

平成25年度実績概要

模擬デブリ性状把握・処置技術の 開発

平成26年6月27日

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構

無断複製・転載禁止 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構
©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

背景・目的

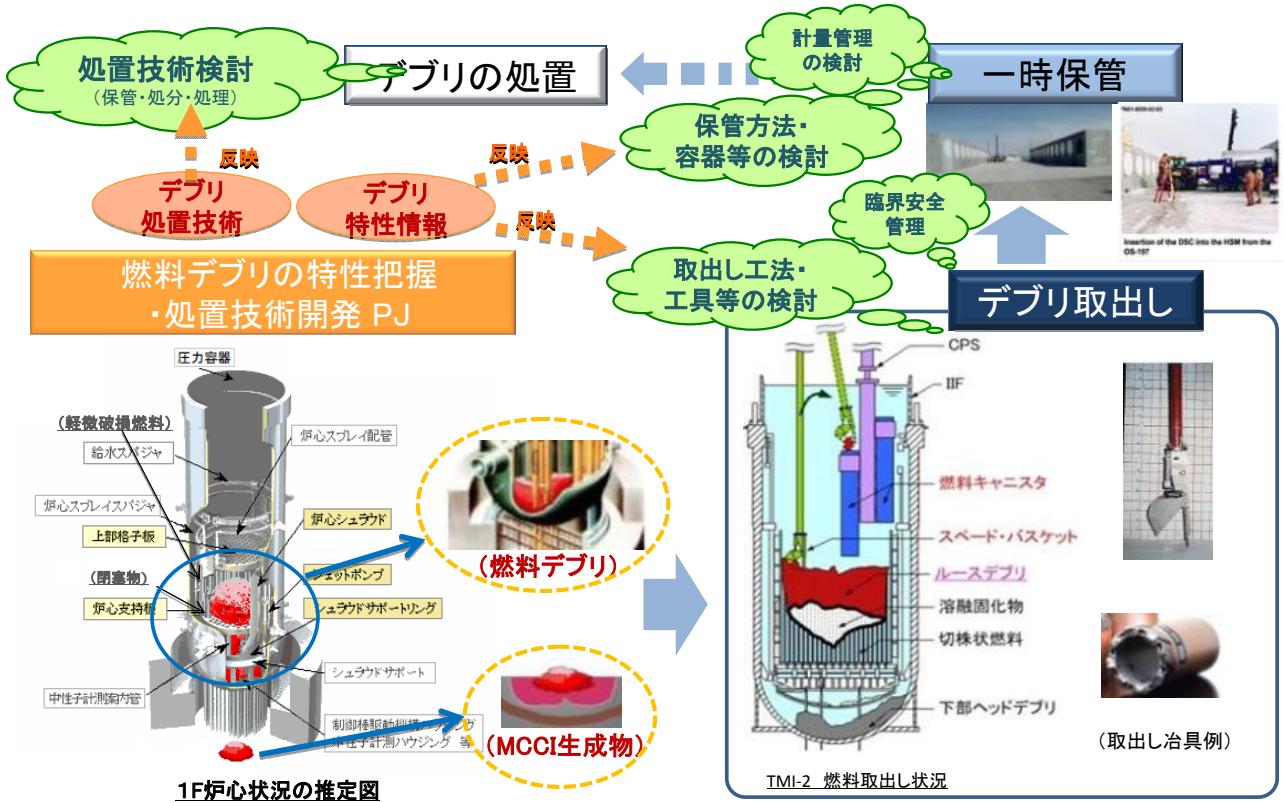
【背景】

東京電力福島第一原子力発電所事故で発生した燃料デブリに関し、燃料デブリの模擬体(模擬デブリ)を作製し、機械的特性、化学的特性などの性状データを取得するとともに、燃料デブリ取り出し後の処置(処理・処分等)の見通しを得るために処置に関する選択肢及び既存の処理技術の適用可能性について検討することで、**原子力施設の廃炉・安全技術基盤の高度化を図ることに加え、福島第一原子力発電所の中長期的な廃止措置等に向けた取組を着実かつ迅速に行なう必要がある。**

