

平成26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)」

最終報告

2017年5月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID)

背景

1

福島第一原子力発電所事故

(平成23年3月)

TMI-2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福島第一原子力発電所事故に関する情報の調査、整理
(平成23年-平成24年)

- ✓ TMI-2事故事例や海外のSA研究では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)等の福島第一原子力発電所特有事象に関する情報が少ない。

- 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改訂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Pj(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。

背景・目的(性状把握)

現状認識

- 燃料デブリ取り出し、収納・移送・保管、等の技術開発を進めるにあたり、**前提条件となる燃料デブリ情報が整理されていない。**

(燃料デブリ取り出し) 燃料デブリの炉内位置、量、性状(硬さ、靱性、弾性率、等)の情報が無いと、取り出し工具の設計や工法選定ができない。

(収納・移送・保管) 燃料デブリの気孔率、乾燥特性、等に関する情報が無いと、収納容器内発生水素に対する安全評価、乾燥プロセスの設計ができない。

(臨界管理) 燃料デブリ中のGd量、 B_4C 濃度、気孔率等の情報が無いと、取り出しや収納保管時の臨界防止設計が出来ない。

(廃棄物) 燃料デブリの成分情報が無いと、廃棄物として安全評価の検討ができない。

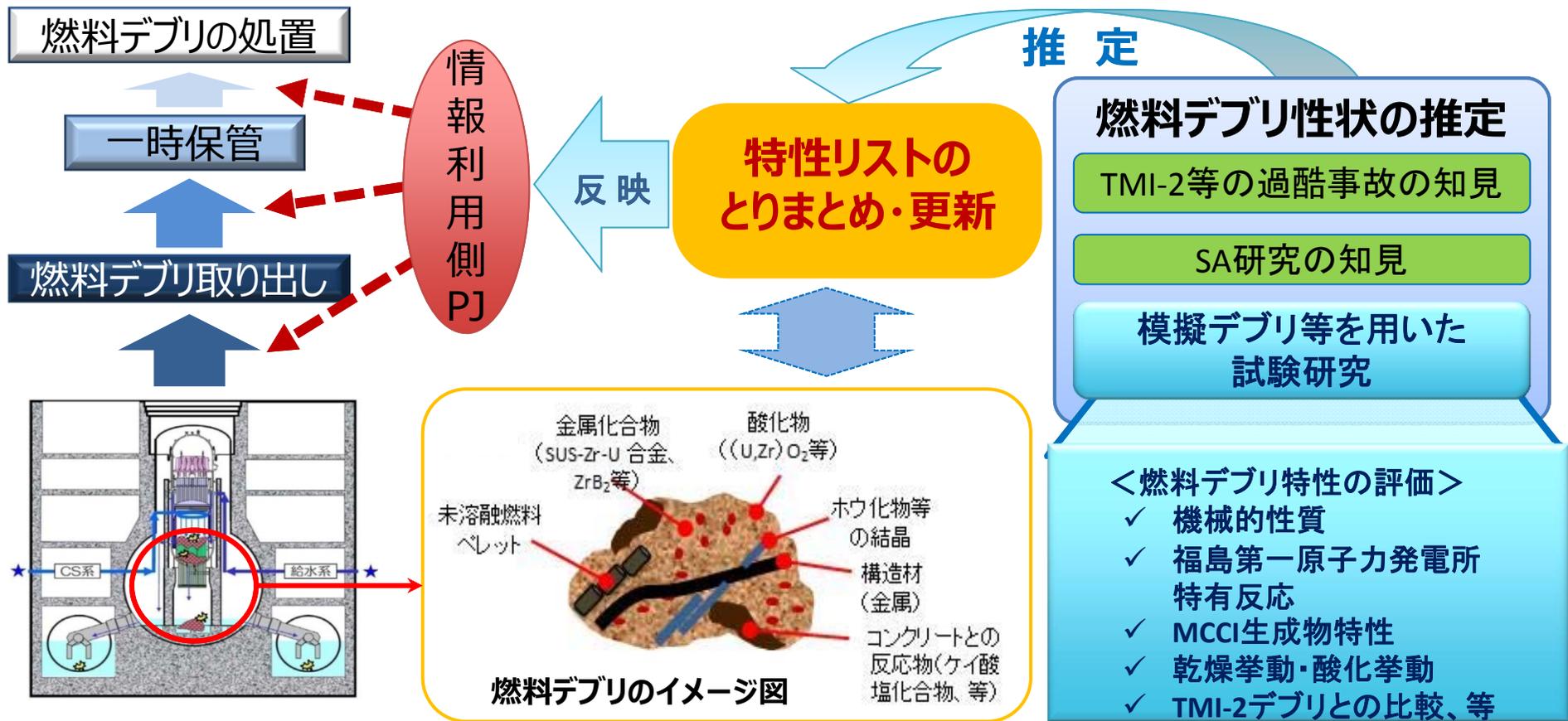
目的

前提条件となる**燃料デブリの特性に関する情報を推定し、提供する必要がある。**

(具体的な取得データは、情報利用側PJと密接に調整し設定する)

事業の目的(1)炉内燃料デブリ性状の推定 (2)模擬デブリを用いた特性評価

- 本PJでは過去の過酷事故やSA研究の知見に加えて、模擬デブリ等を用いた研究を行い燃料デブリ性状を推定、情報利用側PJへ情報を提供する。



背景・目的(性状分析)

