

マイナーアクチニド含有低除染燃料による
高速炉リサイクルの実証研究
(4) 非定常平面熱源法における
ペレット半径方向の熱伝導率測定技術の開発

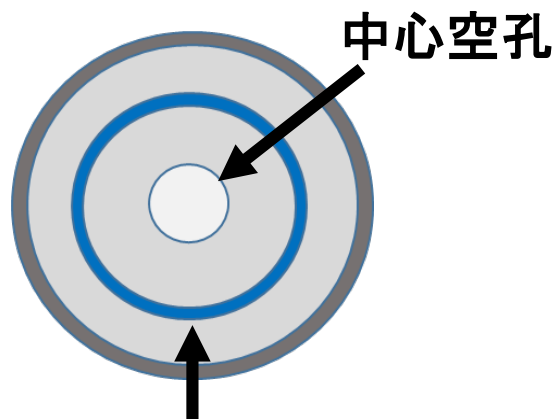
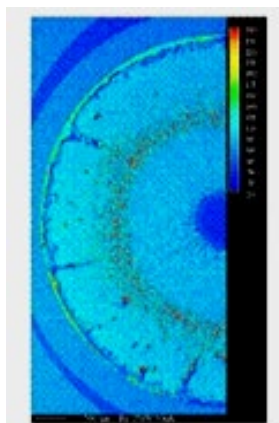
福井大学

岡崎 陽香, 鬼塚 貴志, 宇埜 正美

謝辞: 本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業
JPMXD0219214921 の助成を受けたものである。

研究背景

① 高速炉燃料のFP複合酸化物



(Ba,Sr)-(U,Pu,MA)-O系複合酸化物¹⁾

→軸方向と半径方向の
熱伝導率が異なる可能性

目的

半径方向熱伝導率の簡便な測定技術の開発

② 試料準備の簡便化

放射化によりホットセル内で測定



- ・ 試料の前処理が必要

レーザーフラッシュ装置(LF)

→前処理の簡便化が求められる

(1)K. Maeda et al., "Distributions of volatile fission products in or near the fuel-cladding gap of the FBR MOX fuel pins irradiated to high burn-up," J. Nucl., Mater., Vol.344, pp.274-280 (2005).

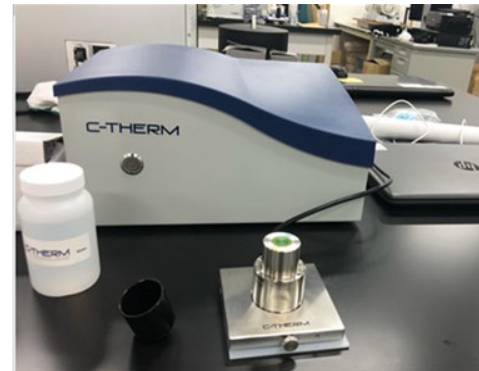
実験方法 測定準備(試料の前処理)の簡素化



レーザーフラッシュ装置(LF)

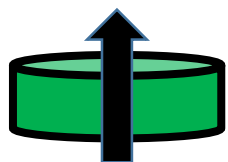


ホットディスク装置(HD)

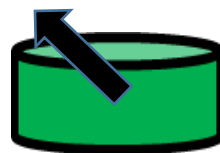


TCi装置(TCi)

