

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3976716号
(P3976716)

(45) 発行日 平成19年9月19日(2007.9.19)

(24) 登録日 平成19年6月29日(2007.6.29)

(51) Int. Cl.

G 2 1 C 3/62 (2006.01)

F I

G 2 1 C 3/62

J

G 2 1 C 3/62

K

G 2 1 C 3/62

M

G 2 1 C 3/62

N

請求項の数 12 (全 13 頁)

(21) 出願番号 特願2003-304250 (P2003-304250)
 (22) 出願日 平成15年8月28日(2003.8.28)
 (65) 公開番号 特開2004-309453 (P2004-309453A)
 (43) 公開日 平成16年11月4日(2004.11.4)
 審査請求日 平成15年8月28日(2003.8.28)
 (31) 優先権主張番号 2002-074805
 (32) 優先日 平成14年11月28日(2002.11.28)
 (33) 優先権主張国 韓国(KR)
 (31) 優先権主張番号 2003-028065
 (32) 優先日 平成15年5月1日(2003.5.1)
 (33) 優先権主張国 韓国(KR)

(73) 特許権者 500002490
 コリア アトミック エナジー リサーチ
 インスティテュート
 大韓民国 305-353 テジョン-シ
 ユソン-ク ダクジン-ドン 150
 (73) 特許権者 502043352
 コリア ハイδρο アンド ニュークリア
 パワー カンパニー リミティッド
 大韓民国 135-791 ソウル カン
 ナム区 サムスン-ドン 167
 (74) 代理人 100075258
 弁理士 吉田 研二
 (74) 代理人 100096976
 弁理士 石田 純

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 タングステン金属網を含有した核燃料焼結体の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

核燃料粉末及びタングステンまたはタングステン酸化物からなる成形体を製造する段階
 (段階 1)、

前記成形体を還元性気体雰囲気中で加熱してタングステン粒子が分散された予備焼結体を
 製造する段階(段階 2)、

前記予備焼結体を酸化性気体雰囲気中で加熱して予備焼結体にタングステン酸化物の液相
 網を形成する段階(段階 3)、及び

前記液相網が形成された予備焼結体を還元性気体雰囲気中で加熱して固相のタングステン
 金属網を含有した核燃料焼結体を製造する段階(段階 4)、
 を含むことを特徴とする核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 2】

前記段階 1 が、核燃料粉末にタングステンまたはタングステン酸化物を添加及び混合し
 て混合粉末を製造した後、得られた混合粉末を圧縮成形して成形体を製造するものである
 ことを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 3】

前記段階 1 が、中心にタングステンまたはタングステン酸化物が配置され、その周囲領
 域に核燃料粉末が配置された形態の成形体を製造するものであることを特徴とする請求項
 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 4】

10

20

前記段階 1 が、核燃料粉末を圧縮成形した後、その上にタングステンまたはタングステン酸化物を位置させて成形体を製造するものであり、前記段階 2 が前記成形体を還元性気体雰囲気中で加熱して表面にタングステン粒子が付着した形態の予備焼結体を製造するものであることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 5】

前記段階 2 の加熱温度が、1100～2000 であることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 6】

前記還元性気体雰囲気が、水素気体雰囲気かまたは水素気体に不活性気体、窒素、二酸化炭素、一酸化炭素及び水蒸気からなる群から選択された一つ以上の気体が混合された気体雰囲気であることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

10

【請求項 7】

前記段階 3 の加熱温度が、1100～1800 であることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 8】

前記酸化性気体が、二酸化炭素、水蒸気、二酸化炭素と一酸化炭素の混合気体、水素と水蒸気の混合気体、水素と二酸化炭素の混合気体、不活性気体と酸素の混合気体、または窒素と酸素の混合気体であることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 9】

前記段階 4 の加熱温度が、1100～2000 であることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

20

【請求項 10】

前記核燃料粉末が、ウラン酸化物、またはウラン酸化物にプルトニウム酸化物、トリウム酸化物及びガドリニウム酸化物からなる群から選択された酸化物が混合されたものであることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【請求項 11】

前記段階 1 が、核燃料粉末及びタングステンまたはタングステン酸化物を混合して混合粉末を調製した後、前記混合粉末を円柱形成型の内芯に導入して、核燃料粉末を前記円柱形成型の外部リングに導入して、前記型内の粉末を圧縮成形して成形体を製造するものであることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

30

【請求項 12】

前記タングステンまたはタングステン酸化物の量は、前記成形体の 0.2～50 重量%であることを特徴とする請求項 1 記載の核燃料焼結体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、タングステン金属網を含有した核燃料及びその製造方法に関するものである。より詳細には、タングステン金属が核燃料物質の内部に網形態を維持し、該網が焼結体内部の全体または一部領域に形成された核燃料焼結体及びその製造方法に関するものである。

40

【背景技術】

【0002】

原子力発電は、核分裂によって発生する熱を利用するものである。核燃料物質からなる数十～数百個の焼結体をジルコニウム合金被覆管に入れ、両端を密封容接して燃料棒(fuel rod)を製造し、燃料棒を数十～数百個ずつ束ねて一つの束を製造する。このような束が、軽水型及び重水型原子炉に装填して使用され、焼結体から発生した熱は、焼結体を経て被覆管を通して燃料棒周囲を流れる冷却水に伝達される。

【0003】

核燃料は、産業的に利用可能な核燃料物質であるウラン(Uranium, U)、プルトニウム(Plutonium, Pu)またはトリウム(Thorium, Th)等の酸

