

令和 6 年 5 月 12 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04938

研究課題名（和文）超高温パルス加熱法による高温融体物性挙動解明の試み

研究課題名（英文）An investigation of physical properties of melts at high temperatures by ultra-high-temperature pulse heating method

研究代表者

有田 裕二（ARITA, YUJI）

福井大学・附属国際原子力工学研究所・教授

研究者番号：50262879

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：パルス加熱法を用いて、2000 を超える高温での酸化物融体の熱物性を測定する手法の開発を行った。安定化ジルコニアを用いた試験では試料溶融温度以下の高温域での熱容量測定は値が大きい方にぶれる傾向ではあるけれども安定的にできることがわかった。しかしながら試料溶融による試料位置の変化の影響のため、融点以上での測定はばらつきが大きく課題が残った。装置の改造によって試料位置の変化の影響を受けにくい場所での測定ができれば安定的な測定につながる見通しを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

直接測定が難しい2000 以上の高温での熱容量測定ができれば高温状態に置かれる材料の挙動評価に活用できる。特に、原子力分野では酸化物燃料の事故時の挙動解析に応用することで福島第一原子力発電所の事故時の様子を推定する際の重要なデータとなると共に、今後開発される新型燃料の安定性評価に活用することで安全性向上につながる。

研究成果の概要（英文）：It is developed a method for measuring the thermophysical properties of oxide melts at temperatures above 2000 °C using a pulse heating method. Using stabilized zirconia, heat capacity measurements at high temperatures below the sample melting temperature were found to be stable, although the values tended to be skewed toward higher values. However, due to the influence of changes in sample position caused by sample melting, measurements above the melting point showed a large scatter. We have obtained a prospect for stable measurement if we can modify the apparatus to enable measurement at a location less affected by changes in sample position.

Translated with DeepL.com (free version)

研究分野：原子力材料、高温物性

キーワード：高温物性 熱容量

1. 研究開始当初の背景

高温の酸化物融体を含む系内の熱・電気・物質移動を理解する重要性は多くの学術・工学分野で指摘されている。特に、福島第一原子力発電所(1F)での炉心熔融事故の現象を理解し、今後の原子炉システム安全の研究を進展させるためには、燃料である酸化物セラミックス等(UO₂等)の熔融状態における比熱の温度依存性を正確に測定する必要がある。しかし、密度を除いて、熔融UO₂の代表的な熱物性の推奨値の不確かさは非常に大きい。さらに、様々な混合物を含んだ熔融燃料の物性はないに等しい状況である。原子炉心の熔融状態をシミュレーション計算によって評価する場合このような大きな不確かさや情報欠損は計算結果に多大な誤差を与えるものであり、1Fの事故進展解明や今後のシビアアクシデント評価およびその対策検討においても、熱物性データの正確な値を知ることは重要である。他方で、高温融体の熱物性は、CO₂を発生させない熔融酸化物電気分解(MOE)による環境に優しい製鉄プロセスの開発、火山内部のマグマ溜まりの形状/運動の観測結果を数値解析する場合などでも必要性が増しており、他分野への波及効果も大きい。2000°C以上の超高温酸化物融体の比熱測定手法の開発は意義のあるものである。

2. 研究の目的

超高温酸化物融体の比熱の温度依存性を接触式測定法で正確かつ効率的に測定する方法を開発し、熔融状態の酸化ウランや酸化鉄等の重要な物質について測定を行うことのできる手法を開発する。また、一度熔融して固化するプロセスを経た試料は燃料デブリと同様な状況とも見なすことができ、比熱測定後のサンプルを調べることで1Fの現状を知る手がかりを得ることも可能であり、凝固速度と生成デブリの相関を調べることへの展開も可能とする。

3. 研究の方法

試料を目標温度の定常状態に到達させた後に熱物性測定を実施する操作を連続かつ短時間で繰り返すことで融体試料と容器の反応による汚染を大幅に低減しつつ測定できるようにした。

まず酸化物試料を挿入した金属管を通電加熱し、融点以上の温度に試料を短時間保持する。図1に測定システムと得られる信号値の概念図を示す。実験では、金属管を高速温度制御しながら通電加熱し、複数の温度定常状態を保持する全過程を数秒で完了させ、熔融試料と容器の接触時間を低減する。

