

燃料デブリの特性に関する研究概要

Research Summary on the Characterization of Fuel Debris

| | | | |
|-----------|-------|------------------|-----------|
| IRID/JAEA | 鷲谷 忠博 | Tadahiro WASHIYA | Nonmember |
| IRID/JAEA | 萩野 英樹 | Hideki OGINO | Nonmember |
| IRID/JAEA | 高野 公秀 | Masahide TAKANO | Nonmember |
| IRID/JAEA | 矢野 公彦 | Kimuhiko YANO | Nonmember |
| IRID/JAEA | 鍛冶 直也 | Naoya KAJI | Nonmember |

Abstract JAEA, as a member of IRID, had started experimental and analytical studies on characterization of fuel debris. In this study, thermodynamic equilibrium calculations were carried out and typical debris phases were predicted. Experimental studies were also carried out using simulated fuel debris, and verify the expected fuel debris properties on typical conditions of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F). The 1F accident differs from the past severe accidents such as Three Mile Island unit-2 (TMI-2) and Chernobyl nuclear power plants. Therefore, specific factors in the 1F accident should be considered; BWR fuel assembly, control rod, core configuration and accident sequence. Further specific factors are high zirconium and iron contents, B_4C , sea water effects and molten core concrete interaction (MCCI). After the defueling, interim storage will be considered, but the treatment scenario has not defined. In this paper, research summary on the characterization of fuel debris and current research results will be described.

Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, fuel debris, TMI-2, severe accident, mechanical properties, defueling, B_4C and MCCI

1. 概要

福島第一原子力発電所（以下、1F）事故では、全電源喪失に伴い冷却水が喪失し炉心溶融が起きた。原子炉内の溶融燃料（以下、燃料デブリ）の状態は未だに不明であるが、事故発生状況や事故発生から冷温停止に至る過程（炉心構成、溶融継続時間、海水注入など）は、スリーマイル島2号機（以下、TMI-2という）事故と異なるため、炉心内部で生成している燃料デブリの形態や特性も異なるものと推定される。一方、各原子炉を廃止措置するためには、炉内に残る燃料デブリの取出しが最大の課題である。燃料デブリを取出して安定に保管、処理・処分するためには、燃料デブリの特性を推定し、安全で確実な方策を選ぶ必要がある。また、1Fでは燃料デブリが圧力容器底部を溶融し、ペDESTAL底部のコンクリート上に落下し、溶融燃料とコンクリートの高温反応（Molten Core Concrete Interaction 以下、MCCI）が生じたと想定されている。[1] 燃料デブリの取出しには燃料デブリの特性に応じた治具や方法を準備する必要がある。

日本原子力研究開発機構（以下、JAEA）は、株式会社東芝とともに、技術研究組合国際廃炉技術開発機構（以下、IRID）の組合員として、廃炉・汚染水対策を円滑に進めることを目的として燃料デブリの特性把握及び処置方策の検討等に必要とされる研究開発を実施している。[2] ここではJAEAの実施している研究の概要について述べる。なお、本研究開発の一部は経済産業省の補助金事業及び受託事業の成果を含むものである。[13][14]

2. 研究内容

2.1 炉内に存在する燃料デブリの推定

燃料デブリのサンプリングや取出しにおいては、圧力容器や格納容器内に分布する燃料デブリの種類やその堆積の状況に応じて、アクセス経路や使用する工具を検討する必要がある。炉内状況の把握については、事故進展解析コードを用いた燃料の溶融・崩落挙動の解析や、ロボット・カメラ等を用いた内部観察、宇宙線（ミュオン）による投影等による検討が行われ、燃料デブリの位置や分布状況の推定が進められている。[3] しかし、燃料デブリの特性を推定するための化学形態に関する情報は得られてない。このため、事故進展解析コードの結果[1]から炉内の燃料分布の情報を推定し、それに熱力学平衡

