

平成28年度補正予算  
「廃炉・汚染水対策事業費補助金  
(燃料デブリの性状把握・分析技術の開発)」  
平成30年度実施分成果

令和元年7月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 (IRID)

# 目次

1. 研究の背景・目的
2. 目標
3. 実施項目と他事業との関連
4. 実施スケジュール
5. 実施体制
6. 実施内容

# 1. 研究の背景・目的

## 研究の背景

福島第一原子力発電所（1F）事故後、スリーマイル島原子力発電所2号機（TMI-2）事故情報、シビアアクシデント（SA）研究情報等の過去の知見および1F事故に関する情報の調査、整理 (2011-2012)

- ✓ TMI-2事故事例や海外のSA研究では**沸騰水型原子炉（BWR）**に関する知見は少ない。
- ✓ 海水影響や溶融炉心・コンクリート反応（MCCI）等の**1F特有事象に関する燃料デブリ情報が少ない。**

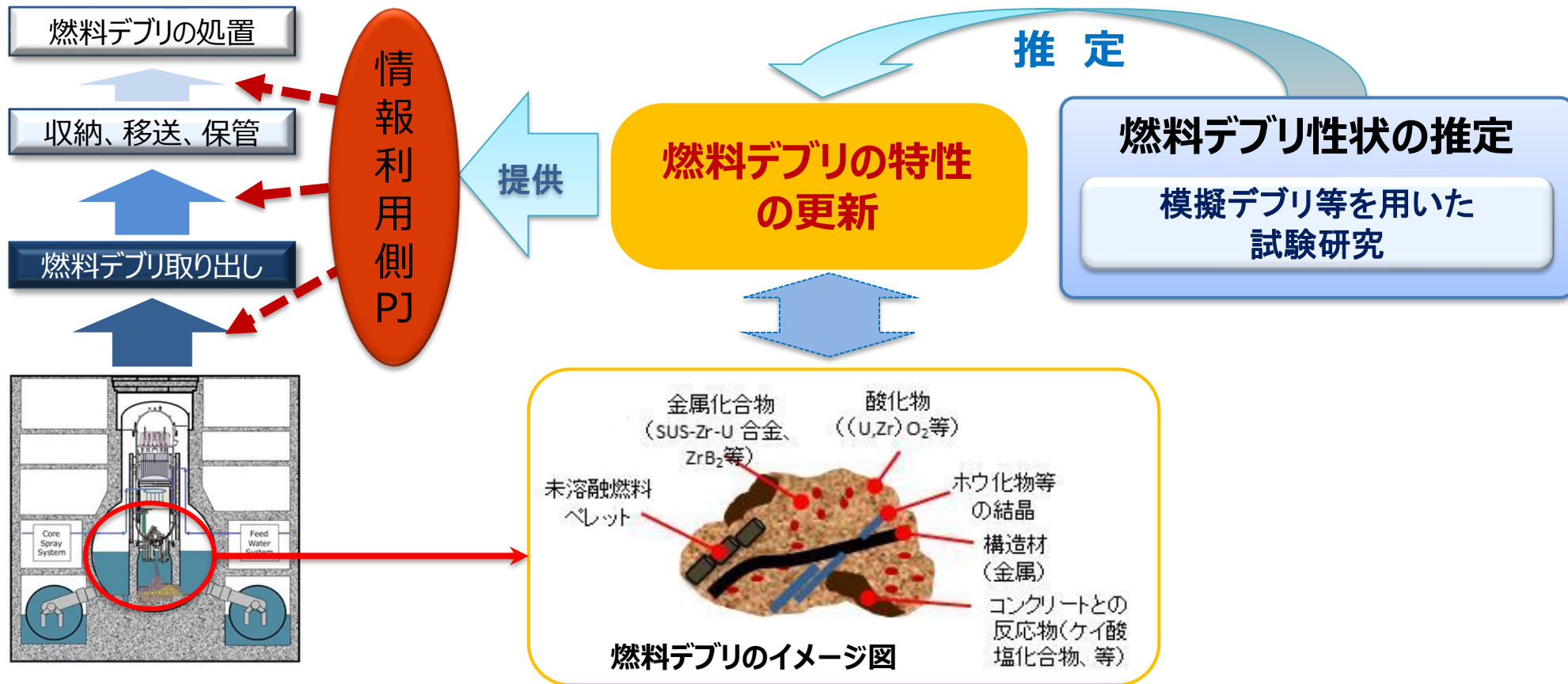


- 廃炉（取り出し、臨界管理、収納・移送・保管、計量管理、最終的取扱）を安全・着実、かつ迅速に実施するためには、**技術開発に利用できる燃料デブリ情報の整理とその提供が必要である。**
- 初期段階で、燃料デブリに関する正確な情報が得られないとすれば、**既存の国内外の知見や研究開発を元に燃料デブリ情報を設定（仮定）する必要がある。**なお、本情報は研究開発者及び実務作業員間で更新していくことが必要である。
- 収集すべき具体的な燃料デブリ情報については、**情報を利用する側プロジェクト（取り出し工法・基盤、収納・移送・保管、臨界管理等（以下「情報利用側PJ」という））のニーズ・時期を十分に整理、確認しつつ進める必要がある。**

# 1. 研究の背景・目的

研究の目的 (1) 燃料デブリ性状の推定 (2) 模擬デブリを活用した特性評価

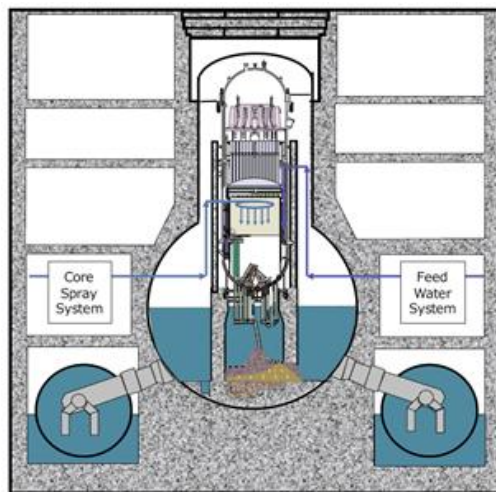
**【目的】** 研究成果を「燃料デブリの特性リスト」へ反映し、更新された情報を情報利用側PJに提供する



# 1. 研究の背景・目的

## 研究の目的 (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

【目的】 燃料デブリの分析を迅速・確実に実施するため、分析技術の開発及び分析施設への輸送方法を検討する。



燃料デブリ取り出し

燃料デブリ  
サンプリング

微量  
サンプル

回収燃料デブリのうち  
分析サンプル

一時保管

輸 送

燃料デブリの性状把握・分析技術の開発プロジェクトの所掌範囲

- 輸送検討

- 既存分析施設の受入検討

- 分析要素技術の開発

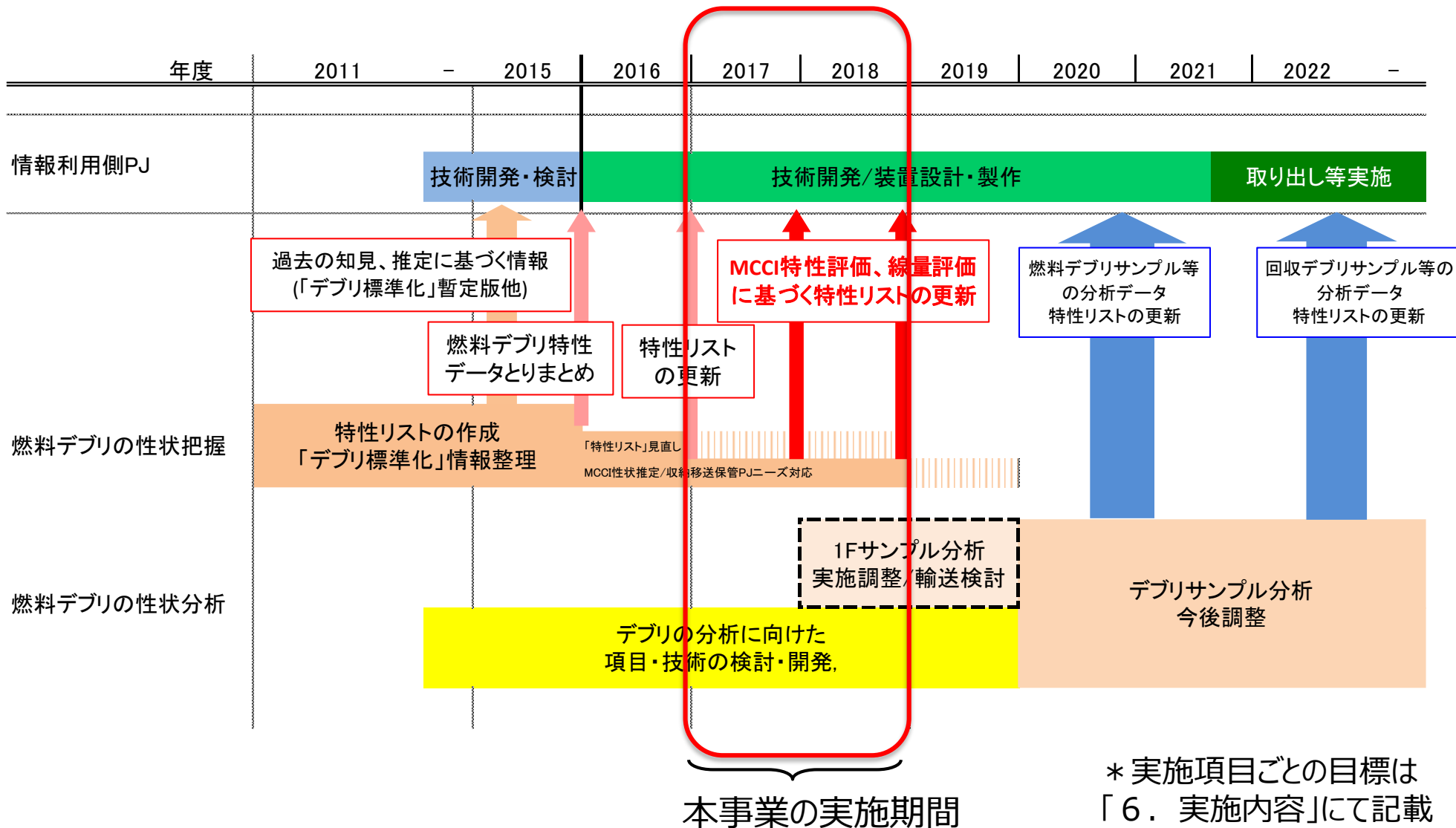
- 分析技術の開発

- 分析要領作成

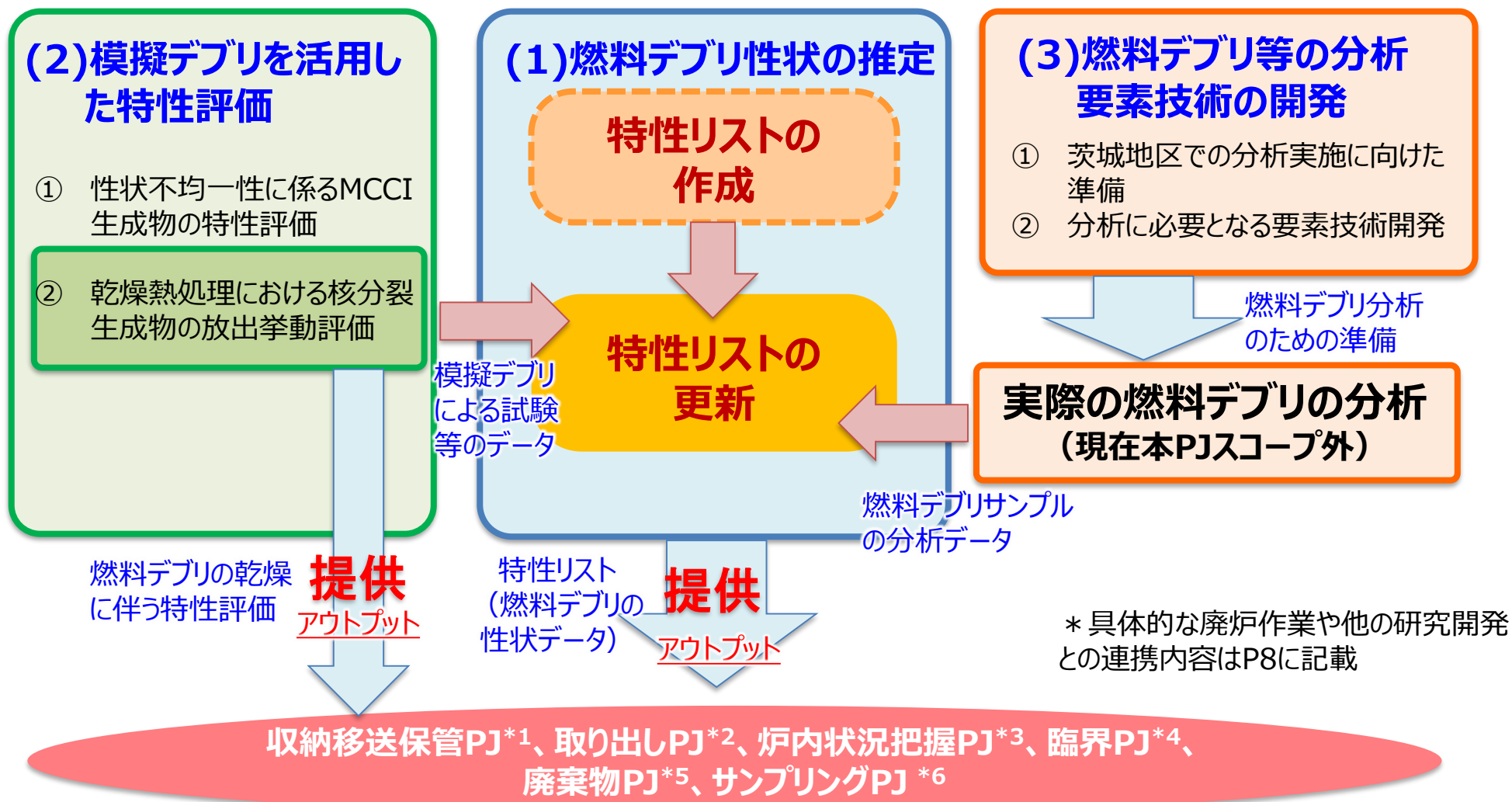


既存分析施設

## 2. 目標 実施範囲及び時期



### 3. 実施項目と他事業との関連



\*1: 燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発PJ、\*2: 燃料デブリ・炉内構造物の取り出し工法・システムの高度化PJ及び燃料デブリ・炉内構造物の取り出し基盤技術の高度化PJ、\*3: 総合的な炉内状況把握の高度化PJ、\*4: 燃料デブリ臨界管理技術の開発PJ、\*5: 固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発PJ、\*6: 燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けたサンプリング技術開発

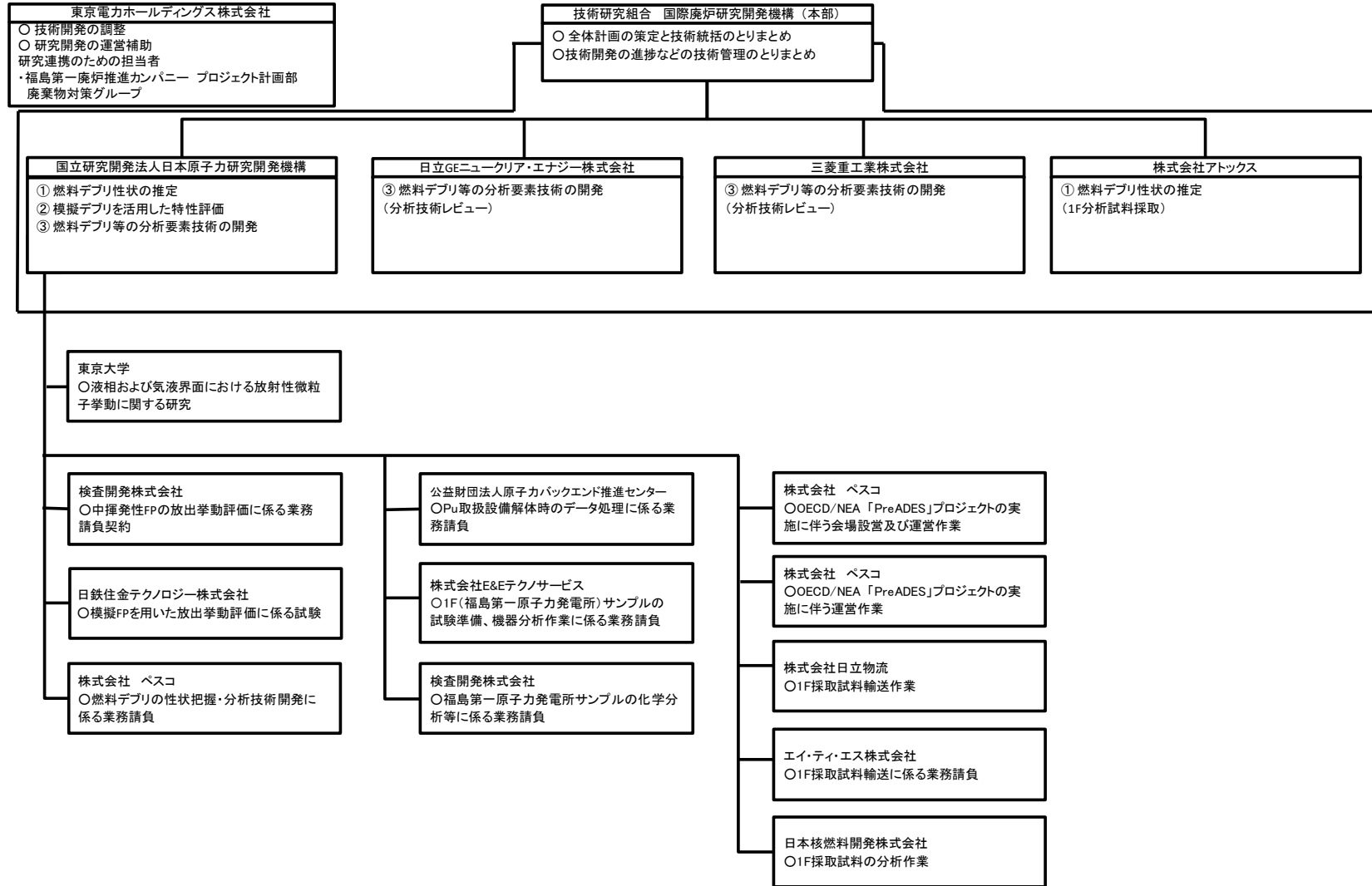
## 4. 実施スケジュール

### 平成29年度、平成30年度 全体実施概要/スケジュール

|                          | 平成29年度 | 平成30年度       |
|--------------------------|--------|--------------|
| (1)燃料デブリ性状の推定            |        | ▽特性リスト更新 更新▽ |
| (2)模擬デブリを活用した特性評価        |        |              |
| ①性状不均一MCCI生成物の特性評価       |        |              |
| ②乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価  |        |              |
| (3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発      |        |              |
| ①燃料デブリサンプル分析の実施準備        |        |              |
| ②分析に必要となる要素技術開発          |        |              |
| a.燃料デブリの溶解及び多元素分析手法の開発   |        |              |
| b.X線CTによる燃料デブリ分析技術の開発    |        |              |
| c.ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発 |        |              |
| d.燃料デブリサンプルの輸送に係る検討      |        |              |
| ③分析技術レビュー                | (適宜)   | (適宜)         |