図1(b)の上段グラフが示す金属管に発生するジュール熱(P)の値は融体試料のエンタルピーの時間微分(dH/dt)と試料周囲へ金属管外壁からの輻射等を介して散逸した熱損失(W)の和と等しい。そして、温度一定時ではdH/dtは0と見なせるため、その温度でのWはPの値として測定できる。したがって、初期温度T₀からある定常温度T_nに到達する時間までのPの積分値からWの積分値を差し引くことで、試料のT₀からT_nまでの温度変化に応じたエンタルピー変化ΔH(T_n)を導出できる。こうして導出したエンタルピー変化の温度関数を微分することで比熱が算出できる。

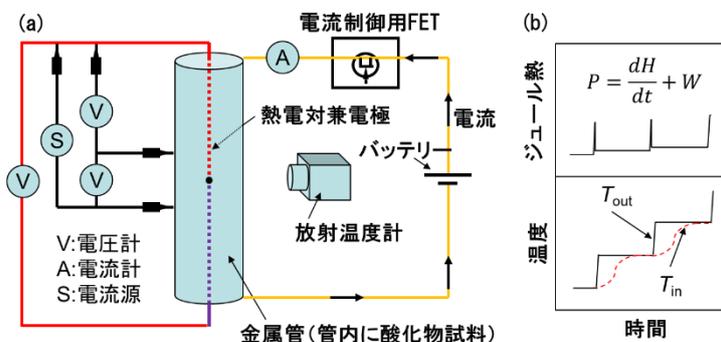


図1 (a) 開発する測定システムと(b)得られる信号値の概念図

今回は、先行研究により開発した比熱測定用パルス通電加熱システムに改良を加え、多段階パルス通電加熱機能を付与し、酸化物試料への展開を図った。イットリア安定化ジルコニア(YSZ)を用いて熔融状態における比熱の測定を行うとともに凝固試料の状態観察も行い、熱物性データ及び燃料デブリ状態把握への重要知見を得た。

4. 研究成果

①多段階パルス通電加熱

一度に多点の測定を行うと共に昇温幅を抑制することで試料内部の温度勾配を低減しより正確な測定ができるようにするため多段階で少しずつ昇温できるように制御プログラムを改訂した。LabViewで構成された制御プログラムを書き直し、2秒保持-昇温-2秒保持のパターンで数ステップの昇温ができるようにした。装置のバッテリー容量の関係で加熱できる時間は10秒以内であるので4点で測定が可能である。測定前には試料内の温度勾配を低減するため、10秒程度1900 Kで余熱しておきその後2600 K-20700 K-2800 K-2900 Kに加熱をしている。放射温

度計によって温度制御しているが各温度の保持についてはうまく制御できた。

②比熱の測定

投入した熱量(エネルギー)と昇温幅(100 K)および熱散逸量(W)から比熱を算出した。2022年度と2023年度の結果を文献値と併せて図2に示す。

評価結果にはかなりばらつきがあると共に高温になると値が大きい方のずれていくことがわかる。図3に初年度に行った加熱測定後のサンプル断面を観察した物を示す。当初タングステンパイプ内に充填されていたYSZは熔融時に上下方向に流れていき測定対象である管中央部(写真スケール4~8 cmの位置)にはほとんど残っていないことがわかる。これは、充填したYSZの理論密度比が90%であることとYSZ棒の外形がタングステンパイプ内径よりも0.025 mm細いために、熔融したYSZ融体が上下の隙間に流れ込むと共に密度増大によって空隙が発生したためであると考えられる。2022年度にはタングステンパイプ上下にバネを配置することで空隙を狭くすることを試したが中央部の空隙は若干小さくはなった物の測定値のばらつきは大きいままであった。2023年度は上下にタングステン棒を挿入してYSZ試料は中央部だけになるようにして隙間への散逸を防ぐ対策を試した。その結果、何も対策をしないときよりも空隙の大きさは抑制できた(図4)が比熱の測定結果のばらつきは残った。ただし、2022年度の結果よりはばらつきが抑えられている。しかしながら文献値との差が3倍程度あり今後の改良が必要である。