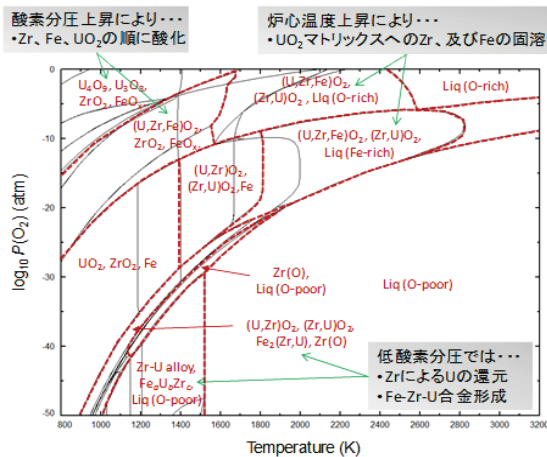
連絡先: 鷲谷 忠博

日本原子力研究開発機構 廃炉国際共同研究センター

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

E-mail: washiya.tadahiro@jaea.go.jp

計算を適用することで燃料デブリの化学形態を概略的に評価した (図 1、図 2)。[4] 生成する燃料デブリの化学形態は系内の酸素量に大きく影響を受けるが、酸化物としては(U, Zr)O₂、金属としてはZr(O)、Fe₂(Zr, U)が主要な形態と推定された。燃料デブリの特性を把握する研究については、まず、これらの化学形態を中心に必要な特性データを取得することとした。



—計算条件—
 ・材料組成 UO₂: Zr: Fe = 65: 27: 8 wt%
 ・FactSage6.2及びTDnucデータベースを使用

図1 UO₂-Zr-Fe系における温度-酸素分圧状態図

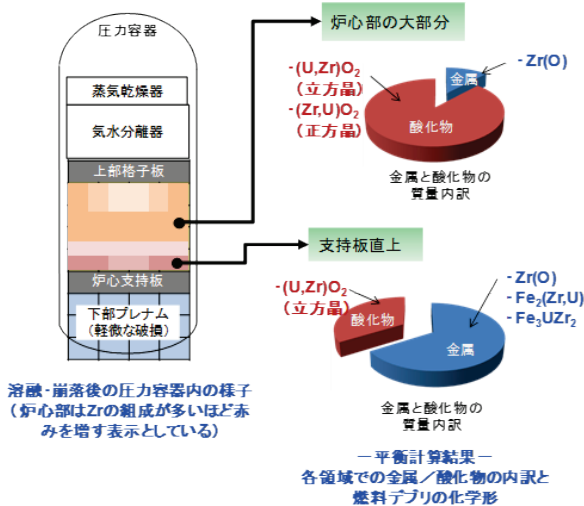


図2 熔融・崩落後の压力容器内の燃料デブリの生成状況

これに加え、炉心内に生成しているであろうデブリに加え、ペDESTAL部に生成していると考えられるMCCI生成物についても同様に熱力学的な評価を実施しているところである。

なおこれらの評価については、「事故進展解析技術の高度化による炉内状況の把握」プロジェクトの成果により事故進展等の新たな情報が得られた際には、適宜見直す

こととしている。

2.2 燃料デブリのサンプリング・取出しに必要な物性値の検討

本検討の開始当初は、TMI-2事故での取出し作業の情報(図5)から1Fでの取出し作業を想定し、取出し装置開発に必要と推定されるデブリ物性を検討した(表1)。この結果、物理的特性(形状、大きさ、密度/空隙率)の他、熱的特性(比熱、熱伝導率、融点)、物理的特性(硬さ、弾性率、破壊靱性)が重要との結論に至った。[6]



図5 TMI-2で用いられた燃料デブリ取出し装置の分類

表1 取出し装置の検討に必要な燃料デブリ物性値

| 装置区分 | 形状 | 大きさ | 密度 | 熱的性質 | | | 機械的性質 | | |
|------|----|-----|----|------|----|------|-------|-----|------|
| | | | | 融点 | 比熱 | 熱伝導率 | 硬さ | 弾性率 | 破壊靱性 |
| ① | | | | | | | | | ✓ |
| ② | | | | | | | | ✓ | ✓ |
| ③ | | | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ | | | |
| ④ | ✓ | ✓ | ✓ | | | | | | |
| ⑤ | ✓ | ✓ | ✓ | | | | | | |
| ⑥ | | | | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ |

*装置区分については図5を参照

調査した各種機器のうち、特にコア・ボーリング装置については、TMI-2において最も有用であった取出し機器のひとつであり、1Fにおいても、コアサンプルの取得や本格取出しのための穿孔装置のひとつとしてその適用性が検討されると考えられる。その適用性は掘削対象となる燃料デブリの硬さや靱性等の機械的性質に大きく影響を受けるものと考えられ、これについて、各種セラミックスに対する切削等の機械加工試験を行うことで、被削材の材料特性による影響を評価している。