【目的】

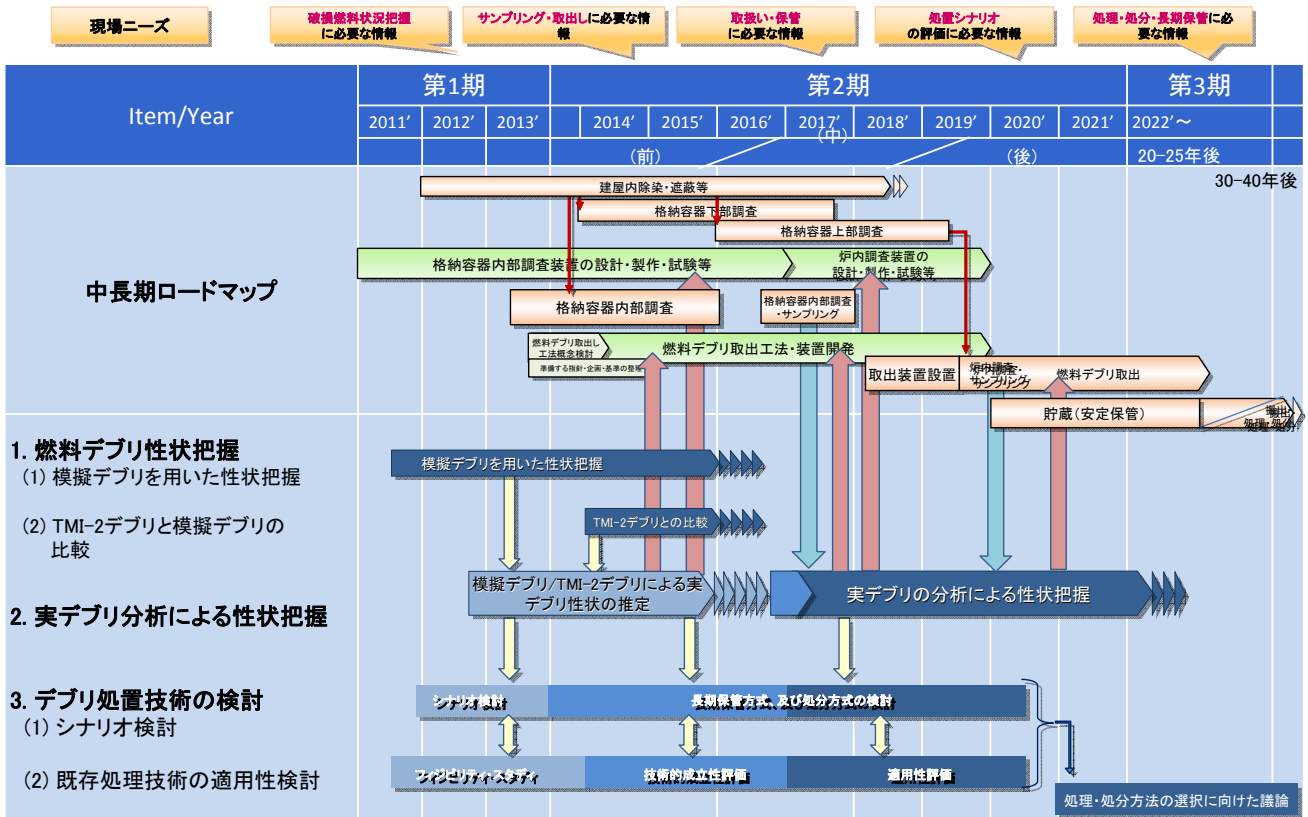
本事業は、「東京電力福島第一原子力発電所1～4号機の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」(以下、「中長期ロードマップ」という。)と整合を図りつつ、燃料デブリの取り出しの具体的方法の検討に向けて、**事故履歴を踏まえて模擬デブリを作製し、実デブリの性状を推定を行う。また、燃料デブリ取り出し後の処置(処理・処分等)の見通しを得るため、処置に関する選択肢及び既存の処理技術の適用可能性について検討を行う。**

