

# 燃料デブリの性状把握

2015年9月11日(金)

日本原子力学会 2015年秋の大会

○鷺谷 忠博<sup>1)</sup> 荻野英樹<sup>1)</sup> 鍛治直也<sup>1)</sup> 宮本泰明<sup>1)</sup> 川野昌平<sup>2)</sup>

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID)

1)国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

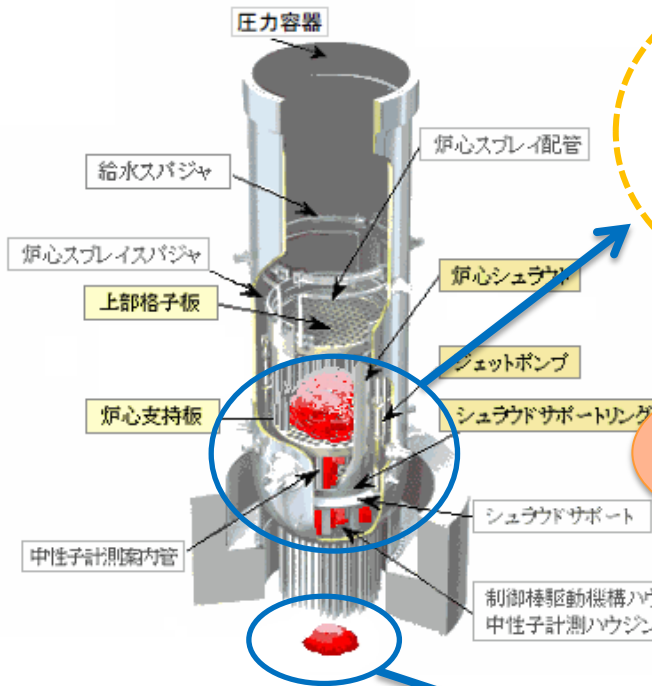
2)東芝

# 内 容

1. 燃料デブリの特性把握の目的
2. 燃料デブリの推定
3. デブリ特性データの取得
  - 1F特有反応の評価
  - TMI-2デブリとの比較
  - マクロ特性：MCCI生成物の評価
  - マクロ特性：金属セラミック溶融物の整理等
4. デブリ特性リストの整備
5. 取出しに向けたデブリ情報の整理
6. まとめ

# 1. 燃料デブリの特性把握の目的

燃料デブリの特性情報は、**燃料デブリの取出し、保管、処理・処分**を安全に実施するために必要な情報である。



1F炉心状況の推定図



(燃料デブリ)

模擬デブリや  
実デブリの  
特性データ



(MCCI生成物)

## 処理・処分

- ・安定化処理の検討
- ・容器等の開発

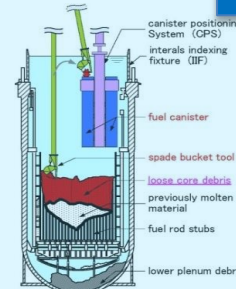
## 保管



TMI-2燃料デブリ  
の乾式保管

- ・保管方法の検討
- ・容器等の開発
- ・臨界安全管理
- ・計量管理

## 取出し



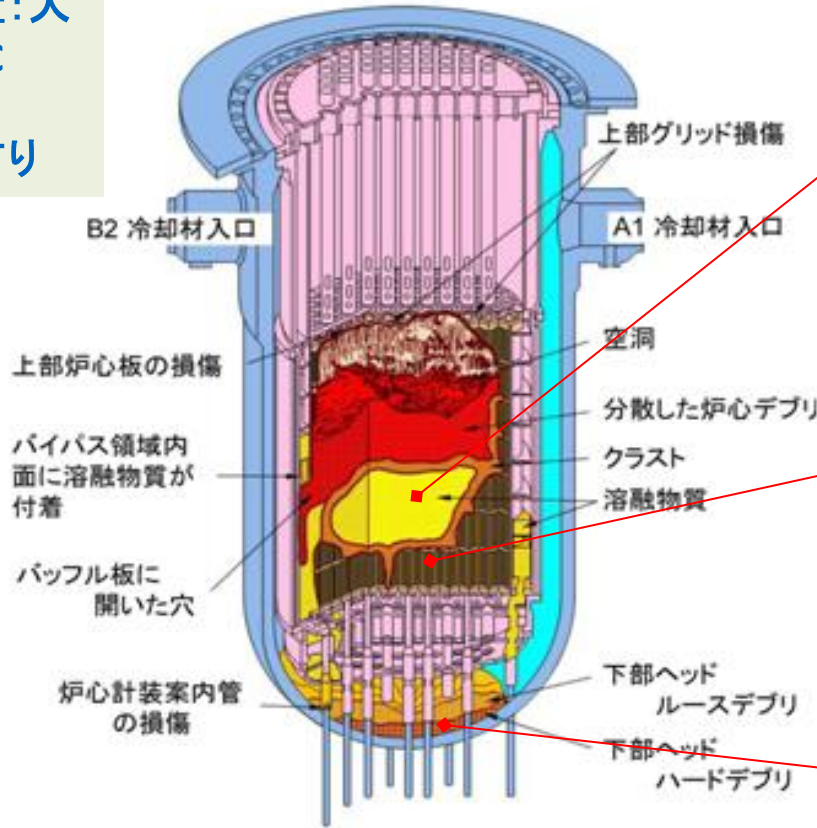
TMI-2 デブリ取出

- ・工法・工具等の開発
- ・臨界安全管理
- ・計量管理

# 2. 燃料デブリの推定 (TMI-2デブリの概要)

## 1F事故の特徴:

- ・BWR(TMI-2:PWR)
- ・燃焼度:大
- ・金属含有量:大
- ・制御棒: $B_4C$
- ・溶融時間:長
- ・MCCI反応:有り



R.K. McCardell, Nucl. Eng. Des. 118(1990) 441

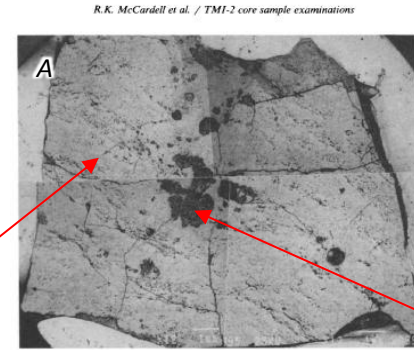
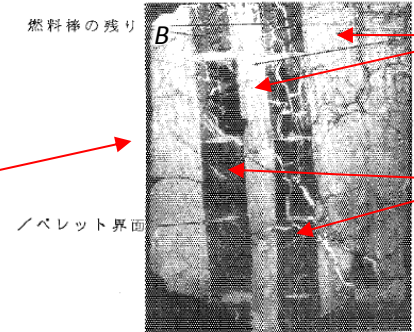


Fig. 4. Example of an entirely ceramic particle from the central region. JAERI-M 93-111

(U,Zr)O  
2700~3100K  
Fe-Ni-O



第5図 炉心物質の反応と被覆の溶解

Zr-Fe-Ni-Cr  
1400~2200K  
燃料ペレット

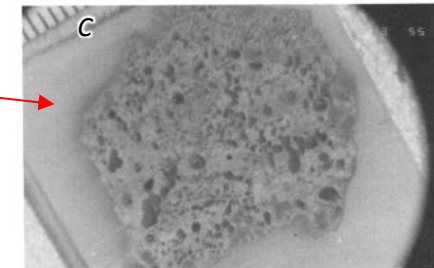
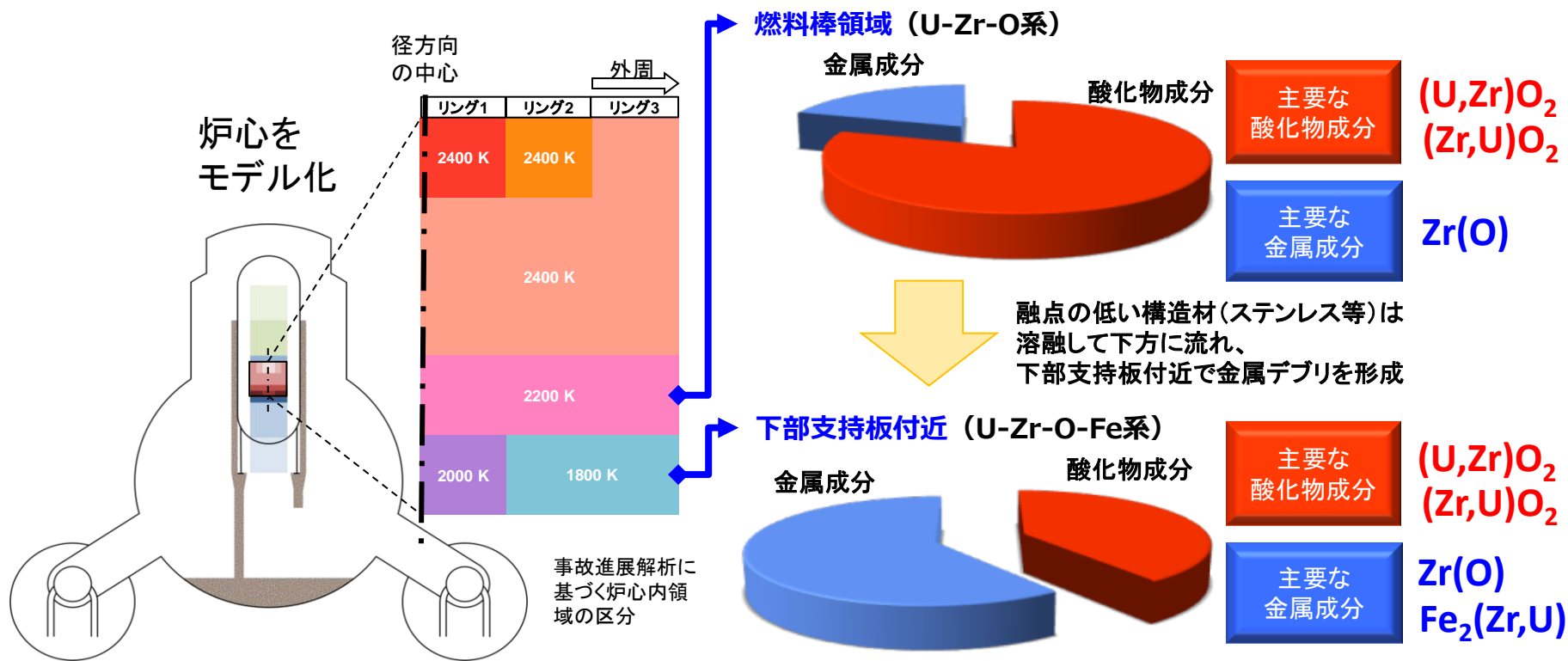


Fig. 9. Cross-section of lower plenum particle 11-5.

