られることから試料溶融状態を保持しながらの加熱に成功したことが分かる。また、試験後試料の外観写真からは試料容器がほぼ健全な状態で多段階パルス通電加熱が実施できたと言える。

今後は、予備加熱温度の上昇と脱ガス処理に加えて、試料の理論密度比を上げること、W チューブと試料のギャップを小さくすることによって、より良好な $(U, Ce)O_2$ 試料の加熱試験が達成できると考えられる。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.5 試料作製 (H28~H30)

平成 28 年度は、炉内の酸素ポテンシャルを制御しながら高温で酸化物の焼結が可能となる装置を整備した。平成 29 年度には、この装置を用いて、酸化物燃料の模擬物質として結晶構造及び物性が類似しているセリウム酸化物の焼結体を作製した。平成 30 年度は、混合酸化物燃料の模擬試料として $(U, Ce)O_{2-x}$ の焼結体を作製した。焼結体の X 線回折測定 (XRD) の結果からは蛍石型結晶構造のピークが観測され、格子定数からは $Ce/(U+Ce)$ 比が 0.3 の文献値と近い値を示した。これらをチューブ型タングステン製試料容器にジルコニア棒とともに挿入し、タングステン製の端栓を取り付けてパルス通電加熱試験用試料とした。

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

4.6 研究推進 (H28~H30)

本研究期間中の各年度において、研究代表者を中心として各研究機関間における連携を密に行い、各研究項目の結果を共有することで、それぞれの成果についてフィードバック及び意見交換を行いながら効果的に研究を進めた。これにより、計画された業務は予定通り遂行できた。また、各年度で得られた成果

を日本原子力学会年次大会及び日本熱物性学会シンポジウムで発表するとともに、平成30年度には、多段階パルス通電加熱による比熱測定手法について、特許申請を行った。（特願2018-240252：比熱とエンタルピー変化の測定方法及び測定装置）

上記より本研究期間における当該項目に関する業務計画を達成することができた。

以上、3ヵ年計画の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

表 2.1-1 業務全体計画

項目	年度	平成 28 年度		平成 29 年度		平成 30 年度	
		上期	下期	上期	下期	上期	下期
(1) 設計・製作 ①大電流同軸端子型タングステン製試料容器の製作(原子力機構) ②新型加熱機構の設計・製作(産総研) ③既存装置の新型装置への改修(原子力機構及び産総研)			容器の設計・試作 ←→	←→	容器の製作 ←→		
			加熱系及び計測系の改良 ←→	←→	新型加熱機構の設計・製作 ←→		
					←→	既存装置改修 ←→	既存装置改修 ←→
(2) 装置基礎特性確認試験 ①試料未装荷加熱試験(産総研)					←→	特性確認試験-1 ←→	←→
						←→	特性確認試験-2 ←→
(3) 高融点酸化物加熱試験 ①高融点酸化物加熱試験(原子力機構及び産総研) ②加熱後試料分析(東北大学)			アルミナ加熱試験 ←→		←→	セリウム酸化物加熱試験 ←→	
			分析 ←→			分析 ←→	
(4) ウラン酸化物加熱試験(原子力機構、東北大学及び福井大学)			←→	試験計画立案 ←→	←→	加熱試験及び評価準備 ←→	←→
						←→	装置移設作業 ←→
							←→
(5) 試料作製(東北大学)			←→	装置整備 ←→	←→	セリウム酸化物作製 ←→	←→
							ウラン酸化物作製 ←→
(6) 研究推進(原子力機構)			打ち合わせ ←→	←→	打ち合わせ ←→		←→
			まとめ・評価 ←→			まとめ・評価 ←→	まとめ・評価 ←→

表 3.4-1 安定化ジルコニアの多段階パルス通電加熱条件

加熱ステップ	設定温度 (K)	保持時間 (秒)
予備加熱	2300	>10
1	2760	1
2	2890	1
3	2950	1
4	3020	1

表 3.4-2 (U, Ce)O₂ の多段階パルス通電加熱条件

加熱ステップ	加熱条件①		加熱条件②	
	設定温度 (K)	保持時間 (秒)	設定温度 (K)	保持時間 (秒)
予備加熱	1800	10	2500	10
1	2200	1	2800	1
2	2650	1	2900	1
3	3100	1	3000	1
4			3200	1