50

化物を単独または混合した物質を成形及び焼結して製造された円柱形または球形焼結体を使用している。焼結体材料は、大部分この酸化ウラン (UO_2) を使用し、 UO_2 に Pu、Th、Gd の酸化物のような異なる核燃料物質を一つ以上添加して使用する。より詳細には、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Pu}, \text{Gd})\text{O}_2$ または $(\text{U}, \text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ が使用される。

【0004】

最も広く使用される核燃料は、ウラン酸化物焼結体で、ウラン酸化物粉末を出発物質にしてそこに潤滑剤を添加・混合して約 1 ton/cm^2 の圧力で予備成形してスラグ (slug) を製造し、該スラグを破碎して顆粒 (granule) を製造する。得られた顆粒に潤滑剤を添加・混合して圧縮成形して約 50% TD (理論密度) の成形体 (green pellet) を作った後、前記成形体を水素含有気体雰囲気中で加熱して 1600 ~ 1800 温度で 2 ~ 4 時間維持することによって焼結する。前記工程で製造したウラン酸化物焼結体は、円柱形で密度が理論密度の 95% である。このような焼結体の内部微細組織は、図 1 に示した通りである。図 1 を見ると焼結体の内部は、多角形模様の結晶粒 (grain) で構成されその直径は 3 ~ 20 μm である。

10

【0005】

また、 $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ または $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$ 焼結体は、プルトニウム酸化物またはトリウム酸化物粉末をウラン酸化物粉末に混合した後、ウラン酸化物製造方法と同様な方法で製造し、可燃性吸収燃料の $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ 焼結体は、ガドリニウム酸化物粉末をウラン酸化物粉末に混合した後、ウラン酸化物製造方法と同様な方法で製造する。また、核燃料焼結体の結晶粒を成長させるために、Nb、Ti、Si、Mg 及び Al からなる酸化物中から選択された一つ以上をウラン酸化物に添加して核燃料に使用する。

20

【0006】

UO_2 は、溶融点が高く冷却水と反応が少ないという長所のために核燃料材料に広く使用されている。しかし、 UO_2 材料は、使用温度範囲での熱伝導度が 2 ~ 5 $\text{W/(m}\cdot\text{K)}$ で、相当に低いという短所を持っている。核燃料材料の熱伝導度が低いと核分裂によって生じた熱が冷却水まで速く伝達されないため、焼結体が冷却水より非常に高い温度を維持するようになる。焼結体の温度は、中心が最も高く表面が最も低く、焼結体表面と焼結体中心温度の差は熱伝導度に反比例する。したがって、熱伝導度が低いほど焼結体中心温度が高くなるため、正常的に燃焼する核燃料棒における焼結体中心温度は、1000 ~ 1500 範囲にあり、事故時には、 UO_2 の溶融温度である 2800 より高くなることも有り得る。

30

【0007】

核燃料焼結体は、温度が高い状態にあるため、温度に依存する全ての反応は加速されて材料性能が低下する。特に、燃焼度が高くなるほど性能低下がひどくなる。また、焼結体が高い温度状態にあれば、色々な仮想原子炉事故における安全性に対する余裕度 (margin) を狭める結果をもたらす。例えば、冷却材喪失事故では、事故直前の核燃料の温度が高いほど余裕度が小さくなる。また、燃料棒出力が急上昇する事故の場合、焼結体の熱伝導度が悪く中心温度が UO_2 溶融点より高くなり得る。これを防止するために出力に相当な制限を加えるようにすると高い出力を出せなくなる。

40

【0008】

$(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$ 、 $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ または $(\text{U}, \text{Th})\text{O}_2$ は、 UO_2 より熱伝導度が悪いまたは似た程度である。 $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ は、特に熱伝導度が UO_2 に比べて大きく落ちるため、同一な出力を出しているとする $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ 焼結体が UO_2 焼結体より温度がとて高くなる。これを防止するためには、 $(\text{U}, \text{Gd})\text{O}_2$ 焼結体の出力を下げなければならない、よって経済的に損失をきたす。

【0009】

以上のことを鑑みて、本発明者等は、核燃料焼結体の熱伝導度が低い短所を解決するための方策として、核燃料焼結体より熱伝導度が高く溶融点が高いタングステン金属網を焼結体内部に形成させ核燃料焼結体を製造した。前記核燃料焼結体は、タングステン金属網

50

を通して核燃料焼結体の熱伝導度を向上させ原子炉燃焼中核燃料の温度を下げられることを見つけ出し、本発明を完成した。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明の目的は、熱伝導度が向上されたタングステン金属網を含有した核燃料焼結体及びその製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0011】

前記目的を達成するために、本発明は、タングステン金属網を含有した核燃料焼結体及びその製造方法を提供する。

10

【発明の効果】

【0012】

上述したように、タングステンが核燃料物質の結晶粒界に沿って網形態を維持し、焼結体内部の全体または一部領域にタングステン金属網が形成された核燃料焼結体を製造して核燃料焼結体の熱伝導度を向上させることができ、原子炉燃焼中核燃料の温度を下げ、これにより原子炉の安全性を向上させられる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

以下、本発明をさらに詳細に説明する。

20

【0014】

本発明は、核燃料物質の結晶粒とタングステン金属網からなる核燃料焼結体を含む。より詳細には、前記核燃料焼結体は核燃料物質の結晶粒間にタングステンが連結され存在する構造を持ち、該核燃料物質の結晶粒がタングステンからなる金属網によってお互いに連結された構造を持っている（図2参照）。