2.3 1Fに特有な反応の把握

1Fに特有な事象として、炉心冷却時に用いられた海水の影響や制御材の材質(B₄C)の影響、PCV底部(ペDESTAL部)での熔融燃料とコンクリートとの反応(MCCI)が挙げられる。一部ではMOX燃料やGd含有燃料が使用

されていたことなども挙げられる。これらについて、実験等により基礎的な知見の確認を進めている。

2.3.1 海水塩の影響 [7]

燃料デブリと海水塩の反応を確認するため、模擬デブリと海水塩の高温反応試験を実施した。図6に反応後の模擬デブリの表面観察像を示す。模擬デブリとしてペレット状の(U, Zr)O₂試料を用いて空気流中またはAr気流中、815~1,398°Cで加熱保持した。海水塩を熱分解する際にNaClは1,000~1,100°Cに達する過程で蒸発するものの、Mg塩はMgOの結晶となり析出することから、デブリ取出し時に表面に付着する可能性がある。また、海水塩成分の中でCaが最も反応性が高く、高酸素分圧下では高温の模擬デブリ表面にウラン酸塩層が緻密な層を形成すること、Ar雰囲気下（低酸素分圧下）ではデブリ表層に拡散固溶すること等が明らかになった。空气中1,002°Cで12時間加熱した模擬デブリペレットの外観はウラン酸塩に特徴的な橙色を呈している（図6右下）。

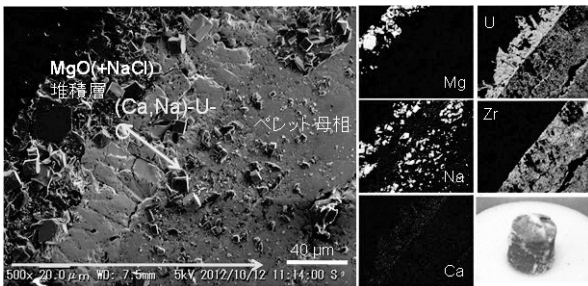


図6 模擬デブリの海水塩との高温反応

2.3.2 B₄Cの影響 [8]

1Fでは制御棒にB₄Cが用いられている。燃料デブリ中でのホウ素の挙動は取出し時の臨界管理の観点からも重要であるが、これまで十分なデータがなかった。このため燃料デブリとの反応について、模擬デブリの(U, Zr)O₂とB₄C粉末を混合した模擬燃料粉末をAr雰囲気下でアーク溶融によって高温で溶融し、反応生成物の特性を測定した。B₄Cとの反応により合金中に(Fe, Cr, Ni)₂B及びZrB₂で表されるホウ化物が析出することを確認した。また、(U, Zr)O₂模擬デブリから合金相へUが溶出して、種々の組成のFe-Cr-Ni-Zr-U合金が生じることが確認された。図7は、(U, Zr)O₂とB₄C、SUS、Zrの混合粉末をAr 0.1% O₂の雰囲気下でアーク溶解した左側の試料の切断対を同じ雰囲気下、1500°Cで10時間保持し降温したものが右側の試料となる。酸化雰囲気下で長時間保持（焼鈍）することにより金属部分の一部が酸化され(U, Zr)O₂の層が形

成されていることが分かる。

生成した各層の微小硬さをマイクロビッカース硬さ系で測定した結果を図8に示す。金属では(Fe, Cr, Ni)₂(U, Zr)が比較的硬く、酸化物では(U, Zr)O₂が硬く、焼結体よりも溶融固化体の方が硬い傾向を示している。また、ホウ化物のビッカース硬さは14~20GPaと非常に硬いことから、デブリ取出し時のZrB₂等が密に析出している部分がある場合、掘削作業時に大きな負担となることが予想される。