(U,Zr)O<sub>2</sub>  
2800~3100K

## 2. 燃料デブリの推定 (推定される1F炉内のデブリ状況①)

事故進展解析コードの結果より、圧力容器内の元素組成、及び温度分布をもとに、燃料デブリの化学形を熱力学平衡計算により簡易的に評価。



解析結果に基づき、温度・質量分布等进行评估。

⇒ 炉心をモデル化 (特徴による区分)

評価した温度・質量分布をもとに、想定される炉内の状況下で安定に存在できる物質(化学形)を熱力学平衡計算で評価

## 2. 燃料デブリの推定 (推定される1F炉内のデブリ状況②)

### ルーズデブリ層



燃料片や溶融燃料が急冷され、粒子化

- ・ $\text{UO}_2$
- ・ $(\text{U,Zr})\text{O}_2$  等

溶融進展後に予想される燃料デブリの生成箇所および材料

### 溶融・固化した炉心

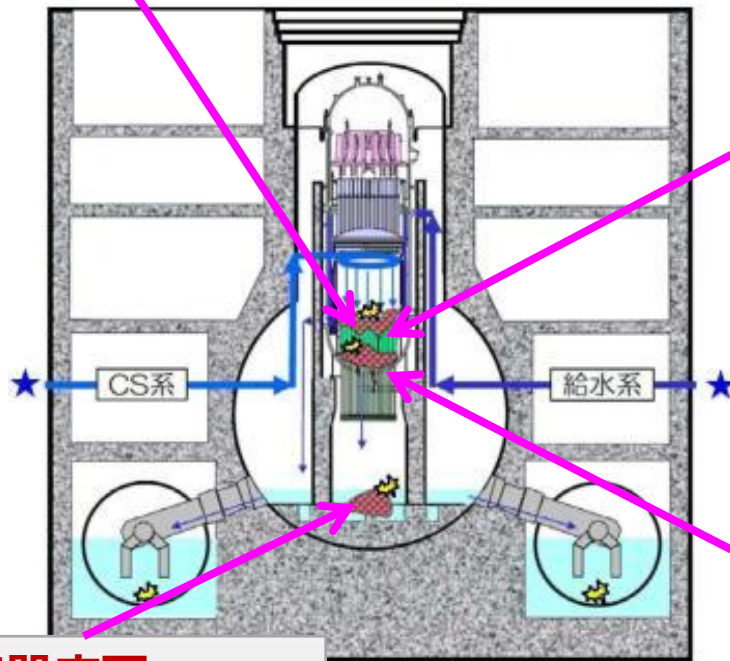


上部/下部クラスト：  
溶融燃料が比較的早く冷却されてできる塊



再溶融固化層：  
溶融燃料がゆっくり冷却されてできる塊

- ・ $(\text{U,Zr})\text{O}_2$  (Uリッチ相/Zrリッチ相)
- ・SUS-Zry合金
- ・Zr/Feホウ化物 等



### 格納容器床面



MCCI生成物

- ・ $(\text{U,Zr})\text{O}_2$
- ・ジルコン 等

### 下部プレナム/制御棒ハウジング



制御棒案内管に溶融燃料等が付着

- ・SUS
- ・ $(\text{U,Zr})\text{O}_2$  等

# 3. デブリ特性データの取得 (取得すべき物性値)

## 取出し機器の分類とその性能に影響を与える物性値

取出し機器	主な対象	形状	粒径	密度	硬さ	弾性率	曲げ強さ	破壊じん性	動的破壊じん性	熱伝導度	比熱	融点	溶融潜熱
①衝撃破壊	塊状デブリ			○	●	○		●	○				
②せん断	ピン状構造物				●	●		●					
③溶断	板状の構造物			●						●	●	●	○
④ピック&プレイス	粒子状デブリ	○	○	●									
⑤吸引	粒子状デブリ	○	○	●									
⑥コア・ボーリング	塊状デブリ			●	●	●	○	●		●	●		

注) 本表は現時点での暫定版であり、今後の新しい知見等により変更が生じる可能性があります。

新たに取得すべき物性

SA研究等による知見も活用

- : 機器設計に大きな影響を与える物性値。(実デブリサンプルにおける測定の可能性も考慮)
- : その他の物性値で代替可能または推定が困難な物性値。

### 3. デブリ特性データの取得（1F特有反応の評価の概要）

- ◆ TMI-2と異なる1F特有な反応
  - (1) 海水塩との高温反応
  - (2) 制御棒材料( $B_4C$ )との高温反応
  - (3) コンクリートとの高温反応(MCCI)
  
- ◆ 把握すべきデブリ特性
  - ✓ 機械特性
  - ✓ 熱特性
  - ✓ 急冷時の影響
  - ✓ Pu含有の影響
  - ✓ Gdの分布、等

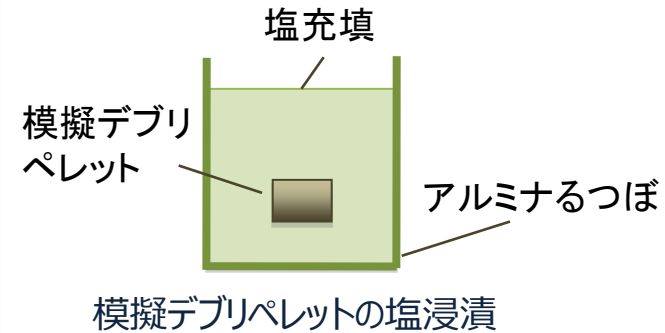
⇒ 模擬デブリ、TMI-2デブリ等を用いて、実験的に確認。



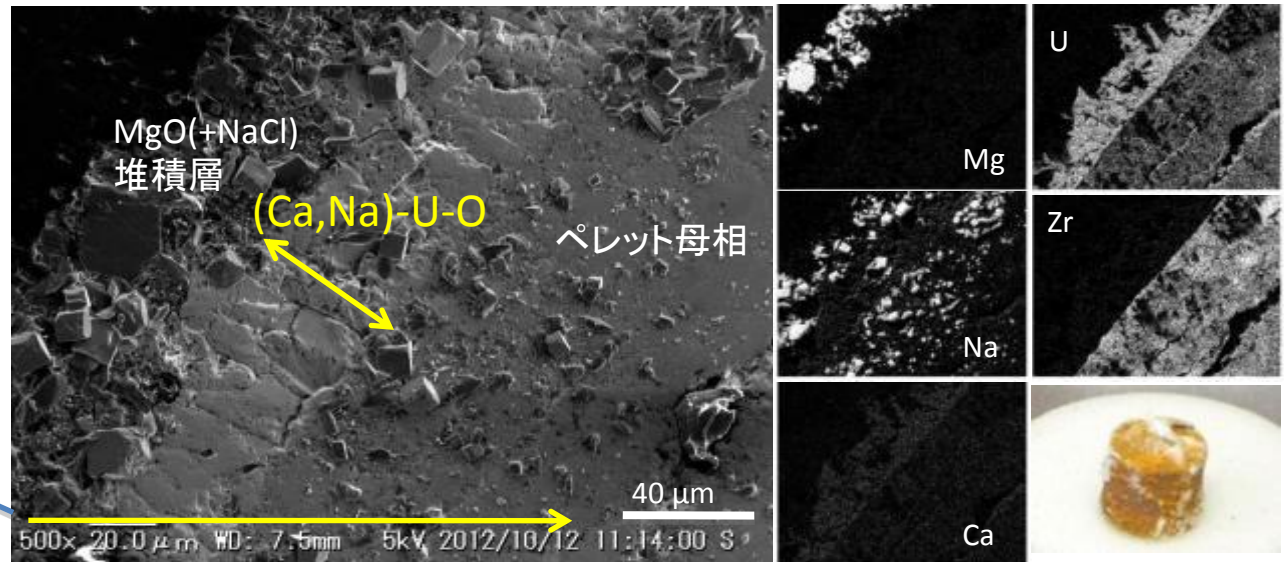
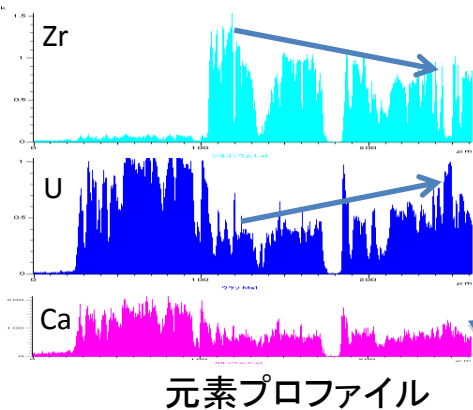
### 3. デブリ特性データの取得 (海水塩との高温反応)