【0015】

図2に見られるように、タングステン金属網がウラン酸化物焼結体の結晶粒（grain）間（結晶粒界）に連続的に長く伸びていて、熱伝導のための通路の役割をする。2次元写真の線で現れる金属網は、実際の3次元では面を意味し、2次元写真で多角形に見える結晶粒は実際の3次元では多面体であり、金属タングステンは多面体結晶粒の面を囲んでいる板材の形態を持っている。タングステン金属網が完全に形成されると多面体タングステン内に核燃料物質が入っていて、このタングステン多面体が連続的に集まって一つの焼結体を成すようになる。このようなタングステン多面体の大きさは、結晶粒の大きさと一致する。

30

【0016】

核燃料物質の結晶粒の大きさは、製造方法の条件によって影響を受ける。特に、核燃料物質に添加剤を添加すると、結晶粒が大きくなる。添加剤には、Nb、Ti、Al、SiまたはMgの酸化物を使用することが可能である。本発明で提供する核燃料焼結体の結晶粒の直径は、2次元写真で5～500μm範囲にあり、したがってタングステン金属網一つの直径は、5～500μmである。タングステン通路の厚みは2次元的に0.1～20μmが好ましい。

40

【0017】

焼結体結晶粒が大きいと金属網を形成するのに必要なタングステン量が相対的に少なくなり、結晶粒間通路の厚みはタングステン量により増加する。タングステン量が焼結体内で多くなれば、焼結体内核燃料物質の量が減少して核燃料焼結体の単位体積当り発生可能な熱が減少して核燃料の経済性が落ちることになる。そこで、可能な限り少ない量のタングステンを使用しながら熱伝導度を高めることが経済的である。本発明では核燃料焼結体内タングステン含量は、0.2～50重量%が好ましい。

【0018】

タングステンの溶融点は3400で、ウラン酸化物の溶融点は2800である。タ

50

ングステンは溶融点が高いため選定されたものであり、タングステンの溶融点を大きく下げない範囲でタングステンに他の金属元素を約10重量%以内で添加することができる。

【0019】

本発明で提供する核燃料焼結体は、核燃料物質とタングステン金属網で構成されているという特徴があり、前記核燃料物質はウラン酸化物またはウラン酸化物にガドリニウム酸化物、プルトニウム酸化物及びトリウム酸化物からなる群から選択された酸化物が含まれた物質を使用する。タングステンが網状態で連結できずに粒子状態で分散しているとタングステンは熱伝導度の通路になれない。本発明では、粒子状態で分散されたタングステンを排除し、タングステンが連結された金属網を含有したことを特徴とする。

【0020】

本発明の核燃料焼結体は、核燃料物質から発生した熱が二段階に分けて放出される。結晶粒内でウランの核分裂によって熱が発生すると、熱はウラン酸化物を通して隣接したタングステン金属網まで流れ(1段階)、熱伝導度が相対的に高いタングステン金属網を通して熱が大部分伝達される。タングステン金属網は、焼結体全体に亘って全ての方向に連結されているため、焼結体中心で発生した熱がタングステン網を通して焼結体表面まで流れるようになる(2段階)。タングステンの熱伝導度はウラン酸化物より約25倍程度大きいいため、本発明で提供する焼結体は熱伝導度が向上する。

【0021】

タングステン金属網の通路は、3次元的面を成しているため、面の一部が損傷したとしてもタングステン通路を通した熱伝達は大きく減少することではなく、一つの面が全体的に損傷しても隣接した他の面を通して熱が伝達されるため、タングステン通路が一部損傷されたとしても他の通路を通して熱伝達が可能であり、熱伝導度を維持できる。

【0022】

本発明の核燃料焼結体は、タングステン金属網を核燃料焼結体の全部または一部領域に含有できる。タングステン金属網を核燃料焼結体の一部領域にだけ形成させても前記金属網が広がっている領域では、熱伝導度が高いので従来の核燃料焼結体よりは相対的に熱伝導度が向上する。また、円柱形核燃料焼結体が原子炉で使用される時、内部で発生する熱が半径方向に流れるようになり焼結体の内部温度が高く表面温度が低い。円柱形核燃料焼結体の外部リング(ring)と内芯(cylinder)に区分して内芯にだけタングステン金属網を含有し、外部リングには金属網がない核燃料焼結体にすることが可能で、反対に外部リングにだけタングステン金属網を含有した核燃料焼結体も可能である。

【0023】

従来の核燃料焼結体は、熱伝導度が低いためそれを補償するために熱伝導度を少しでも下げる原因を徹底的に規制している。本発明のタングステン金属網を含有した核燃料焼結体は熱伝達がタングステン金属網を通して起きるため、核燃料物質の酸素対ウランの比がさらに高くなり密度が落ちても焼結体の熱伝導度に対する影響は相対的に少なく、核燃料物質の酸素対ウラン比及び密度が従来の核燃料焼結体よりはもう少し広い範囲で使用可能にする長所がある。

【0024】

また、本発明は、タングステン金属網を含有した核燃料焼結体の製造方法を含んでいる。

【0025】

詳細には、核燃料粉末及びタングステンまたはタングステン酸化物からなる成形体を製造する段階(段階1)、

前記成形体を還元性気体雰囲気で加熱してタングステン粒子が分散された予備焼結体を製造する段階(段階2)、

前記予備焼結体を酸化性気体雰囲気で加熱して予備焼結体にタングステン酸化物の液相網を形成する段階(段階3)、及び

前記液相網が形成された予備焼結体を還元性気体雰囲気で加熱して固相のタングステン金属網を含有した核燃料焼結体を製造する段階(段階4)からなる核燃料焼結体の製造方

10

20

30

40

50

法を含む。

【 0 0 2 6 】

前記核燃料焼結体は、段階 1 の焼結体製造方法によって色々な方法で製造できる。

【 0 0 2 7 】

(1) 第一に、段階 1 で核燃料粉末に 0 . 2 ~ 5 0 重量 % タングステン粉末またはタングステン酸化物粉末を添加混合して混合粉末を製造した後、前記混合粉末を圧縮成形して成形体を製造する。前記核燃料粉末は、ウラン酸化物またはウラン酸化物にガドリニウム酸化物、プルトニウム酸化物及びトリウム酸化物からなる群から選択された一つ以上の酸化物が含まれたものを使用し、前記タングステン粉末は純粋タングステンまたはタングステン含量が 9 0 重量 % 以上の合金のものを使用する。