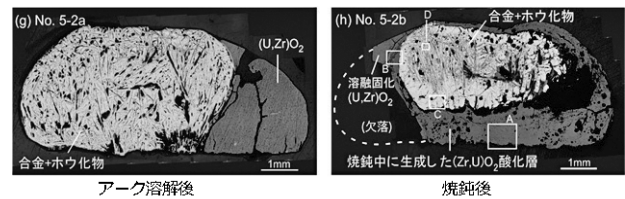


図7 アーク溶融した模擬デブリの酸化雰囲気での焼鈍の影響

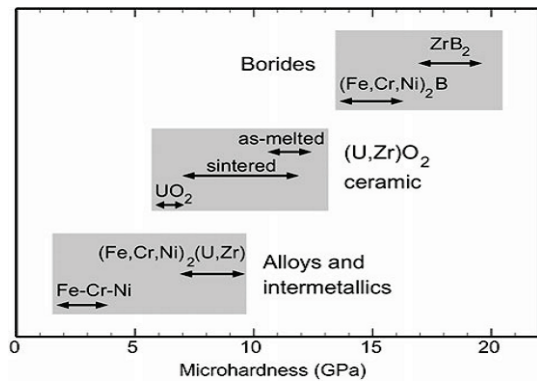


図8 各種模擬デブリの硬度

2.3.3 Puの影響 [13]

1Fでは3号機において3~6%のMOX燃料が装荷されていた。また、1,2号機でも核反応で生成したPuが2%程度含まれていたと考えられる。従って、1Fの燃料デブリにはPuが含有していることから、1Fの溶融燃料の取出作業に向けて、Puを含む燃料デブリの性状把握が重要である。また、Puは、臨界管理、計量管理をする上で非常に重要な元素でもある。

本研究では、Puを含有したUO₂燃料とジルカロイを溶融・固化させ、(U, Pu, Zr)O₂のPuを含有した模擬デブリを調製し、その特性データを取得した。図9に調製した模擬デブリの概観とEPMAによる表面分析の結果を示す。溶融後の試料はU、Pu、Zrの各濃度が異なる領域が数十μmの範囲で存在しているが、大別するとUがリッチな相とZrがリッチな2相に分類される。Pu濃度の分布はマクロに見ればほぼ均一であるといえる。また、図10に燃

燃料デブリ融点に対するPu及びZrの含有量の影響を示す。燃料デブリの融点は、Puの含有量によって変化する傾向が確認された。Pu含有量が10%以下で融点が極大となる。また、それ以上のPu含有率ではPu濃度の増加に伴って融点は低下する傾向を示した。Pu含有量の増加に伴い融点が低下する傾向はUO₂-PuO₂系のMOX燃料の製造経験からも同様な知見が得られており、Pu含有量が10%以下の極大値はZr含有の影響と考えられる。

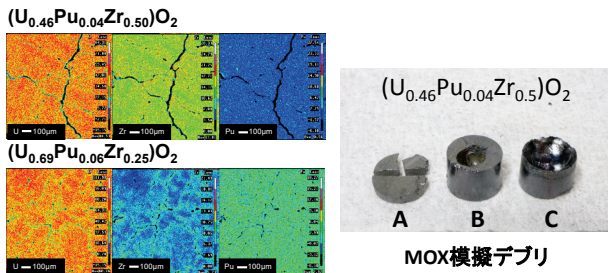


図9 Pu含有模擬デブリの概観とEPMAによる表面分析

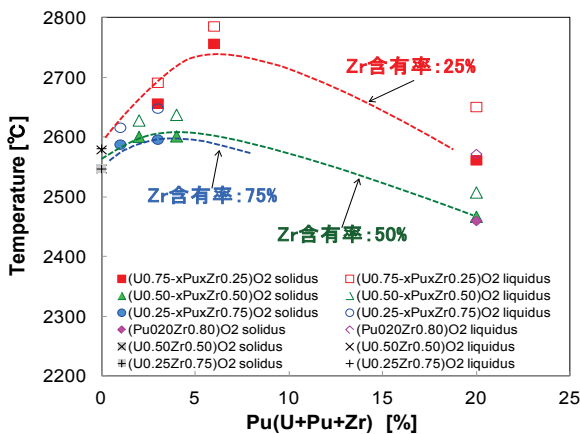


図10 燃料デブリの融点に対するPu及びZr含有の影響

2.3.4 Gdの影響 [11][14]

Gdは中性子吸収材として核燃料中に装荷されていたが、炉心熔融のGdの分布状態については不明である。Pu系の模擬デブリと同様にGd₂O₃を添加した模擬デブリを調製し、その特性データを取得した。