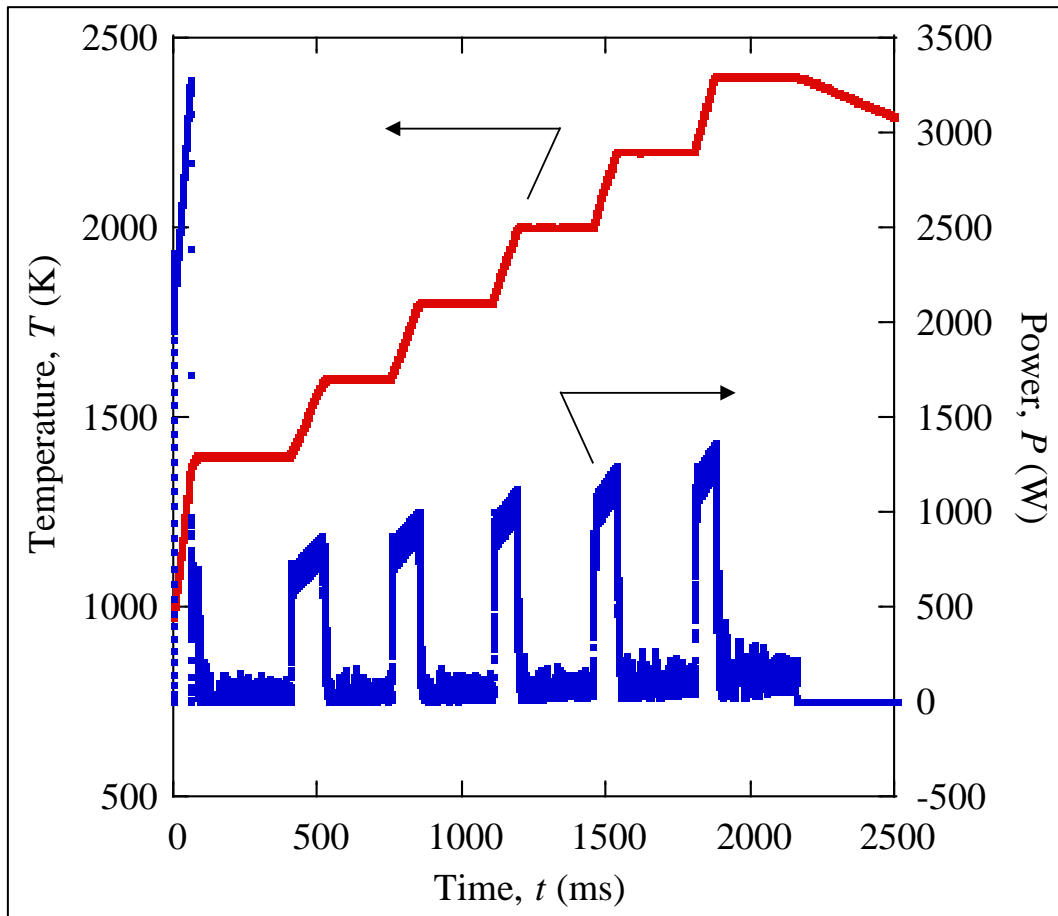


図 3. 1. 3-1 多段階パルス通電加熱試験におけるタングステン棒の温度及び電力の時間変化

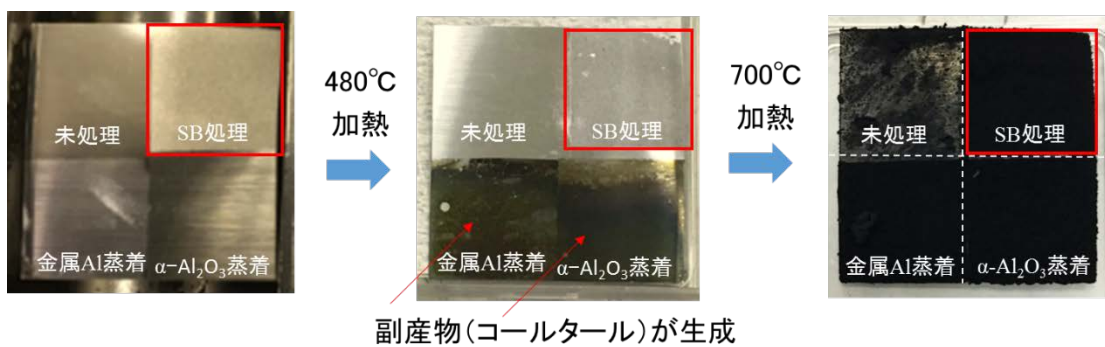


図 3. 2. 1-1 W 基板に製膜した 3 種類のアリミナ担持層上での 480°C と 700°C での CNT 製膜処理後の外観写真

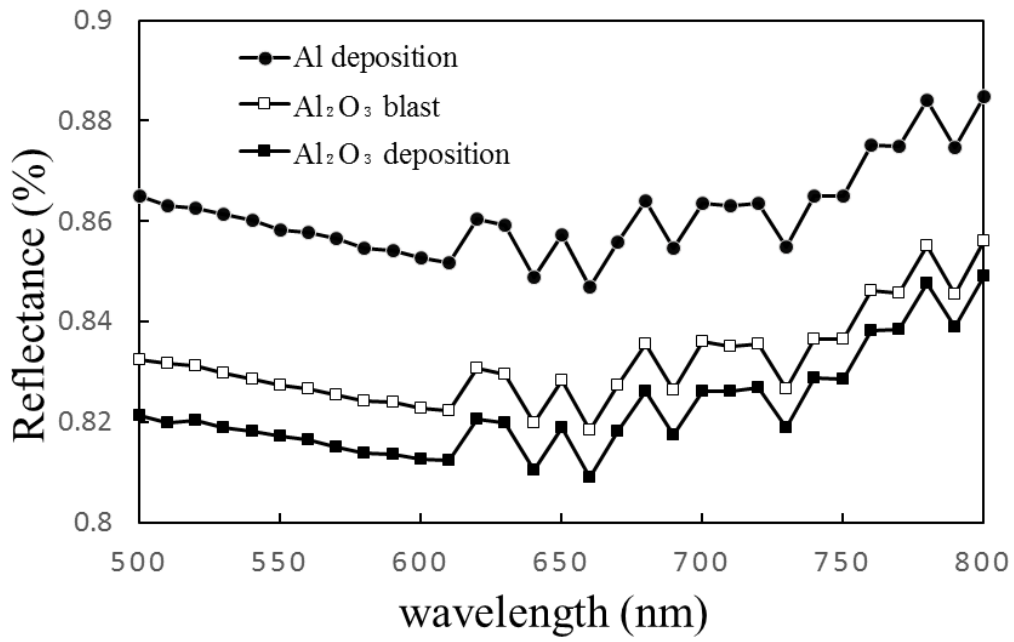


図 3. 2. 1-2 W 基板の上に製膜した 3 種類のアルミナ担持層上に成長した CNT 黒化膜の分光反射率