10

【 0 0 2 8 】

段階 2 で、前記で得られた成形体を還元性気体雰囲気中で加熱して予備焼結体を製造する。この時、加熱温度は 1 , 1 0 0 ~ 2 , 0 0 0 が好ましく、前記還元性気体はタングステン酸化物をタングステンに還元させるもので水素気体を使用するか、水素気体に窒素、不活性気体、二酸化炭素、一酸化炭素及び水蒸気からなるグループの中から選択された一つ以上の気体を混合した混合気体を使用する。

【 0 0 2 9 】

核燃料粉末がウラン酸化物の場合、予備焼結体の内部は UO_2 マトリックス (m a t r i x) に金属タングステンが粒子形態で均一に分散された組織を持っている (図 3 参照) 。前記予備焼結体は、タングステンが粒子形態で分散され存在するためにタングステンが熱伝導の通路になることができず熱伝導度が特別高くない。

20

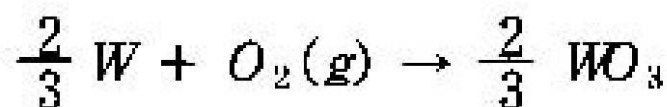
【 0 0 3 0 】

段階 3 で前記予備焼結体を酸化性気体雰囲気中で加熱して予備焼結体内に存在するタングステンをタングステン酸化物 (WO_3) に酸化させて、同時に予備焼結体にタングステン酸化物の液相網を形成する。この時、加熱温度は 1 , 1 0 0 ~ 1 , 8 0 0 で、前記酸化性気体は「酸素分圧」を制御した気体で、酸素分圧はタングステンをタングステン酸化物 (WO_3) に変化させる値以上でなければならない。前記酸素分圧はタングステン酸化反応の自由エネルギーから求め、タングステン酸化物には WO_3 及び WO_2 が存在し、酸化反応を下記の数 1 に示す。

【 0 0 3 1 】

30

【 数 1 】



(式中、各反応のギブス (G i b b s) 自由エネルギー ($\Delta G^0 (T)$) と酸素分圧との関係を下記の数 2 に示す。)

40

【 0 0 3 2 】

$$\Delta G^0 (T) = - R T \ln K = R T \ln P_{O_2} \quad (\text{数 2})$$

(式中、 $\Delta G^0 (T)$ はギブス (G i b b s) 自由エネルギーであり、 R は気体常数で、 T は絶対温度で、 K は反応定数で、 P_{O_2} は平衡酸素分圧を示している。)

【 0 0 3 3 】

ギブス (G i b b s) 自由エネルギー ($\Delta G^0 (T)$) は、一般的に温度の関数として知られているため、 $R T \ln P_{O_2}$ を求められる。 $R T \ln P_{O_2}$ から平衡酸素分圧を求め温度にしたがって図 4 に図示した。特定温度で熱処理する時、図 4 に示した W と WO_3 間の反応の平衡酸素分圧より高い酸素分圧を持った酸化性気体を使用すれば WO_3 を作る

50

ことができる。 WO_3 は約1480以上の温度で溶融するため、 WO_3 形成に必要な酸素分圧より高い値を持った酸化性気体を使用して温度を1480以上にすれば液相の WO_3 を得られる。したがってこの熱処理条件では、液相の WO_3 がウラン酸化物の結晶粒界に沿って浸透しながら拡がり液相の網が形成される。このような現象は、焼結体の内部組織で確認できる(図5参照)。図5から分かるように、多角形結晶粒と結晶粒間に WO_3 が形成された様子を見ることができる。したがって液相網が焼結体内部に形成されたと言える。

【0034】

一方、1480以下の温度でも WO_3 が形成されるとこれらがウラン酸化物と反応して(ウラン+タングステン)酸化物を形成しながら溶融する現象が観察された。液相の(ウラン+タングステン)酸化物も液相の WO_3 のようにウラン酸化物の結晶粒界に沿って浸透しながら拡がっていく。したがって、図5と類似な焼結体内部組織を得るようになる。

10

【0035】

予備焼結体を熱処理する条件は、酸化性気体の酸素分圧をWと WO_3 の反応の平衡酸素分圧より高く設定して温度を1100以上にすると可能である。

【0036】

酸化性気体の酸素分圧を調節する方法は、二酸化炭素または水蒸気を使用するかまたは二酸化炭素と一酸化炭素の混合比、水素と水蒸気の混合比、水素と二酸化炭素の混合比、不活性気体または窒素と酸素の混合比を調節する方法中の一つ以上が使用される。

20

【0037】

最後に、段階4で前記液相網が含有された予備焼結体を還元性気体雰囲気で加熱して固相のタングステン網を含んだ核燃料焼結体を製造する。この時、加熱温度は1,100~2,000が好ましい。前記液相網を持った焼結体を還元性気体雰囲気中で還元すると液相のタングステン酸化物がタングステンに還元されて固相のタングステン金属網を含有した核燃料焼結体が製造される。前記還元性気体雰囲気の酸素分圧は図4に示したWと WO_2 反応の平衡酸素分圧より低い値が好ましい。還元性気体としては、水素気体を使用したりまたは水素に不活性気体、二酸化炭素、水蒸気、一酸化炭素を含有した混合気体を使用する。