デブリ表面で海水が蒸発して塩が析出した状況を想定した基礎データを取得。

- 蒸固した海水塩に $(U,Zr)O_2$  模擬デブリペレットを浸漬し、 $815 - 1395^\circ\text{C}$ で保持
- 表面にCa(+Na)の緻密なウラン酸塩層が生成  
 $\text{Ca/Na/U} \rightarrow (\text{Ca,Na})\text{UO}_{4-x}$  or  $\text{CaNaU}_2\text{O}_{7-x}$
- Uが選択的に反応し、ペレット表層近傍では濃度勾配



例:  $(U_{0.4}, Zr_{0.6})O_2$  - 海水塩



$(U_{0.4}Zr_{0.6})O_2$  模擬デブリペレット断面のSEM像及びX線像 (空气中、 $1002^\circ\text{C}$ 、12h)

# 3. デブリ特性データの取得 (B<sub>4</sub>Cとの高温反応)

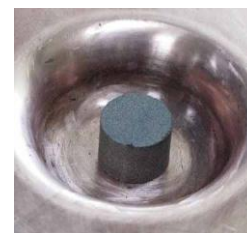
炉心溶融固化物を想定 (燃料集合体+B<sub>4</sub>C制御棒)

大 ← B<sub>4</sub>C/金属Zr比 → 小

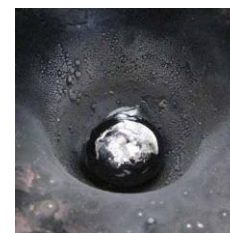
セラミック部分



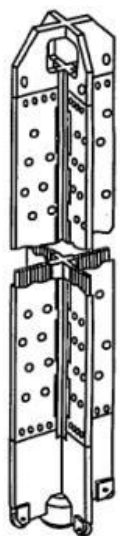
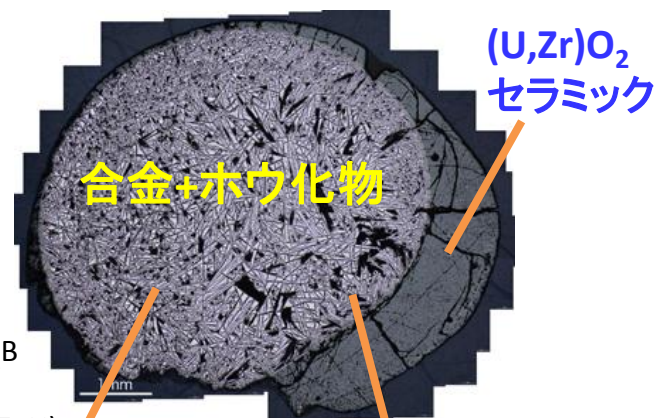
金属質部分



混合物成形体

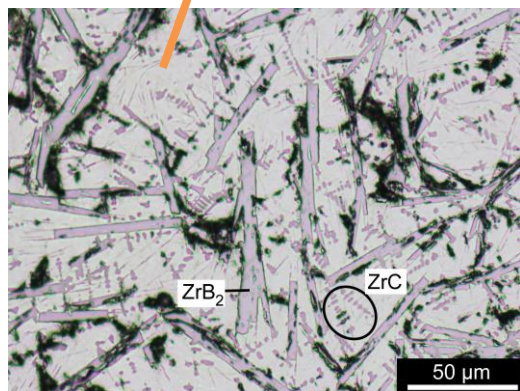


溶融固化物



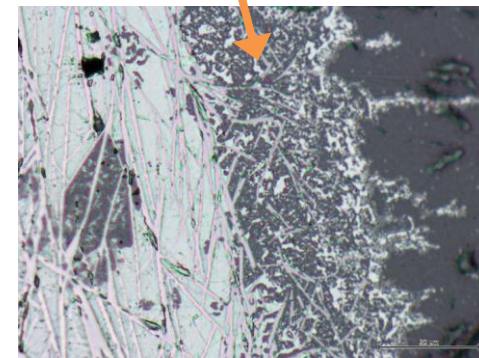
制御棒

母相合金: (Fe,Cr,Ni)<sub>2</sub>Zr



Fe<sub>2</sub>Zr型  
金属間化合物組成

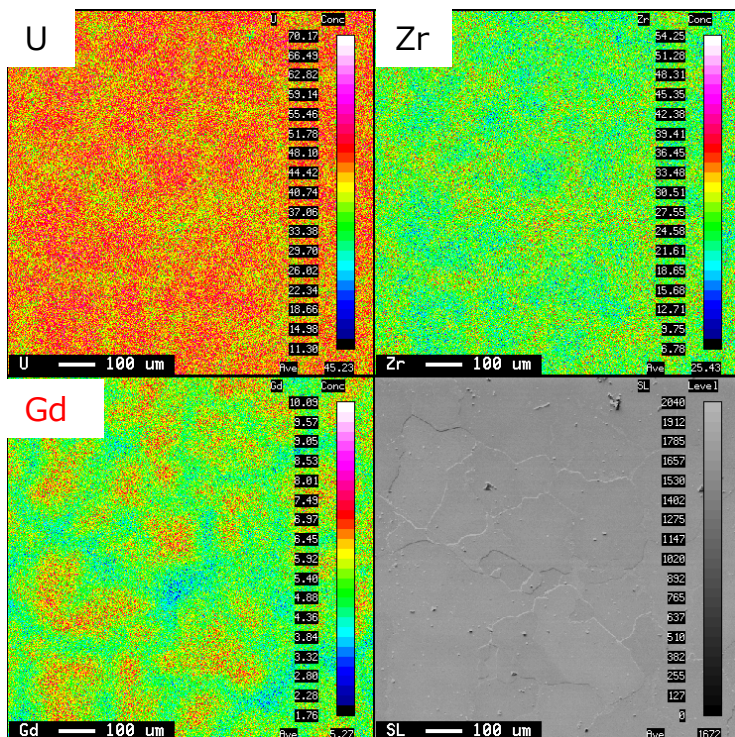
- 1: ZrB<sub>2</sub>
- 2: (Fe,Cr,Ni)<sub>2</sub>B
- 3: Fe-Cr-Ni
- 4: Fe-Cr-Ni-(Zr,U)



B<sub>4</sub>C/SUS/Zrの溶融固化物の例

B<sub>4</sub>C/SUS/Zr/(U,Zr)O<sub>2</sub>の溶融固化物の例

### 3. デブリ特性データの取得 (デブリ中のGd状況)



Gdの分布状態 (O/M=1.993)

O/M(試料調製後)	O/M(溶融後)
1.976	1.989
1.987	1.993



O/M=1.993  
(溶融後)



O/M=1.989  
(溶融後)

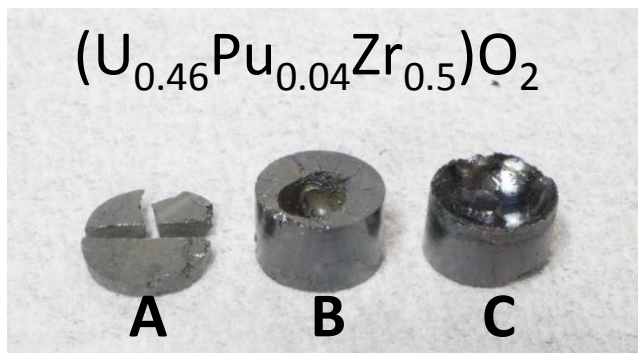


- 面分析結果と $UO_2-ZrO_2$ 状態図から、立方晶+正方晶の2相が存在すると推定されるが、その領域は数十 $\mu m$ であり、マクロ的には均質といえる。
- 2相のGdの濃度差は小さい。

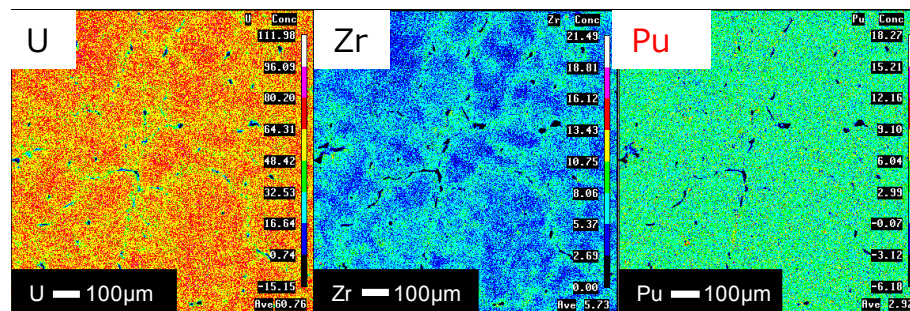
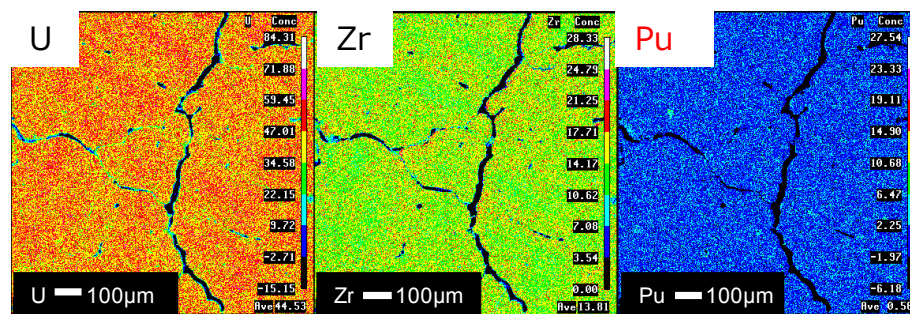
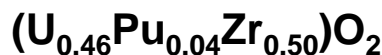
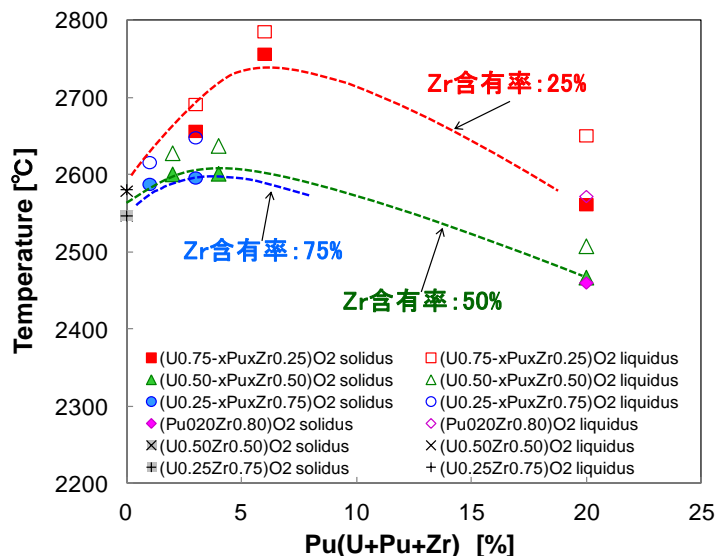