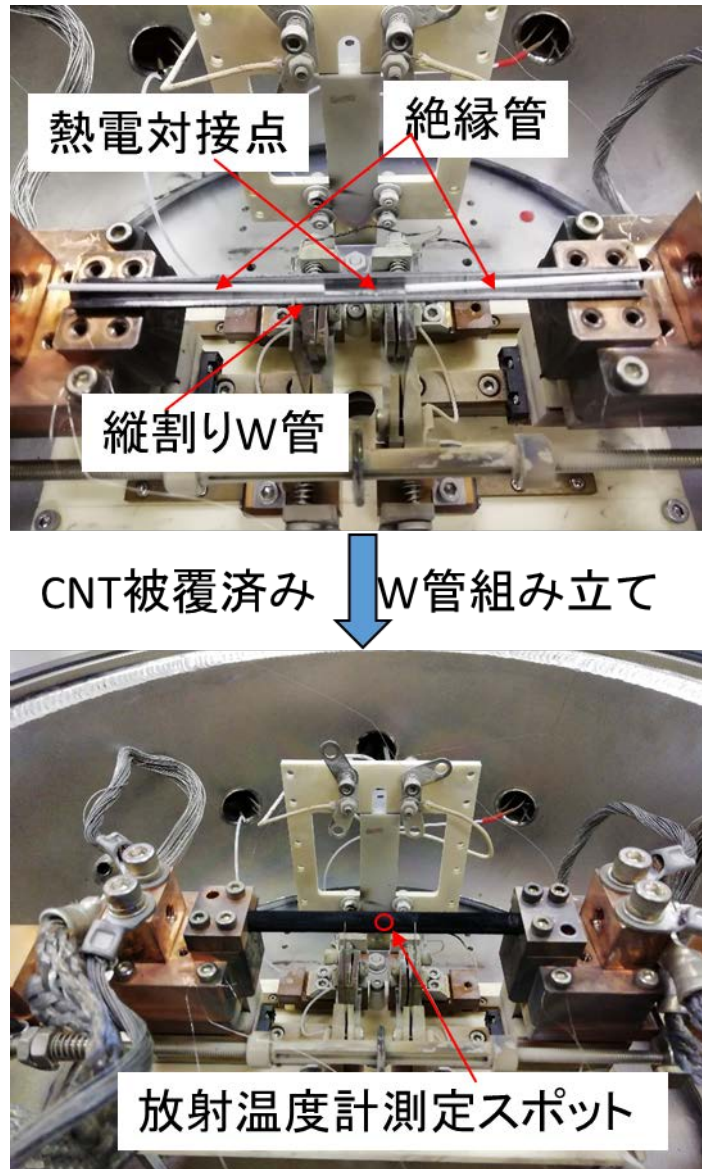


図 3.2.1-3 CNT 被覆タングステン管試料を装着する手順の概略

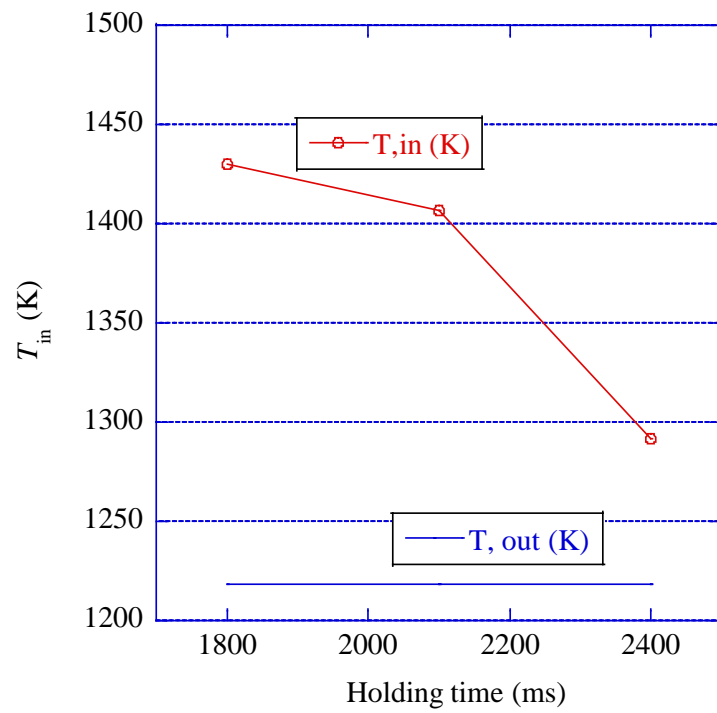


図 3. 2. 1-4 CNT 被覆タングステン管の内側温度（赤線）と外側温度（青線）の定常温度保持時間に対する変化

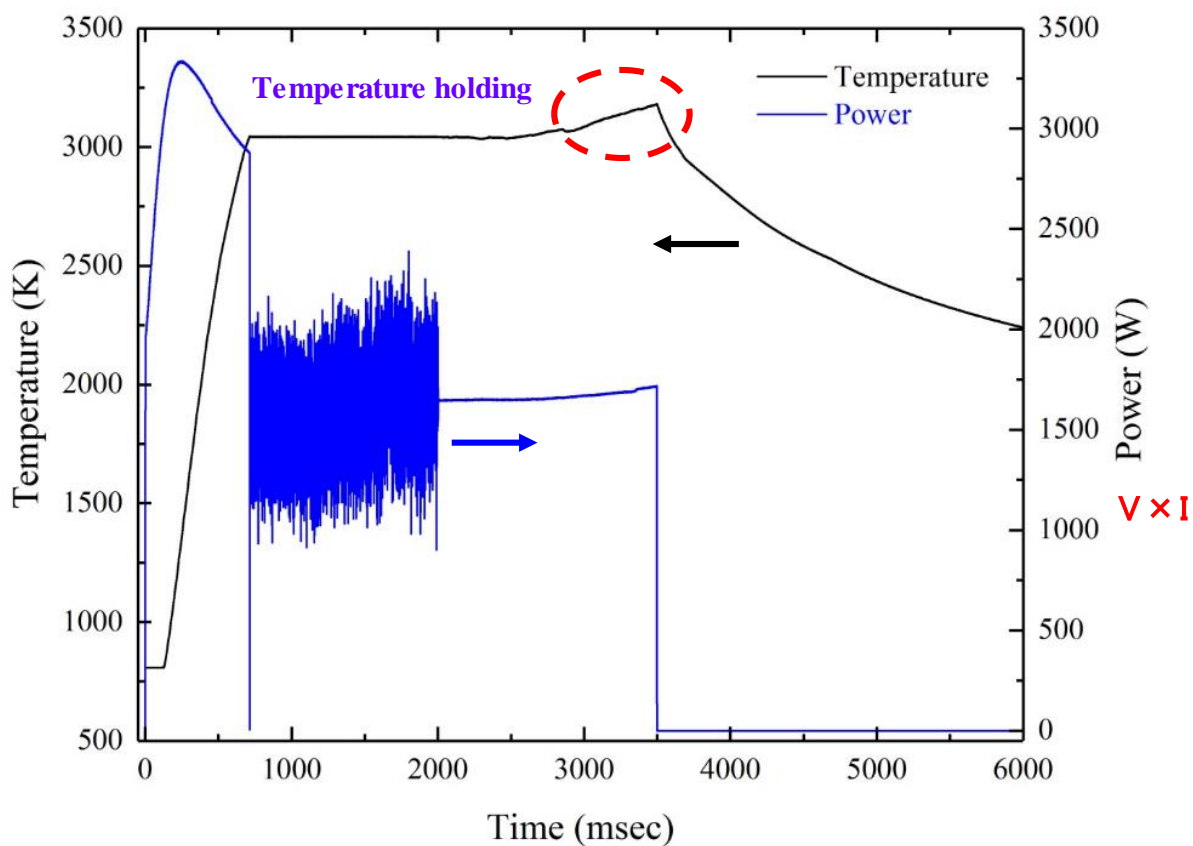


図 3. 4-1 典型的なパルス通電加熱試験の温度及び投入電力データ