# 5. 実施体制 平成30年度



## 6. 実施内容

### (1) 燃料デブリの性状の推定 (燃料デブリ特性リストの更新)

- ・デブリ表面付近の線量率推定
- ・放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価
- ・1F炉内付着物の性状データの採取・評価

### (2) 模擬デブリを活用した特性評価

- ① 乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

- ① 燃料デブリサンプル分析の実施準備
- ② 分析に必要な要素技術開発
  - a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発
  - b. 燃料デブリサンプルの輸送に係る検討

## (1) 燃料デブリ性状の推定（燃料デブリ特性リストの更新）

### ●燃料デブリ性状の推定（燃料デブリ特性リストの更新）（平成29年度、平成30年度）

適切な条件を設定した上で、燃料デブリ表面付近の線量率を推定する。

線量率評価を含めた最新の成果は、燃料デブリ特性リスト（平成28年度版）に反映する。

また、微粒子の飛散挙動についての評価を行い、挙動データを本特性リストに反映する。

さらに、1Fの炉内調査等で採取された炉内付着物の分析を行い、性状の情報を特性リストに反映する。

#### 【目標達成を判断する指標】

- 平成29年度に得られた新たな知見に基づき「燃料デブリ特性リスト」が更新されていること。(平成29年度末)【達成】
- 平成30年度に得られた新たな知見に基づき「燃料デブリ特性リスト」が更新されていること。(平成30年度末)【達成】
- デブリ表面付近の線量率が推定されていること (平成30年度末)【達成】
- 放射性微粒子の移行に関するデータが取得され、挙動の評価がされていること。(平成30年度末)【達成】
- 炉内付着物のデータが取得され、評価されていること。(平成30年度末)【達成】

### 平成30年度の成果反映

1. デブリ表面付近の線量率（以下「デブリ表面線量率」）の評価値
2. 気中・水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行に関するデータ/特性値
3. 炉内付着物のデータ/特性値

# (1) 燃料デブリ性状の推定 (デブリ表面線量率の評価)

燃料デブリを取り出すに当たり、燃料デブリの表面線量率の推定値は、取出し設備の遮へい設計、取出し作業時の作業員等の被ばく管理を考慮した作業計画 (遮蔽、作業時間等) を作成する上で重要である。

平成29年度

多様な元素組成に一元的に適用可能な表面線量率の評価式を試作し、表面線量率の試評価を実施した

平成30年度の展開

性状パラメータのケース数を増やして評価式を改良し、多様なケースでの燃料デブリ表面線量率を推定できるようにする。

## 評価手法

線源パラメータとデブリ性状パラメータを変化させた場合の表面線量率の計算を行い、線量率を決定する**最小限の支配因子**を決定する。

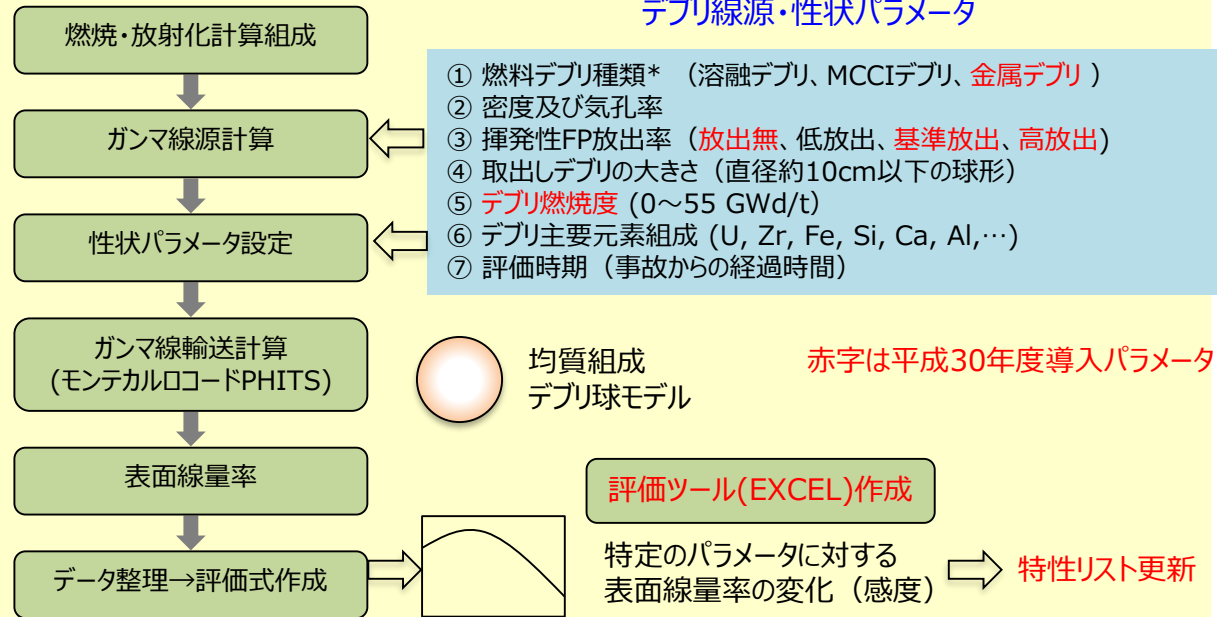
また、理論的考察に基づきデータを整理し、**多様な燃料デブリに適用できる表面線量率の改良評価式**を作成する。

デブリ性状パラメータに対する**感度を把握できる表面線量率評価ツール**を作成し、これを用いて特性リストを更新する。

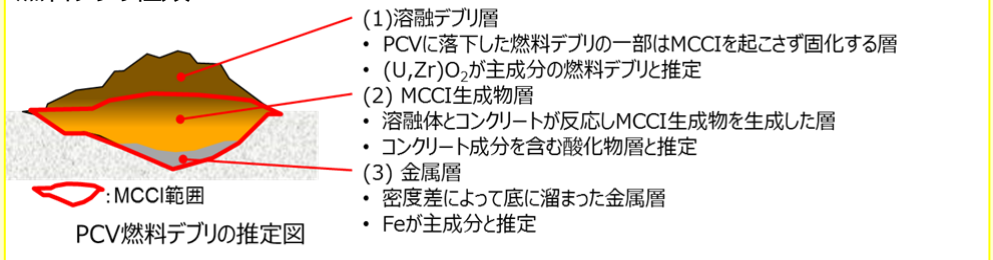
## 評価式の改良ポイント

- ① 号機や炉心平均組成を固定するモデル(マクロモデル)から線源核種別の評価式(マイクロモデル)へ変更
- ② 揮発性FP放出率( $f_i$ )を核種毎に変更可能
- ③ 号機に依存しない燃焼度パラメータの導入
- ④ ウランが含まれない場合の放射化線源項の導入
- ⑤ 分析値等の知見を反映できる補正係数( $g_i$ )の導入

- ・ 表現能力向上により多様なデブリへの適用性向上
- ・ デブリ表面線量率の物理的理解の促進
- ・ 分析結果等に基づく柔軟な評価式の見直し



## 燃料デブリ種類\*



# (1) 燃料デブリ性状の推定 (デブリ表面線量率の評価)

平成30年度の成果

表面線量率 $D(\text{Sv/h})^*$ の改良評価式を作成

\*周辺線量等量(1センチメートル線量等量率)

$$\underbrace{D(r, \rho, u, w_{Zr}, w_{Fe}, t, N_Z, B)}_{\text{表面線量率の支配因子}} = \sum_i g_i (1 - f_i/100) \cdot P_i(r, \rho, u, t, B) \cdot R_i(r, u, N_Z)$$

$^{137}\text{Cs}, ^{154}\text{Eu}$ 等のFP(MA)線源寄与

$$+ \{g_{Co60}^{Zr} \cdot P_{Co60}^{Zr}(r, \rho, w_{Zr}, t) + g_{Co60}^{Fe} \cdot P_{Co60}^{Fe}(r, \rho, w_{Fe}, t)\} \cdot R_{Co60}(r, N_Z)$$

ZrまたはFeに含まれる $^{60}\text{Co}$ 線源寄与 (燃料集合体構造物中 $^{59}\text{Co}$ 放射化)

$$+ g_{Sb125}^{Zr} \cdot P_{Sb125}^{Zr}(r, \rho, w_{Zr}, t) \cdot R_{Sb125}(r, N_Z)$$

Zrに含まれる $^{125}\text{Sb}$ 線源寄与 ( $^{124}\text{Sn}$ 放射化)

$r$  : デブリ半径 [cm]  
 $\rho$  : かさ密度 [g/cm<sup>3</sup>]  
 $u$  : ウラン濃度 [wt.%]  
 $w_{Zr}$  : デブリ中のZr濃度 [wt.%]  
 $w_{Fe}$  : デブリ中のFe濃度 [wt.%]  
 $t$  : 事故後の経過時間 (年)  
 $N_Z$  : 元素組成に基づく陽子数密度 [個/cm<sup>3</sup>]  
 $B$  : 燃焼度パラメータ [GWd/t]

$i$  : 燃料線源寄与核種 (Ba137m (Cs137娘核), Cs134, Eu154, Sb125, Rh106, Pu238, Am241)  
 $g_i$  : 補正係数 (標準値設定=1.0)  
 $f_i$  : 事故時FP放出率[%]  
 $P_i$  : 光子放出率関数 [個/秒] (線源強度を表す)  
 $R_i$  : 単位線源による表面線量率応答関数 [Sv/h/(個/秒)] (自己遮蔽効果を表す)

# (1) 燃料デブリ性状の推定 (デブリ表面線量率の評価)

改良評価式を組み込んだ表面線量率評価ツール(EXCELシート)を作成

表示例

**【デブリ密度情報】**

|                           |             |
|---------------------------|-------------|
| 真密度(g/cm <sup>3</sup> )   | 8.00        |
| 気孔率(%)                    | 21.50       |
| かさ密度(g/cm <sup>3</sup> )  | 6.28        |
| 陽子数密度(個/cm <sup>3</sup> ) | 1.58344E+24 |

**【デブリ組成情報】**

| 元素組成 | 割合(wt%) |
|------|---------|
| H    | 0.00    |
| B    | 0.00    |
| O    | 16.69   |
| Na   | 0.00    |
| Mg   | 0.00    |
| Al   | 0.00    |
| Si   | 0.00    |
| K    | 0.00    |
| Ca   | 0.00    |
| Cr   | 0.00    |
| Fe   | 0.00    |
| Ni   | 0.00    |
| Zr   | 25.39   |
| Ru   | 0.00    |
| La   | 0.00    |
| Ce   | 0.00    |
| U    | 57.92   |
| 合計   | 100.00  |

号機選択(1/2/3) 燃烧度 線量率評価日

**線量率の計算**

**【計算条件】**

|               |           |
|---------------|-----------|
| 対象号機          | 2号機       |
| 燃烧度(GWd/t)    | 23.10     |
| FP放出率モデル      | 基準放出      |
| 取り出し日付(評価日)   | 2021/3/11 |
| 事故日からの経過日数(日) | 3653      |
| 放射化物          | 含む        |

真密度  
気孔率  
放射化線源寄与の有無選択

FP放出モデル:別シートで核種毎に変更可  
選択(無/低/基準/高)

**【デブリ表面の線量率】**

| デブリサイズ(cm)【半径】   | 0.0   | 1.0    | 2.0    | 3.0    | 4.0    | 5.0    |
|------------------|-------|--------|--------|--------|--------|--------|
| 合計表面線量率(Sv/h)    | 0.000 | 3.998  | 8.355  | 11.213 | 12.918 | 13.827 |
| Rh106の割合(%)      | 0.00  | 0.67   | 0.63   | 0.60   | 0.57   | 0.55   |
| Sb125の割合(%)      | 0.00  | 1.17   | 1.04   | 0.95   | 0.88   | 0.83   |
| Cs134の割合(%)      | 0.00  | 7.65   | 7.55   | 7.46   | 7.37   | 7.30   |
| Ba137mの割合(%)     | 0.00  | 64.49  | 62.68  | 60.96  | 59.32  | 57.72  |
| Eu154の割合(%)      | 0.00  | 19.37  | 20.41  | 21.32  | 22.17  | 22.99  |
| Pu238の割合(%)      | 0.00  | 0.00   | 0.00   | 0.00   | 0.00   | 0.00   |
| Am241の割合(%)      | 0.00  | 0.02   | 0.01   | 0.01   | 0.01   | 0.01   |
| Co60(放射化)の割合(%)  | 0.00  | 6.53   | 7.57   | 8.59   | 9.54   | 10.47  |
| Sb125(放射化)の割合(%) | 0.00  | 0.10   | 0.11   | 0.11   | 0.12   | 0.12   |
| 合計割合(%)          | 0.00  | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 |

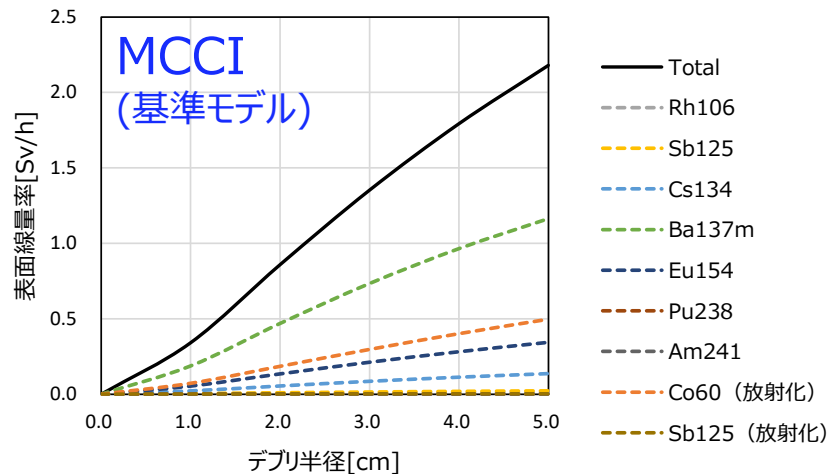
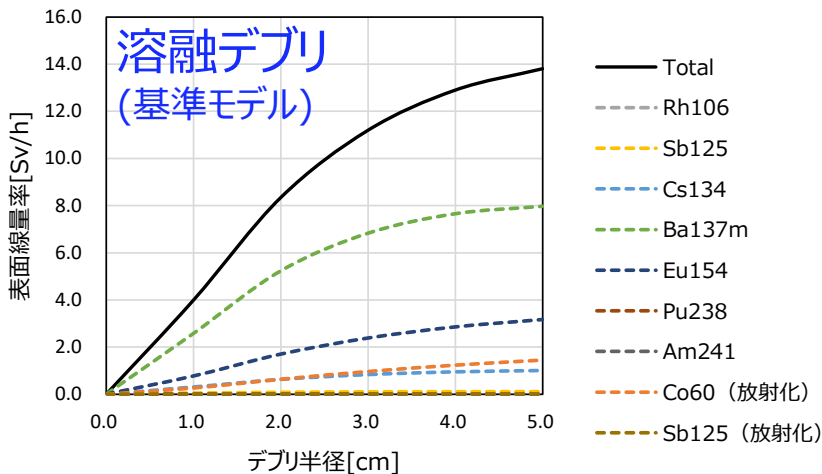
主要元素組成

- 黄色セル部を入力→線源核種別寄与を含む表面線量率とそのデブリ半径依存性を図と表で表示
- 模擬試験や計算に基づく、密度、元素組成、燃烧度などの入力パラメータの参考値、及び他の内部設定値(FP放出率など)は別シートに記載 (内部設定値は今後の新知見により変更可)

