

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15209

研究課題名（和文）高精度かつ簡便な金属系燃料デブリ中ホウ素濃度定量法の開発

研究課題名（英文）Precise boron determination in metallic fuel debris

研究代表者

墨田 岳大（Sumita, Takehiro）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター・研究職

研究者番号：50851325

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）：過酷事故を生じた原子炉の廃止措置を推進する上で、燃料棒や制御棒、構造材料などの原子炉材料が溶融固化した“燃料デブリ”に関する研究を進めることは重要である。本研究テーマでは、ステンレス鋼、炭化ホウ素(B4C)、金属ジルコニウムを主成分とする「金属系燃料デブリ」中の高濃度ホウ素に着目し、金属系燃料デブリに適用可能な汎用ホウ素濃度定量法について検討した。未だ燃料デブリの正体は明らかとなっていないが、その性状が本研究で想定していた試料と近ければ、本研究で提案した手法を適用することで、金属系燃料デブリ中のホウ素濃度を、汎用的な分析手法を用いて定量できる可能性を示唆することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は廃炉作業を進める上で重要である、“燃料デブリ”の形成メカニズム及びその性状の推定・把握に基礎科学的観点から貢献するものである。本研究で得られた知見は、燃料デブリの取出しや、その後の処置・処分方法を検討する上でも非常に重要であり、例えば、取り出し後の燃料デブリの臨界管理においては、燃料デブリ中のホウ素分布の推定が重要である。本研究の結果により、ホウ素がどのような化合物相に濃縮し易いか、その濃縮相がどのような形態か、等についても検討できるようになる。

研究成果の概要（英文）：In order to decommission the nuclear reactors damaged by severe accidents, it is important to study "fuel debris", which is melted and solidified nuclear reactor materials such as fuel rods, control rods, and structural materials. In this research theme, we focused on the high concentration of boron in "metallic fuel debris," which consists mainly of stainless steel, boron carbide (B4C), and metallic zirconium, and investigated a general-purpose boron concentration determination method that can be applied to metallic fuel debris. Although the nature of the fuel debris has not yet been revealed, the proposed method could be applied to determine the boron concentration in metallic fuel debris using a general-purpose analytical method as long as the properties of the fuel debris are similar to those of the samples assumed in this study.

研究分野：高温材料

キーワード：燃料デブリ ホウ素 即発ガンマ線分析

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所のように過酷事故を生じた原子炉の廃炉を推進する上で、燃料棒や制御棒、構造材料が溶融固化した“燃料デブリ”に関する研究を進めることは重要である。炭化ホウ素 (B₄C)を制御棒材料として使用する原子炉の場合、燃料デブリ中には高濃度のホウ素成分が含まれていると考えられている。ホウ素は燃料デブリの物理的・化学的特性に大きな影響を及ぼすため、燃料デブリ中ホウ素濃度を高信頼度で分析する手法が求められている。ところがホウ素は軽元素であるために、既存の濃度定量法では精度よく定量することが困難である。既存の過酷事故研究の多くが、ブラックボックス的に定量し、分析・測定精度を検討していないのが現状である。そこで本研究では燃料デブリ中ホウ素の新規濃度定量法の開発を行う。特にステンレス鋼を主成分とする金属系燃料デブリ中には高濃度のホウ素が存在することが示唆されており、また福島原発特有の物質であるため、知見も非常に限られている。そこで本研究では金属系燃料デブリを研究対象とした。

2. 研究の目的

本研究は、金属系燃料デブリ中ホウ素の簡便かつ高精度な定量法の開発を目的とした。具体的には、即発γ線分析を用いてホウ素濃度を決定した想定される金属系燃料デブリ要素試料を用いて、簡便で汎用的な全量分析法の一つである誘導結合プラズマ発光分析法(ICP-OES)に関して、試料の完全溶解と分析条件を検討し、その分析精度と適用可能条件を評価した。