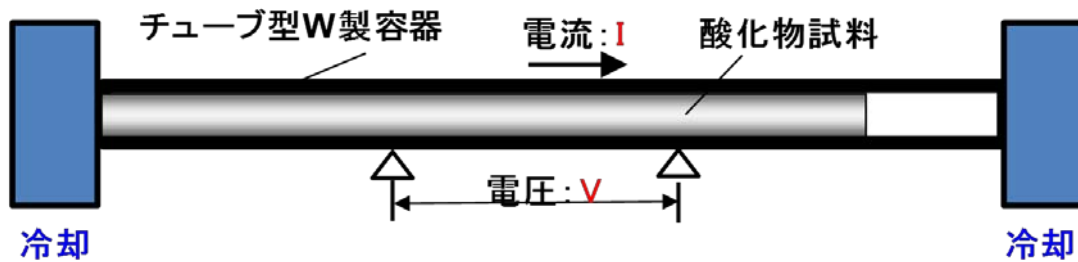


図 3. 4-2 酸化物試料を入れた W チューブのパルス通電加熱試験配置

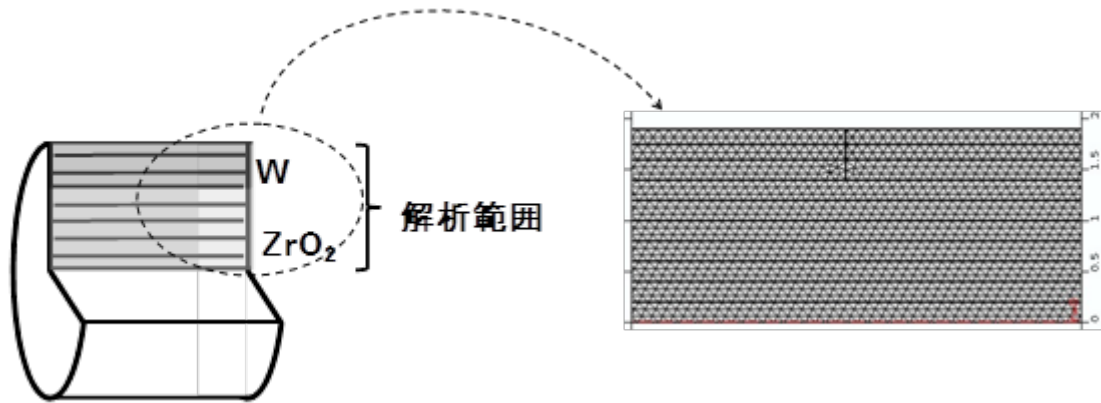


図 3. 4-3 解析モデルと有限要素法のメッシュ分割

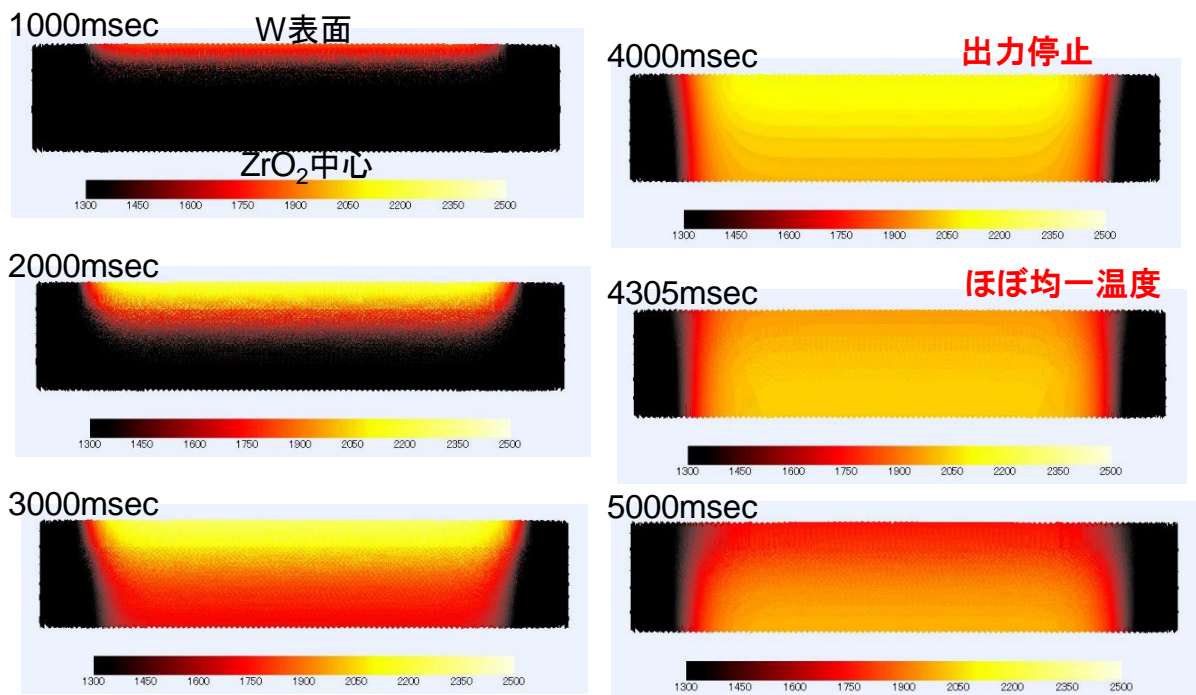


図 3. 4-4 COMSOL 解析結果の一例

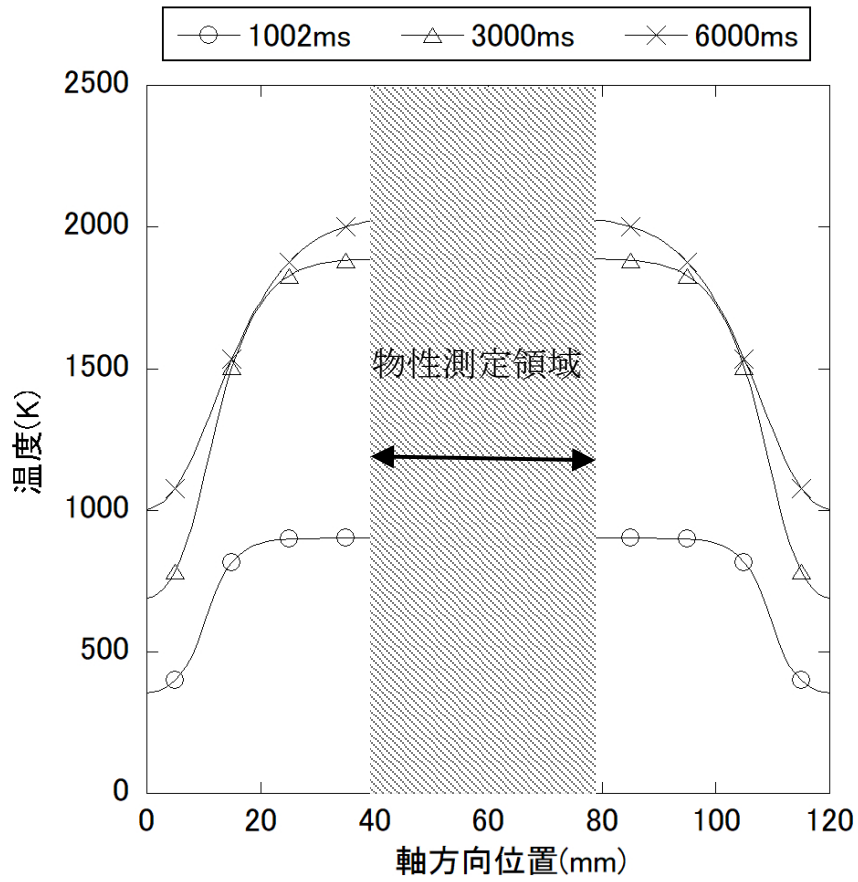


図 3.4-5 試料軸方向温度分布の時間変化

