

ガス浮遊法を用いた溶融酸化物の物性測定



技術解説

大石 佑治*

Graduate School of Engineering, Osaka University

Key Words : Molten oxides, Physical property, Molten core material, Aerodynamic levitation

はじめに

福島第一原子力発電所(1F)では炉心損傷が発生し、核燃料や被覆管、炉内構造物を含む炉心物質が溶融流出して圧力容器下部の損傷やコンクリートとの反応、シェルアタックによる格納容器の破損等が生じた可能性がある。また、溶融流出した炉心物質は凝固し、燃料デブリが生成したと考えられる。炉心物質の溶融流出は放射能放出に直接影響する現象であるため、炉心溶融物質の流下移動や溶融分散時の挙動の解明は極めて重要な課題であると言える。

炉心溶融物の流下移動や溶融分散時の挙動の解析は Moving Particle Semi-implicit (MPS) 法のような機構論的モデルを用いた計算で可能であるが、精度良く溶融物の流下移動や溶融分散過程を予測するためには精度の良い溶融物の物性データが必要となる。特に、溶融物の物性変化(密度、動粘性係数、熱伝導率、比熱、潜熱)がその挙動へ強い影響を与えるため、物性データの不確かさは計算における不確かさに直結する。そのため、炉心溶融物質の正確な物性の把握が炉心溶融物の流下移動や溶融分散時の挙動のための鍵となっている。

液体の物性(密度や粘性等)を精密に測定するためには、その液体を保持する必要がある。液体が水のような物質であれば適当な容器を使えば事足りるが、融点が極めて高い物質や反応性の高い物質であ

る場合は、容器と測定対象の液体とが反応してしまう恐れがあるため、物性の測定が極めて困難になる。炉心溶融物は、核燃料由来の UO_2 や ZrO_2 、金属 Zr に加えて、炉心構成材の Fe 、制御棒由来の B_4C 、コンクリートの成分である SiO_2 や Al_2O_3 、 CaO 等から構成されていると考えられている。 UO_2 や ZrO_2 は高融点物質であり、また金属 Zr や Fe は反応性が高いという特徴があり、これらの液体の物性を容器を用いた方法で測定するのは非常に困難である。

そこで筆者らは浮遊法に着目し、試料を浮遊させることで無容器かつ非接触的手法によって炉心溶融物の物性を測定することに取り組んでいる。浮遊法には様々な手法が存在するが、高温液体の浮遊に適したものとしてガス浮遊法、電磁浮遊法、静電浮遊法が挙げられる。静電浮遊法は静電場を利用した浮遊方式であり、一般的に真空雰囲気中で浮遊させる。密度の測定や、液滴振動を励起することで粘性や表面張力の測定が可能である。真空雰囲気であるため金属の測定に適しているが、酸化物は還元してしまうために浮遊が困難である。また、蒸気圧の高い化合物にも適さない。ガス浮遊法はコニカルノズルから噴出させたガスで試料を浮遊させるという簡単な方法であり、雰囲気を制御できるために酸化物へも適用できるが、試料の浮遊にガスフローを用いるために酸化しやすい物質には適さない。密度以外の物性測定が難しかったが、ドイツの DLR (German Aerospace Center) のグループがガス浮遊させた液体を音波で振動させることで粘性を測定することに成功した。電磁浮遊は、交流磁場と誘導電流との相互作用によって発生するローレンツ力を利用し、コイル中に試料を浮遊させる手法であり、密度や表面張力等が測定できる。それぞれ一長一短があるため、測定対象物質に適した手法を選択する必要がある。

我々は金属系については静電浮遊法を用いて物性



* Yuji OHISHI

1982年6月生
東京大学大学院 新領域創成科学研究科
物質系専攻博士後期課程(2009年)
現在、大阪大学大学院 工学研究科 附属
オープンイノベーション教育研究センター
助教 博士(科学)
TEL: 06-6879-7906
FAX: 06-6879-7889
E-mail: ohishi@see.eng.osaka-u.ac.jp

の評価を進めており、これまでにZr-Fe[1]、Zr-Cr、Zr-Ni[2]の物性を報告している。Fe-Bについては蒸発が問題となるため、蒸発を抑制できる電磁浮遊法を用いて物性評価を行っている。酸化物についてはガス浮遊法を用いて物性評価を進めており、これまでに $ZrO_2-Al_2O_3$ の粘性や密度を報告している[3]。本稿では、より高温の酸化物である UO_2 や ZrO_2 の物性測定への取り組みについて述べる。