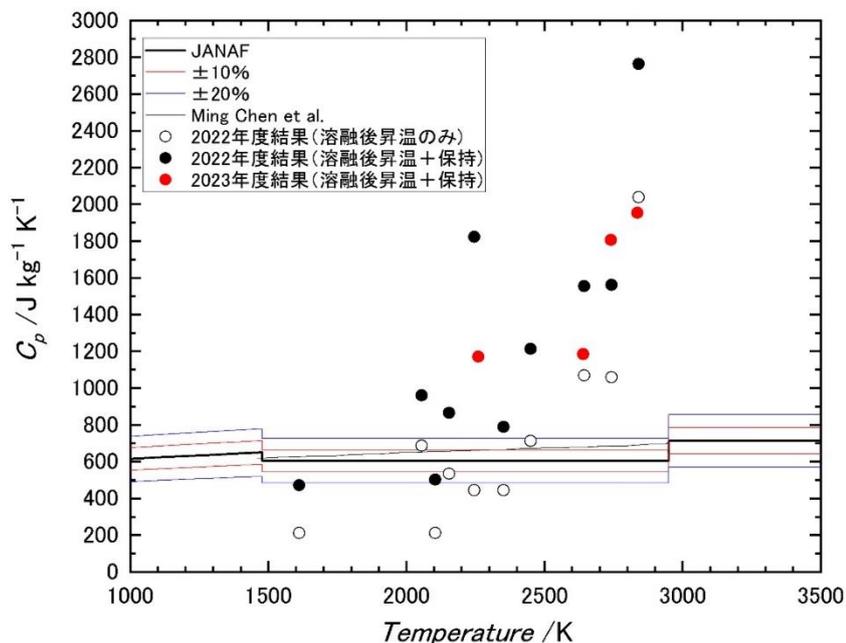


図2 比熱評価結果

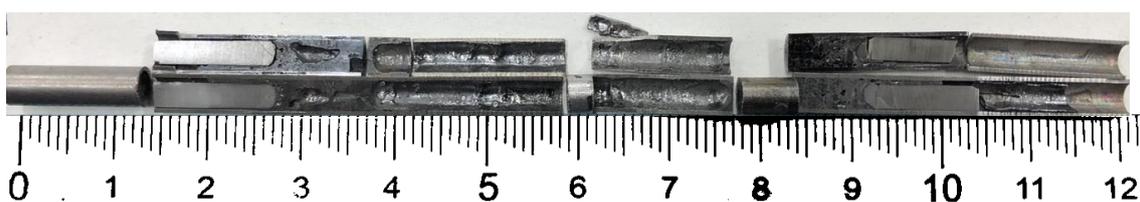


図3 加熱測定後サンプルの断面

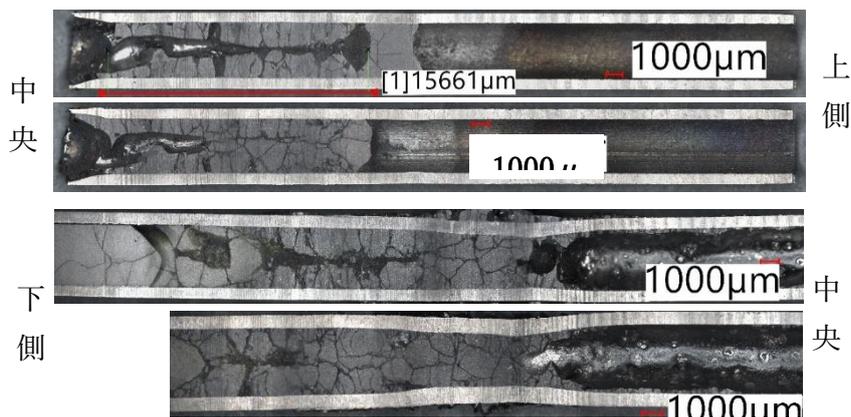


図4 加熱熔融後試料断面(対策後、上2つが上半分、下2つが下半分)

対応策としては空隙のない部分をターゲットとして温度測定と電力測定を行うことでより本来の値に近い測定ができる物と考えられる。何回かの測定後断面観察ではタングステンパイプ中央より 2cm 程度下部に試料が密なところがあるのでそこをターゲットとする事が良いと考える。装置内の電極の配置や測温窓の位置変更、過熱によるタングステンパイプの熔融防止策等今後の装置改良を検討する必要がある。

③ 熔融後サンプルの性状観察

2900 K 以上に加熱熔融した試料は電流断によって速やかに冷却される（急冷状態）。また、途中 2300 K で 10 min、1900 K で 10 min 保持して冷却した（徐冷状態）場合によって凝固サンプルの性状を調べた。徐冷や急冷状態を様々実施することで福島第一原子力発電所の燃料デブリの性状に関する知見が得られると期待される。

図 5、6 に急冷試料の断面を図 10 に徐冷試料の断面を示す。急冷の方は凝固時のひげ巣が見られると共に急激な冷却によって凝固組織内に我等が見られる。一方で徐冷試料では緻密な状態で凝固していることがわかる。

