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

(受託者)国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

(研究代表者)森本恭一 次世代高速炉サイクル研究開発センター

(再委託先)国立大学法人 東北大学、国立研究開発法人 産業技術総合研究所、国立大学法人 福井

大学

(研究期間)平成28年度~30年度

1. 研究の背景とねらい

原子力発電を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。事故時の環境への影響を最小限にとどめるための方策検討の一環として、事故時の燃料挙動評価や安全性評価を精密に評価することは非常に重要であり、これらの評価において2000 K以上の超高温状態での燃料や溶融体の熱的・動的挙動を解明することは、シビアアクシデント解析における最重要課題の一つである。

市販の測定機器の温度の上限は概ね 1950K 程度であり、これ以上の温度域では対象となる試料 や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」等の測定技術上困難な課題が生じており、これらが超高温領域の燃料 挙動の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。

本研究では、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 加熱物性測定技術をベースとし、超高温域での測定を実現するための予備加熱機構を組み合わせ て溶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加熱測定技術を 用いて、超高温状態や溶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。

2. これまでの研究成果

2-1. 高融点酸化物加熱試験

既存のパルス通電加熱測定装置では試料に直接通電を行って加熱する方式であることから、加熱対象が電気伝導性 を有する物質に限られる。一方、本研究では酸化ウランを はじめとする絶縁体試料を対象とするため、図1に示すよ うにタングステン製の試料容器に測定試料を装荷して試料 容器を通電加熱し、試料を間接的に加熱する体系での試験 とした。試験試料は、外径4 mm、内径3 mm、長さ 120 mm の寸法を有するチューブ型タングステン製試料容器(以下、 試料容器) に酸化物試料を挿入したものを使用した。



図1 絶縁体試料測定用の装置体系

このような間接加熱方法では、酸化物試料と発熱容器との接触熱抵抗を可能な限り下げる必要 があると共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。これら を実現するための工夫として以下に示す試験を実施し、接触熱抵抗の改善を試みた。

試験1:銅箔を巻いた試料により接触抵抗を改善させた試験

試験2:試料を縦置きとして溶融により密着性を高めて接触抵抗を改善させた試験

2-1-1. 試験1: 銅箔を巻いた試料により接触抵抗を改善させた試験

本試験はペレット型のアルミナ (A1₂O₃)を試験試料とし、これに 銅箔を巻いて試料容器に装荷する。 加熱途中に銅箔(融点:1084 ℃) を溶融させることで試験試料と試 料容器間の熱伝導の向上を図った 試験である。

試験の結果、4回の試験のうち の3回で昇温中に試料容器が破断 する結果となった。図2に破断し た試料容器及びその断面観察結果 を示す。破断部でタングステンが 溶融しており、溶融による破断で



図2 破断した試料容器及びその断面観察結果

あったことが分かる。タングステンの融点(3380 ℃)より、破断面付近の温度は3000 ℃を超え る温度に上昇していたと推定される。破断原因は、銅箔が蒸発して試料容器端部に沈着し、この 位置での電流の流れが変化することにより局所加熱が生じて破断したと推定した。これより銅箔 以外の方法で接触熱伝達を改善する方法を検討することとした。

2-1-2. 試験2: 試料を縦置きとして溶融により密着性を高めて接触抵抗を改善させた試験

本試験では試料への銅箔の巻付けを止め、試料を装 荷した試料容器を縦置きに変更した。試料は測定開始 前に溶融処理のための昇温を行い、試料の溶融部が試 料容器を密着することによって双方の熱伝導を向上さ せ、その上で測定を行うことを試みた試験である。

本試験において試料の融点(Al₂O₃:2072℃)を数百 度越える温度までの加熱を繰り返し、試料の完全溶融 を目指した。この試験においても以下に示すような試 料容器の破損が生じた。これらの推定される主な原因 とその対策方法について以下に示す。

○投入した電力を測定するためのナイフエッジ型電極と試料容器の接触部分において試料容器が破損した事象については、ナイフエッジ型電極を試料容器に押し付けている圧力が影響していると考え、ナイフエッジ型電極の使用からタングステン製の細線を試料容器にスポット溶接する方法に変更した。



図3 試料容器の軸方向の亀裂(上段) と亀裂発生過程の推定(下段)