ガス浮遊装置

ガス浮遊装置の概略を図1に示す。試料は直径2 mm程度のサイズであり、コニカルノズル上でガス圧によって浮遊する。図2に装置外観とコニカルノズルの拡大図を示している。浮遊した試料に対し

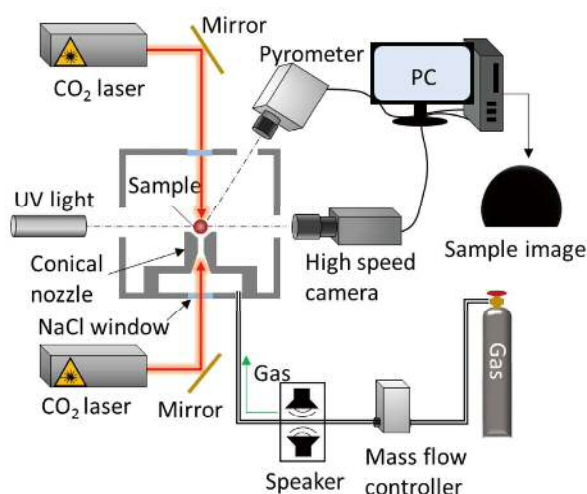


図1 ガス浮遊溶融装置の概略図

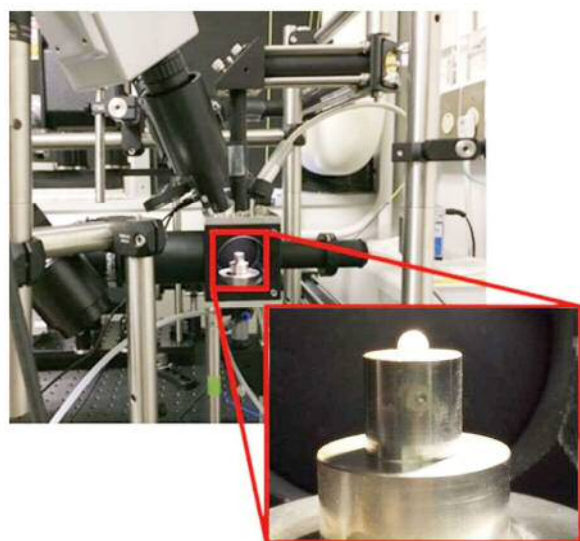


図2 ガス浮遊溶融装置の外観写真

て100 Wの CO_2 レーザー（波長 $10.6 \mu m$ ）を照射することで試料を加熱溶融させる。通常のガス浮遊法では上方のみからレーザーを照射するが、その場合試料下部は浮遊用のガスによって冷却され試料温度が不均一になってしまう。そこで、本試験装置ではレーザーを上と下の両方から照射している。レーザーを下からも照射できるように、コニカルノズル下部に CO_2 レーザーを透過するNaCl窓を設置している。

密度測定方法

試料の輪郭を、2000 fpsでの観察が可能であるモノクロ高速CMOSカメラ（HAS-D72M, DITECT）を用いて観察する。試料サイズが試料の位置によって変化しないように、レンズにはテレセントリックレンズを用いる。高温の物体は強い電磁波を発生するため、高温の物体の輪郭を明瞭に観察するためには、物体から放射される電磁波と干渉しにくい波長の電磁波をバックライトとして用いる必要がある。本研究では非常に融点の高い UO_2 や ZrO_2 の測定を目指しているため、これらの物質の融点でもほとんど放射されない波長の紫外光をバックライトとして用いる。用いた紫外光ランプは浜松ホトニクス製のL9588-02Aであり、可視光を除去するために $370 \pm 2 nm$ のバンドパスフィルターを用いている。図3に、溶融した Al_2O_3 の輪郭を示す。輪郭が明瞭に観察できていることが分かる。