U-Zr-Gd-O系の燃料デブリ中ではGdの偏在はほぼないと想定される。

### 3. デブリ特性データの取得 (デブリ中のPu状況)

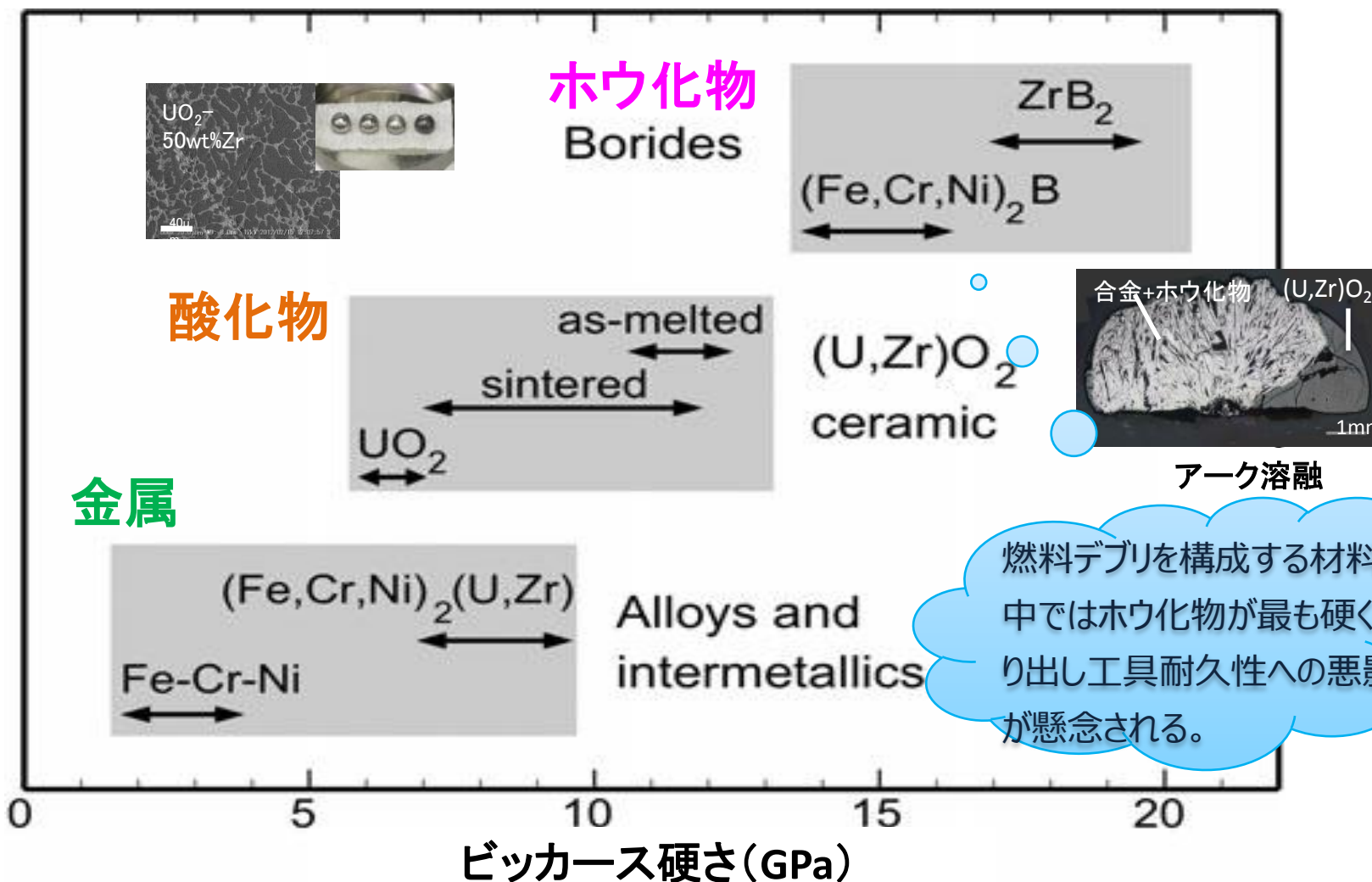


MOX模擬デブリ



- 熔融後の試料は、Pu濃度の異なる領域が数十µmの範囲で存在するが、マクロ的には均一である。
- Pu含有量が10%以下での極大値を示す。これはZr含有の影響と想定される。
- 熔融・固化後の試料の物性（熱伝導率等）に対するPu含有の影響はほとんどなかった。

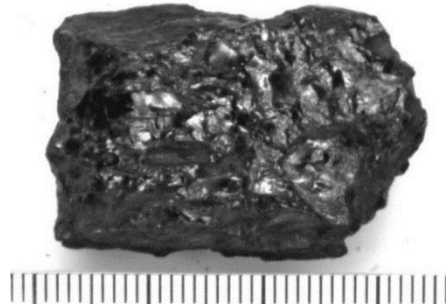
### 3. デブリ特性データの取得 (ビッカース硬度)



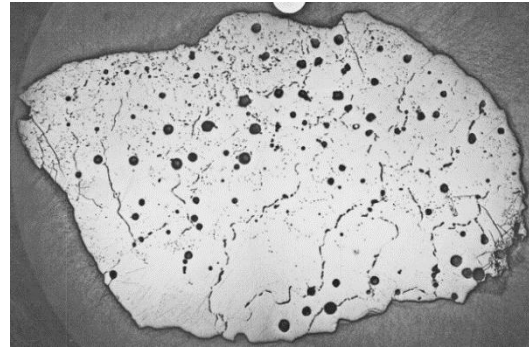
# 3. デブリ特性データの取得 (TMI-2デブリの概観)

燃料デブリ概観写真

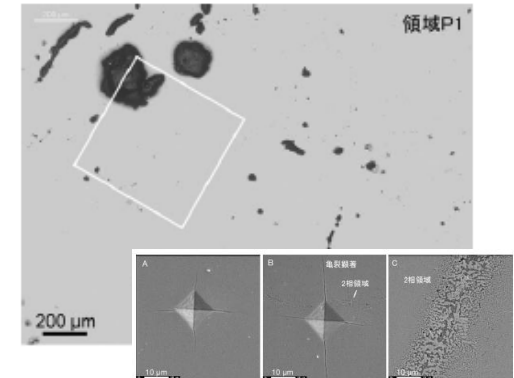
上部クラスト



切断面全体像  
(光学顕微鏡画像)

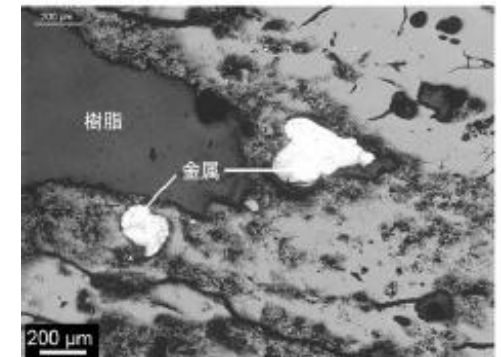
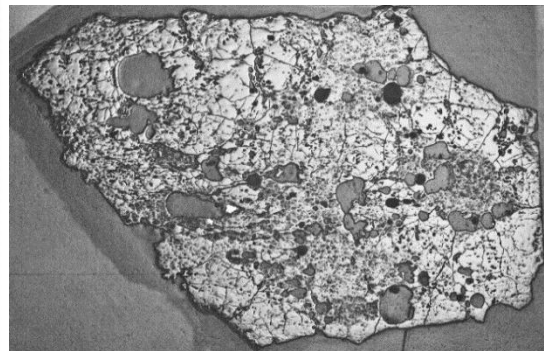


拡大像  
(光学顕微鏡画像)