- ○試料容器の軸方向に亀裂が発生して破損した事象については、以下の過程を経て破損に至ったと推定される(図3)。この結果、溶融処理のための昇温を繰り返すことによって試料容器への負担が増大することが原因と考えられることから、溶融試験の繰返し回数を少なくすることによって破損発生を避けることとした。
 - 1. (a)の昇温時は試料容器が試料より温度が高く熱膨張が大きいため試料容器-試料間のギャップは広がる。
 - 2. (b)の試料が溶融した際はギャップが埋められ試料容器と試料は接触した状態となる。
 - 3. (c)の降温時は試料容器の温度が早く下がるため収縮し、試料が試料容器を外へ押すこと になり試料容器の周方向応力(フープ応力)が発生する。これにより(d)のような破損に 至る。
 - 4. この試料を再度融点以上に加熱した際に(e)のように破損部から溶融した A1203 が噴出し たものと考えられる。

上記のように試料容器の破損事象に対する対策を施すことによって、アルミナ(Al₂O₃,融点: 2072 \mathbb{C})のパルス通電加熱測定試験を破損することなく実施することができた(図 4-a)。さら にアルミナよりも融点が高いジルコニア(ZrO₂,融点:2715 \mathbb{C})についても試験を試み、破損す ることなく実施することができた(図 4-b)。



図 4 パルス通電加熱測定結果の例(a: Al₂0₃, b: Zr0₂)

2-2. 新型加熱機構の設計・製作

<u>2-2-1. 予備加熱方法の評価</u>

本研究では、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熱物性を測 定するため、試料容器を試料の融点直下の温度に予め加熱しておいて、その後に測定を行うよう な機能を新たに備えた新型のパルス通電加熱測定装置を開発する必要がある。予め試料容器を加 熱する手段としては、以下の三つの方法が考えられる。

(a)高周波誘導加熱

(b) 試料容器への直接通電による抵抗加熱

(c) ヒーターによる間接加熱

(a)の高周波誘導加熱については、室温から2000 ℃まで概ね数十秒で加熱することができるため、本研究で必要とする予備加熱方法としては最も理想的であるが、被加熱物体の形状・材質・ 雰囲気・目標温度・加熱速度に応じて高周波電源の出力や周波数及びコイルの形状等を子細に検 討する必要がある。

(b)の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測定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。これについては 既存の装置を用いて改良を行い、試験を開始した。試験の一つとして、試料容器のみで約 2100 ℃ まで加熱する試験を行い、予備加熱機構を導入することによって加熱時間が大幅に短縮されるこ とを確認した。

(c)のヒーターによる間接加熱は、他の加熱方法と比較して導入費用が安価であるとともに加熱 対象物の形状・材質などに依存しないという利点がある。一方、試料以外に試料チャンバーや試 料ホルダーも加熱してしまうため、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る。

2-2-2. カーボンナノチューブ成膜技術の高度化

本研究では、2000 ℃を超える超高温域においてミリ秒オーダーの温度変化を正確に測定する必要があるため、温度測定には実験・解析的に最も単純かつ信頼性の高い単色放射温度測定を採用している。また、単色放射温度計測では試料表面の放射率が既知であることが必須であることから、試料容器表面に放射率が1と見なせるカーボンナノチューブ(以下、CNT)を成膜することにより単色放射温度測定の確度・精度を向上させるこ とを目指している。

カーボンナノチューブ成膜は産業技術総合研究所 が考案した粒子ブラスト法と気相触媒への曝露によ り触媒担持層と触媒層をそれぞれ成膜したうえで CVD 法により CNT を成膜する方法を採用した。成膜 状態には製膜温度、原料ガス組成、原料ガス総流量、 炉内圧力が影響することから、本試験ではこれらの 条件の最適化を目指して試験を実施し、最適な成膜 条件を評価した。(図5)



図 5 CNT 膜の分光反射率に対する製膜 温度の影響

<u>3. 今後の研究</u>

高融点酸化物加熱試験については、アルミナやジルコニアを用いた試験を継続し、これまでよりもさらに試料容器の破損を低減させるような溶融処理条件及び測定条件を探索する。また、事前評価にて選択された予備加熱機構を追加した試験装置を用いて高融点酸化物加熱試験を行い、 試験条件やデータ等の収集を進める。

新型加熱機構の設計・製作については、予備加熱方法の評価を進め、選択された方法を試験装置に追加する。また、カーボンナノチューブ成膜は得られた最適条件をもとに試料容器への実際の成膜を行い、最適条件の確認を行う。

上記の新型加熱機構を備えたパルス通電加熱測定装置及び東北大学にて作製されたウラン酸化 物試料を福井大学に輸送し、ウラン酸化物試料のパルス通電加熱測定を実施する予定である。試 験においては上記の高融点酸化物加熱試験にて得られた成果を試験条件等に反映する予定である。