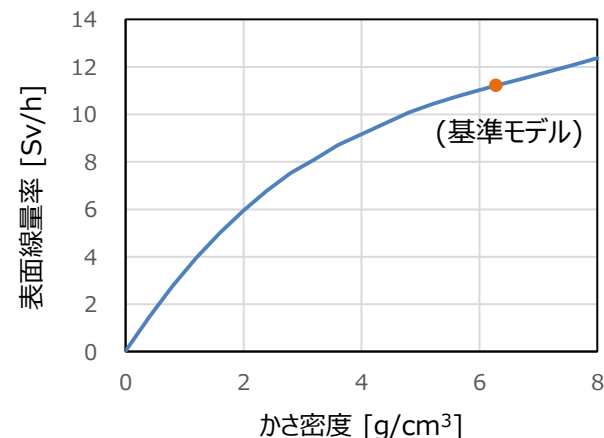
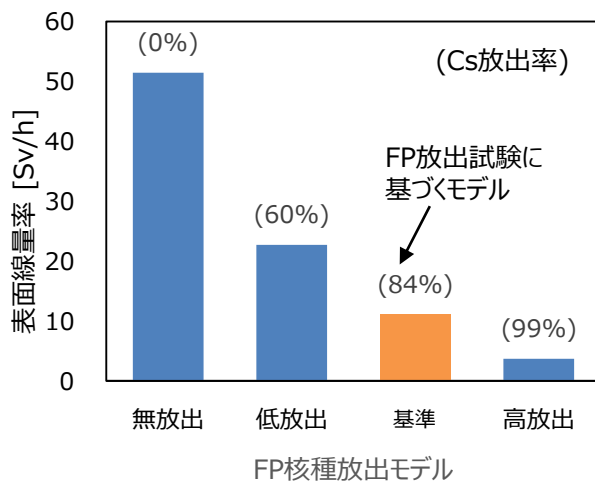
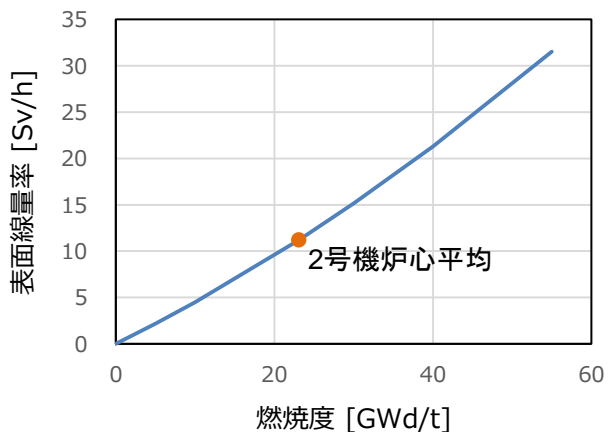
# (1) 燃料デブリ性状の推定 (デブリ表面線量率の評価)

## 改良評価式による表面線量率の例

事故進展解析, TMI-2デブリ分析, MCCI試験, FP放出試験などに基づいて設定した代表的な元素組成、密度、気孔率、炉心平均燃焼度等の条件に基づく基準モデルによるパラメータ依存性



## 溶融デブリ(半径3cm)のパラメータ依存性





# (1) 燃料デブリ性状の推定（放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価）

## 平成30年度実施概要

燃料デブリ取り出し作業において発生する放射性飛散微粒子の閉じ込めを確実にするために、1F炉内環境条件の整理を行い、それを元に燃料デブリの気中、水中及び気液界面における輸送・移行挙動の特性データを採取する試験・評価を実施する。

### 1) 放射性微粒子に係わる環境条件の整理と収集

- ① 1F炉内環境情報の整理
- ② 既存ホット施設の廃止措置作業情報の整理とデータ採取

### 2) 気中・水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動の採取・評価

- ① 気中における放射性微粒子の生成に関する知見の整理
- ② 水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動の採取
- ③ 水中における微粒子の輸送・移行挙動の採取・評価

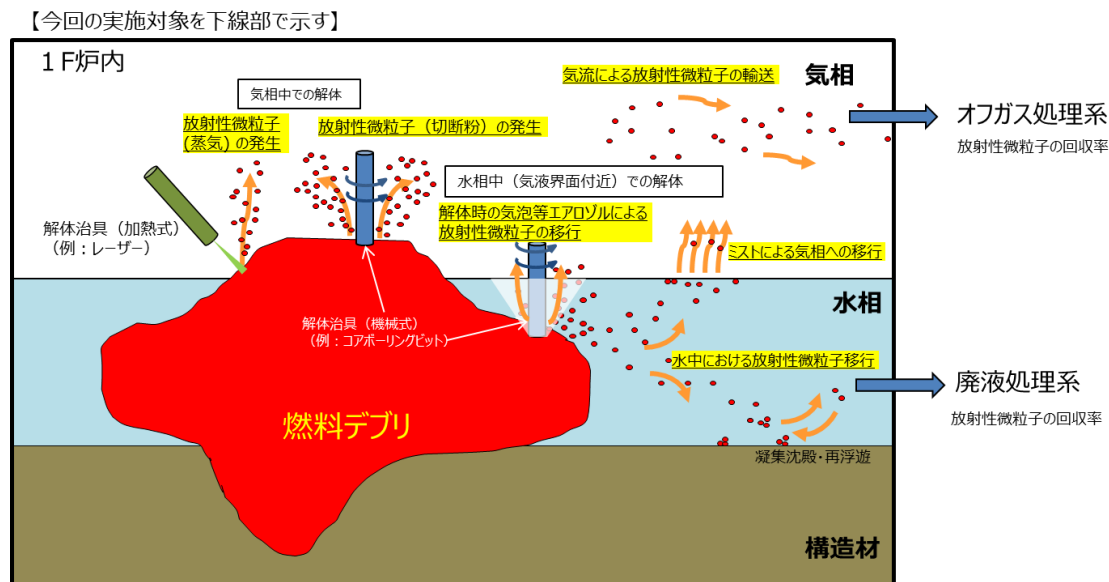


図 1F炉内での燃料デブリ取出し時における放射線微粒子の発生・移行経路



# (1) 燃料デブリ性状の推定（放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価）

## 1) 放射性微粒子に係わる環境条件の整理と収集

### ① 1F炉内環境情報の整理

#### 【背景】

1F炉内ではデブリの取り出しや切断が開始されると、温度や湿度等の環境条件が変化する。デブリ取り出し時の放射性飛散微粒子の挙動解明やその試験には、取り出し時の環境の想定が必要。

#### 【実施内容】

各種公開文献(東電公開資料、IRID公開資料、仏レーザー切断資料等)から微粒子挙動の推定や試験に必要なデータを抜粋し、各号機に対する「炉内環境条件リスト」を作成した。

#### 【平成30年度の成果】

「炉内環境条件リスト」のデータベースを構築。随時更新し、今後の試験のインプット条件として活用。

取り出し前(現在)：各号機の滞留水のサンプリングデータや温度計、線量率( $\gamma$ )、雰囲気( $N_2$ )、等

取り出し時：(気相) 熱切断時の核種の気相移行データ、雰囲気ガス等  
(液相) ホウ酸添加(最大7000ppm、臨界PJより) 滞留水のpH、等

表 炉内環境条件リストの一部抜粋

| 1F炉内環境条件                              |                     | 取り出し前                            |           |               |           | 取り出し時(各種規制値等を参考) |                    |             |     |
|---------------------------------------|---------------------|----------------------------------|-----------|---------------|-----------|------------------|--------------------|-------------|-----|
|                                       |                     | 1号機                              |           | 2号機           |           | 3号機              |                    |             |     |
| 気相                                    | RPV内温度(°C)          | 15~30                            | 15~40     | 15~40         | 1号機       | 2号機              | 3号機                |             |     |
|                                       | PCV内温度(°C)          | 15~35                            | 15~40     | 15~40         | 工法により変化   | 工法により変化          | 工法により変化            |             |     |
|                                       | PCV内湿度              | 100%                             | 100%      | —             | 工法により変化   | 工法により変化          | 工法により変化            |             |     |
|                                       | PCV内圧力(kPa)         | 0.58                             | 3.76      | 0.33          | 各種操作により低下 |                  |                    |             |     |
|                                       | PCV内水素濃度(%)         | 0                                | 0.035     | 0.04          | 負圧管理      |                  |                    |             |     |
|                                       | PCV内雰囲気ガス           | N <sub>2</sub> 濃度99.99%以上        |           |               |           | 排気により除去          |                    |             |     |
|                                       | PCV内放射線量(Sv/h)      | ペDESTAL内100-1000, ペDESTAL外10-100 |           |               |           | 大気(酸化雰囲気)        |                    |             |     |
| PCV内放射能濃度(Xe135, Bq/cm <sup>3</sup> ) | 1x10 <sup>3</sup>   | N.D.                             | N.D.      | 放射性微粒子飛散に伴い上昇 |           |                  |                    |             |     |
| 水相                                    | PCV滞留水中の溶存元素濃度(ppm) | —                                | LI-2RB5-1 | LI-2RB5-2     | LI-3RB5-1 | LI-3RB5-2        | 1号機                | 2号機         | 3号機 |
|                                       | B                   | —                                | <5        | <5            | <5        | N.D.             | —                  | 7000 ppmを維持 | —   |
|                                       | Na                  | —                                | <2.5      | <2.5          | <5        | <5               | —                  | —           | —   |
|                                       | Mg                  | —                                | <5        | <5            | <5        | <5               | —                  | —           | —   |
|                                       | Si                  | —                                | <5        | <5            | <5        | <5               | —                  | —           | —   |
|                                       | Ca                  | —                                | <2.5      | <2.5          | <5        | <5               | —                  | —           | —   |
|                                       | Mn                  | —                                | <5        | <5            | <5        | <5               | —                  | —           | —   |
|                                       | Fe                  | —                                | N.D.      | <5            | N.D.      | N.D.             | —                  | —           | —   |
|                                       | Zn                  | —                                | N.D.      | N.D.          | N.D.      | N.D.             | —                  | —           | —   |
|                                       | Sr                  | —                                | <0.25     | <0.25         | <0.5      | <0.5             | —                  | —           | —   |
|                                       | Ba                  | —                                | <5        | <5            | <5        | <5               | —                  | —           | —   |
|                                       | Pb                  | —                                | N.D.      | N.D.          | N.D.      | N.D.             | —                  | —           | —   |
|                                       | Cl <sup>-</sup>     | 360 ppm(循環注水設備)                  |           |               |           | 100 ppm以下に低減     |                    |             |     |
|                                       | PCV内水温(°C)          | 29                               | 35        |               | 32        |                  | —                  | —           | —   |
|                                       | PCV滞留水 pH           | 7.2                              | 7.4       | 7.3           | 7         | 6.6              | 5~9(極端なpHの操作は行わない) |             |     |
| PCV内推定水深(m)                           | 1.9                 | 0.3                              |           | 6.3~6.8       |           | —                | —                  | —           |     |
| PCV滞留水 線量率(μSv/h)                     | —                   | 56                               | 62        | 9             | 6         | —                | —                  | —           |     |
| PCV滞留水 導電率(μS/cm)                     | 88                  | 25                               |           | 10.2~14       |           | —                | —                  | —           |     |

「水中における微粒子の輸送・移行挙動データの採取・評価」における液温(R.T)に反映

「水中における微粒子の輸送・移行挙動データの採取・評価」における液性条件(イオン強度)に反映

# (1) 燃料デブリ性状の推定（放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価）

## 1) 放射性微粒子に係わる環境条件の整理と収集

### ② 既存ホット施設の廃止措置作業情報の整理とデータ採取

#### 【背景】

炉内には核燃料物質が付着した配管等の構造物が存在するため、その切断時に発生する微粒子の挙動データが必要。

#### 【実施内容-1】

過去のグローブボックス(GB)解体撤去作業に係るダスト情報を得るために、JAEA核サ研の過去のGB解体の日報情報を整理。

#### 【平成30年度の成果】

過去のJAEA核サ研におけるGB解体撤去作業の作業日報・放射線管理日報から、空气中濃度の上昇につながる作業内容の相関を調査した。

その結果、解体物の細断等、工具を用いた切断作業だけではなく、切断作業が無くても機器や床面等付着物の再浮遊によるものと考えられる空气中濃度の上昇があることが判った。

⇒切断作業が行われていない状況においても微粒子飛散防止策を検討する必要がある。

工具によるGB等解体に伴う空气中放射性物質濃度上昇

機器や床等の表面付着物の再浮遊による空气中放射性物質濃度上昇

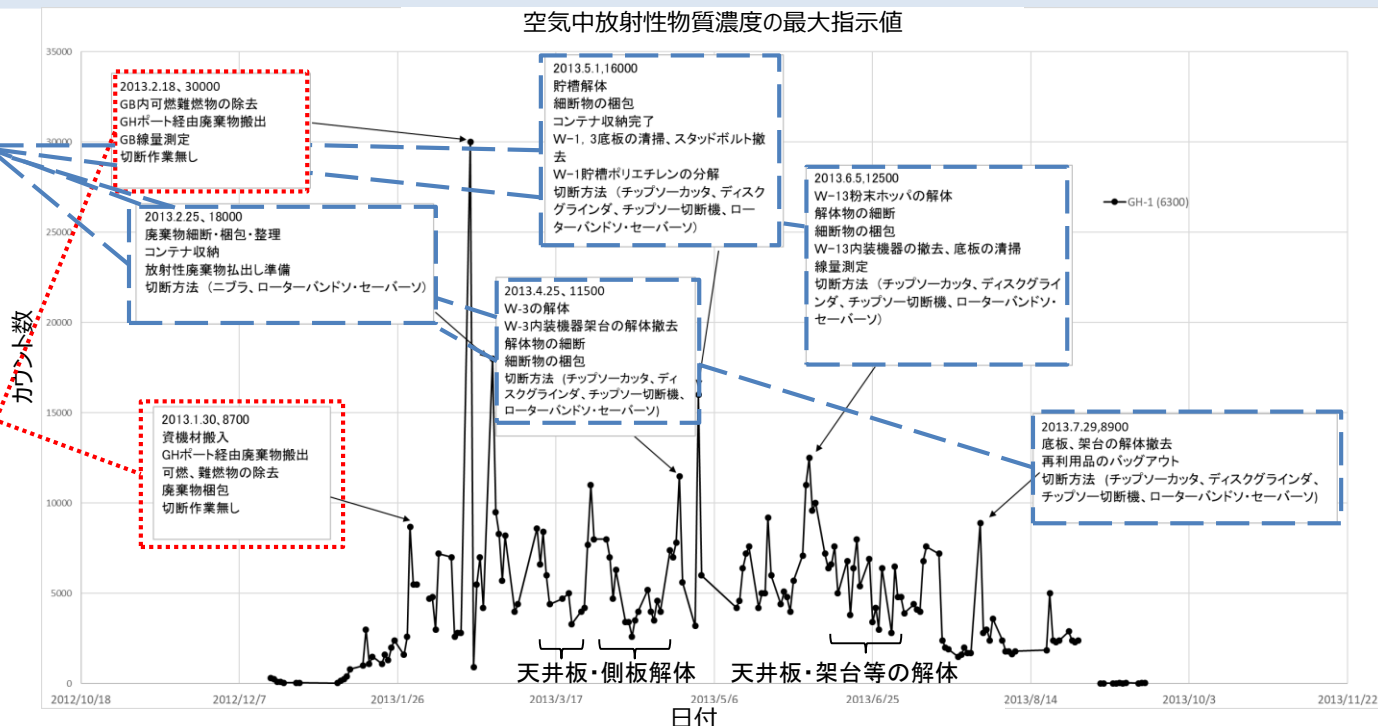


図 過去のGB解体の作業日報の解析による作業内容-空气中放射性物質濃度の整理

# (1) 燃料デブリ性状の推定（放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価）

## 1) 放射性微粒子に係わる環境条件の整理と収集

### ② 既存ホット施設の廃止措置作業情報の整理とデータ採取

#### 【背景】

炉内には核燃料物質が付着した配管等の構造物が存在するため、その切断時に発生する微粒子の挙動データが必要。

#### 【実施内容-2】

JAEA核サ研のMOX燃料取扱施設におけるGB解体撤去作業（機械切断）の作業情報（映像）と空气中濃度（時間変化）の両方から、空气中濃度上昇につながる作業を推定。

#### 【平成30年度の成果】

解体作業と空气中濃度変化を同期した映像を作成し、実際の空气中濃度の時間変化情報を取得した。

パネルや内装機器の切断作業に伴い、空气中のダスト濃度が上昇していることが確認できた。切断作業が終了しても、直後の作業エリアの片付け等エリア内での作業により空气中濃度の上昇しているが、これは既に発生し、床面に付着していたダストの再浮遊によるものと考えられる。

⇒切断作業が終了しても直後はエリア内での作業によるダストの再浮遊について注意を払う必要がある。切断作業箇所付近での集塵排気等微粒子飛散防止策を行うことが重要。

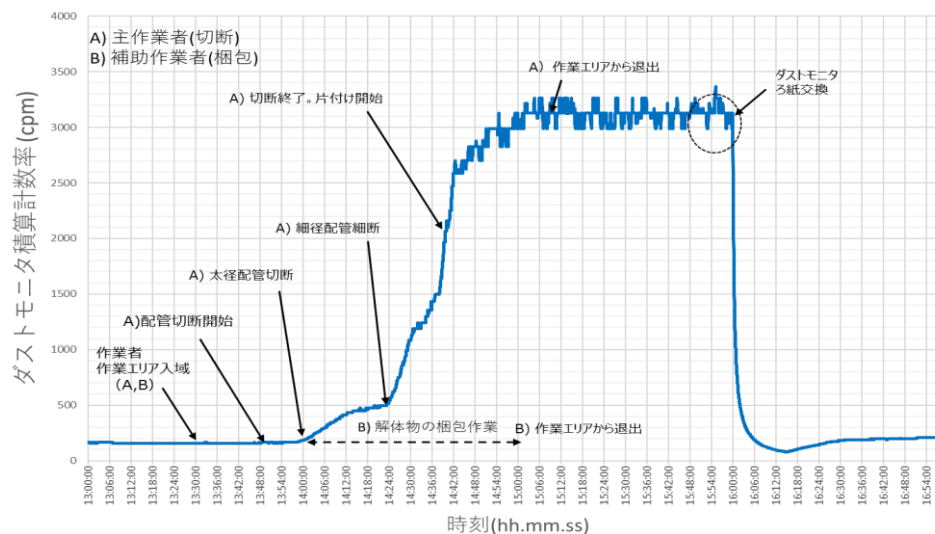


図 同日のダストモニタ指示値と作業情報のプロット例

※解体場所と空気のサンプリング位置は1m未満の距離であるため、時間遅れは小。

# (1) 燃料デブリ性状の推定 (放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価)

## 2) 気中・水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動データの採取・評価

### ① 気中における放射性微粒子の生成に関する知見の整理

#### 【背景】

気中工法の一つとして検討されているレーザー切断では、局所的な加熱によりヒュームが発生するため、その際の微粒子の輸送・移行挙動について、粒径、組成の均一性、切断雰囲気等の影響評価が必要。