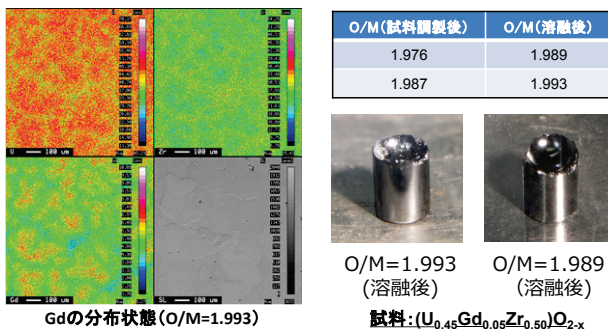


図11 Gd含有模擬デブリの特性に対するO/Mの影響

図11にEPMAによる表面分析の結果、O/M比、外観を合わせて示す。熔融後の試料はPu系の模擬デブリと同様に、Uがリッチな相とZrがリッチな2相に分類される。また、Gdの濃度差は小さくマクロに見ればほぼ均一といえる。従って、臨界評価の観点においてU-Pu-Zr-Gd-O系の燃料デブリ中ではGdの偏在はほぼないと想定される。また、Gdを含有する模擬デブリの熱伝導率はZrやGdの含有により熱伝導率が低下し、両者が同時に混入することによりさらに低下する傾向であった。

2.3.5 コンクリート反応の影響 [8][11]

1Fでは、熔融した燃料が圧力容器の底を貫通し、格納容器内のコンクリート床に落下しMCCIが生じていると想定される。MCCI生成物の組成については、コンクリートの組成や熔融温度、熔融時間等により異なると考えられる。また、国内にはMCCI研究の大型装置がないことから、MCCI生成物を単純化した国内での基礎研究と、仏国CEAとの国際協力を利用した大型試験後の試料を用いた総合的な研究の二方向から研究を進めている。

国内の基礎研究では、微量のモルタル/Fe/Zr/ZrO₂/(U,Zr)O₂をアーク溶解し生成物の特性を調査している。本試験ではセラミックス部と金属部に分離しやすく、セラミック部は(Zr,U,Ca)O₂が中心で、その粒界にはAL-Ca-O系の酸化物が析出し、金属部ではFe-Si-Al系及びFe-Si-(Zr,U)-Al系の二相の合金が生成した。

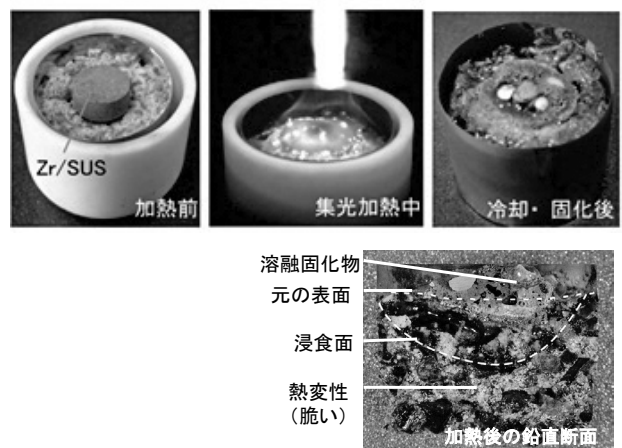


図12 集光加熱による模擬MCCI生成物の調製の様子

また、コンクリートと熔融物の界面を評価するため、Ar雰囲気中でコンクリート上の金属(Zr/SUS)を集光加熱により局所加熱した。

図12に集光加熱時の様子と冷却後の試料断面を示す。浸食面の上部には、ケイ酸ガラスが生成し、その内部に

は Zr, Cr, Fe の酸化物が析出している。また、浸食面下側のコンクリートも熱変性により非常に脆くなっている。

また国際協力として、仏国 CEA の大型 MCCI 試験 (VULCANO 試験) で生成した MCCI サンプルを分析することで特性を調査している。

MCCI 生成物の中央部 (酸化物層) のサンプル断面の SEM 映像を図 13 に示す。本サンプルは PWR 体系での MCCI 試験 (VBS-U4) で得られた生成物のサンプルの一部であり、MCCI 試験では、約 60 kg の UO_2 、Fe、Zr、コンクリート成分を約 2000°C に加熱しペDESTAL 床を模擬したコンクリート試験体に落下・反応させたものである。本試験サンプルは、 ZrO_2/UO_2 比、コンクリート中の SiO_2 比が 1F 条件に比較的近いことから選定した。