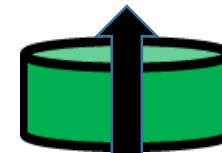
非定常平面熱源法



直径: 10 mm
厚さ: 1~4 mm



直径: 2r倍以上
厚さ: r以上
r: センサ半径



直径: 18 mm以上
厚さ: 5 mm以上

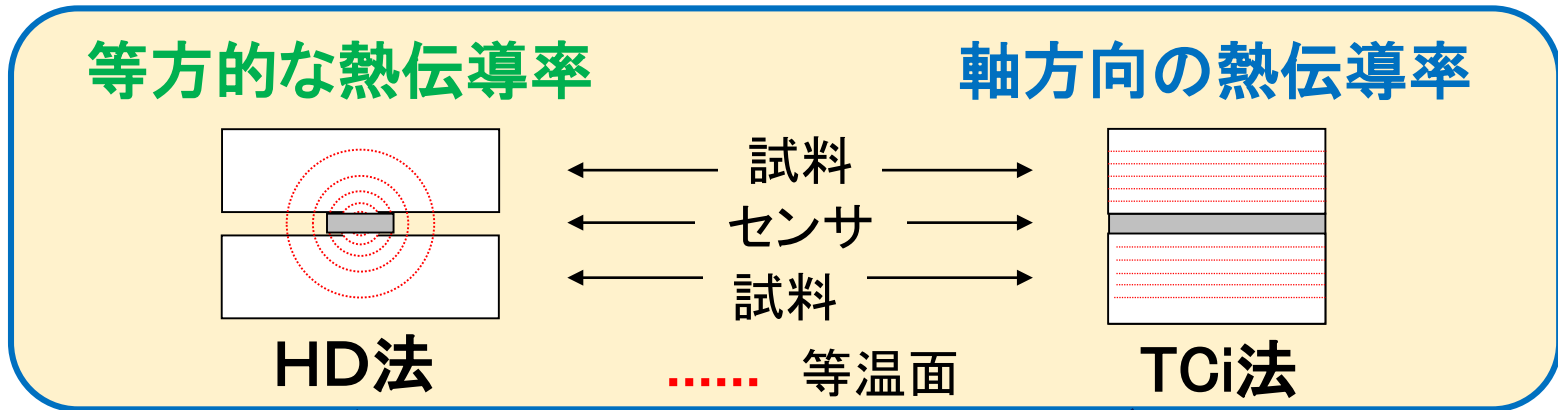
■ 試料の成型が必要

- 空隙を含む試料に対しても測定が可能
- 厚さが10mm程度でも測定が可能

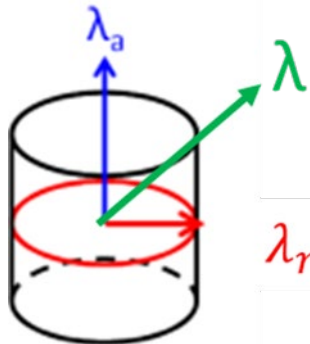
実験方法



半径方向の熱伝導率の測定



$$\lambda^3 = \lambda_r^2 \lambda_a$$



λ : 等方的な熱伝導率(HD法)

λ_a : 軸方向熱伝導率(TCi)

λ_r : 半径方向熱伝導率

測定試料(単結晶TiO₂(ルチル型))

試料①

λ (HD法実測値)と $\lambda_a(=\lambda_{[001]})$ (TCi法実測値)から

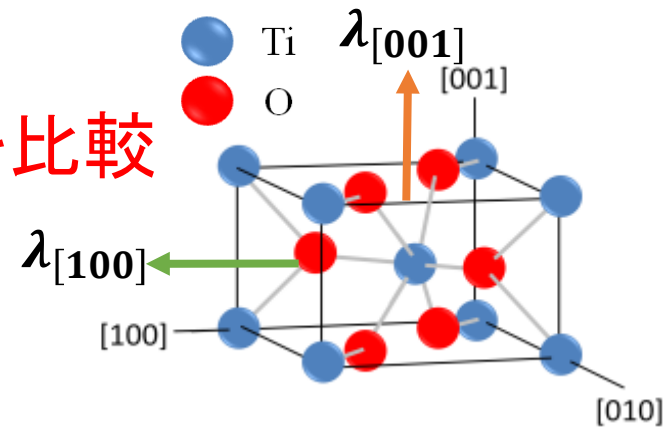
$$\lambda_r = \sqrt{\lambda^3 \div \lambda_{[001]}} = \lambda_{[100]}$$

試料②

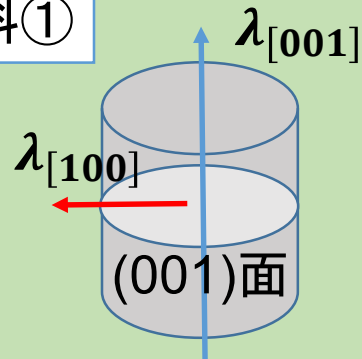
$\lambda_a(=\lambda_{[100]})$ (TCi法実測値)から

$$\lambda_r = \lambda_{[100]}$$

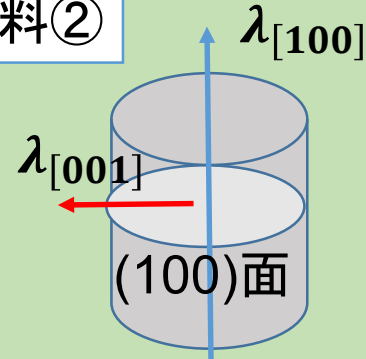
λ_r を比較



試料①



試料②



測定試料(単結晶 Al_2O_3 (コランダム))