【0038】

30

(2) 第二に、段階1で中心にタングステンまたはタングステン酸化物が配置され、その周囲領域に核燃料粉末が配置された形態で成形体を製造する。この後、前記成形体を先に叙述した段階2~4と同一な方法で核燃料焼結体を製造する。前記段階2で製造した予備焼結体は、中心にタングステン粒子を含有し、前記段階3でタングステンがタングステン酸化物に酸化し、中心に存在していた液相のタングステン酸化物が周囲の核燃料結晶粒界に浸透しながら液相網を形成するようになる。その後、前記段階4でタングステン酸化物の液相網がタングステン網に還元される。その結果本発明の核燃料焼結体は全体に渡ってタングステン網が含有された核燃料焼結体を製造する。

【0039】

(3) 第三に、段階1で核燃料粉末だけを圧縮成形した後、その上にタングステンまたはタングステン酸化物を位置させて成形体を製造し、段階2で前記成形体を還元性気体雰囲気中で加熱して表面にタングステン粒子が付着した形態の予備焼結体を製造する。この時、タングステン酸化物を位置させる為に蓋を使用できる。以後、前記予備焼結体を先に叙述した段階3~4と同一な方法で核燃料焼結体を製造する。前記段階2で製造された予備焼結体は、表面にタングステン粒子が付着したもので、前記予備焼結体が段階3でタングステン粒子が酸化され、表面に存在していた液相のタングステン酸化物が予備焼結体の結晶粒界に浸透しながら液相網が焼結体全体に渡って連続的に形成されるようになる。最後に、段階4でタングステン酸化物の液相網が固相のタングステン網に還元されると、その結果と核燃料焼結体は、全体に渡ってタングステン網が含有された核燃料焼結体を製造する。

40

50

【0040】

前記核燃料焼結体製造方法は、タングステン金属網を焼結体全体に亘って広めることが可能で、また、前記製造方法を応用すれば焼結体一部領域にだけ広めることも可能である。一例として、円柱形核燃料焼結体の内芯にだけタングステン金属網を含有して外部リング(ring)にはタングステン金属網が無い焼結体を製造したりまたは反対に外部リングにタングステン金属網を含有し内芯には金属網が無い核燃料焼結体の製造方法が可能である。より詳細には、ウラン酸化物粉末及びウラン酸化物とタングステンの混合粉末を各々準備して、円柱形成形体の内芯に前記混合粉末を配置して外部リングにウラン酸化物粉末を区分して配置するように成形体を製造して、前記成形体を還元性気体雰囲気中で焼結して予備焼結体を製造する。前記予備焼結体の内芯はウラン酸化物マトリックス(matrix)にタングステン粒子が均一に分布した形状であり外部リングはタングステンが無い状態である。前記予備焼結体を本発明の製造方法により酸化性気体雰囲気中で熱処理すると、焼結体の内芯にだけタングステン金属網が発達し、反面外部リングは金属網が形成されないようになる。成形体で二種類粉末の位置をお互いに交換すると、外部リングにタングステン金属網が形成され、内芯には金属網が形成されなくなる。

10

【0041】

タングステン金属網を焼結体の一部領域に含有するまた他の一例は、ウラン酸化物粉末及びウラン酸化物とタングステンの混合粉末を各々準備し、二種類の粉末を数百～数千 μ mの大きさの顆粒に製造し、各々の顆粒を混合成形して成形体を製造し、予備焼結体を製造する。前記予備焼結体の内部組織は、タングステン粒子が均一に分散された領域とタングステンが無い領域がお互いに混じっていて、前記予備焼結体を本発明の製造方法により酸化性気体雰囲気中で熱処理して得られる焼結体は、タングステン金属網が具備された領域と金属網が無い領域が構成される。

20

【実施例】

【0042】

以下、本発明を実施例によってさらに詳細に説明する。

【0043】

但し、下記の実施例は、本発明を例示するもので本発明の範囲がこれらの実施例によって限定されるものではない。

【0044】

30

<実施例1>核燃料焼結体の製造

UO_{2+x}粉末(O/U比=2.12)にタングステン粉末を9重量%添加し混合して混合粉末を製造した後、得られた混合粉末を円柱形成型に装入して成形パンチを使用して上下に3トン(t/cm²)圧力を加えて円柱形成形体を製造した。製造した成形体を1700℃水素気体雰囲気中で4時間焼結して予備焼結体を製造した。予備焼結体を二酸化炭素雰囲気中で1480℃まで加熱した後、1.5時間維持した後、再び水素気体雰囲気中で1650℃の温度で2時間還元して核燃料焼結体を製造した。

【0045】

<実験例1>核燃料焼結体の微細組織測定

前記実施例1で製造した核燃料焼結体の微細組織を測定するために光学顕微鏡を利用した。倍率は200～500倍にして観察した。結果を図2、図3及び図5に示した。

40

【0046】

図2は、前記液相網が含有された核燃料焼結体を還元性気体雰囲気中で熱処理して得られたタングステン網を含有した核燃料焼結体を示したものであり、核燃料焼結体の内部にタングステン金属網が形成されたことが分かり、前記タングステン金属網が熱伝導の為の通路役割をするようになることが分かる。

【0047】

図3は、タングステン粒子が均一に分散された予備焼結体を示したものであり、予備焼結体内にタングステンが粒子形態で分散されていてタングステンが熱伝導の通路になれないため熱伝導度が別に高くない。