現状認識

- 廃炉作業に有益な燃料デブリのサンプルが取得できても、**現実的に分析できる条件、環境が整っていない。**

(分析目的)	分析目的が整理されていない。 ⇒ 取り出し準備(炉内燃料デブリの状況把握、臨界管理、汚染管理等)に必要な燃料デブリ分析情報(核物質の位置、形状等)。 ⇒ 取り出し工具、収納缶等の設計の妥当性の確認に必要な燃料デブリ分析情報(機械的、化学的特性)。
(分析シナリオ)	福島第一原子力発電所サイトからのサンプル収納⇒輸送⇒分析施設での受入⇒各種分析のシナリオが構築されていない。
(分析技術・環境)	難溶性の燃料デブリに対する溶解技術や一連の手順が整備されていない。サンプルの受入れ・分析が実施ができるホット環境が整備されていない。

目的

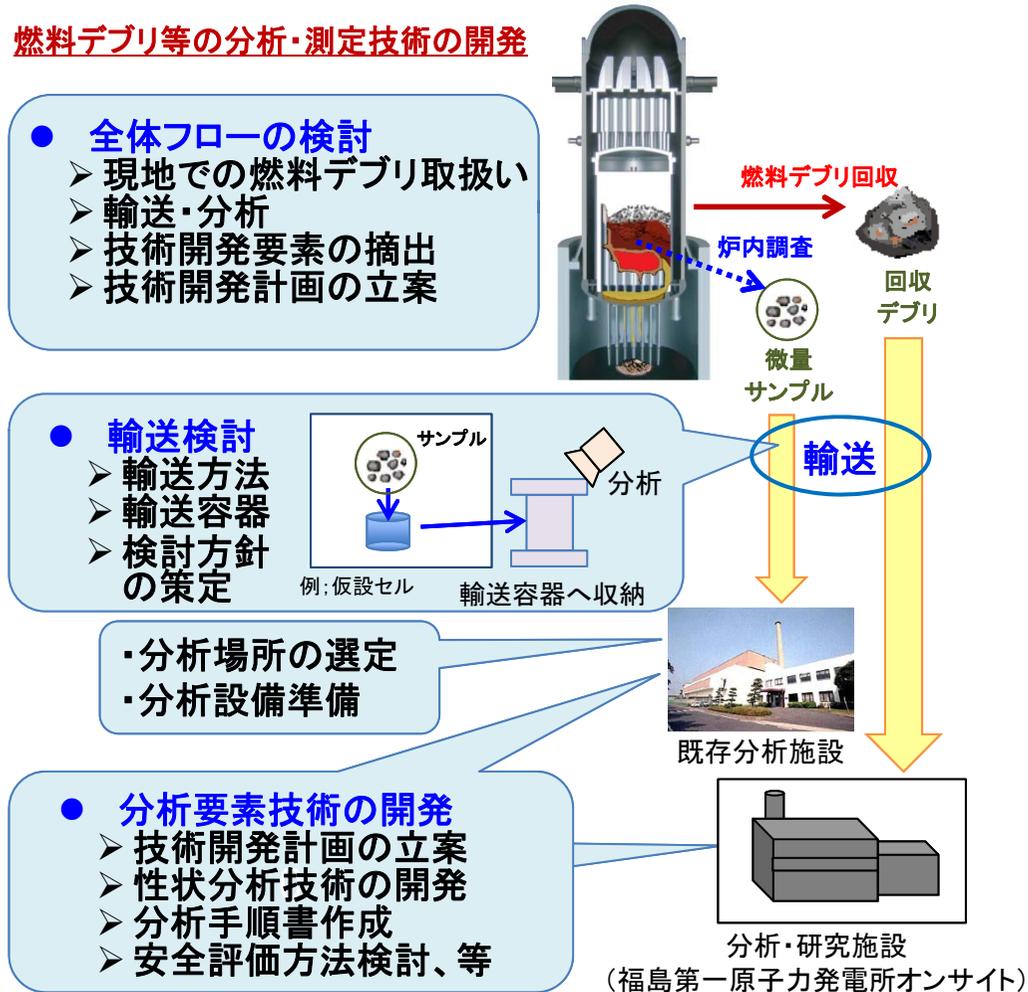
燃料デブリ分析を可能とするため、**分析シナリオの構築、分析技術・輸送技術の開発**が必要。

(炉内部調査での微量サンプリングの取扱いと連携する)