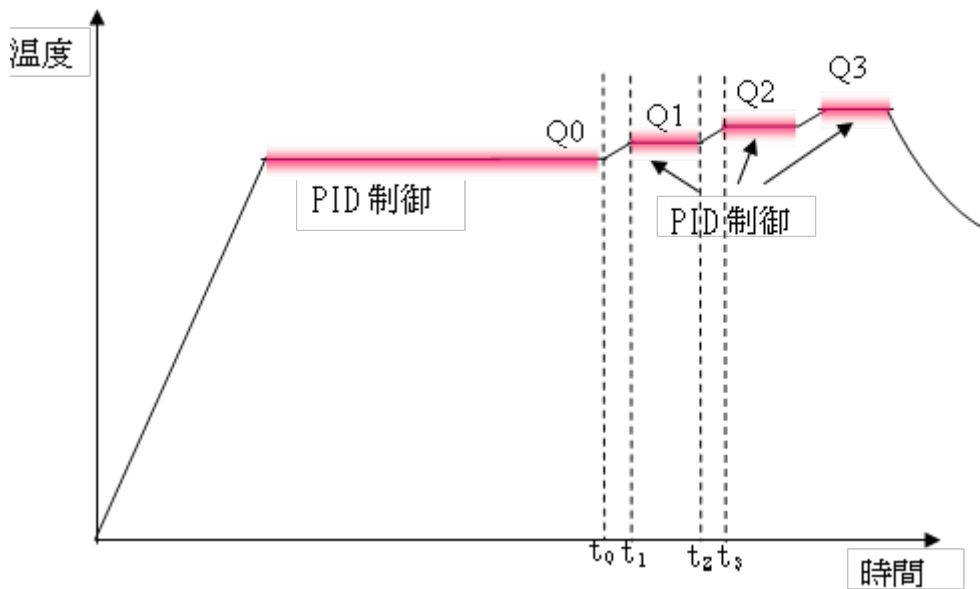


図 3.4-6 酸化物を含むWチューブ試料の多段階PID制御

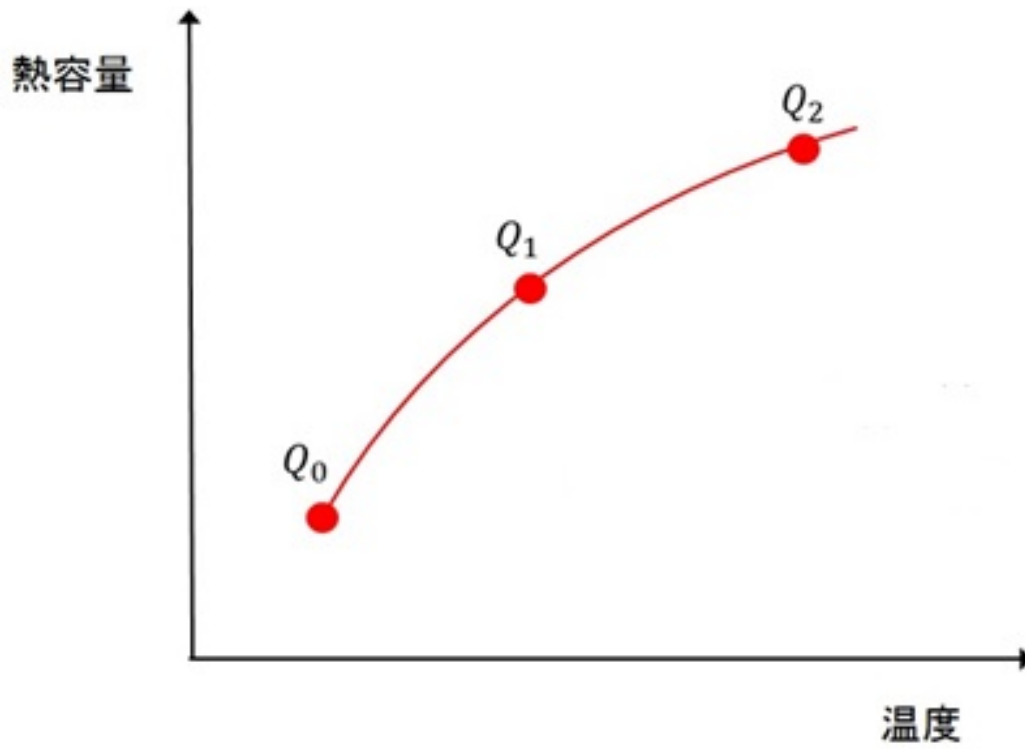


図 3.4-7 酸化物を含む W チューブ試料の熱容量の温度変化

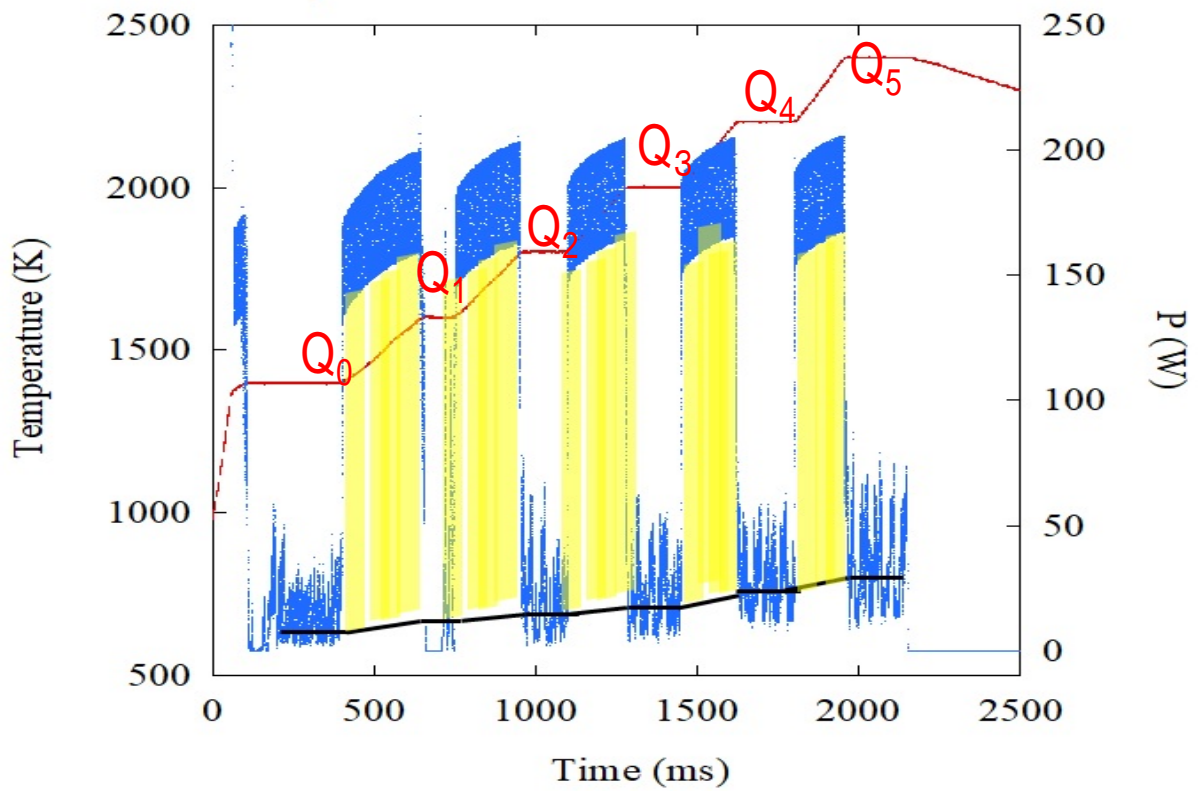


図 3.4-8 W 棒の多段階パルス通電加熱データ

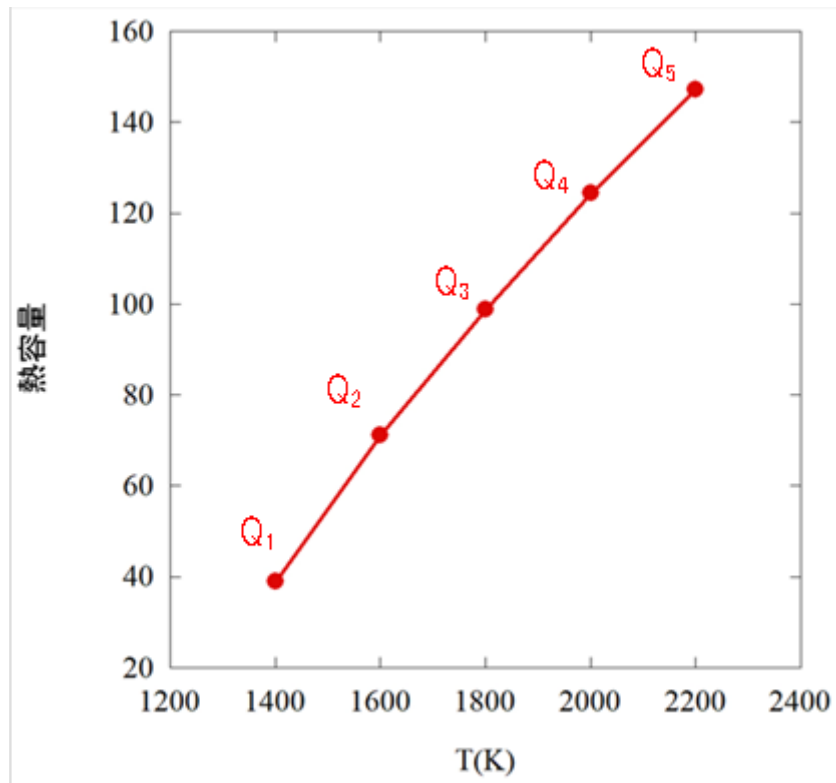


図 3.4-9 エンタルピーの温度変化