#### 【実施内容】

過去に実施した気中環境下における模擬デブリや模擬MCCI生成物の集光加熱時に発生する放射性微粒子の知見等を整理。

#### 【平成30年度の成果】

国内外の試験結果を比較

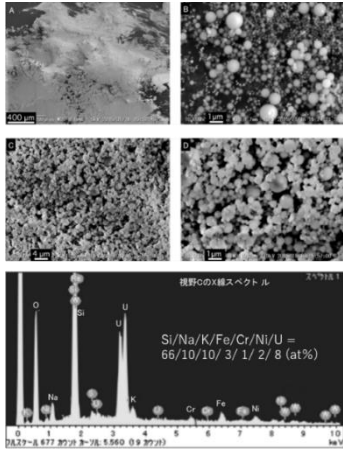
(国内) JAEAにおいて過去の実施したU含有模擬デブリの集光加熱試験 (コンクリートとの反応生成物の特性評価)

(国外) 仏ONET-CEA-IRSNでこれまで実施された模擬デブリ (非放射性、U模擬としてHf含有)のMCCI反応、レーザー切断

コリウム主体の模擬デブリとMCCIを含む模擬デブリにおけるレーザーによる解体時の粒子の発生挙動は異なっている。

日仏間のデータについては試験条件等が異なるため、今後、同一条件で試験を実施し比較することで、両者の試験データを活用・評価することが可能と考える。

集光加熱(国内, U-MCCI)



U-MCCIの集光加熱とHf-MCCIのレーザー切断時のダスト比較

|             | 集光加熱 (U-MCCI)             | レーザー切断 (Hf-MCCI)*        |
|-------------|---------------------------|--------------------------|
| ダストの形状      | 球形粒子とその凝集体<br><100nm ~2μm | 球形粒子とその凝集体<br><100nm~2μm |
| ダストの元素分析の特徴 | ダストにUが検出                  | ダストにHfが不検出 (Hf: Uの模擬元素)  |

In-vesselとEx-vesselコールド模擬デブリ切断時のダスト比較\*\*

|                   | In-vessel                             | Ex-vessel                            |
|-------------------|---------------------------------------|--------------------------------------|
| レーザー切断時のダスト形状     | ・0.1~0.2μmの粒子からなる凝集体。<br>・凝集体サイズは約1μm | ・<100nmの粒子からなる凝集体。<br>・凝集体サイズは約0.5μm |
| レーザー切断時の粒径分布とダスト量 | ・中央径: 0.19μm<br>・比較的多量                | ・中央径: 0.1μm<br>・比較的少量                |

国内におけるU含有模擬MCCI生成物の集光加熱試験に伴うダストの元素分析結果とフランスにおけるHf含有模擬MCCI生成物のレーザー切断に伴うダストの元素分析結果を比較すると、ダストの元素分析結果に差異があるため、今後同一条件での比較試験が望ましい。

※仏 Hfの選定根拠: 融点(HfO<sub>2</sub>:3063K,UO<sub>2</sub>:3033K)、熱伝導率(両者とも約2W/m・K)、密度(HfO<sub>2</sub>: 9680 kg/m<sup>3</sup>,UO<sub>2</sub>: 10500 kg/m<sup>3</sup>)等。

フランスにおけるin-vessel(MCCI無;主にコリウム)とex-vessel(MCCI有)のコールド模擬デブリのレーザー切断時のダスト比較。ex-vesselの方が細かな一次粒子が多く観察されている。生成量はin-vesselの方が大(切断温度が高温なためと推測)。今後ウラン試験を考える場合でも、In-vesselとEx-vesselの比較が望ましい。



# (1) 燃料デブリ性状の推定 (放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価)

## 2) 気中・水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動データの採取・評価

### ② 水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動データの採取

#### 【背景】

水中で切断を実施した場合、発生する微粒子の一部は気液界面まで輸送され、一部は気中へ移行する。特に加工工具による切断や穿孔時には水中に気泡が導入されているため、液と気泡間にも界面が存在し、その挙動は複雑となる。

#### 【実施内容】

バブル、特に水中に長時間とどまるナノバブルを導入することにより、気液界面における移行挙動に与える影響(移行率、初期投入時からの微粒子粒径変化等)を評価し、水中(界面付近)での解体時の気泡等による放射性微粒子の移行挙動を推定した。

#### 【平成30年度の成果】

マイクロ・ナノバブル発生装置を用いて

水相条件：蒸留水、マイクロバブル水、ナノバブル水

粒子条件：ZrO<sub>2</sub> 微粒子

の条件にて、気液界面の移行パラメータである除去効率や粒径分布の変化情報を取得。バブル無し(蒸留水 55cm深さ)の場合、酸化ジルコニウム(ZrO<sub>2</sub>)の除去効率は約3割程度であり、約7割は気中へ移行する。バブル導入により除去率は向上した。バブル導入により、水中に滞在する時間が長くなり、粒子はバブル-液相界面から液相に移行し、除去効率が上がったものと考えられる。

⇒ 水中微粒子を含む気流を水中に長く滞留させることで、微粒子の気中への移行を抑止することができる。

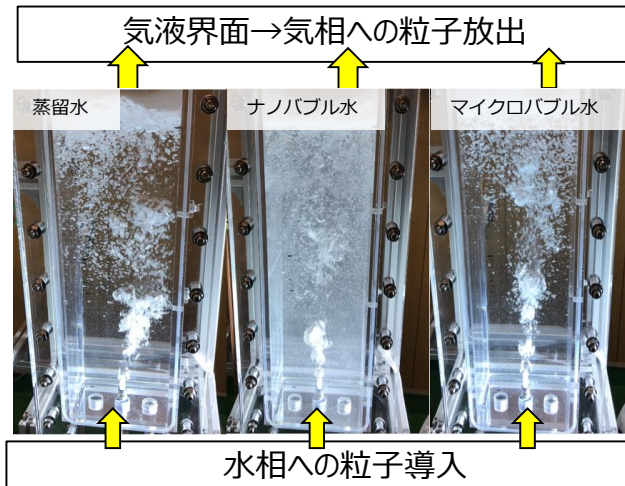


図 気液界面における放射性微粒子の移行試験の例 (水中 55cm深さ)

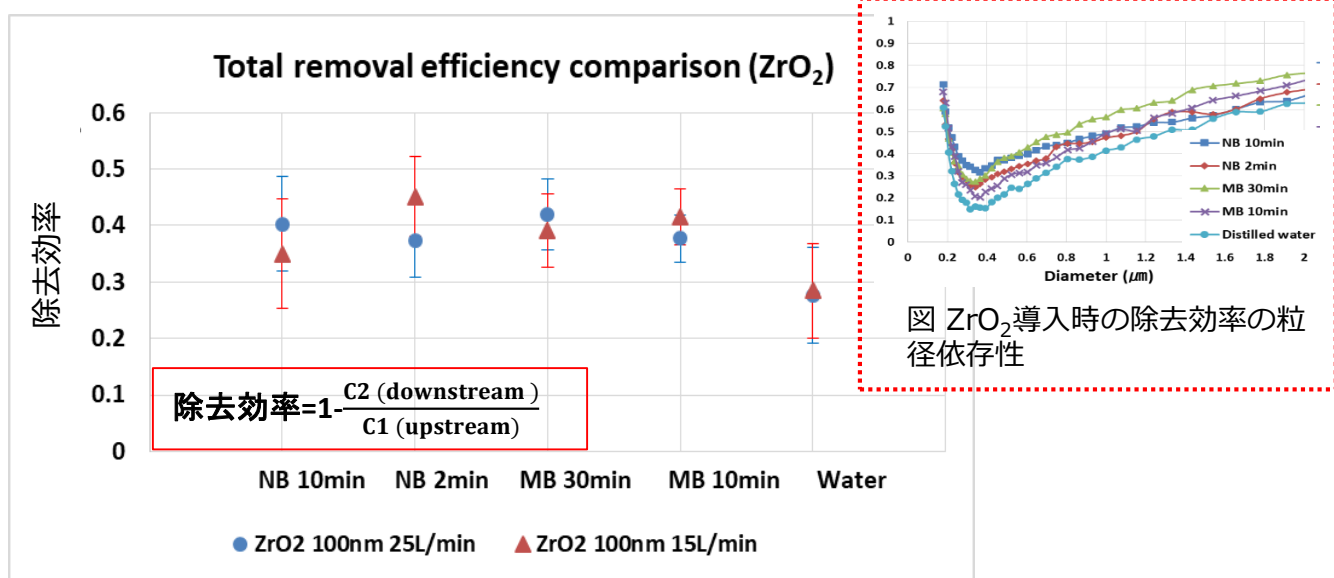


図 ナノバブル(NB)、マイクロバブル(MB)、蒸留水条件での除去効率の変化

# (1) 燃料デブリ性状の推定 (放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価)

## 2) 気中・水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動データの採取・評価

### ③ 水中における微粒子の輸送・移行挙動データの採取・評価

#### 【背景】

水中でのデブリ切断時に発生する放射性微粒子は、水中において凝集、分散、沈降などの過程を経て移行する。それらの挙動は水相(発生廃液)の組成推定やスラッジ等の廃棄物の組成・量に影響するため、その評価が必要。

#### 【実施内容】

模擬粒子を用いて水中における微粒子の沈降(率)の時間依存性、粒径分布、などのデータを採取し、水中の移行挙動及び炉内構造物を構成するコンクリートなどの各種材料への付着挙動について評価した。

#### 【平成30年度の成果】

模擬材料としてモルタル(コンクリート健全部の主成分)と、SUS(金属成分のうち比較的硬度が低い部分)を選定し、手動切断(ダイヤモンドソー、炭素鋼ソー)、機械切断(高速度鋼グラインダー、SiCグラインダー)、熱切断(Yb:YAGレーザー)で発生した微粒子を用いて、水相での沈降・堆積挙動を取得した

- ・モルタル粒子を分散させた水相における粒子は、初期の90分間に約60~80%が沈降。一晩静置では光散乱で粒子が観測されなくなる。水相への電解質導入で凝集・沈降が促進される。
  - ・分散後24時間放置した後の液中においては、数~10 $\mu$ m程度の粒子がわずかながら確認できた。
- ⇒ 切断時の発生微粒子については、数時間で大部分は水中に沈降する。また電解質がある場合は、その挙動は促進される。

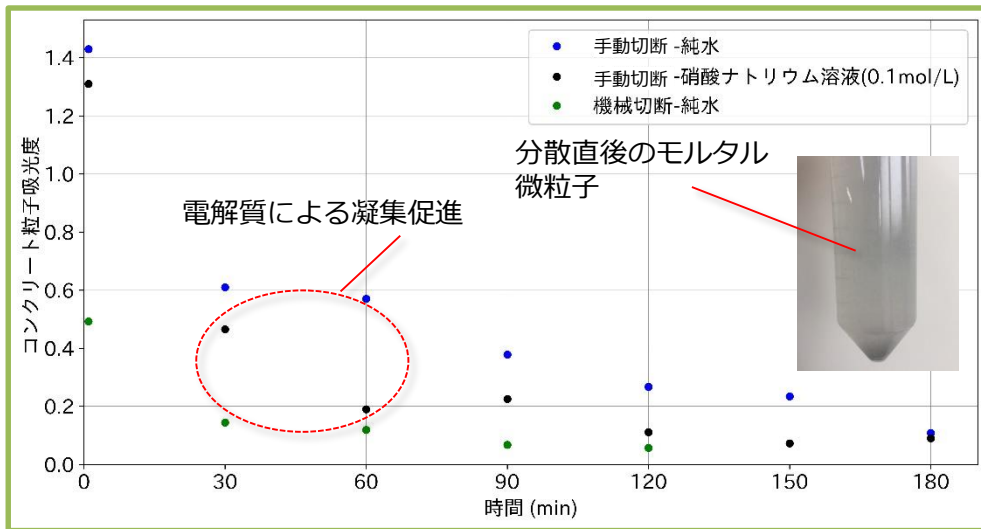
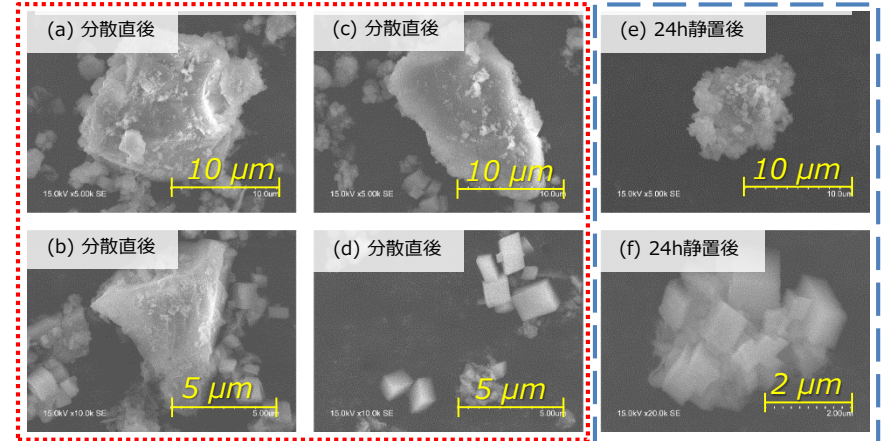


図 モルタル微粒子分散系の吸光度の時間依存性

※液中の粒子が沈降すれば、吸光度は低下していく。

#### モルタル微粒子のSEM像 (ダイヤモンドソーを用いた手動切断)



(a-d) 分散直後の分散液中に観察された微粒子の例。数 $\mu$ ~20 $\mu$ m程度の粒子が観察

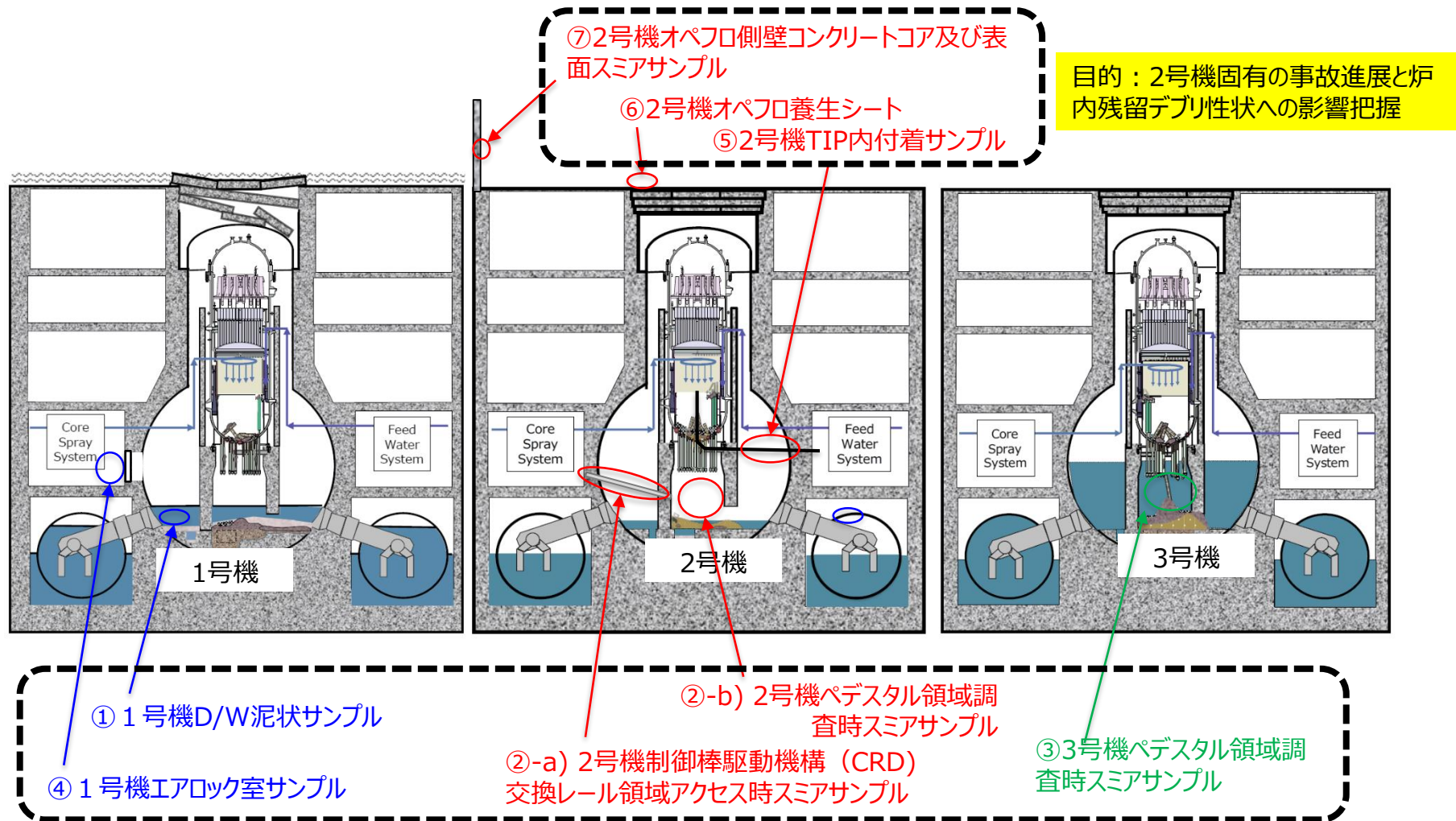
(e-f) 24時間静置後の上澄み液に観測された微粒子の例(量的には微少)。

# (1) 燃料デブリ性状の推定 (1F炉内付着物の性状データの採取・評価)

平成30年度の展開

分析の対象となる1F試料の部位と目的

採取された「1F試料」の分析施設 (JAEA大洗、NFD) にて分析を行うとともに、以前のIRID補助金事業「総合的な炉内状況把握の高度化 (平成28-29年度)」における取得データを含めた相互比較を行い、各号機における事故進展に依存したデブリ特性を把握し、燃料デブリ特性リストに反映する。