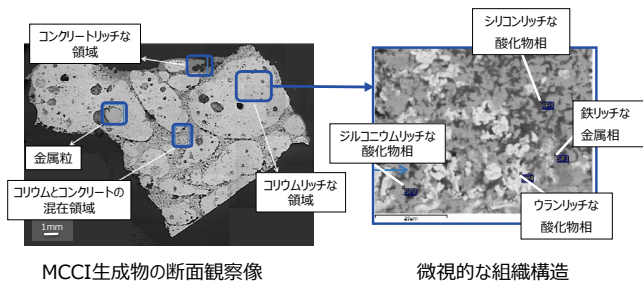


図 13 MCCI 生成物のサンプル (酸化物層) 断面観察像

酸化物層は 4 つの領域 (領域 1 : コリウム成分がリッチな領域、領域 2 : コンクリート成分がリッチ領域、領域 3 : コリウム・コンクリート混合領域、領域 4 : コリウムリッチ領域中にある金属粒) に分かれている。生成物の大部分は領域 1 であり、この領域には、Zr、U、Si のそれぞれの含有率が高い相があるとともに、Fe の析出も見られる。また、領域 1 の周辺には領域 2 が僅かに見られる。また、領域 1 で囲まれた中には領域 3 が見られ、この領域には Si 酸化物、Cr 含有率が高い酸化物、F、Cr を含む金属、Zr、U を多く含有する酸化物の相が見られる。領域 4 は Fe を主成分とする金属相が見られた。各サンプルに対する詳細な分析は実施中であるが、酸化物層のビッカース硬さは 4-9GPa、金属粒は約 3GPa であった。また、酸化層では気孔が多く硬さ測定値にバラつきが多いが、金属層は比較的均一でバラつきが少なかった。

2.4 TMI-2 デブリの特性評価 [14]

JAEA では 1979 年に米国で起きた TMI-2 事故のデブリを所有している。この TMI-2 デブリに関する機械的性質データの取得を進めている。図 14 に TMI-2 デブリの外観を示す。JAEA で所有している TMI-2 デブリは、クラス

ト部、溶融プール部、下部ヘッド部等からサンプリングしたものであり、それぞれについて、組成分析、組織観察、硬さ測定等を実施している。クラスト部は U リッチな立方晶から成る単相でありビッカース硬さは 12-13.5 GPa と非常に硬い。また、溶融プール部の酸化物層については、U リッチな立方晶から成る単相、Zr リッチな (正方晶+単斜晶) の 2 相が入り混じっている部分から成る。また、金属部分には (Ag-In-Sn, Ni-Sn) が混ざっている。クラスト部及び溶融プール部の試料のビッカース硬さ測定時の圧痕の状況を図 15 に示す。溶融プール部では正方晶と単斜晶の 2 相分離組織が硬さを低下させる原因であることを確認した。