試料①

λ (HD法実測値)と $\lambda_a(=\lambda_{[0001]})$ (TCi法実測値)から

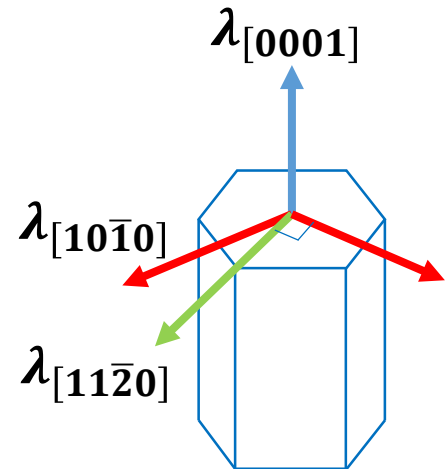
$$\lambda_r = \sqrt{\lambda^3 \div \lambda_{[0001]}}$$

試料②,③

$\lambda_a(=\lambda_{[10\bar{1}0]}, \lambda_{[11\bar{2}0]})$ (TCi法実測値から)

$$\lambda_r = \sqrt{\lambda_{[10\bar{1}0]} \times \lambda_{[11\bar{2}0]}}$$

λ_r を比較

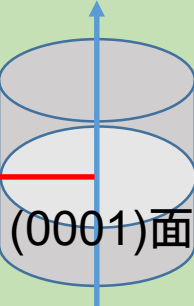


結晶構造

試料①

$\lambda_{[0001]}$

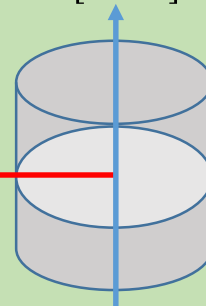
$\lambda_{[10\bar{1}0]}$
 $\lambda_{[11\bar{2}0]}$



試料②

$\lambda_{[10\bar{1}0]}$

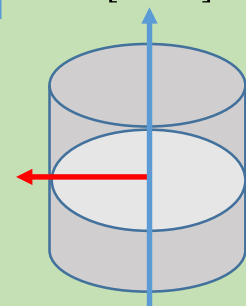
$\lambda_{[0001]}$
 $\lambda_{[11\bar{2}0]}$



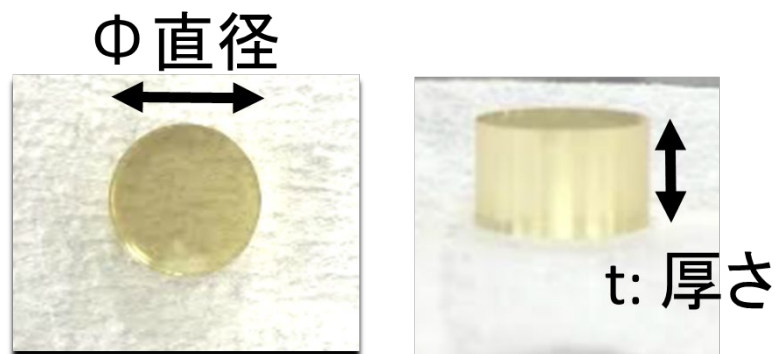
試料③

$\lambda_{[11\bar{2}0]}$

$\lambda_{[0001]}$
 $\lambda_{[10\bar{1}0]}$



測定試料



HD: 単結晶 Φ17mm t 10mm
 多結晶 Φ20mm t 10mm

LF: 単結晶 Φ10mm t 1mm
 多結晶 Φ10mm t 1mm

TCi: 単結晶 Φ20mm t 10mm
 多結晶 Φ20mm t 10mm

単結晶: 有限会社クリスタルベース
 多結晶: 株式会社高純度化学研究所

実験結果(TiO₂)

表1 HD法による熱伝導率(λ)の測定結果

HD	λ (W/mK)
TiO ₂ (001)	6.69
TiO ₂ (100)	6.61
TiO ₂ (poly)	6.40

試料ごとのばらつきは3%以内
→等方的な値がもとめられている

表2 TCi法による熱伝導率(λ_a)の測定結果

TCi	λ_a (W/mK)
TiO ₂ (001)	8.83
TiO ₂ (100)	5.72
TiO ₂ (poly)	6.27

軸方向に依存した熱伝導率の測定値

$$\lambda^3 = \lambda_r^2 \lambda_a$$

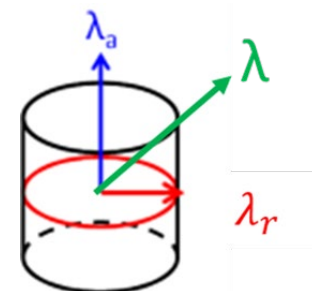


表3 計算された熱伝導率(λ_r)(左)とTCi法(右)による実測値

試料	λ_r (W/mK)	
	HD+TCi	TCi
TiO ₂ (001)	5.82	5.72
TiO ₂ (100)	8.80	8.83

→TCiの実測値と計算値(HD+TCi)
は3%の範囲で一致

実験結果(TiO₂)