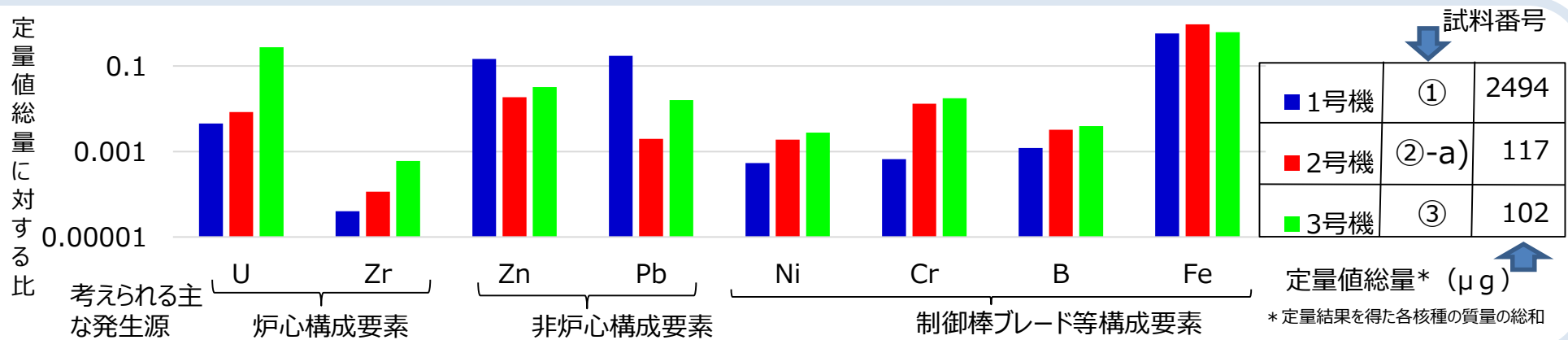


目的：ペDESTALに移行したデブリの性状の推定



# (1) 燃料デブリ性状の推定（1F炉内付着物の性状データの採取・評価）

## PCV内サンプルに対するICP-MS（硝酸浸漬）による定量結果の号機間比較（概略）

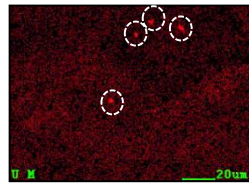


各号機のPCV内サンプルではサンプルの取得部位や対象の状態及び量（1号機で約2.5mg, 2、3号機で約0.1mg）が異なり、直接的な比較はできないが、硝酸浸漬によって得られたICP-MSの定量結果には以下の特徴がみられる。

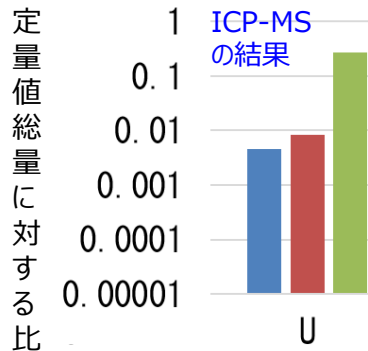
- 何れもFeが最大割合を占め、PCV内のさびのようなものが多く含まれる（O（酸素）も多いと推測される）。
- 1号機（泥状サンプル）ではZn、Pbなど炉心構成要素以外と思われる物質が相対的に多い。
- 2号機と3号機のPCV内サンプルを比較すると、2号機のUの割合は3号機よりも小さいが、Cr、NiやBなど制御棒ブレード等構成要素の割合は3号機並み。



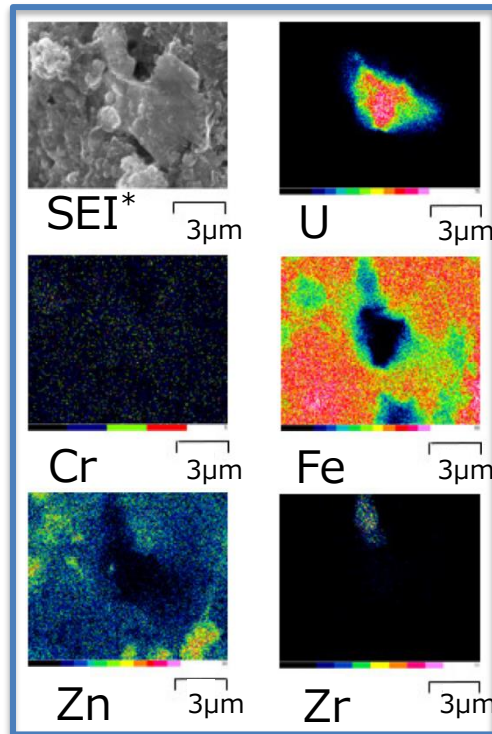
# (1) 燃料デブリ性状の推定 (1F炉内付着物の性状データの採取・評価) 1～3号機のPCV内サンプルにおけるU含有粒子に着目したFE-SEMの結果



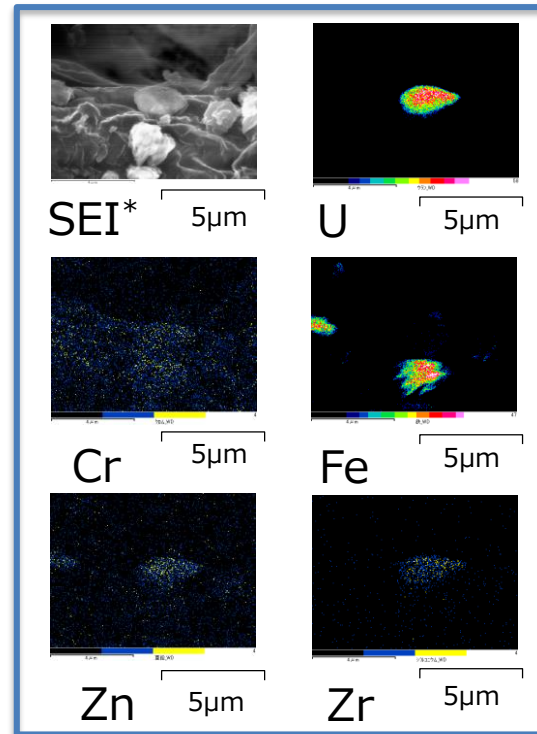
U含有粒子が点在  
(3号機サンプルの例)



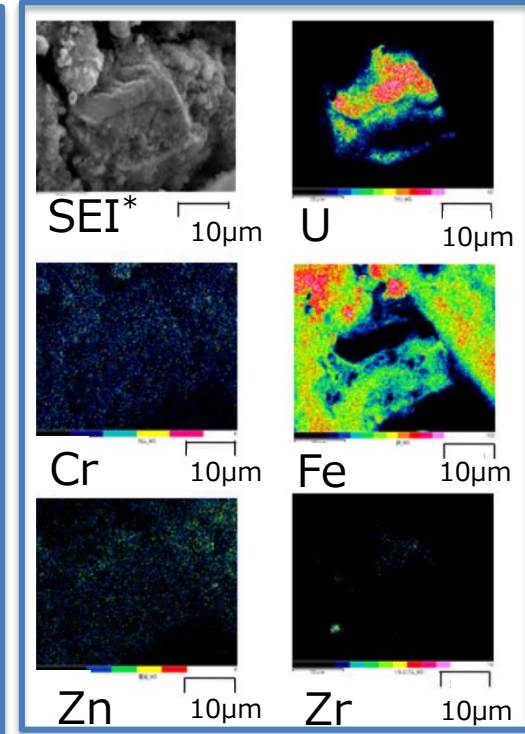
試料全体に占めるUの割合は  
3号機 >> 2号機



①1号機 (泥状サンプル)



②-b)2号機 (ペDESTAL領域サンプル)



③3号機 (ペDESTAL領域サンプル)

\*SEI : 二次電子像

- 各号機のサンプルの中には微細なU含有粒子が存在しているものがある。
- 1, 3号機サンプルでは、U含有粒子内にZrが少ないのに対して、2号機サンプルではZrがU含有粒子内に共存している傾向がみられる

## (1) 燃料デブリ性状の推定（1F炉内付着物の性状データの採取・評価）

### 各号機のサンプルで観測されたU含有粒子を含む領域\*の組成（SEM-EDS点分析）

| 1号機PCV内サンプル(①)   | 2号機PCV内サンプル(②-b)) | 3号機PCV内サンプル(③)   |
|------------------|-------------------|------------------|
| 25のU含有粒子を含む領域を特定 | 8つのU含有粒子を含む領域を特定  | 20のU含有粒子を含む領域を特定 |

燃料デブリの主成分となるウランとジルコニウムの割合について

- 1,3号機のPCV内サンプル：ウランの割合の大きい領域\*が多い
  - 2号機PCV内サンプル：1,3号機のPCV内サンプルに比べてジルコニウムの割合の大きい領域\*が多い
- ⇒ 1号機、3号機PCV内サンプルにおけるU含有粒子を含む領域\*の傾向は2号機のものとは顕著に異なる。

\*領域：単粒子及び複数粒子群（装置の精度により複数の粒子を同時に測定する場合がある。）

# (1) 燃料デブリ性状の推定 (1F炉内付着物の性状データの採取・評価)

## U含有粒子を含む領域の詳細分析例(1/2) (FE-TEM/EDX)

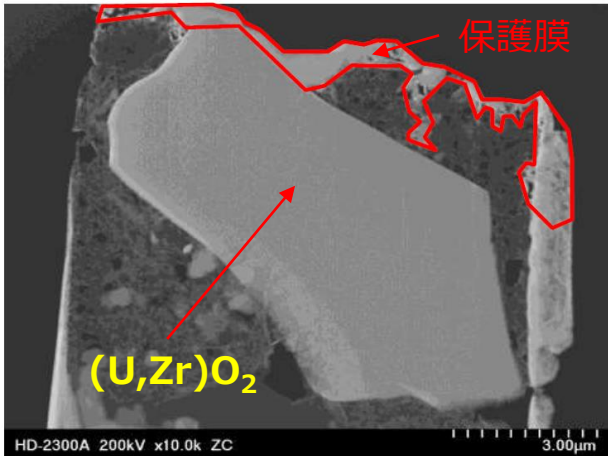
### 1号機PCV内サンプル

U/(U+Zr)比85%程度以上の領域は、主成分が(U,Zr)O<sub>2</sub>であるUリッチ相\*

\* UO<sub>2</sub>を主体とし、ZrO<sub>2</sub>が固溶した相

保護膜

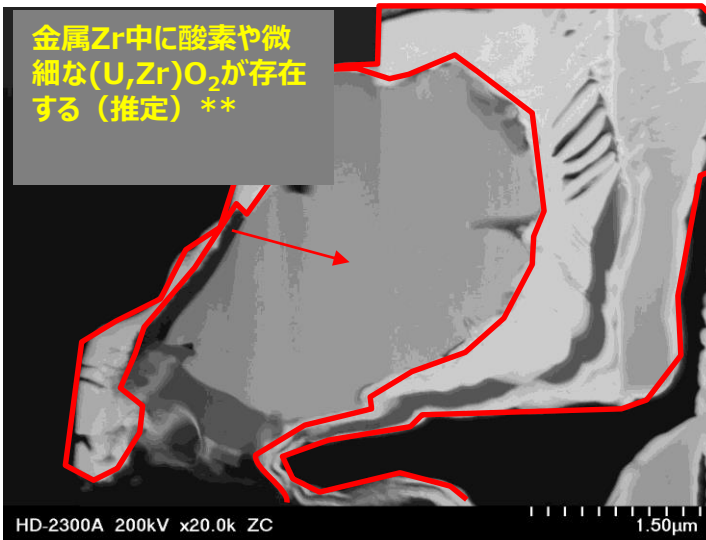
(U,Zr)O<sub>2</sub>



### 2号機PCV内サンプル

U/(U+Zr)比50%前後の領域は、主成分が「金属Zr中に酸素や微細な(U,Zr)O<sub>2</sub>が存在するもの」と推定

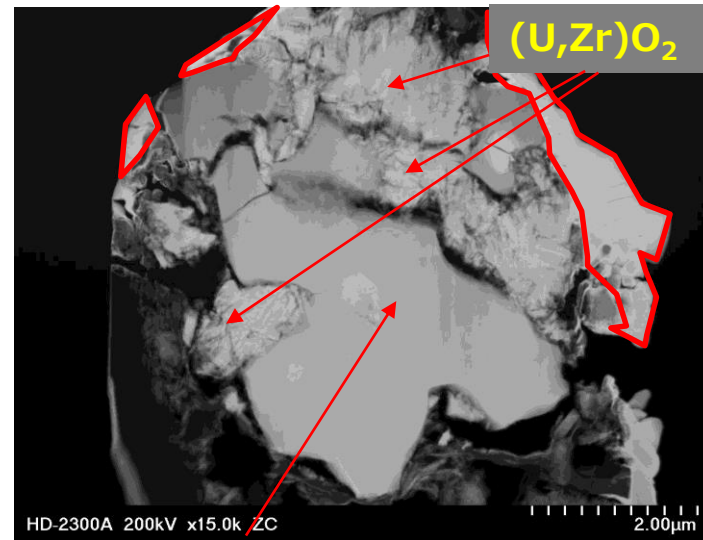
金属Zr中に酸素や微細な(U,Zr)O<sub>2</sub>が存在する(推定)\*\*



### 3号機PCV内サンプル

U/(U+Zr)比50%程度の領域には(U,Zr)O<sub>2</sub>とα-Zr(O)様のものが隣接して存在

(U,Zr)O<sub>2</sub>



TEM分析で判ったU含有粒子の化学形態

- 1,3号機: (U,Zr)O<sub>2</sub> (UO<sub>2</sub>にZrO<sub>2</sub>が固溶したもの) の比率が大きい
- 2号機: 「金属Zr中に酸素や微細な(U,Zr)O<sub>2</sub>が存在するもの」の比率が大きい

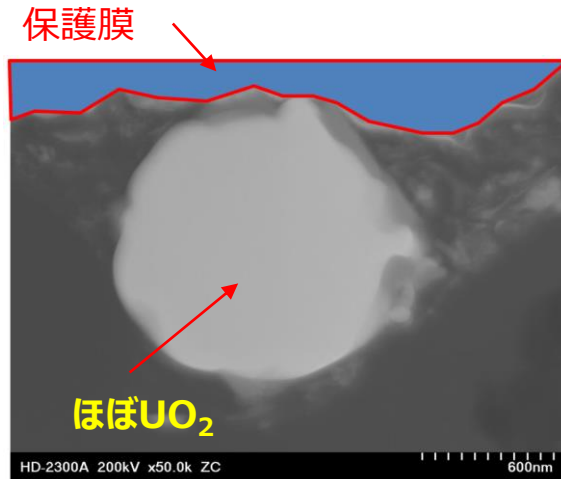
\*\* 微細な結晶構造は確認できなかったが、点分析の結果Uの存在が確認できた。

\*\*\* 3号機サンプルでは少数であるがα-Zr(O)と(U,Zr)O<sub>2</sub>に分離したような形跡が見られるものがあった。

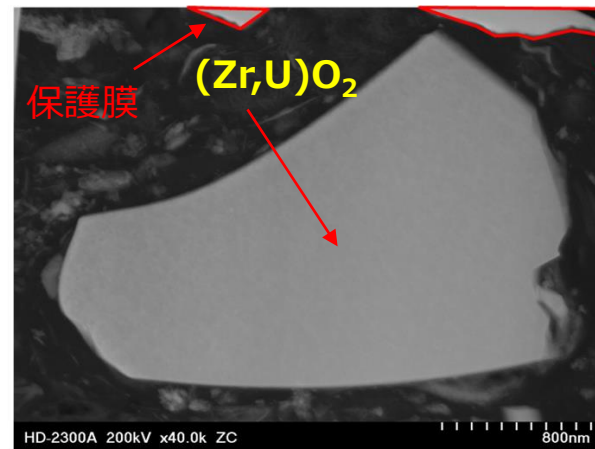
(1) 燃料デブリ性状の推定 (1F炉内付着物の性状データの採取・評価)  
U含有粒子を含む領域の詳細分析例(2/2) (FE-TEM/EDX)

2号機オペフロのサンプル

2号機オペフロ養生シートにはU/(U+Zr)比の高い粒子を含む領域とZr/(U+Zr)比が50%程度以上の領域の組成の異なるものが見られる



U/(U+Zr)比の高い領域のU含有粒子には**ほぼ $UO_2$** からなるものが含まれる



Zr/(U+Zr)比が85%程度の領域には**Zrリッチ相\*** ( $(Zr,U)O_2$ ) が含まれる

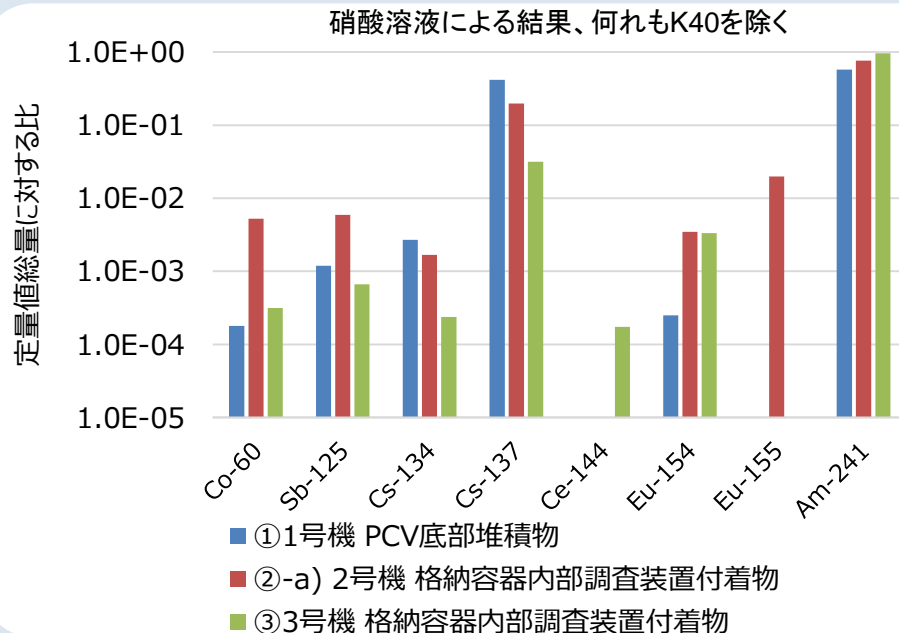
\*  $ZrO_2$ を主体とし、 $UO_2$ が固溶した相

# (1) 燃料デブリ性状の推定（1F炉内付着物の性状データの採取・評価）

## a、 $\gamma$ 核種分析結果の概要

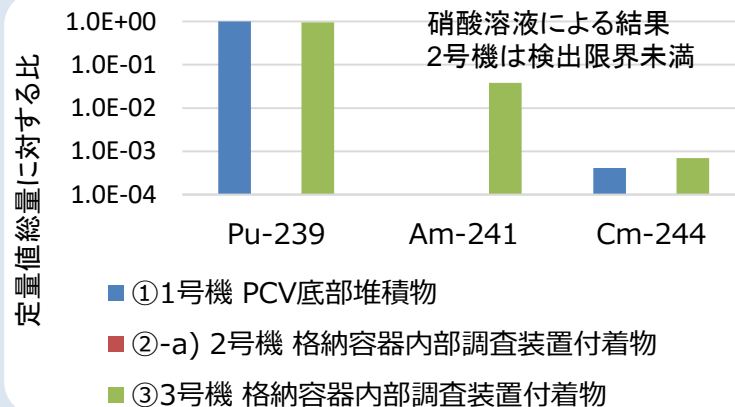
### $\gamma$ 核種分析結果

- 全般にガンマ線源としては、Cs以外にはAm、Sb、Co、Eu等の核種が主であることがわかった。
- 1～3号機のPCV内サンプルを比較すると、1号機ではCsの割合が3ユニット中で最も大きく、2号機、3号機の順になっている。2号機ではCoやSbの割合が他のユニットよりも高い傾向が見られた。