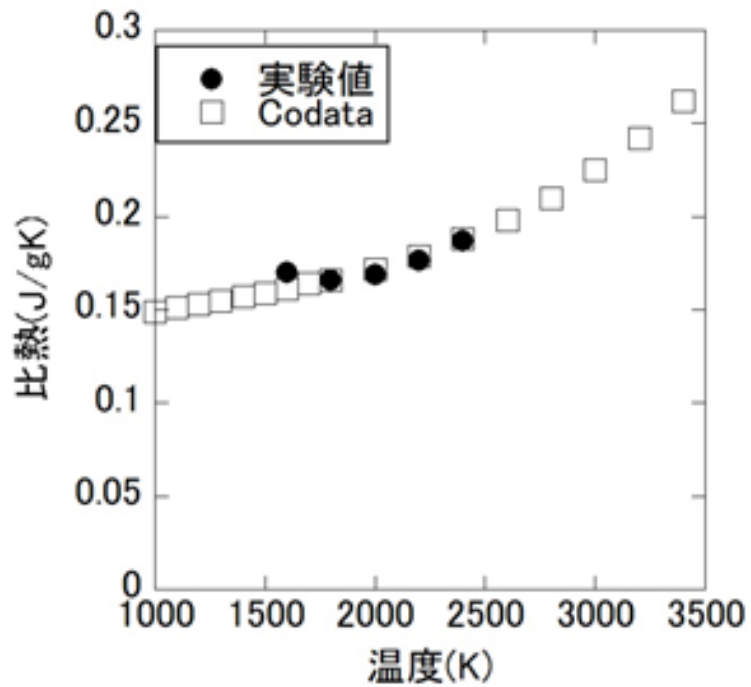


図 3.4-10 W 棒の比熱評価結果

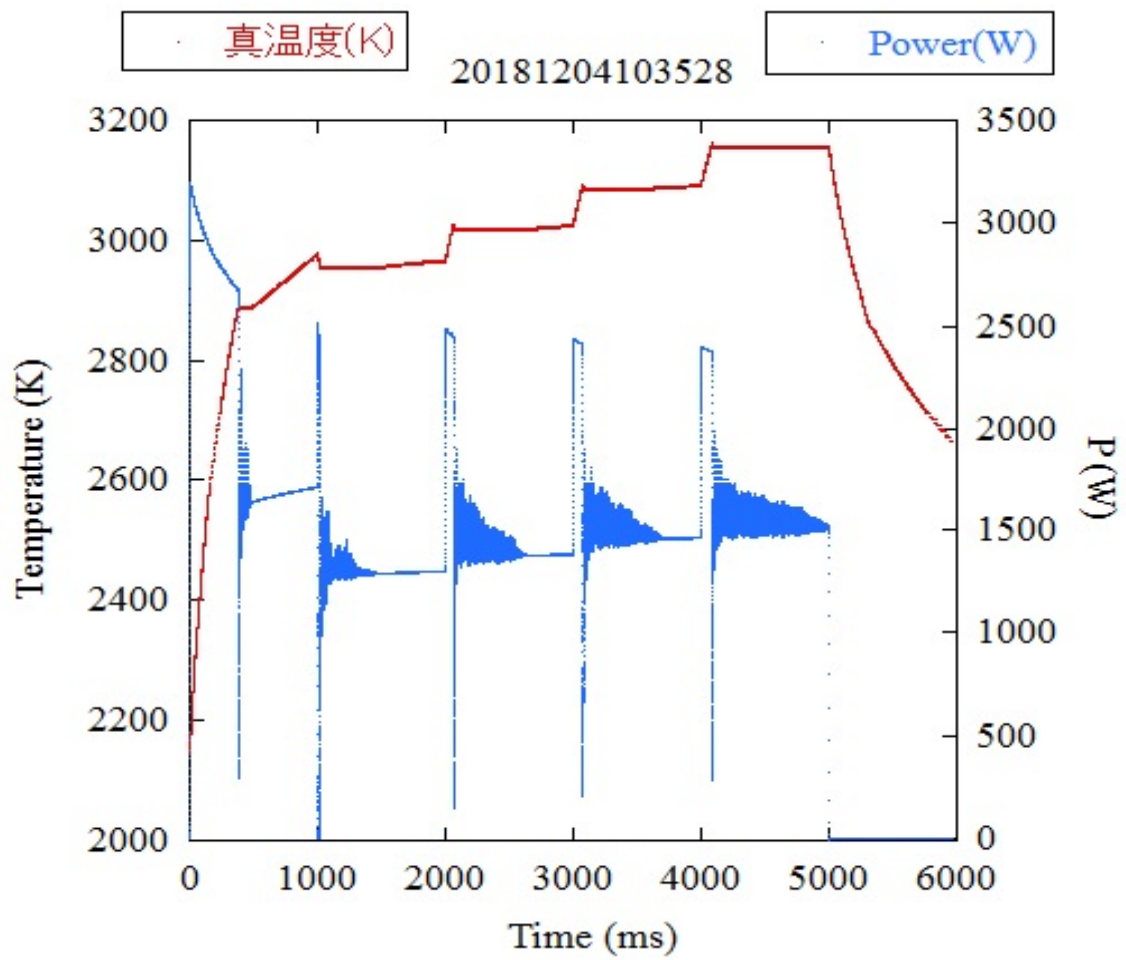


図 3.4-11 ジルコニアを入れた W チューブの多段階パルス通電加熱結果

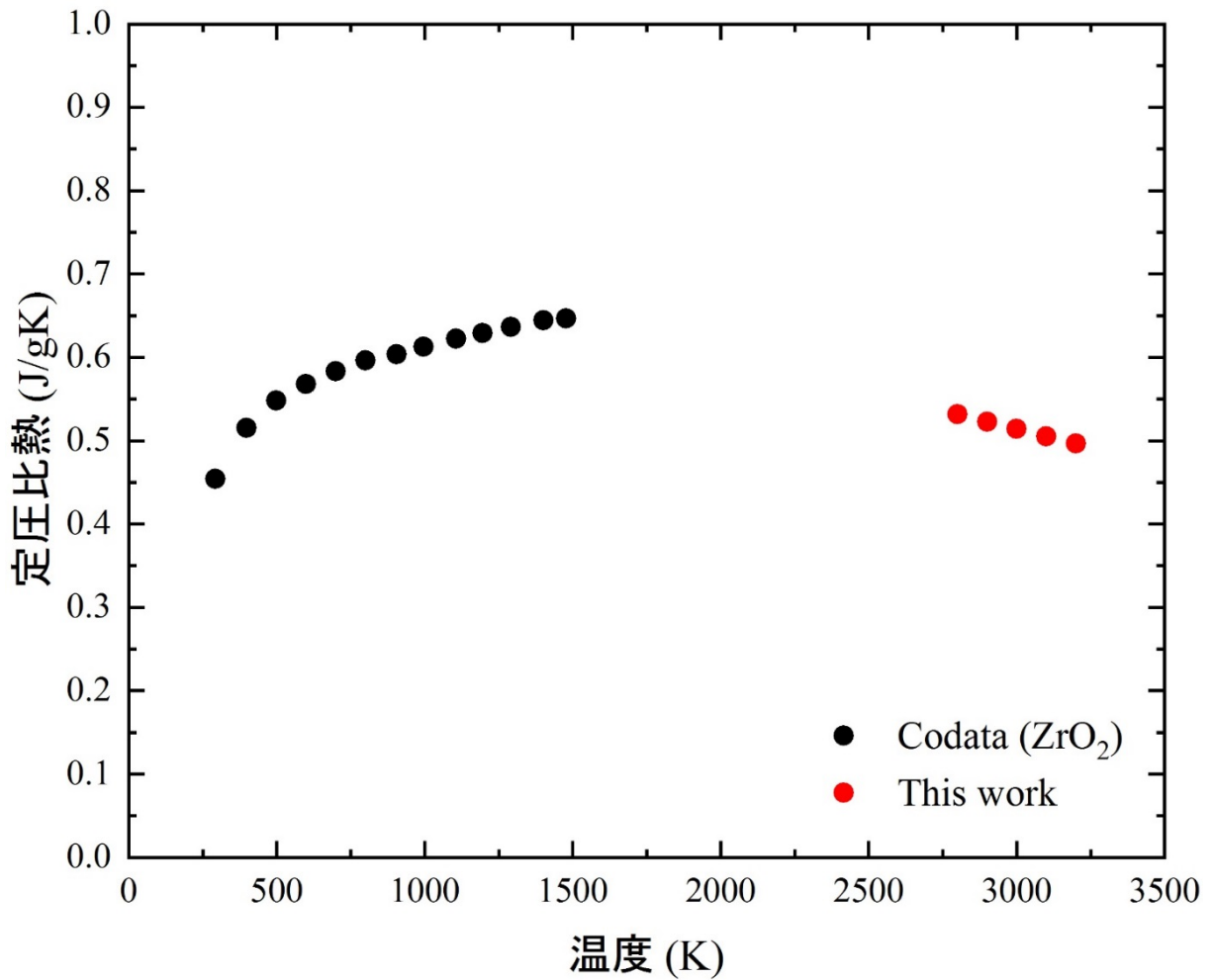


図 3. 4-12 多段階パルス通電加熱試験から求めた安定化ジルコニアの比熱及び文献値

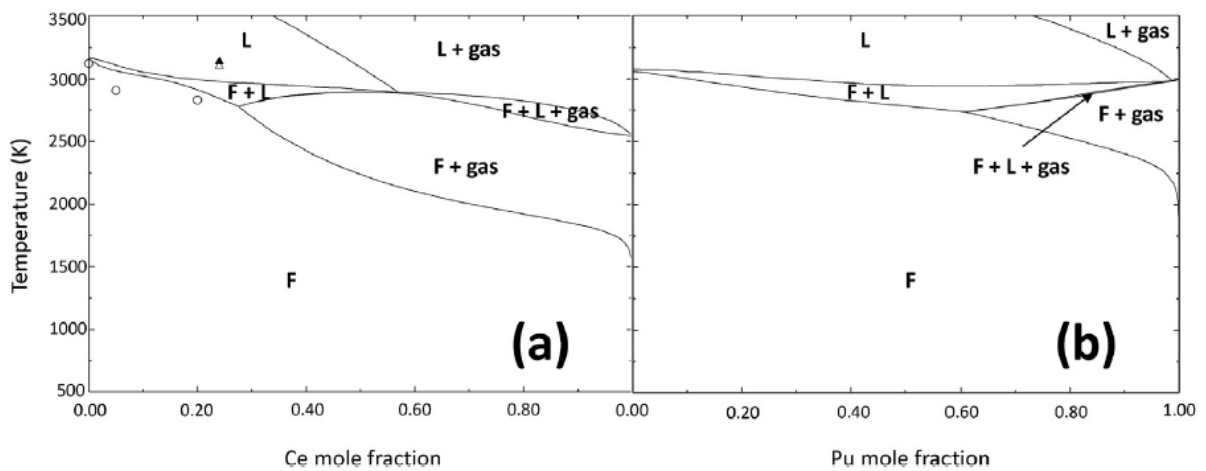