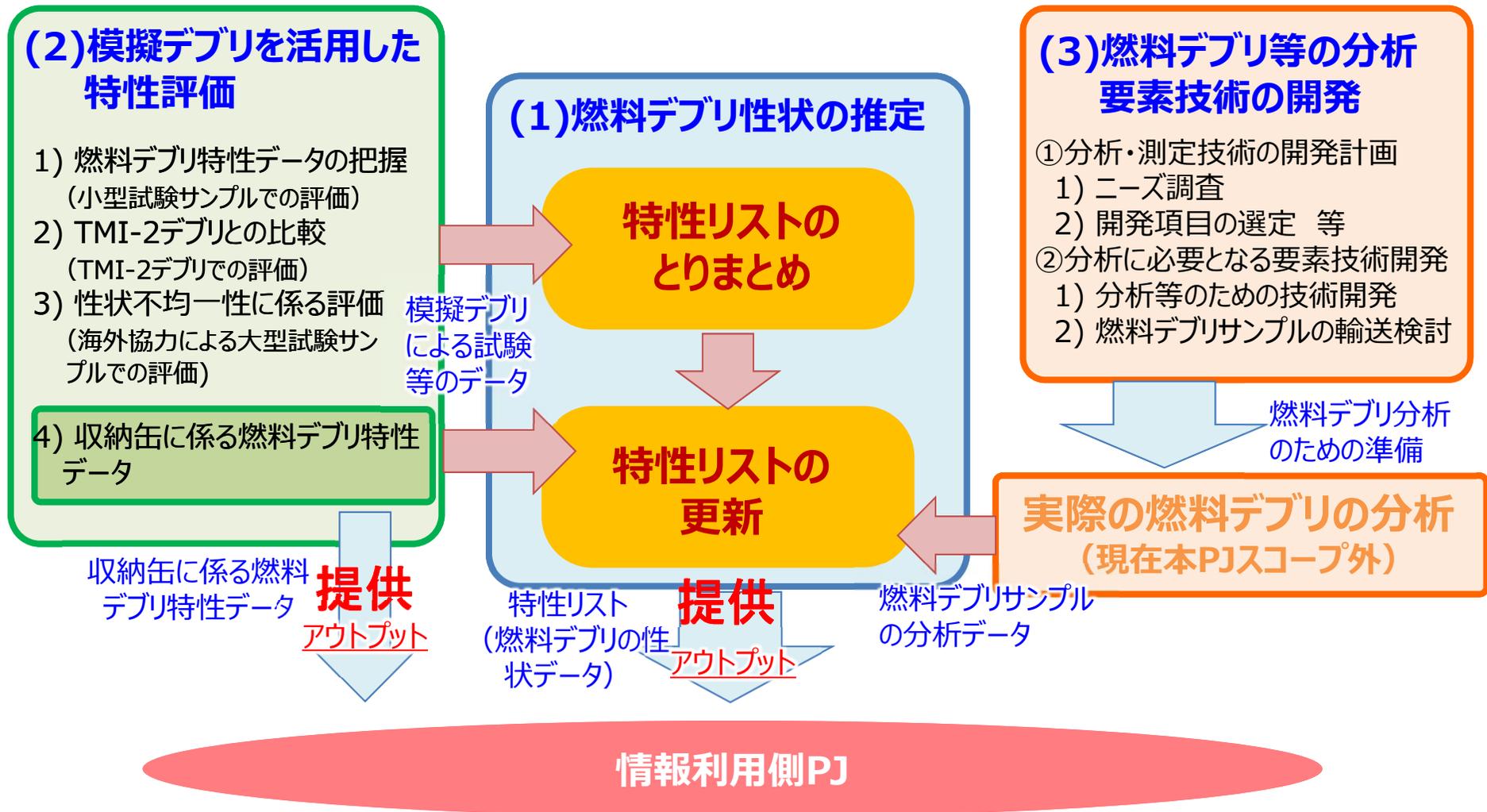
事業の目的(3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

- 燃料デブリの特性を更新していくうえで有益な燃料デブリの分析を可能とするために、微量サンプル及び回収デブリサンプルが取得されたことを想定し、分析技術・輸送技術の開発を行う。

燃料デブリ等の分析・測定技術の開発



実施項目と情報利用側PJとの関連性



平成27-28年度全体実施概要/スケジュール

	平成27年度	平成28年度
(1) 炉内の燃料デブリの性状の推定	情報集約	▽特性リストとりまとめ 更新
(2) 模擬デブリを活用した特性評価		
① デブリ特性データの把握		【反映】
a. 金属デブリの機械的性質評価	模擬金属デブリ試験	
b. 福島第一原子力発電所事故に特有な反応による生成物の特性	溶融界面構造、微細デブリ等に係る試験	
c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握	含水・乾燥挙動等に係る試験	含水・乾燥挙動、アクチノイド浸出挙動に係る試験等
② TMI-2デブリとの比較		
a. TMI-2デブリの機械的性質評価および分析手法の確認	TMI-2デブリサンプルの物性測定、溶解試験	
③ 性状不均一性に係る評価		
a. MCCI生成物の特性評価	大型MCCI試験生成物物性測定 (CEA共研)	大型MCCI試験検討 (CEA共研)
b. 燃料デブリ取出装置の開発を支援するUO ₂ を用いた金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価	大型不均質溶融固化体製作・特性評価 (カザフNNC共研)	
(3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発		
① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定	サンプル分析全体シナリオ立案、課題抽出、分担調整	【反映】
② 分析に必要な要素技術開発		
a. 分析・測定のための技術開発	化学分析手法検討、安全性評価方法検討	検討継続、新規開発課題対応
b. 燃料デブリサンプルの輸送に係る検討		
・ 既存施設への構外輸送検討	【反映】 輸送容器の設計承認に関する検討	【反映】 輸送容器の設計承認に関する検討継続
・ 分析・研究施設への構内輸送検討	検討方針、分担等具体化	方針に基づく検討実施
③ 技術レビュー		
(4) 研究開発の運営		