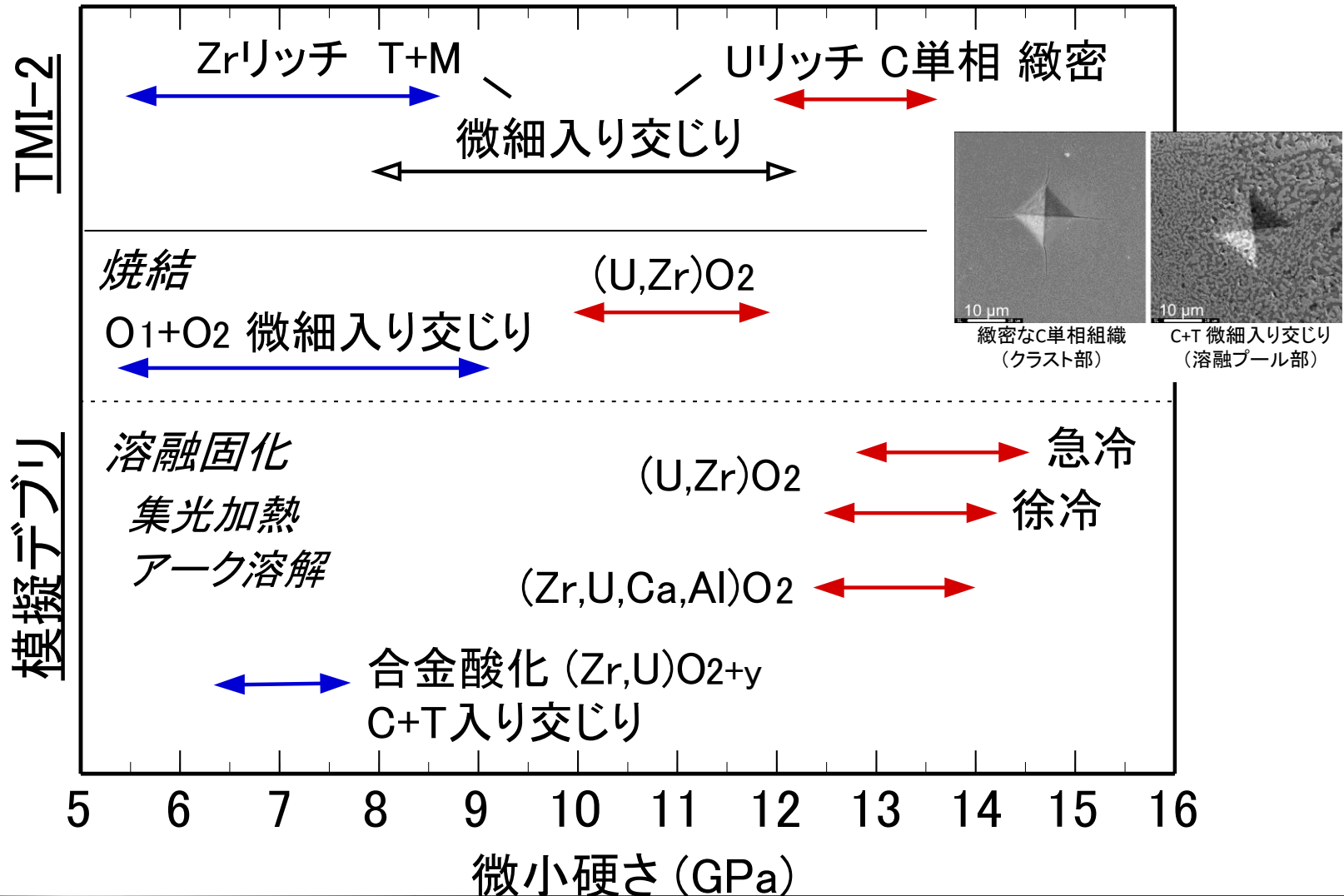


ビッカース硬度計による圧痕  
(SEM画像)

溶融プール



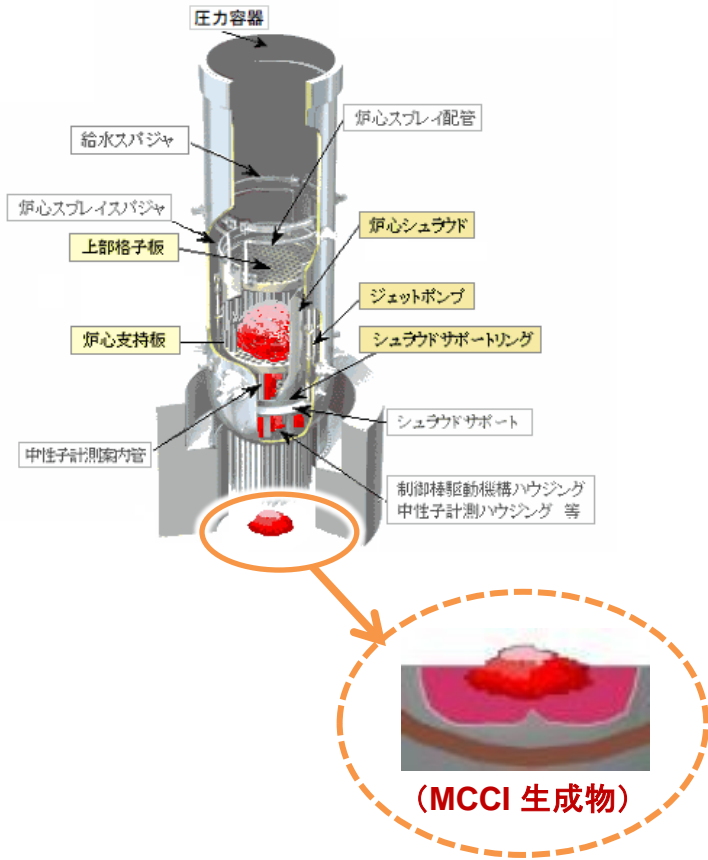
### 3. デブリ特性データの取得 (TMI-2デブリの硬度)



# 3. デブリ特性データの取得 (MCCI生成物の特性評価)

## MCCI 生成物

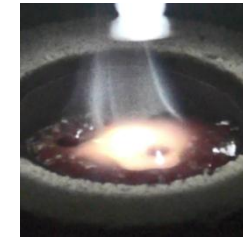
(溶融炉心・コンクリート反応)



(MCCI 生成物)

## 基礎研究

- ✓ アーク溶融や集光加熱によるMCCI反応の把握、基礎データの取得



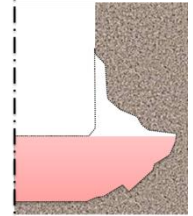
集光加熱による溶融反応



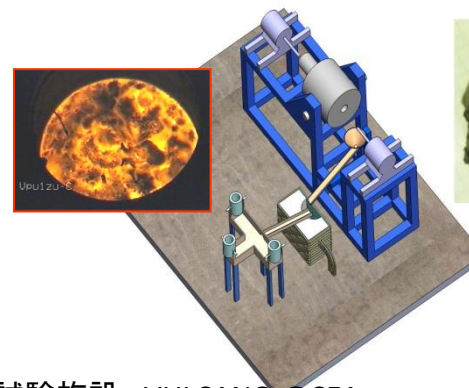
## 海外叡智の活用

(仏国CEAとの共同研究)

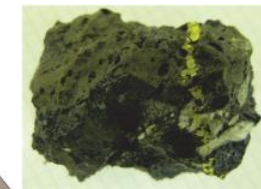
- ✓ 計算シミュレーションによる推測
- ✓ 過去のVULCANO試験サンプルの分析



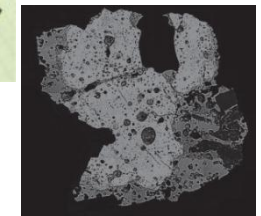
TOLBIAC-ICBIによる  
コンクリート浸食状況



MCCI試験施設: VULCANO @CEA



MCCI試料

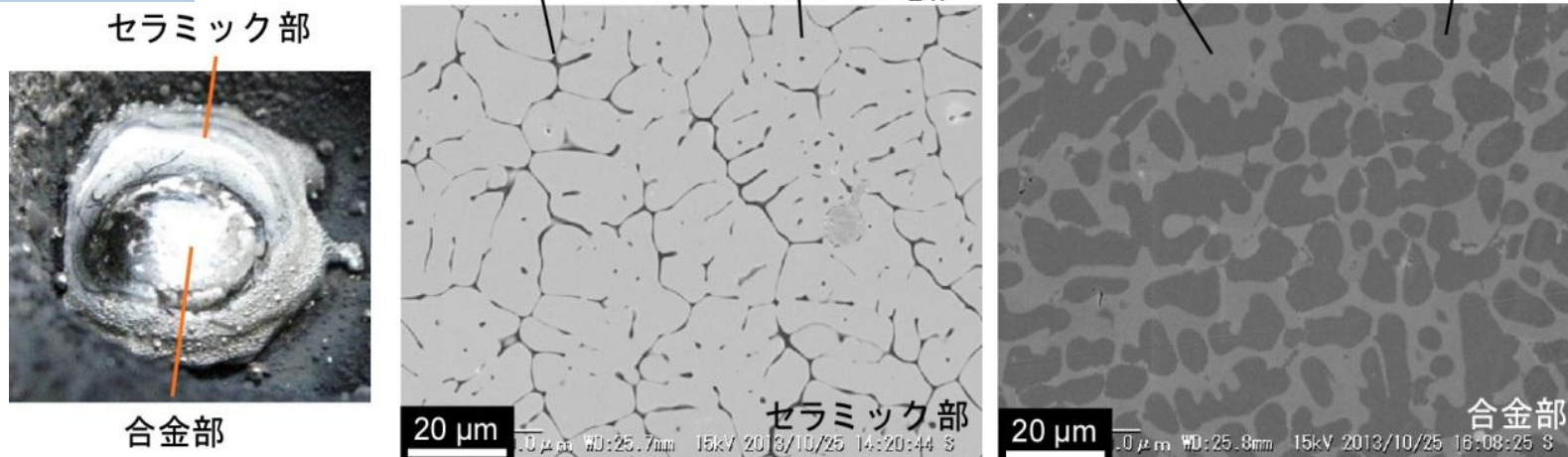


SEM/EDS分析



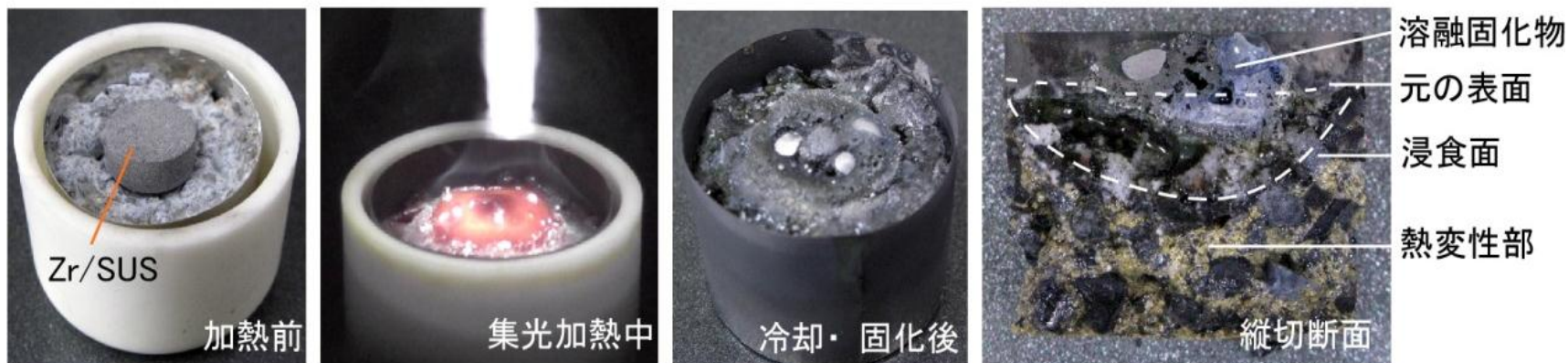
# 3. デブリ特性データの取得 (コンクリートの反応)