### $\alpha$ 核種分析結果

- 1号機PCV内サンプル（①）、同エアロック室サンプル（④）、及び3号機ペDESTAL領域のサンプル（③）ではPu-239+Pu-240、Pu-238+Am-241に相当する位置にピークが検出された。
- 2号機PCV内サンプル（②-a）及びTIP配管内付着サンプル（⑤）についてはいずれもアルファ核種は検出限界未満であった。





## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 (①乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価)

### ●乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価（平成29年度、平成30年度）

燃料デブリを保管する際の前処理として検討している乾燥設備について、安全性を含めてオフガス設計を検討するための基礎データとするため、核分裂生成物（FP）の放出挙動に関する基礎データが必要である。

乾燥処理時の揮発性FPの挙動は、FPごとのオフガス処理の必要性やその処理方法を検討する上で重要な情報となることから、本評価では文献情報等から揮発性FP（特に環境毒性の高い中揮発性FP）及び既存プラントのオフガス設計条件を整理するとともに、整理した中揮発性FPに着目し、その放出挙動を試験等により評価する。

#### 【目標達成を判断する指標】

➤環境毒性の高い中揮発性FPが特定されていること。

(平成29年度末)【達成】

➤中揮発性FPの放出開始温度、放出速度等の放出挙動が評価されていること。

(平成30年度末)【達成】

#### ○高揮発性FP → 全量放出

- ✓Cs, I, 希ガス等 乾燥熱処理の条件においては放出の可能性があるFP
- ✓放出を前提とした設計

#### ○中揮発性FP → 部分的に放出

- ✓乾燥熱処理の条件においては放出の可能性があるFP
- ✓FPごとに、放出に対する設計の考慮が必要

#### ○低揮発性FP → 放出しない

- ✓ウラン酸化物のように、融点が高く、放出の可能性が極めて小さいFP

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 (①乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価)

平成30年度の展開

### 1. 放出開始温度の評価

- 中揮発性FPとして選定したTe, TeO<sub>2</sub>, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ag, CdO単体粉末を用いて、大気圧下（ガスフロー）と減圧下で等速度昇温試験を実施。
- 放出が顕著に開始する温度を評価

表2 放出開始温度[°C]（等速度昇温試験）

|                  | Te  | Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | TeO <sub>2</sub> | CdO | Ag   |
|------------------|-----|--------------------------------|------------------|-----|------|
| ガスフロー            | 450 | 450                            | 800              | 900 | 1150 |
| 減圧<br>(約0.01atm) | 200 | 240                            | 400              | 600 | 740  |

- ❖ 試料重量 10~12 [mg]
- ❖ 昇温速度 20 [°C/min]
- ❖ 実際の燃料デブリが減圧乾燥されることを想定して、  
減圧 (10<sup>-2</sup>[atm]) (酸素分圧(10<sup>-3</sup>atm)安定して温度と重量変化が測定できるレベル)  
大気圧 (ガスフロー：酸素分圧(10<sup>-3</sup>atm) 減圧時と同程度になるように調整, He+O<sub>2</sub>(50ml/min)またはN<sub>2</sub>+Air(200ml/min))
- ❖ 重量減少速度が1×10<sup>-5</sup>[mg/sec]を超えるとときの温度を放出開始温度とした

平成30年度の成果

- 放出開始温度は、Te, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TeO<sub>2</sub>, CdO, Agの順に低い。この順序は、各FPの蒸気圧が10<sup>-12</sup>~ 10<sup>-8</sup>[atm]を示す温度の順序と概ね一致する。TeとSb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の順序については逆転しているが、これは、試料の表面積や蒸発ガスの拡散のされやすさ等の実験上の違い等によるものと考えられる。
- ガスフロー中と減圧下では、減圧下の方が200~400[°C]も放出開始温度が低くなる。減圧の程度によって放出開始温度、放出速度は大きく変わってくることが考えられる。
- TeとSb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の放出開始温度が特に低く、300[°C]以下であった。

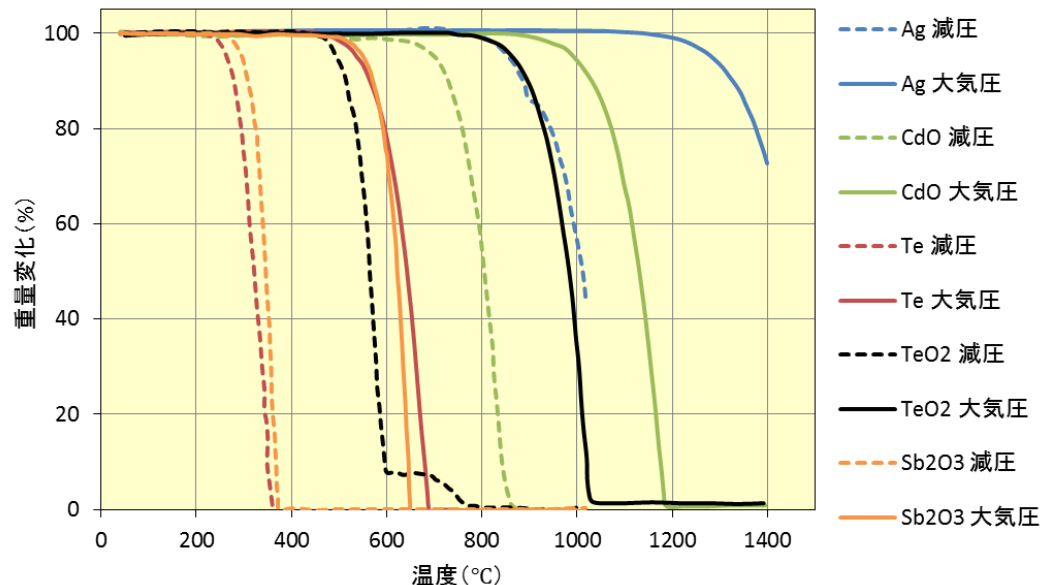


図2 各物質の放出による重量変化（等速度昇温試験）

## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 (①乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価)

平成30年度の展開

### 2. 放出速度の評価

- Te, TeO<sub>2</sub>, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Ag, CdO単体を用いて、大気圧下（ガスフロー）と減圧下で等温試験を実施。  
→ 重量減少の傾きから、各温度における放出速度[mg/m<sup>3</sup>・sec]を評価。  
→ さらに、温度の関数として放出速度式を導出し、幅広い温度で計算できるようにした。

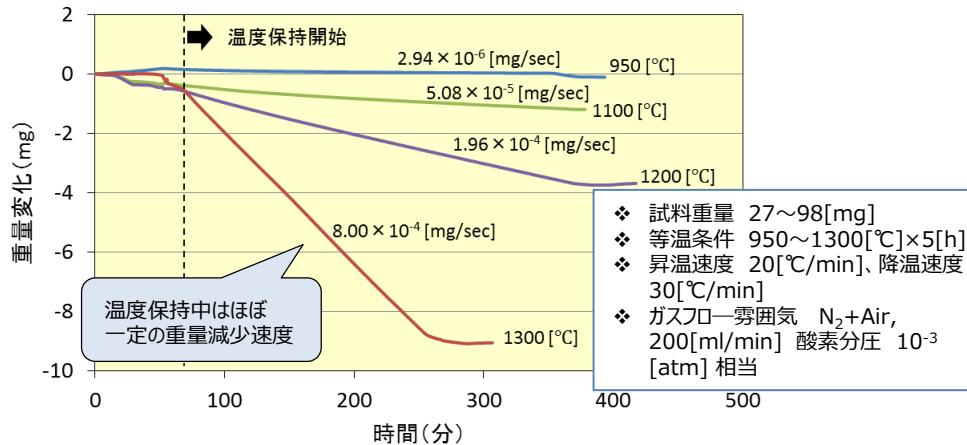


図3 Agの放出による重量減少（ガスフロー、等温試験）

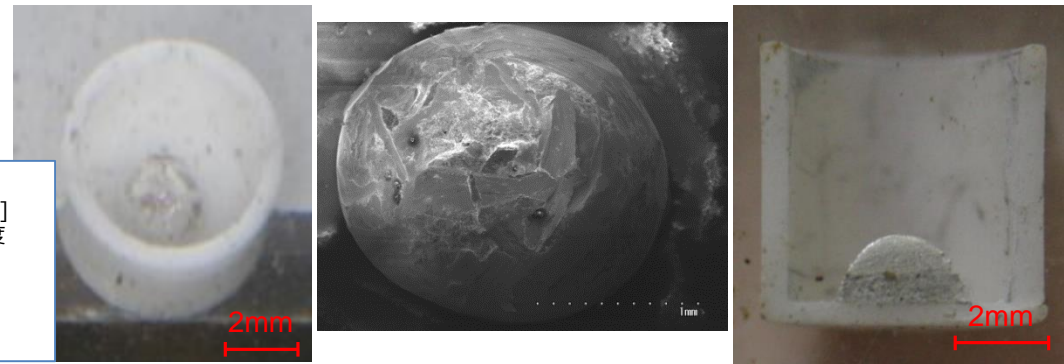


図4 Agの等温試験後の試料形状（ガスフロー、1100[°C]×5[h]）

平成30年度の成果

- 融点より高温：溶融状態のため、表面が滑らかな半球の塊であったと想定（図4）  
→ 半球相当の表面積を算出して、放出速度を評価
- 融点より低温：粉末が試料容器に平らに充填され、放出に有効な面は粉体試料の表層のみであると想定。  
→ 融点より低温の場合は試料容器断面積を用いて放出速度を評価

※融点より低温の評価において、ガス吸着法で粉末試料の表面積を算出すると、上記の評価よりも3~4桁大きくなる。このため、単位面積あたりの放出速度は3~4桁小さく得られる。この場合、他のデータと大きく傾向が異なることから、上記の評価方法を用いた。

表3 放出速度式 ( $\ln(v)$ ,  $v$  [mg/m<sup>2</sup>・sec])

|                                | 減圧                           | ガスフロー                        |
|--------------------------------|------------------------------|------------------------------|
| Te                             | $-1.25 \times 10^5/T + 28.5$ | $-1.48 \times 10^5/T + 24.4$ |
| Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | $-1.45 \times 10^5/T + 30.0$ | $-2.20 \times 10^5/T + 32.2$ |
| TeO <sub>2</sub>               | $-2.07 \times 10^5/T + 31.5$ | $-2.65 \times 10^5/T + 29.3$ |
| CdO                            | $-2.07 \times 10^5/T + 25.2$ | $-2.85 \times 10^5/T + 27.9$ |
| Ag                             | $-1.78 \times 10^5/T + 19.7$ | $-4.05 \times 10^5/T + 31.6$ |



## (2) 模擬デブリを活用した特性評価 (①乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価)

平成30年度の展開

### 3. 模擬デブリ中からのFPの放出挙動の評価

- 中揮発性FPのうち、代表としてAgを含有させた模擬デブリ (Ag-UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>焼結体) を作製。
- 1000~1300[°C]、ガスフロー中で等温試験を実施。
- 熱処理によるAgの放出挙動や、模擬デブリの微細組織の変化を評価。

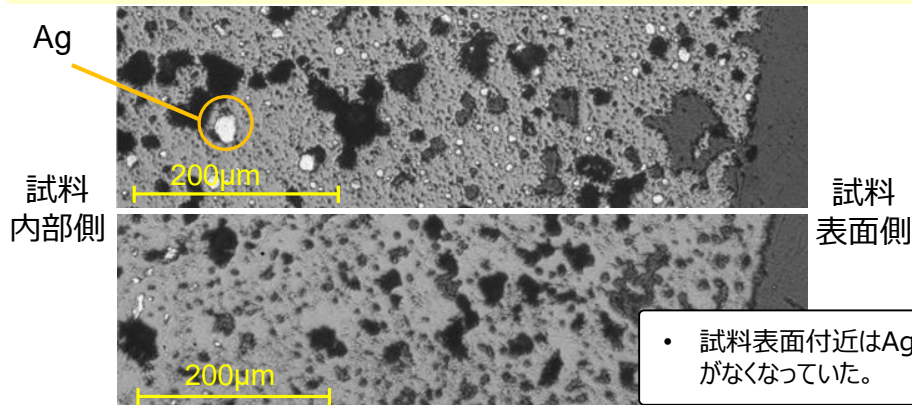


図5 模擬デブリ加熱試験前 (上図) 後 (下図) の金相写真 (1300[°C]×4[h])

- ❖ 試料重量 43~51[mg]
- ❖ 昇温速度 20[°C/min]、降温速度 30[°C/min]
- ❖ ガスフロー雰囲気 N<sub>2</sub>+Air, 200[ml/min] 酸素分圧 10<sup>-3</sup>[atm] 相当

平成30年度の成果

- Agが均一に分散した模擬デブリを作製した (図5上図)。熱処理の結果、試料表面のAgが放出されており、さらに、試料全体に微小なクラックが大量に生成していた。
- 温度保持開始した直後 (放出開始直後) の放出速度はAg単体と同程度の放出速度であったが、その後放出速度は遅くなっていった。(図6)
- 試料表面にあるAgは放出されやすい (単体と同程度)、しかしながら内部からは試料中の気孔やクラックを移動する必要があるため放出されにくいと考える (もともとのデブリの微細構造や熱処理中の構造の変化によって、放出速度が影響することも考えられる。)

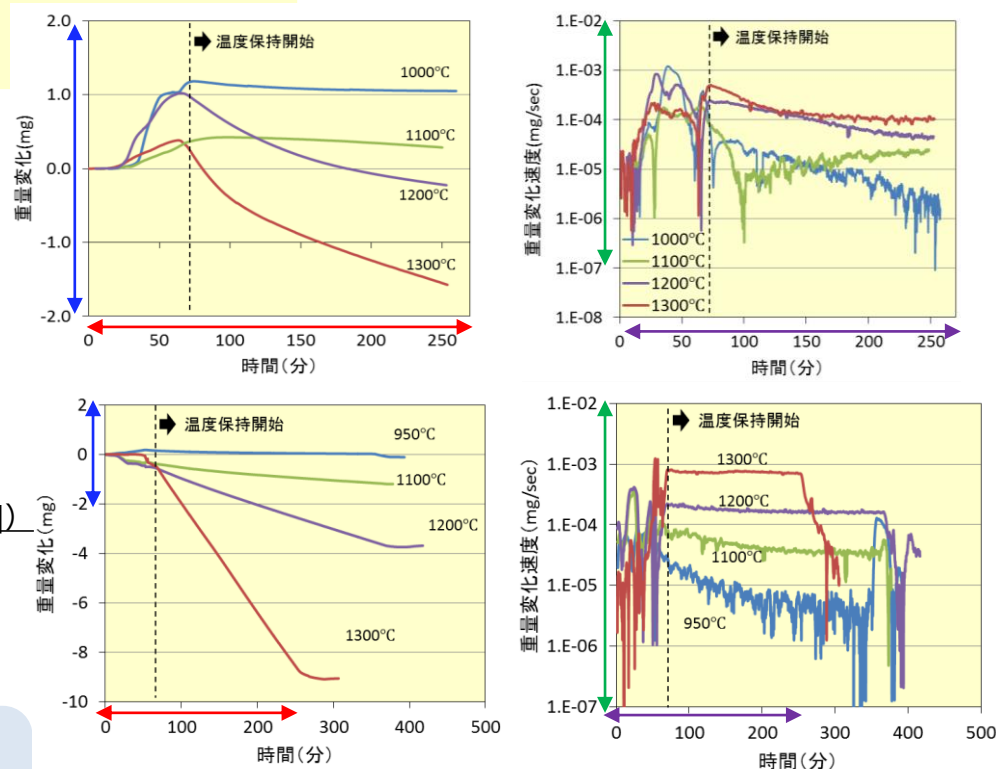


図6 Agの放出による重量減少及び変化速度  
(上図 模擬デブリ、下図 単体)

注：各色の矢印は各々同スケール

試験条件

等温試験 ガスフロー雰囲気 N<sub>2</sub>+Air,  
200[ml/min] 酸素雰囲気 10<sup>-3</sup>[atm] 相当

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発 (①燃料デブリサンプル分析の実施準備)

#### ●燃料デブリサンプル分析の実施準備（平成29年度、平成30年度）

燃料デブリサンプリングにより炉内等から得られると予想される微量の燃料デブリサンプルについて、現在整備中の大熊分析・研究センターの運用開始以前に分析を行うためには、茨城地区の既存分析施設で燃料デブリ等の1Fサンプルの分析が実施可能なように準備を行う必要がある。