- 多結晶体の測定値はどの機器でも再現性の範囲で一致した
 →前処理が簡便な**非定常平面熱源法**で熱伝導率を測定することができた

表4 Tci法, LF法, HD法によるTiO₂多結晶体の実測値

λ (W/mK)	TCi	LF	HD
TiO ₂ (poly)	6.27	6.34	6.40

- HD法とTCi法による評価値とTCi法の実測値の差は、3%以内だった
 →**半径方向**の熱伝導率を**非定常平面熱源法**による軸方向と等方的な熱伝導率の実測値から評価できた

表3 計算された熱伝導率(λ_r)(左)とTCi法(右)による実測値

試料	λ_r (W/mK)	
	HD+TCi	TCi
TiO ₂ (001)	5.82	5.72
TiO ₂ (100)	8.80	8.83

実験結果(Al_2O_3)

 表5 HD法による熱伝導率(λ)の測定結果

HD	λ
$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	参考文献 ² 39.0(//(0001)) 35.6(\perp(0001)) (2)日本熱物性学会, 新編熱物性ハンドブック 株式会社養賢堂, p254,2008.3
$\text{Al}_2\text{O}_3(10-10)$	
$\text{Al}_2\text{O}_3(11-20)$	
$\text{Al}_2\text{O}_3(\text{poly})$	

試料ごとのばらつきは3%以内
 →等方的な値がもとめられている

 表6 TCI法による熱伝導率(λ_a)の測定結果

TCi	λ_a (W/mK)
$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	32.7
$\text{Al}_2\text{O}_3(10-10)$	31.4
$\text{Al}_2\text{O}_3(11-20)$	31.2
$\text{Al}_2\text{O}_3(\text{poly})$	32.3

軸方向への依存性が見られなかった

$$\lambda^3 = \lambda_r^2 \lambda_a$$

 表7 計算された熱伝導率(λ_r)(左)とTCi法(右)による実測値

試料	λ_r (W/mK)	
	HD+TCi	TCi
$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	35.0	31.3
$\text{Al}_2\text{O}_3(10-10)$	36.3	31.9
$\text{Al}_2\text{O}_3(11-20)$	35.6	32.0

→TCi法の実測値により半径方向
 熱伝導率の正確な評価ができなかった

考察(Al_2O_3 試料による実験)



- HD法およびTCi法による計算結果と、TCi法による値との差は約**10%**あり、半径方向の熱伝導率が評価できなかった。

表7 計算された熱伝導率(λ_r)(左)とTCi法(右)による実測値

試料	λ_r (W/mK)	
	HD+TCi	TCi
$\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$	35.0	31.3
$\text{Al}_2\text{O}_3(10-10)$	36.3	31.9
$\text{Al}_2\text{O}_3(11-20)$	35.6	32.0

- 多結晶体の測定結果でもTCi法の値はLF法,HD法と比べて優位な差を示した
→ Al_2O_3 は熱伝導率が大いにも関わらず、TCi法での測定方法、データ処理方法が変更できないことが影響した

表8 Tci法, LF法, HD法による Al_2O_3 多結晶体(上) TiO_2 多結晶体(下)の実測値

λ (W/mK)	TCi	LF	HD
$\text{Al}_2\text{O}_3(\text{poly})$	32.2	35.0	34.3

λ (W/mK)	TCi	LF	HD
$\text{TiO}_2(\text{poly})$	6.27	6.34	6.40

HD法およびTCi法の測定・解析原理



- センサの電流による発熱で試料を加熱し、その時の温度変化を電気抵抗変化として観測する
 ➡ 温度変化の解析により熱伝導率・熱拡散率を測定する。
- 例えばHD法では、