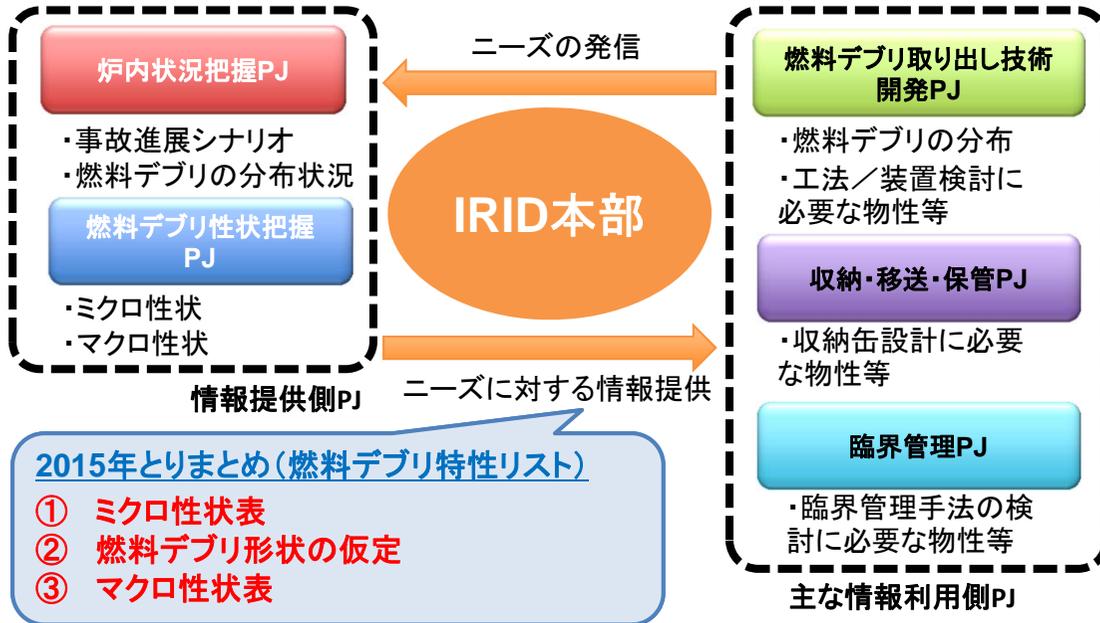
(1) 炉内の燃料デブリの性状の推定

● 特性リストのとりまとめ(平成27~28年度)

これまでに得られている知見(TMI-2事故やSA研究の文献等)や模擬デブリで取得されたデータをもとに燃料デブリの性状を推定し、特性リストをとりまとめる(平成27年度)。また、最新の情報を活用し継続的に更新する(平成28年度)。

【目標を達成するための指標】

➢ 特性リストについて、利用側PJのニーズを満足していること。このため、平成26年度の「デブリ標準化」の事例を参考に、ニーズ情報の合意形成を図るための利用側PJの意見交換打合せを実施する。(平成27年度)⇒平成27年度実施完了
⇒更新完了



IRIDにおける各PJ間のコミュニケーション

【性状の分類】

- ・マイクロ性状：材料によっておおよその値が想定できる(そのため比較的小さなサンプル・部位で測定可能な)性状
- ・マクロ性状：同一材料でも生成過程や形状などにより大きく影響を受ける(そのため測定には大きなサンプルを必要とする)性状

成果概要

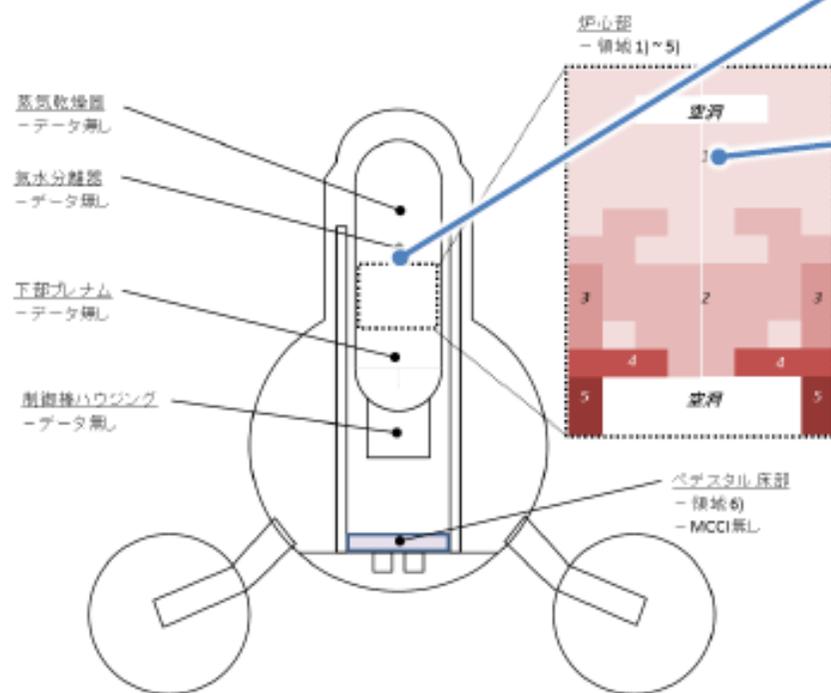
- ・得られた成果をもとに平成27年度に特性リストをとりまとめた。
- ・MCCI生成物に関して平成28年度に得られた成果を反映、更新した。

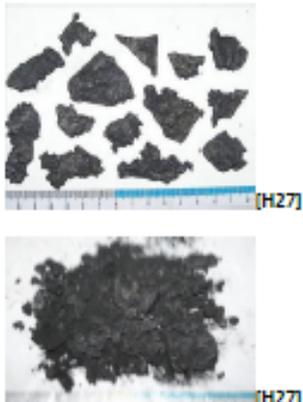
2015年とりまとめまでに設定した燃料デブリ性状

分類	ニーズ調査の結果、設定が必要と考えられた燃料デブリ性状
マクロ性状	<ul style="list-style-type: none"> ●材質または相 ●形状 ●寸法 ●気孔率(空隙率) ●含水率 ●水素発生G値 ●圧縮強度 ●U含有率(U重量/燃料デブリ全重量) ●Pu含有率(Pu重量/燃料デブリ全重量) ●Fe含有率(Fe重量/燃料デブリ全重量) ●B含有率(B重量/燃料デブリ全重量) ●Gd混合率 ●U濃縮度 ●塩分濃度
マイクロ性状	<ul style="list-style-type: none"> ●機械的特性: ビッカース硬さ、弾性率、破壊靱性 ●熱的特性:熱伝導率、比熱、融点

成果例：特性リスト(燃料デブリ形状の仮定)(1/6)