プロジェクトの概要



全体スケジュール

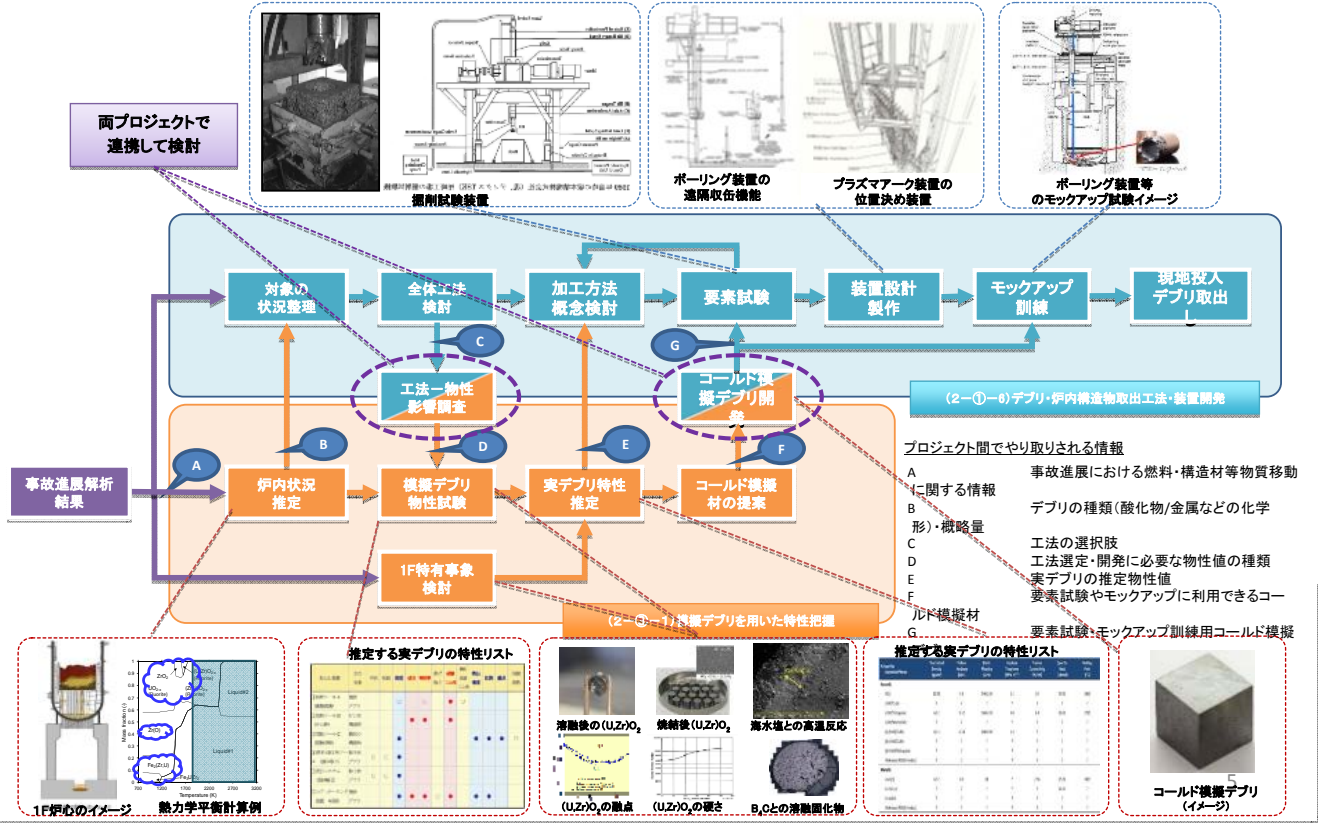
※2号機の場合



(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握 デブリ取出し工法・装置開発とデブリ特性把握関係図(案)

● TMI-2等の情報を参考に取出し工法・装置開発への開発ステップをJAEAで想定。

※ 取出し装置開発プロジェクトの工程についてはJAEAの想定であり、今後、本プロジェクトの立ち上げ後に具体化、調整を行う必要がある。



(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握 研究開発の進め方

検討方針

- 最新の1Fプラントデータや事故進展解析の結果を反映して、炉内デブリの化学形等を推定。
- 適宜、現場やデブリ取出しPJと情報交換し、ニーズに合わせて項目を見直す。(②～⑤でも同様)
- 現在、調整中の他PJ(収納保管、臨界安全、計量管理)ニーズを踏まえて必要な項目を見直す。
- 国際的な知見(SA研究、TMI-2等)を反映する。

- 主要な工法(穿孔など)に対して、影響の大きな物性を検討し、工法に応じた模擬デブリの選定基準となる物性を検討する。
- 模擬デブリを用いて、主要なデブリ材料について機械的物性データを取得する。
- 組成や不純物の影響などを含めた幅広いデータを取得する。
- 早期に多くのデータを必要とすることから、種々の可能性を考慮し前もって幅広いデータを取得。

- 模擬デブリを用いて、1F特有の反応の影響を評価する。
- 炉内の状況などについては並行して解析が進められているため、種々の可能性を考慮し前もって幅広いデータを取得。

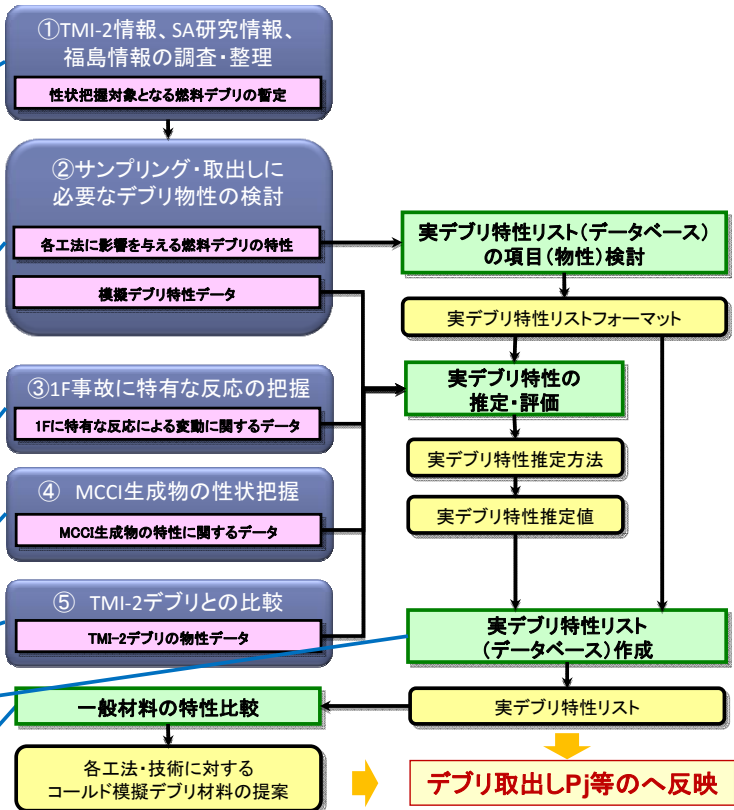
- 海外知見や国際協力を有効に活用し、MCCI現象及び生成物に関する情報を入手する。

- TMI-2デブリを用いて物性データを取得する。

- 取得したデータ・情報を基に実デブリ特性を推定し、特性リストとして取りまとめる。

- 影響の大きい特性が類似する一般材料を選定し、各工法・技術に対するコールド模擬デブリ材料を提案する。

検討の進め方



(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握

(1) 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

■ 材料物性の加工性への影響評価

表 サンプリング・取出しの検討に必要と考えられる燃料デブリの物性

加工方法	燃料デブリ	脆性	塑性	延性	強度
①切断ツールA (衝撃破壊)	塊状デブリ	●	●	●	●
②切断ツールB (せん断)	ピン状積層物	●	●	●	●
③切断ツールC (溶融切断)	板状の積層物	●	●	●	●
④燃料回収用ツール (組み取り)	粒状デブリ	○	○	○	○
⑤吸引システム (吸引輸送)	粒状デブリ	○	○	○	○
⑥篩 (研削)	デブリ	●	●	●	●