## アーク溶融



(a) モルタル/Fe/Zr/(U,Zr)O<sub>2</sub>混合物をアーク溶解して得た模擬MCCI生成物の外観と断面観察像

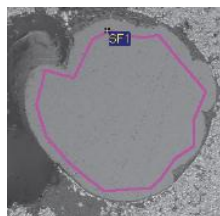
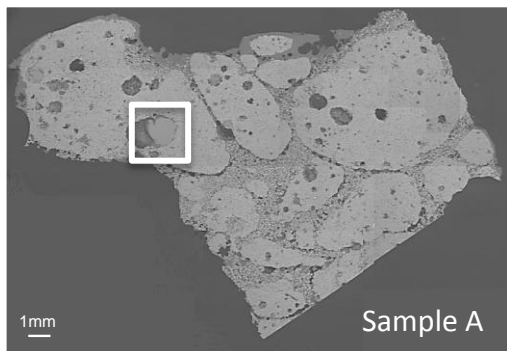
## 集光加熱溶融



(b) コンクリート上でZr/SUS混合物を集光加熱した際の様子と断面写真

# 3. デブリ特性データの取得 (マクロ特性 : MCCI生成物)

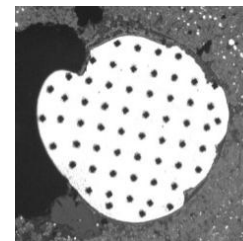
◆ 最も硬さの小さい箇所 ⇒ 酸化物中の析出金属



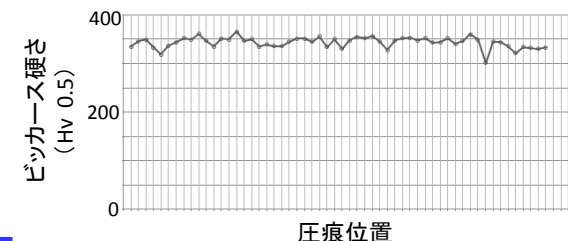
EDS分析結果

Element	At%	Wt%
O	11.5	3.6
Cr	4.3	4.4
Fe	76.2	82.9
Ni	7.2	8.2
Cu	0.7	0.9

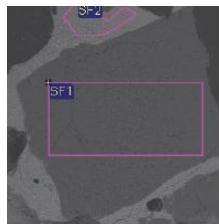
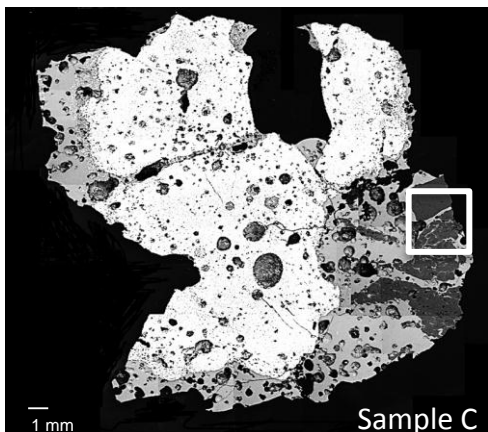
ビッカース硬さ測定結果 (Hv 0.5)



Mean	343
Max.	366
Min	301
S.D.	11
Extent	65



◆ 最も硬さの大きい箇所 ⇒ コンクリート由来のケイ素酸化物



EDS分析結果

Element	At%	Wt%
O	68.7	55.6
Na		
Mg		
Al	0.2	0.2
Si	31.2	44.3
Ca		
Cr		
Fe		
Zr		
U		

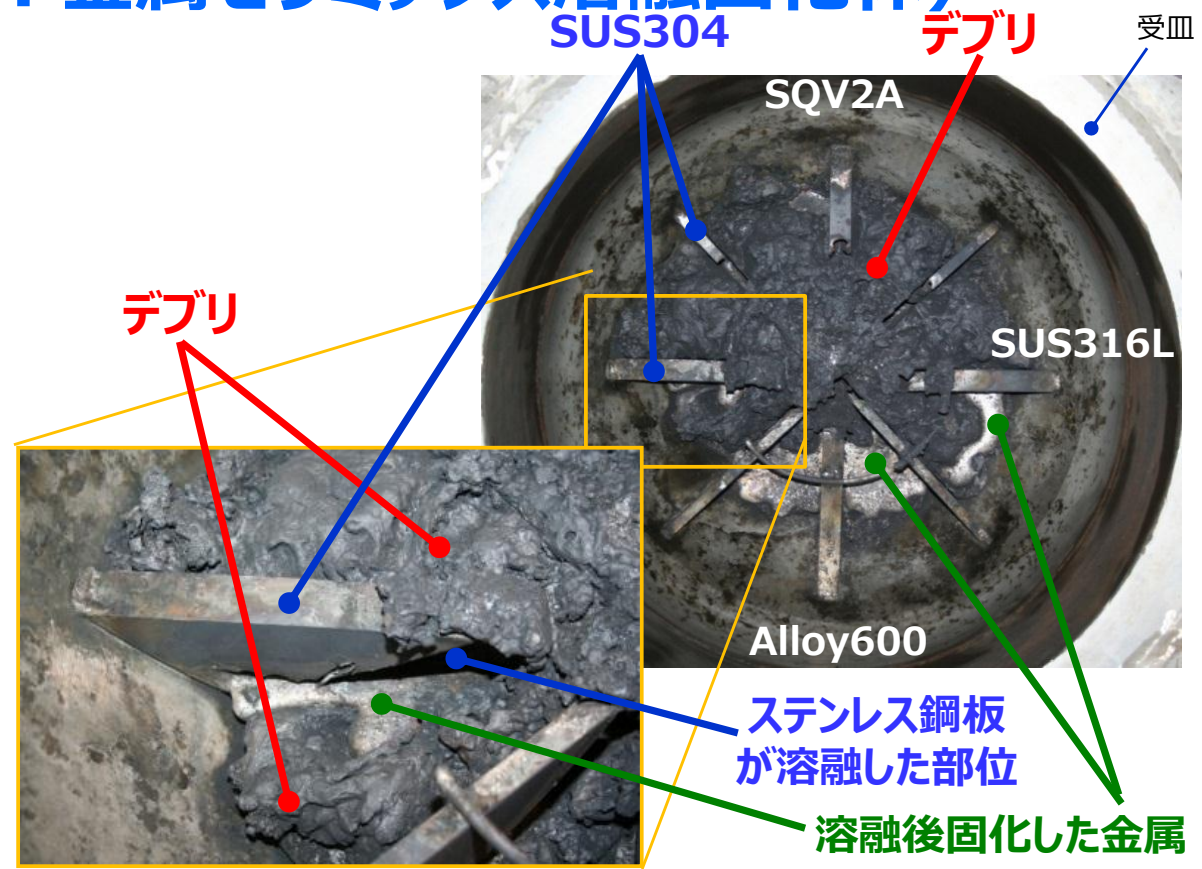
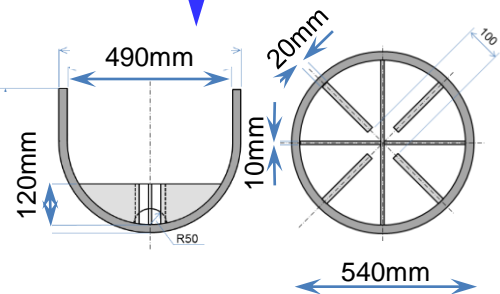
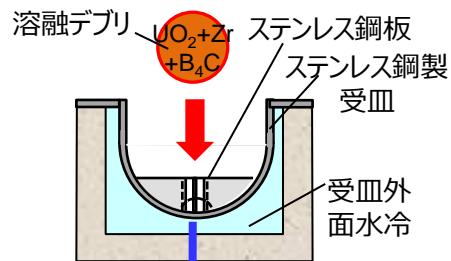
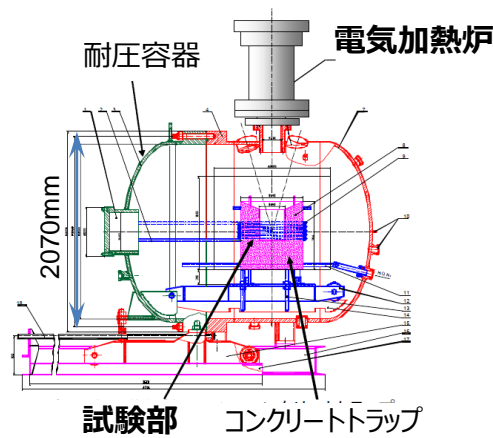