3. 研究の方法

(1) 試料作製

想定される金属系燃料デブリ要素試料はステンレス鋼および炭化ホウ素の粉末試料を高温保持後、冷却することにより作製した(図1)。ここで試料作製時の試料条件により、相状態が変化することが予想されるため、試料作製条件(試料濃度、冷却条件)を調整した各種試料を作製した。また一部試料はその後高温にて金属ジルコニウム試料と反応させることで、ステンレス鋼、炭化ホウ素、金属ジルコニウムを含む試料を作製した。

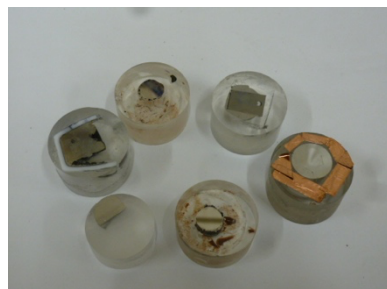


図1. 作製した試料外観例

(2) 即発ガンマ線分析

作製した各種試料中ホウ素濃度を、研究用原子炉 JRR-3 に設置されている即発γ線分析装置を用いて精緻に決定した(図2)。分析にはホウ素(¹⁰B)の中性子捕獲反応により生じる即発ガンマ線(478 keV)を用いた。入射中性子ビームサイズは20×20 mm²で中性子フラックスは試料中央部で約1.8×10⁸ n/cm²sであった。

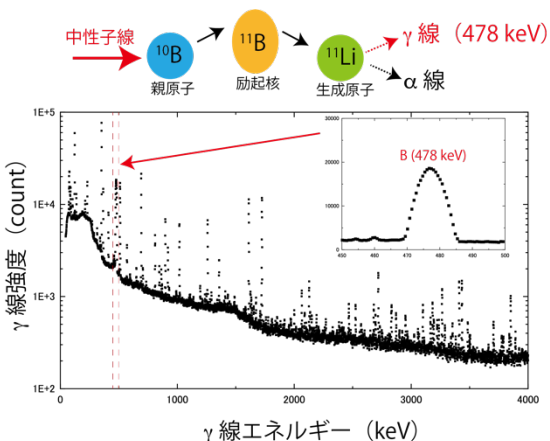


図2. 即発ガンマ線分析原理

(3) ICP-OES 分析

その後、「即発γ線分析により高精度でホウ素濃度を決定した試料」を用いてICP-OESによる濃度定量法の開発を進めた。各種酸(塩酸、硝酸、硫酸、リン酸など)を用いて、試料を完全分解可能な混酸濃度及び分解温度を実験的に検討した。試料完全分解後、ICP-OES分析条件(分析波長やマトリクスマッチング条件など)がホウ素分析に及ぼす影響を調査した。

4 研究成果

ステンレス鋼と炭化ホウ素からなる高温融体(SS-B₄C融体)が冷却して生成した凝固物は、γ-Fe相と(Cr, Fe)₂B相から構成されることがわかった(図3)。また、当該生成物は一般的な酸(塩酸、硝酸、硫酸、リン酸)のみを用いて溶液化可能なことがわかった。一方でSS-B₄C融体と金属ジルコニウムの反応では、主な構成物として(Fe, Cr)₂Zr, (Fe, Cr, Ni)₂Zr, (Ni, Fe)Zr₂, ZrB₂相が晶出すること、また、一般的な酸に不溶なホウ化物を形成することが示唆された(図4)。

汎用的な分析手法としてICP-OESを例に、そのホウ素分析精度を即発ガンマ線分析を用いて評価したところ、酸に可溶性試料であれば、非常に高い精度(具体的には試料のばらつきに起因する不確かさの範囲内)でホウ素濃度を定量可能なことがわかった。一方でアルカリ融解などの

手法が必要な場合、その分析精度が悪くなる（試料のばらつきに起因する不確かさの範囲外）ということが実験的に明らかとなった。

未だ燃料デブリの正体は明らかとなっていないが、その性状が本研究で想定していた試料と近ければ、本研究で提案した手法を適用することで、金属系燃料デブリ中のホウ素濃度を、汎用的な分析手法を用いて定量できる可能性を示唆することができた。