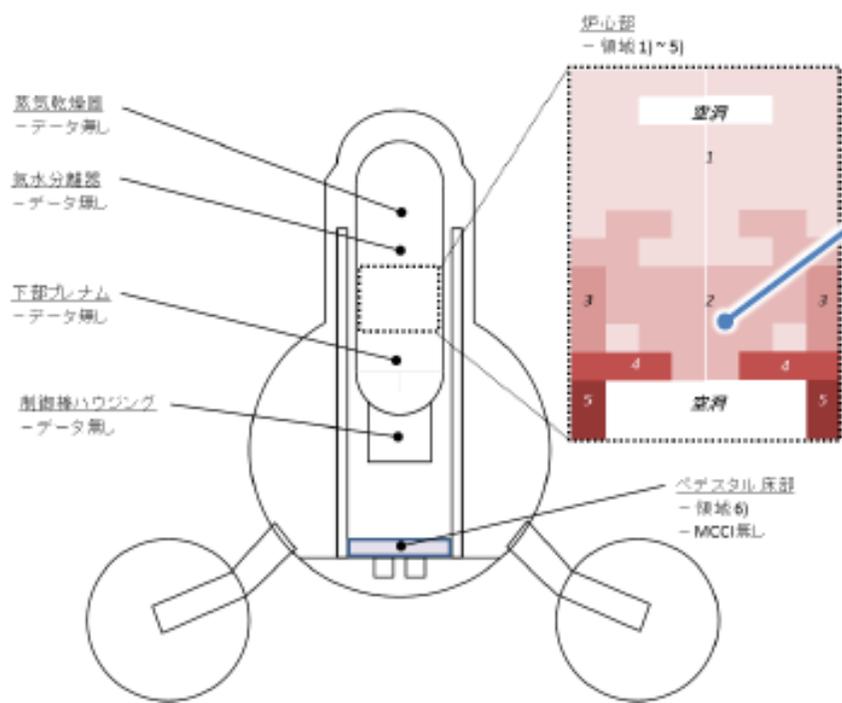
特性リスト(デブリ形状の仮定)#1

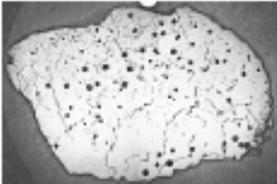
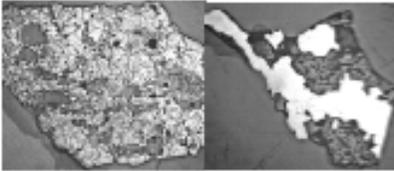
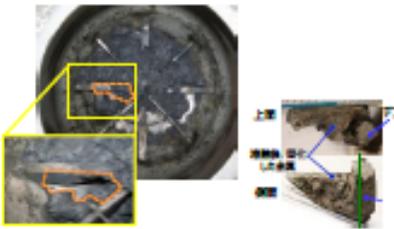


イメージ (形状)	概要
<ul style="list-style-type: none"> 上部プレナム周辺 (写真なし)	熔融または破損した構造物。 主な化合物: Fe 大きさ: 数(m)未満
<ul style="list-style-type: none"> 未熔融の破損燃料および構造物 (写真なし)	未熔融の破損した燃料ピンおよび構造物。 主な化合物: UO_2 , Zr-2 大きさ: 数(cm)-数(m)
<ul style="list-style-type: none"> 粉状・小石状 	熔融した炉心材料が急冷され、小片になったもの。 主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$ 大きさ: 数(μm)-数(cm)

成果例：特性リスト(燃料デブリ形状の仮定)(2/6)

特性リスト(デブリ形状の仮定)#2



イメージ (形状)	概要
<ul style="list-style-type: none"> ● クラスト・岩盤状(上部)  <p>[H26]</p>	<p>熔融プール上部表面付近で比較的初期に固化したもの。</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$, Fe</p> <p>大きさ: 厚さ 0.1-1(m)</p>
<ul style="list-style-type: none"> ● 熔融プール・塊状  <p>[H26]</p>	<p>熔融プール中央付近でゆっくりと冷却され塊になったもの。</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$, Fe</p> <p>大きさ: 数十(cm)以上</p>
<ul style="list-style-type: none"> ● クラスト・岩盤状(下部)  <p>[H26]</p>	<p>熔融プール下部表面付近で比較的初期に固化したもの。</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$, UO_2, Fe</p> <p>大きさ: 厚さ 数(cm)</p>

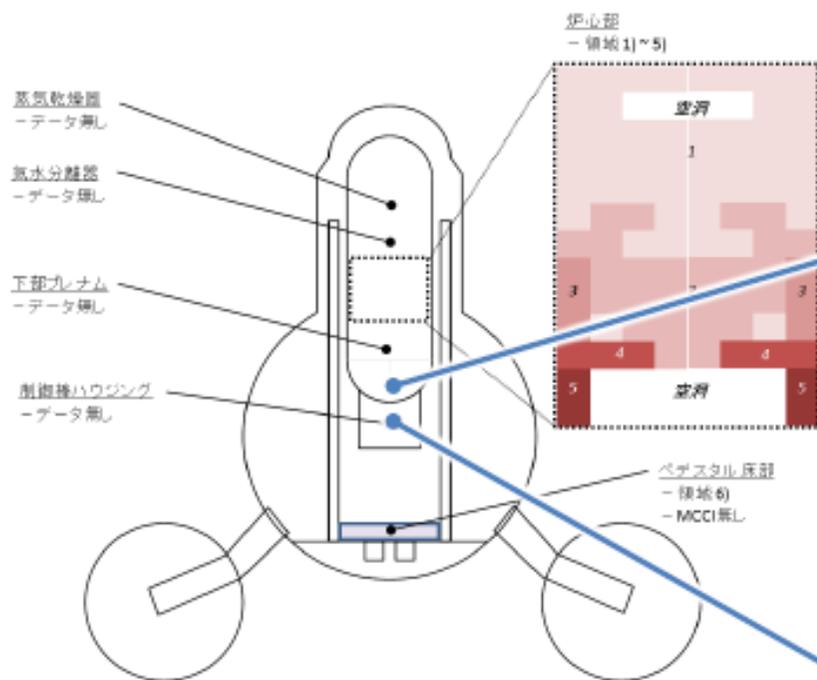
成果例：特性リスト(燃料デブリ形状の仮定)(3/6)