ビッカース硬さ測定結果 (Hv 0.5)

Mean	~1500
------	-------

※ 測定できたのが2か所のみ

# 3. デブリ特性データの取得 (マクロ特性：金属セラミックス溶融固化体)

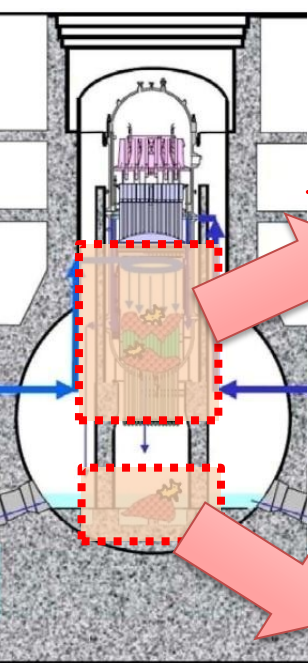


- ・デブリ成分：71.5wt%UO<sub>2</sub>-27.8wt%Zr-0.7wt%B<sub>4</sub>C (重量60kg)
- ・加熱温度：約2500℃ ・雰囲気：Arガス中
- ・受皿内の材料：SUS304, SUS316L, Alloy600, SQV2A

金属とセラミックスの不均質な溶融固化体を製作し、その特性を把握した。⇒今後冷却速度を変更した試験を実施。

# 4. デブリ特性リストの整備 (マイクロ特性データ取得)

物性値	理論密度 (g/cm <sup>3</sup> )	ビッカース硬さ (GPa)	弾性率 (GPa)	破壊じん性 (MPa m <sup>1/2</sup> )	熱伝導率 (W/mK)	比熱 (J/g K)	融点 (°C)
<b>【RPV内部】</b>							
<b>Oxide</b>							
UO <sub>2</sub>	11	4-6	190	0-2	10	0.28	2850
ZrO <sub>2</sub> -T	6	9-12	200	0-10	1-3	0.61	(tr.)
(U,Zr)O <sub>2</sub> -C	6-11	6-14	140-220	0-3	1-10	0.3-0.6	2500-2900
(U,Zr)O <sub>2</sub> -T	6-11	6-11	150-200	0-8	1-3	0.5-0.6	(tr.)
(U,Zr)O <sub>2</sub> -M	6	3-4	150-200	0-2	1-3	0.6-0.6	(tr.)
<b>Metallic</b>							
Zry-2	7	1-3	60-110	110-150	10-25	0.3	1850
α-Zr(O)	7	1-11	100-180	120-150	23	0.3	1850
Fe	8	2-4	200	5-200	80	0.4	1075-1535
Fe <sub>2</sub> (Zr,U)	7-8	7-9	160-220	1-3	80	0.4	1500
<b>Other Ceramic</b>							
B <sub>4</sub> C	2.5	24	450	0-5	29	2.3	2450
ZrB <sub>2</sub>	6.1	22	440	0-20	24	0.7	3040
Fe <sub>2</sub> B	7.4	16	200	0-20	24	0.6	1389
<b>【ペDESTAL】</b>							
<b>MCCI product</b>							
Si rich oxide (mainly SiO <sub>2</sub> )	3	10-15	100	0-1	1	10	1600
Si rich oxide (incl. Ca, Cr)	3	4-9	100	0-1	1	10	1600
U rich oxide	6-11	4-9	140-220	0-3	1-10	0.3-0.6	2400-2850
Zr rich oxide	6-7	4-9	150-200	0-8	1-3	0.5-0.6	2500-2850
Cr rich oxide	5	4-9	100-400	0-7	10-33	0.7	2400
(U,Zr)SiO <sub>4</sub>	4-9	11	150-180	0-2	6	0.5-0.8	2500

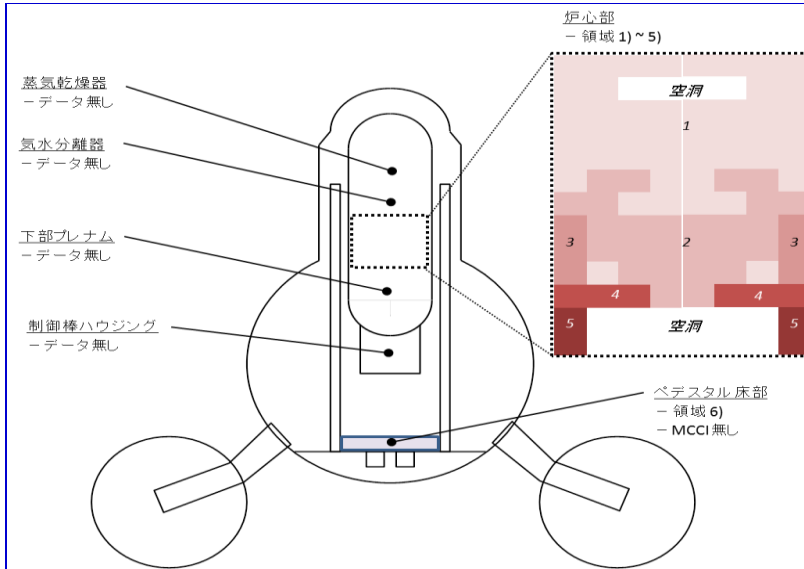


※ Ref. TEPCO Home Page (2013.12.13)  
<http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/series/index-j.html>

機能的特性 (Mechanical Properties)      熱的特性 (Thermal Properties)

デブリ取出装置開発等へ反映 (Reflection to Debris Removal Device Development, etc.)

# 4. デブリ特性リストの整備 (全体概要)



ミクロ性状 (冷温停止後、室温付近での物性を想定)

分類 材質または相	理論密度 (g/cm <sup>3</sup> )	ピッカース硬さ (GPa)	弾性率 (GPa)	破壊じん性 (MPa m <sup>1/2</sup> )	熱伝導率 (W/mK)	比熱 (J/g K)	融点 (°C)
<b>酸化物</b>							
UO <sub>2</sub>	11.0	5.9	193	0 - 1.5	10	0.28	2850
ZrO <sub>2</sub> -C	6.1	15	200	0 - 10	1 - 3	0.61	2700
ZrO <sub>2</sub> -T	5.9	11	200	0 - 10	1 - 3	0.61	(tr.)
ZrO <sub>2</sub> -M	5.8	11	200	0 - 10	1 - 3	0.61	(tr.)
(U,Zr)O <sub>2</sub> -C	6.1 - 11.0	5.9 - 11	200	0 - 3.0	1 - 3	0.28 - 0.61	2500 - 2850
(U,Zr)O <sub>2</sub> -T	5.9 - 7.4	5.9 - 11	200	0 - 3.0	1 - 3	0.51 - 0.61	(tr.)
(U,Zr)O <sub>2</sub> -M	5.8 - 6.3	5.9 - 11	200	0 - 3.0	1 - 3	0.58 - 0.61	(tr.)
SiO <sub>2</sub>	2.7	13	100	0 - 0.7	1.0	1.25	1710
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.0	27	409	0 - 7.0	25	1.22	2000
CaO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> (glass)	2.2 - 2.4	11	74	0 - 1.2	1.4	0.77	1600
(U,Zr)SiO <sub>4</sub>	4.6 - 8.0	11	111	0 - 1.2	1.2	0.45 - 0.82	2500
<b>金属</b>							
Zry-2	6.5	2.4	100	0 - 20	23	0.28	1850
α-Zr	6.5	2.4	100	0 - 20	23	0.28	1850
Fe (austenite, γ-Fe)	8.0	2.2	200	0 - 200	80	0.44	1075 - 1535
Fe (ferrite, α-Fe)	8.0	2.2	200	0 - 200	80	0.44	1075 - 1535
Fe (martensite)	8.0	2.3	200	0 - 200	80	0.44	1075 - 1535
Fe <sub>3</sub> (Zr,U)	8.0	9	200	0 - 20	80	0.37	1500
<b>その他</b>							
B <sub>4</sub> C	2.5	24	450	0 - 5.0	29	2.26	2450
ZrB <sub>2</sub>	6.1	22	440	0 - 2.0	24	0.66	3040
Fe <sub>2</sub> B	7.4	16	200	0 - 20	24	0.61	1389

ミクロ特性

マクロ性状 (冷温停止後、室温付近での物性を想定)

(補注) 2014年以降の仏国CEAとの協力によるMCCI関連試験によりMCCIに関する材質/相について硬さのデータが取得できる見込み。(別紙参照)

領域	質量	材質または相	予想される形状	寸法	空隙率	含水率	H2発生G値	圧縮強度	U/Pu濃度	SUS混合率	B <sub>4</sub> C混合率	Gd混合率	U濃縮度	塩分濃度
酸化物		(U,Zr)O <sub>2</sub> -C	未溶融物破片、小岩石状デブリ				0 - 0.3		80	0.050	0	0.0034		
2) 中心部A														
酸化物		ZrO <sub>2</sub> -M, (U,Zr)O <sub>2</sub> -C/T	クラスト、溶融固化物、小岩石状デブリ				0 - 12		68	0.51	0.83	0.0043		
その他		B <sub>4</sub> C												
3) 中心部B														
酸化物		ZrO <sub>2</sub> -M, (U,Zr)O <sub>2</sub> -C/T	クラスト、溶融固化物、小岩石状デブリ				0 - 12		43	33	0.60	0.0027		
金属		Fe												
その他		B <sub>4</sub> C												
4) 下部(炉心支持板)								0.50 [湿式]	0 - 250				1.87	0.10
酸化物		ZrO <sub>2</sub> -M, (U,Zr)O <sub>2</sub> -C/T	クラスト、溶融固化物、切り株状デブリ				0 - 16		18	41.7	0.0071	0.0011		
金属		Fe, Fe <sub>2</sub> (Zr,U)												
その他		B <sub>4</sub> C												
5) 下部(炉心支持板)														
酸化物		ZrO <sub>2</sub> -M, (U,Zr)O <sub>2</sub> -C/T	炉心支持板				0 - 11		0.61	98	0	0.00038		
金属		Fe												
6) ベDESTAL床部														
酸化物		ZrO <sub>2</sub> -M, (U,Zr)O <sub>2</sub> -C/T	粒子状デブリ、構造物破片				0 - 16		40	13	0.011	0.0025		
金属		α-Zr, Fe <sub>2</sub> (Zr,U)												
その他		B <sub>4</sub> C, ZrB <sub>2</sub> , Fe <sub>2</sub> B												