このため、茨城地区既存分析施設で行う分析項目（燃料デブリの組成や機械的特性等）を検討し、分析項目ごとの分析要領の作成等を行う。

#### 【目標達成を判断する指標】

茨城地区分析施設で実施予定の分析項目ごとに分析要領が準備されていること。(平成30年度末) 【達成】

#### 平成30年度の成果

##### 分析要領書の作成

○作業項目全22項目の要領書作成（表参照）

- ・JAEA分析施設関係者のレビュー（大洗地区の分析施設所掌部署）
- ・IRID組合員によるレビュー（第6回PJ会議兼分析レビュー会議）

→デブリ分析に関する全体的な作業フローと基本的な作業要領の提示により、未知の試料に対する効率的な作業に寄与できる。

○分析要領に関する文献情報の整理・データベース化

・入手した文献情報（全137件）の整理→完成後、分析要領書の付属資料として利用。迅速・簡便な関連情報の検索、閲覧が可能

| 前処理作業項目 |                                       |
|---------|---------------------------------------|
| PR-1    | 試料の切り出し、切削、粉碎、粉末化調製                   |
| PR-2    | 試料の樹脂埋め、観察面の切断・研磨                     |
| PR-3    | 試料の溶液化                                |
| PR-4    | 各種濃度分析用試料溶液の分離・抽出                     |
| PR-5    | ふるい分け装置を用いた試料の分級                      |
| 分析作業項目  |                                       |
| P-1     | X線CTによる気孔率測定                          |
| P-2     | X線CT装置による密度分布測定                       |
| P-3     | 光学顕微鏡による形状観察および寸法測定                   |
| P-4     | 乾燥法による含水率測定                           |
| P-5     | 液浸型天秤を用いた見かけ密度測定、空隙率測定                |
| P-6     | ふるい分け装置を用いた試料の粒度分布測定                  |
| P-7     | ピッカース試験による硬度、靱性測定、および弾性率の測定           |
| P-8     | 一軸圧縮試験による圧縮強度測定                       |
| P-9     | SEM/EPMAによる試料表面または切断面の観察              |
| C-1     | X線CT装置およびγ線測定装置による構成成分の分析             |
| C-2     | SEM/EPMAによる元素の定性・定量分析                 |
| C-3     | XRDによる化学構造の測定                         |
| C-4     | イオンクロマトグラフによるデブリ間隙水・デブリ附着物中の塩化物イオンの定量 |
| C-5     | ICP-AESによる金属元素分析                      |
| C-6     | TIMSによるPu、Uの同位体組成、定量分析                |
| C-7     | α線スペクトロメータによる核種分析                     |
| C-8     | γ線スペクトロメータによる核種分析                     |

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

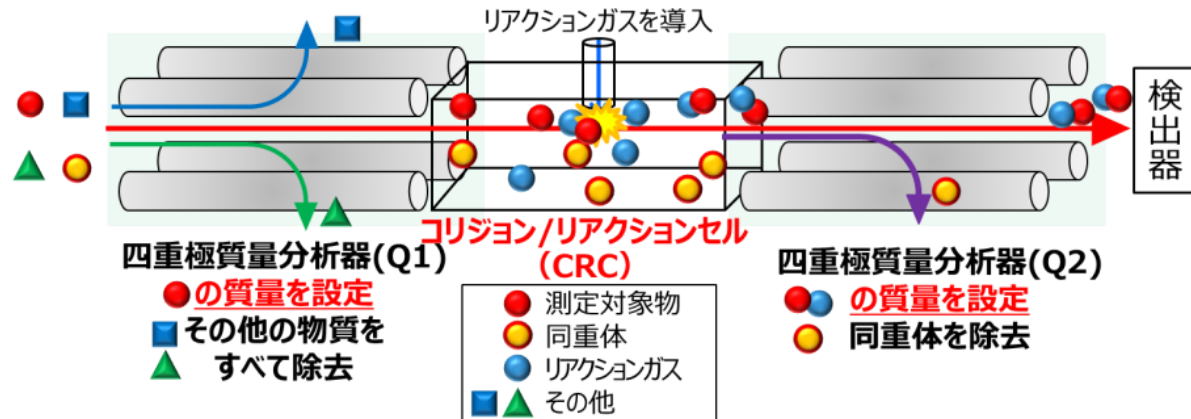
##### ●妨害イオンの影響度評価及び除去試験（平成29年度、平成30年度）

ICP-MSを用いて燃料デブリサンプル中に含まれる対象核種の分析を行う際には、サンプル中に含まれる他の核種が分析を妨害する可能性がある。本事業において検討対象とする新型ICP-MSはその影響（妨害）を大幅に軽減しうるが、そのためには妨害核種を特定するとともに、それらによる分析への影響（妨害の内容、程度）について把握し、その影響を除去するための適切な分析条件を検討する必要がある。さらに、影響が無視できない場合について、妨害核種の適切な除去が必要になる。

本事業においては、平成28年度の検討を踏まえ、妨害イオンの影響度を評価するとともに、除去が必要なイオンについてその除去方法を確立する。

##### 【目標達成を判断する指標】

- 除去が必要なイオンが特定されていること。目標除去率が設定されていること。 (平成29年度末)【達成】
- 上記で特定したイオンに係る除去方法の検討およびその除去の可否の確認がされていること。 (平成30年度末)【達成】



新型ICP-MS (ICP-QQQ-MS) による同重体分離のイメージ

(3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発  
 (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

平成29年度までの成果

ICP-QQQ-MSにより分析の合理化が可能と考えられる分析対象核種を抽出し、妨害となる同重体を調査した。また、抽出した分析対象核種に対するICP-QQQ-MSの感度を確認するため、表1にno gas モードにおける装置検出下限値をまとめた。その結果、Sr-90に関してはno gasモードにおいても満足いく感度が得られていない。

平成30年度の展開

1. 測定条件の検討

測定対象核種について、He、H<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>、N<sub>2</sub>O ガスとの反応性を調べ、妨害核種と分離測定可能で、感度の向上が期待できる測定条件を検討。

1.1. プロダクトイオンスキャン測定  
 (コリジョン/リアクションガス : He, H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O)

1.2. ガス流量および積分時間などの分離測定条件の検討

2. 妨害核種の影響度評価試験

分離測定の見込みが得られた測定条件で検量線を作成し、検出下限値を評価する。またそれらの条件での妨害核種の影響度を評価。

2.1. 検出下限値の評価

2.2. 妨害核種の測定に対する影響度の評価

表1 検出下限値および「トレンチ処分における基準線量当量濃度」を指標とした干渉核種の除去濃度一覧 (No gas モード)

| 測定対象核種 | 検出下限値 (ppb)<br>No gas mode | 基準線量相当濃度の最小値 (瓦礫/トレンチ) (ppb) |          | 妨害核種    | 検出下限値 (ppb)<br>No gas mode | 妨害核種の除去濃度 (ppb) |          |
|--------|----------------------------|------------------------------|----------|---------|----------------------------|-----------------|----------|
|        |                            | 1/1                          | 1/10     |         |                            | 1/1             | 1/10     |
| Ni-59  | 1.66E-02 (Ni-58)           | 9.14E+02                     | 9.14E+01 | Co-59   | 2.12E-04                   | 6.92E+02        | 6.92E+01 |
| Ni-63  | 1.66E-02 (Ni-58)           | 7.62E-01                     | 7.62E-02 | Cu-63   | 1.50E-03                   | 4.28E+00        | 4.28E-01 |
| Se-79  | 1.57E-01 (Se-78)           | 4.05E+01                     | 4.05E+00 | Br-79*  | -                          | -               | -        |
| Sr-90  | 1.90E-04 (Sr-88)           | 8.28E-05                     | 8.28E-06 | Zr-90   | 1.16E-03                   | 1.88E-02        | 1.88E-03 |
| Zr-93  | 3.70E-04 (Zr-90)           | 1.29E+03                     | 1.29E+02 | Nb-93   | 5.00E-05 (Nb-93)           | 6.72E+02        | 6.72E+01 |
|        |                            |                              |          | Mo-93   | 1.60E-03 (Mo-98)           | 1.17E+04        | 1.17E+03 |
| Mo-93  | 1.60E-03 (Mo-98)           | 3.09E-01                     | 3.09E-02 | Zr-93   | 3.70E-04 (Zr-90)           | 3.11E-02        | 3.11E-03 |
|        |                            |                              |          | Nb-93   | 5.00E-05 (Nb-93)           | 1.82E-02        | 1.82E-03 |
| Pd-107 | 3.80E-04 (Pd-105)          | 6.30E+04                     | 6.30E+03 | Ag-107  | 6.96E-05                   | 4.71E+04        | 4.71E+03 |
| I-129  | 1.42E-03 (I-127)           | 9.33E+01                     | 9.33E+00 | Xe-129* | -                          | -               | -        |
| Cs-135 | 1.60E-04 (Cs-133)          | 3.05E+02                     | 3.05E+01 | Ba-135  | 5.26E+00                   | 4.36E+03        | 4.36E+02 |
| Sm-151 | 3.00E-05 (Sm-147)          | 5.23E+01                     | 5.23E+00 | Eu-151  | 5.91E-05                   | 2.33E+01        | 2.33E+00 |

\*Br, Xeについては、揮発性であり溶液中に安定に保持することができないため、ICP-MSでの測定は困難

青字：平成29年度実施、赤字：平成30年度実施



### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

平成30年度の成果

#### 1. 測定条件の検討

##### 1.1. プロダクトイオンスキャン測定

測定対象核種および妨害核種について、CRガスとの反応挙動(生成する分子イオン)を確認するため、第1のQMSで指定した1つの質量数について、CRセルを通過した後の第2のQMSにて質量数を広範囲に測定を実施した。

→例えば、測定対象核種Sm-151 (Sm-147\*) と妨害核種Eu-151の結果では、

**NH<sub>3</sub>モードの マスシフト +16 で反応挙動に差があり、分離を見込むことができることを確認した。**

表2 Sm-147 プロダクトイオンスキャン測定

| He             |       |          |       | O <sub>2</sub>  |       |          |       |
|----------------|-------|----------|-------|-----------------|-------|----------|-------|
| m/z            | マスシフト | cps      | %     | m/z             | マスシフト | cps      | %     |
| 147            | +0    | 8724.98  | 99.86 | 147             | +0    | 190.33   | 0.68  |
| H <sub>2</sub> |       |          |       | 163             | +16   | 27715.34 | 98.77 |
| m/z            | マスシフト | cps      | %     | NH <sub>3</sub> |       |          |       |
| 147            | +0    | 17557.08 | 99.74 | m/z             | マスシフト | cps      | %     |
|                |       |          |       | 147             | +0    | 27990.37 | 88.33 |
|                |       |          |       | 163             | +16   | 1475.43  | 4.66  |
|                |       |          |       | 164             | +17   | 826.03   | 2.61  |

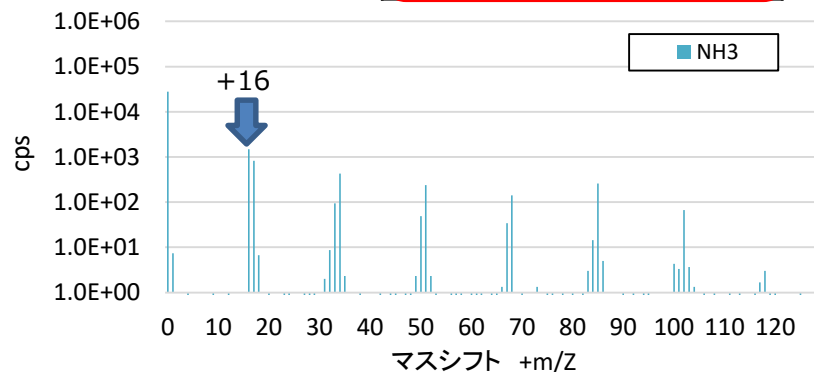


図3 Smプロダクトイオンスキャン測定

表3 Eu-151プロダクトイオンスキャン測定

| He             |       |          |       | O <sub>2</sub>  |       |           |       |
|----------------|-------|----------|-------|-----------------|-------|-----------|-------|
| m/z            | マスシフト | cps      | %     | m/z             | マスシフト | cps       | %     |
| 151            | +0    | 34752.98 | 99.88 | 151             | +0    | 90697.83  | 86.09 |
| H <sub>2</sub> |       |          |       | 167             | +16   | 14004.77  | 13.29 |
| m/z            | マスシフト | cps      | %     | NH <sub>3</sub> |       |           |       |
| 151            | +0    | 62819.04 | 99.82 | m/z             | マスシフト | cps       | %     |
|                |       |          |       | 151             | +0    | 122102.70 | 97.85 |
|                |       |          |       | 167             | +16   | 77.67     | 0.06  |
|                |       |          |       | 168             | +17   | 1591.77   | 1.28  |

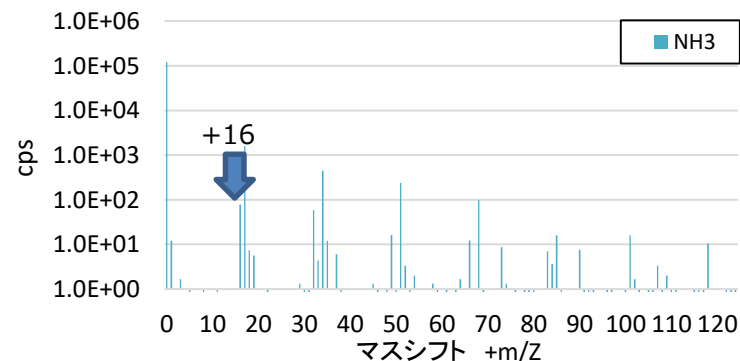


図4 Euプロダクトイオンスキャン測定

※ 本研究はコールド環境での試験のため、測定対象核種の反応挙動は安定核種で模擬した。

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

平成30年度の成果

#### 1.1. プロダクトイオンスキャン測定

##### 1. 測定条件の検討

妨害核種の干渉除去が見込める測定条件および各種条件に対する測定対象核種を模擬した安定核種および妨害核種のカウント比を整理した。(表4)

カウント比から、**分離測定を見込むことができるリアクションガスおよびマスシフトを決定。**

Ni-59, Co-59  
Pd-107, Ag-107 } 干渉除去が不十分  
(カウント比 > 1.0E-01)

妨害核種による干渉の低減や測定対象核種の測定感度を向上させることが必要

- ① CRガス流量変化による反応挙動確認  
→Ni-59, Co-59, Pd-107, Ag-107
- ② 積分時間の検討  
→Sr-90

本研究はコールド環境での試験のため、測定対象核種の反応挙動は安定核種で模擬して確認を実施した。

表4 各測定対象核種を模擬した安定核種およびその妨害核種の適したリアクションガス使用時のカウント比一覧

| カウント(cps) 1ppb            |                         | リアクションガス         | マスシフト + m/Z | カウント比<br>妨害核種/測定対象核種 |
|---------------------------|-------------------------|------------------|-------------|----------------------|
| 測定対象核種                    | 妨害核種                    |                  |             |                      |
| Ni-59(Ni-58)<br>4.3E+02   | Co-59<br>9.1E+01        | N <sub>2</sub> O | +0          | 2.1E-01              |
| Ni-63(Ni-58)<br>1.5E+04   | Cu-63<br>1.3E+02        | NH <sub>3</sub>  | +51         | 1.0E-02              |
| Se-79(Se-78)<br>2.8E+03   | Br-79<br>-              | O <sub>2</sub>   | +0          | -                    |
| Sr-90(Sr-88)<br>1.6E+05   | Zr-90<br>4.8E+01        | O <sub>2</sub>   | +0          | 3.0E-04              |
|                           | Y-90(Y-89)<br>5.0E+02   |                  |             | 3.0E-03              |
| Zr-93(Zr-90)<br>1.2E+04   | Nb-93<br>5.0E+00        | NH <sub>3</sub>  | +102        | 4.0E-04              |
|                           | Mo-93(Mo-98)<br>3.3E-02 |                  |             | 3.0E-05              |
| Mo-93(Mo-98)<br>4.0E+04   | Zr-93(Zr-90)<br>8.2E+02 | NH <sub>3</sub>  | +0          | 2.0E-02              |
|                           | Nb-93<br>3.0E+00        |                  |             | 8.0E-05              |
| Pd-107(Pd-105)<br>6.0E+02 | Ag-107<br>6.3E+01       | NH <sub>3</sub>  | +51         | 1.1E-01              |
| I-129(I-127)<br>5.1E+04   | Xe-129<br>-             | O <sub>2</sub>   | +0          | -                    |
| Cs-135(Cs-133)<br>1.8E+04 | Ba-135<br>-※            | N <sub>2</sub> O | +0          | -※                   |
| Sm-151(Sm-147)<br>1.5E+03 | Eu-151<br>7.8E+01       | NH <sub>3</sub>  | +16         | 5.0E-02              |

( ) 内は試験に用いた安定核種  
※有意なカウントが得られなかった

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発 (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

平成30年度の成果

#### 1. 測定条件の検討

##### 1.2.1. CRガス流量変化による反応挙動確認

CRガス流量を変化による核種の異なる挙動による干渉除去向上の可能性を確認した。

CRガス流量を変化させることによる影響は、核種毎に同様の感度の変化は見られるものの、除去が見込める分離挙動までは見られなかった。

Pd-107やNi-59をICP-QQQ-MSで測定する際には、Ag-107やCo-60が共存している場合は**測定前に妨害核種を分離しておくことが重要**である。

