

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 20 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656571

研究課題名(和文)融解状態における核燃料の放射率測定装置の開発

研究課題名(英文)Development of emissivity measurement system of liquid fuel oxides

研究代表者

有馬 立身(arima, tatsumi)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60264090

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文)：レーザー加熱を用いた無容器法による融点装置を作製し、数十ms以内での高融点酸化物の熱停留点の計測を可能とするとともに、積分球を用いた融点・放射率同時測定の基本システムを開発した。また、試料を一定の高温状態に置くことで、熱停留時間が拡大すること、熱衝撃による試料の破損が防止できること、黒体塗料を用いることにより、加熱レーザーの波長に対して透過率の高い試料の融点測定も可能であることを確認した。

研究成果の概要(英文)： The containerless method with laser heating allowed high-melting-point oxides, e.g. zirconia and ceria, to be measured the melting point within a few 10 ms, and the basic measurement system, which consisted of YAG laser, monochromatic pyrometer, integrating sphere, probe laser and reflected light detector, was developed to simultaneously measure the melting point and the emissivity.

In addition, we confirmed that the sample additionally heated at high temperature (~1000 K) during measurement had the long thermal arrest period and did not break despite the thermal shock. Furthermore, even though the samples, e.g. ceria and alumina, had high transmittance for the wave length of 1064 nm, surface coating with black paint including SiC allowed them to be measured the melting point by YAG laser heating.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：放射率 核燃料 融点 積分球

1. 研究開始当初の背景

高速炉燃料サイクルにおいて、高速炉を安全に維持するには、混合酸化物燃料 (MOX) の高温における物理化学的性質を十分に把握する必要がある。一方、東日本大震災にともなう過酷事故により軽水炉燃料は溶融し、周辺地域に甚大な被害を与えた。軽水炉燃料の更なる安全性向上のためにも、このような過酷事故の詳細な事象進展解析は急務の課題となっている。

いずれの課題に対しても MOX の融点は重要な熱物性である。図 1 に 2008 年に加藤等によって報告された MOX の融点 [1] および 2011 年に Bruycker 等 [2] により報告されたものを示す。PuO<sub>2</sub> の添加量が少ないものは、どの測定値もおおよそ同じ値を示すのに対し、PuO<sub>2</sub> の添加量が多いもの、あるいは PuO<sub>2</sub> そのものの融点の測定値は大きくばらついている。PuO<sub>2</sub> の測定値には 300 K 程の差があり、年々 UO<sub>2</sub> の融点に近づく傾向がある。このような PuO<sub>2</sub> の融点の違いを生む原因として、溶融した PuO<sub>2</sub> と試料容器 (タングステン製) の反応が考えられている。

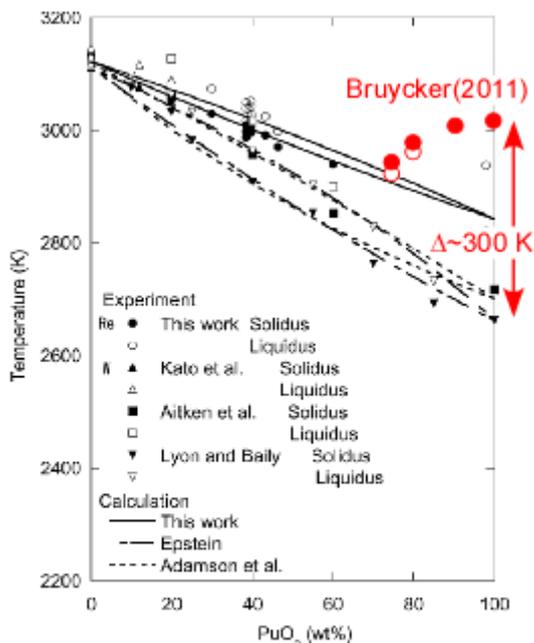


図1 UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>状態図\*  
\*Kato(2008)からの抜粋

そこで、従来の融点測定における最大の問題点である“超高温での PuO<sub>2</sub> と金属製試料封入容器の反応”を克服すべく、試料封入の必要がなく、溶融状態の可視化・超短時間測定が可能なレーザー加熱を用いた融点の測定手法の開発に着手し、これまでに装置の基本システム (レーザー、高速放射温度計、高速度カメラ等) を整備した。しかしながら、以下のシュテファン-ボルツマンの法則からもわかるように、

$$S = \varepsilon \sigma T^4$$

S は輝度、 $\sigma$  は定数、T は温度

放射率  $\varepsilon$  の仮定なしには、特に単色温度計を用いた融点の正確な測定は不可能である。そこで本研究では積分球を用いた放射率測定の開発を提案する。

[1] 加藤, 森本, 中道, 他, 日本原子力学会和文論文誌, 7 (2008) 420.