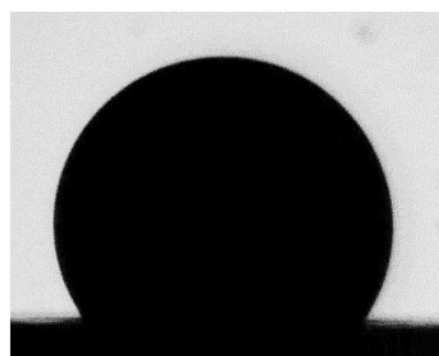


図3 溶融した Al_2O_3 の輪郭

得られた試料の画像からエッジを抽出し、試料のサイズを画素単位で計算する。画素を長さに変換するために、大きさが既知のステンレス製ベアリング球（直径2.0, 2.5, 3.0 mm）を観察して図4のような画素数と長さとの関係式が得られた。

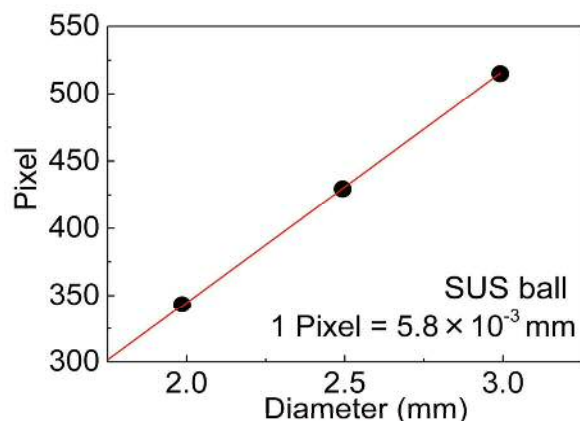


図4 画素数と長さとの関係

ガス浮遊法では、試料下部がノズルによって隠れてしまう。そのため、図5に示すように全体の形状を楕円フィッティングによって予測し、試料全体の大きさを計算する。

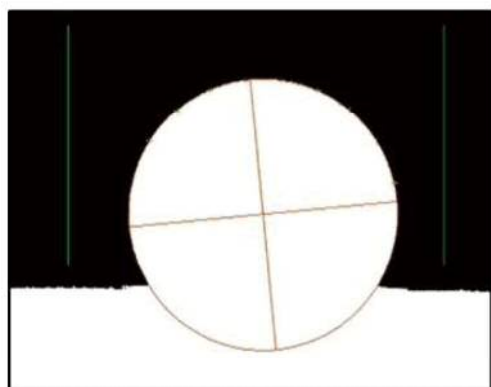


図5 楕円フィッティング処理の様子

試料の温度は単色放射温度計（IR-CAS8CNL、株式会社チノー）を用いて測定する。図6に、溶融した Al_2O_3 がレーザーをオフにした後に冷却していく様子を放射温度計を用いて測定した結果を示す。当初の試料の温度は 2600°C 程度であり、 5500 ms でレーザーをオフにすると、試料は自然冷却されていく。 1600°C 程度まで冷却された後、 2100°C 程度まで温度が上昇し、しばらく一定の温度となっていることが分かる。放射温度計の温度は、このプラトー領域における温度が融点（ Al_2O_3 の場合は 2072°C ）となるようにプランクの式を用いて放射率を決定することで求めている。

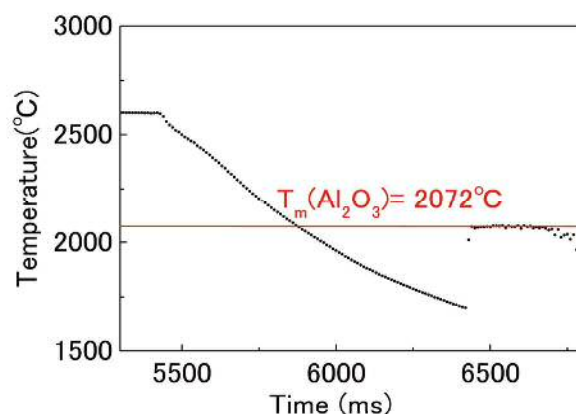


図6 放射温度計を用いて測定した Al_2O_3 の温度の時間依存性

得られた体積、温度、及び測定後の試料の重さから、試料の密度の温度依存性を算出することができる。図7に、このようにして算出した Al_2O_3 の密度の温度依存性を示す。文献値と非常に良く一致していることが分かる。同様の手法で、溶融 ZrO_2 の密度も報告されている [5]。