特性リスト(デブリ形状の仮定)#3

イメージ (形状)	概要
<ul style="list-style-type: none"> 切株状 <p>(写真なし)</p>	<p>燃料集合体の一部が溶融せずに残ったもの</p> <p>主な化合物: UO_2, $Zr-2$, $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$, $Zr(O)$, Fe</p> <p>大きさ: 集合体の一部(集合体未満)</p>
<ul style="list-style-type: none"> 炉心支持板 <p>(写真なし)</p>	<p>溶融デブリが付着し、破損した炉心支持板</p> <p>主な化合物: Fe</p> <p>大きさ: 炉心支持板と同様</p>

成果例：特性リスト(燃料デブリ形状の仮定)(4/6)

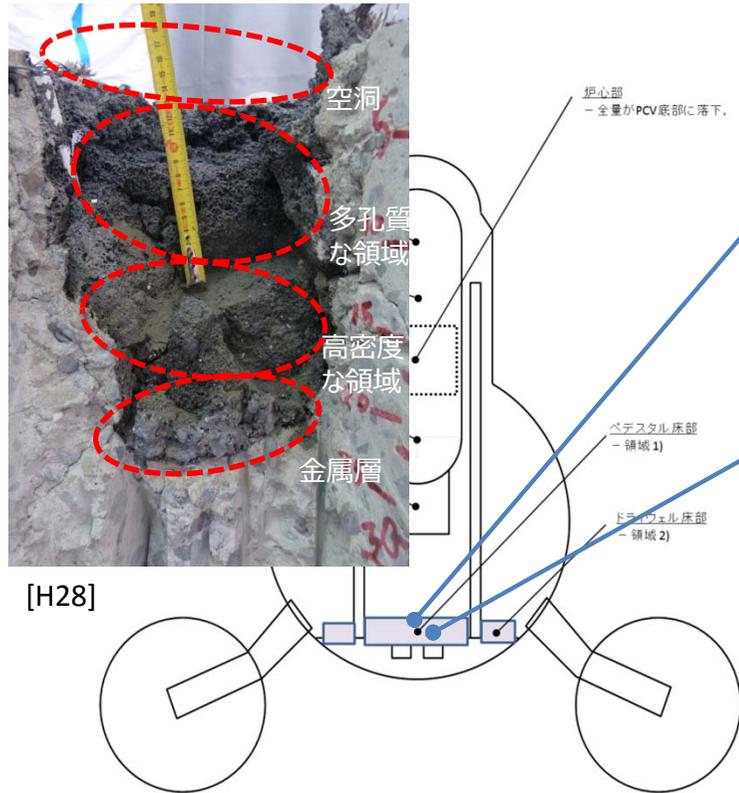
特性リスト(デブリ形状の仮定)#4



イメージ (形状)	概要
<ul style="list-style-type: none"> 下部ヘッドデブリ (写真なし) 	<p>下部ヘッドで固化した熔融デブリ</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$, $Zr(O)$, Fe_2Zr</p> <p>大きさ: 数(cm)-数(m)</p>
<ul style="list-style-type: none"> 粉状・小石状  	<p>熔融した炉心材料が急冷され、小片になったもの。</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$</p> <p>大きさ: 数(μm)-数(cm)</p>
<ul style="list-style-type: none"> CRD/CRD ハウジング (写真なし) 	<p>破損した CRD/CRD ハウジング</p> <p>主な化合物: B_4C, Fe</p> <p>大きさ: CRD/CRD ハウジングの一部 (CRD/CRD ハウジング未満)</p>

成果例：特性リスト(燃料デブリ形状の仮定)(5/6)