●: 増加傾向、○: 減少傾向、△: 不明
 ※: 増加傾向、○: 減少傾向、△: 不明

コア・ボーリングに着目して、実験的に確認

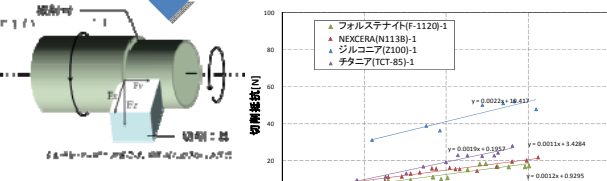


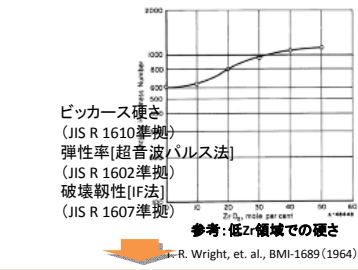
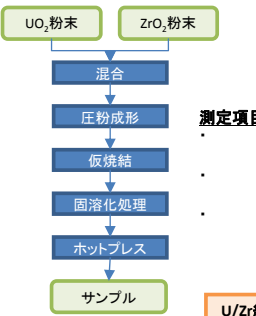
図 種々のセラミックスの切削抵抗 (工具摩耗により整理)

※「研削」は、原理的に無数の「切削」の集合とみなせるため、より単純な切削で影響を評価。

「硬さ」「弾性率」「破壊靱性」などの物性が機械加工へ及ぼす影響の程度を確認。⇒ 加工要素試験等へのコールド模擬デブリは影響の大きなものを指標に選定。

■ 酸化物デブリの機械的性質

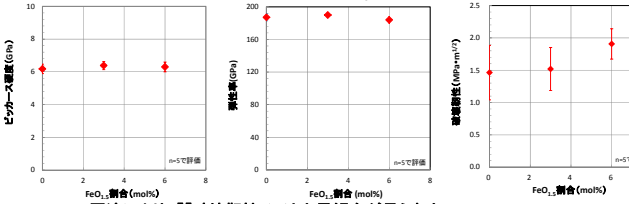
● U/Zr比影響評価 (高Zr含有率)



U/Zr組成比が機械的性質に与える影響を評価。⇒ Zr成分の多いBWR系の燃料デブリの特性推定に寄与。

● Feの固溶影響評価

(U,Zr)O₂ (10%ZrO₂) に対して3、6mol%のFeO_{1.5}を固溶させて測定。



Feの固溶により、「破壊靱性」には上昇傾向が見られた。表面観察(SEM-EDX)やXRD分析を行い、結果の解析中。

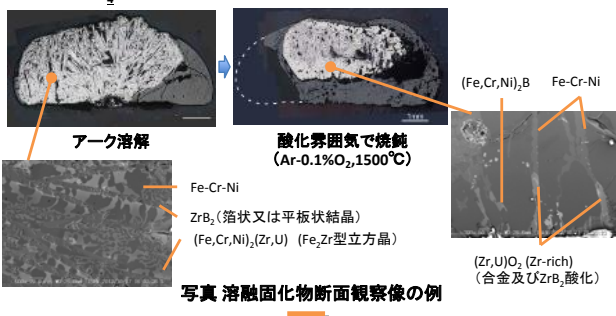
加工(破碎)時の挙動についてはFeの影響でやや割れにくくなる傾向。



(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握

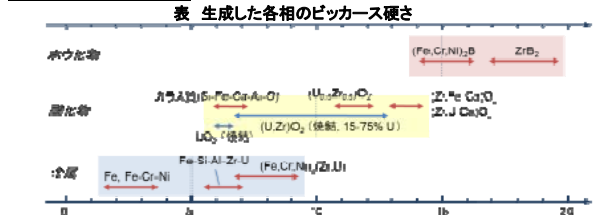
(2) 1F事故に特有な反応(1/2)

■ 制御材(B₂C+SUS)との反応



制御材(B₂C+SUS)との反応により、Fe-Cr-Ni合金やFe₂Zr型金属間化合物の金属相およびZrB₂や(Fe,Cr,Ni)₂Bのホウ化物生成の可能性を示唆。

■ 反応物の物性データ



● B₂C制御材由来のホウ化物が全化合物中で顕著に高硬度、
 ● 金属ではFe₂Zr型組成のLaves相が高硬度

取出し工具に対して、酸化物以上に摩耗等の不具合の原因となる物質として、ホウ化物の存在を示唆。

■ コンクリートとの反応



表 不活性雰囲気下での生成相

混合系 (wt%)	生成相
モルタル/Fe (30/70)	Si-Fe-Ca-Al-Mg-O ガラス質 Fe
モルタル/Fe/Zr (30/40/30)	fcc (Zr,Ca,Al)O ₂ +x → 粒界ガラス質 Al-Ca-Si-Zr-Mg-O 合金2相 Fe-Si-Al, Fe-Si-Zr
モルタル/Fe/Zr/ZrO ₂ (20/30/20/30)	fcc (Zr,Fe,Ca)O ₂ -x → 粒界ガラス質 Si-Fe-Ca-Al-Zr-Mg-O Fe
モルタル/Fe/Zr/(U,Zr)O ₂ (20/30/20/30)	fcc (Zr,U,Ca)O ₂ -x → 粒界 Al-Ca-O 合金2相 Fe-Si-Al, Fe-Si-Al-Zr-U

溶融固化過程で酸化物(ガラス質含む)と合金に分離する傾向。不活性雰囲気ではUやSi合金に含まれる可能性。(Caは酸化物相)