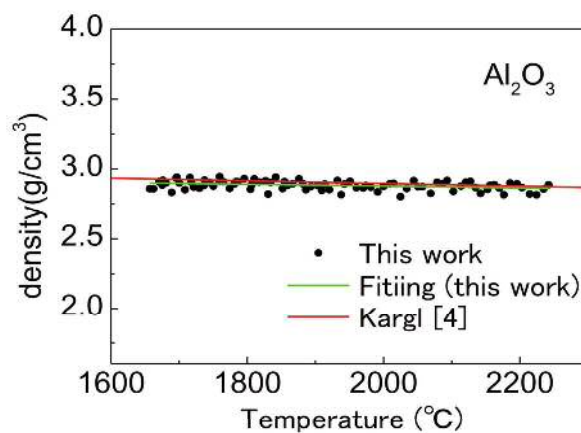


図7 溶融 Al_2O_3 の密度の温度依存性

粘性測定方法

ガス浮遊法では密度と同時に、液滴振動法を用いた粘性の測定が可能である。本手法は、DLRの研究グループによって近年開発された [4]。ファンクションジェネレーター（AWG1005, AS ONE）によって生成し、アンプ（A-10, Pioneer）により増幅した正弦波信号をスピーカー（P830970, Tymphany）により音波として浮遊中の試料に与える。浮遊試料は特定の周波数の音波により共振振動が励起され、図8のような振動が観察される。

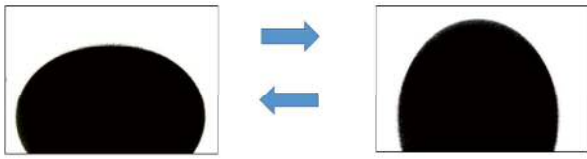


図8 振動中の Al₂O₃ 試料

このとき、試料への音波の導入を止めることで振動の減衰挙動を観察することができる。密度と同様に画像処理を行うことで、減衰振動の様子は図9のように表すことができる。

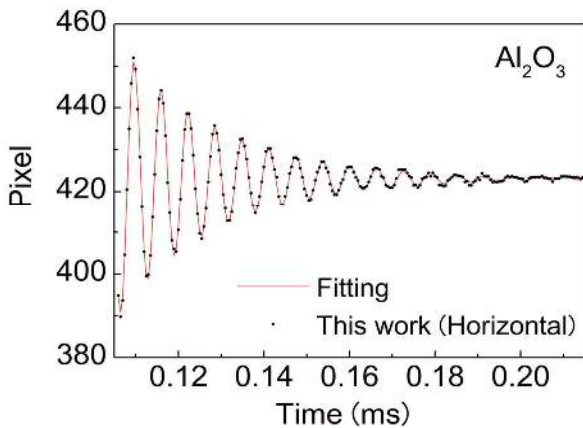


図9 2270°Cにおける Al₂O₃ 試料の減衰振動

この減衰振動を三角関数と指数関数の積で表される関数でフィッティングする。フィッティング曲線からは、減衰振動時間 t_0 を得ることができる。粘性 η はこの t_0 を用いて次のように評価することができる [6]。

$$\eta = \frac{\rho R^2}{5t_0} \quad (1)$$

ここで、 ρ は液体試料の密度、 R は液体試料の半径を示す。図10に、このようにして算出した溶融 Al₂O₃ の粘性の温度依存性を同様の手法で測定された文献値 [4] と共に示す。両者の値は非常に良く一致していることが分かる。

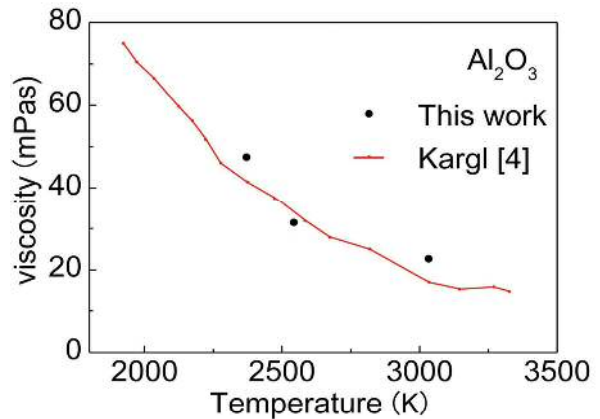


図10 溶融 Al₂O₃ の粘性の温度依存性

溶融 ZrO₂ の測定

溶融 Al₂O₃ と同様にして測定した溶融 ZrO₂ の密度の温度依存性を図11に示す。測定した密度の値は、同じくガス浮遊法を用いて測定された文献値 [5] よりもやや低い値となっている。しかし、文献値は上方からのレーザー加熱のみで試料を溶融しており、試料温度が著しく不均一であると思われる。また、我々の測定データのばらつきは文献値よりも小さく、より信頼性の高いデータが得られたのではないかと考えている。