50

【 0 0 4 8 】

図 5 は、前記予備焼結体を酸化性気体雰囲気中で熱処理して得られた液相のタングステン酸化物が結晶粒界に沿って連結され拡がった液相網を含有した予備焼結体を示したものであり、多角形結晶粒と結晶粒間に $W O_3$ が形成されたことが見られ、液相網が焼結体内部に形成されたことが分かる。

【 0 0 4 9 】

< 実験例 2 > 核燃料焼結体の熱拡散度測定

実施例 1 にしたがって製造した焼結体の熱拡散度を表 1 に例示した。比較の為に純粋 $U O_2$ 焼結体の熱拡散度を共に示した。

【 0 0 5 0 】

10

【表 1】

表 1 : タングステン網含有焼結体の熱拡散度

温度 (°C)	熱拡散度 ($\times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{sec}$)		熱拡散度 向上比率 (A/B)
	タングステン網含有 $U O_2$ 焼結体 (A)	純粋 $U O_2$ 焼結体 (B)	
22	5.271	3.617	1.46
200	4.450	2.772	1.61
400	3.282	1.945	1.69
600	2.629	1.487	1.77
800	2.239	1.238	1.81
1000	1.978	1.085	1.82
1200	1.778	0.956	1.86
1400	1.619	0.879	1.84

20

【 0 0 5 1 】

前記表 1 から分かるように、本発明のタングステン網を含有した $U O_2$ 焼結体の純粋 $U O_2$ 焼結体対比熱拡散度が 70 ~ 80 % 向上されたことが分かる。より詳細には、22 ~ 1,200 の温度で熱拡散度向上比率 (A/B) が、1.46 ~ 1.86 で、温度が高いほど熱拡散度向上比率が高く、最大 1,200 で最大熱拡散度向上比率を示した。

30

【図面の簡単な説明】

【 0 0 5 2 】

【図 1】従来技術で提供するウラン酸化物焼結体の内部を示した光学顕微鏡写真である。

【図 2】本発明のタングステン金属網を含有したウラン酸化物焼結体を示した光学顕微鏡写真である。

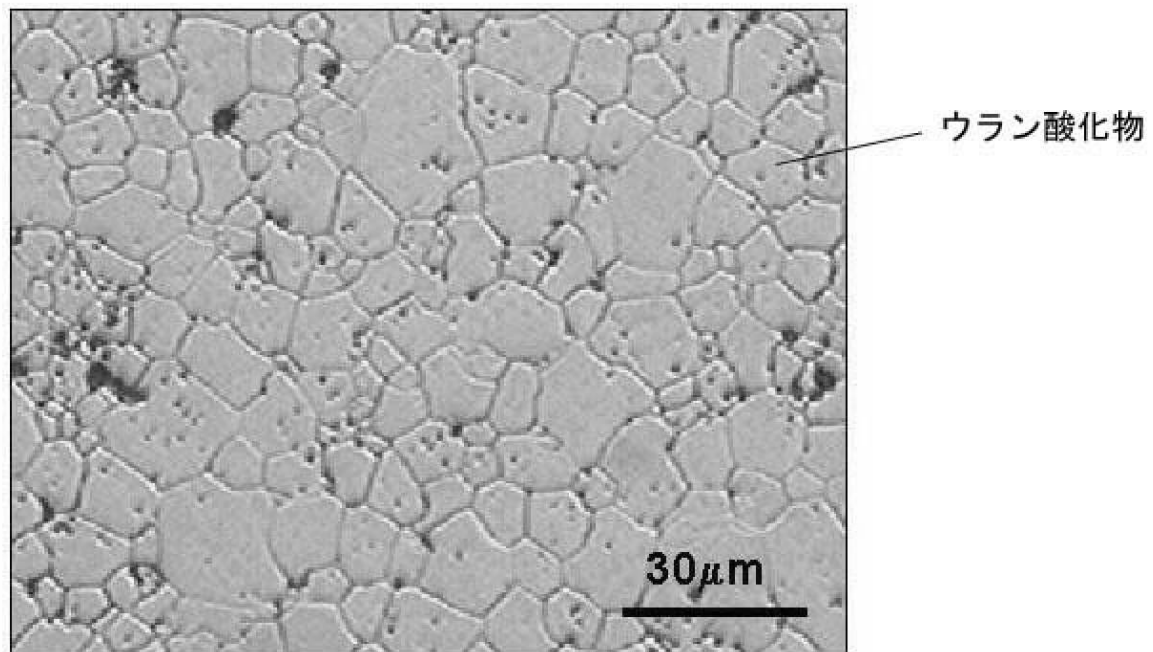
【図 3】本発明のタングステン粒子が均一に分散された予備焼結体を示した光学顕微鏡写真である。