[2] F.De Bruycker, K. Boboridis, P. Poml et al., J. Nucl. Mater. 416 (2011) 166.

2. 研究の目的

核燃料融点測定において、超高温での放射温度と放射率を同時に測定した例はなく、これが実現すれば飛躍的に測定精度が高くなると期待できる。また、試料の温度応答を逆解析することにより、溶融状態での熱伝導率の推定も可能になる。核燃料の液相の熱物性値は、特に過酷事故の解析では重要であるにも関わらず、その報告例は極めて少なく、信頼性も低い。本測定システムは、このような超高温での液相状態での物性評価に新たな道を開く可能性がある。

そこで本研究では、核燃料の融点を高精度で決定するために、放射率を短時間で測定することを可能とする装置開発を目的とする。ここでいう核燃料とは、マイナーアクチニドや Pu を含んだ MOX 燃料、高燃焼度燃料、および破損燃料 (UO<sub>2</sub> と ZrO<sub>2</sub> などの混合酸化物) を対象とする。

3. 研究の方法

融点・放射率同時測定:

超高温域の放射温度計を用いた温度計測では依然として測定精度に問題がある。その主な原因は、放射率の不確かさである。1000 以下ならば、温度標準モ (銅の融点 1084.62 ) 存在し、更に、応答速度が遅い測定では、熱電対を直接接触させることによる計測が可能になることから、放射率の補正も可能となる。一方、高温・高速が要求される測定では、そのいずれも使用することができない。更に、融点近傍の温度では液相状態の測定という点も不確かさを増す要因となる。

高温での放射率測定には、エリプソメータによる可視光の偏光性を利用した測定法があるが、装置自体が比較的大きく、また極めて高価である [3]、また多チャンネル分光法は応答速度が遅く、精度向上のためには標準試料の測定を数多く行わなければならないなど [4]、本システムにはいずれの方法も向かない。ホットセル内での測定を想定すると、簡便な測定、小サイズの装置、低ランニングコストのものが望まれる。そこで本研究では、積分球を用いた放射率測定法を提案する。これは、放射率が既知な標準試料を予め室温で測定することで、現行の測定システムを大きく変更せずに実現することが可能である。

測定の簡素化および測定時間の短縮化:

提案する測定法は、試料を直接レーザーで加熱・融解するため、小システムの装置であり、試料封入容器も必要なく、少量の試料で且つ測定にともなう汚染廃物の発生量が少なくなるなど、従来の方法の問題点であったそれらの影響を排除できる点で画期的である。また、従来は不可能であった溶融状態の可視化が可能である（図2）。

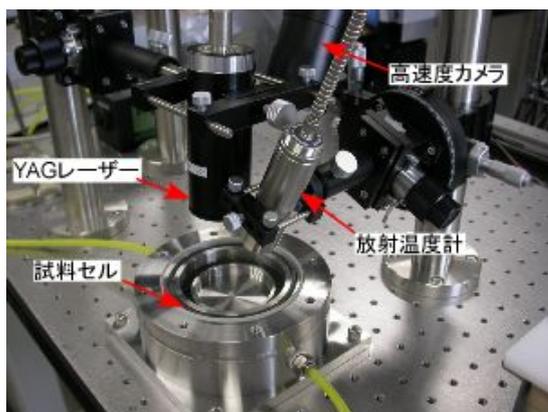


図2 レーザー加熱融点測定装置

レーザーによる急速加熱（～3000/10ms）により、極めて短時間（数10ms以内）の測定が可能になる。これは測定時間の大幅な短縮であり、実現できれば、放射線作業特有の測定者への負担（ホットラボ内作業）が軽減されるばかりか、一回あたりの測定時間短くなるため、測定の効率化（系統的なデータ収集も可能）に大いに寄与できる。

[3] Y. Yamada, T. Aoyama, H. Chino, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 49 (2010) 04DA20.