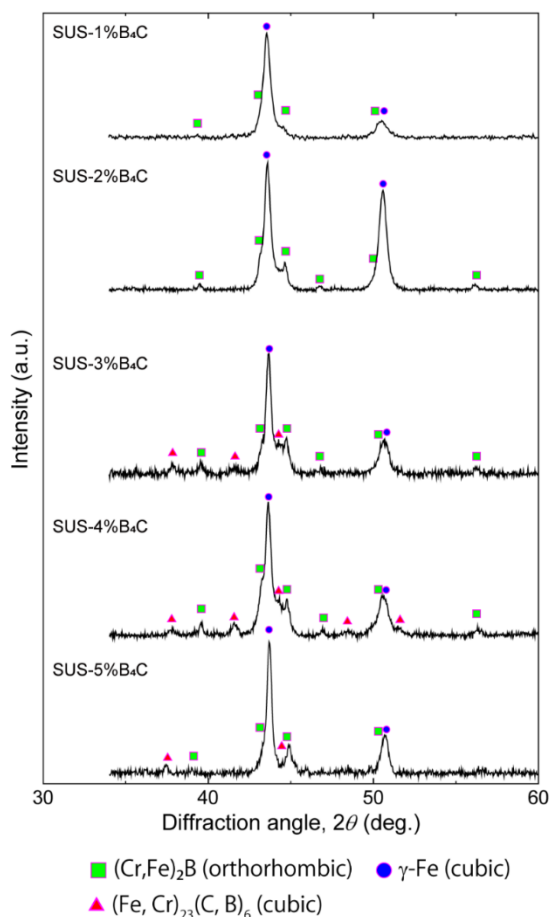


図 3. ステンレス鋼と炭化ホウ素からなる試料の粉末 X 線回折パターン

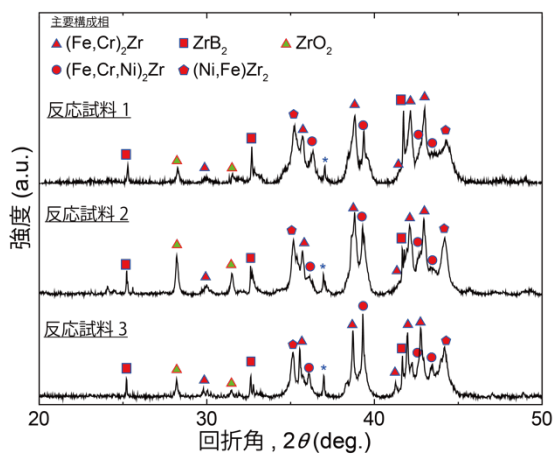


図 3. ステンレス鋼、炭化ホウ素、および、金属ジルコニウムからなる試料の粉末 X 線回折パターン

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Sumita Takehiro, Kobata Masaaki, Takano Masahide, Ikeda-Ohno Atsushi	4. 巻 20
2. 論文標題 High temperature reaction of multiple eutectic-component system: The case of solid metallic Zr and molten stainless steel-B4C	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.mtla.2021.101197	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Sumita Takehiro, Sudo Ayako, Takano Masahide, Ikeda-Ohno Atsushi	4. 巻 2
2. 論文標題 Direct in-situ temperature measurement for lamp-based heating device	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 50～54
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/27660400.2022.2035097	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Sumita Takehiro, Kitagaki Toru, Takano Masahide, Ikeda-Ohno Atsushi	4. 巻 543
2. 論文標題 Solidification and re-melting mechanisms of SUS-B4C eutectic mixture	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jnucmat.2020.152527	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 墨田岳大, 大澤崇人, 池田篤史
2. 発表標題 即発 線分析を利用したホウ素濃度の精密決定
3. 学会等名 第14回 日本ホウ素・ホウ化物研究会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

【プレスリリース】材料が溶ける不思議 “多成分系での共晶熔融現象” を解明
<https://www.jaea.go.jp/02/press2021/p21110201/>

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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------