図 3. 4-13 UO_2 - CeO_2 系 (a) 及び UO_2 - PuO_2 系 (b) の相図



図 3. 4-14 加熱試験後の試料断面図

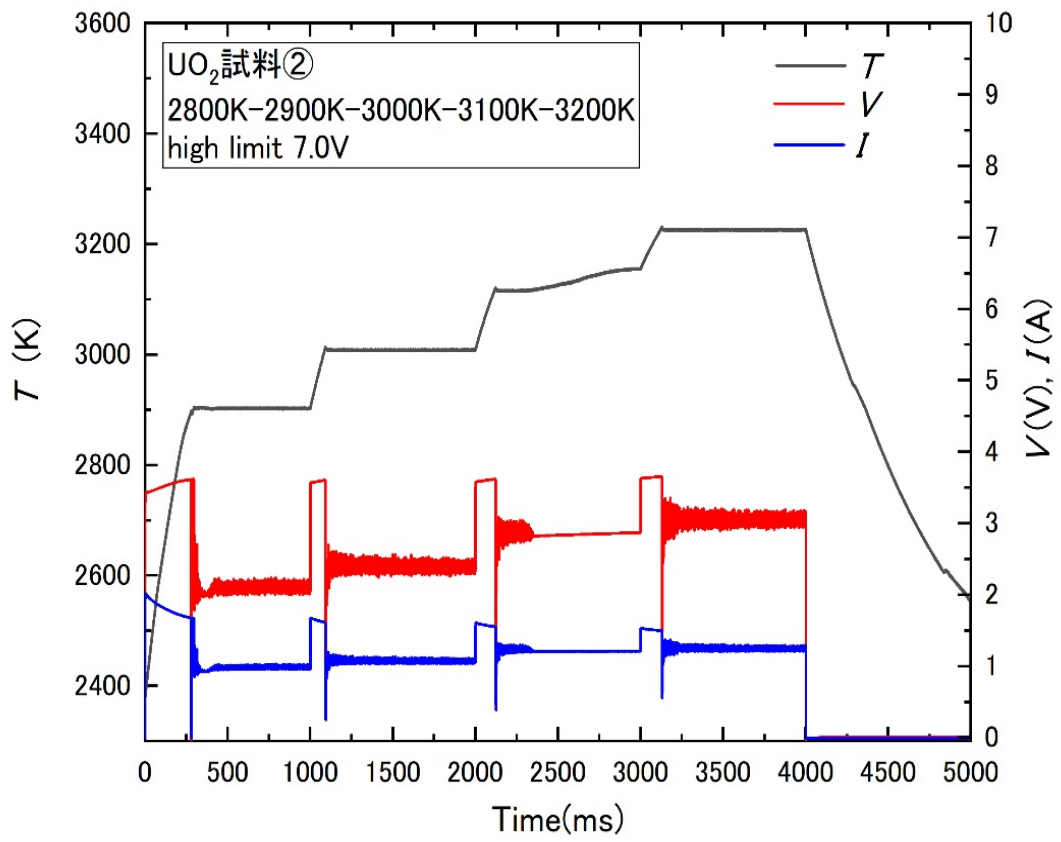


図 3.4-15 (U, Ce)O₂ 試料の多段階パルス通電加熱試験結果

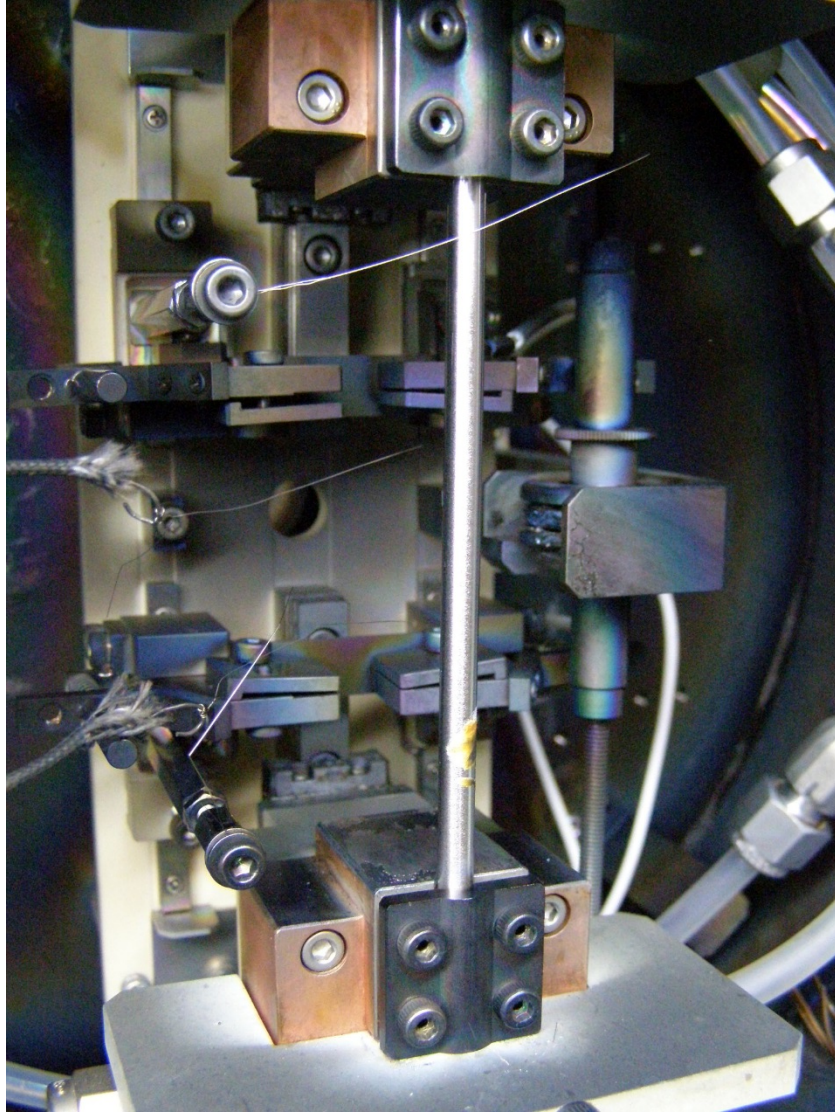


図 3. 4-16 パルス通電加熱試験後の試料外観

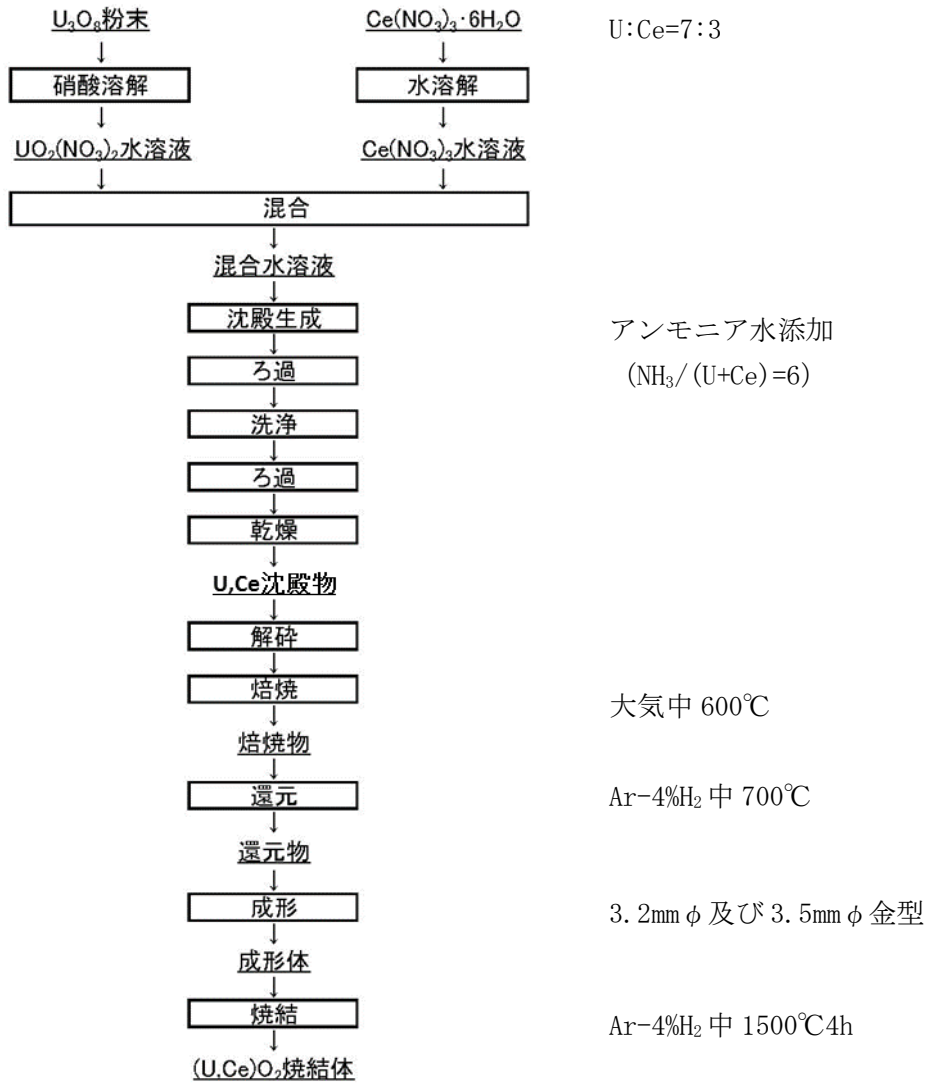
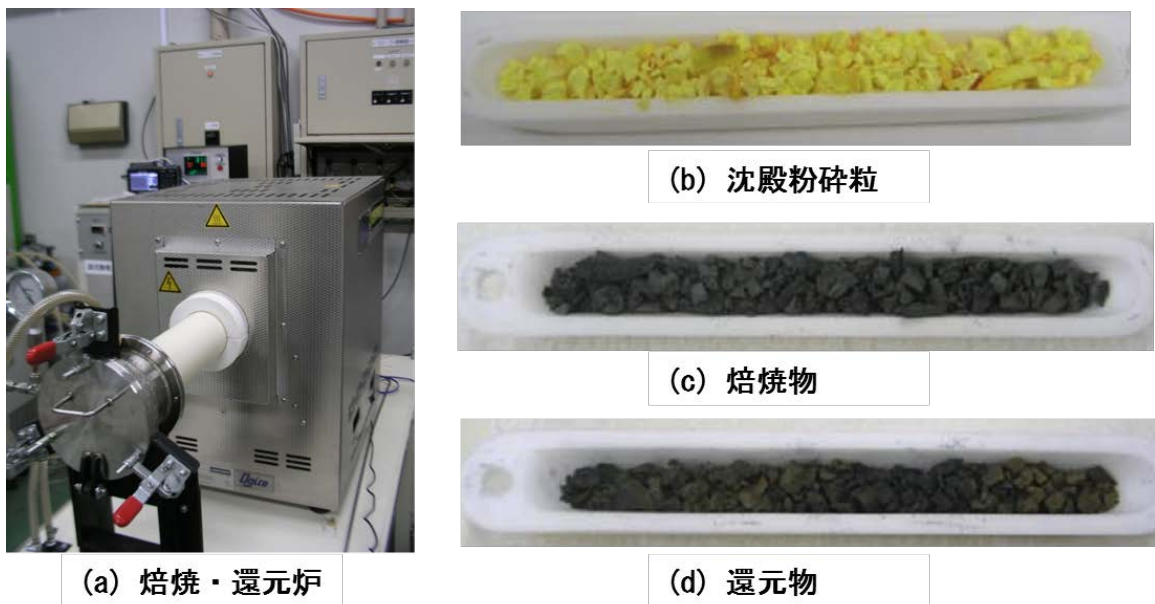