[4] D. Manara, M. Sheindlin, W. Heinz, et al., Rev. Sci. Instrum. 79 (2008) 113901.

#### 4. 研究成果

試料として黒ジルコニアを用い、8 J/pulse程度のレーザーを照射し（パルス幅10ms）、単色および二色温度計を使って試料の温度変化を測定したものを図3に示す。更に、セラミックヒータを使って、試料の裏面を1000K程度にまで加熱した状態で測定を行った結果も同図に示す。放射率補正のない場合、二色温度計の測定温度を正しいとするなら、単色温度計はそれより約150K低いことが分かる（表1参照）。一方、セラミックヒータによる補助加熱は、熱停留点の大きさには影響せず、熱停留の状態をより長く保つことに寄与することが分かった。これは、熱停留点の決定精度、および放射率測定のしやすさを向上させるものと思われる。

試料として(Ce,Nb)O<sub>2</sub>を使った場合、以前までは、レーザー加熱の熱衝撃により試料に割れが生じるなど、温度測定できない場合があった。試料裏面の補助加熱は、急激な温度変化を緩和することにも寄与するため、試料が破損することなく温度測定が可能となっ

た（図4）。

表1 各試料の融点の測定値と文献値

融点 [K]	単色温度計 (ε補正值)	二色温 度計	文献 値
黒色ジル コニア	2706 (2805)	2865	2990
(Ce,Nb)O <sub>2</sub>	2425 (2547)	2559	2670
CeO <sub>2</sub>	2464	2684	2670
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2120	2318	2320

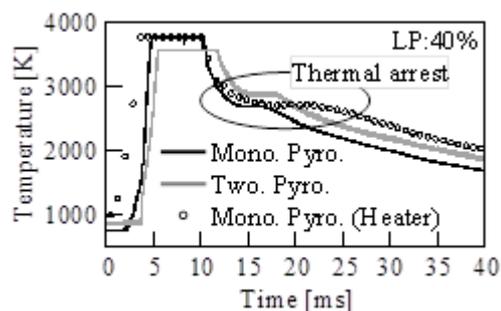


図3 黒ジルコニアの加熱・冷却曲線

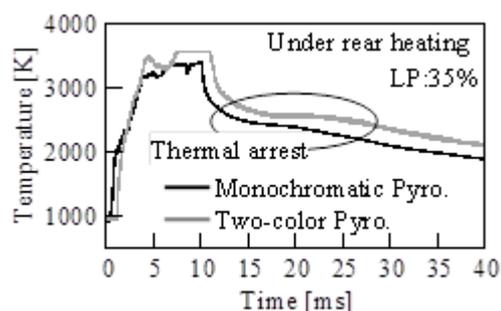


図4 (Ce,Nb)O<sub>2</sub>の加熱・冷却曲線

アルミナ（Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>）の融点は多数測定されており、測定の信頼性も高い。したがって、装置の精度を評価するには適していると思われる。しかしながら、YAGの基本波（1064nm）に対する透過率が高いため、本システムではこれまで測定できなかった。調査の結果、鉄鋼溶接の際に、加熱効率の向上、ドロスの付着防止に使用する補助剤が存在することが判明した。ここでは、SiCを主成分とする黒体塗料（放射率：0.85）をAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>表面に塗布し、融点の測定を試みた（図5）。図から明らかなように、特に問題なく融点の測定ができることを確認した。但し、測定後溶融箇所をラマン分光法により分析したところ、一部に黒体試料の残存物と思われるSiのピークを確認した。このことは融点測定に黒体塗料の影響が全くないとは言えないものの、二色温度計と文献値が極めてよい一致を示していることから、その影響は小さいものと考えられる。