【図 4】本発明で使用する酸化性気体の酸素分圧を示したグラフである。

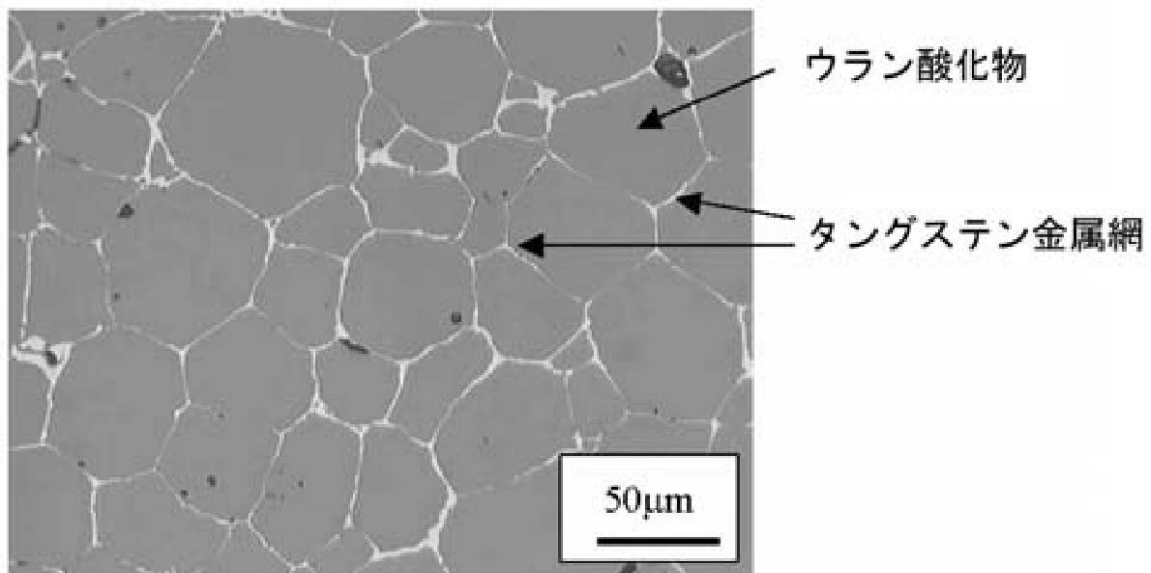
【図 5】本発明で予備焼結体を酸化性気体雰囲気中で熱処理して得られた、液相のタングステン酸化物が結晶粒界にしたがって連結され拡げられた液相網を含有した予備焼結体を示した光学顕微鏡写真である。