■ デブリコロイド

表 各溶媒への浸漬(50°C, 1か月)後の生成物

浸漬液	U	UO ₂	PuO ₂
純水	—	UO ₂	—
過酸化水素水	—	UO ₂ ·4H ₂ O	PuO ₂
ホウ酸水	UO ₂	主にUO ₂	—

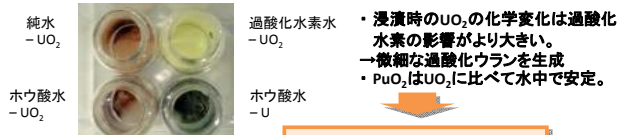


写真 浸漬中の外観(例) 浮遊デブリの性状データの取得。



(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握 (2) 1F事故に特有な反応 (2/2)

■ Pu含有模擬デブリの特性



(a) $(U_{0.69}Pu_{0.06}Zr_{0.25})O_{2.00}$ (b) $(U_{0.23}Pu_{0.02}Zr_{0.75})O_{2.00}$

図 溶融後試料の外観・断面

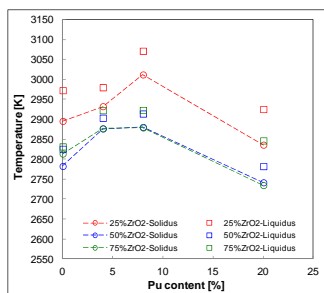


図 模擬MOXデブリの融点のZr含有率の影響

- 融点のPu含有率依存性:
- 融点に対するPu含有の影響が10%Pu付近で極大をとる傾向。
 - Zr含有率が25%、50%、75%の試料で同様の傾向を示すことを確認。

模擬MOXデブリの弾性定数、熱膨張率を評価予定。

臨界特性に影響が大きいPu挙動の予測に寄与。デブリの熱特性評価に寄与。

■ Gd含有模擬デブリの特性



図 $(U_{0.45}Gd_{0.05}Zr_{0.50})O_{2-x}$ 焼結試料の外観

Gd含有量をパラメータとして添加した模擬Gd含有デブリについて焼結試料を製作。O/M調整を行い、融点測定を実施。溶融試料について熱拡散率等の測定を実施予定。

臨界特性に影響が大きいGd挙動の予測に寄与。デブリの熱特性評価に寄与。

(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握 まとめ (平成25年度 成果見込み)

(1) 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

- 種々の特性をもつセラミックスについて、切削性への物性影響を評価中。
- Zr量の多いBWR系を考慮した $(U,Zr)O_2$ の高Zr領域における機械的性質の評価中。
- 構造材由来のFeが固溶した $(U,Zr)O_2$ の機械的性質を評価。⇒ Feの固溶により、破壊靱性は上昇する傾向。

(2) 1F事故に特有な反応

- 制御材と模擬デブリとの反応試験。⇒ 合金相(Fe-Cr-Ni, Fe_2Zr 型)やホウ化物(Fe_2B , ZrB_2)生成の可能性。
- MCCI基礎試験として、モルタルと金属、酸化物の反応試験。⇒ 酸化物(ガラス質)や合金に分離する傾向。
- 上記2試験の反応生成物の物性データを取得。⇒ 硬さについてホウ化物(ZrB_2 , Fe_2B)が最も硬い。
- 微細なデブリに関する基礎試験。⇒ 過酸化水素水の影響により、微細な過酸化ウラン生成の可能性を示唆。
- Pu含有模擬デブリの融点を評価。⇒ Zrの含有率によらず、おおよそ10%Pu程度の組成で極大を確認。
- Gd含有模擬デブリによる融点、熱物性を評価中。

● 課題等

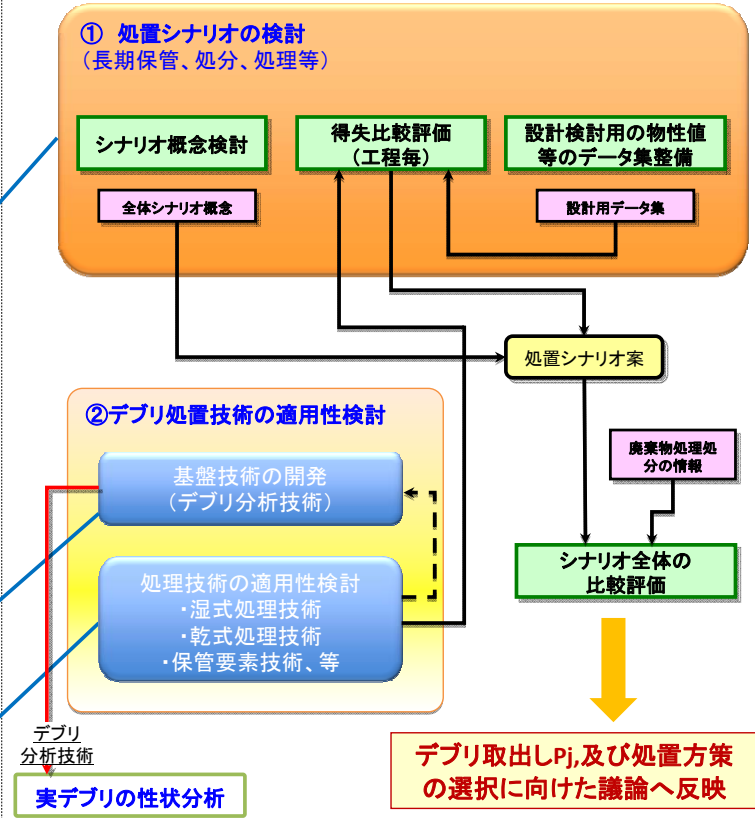
- 試験条件や生成物の組成等について、実際の炉内状況とどの程度合致しているか。
 - ⇒ 現在はMAAPなどの公開されている炉内解析結果等を参照しているが、実験上の制約などもある。
 - ⇒ 2-②-1「事故進展解析技術の高度化による炉内状況の把握」PJのアウトプットと整合をとる必要がある。
- 実際のデブリで想定される複合組織の特性は、ある程度マクロな機械的性質評価が重要。
 - ⇒ 複合組織に関する試験は、単相のコールド模擬材を組み合わせ、コールド環境での実施を検討中。
 - ポイントでの確認などにウラン試験や2-①-6で実施予定のカザフNNCの大規模試験の結果も有効活用。
 - ⇒ 圧縮試験などのマクロな機械的性質測定、装置イメージがある場合は加工要素試験など。
 - ⇒ スケジュールとしては、2015年を超える可能性がある。