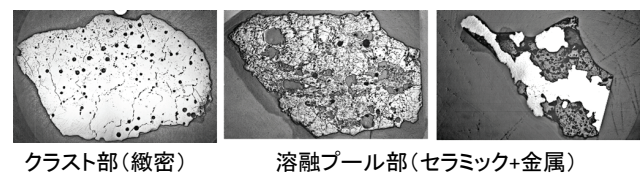


図 14 TMI-2 デブリの外観写真

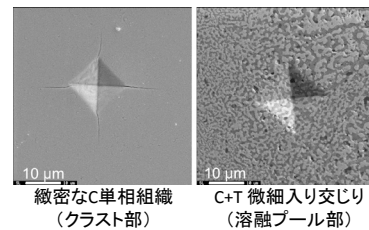


図 15 圧痕および組織拡大観察像

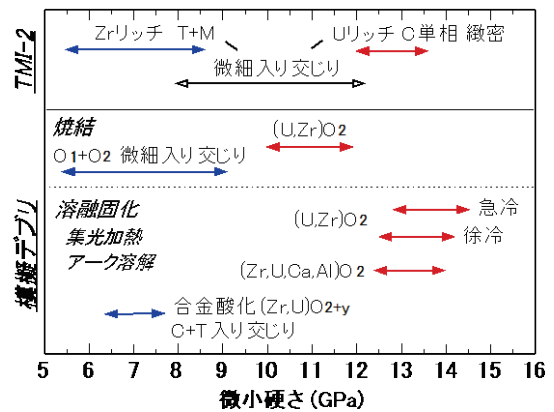


図 16 TMI-2 デブリと模擬デブリの硬さの比較

また、図 16 に TMI-2 デブリと模擬デブリの硬さデータの比較を示す。模擬デブリは TMI-2 デブリの硬さを概ね網羅出来ていることが分かる。

2.5 デブリ特性リストの作成 [2]

上記の模擬デブリ等を用いた特性データを収集し、文献調査結果等と合わせて実デブリの特性リストを作成し

ている。本データは取出し装置開発、デブリ収納・移送保管等の他プロジェクトへ反映して行く。

3. 結言

- 1) 熱力学的な手法を用いて炉内に存在する燃料デブリの化学形を推定した。
- 2) 燃料デブリのサンプリング・取出しに必要な物性値として、硬さ、靱性等の機械的性質が重要である。
- 3) IFに特有な反応として、燃料デブリと海水塩、 B_4C 、Pu、Gd、コンクリートとの反応の影響を評価した。その結果、海水塩との反応では表面におけるウラン酸塩の析出、 B_4C との反応では硬いナホウ化物の生成を確認、Pu及びGdについては熱特性や偏在の有無を確認、コンクリートについては界面反応と機械的性質等を明らかにした。

参考文献

- [1] 東京電力株式会社, 福島第一原子力発電所1~3号機の炉心状態について,
http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_111130_09-j.pdf
- [2] Washiya, T. et al., Characterization of Fuel Debris Properties for Decommissioning of Fukushima Daiichi Nuclear Power Stations, WRFPM 2014, Japan, Sep. 14-17, (2014) Paper No. 100151
- [3] 原子炉内燃料デブリ検知技術の開発1号機測定結果速報
http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_150319_03-j.pdf
- [4] Ikeuchi, H. et al., Chemical form estimation of in-vessel fuel debris by thermodynamic calculation with melt progression analysis, Proc. NuMat 2014 Florida, USA, Oct. 27-30, (2014).
- [5] Kitagaki, T. et al., Thermodynamic evaluation of phase change behavior of MCCI products under estimated Fukushima-daiichi nuclear power plant conditions, Proc. NuMat 2014, Florida, USA, Oct. 27-30, (2014).
- [6] K. YANO et al., "Direction on Characterization of Fuel Debris for Defueling Process in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station," Proc. of GLOBAL2013, Salt Lake City, Sep 29–Oct 1, 2013, American Nuclear Society (2013) (CD-ROM)
- [7] M.TAKANO, et al., "High temperature reaction between

sea salt deposit and (U,Zr)O₂ simulated corium debris" Journal of Nuclear Materials 433 (2013) 32-39

- [8] Takano, M. et al., Characterization of solidified melt among materials of UO₂ fuel and B₄C control blade, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 51, 2014, pp. 859–875.
- [9] K.MORIMOTO, et al., "The influence of Pu and Zr on the melting temperatures of the U-Pu-Zr-O system" Asian Nuclear Fuel Conference 2014 (ANFC2014), Sendai, Sep 18–19,(2014)
- [10] M.Kato et. al., MRS Online Proceedings Library 1444(2012)91
- [11] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 研究開発成果概平成26年度版
http://irid.or.jp/_pdf/pamphleth26.pdf#search=IRID+MCCI+CEA
- [12] C. Journeau et. al., Oxide-Metal Corium –Concrete Interaction Test in the VULCANO Facility, Proceedings of ICAPP 2007, Nice, France, May 13-18, 2007
- [13] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, "経済産業省委託事業 平成25年度発電用原子炉等廃炉・安全技術基盤整備事業(燃料デブリ性状把握・処置技術の開発) 報告書", 2014
- [14] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, "経済産業省補助事業 平成25年度補正予算 廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリ性状把握・処置技術の開発) 報告書", 2015