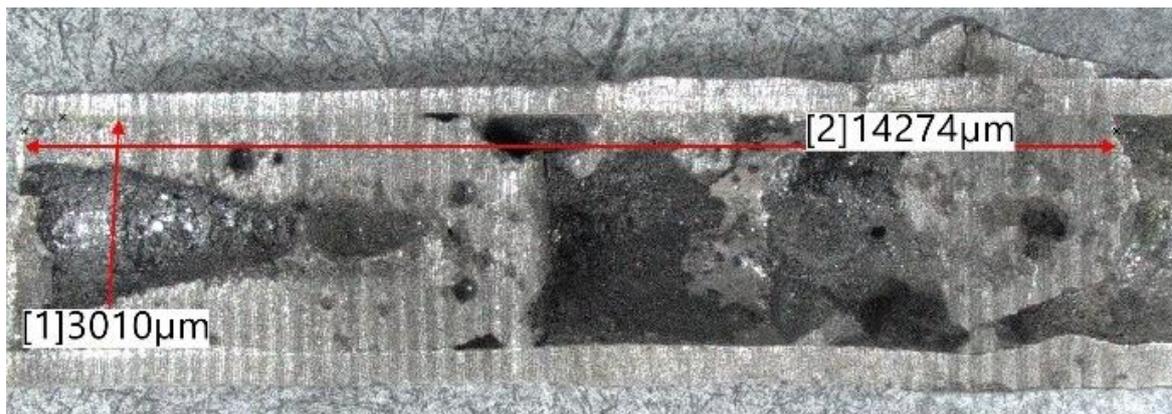


図 5 急冷試料断面の様子

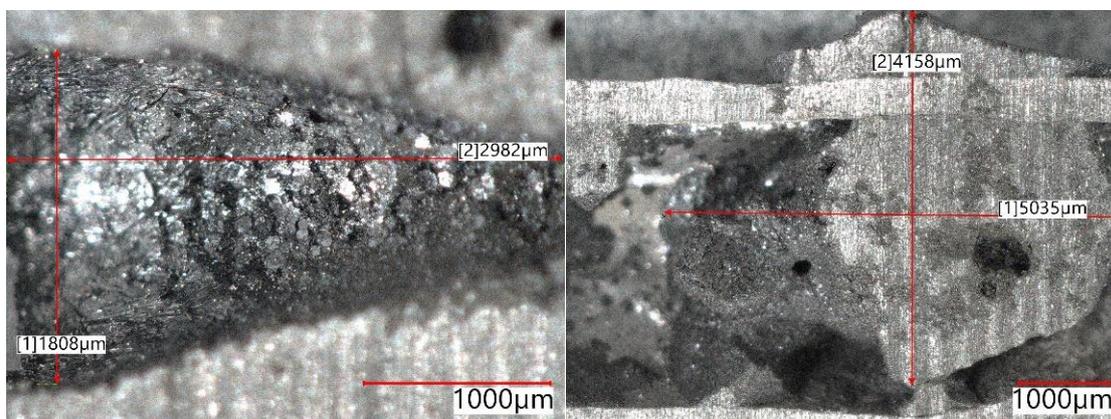


図 6 急冷試料断面拡大（左：巣の部分、右：凝固物部分）

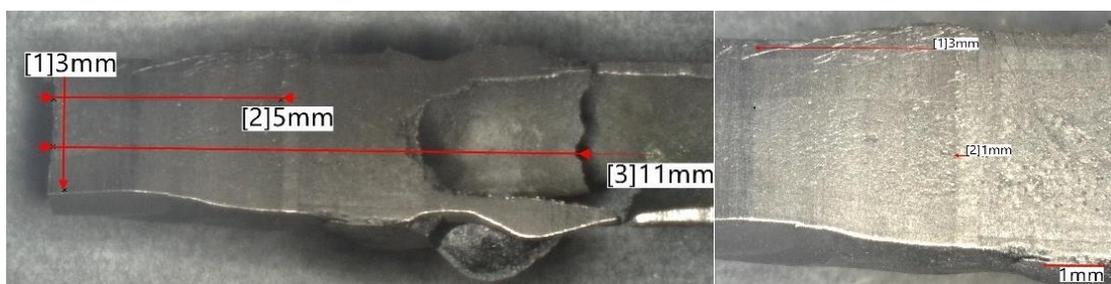


図 7 徐冷試料断面（左：凝固部分、右：拡大）

図 11 にはそれぞれの組織の X 線回折パターンを示す。急冷(quenched)、徐冷(annealed)でパターンが異なっておりそれぞれの凝固時の温度履歴を示す結果が得られた。このこと