(2-③-3) デブリ処置技術開発 研究開発の進め方

検討方針

- デブリ取出し後の措置(長期保管、処分、処理等)の決定に向けて、そのための議論に必要な情報を整備する。
 - デブリ取出し、保管、廃棄物処理処分等の検討状況を反映しつつ適宜見直しを行う。
 - デブリ取出しから最終的な状態に至るまでの一連の流れを整理し、個別の工程についての選択肢を示す。その上で、取りうる選択肢の組合せの全体像を全シナリオの概要を示す。(2012年度)
 - 多数考えられる選択肢の組合せの中から代表的なシナリオ(取り出しから最終的な状態までの各工程について選択肢から選択した一連の流れ)を複数抽出し、その特徴及び定性的な得失評価を行う。(2012年度～)
 - シナリオ間比較を行うための方法論(比較項目)を検討する。(2012年度～)
 - シナリオ間の定量評価に向けたデータベースを作成する。(2012年度～)
 - シナリオ評価に必要な技術開発課題を抽出する。(2012年度～)
- 実デブリサンプルの分析、及びデブリの取出し後の措置に共通して必要になる分析技術の開発を行う。
 - 実デブリのサンプリング状況を反映し適宜見直しを行う。
 - 候補技術についてコールド/U模擬デブリ等により適用性を確認する。(2012年度～)
 - TMI-2デブリの分析をとおして実デブリ分析への適用性を確認する。(2014年度～)
- 既存処理技術の適用性について基礎試験により確認。
 - 湿式処理技術及び乾式処理技術に関して基礎試験により適用性を確認を行う。(2012年度～)
 - 2013年度で一旦、基礎技術の取り纏めを行い、シナリオ検討側の検討状況を踏まえて実施計画を検討。(2013年度)

検討の進め方



(2-③-3) デブリ処置技術開発 (1) 燃料デブリ処置シナリオ検討に向けた技術的要件の整理

■ 処置シナリオ各案の得失評価

● 経済性

長期保管 < 直接処分 < 乾式処理 (金属電解) ≤ 湿式処理 (通常溶解) ≤ 安定化処理 ≤ 湿式処理 (新型溶解)

- ・長期保管: 50年程度の保管を仮定
- ・直接処分: 使用済燃料の直接処分と同等、かつ使用済燃料の直接処分サイトと併用できる条件を仮定
- ・安定化処理: 酸化処理しガラス固化体化することを想定
- ・湿式処理(通常溶解): 粉碎、コプロセッシング法を想定
- ・湿式処理(新型溶解): U希釈による可溶性、コプロセッシング法を想定
- ・乾式処理(金属電解): 電解還元法を用い低除染のU系保管体を残す条件を仮定

● 廃棄物発生量(総量)

長期保管 < 直接処分 < 乾式処理 (金属電解) ≤ 安定化処理 ≤ 湿式処理 (新型溶解) < 湿式処理 (通常溶解)

高レベル放射性廃棄物相当の廃棄体数は、安定化処理が最大、次いで乾式処理(金属電解(電解還元))、湿式処理(新型溶解)、直接処分及び湿式処理(通常溶解)の順になると推定。湿式処理(通常溶解)では、TRU廃棄物量(地層処分対象)が最大となるため、高レベル放射性廃棄物相当の廃棄体と合わせた地層処分対象の廃棄体数は最大。直接処分は処分体のサイズにより廃棄体数が異なる。
注)上記経済性、廃棄物発生量は、各シナリオが想定している要素技術が実際に機能することを前提とした概略評価に基づくもので注意が必要

● 技術的課題

- ◇ 廃棄体の長期安定性における課題
- 直接処分、安定化処理: デブリを主体とする廃棄体内包物の浸出特性、熱的安定性、機械的安定性、耐放射線性や収納缶の機械的安定性、耐食性、及び臨界について、内包物特性(放射性核種濃度、化学組成等)を取得し評価する必要あり
- 処理: 従来に無い新規の廃棄体が生じるため、上記と同様に内包物特性を把握し、廃棄体の閉じ込め性、臨界を評価する必要あり
- ◇ 技術的成立性の見通しの観点から課題
- 乾式処理: 他方式と比較して技術的開発課題が多く、難易度が高いと推定