マクロ特性

(注1) 有効数字2桁

(補注) 2014年以降の仏国CEAとの協力によるMCCI関連試験によりMCCIに関する材質/相、空隙率に関するデータが取得できる見込み。(別紙参照)

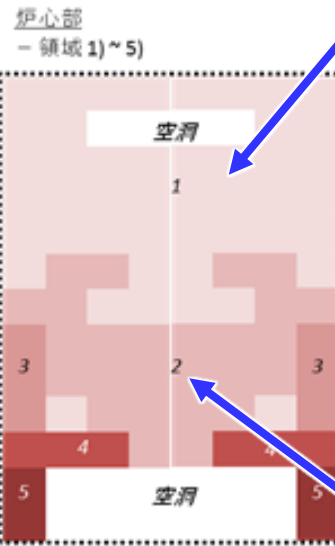
(注2) 予想される形状および寸法については、事故進展シナリオが不明な状態での粗い想定による。

H26年度実施項目に係る内容

# 5. 取出しに向けたデブリ情報の整理

## (炉内デブリ)

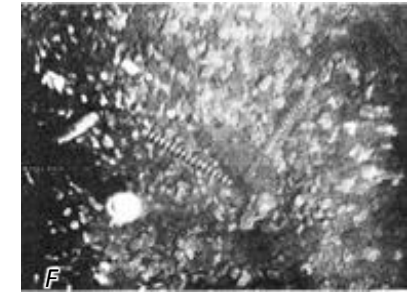
溶融した上部プレナム部等



ルースデブリ

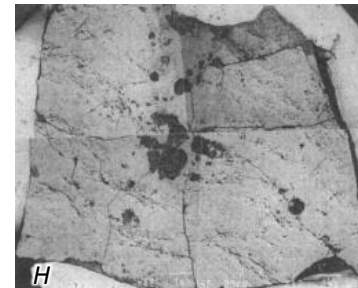


カザフスタンNNC大型試験により取得中

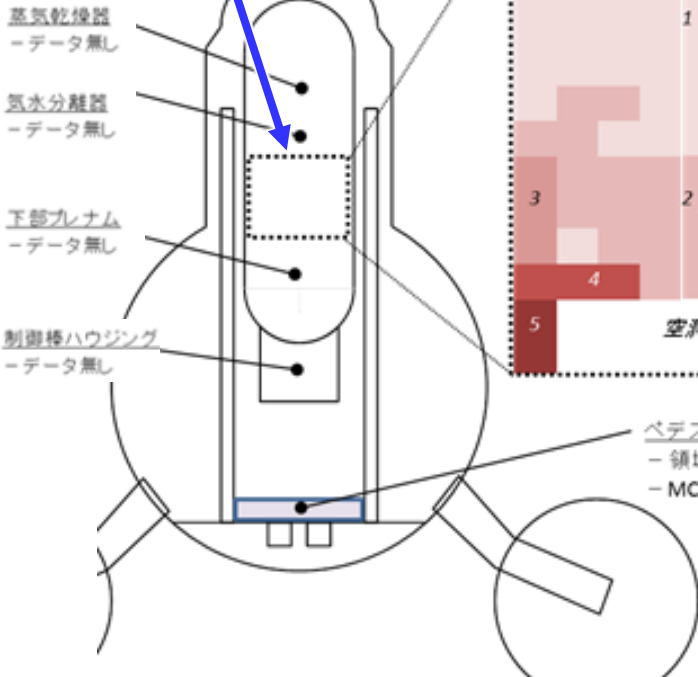
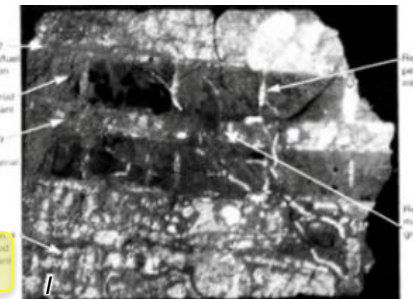


上部クラスト

溶融固化物  
(溶融プール)



下部クラスト



炉内状況把握PJで実施したSAMPSON解析結果に対して、TMI-2 事故事例を元に1F2号機の炉内状況を暫定的に仮定した。

[Ref] D.F: L. M. Toth, et. al "The Three Mile Island Accident", 1986 American Chemical Society, Volume 293  
E.G.H.I: R.K.McCardell, Summary of TMI-2 Core Sample Examinations(1990), Nuclear Engineering and Design 118 (1990)

# 5. 取出しに向けたデブリ情報の整理

# (MCCI生成物)

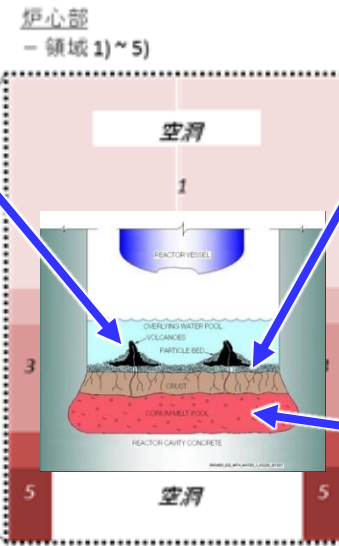
フランスCEA大型試験により取得中



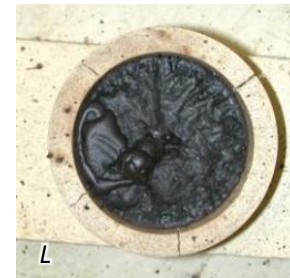
火山状MCCI生成物



微粉状MCCI生成物



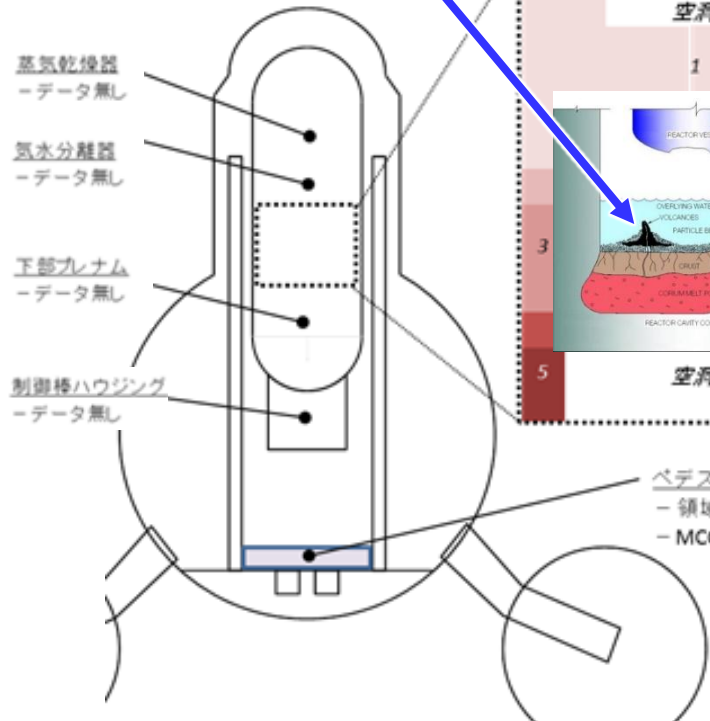
塊状MCCI生成物



MCCI生成物 (上部外観)



MCCI生成物 (縦断面外観)



炉内状況把握PJで実施したSAMPSON解析結果に対して、TIM-2 事故事例を元に1F2号機の炉内状況を暫定的に仮定した。

[Ref]  
 J: C. Journeau et al., Oxide-Metal Corium –Concrete Interaction Test in the VULCANO Facility, Proceedings of ICAPP 2007, Nice, France, May 13-18, 2007, Paper 7328  
 K: M.T.Farmer (private communication)  
 L: M.T. Farmer, Thermite as a Validated Option to Melt Large Corium Masses, Plinius 2 International Seminar, Marseille, France May 16, 2014  
 M: M. T. Farmer et al., OECD MCCI Project 2-D Core Concrete Interaction (CCI) Tests:Final Report, February 28, 2006, OECD/MCCI-2005-TR05

## 6. まとめ

### ■ 炉内に存在する燃料デブリの推定

- RPV下部にはZr(O)やFe<sub>2</sub>(Zr,U)などの金属成分が多いと想定される

### ■ 模擬デブリによる特性把握

- 1F特有反応
  - 海水塩の影響: デブリ表面でのCa(+Na)のウラン酸塩相の形成等
  - B<sub>4</sub>C制御材の影響: 硬質な(Fe,Cr)<sub>2</sub>B、ZrB<sub>2</sub>が生成
  - Pu,Gdにより融点等への影響は少ない
- 主要な物性値
  - 主要デブリ組成の機械的特性を中心に基礎データを収集
  - ホウ化物の形成等による硬度増加の可能性(局所的)
  - 金属含有デブリの生成が多い
  - MCCIによりケイ酸化合物の形成

### ■ デブリ特性リストの構築(H27年度末とりまとめ予定)

- 得られた物性値を集約して1F特性リストを構築中
  - ⇒ 炉内デブリ状況の推定、廃止措置作業への反映