から本装置を用いて燃料デブリ生成の再現試験が可能であると考えられる。

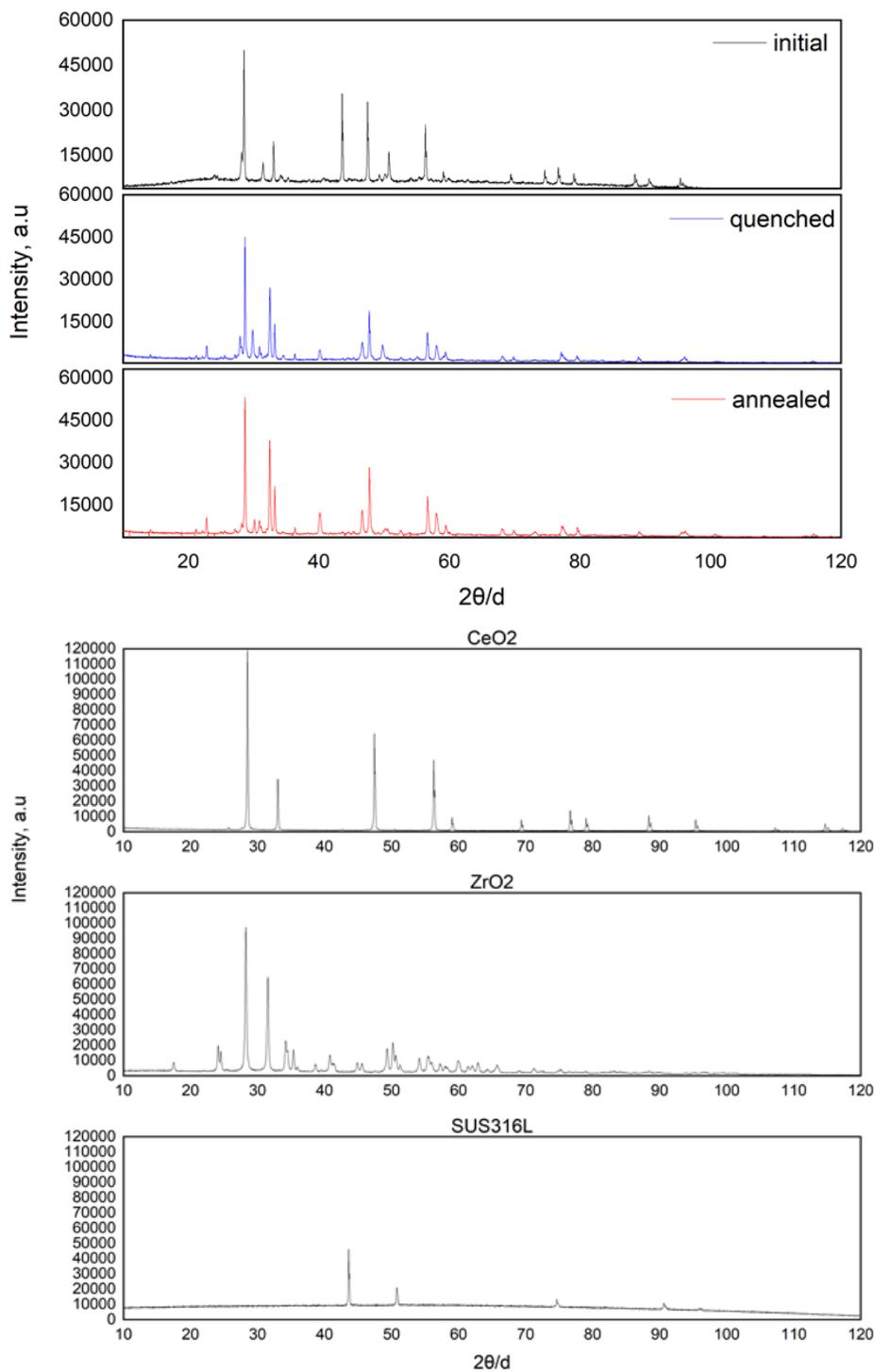


図 11 X 線回折パターン (上 3 個 : 試料、下 3 個 : 原料粉末)

④まとめ

以上の結果から、本手法を用いた高温比熱の測定は可能性はある物の、さらなる改良が必要であることが示された、そのポイントについては本研究にて示すことができた。また、燃料デブリ研究への展開は十分可能であることがわかったので今後積極的に研究を展開していく予定である。

以上

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	新納 圭亮 (Niino Keisuke)	福井大学・工学研究科・D3 (13401)	
研究協力者	田中 柊大 (Tanaka Shuto)	福井大学・工学研究科・M1 (13401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
カザフスタン	National Nuclear Center		