経済性、廃棄物発生量の面で有利なシナリオは長期保管及び直接処分。安定化処理、湿式処理、乾式処理は経済性、廃棄物発生量の面で不利。特に乾式処理は技術的開発課題の面でもっとも難易度が高いと推定。

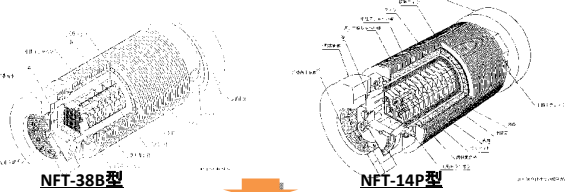
■ 既存輸送技術の適合性に関する情報の調査・評価

● 検討対象キャスク

既存輸送キャスクで放射能収納量の大きいNFT-38B型キャスク、NFT-14P型キャスクを選定

● 適合性評価

- ◇ 構造: 蓋部板厚等の寸法変更が必要
- ◇ 閉じ込め: Oリングでは、許容できる1缶当たりのデブリ量が15kg程度と小さくなりすぎるため、金属ガasketもしくは溶接が必要
- ◇ 遮蔽: 中性子の線量が支配的であり、1缶当たりの収納量、キャスクの収納量を制限する。評価上厳しくなったNFT-14P型キャスクの場合、1缶410kg、1キャスク当たり5.7t程度
- ◇ 臨界: 最速減速条件でも問題なく、収納缶内に収納するデブリ重量への制限は不要の見込み



既存輸送キャスクの使用に関して、キャスク自体の適用性はある見込み。ただし、収納缶への収納、封入などの開発課題は生じる。

■ 技術検討用の評価データの整理

物性値等の既往のデータ整理/処置対象物量の推定

【想定すべき処置対象物量】

- ・燃料起因、構造物起因の物量(約530t) ⇒ 総量 約700t程度
- ・コンクリート起因の物量(約60t)
- ・海水起因の物量(約70~80t精査中)
- ・その他炉心下部構造物等

各シナリオ共通に必要な情報であり、全ての検討の基礎として反映する。

(2-③-3) デブリ処置技術開発 (2) 燃料デブリ分析方法の検討

■ オートクレーブ法による溶解手法の検討

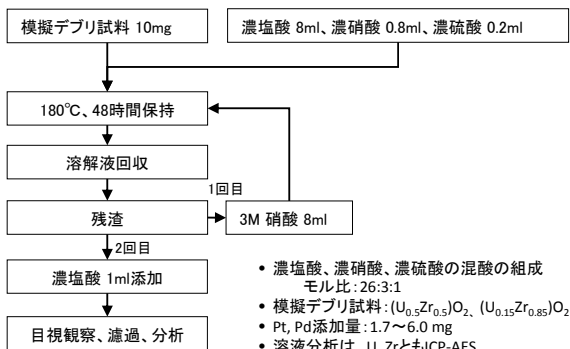


図 オートクレーブ法の試験手順

溶解率

$(U_{0.5}Zr_{0.5})O_2$ 100% (保持時間24hと同様)
 $(U_{0.15}Zr_{0.85})O_2$ 80% (保持時間24hでは65%)

Pt, Pd添加の効果

見られず。

・ 残渣に過酸化ナトリウムによるアルカリ融解を実施したところ完全に溶解

低いZr組成のデブリに対しては、利用可能。
 溶解しにくいものには過酸化ナトリウムによるアルカリ融解の方が効果的。

■ 模擬MCCI生成物に対するアルカリ溶融の適用性検討



写真 模擬MCCI生成物

現在、試験実施中。

MCCI生成物に対する適用性評価。

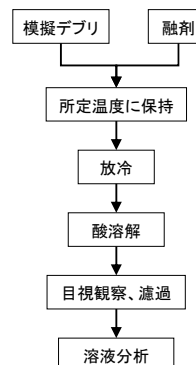
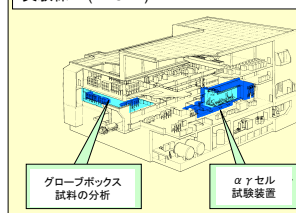


図 アルカリ溶融法の試験手順

■ TMI-2デブリ分析試験に向けた準備

NUCEF (燃料サイクル安全工学研究施設) 実験棟 B (BECKY)



溶解試験用電気炉

- 温度範囲: 100 ~ 1000°C
- 電気容量: 1500W, AC200V
- 炉内寸法: $\phi 120 \times H130$ mm程度
- 簡易搬送機を有し、セル外から試料を加熱炉に自動搬送可能とする
- 電気炉表面温度50°C以下
- 分解可能とし、 $\phi 270 \times H350$ のケースに収まる寸法とする。

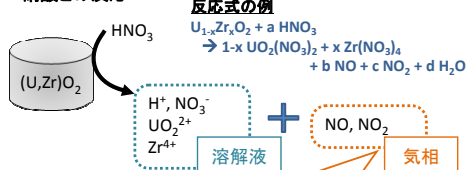
TMI-2デブリを用いた、アルカリ溶融等の試験準備。

(2-③-3) デブリ処置技術開発 (3) 湿式・乾式処理技術の適用性評価

■ 湿式処理技術の適用性評価

- $(U,Zr)O_2$ 硝酸溶解反応における物質収支評価

図 模擬デブリと硝酸との反応



・ 溶解液および気相の分析結果から、想定される化学反応を類推。
 反応式の例
 $U_{1-x}Zr_xO_2 + a HNO_3 \rightarrow 1-x UO_2(NO_3)_2 + x Zr(NO_3)_4 + b NO + c NO_2 + d H_2O$