特性リスト(デブリ形状の仮定)#5

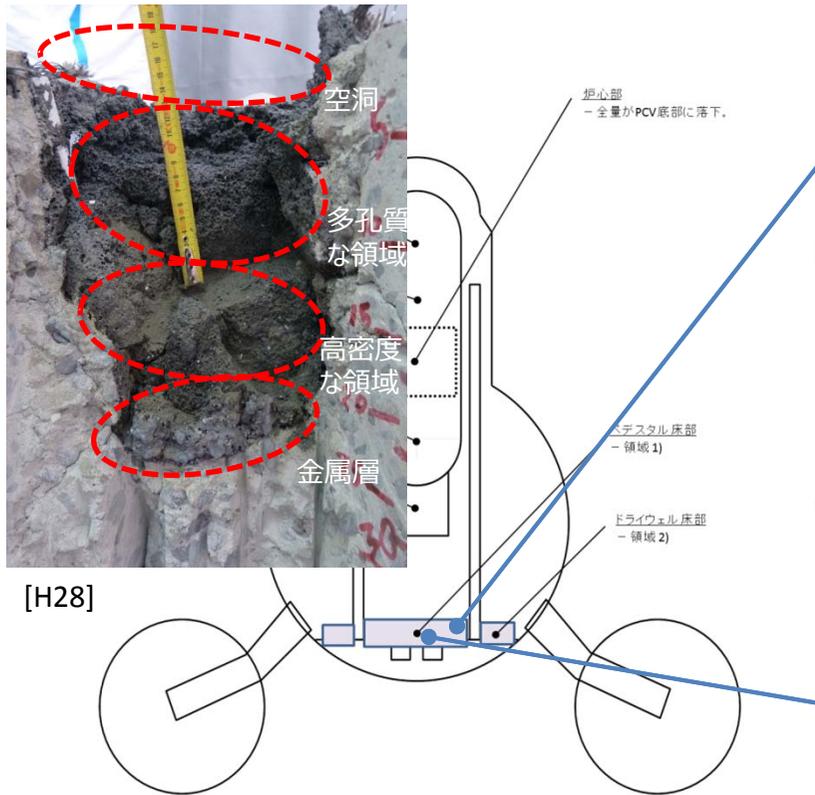


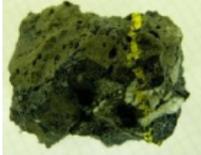
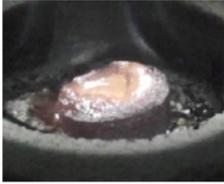
[H28]

イメージ (形状)	概要
<ul style="list-style-type: none"> クラスト (MCCI 生成物)  <p>[H26]</p>	<p>MCCI 時に熔融プール上部表面で比較的初期に冷却固化したもの</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$</p> <p>大きさ: 厚さ 0.1-1(m)</p>
<ul style="list-style-type: none"> 熔融コリウムプール・塊状 (MCCI 生成物)  <p>[H26]</p>	<p>MCCI 時に熔融コリウムがゆっくりと冷却され塊になったもの</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$</p> <p>大きさ: 数(cm)-(m)</p>
<ul style="list-style-type: none"> 金属部 (MCCI 生成物)  <p>[H26]</p>	<p>MCCI 各部位に析出した金属部</p> <p>主な化合物: Fe</p> <p>大きさ: 数(cm)</p>

成果例：特性リスト(燃料デブリ形状の仮定)(6/6)

特性リスト(デブリ形状の仮定)#6



イメージ (形状)	概要
<ul style="list-style-type: none"> コリウム/コンクリート境界部  <p>[H26]</p>	<p>熔融コリウムプールとコンクリートの境界部</p> <p>主な化合物: $(U,Zr)O_2-C$, $(Zr,U)O_2-T$, SiO_2, $(Zr,U)SiO_4$</p> <p>大きさ: 数(cm)-数(m)</p>
<ul style="list-style-type: none"> MCCI 概観 (実験室規模試験)  <p>[H26]</p>	<p>(写真のみ)</p>
<ul style="list-style-type: none"> MCCI 生成物の下部境界  <p>[H26]</p>	<p>到達温度の違いにより階層構造を形成</p> <p>主な化合物: SiO_2, Al-Ca-Si-O(glass), $(U,Zr)O_2$</p> <p>大きさ: 厚さ 数(mm)</p>

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

● 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握(平成27~28年度)

福島第一原子力発電所特有の代表的な燃料デブリやMCCI生成物等を考慮した材料を用い、**収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性(含水・乾燥挙動や酸化処理時の酸化挙動)の評価**を行う。

【目標を達成するための指標】

- 収納缶の設計に影響する燃料デブリ特性について、収納保管PJのニーズに対応していること。(平成28年度) ⇒ **設定完了**
- 内的条件(材質、空隙率、気孔径分布等)を測定等した各模擬デブリ(ZrO₂、セメントペースト、ZrO₂-セメント溶融体)が準備され、外的条件(乾燥温度等)を変化させた場合の乾燥特性曲線が取得されていること。(平成27~28年度) ⇒ **取得完了**
- アクチノイド元素の浸出に関する知見が取得されていること。(平成28年度) ⇒ **取得完了**
- 温度をパラメータ(2条件以上)とした模擬MOX燃料デブリの酸化反応速度に関するデータが取得されていること。(平成27年度) ⇒ **平成27年度取得完了**

◆ 収納保管に関する技術課題の設定

成果概要

- 収納保管PJと燃料デブリを収納や保管する際の影響について議論を行い、**収納缶設計に必要な燃料デブリ特性**を設定した。

収納保管PJの必要な情報について共通認識を図った。

⇒ 必要な燃料デブリ特性に関する知見を整理し収納保管PJに提供。

【技術課題の整理】

- 燃料デブリ粒径
- 燃料デブリ組成
- G値、含水率、気孔率

➡ 推定値を特性リストにて平成27年度に提供

- アクチノイド元素等の浸出に関する知見
(燃料デブリからの元素、核種溶出率の推定)
- 燃料デブリの含水・乾燥特性
- 燃料デブリの熱処理(酸化)特性
(気相中での燃料デブリ変性含)

➡ 個別に文献調査及び試験結果から知見を整理し提供

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

◆ アクチノイド元素等の浸出に関する知見の調査

成果概要

*溶岩状燃料含有物質 (Lava-like Fuel Containing Material)

- 燃料デブリを3分類 (a:UO₂が主成分, b:(U,Zr)O₂が主成分, c:SiO₂等が主成分)にし、分類ごとに参考になると考えられる、使用済燃料、TMI-2デブリ、チェルノブイリFCM*、MCCI生成物等からのアクチノイド元素等の浸出に関する各文献データ (アクチノイド、FPの浸出率や溶出速度) を収集・整理した。なお、文献データを用いて、核種ごとの溶出量を求める場合には多くの仮定をおく必要がある。
- 燃料デブリが接触した水としてPCV滞留水の分析結果を調査した。但し、核種量、滞留量等、非常に多くの仮定が必要であるため、燃料デブリからの核種の浸出率を求めるのは困難であった。