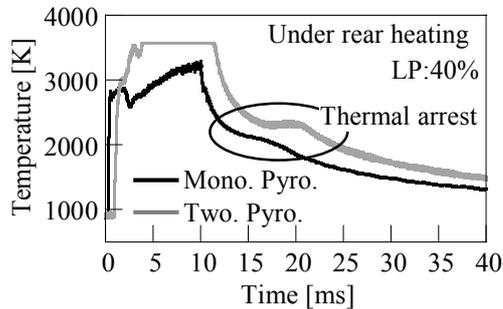


図5 黒体塗料を塗布した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の加熱・冷却曲線

放射率測定の結果として、反射光強度測定の測定結果を図6に示す。2msの間に反射光が測定できていることが分かる。図3-5を見ると、熱停留状態は5ms程度持続するので、その間に十分反射光を測定することは可能である。このパルス状信号の電圧差が反射光強度に比例することを利用して、放射率を評価した。2つの反射率の既知な標準試料(SRS-99、SRS-20)から図7のように検量線を引き、未知試料の放射率を見積もった。この放射率から、室温での放射率を求めた結果、黒色ジルコニアおよび(Ce,Nb)O<sub>2</sub>では、それぞれ0.89および0.84となった。表1の通り、単色温度計から求めた融点を室温の放射率で補正した値は、二色温度計の測定値に近づいた。

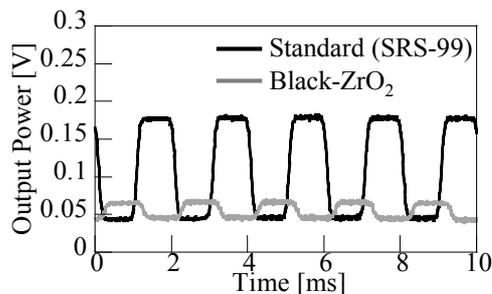
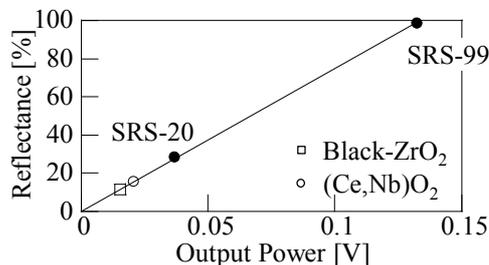


図6 反射光強度測定結果(2つの測定は別々に実施)

図7 放射率測定結果



融点と放射率の同時測定を試みたが、反射光に溶融箇所からの輻射が大きく混入し、溶融状態での放射率測定はできなかった。ただし、この問題は、反射光を検出する際に、積分球と反射光検出器の間にバンドパスフ

ルタを挿入することで解決できると考えている。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1件)

T. Arima, Y. Kawauchi, T. Matsumoto, Y. Inagakai, K. Idemitsu, I. Sato, T. Hirose, Measurement of Surface Melting Temperature with High-speed Pyrometer by Containerless Method, Proceedings of SICE Annual Conference 2012, 32-34, 査読有, [http://ieeexplore.ieee.org/xpl/freeabs\\_all.jsp?arnumber=6318401&abstractAccess=no&userType=inst](http://ieeexplore.ieee.org/xpl/freeabs_all.jsp?arnumber=6318401&abstractAccess=no&userType=inst)

〔学会発表〕(計 4件)

川内善晴、有馬立身、稲垣八穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇、渡辺博道、レーザー局所加熱を用いた無容器法による核燃料の融点装置の開発、日本原子力学会九州支部第32回発表講演会、2013年12月、福岡

川内善晴、有馬立身、稲垣八穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇、レーザー局所加熱を用いた無容器法による核燃料の融点および放射率の測定、日本原子力学「2013年秋の大会」、2013年9月、青森

有馬立身、稲垣八穂広、出光一哉、廣沢孝志、佐藤勇、レーザー加熱を利用した無容器法による核燃料の融点測定：背景および開発計画、日本原子力学会「2013年春の年会」、2013年3月、大阪

T. Arima, Y. Kawauchi, T. Matsumoto, Y. Inagakai, K. Idemitsu, I. Sato, T. Hirose, Measurement of Surface Melting Temperature with High-speed Pyrometers by Containerless Method, SICE Annual Conference 2012, 2012年8月、秋田

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：

番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

有馬 立身 (ARIMA, Tatsumi)  
九州大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：60264090

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

佐藤 勇 (SATO, Isamu)  
日本原子力研究開発機構・次世代原子力システム研究開発部門・研究副主幹  
研究者番号：80421783

廣沢 孝志 (HIROSAWA, Takashi)  
日本原子力研究開発機構・次世代原子力システム研究開発部門・主査  
研究者番号：10544885

渡辺 博道 (WATANABE, Hiromichi)  
産業技術総合研究所・計測標準研究部門・主任研究員  
研究者番号：10358385