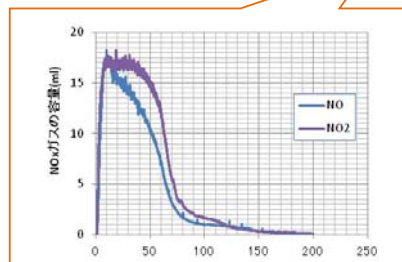


図 模擬デブリ溶解に伴うNO_xガスの発生挙動

- ・ NO_xの発生量は、溶けたUの量と同程度のオーダー。
- ・ 物質収支評価のため、溶解液の分析を実施中。

オプションとしての湿式処理技術の適用性評価に資するデータを取得。

■ 乾式処理技術の適用性評価

- $LiCl-Li_2O$ 溶融塩中における電解還元法の適用性評価

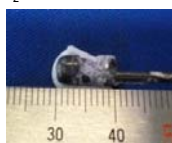


図 還元生成物の外観

- ・ 十分な電流を供給すれば、 $(U,Pu,Zr)O_2$ 中のU, Puの全量を金属に還元可能。
- ・ Cdへの溶解では、還元生成物に付随する Li_2O 等の酸化物によってUが再酸化される(以下の反応)ため、U, Pu回収率の低下が懸念される。



- ・ $(U,Pu,Zr)O_2$ 中のU, Puの金属への還元は技術的には可能。
- ・ 付随する酸化物の電解精製プロセスへの影響低減が課題。

- 塩素化溶解技術の適用性評価

- ・ $NaCl-2CsCl$ 溶融塩中・塩素ガス供給下では、 $(U,Zr)O_2$ のUが先行して溶解し、Zr溶解がそれに続く。

- ・ 塩素ガスの連続供給によるU, Zrの全量溶解が期待できる。
- ・ ただし、反応は遅く、装置形状の工夫・塩素ガスの循環利用が必要。

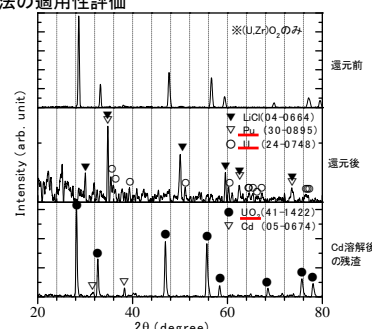


図 電解還元前後およびCd溶解後における $(U,Pu,Zr)O_2$ 試料(25at%Zr)のXRD測定結果

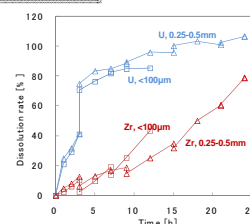


図 $U_{0.15}Zr_{0.85}O_2$ の溶融塩中での溶解挙動

(2-③-3) デブリ処置技術開発 まとめ(平成25年度 成果見込み)

(1) 燃料デブリ処置シナリオ検討に向けた技術的要件の整理

- ・ シナリオ各案の得失を評価。⇒ 長期保管及び直接処分が経済性、廃棄物発生量の面で有利。
- ・ 既存輸送技術の適合性に関する調査・評価中。⇒ 適用性はある見込み。(ただし、開発課題あり。)
- ・ 技術検討用の評価データの整理を実施。

(2) 燃料デブリ分析方法の検討

- ・ オートクレーブ法の検討。⇒ 低いZr含有率の試料では100%溶解可能。Zr含有率が高いと時間がかかる。
- ・ 模擬MCCI生成物に対するアルカリ溶融の適用性検討を実施中。

(3) 湿式・乾式処理技術の適用性評価

- ・ 湿式処理技術の適用性評価のための硝酸溶解基礎試験を実施。
- － 溶解反応の物質収支評価 ⇒ Zrの溶解反応への寄与を確認中。
- － 構造材由来のFeが固溶する影響について実験的に確認中。
- ・ 乾式処理技術の適用性評価のための乾式処理基礎試験を実施。
- － 電解還元基礎試験 ⇒ 十分な電流によりU,Puの全量を還元できる見込み。
- － 副生成物となるリチウムジルコネートによる電解の物理的阻害と分離方法が課題。
- － 塩素化による溶解、Ca還元についても、適用可能性が示された。

● 課題等

- ・ 今年度のシナリオ検討によって、長期保管、直接処分の優位性が明確になったことにより、処理技術(湿式法、乾式法)の検討については、一時中断。
- ・ 次年度より、収納保管技術および収納保管用の前処理技術(乾燥等)に資するデータの取得を検討中。

(2-③-1) 模擬デブリを用いた特性の把握/ (2-③-3) デブリ処置技術開発 国際協力について／人材育成への取組

【国際協力の状況】

- ・MCCI生成物の物性評価に関し、MCCIに係る試験設備及び試験実績を要する仏国CEAとの国際協力を行うべく交渉を進めている。
- ・関連するSA研究等を実施している国際機関との情報交換を行っている。

【人材育成】

- ・電力中央研究所と共同研究を実施している。
- ・国際協力相手機関(CEA)への若手研究者の派遣等、研究開発を通じた人材育成を計画している。
- ・東京電力福島第一原子力発電所の廃炉に向けた研究開発計画と基盤研究に関するワークショップにおいて大学の研究者等を対象に研究の現状と基盤研究ニーズ等について紹介した。