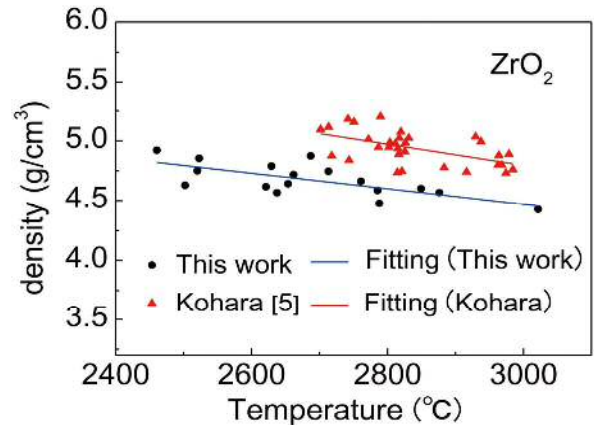


図11 溶融 ZrO₂ の密度の温度依存性

おわりに

本稿では、酸化物溶融物の物性評価において我々が注目しているガス浮遊法について解説した。また、炉心溶融物（特に UO₂）の基礎物性の取得を目指し、我々のグループで作製している測定装置について紹介し、測定した溶融 Al₂O₃ の密度や粘性が文献値と良く一致していることを示した。UO₂ と同程度の

高い融点を有する ZrO_2 についても密度の測定結果を示した。すなわち、本装置は UO_2 のような高融点物質にも適用可能であると考えられる。本手法で測定する炉心溶融物の物性が、過酷事故時の炉心溶融物の流出挙動解明に貢献することを期待している。

謝辞

本研究成果は、博士後期課程の学生の近藤俊樹との共同研究によって得られた。また、共同研究者である大阪大学の山中伸介教授、黒崎健准教授、牟田浩明准教授より多大な支援及び助言を受けた。ここに感謝の意を記す。

参考文献

- 1) Y. Ohishi, H. Muta, K. Kurosaki, J. T. Okada, T. Ishikawa, Y. Watanabe, and S. Yamanaka: "Thermophysical properties of molten core materials : Zr-Fe alloys measured by electrostatic levitation" J. Nucl. Sci. Technol. 53, 1943 (2016).
- 2) Y. Ohishi, T. Kondo, T. Ishikawa, J. T. Okada, Y. Watanabe, H. Muta, K. Kurosaki, and S. Yamanaka: "Physical properties of molten core materials : Zr-Ni and Zr-Cr alloys measured by electrostatic levitation" J. Nucl. Mater. 485, 129 (2017).
- 3) Y. Ohishi, F. Kargl, F. Nakamori, H. Muta, K. Kurosaki, and S. Yamanaka: "Physical properties of core-concrete systems: Al_2O_3 - ZrO_2 molten materials measured by aerodynamic levitation" J. Nucl. Mater. 487, 121 (2017).
- 4) D. Langstaff, M. Gunn, G. N. Greaves, A. Marsing, F. Kargl, D. Langstaff, M. Gunn, G. N. Greaves, A. Marsing, and F. Kargl: "Aerodynamic levitator furnace for measuring thermophysical properties of refractory liquids Aerodynamic levitator furnace for measuring thermophysical" Rev. Sci. Instrum. 124901, (2016).
- 5) S. Kohara, J. Akola, L. Patrikeev, M. Ropo, K. Ohara, M. Itou, A. Fujiwara, J. Yahiro, J. T. Okada, T. Ishikawa, and A. Mizuno: "Atomic and electronic structures of an extremely fragile liquid" Nat. Commun. 5, 1 (2014).
- 6) H. Lamb: "On the Oscillations of a Viscous Spher" Proc. London Math. Soc. 51 (1881).