40

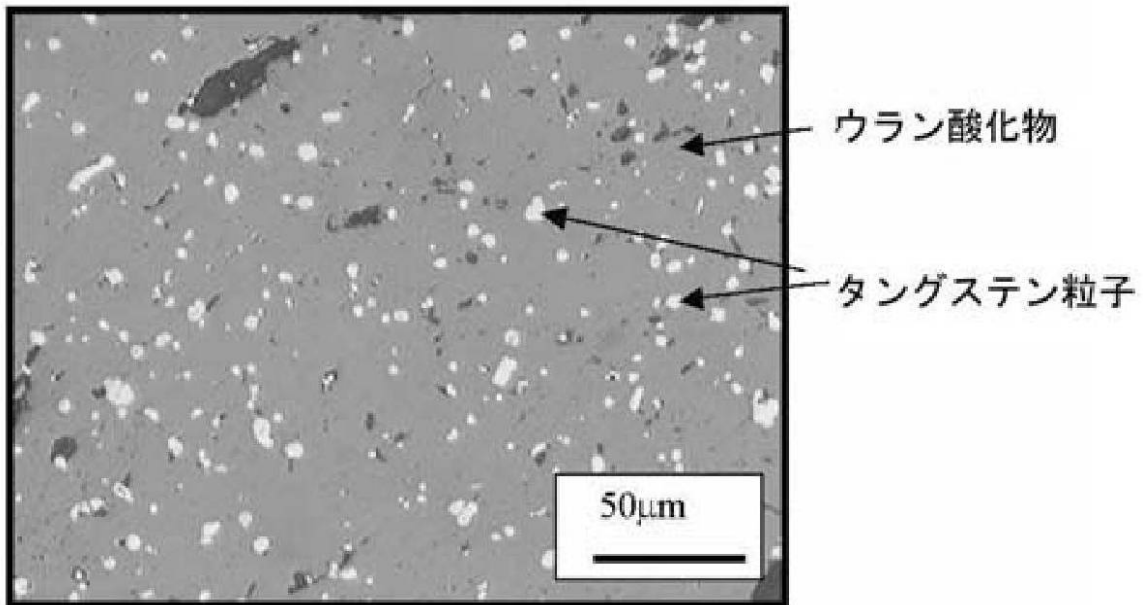
【図 1】



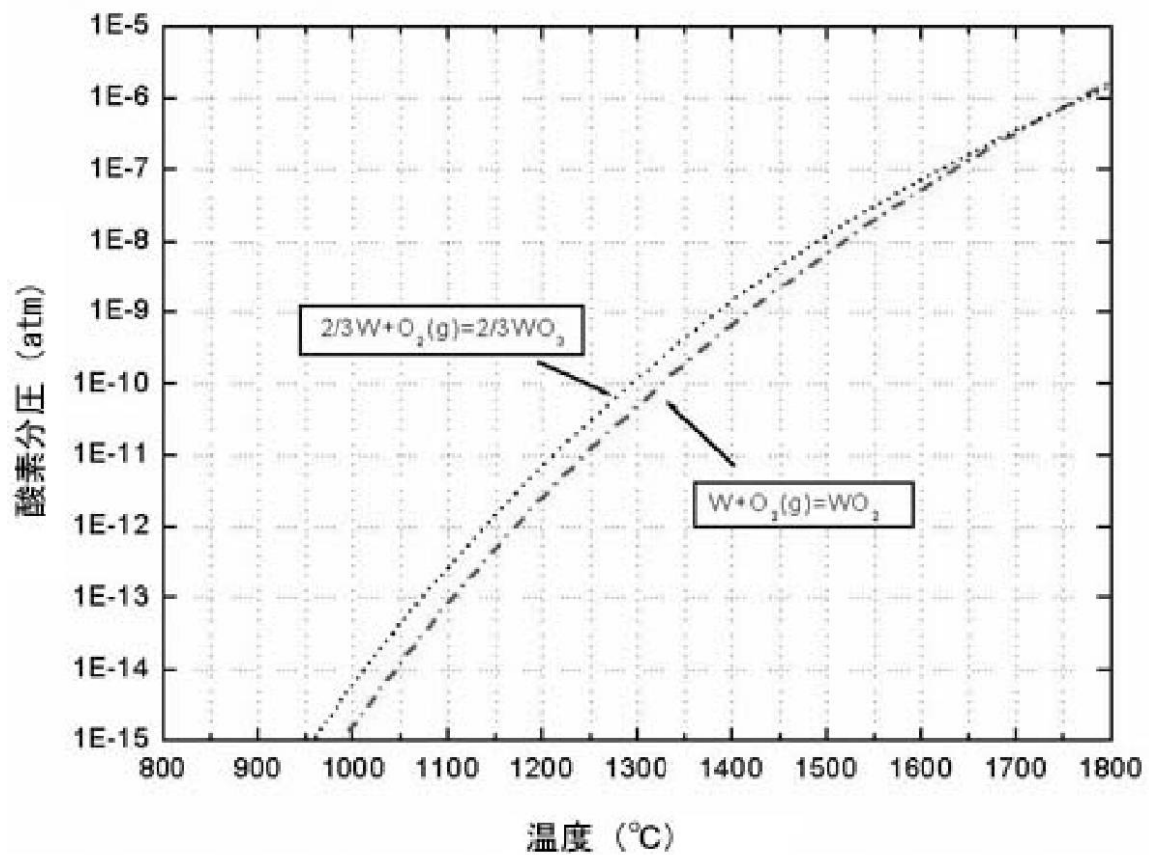
【図 2】



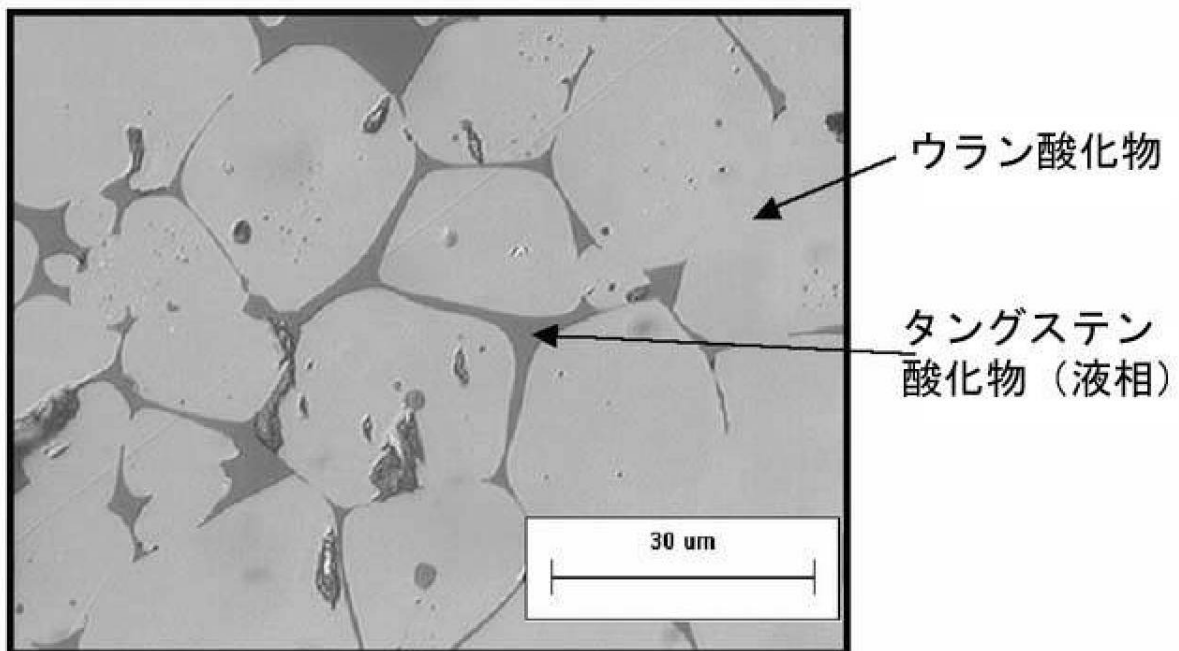
【 図 3 】



【 図 4 】



【 図 5 】



フロントページの続き

- (72)発明者 クン ウー ソン
大韓民国 305-353 テジョン-シ ユソン-ク ダクジン-ドン 150 コリア アトミック エナジー リサーチ インスティテュート
- (72)発明者 ジェ ホ ヤン
大韓民国 305-353 テジョン-シ ユソン-ク ダクジン-ドン 150 コリア アトミック エナジー リサーチ インスティテュート
- (72)発明者 キオン シク キム
大韓民国 305-353 テジョン-シ ユソン-ク ダクジン-ドン 150 コリア アトミック エナジー リサーチ インスティテュート
- (72)発明者 キ ウォン カン
大韓民国 305-353 テジョン-シ ユソン-ク ダクジン-ドン 150 コリア アトミック エナジー リサーチ インスティテュート
- (72)発明者 ジョン フン キム
大韓民国 305-353 テジョン-シ ユソン-ク ダクジン-ドン 150 コリア アトミック エナジー リサーチ インスティテュート
- (72)発明者 ヨウン ホ ジュン
大韓民国 305-353 テジョン-シ ユソン-ク ダクジン-ドン 150 コリア アトミック エナジー リサーチ インスティテュート

審査官 村田 尚英

- (56)参考文献 特開平04-001594(JP,A)
特開平10-282280(JP,A)
特開平06-094876(JP,A)
特開平05-196770(JP,A)
特開平01-304391(JP,A)
特開昭64-053192(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
G21C 3/62