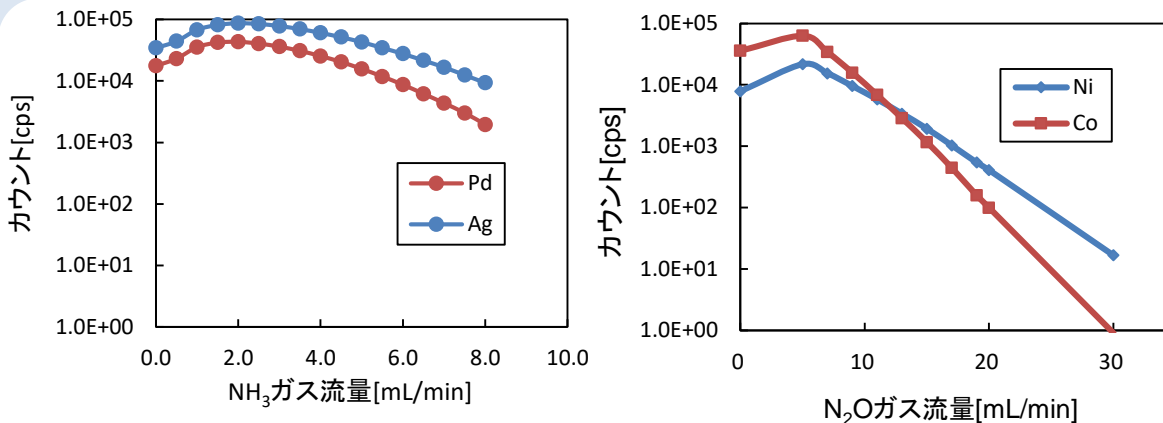


図5 リアクションガス流量とカウント数の関係

同様な化学反応挙動を示し、ICP-QQQ-MS上での分離は困難  
他のリアクションガスを導入するか、測定前に分離する必要がある。

##### 1.2.2. 積分時間の検討

ブランク値の低減を目的として、Sr-90測定における最適な積分時間を検討した。

積分時間を増加することによる測定への影響は、ブランク値の相対標準偏差に低下の傾向が見られたが、検出限界値は桁数での低下程度の影響しか見られなかった。

このことより、Sr-90の「トレンチ処分における基準線量相当濃度」の1/10を満たせず、この条件では**ICP-QQQ-MSにおけるSr-90測定が難しいことが判った**

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

平成30年度の成果

#### 2. 妨害核種の影響評価試験

##### 2. 検出限界値および影響度算出

各測定対象核種を模擬した安定核種の適したリアクションガスを使用した時の検量線を作成し、導出した検出下限値を整理した。(表5)

Sr-90以外の核種については、**必要な検出下限値で測定が可能であることを確認した。**

また、測定対象核種の測定に影響を及ぼす値である影響度を(1)式のように算出し、整理した(表6)。

$$\text{影響度 } I = B' / k' \quad \dots(1)$$

I : 影響度  
B' : ガスモードを用いた際の妨害核種のカウント数(cps)  
(妨害核種質量数)  
k' : 検量線の傾き(cps/ppb)(測定対象核種を模擬した質量数)

影響の度合いを、 $10^{-3}$ 桁以下であることを評価の基準として評価すると、**Ni-59, Ni-63, Se-79, Pd-107**以外の核種については、各測定条件を用いることで**分離除去測定が可能で見通しが得られた。**

トレンチ処分における基準線量相当濃度の1/10を満足しなかったSr-90については、目標とする検出下限値の検討やバッググラウンドの低減など、感度向上に向けた測定条件検討が必要。

Ni-59, Ni-63, Se-79, Pd-107をICP-QQQ-MSで測定する際には、**測定前に各妨害核種を分離する操作が必要である。**

表5 各測定対象核種を模擬した安定核種の適したリアクションガス使用時の検出下限値一覧

| 測定対象核種 | 検出下限値(ppb)       | BEC値(ppb) | リアクションガス         | 基準線量相当濃度の最小値(瓦礫/トレンチ)(ppb) |          | 妨害核種           |
|--------|------------------|-----------|------------------|----------------------------|----------|----------------|
|        |                  |           |                  | 1/1                        | 1/10     |                |
| Ni-59  | 2.4E-02 (Ni-58)  | 1.2E-01   | N <sub>2</sub> O | 9.14E+02                   | 9.14E+01 | Co-59          |
| Ni-63  | 8.0E-04 (Ni-58)  | 1.4E-03   | NH <sub>3</sub>  | 7.62E-01                   | 7.62E-02 | Cu-63          |
| Se-79  | 3.5E-03 (Se-78)  | 2.3E-02   | O <sub>2</sub>   | 4.05E+01                   | 4.05E+00 | Br-79          |
| Sr-90  | 3.3E-05 (Sr-88)  | 1.3E-05   | O <sub>2</sub>   | 8.28E-05                   | 8.28E-06 | Zr-90<br>Y-90  |
| Zr-93  | 3.3E-05 (Zr-90)  | 3.4E-06   | NH <sub>3</sub>  | 1.29E+03                   | 1.29E+02 | Nb-93<br>Mo-93 |
| Mo-93  | 3.3E-05 (Mo-98)  | 4.3E-05   | NH <sub>3</sub>  | 3.09E-01                   | 3.09E-02 | Zr-93<br>Nb-93 |
| Pd-107 | 6.7E-04 (Pd-105) | 5.9E-04   | NH <sub>3</sub>  | 6.30E+04                   | 6.30E+03 | Ag-107         |
| I-129  | 3.5E-04 (I-127)  | 5.7E-04   | O <sub>2</sub>   | 9.33E+01                   | 9.33E+00 | Xe-129         |
| Cs-135 | 7.2E-05 (Cs-133) | 1.5E-05   | N <sub>2</sub> O | 3.05E+02                   | 3.05E+01 | Ba-135         |
| Sm-151 | 7.8E-05 (Sm-147) | 3.6E-05   | NH <sub>3</sub>  | 5.23E+01                   | 5.23E+00 | Eu-151         |

( ) 内は試験に用いた安定核種

表6 各測定対象核種を模擬した安定核種に対する妨害核種の影響度一覧

| 測定対象核種 | C/Rガス            | 妨害核種  | 影響度     | 測定対象核種 | C/Rガス            | 妨害核種   | 影響度     |
|--------|------------------|-------|---------|--------|------------------|--------|---------|
| Ni-59  | N <sub>2</sub> O | Co-59 | 9.4E-02 | Mo-93  | NH <sub>3</sub>  | Zr-93  | 8.1E-03 |
| Ni-63  | NH <sub>3</sub>  | Cu-63 | 1.0E-02 |        |                  | Nb-93  | 8.9E-03 |
| Se-79  | O <sub>2</sub>   | Br-79 | 2.3E-02 | Pd-107 | NH <sub>3</sub>  | Ag-107 | 1.8E-02 |
| Sr-90  | O <sub>2</sub>   | Zr-90 | 4.4E-04 | I-129  | O <sub>2</sub>   | Xe-129 | 2.2E-03 |
|        |                  | Y-90  | 1.7E-03 | Cs-135 | N <sub>2</sub> O | Ba-135 | 1.2E-04 |
| Zr-93  | NH <sub>3</sub>  | Nb-93 | 9.1E-04 | Sm-151 | NH <sub>3</sub>  | Eu-151 | 3.5E-03 |
|        |                  | Mo-93 | 4.7E-04 |        |                  |        |         |



### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### (②分析に必要となる要素技術開発 a. ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発)

#### ICP-MS/MSを用いた核種分析検討の基礎試験結果

| 測定対象核種 | 反応ガス             |                | マスシフト<br>+m/Z | 元素標準試料を用いた基礎試験結果 |              | 考えられる安定同位体核種(試料マトリクス)<br>によるスペクトル干渉 |         | 前処理での<br>妨害核種除去の必要性<br>(※2) |
|--------|------------------|----------------|---------------|------------------|--------------|-------------------------------------|---------|-----------------------------|
|        | 種類               | 流量<br>(mL/min) |               | 装置検出下限<br>[ppb]  | BEC<br>[ppb] | 妨害核種<br>(※1)                        | 影響度     |                             |
| Ni-59  | N <sub>2</sub> O | 2              | 0             | 2.4E-02          | 1.2E-01      | Co-59                               | 9.4E-02 | ×                           |
| Ni-63  | NH <sub>3</sub>  | 3              | 51 (63-114)   | 8.0E-04          | 1.4E-03      | Cu-63                               | 1.0E-02 | ×                           |
| Se-79  | O <sub>2</sub>   | 0.3            | 0             | 3.5E-03          | 2.3E-02      | Br-79                               | 2.3E-02 | ×                           |
| Zr-93  | NH <sub>3</sub>  | 3              | 102 (93-195)  | 3.3E-05          | 1.3E-05      | Nb-93                               | 4.4E-04 | ○                           |
|        |                  |                |               |                  |              | Mo-93*                              | 1.7E-03 | ○                           |
| Mo-93  | NH <sub>3</sub>  | 3              | 0             | 3.3E-05          | 3.4E-06      | Nb-93                               | 9.1E-04 | ○                           |
|        |                  |                |               |                  |              | Zr-93*                              | 4.7E-04 | ○                           |
| Sr-90  | O <sub>2</sub>   | 0.3            | 0             | 3.3E-05          | 4.3E-05      | Y-90*                               | 8.1E-03 | △                           |
|        |                  |                |               |                  |              | Zr-90                               | 8.9E-03 | △                           |
| Pd-107 | NH <sub>3</sub>  | 3              | 51 (107-158)  | 6.7E-04          | 5.9E-04      | Ag-107                              | 1.8E-02 | ×                           |
| I-129  | O <sub>2</sub>   | 0.3            | 0             | 3.5E-04          | 5.7E-04      | Xe-129                              | 2.2E-03 | ○                           |
| Cs-135 | N <sub>2</sub> O | 2              | 0             | 7.2E-05          | 1.5E-05      | Ba-135                              | 1.2E-04 | ○                           |
| Sm-151 | NH <sub>3</sub>  | 3              | 16 (151-167)  | 7.8E-05          | 3.6E-05      | Eu-151*                             | 3.5E-03 | ○                           |

※1: \*印は放射性核種

※2: 同濃度共存している条件であれば

○: 前処理での妨害核種除去の必要性なく、目標とする検出下限値が得られる。

△: 前処理での妨害核種除去の必要はないが、目標とする検出下限値(トレンチ処分における基準線量相当濃度の1/10)は得られない。

×: 妨害元素を前処理にて除去する必要がある。(影響の度合いを 10<sup>-3</sup> 桁以下であることを評価の基準として)

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発 (②分析に必要となる要素技術開発 b.燃料デブリサンプルの輸送に係る検討)

#### ●燃料デブリサンプルの輸送に係る検討（平成30年度）

茨城地区既存分析施設における燃料デブリサンプルの分析へ迅速に対応するために、燃料デブリサンプルを茨城地区既存分析施設へ輸送が可能なように準備しておく必要がある。そのため、燃料デブリサンプルの輸送に係る検討として、これまでに検討したB型輸送容器及び収納缶の仕様を基に、燃料デブリサンプル分析を行う茨城地区既存分析施設での受入方法の検討（取合い治具の検討含む）を行う。

#### 【目標達成を判断する指標】

- B型輸送容器の仕様に基づき、茨城地区既存分析施設での受入方法が検討されていること。（平成30年度末）【達成】

#### 【実施概要】

平成26年度補助金事業において、B型輸送容器による燃料デブリ試料の茨城地区の既存分析施設への係る検討が行われ、以下の施設においては、施設側の大規模な工事等なしに受入可能であり、B型輸送容器による燃料デブリ輸送及び分析の見通しを得られている。

JAEA原科研 燃料試験施設（RFEF） JAEA大洗研 照射燃料集合体試験施設（FMF）

日本核燃料開発株式会社（NFD）（大洗）ホット試験施設

今年度は、上記調査から施設等の状況の変化の有無について、聞き取り調査を行った。併せて以下の施設についても分析設備について調査した。

JAEA 核サ研 高レベル放射性物質研究施設（CPF）、 JAEA 原科研 第4研究棟  
ニュークリア・デベロップメント株式会社（NDC）ホット施設

#### 【平成30年度の成果】

- 既存B型輸送容器を想定した、各施設における受入フローについては、JAEA(RFEF, FMF)及びNFDの施設については前回の調査より設備の変更がないことを確認し、輸送容器が受け入れることができることが判った。また、NDC施設についても、同型B型輸送容器を受け入れた実績があり、受入れ自体に支障はないことが判った。

## まとめ

### (1)燃料デブリ性状の推定

#### 【デブリ表面線量率の評価】

- ・性状パラメータのケース数を大幅に増やした線源計算とモンテカルロ計算を実施し、その結果に基づき、平成29年度の線量率評価式を改良し、多様なケースの燃料デブリに対する表面線量率を推定可能な改良評価式（マイクロモデル）を開発した。
- ・改良評価式を組み込んだ線量率評価ツール(EXCELシート)を作成し、表面線量率のパラメータ依存性(感度)を簡便に評価できるようにした。今後の分析により得られる知見（特に線量率感度が高い線源核種濃度）を評価式の改良にフィードバックすることにより、予測精度の向上を図ることが可能。
- ・改良評価式を使用し、代表的な性状パラメータ（半径、密度、燃焼度、FP放出率）に依存する溶融デブリ、MCCIデブリ、金属デブリの表面線量率を評価し、特性リストに反映させた。

## まとめ

### (1)燃料デブリ性状の推定

#### 【放射性飛散微粒子挙動データの採取・評価】

##### 1) 放射性微粒子に係わる環境条件の整理と収集

###### ①既存ホット施設の廃止措置作業情報の整理とデータ採取

- ・汚染されたGBパネルや内装機器の設備の切断作業に伴い、空気中のダスト濃度が上昇していることが確認できた。一方、切断作業が終了しても、直後の作業エリアの片付け等エリア内での作業により既に発生し、床面に付着していたダストの再浮遊により空気中のダクト濃度の上昇が見られた。
- ・切断作業が終了しても、直後はエリア内での作業によるダストの再浮遊について注意を払う必要がある。切断作業箇所付近での集塵排気等微粒子飛散防止策を行うことが重要であることが判った。

##### 2) 気中・水中・気液界面における放射性微粒子の生成・移行挙動の採取・評価

- ・過去の仏国におけるレーザー解体試験（コールド）のデータを調査した結果では、コリウム主体とする模擬デブリとMCCIを含む模擬デブリにおける粒子の発生挙動は異なっているが、今後、同一条件で試験を実施し比較することで、これまでも含めて両者の試験データを活用できる可能性があることが判った。
- ・水中で発生した微粒子を含む気泡の、水中での滞在時間を長くすることで、気液界面からの微粒子の移行挙動を抑制できることが判った。
- ・水中における微粒子の挙動について、今回の試験条件では切断時の発生微粒子は、数時間で大部分は水中に沈降する。また電解質がある場合は、その挙動は促進されることが判った。

## まとめ

### (1)燃料デブリ性状の推定

#### 【1 F炉内付着物の性状データの採取・評価】

極めて限られた取得サンプルであり、各ユニットのPCV内サンプルの取得部位や対象の状態の差などもあり、その代表性には注意を要するが、今回得られたサンプル分析結果からは主に以下の知見が得られた。

- ・1号機及び3号機のPCV内サンプル内で検出されたU含有粒子とその周辺領域について、ウランの割合の大きい領域が多い点が共通している。他方、2号機のPCV内サンプルでは1,3号機のPCV内サンプルに比べてジルコニウムの割合の大きい領域が多く、1,3号機と2号機で異なる傾向がある。
- ・2号機PCV内サンプルでは、Uに比べZrの比率が高く、金属Zr中に酸素や(U,Zr)O<sub>2</sub>が存在するとみられる粒子があった。これは酸化物燃料が溶融したものではなく、酸素濃度の比較的低い条件で、比較的低温（2200℃程度以下）の過程で生成した可能性が考えられる。
- ・2号機オペフロ養生シートにはU含有割合の高い領域と上記のPCV内サンプルに近いZr含有割合の比較的大きな領域の双方が存在している。事故進展状況を考えると、前者は事故の比較的早い段階にRPV内の燃料デブリから放出された可能性があり、後者は事故の後期段階でペDESTALに移行した燃料デブリから放出された可能性が考えられる
- ・上記の結果は従前の「総合的な炉内状況把握の高度化」PJにおいて把握した1～3号機の「炉内状況推定」の結果とは矛盾しない。



## まとめ

### (2) 模擬デブリを活用した特性評価

#### 【乾燥熱処理における核分裂生成物の放出挙動評価】

- 環境毒性の高い中揮発性FPとして平成29年度に選定した、Te,  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ ,  $\text{TeO}_2$ , CdO, Agの5種類のFPに対して、ガスフロー中（大気圧）と減圧下（約 $10^{-2}$ [atm]）の2条件（共に酸素分圧は $10^{-3}$ [atm]相当）で放出挙動に係る試験を行い、放出開始温度と放出速度を得た。
- 燃料デブリを減圧乾燥することを想定した場合、200[°C]でもTeと $\text{Sb}_2\text{O}_3$ は有意量が放出されるおそれがある。一方、 $\text{TeO}_2$ , CdOおよびAgの放出は極めて少量であることが予想される。中揮発性のFPの放出開始温度や放出速度は、温度や減圧の程度で大きく変化することが確認された
- Agを含有し、 $\text{UO}_2$ および $\text{ZrO}_2$ から作製した模擬デブリを用いて、Agの放出試験を行った。模擬デブリ内部からのAgの放出は、当初はAg単体と同程度であったが、元々または熱処理中での模擬デブリの酸化等により発生した試料内部の気孔やクラックを移動する必要があるため、徐々に放出速度が遅くなることが判った。

### (3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

#### 【燃料デブリサンプル分析の実施準備】

- 茨城地区既存分析施設で行う分析項目について、分析要領を作成した。また、根拠となる文献等についてデータベースとして整理した。
- 今後、分析施設においてこの分析要領を基に、施設に合わせたマニュアルを作成することで、燃料デブリの分析の円滑な実施に貢献できるものとする。

#### 【分析に必要となる要素技術開発（ICP-MSによる多核種合理化分析手法の開発）】

- 新型ICP-MS（ICP-QQQ-MS）による多核種合理化分析手法の適用について、合理化が可能となる分析対象核種を抽出し、妨害核種と分離測定可能で、感度の向上が期待できる測定条件（反応ガスの種類、流量）及び妨害核種の影響度を調査し、新型ICP-MSによって、事前の分離操作が不要で操作の合理化が図れる見込みの対象核種とその測定条件を明らかにした。また従前のICP-MSと同様に事前分離操作が必要、また感度の向上が期待できない核種について明らかにした。

#### 【分析に必要となる要素技術開発（燃料デブリサンプルの輸送に係る検討）】

- 既存B型輸送容器について、JAEA(RFEF, FMF)及びNFDの施設については、受け入れることができることが確認された。また、NDC施設についても、同型B型輸送容器を受け入れた実績があり、受入れ自体に支障はないことが判った。