$$R(t) = R_0 [1 + \beta \Delta T(\tau)]$$

$$\Delta T(\tau) = \frac{P_0}{\pi^{3/2} r \lambda} D(\tau)$$

$$\tau = \sqrt{\frac{t}{r^2 / \alpha}}$$

$R(t)$: 時刻 t における電気抵抗

$\Delta T(t)$: 試料の温度変化

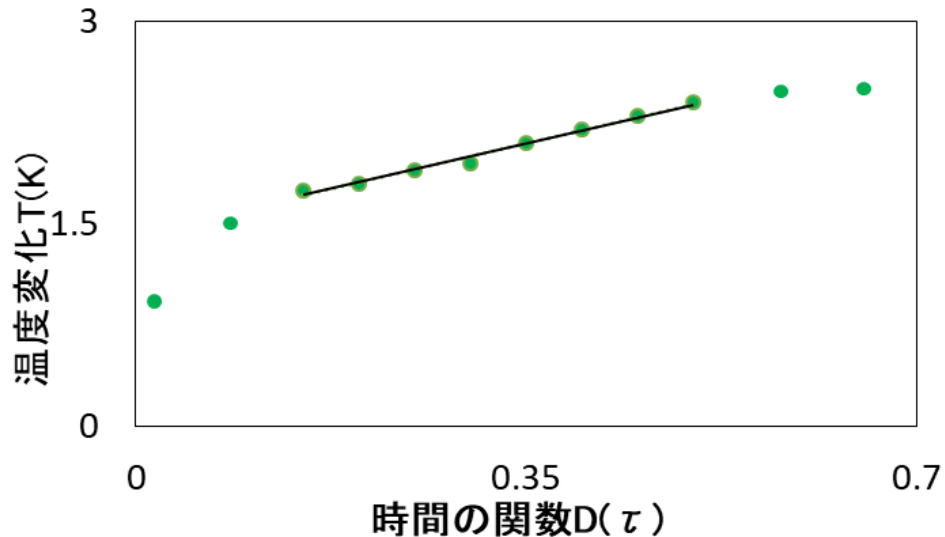
β : 電気抵抗の温度係数

P_0 : センサ出力

r : センサ半径

α : 試料熱拡散率

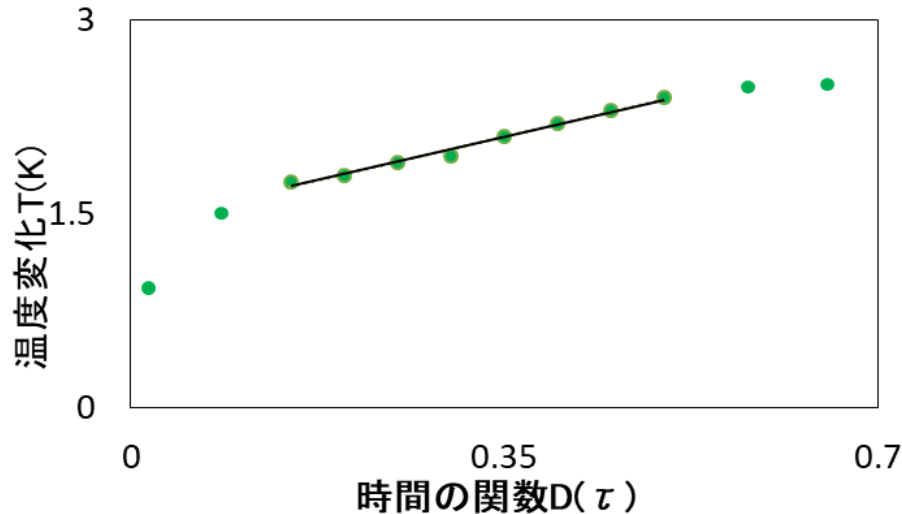
λ : 熱伝導率



データの処理範囲

- ① 熱の拡散が試料内に収まる
- ② 直線からの温度変化のずれ

TCi法の課題



- HDでは、出力および測定時間等の詳細な測定条件、解析範囲を実験者が決定することで誤差の小さな値を得ることができる。
- TCiでは測定条件は表9から選択、解析はソフトウェア内で行われ、実験者は操作しない。

表9 TCi法での測定条件(測定モードの選択)の変更

物質	最小厚み (mm)	出力レベル	熱伝導率範囲 (W/m/K)
液体	1	90	~0.61
粉末	1	90	~0.61
発泡材	2	60	0.04~0.12
ポリマー	2	90	0.13~1.2
セラミック	5	90	1.1~29
金属	5~12	125	15~900

結論



HD法およびTCi法により、 Al_2O_3 試料を除き

- 測定試料に対して煩雑な**前処理なし**で熱伝導率を測定できた。
- TiO_2 試料を用いたHD法による等方的な熱伝導率およびTCi法による軸方向の熱伝導率測定により**半径方向**の熱伝導率を評価することが**可能**であった。
- Al_2O_3 のような大きな熱伝導率、熱拡散率を持つ材料に対しては、測定条件や解析手法を実験者が調整できるよう、**TCi法**の測定の**改良**が必要である。