図 3.5-1 混合酸化物粉末の作製フロー



図 3.5-2 混合溶液作製と共沈過程

(a) 硝酸ウラニル溶液と硝酸セリウム溶液、(b) 混合溶液、(c) アンモニア共沈



(a) 焙焼・還元炉

(b) 沈殿粉碎粒

(c) 焙焼物

(d) 還元物

図 3.5-3 焙焼・還元炉と生成物

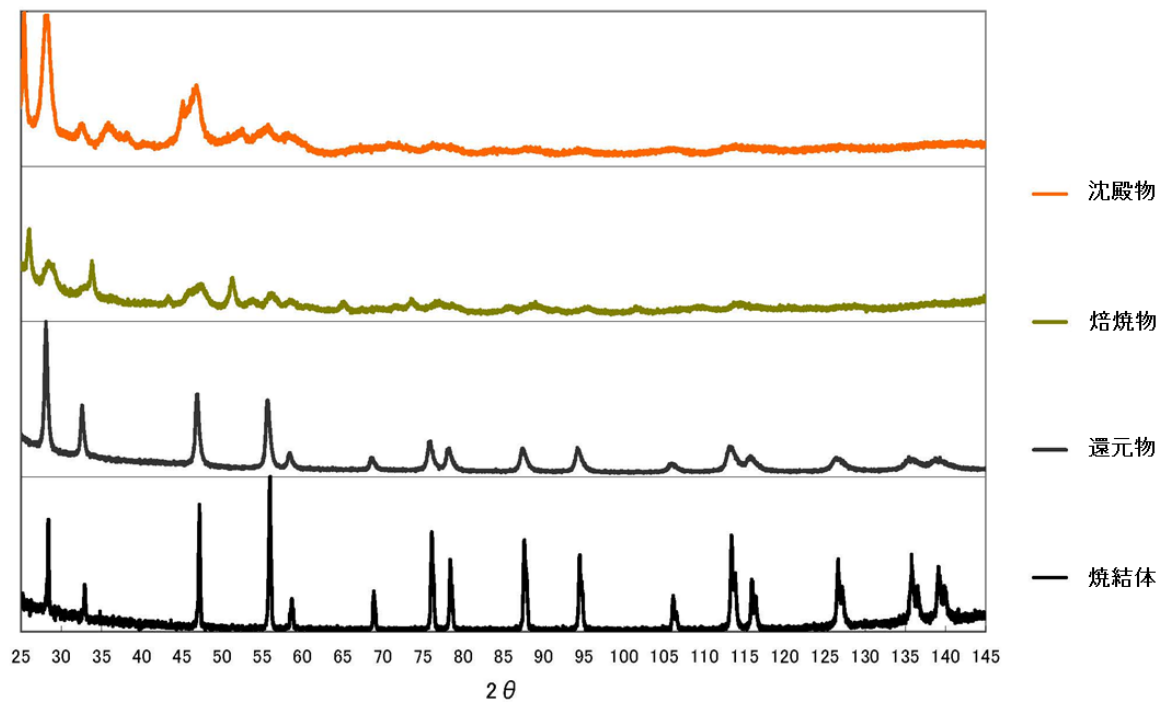


図 3.5-4 沈殿物、焙焼物、還元物及び焼結体の XRD プロファイル

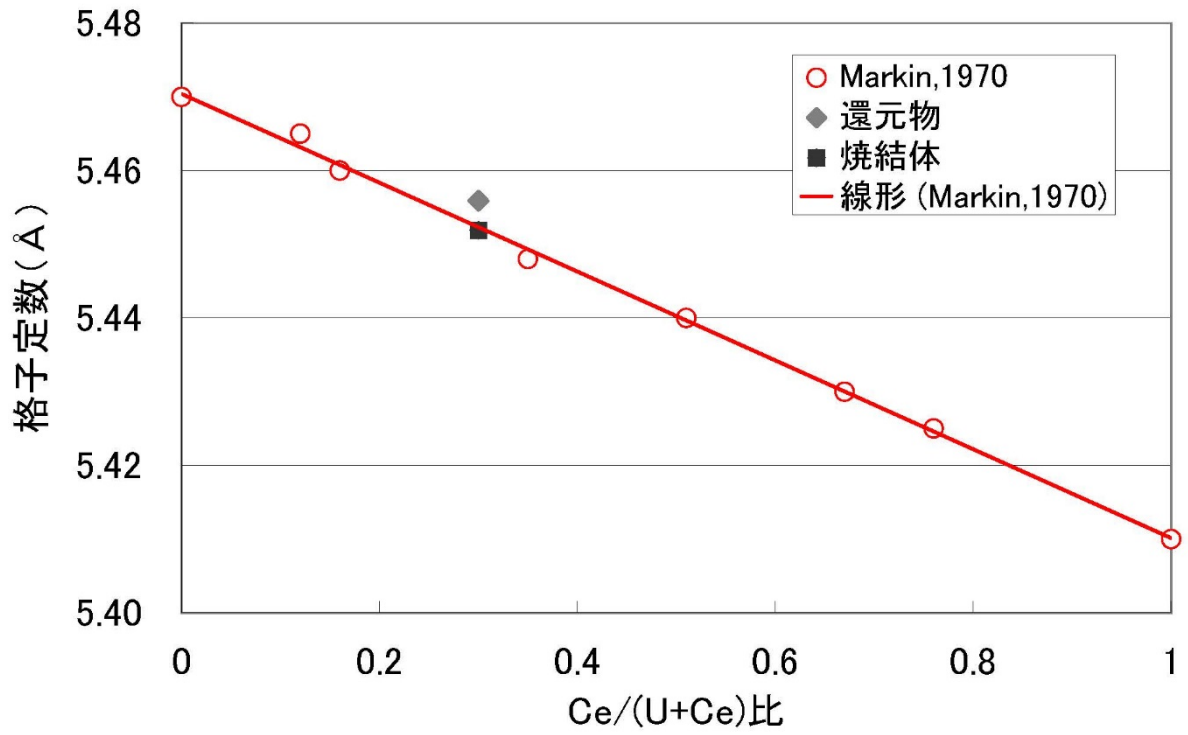


図 3.5-5 還元物及び焼結物の格子定数



図 3.5-6 (U, Ce)O₂ ペレット外観

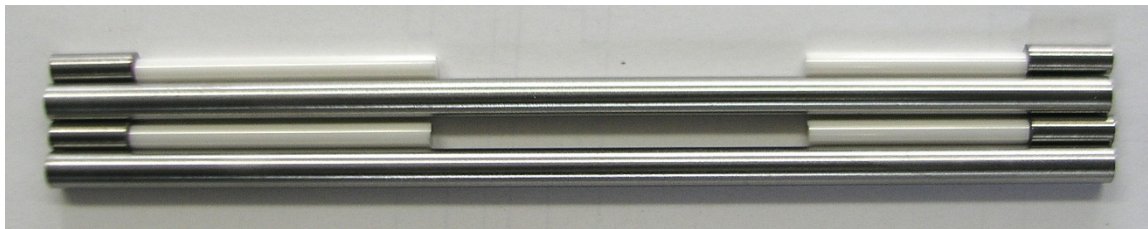


図 3.5-7 Wチューブ、端栓及びジルコニア丸棒スペーサー