使用済燃料、TMI-2デブリ等からのアクチノイド元素等の浸出に係る情報を収集・整理し、浸出傾向の知見を得た。
⇒ 収納缶設計に必要な核種溶出の推定に利用

表1 使用済燃料からの溶出結果【1】

	浸漬期間	相対的な溶出速度(g/m ² ・d)		
		137Cs	239+240Pu	244Cm
修正IAEA法	467日	1.20E-01	1.10E-01	1.50E-01
	769日	5.20E-02	3.90E-02	3.90E-02
Paige法	467日	2.20E-02	1.00E-02	9.70E-03
	822日	1.50E-02	2.90E-02	1.70E-03

$$\text{相対的な溶出速度 } Ri'(t) = \frac{Mi'(t) \cdot W}{Mi \cdot S \cdot t} = \frac{Li(t) \cdot W}{S \cdot t}$$

W: 溶出前の固体重量(g)
 Mi: 浸出対象核種全量(g)
 Mi'(t): 浸出量(g)
 Li(t): 浸出率(%)
 S: 表面積(m²)
 t: 浸漬時間(d)

固体に含まれる元素 (核種) ごとの溶出のしやすさを表す

表2 PCV滞留水の評価結果(分析結果【2】を用いて整理)

	90Sr	106Ru	125Sb	137Cs	144Ce	154Eu
137Csの浸出率との比(2号機)	2.18E+01		2.39E-01	1.00E+00	9.96E-03	
137Csの浸出率との比(3号機)	5.74E+00	1.34E-2	3.84E-01	1.00E+00	1.65E-02	2.43E-02
	238Pu	239+240Pu	241Am	242Cm	244Cm	
137Csの浸出率との比(2号機)	3.13E-03	2.35E-03	9.44E-03			2.91E-03
137Csの浸出率との比(3号機)	2.40E-02	2.81E-02	6.88E-02	4.70E-02		1.97E-02

【1】Katayama, PNL-3173, PNL-3473.

【2】http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2016/11/20161124_2.pdf

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

◆ 燃料デブリの含水・乾燥挙動評価

燃料デブリの乾燥手法確立の基礎データとするため、燃料デブリの含水・乾燥挙動評価を行う。平成28年度は性状に着目した乾燥挙動評価試験と特に粉化に着目した許容温度評価試験を行い、燃料デブリの乾燥条件の検討に必要な燃料デブリの含水・乾燥挙動評価データを取りまとめる。

- 乾燥対象の基礎特性と乾燥時間の関係を把握。
- 粉化挙動等に伴う許容温度の把握。

乾燥処理の効率に影響を及ぼす要因(条件)を確認。

乾燥条件の設定

収納缶設計条件の設定

* 収納缶に入れた状態で、燃料デブリを乾燥処理することを考慮すると、乾燥条件は収納缶の設計に影響を与える

<乾燥挙動評価>

- ① 材質: H26, H27実施
 - ・ UO_2 , ZrO_2 , セメントペースト等
- ② 内部構造: H26実施
 - ・ 空隙率、気孔径
- ③ 外的条件: H26, H27実施
 - ・ 温度、雰囲気
- ④ 形状: H26実施
 - ・ サイズ
- ⑤ 性状: H28年実施予定
 - ・ 粒径に着目
 - ・ MCCI生成物に着目

<粉化挙動評価>

- ① 材質: H28実施
 - ・ $(U, Zr)O_2$, $+SiO_2$ 等
- ② 内部構造: H28実施
- ③ 外的条件: H28実施
 - ・ 温度: $300\sim 600^\circ C$
 - ・ 雰囲気: $10^{-3}\sim 10^{-5} atm$
 - ・ 時間: 1~10時間

乾燥特性曲線の取得

粉末状態評価、酸化状態評価

許容温度評価

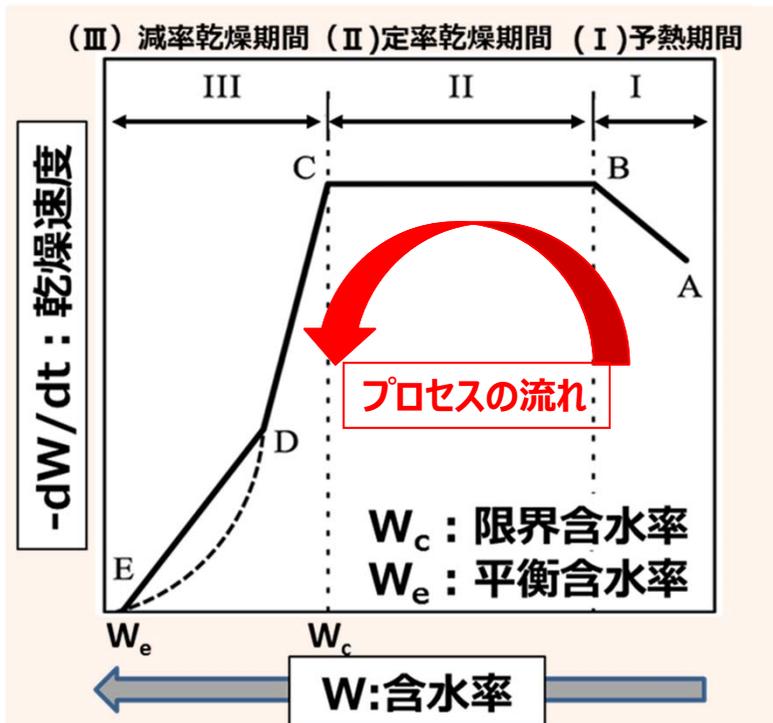
含水・乾燥挙動評価

[次のステップ]

乾燥プロセス・設備設計のためのデータ取得

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

◆ 乾燥特性曲線



含水率

$$W = \frac{(W_2 - W_1)}{W_1} \times 100 [\%]$$

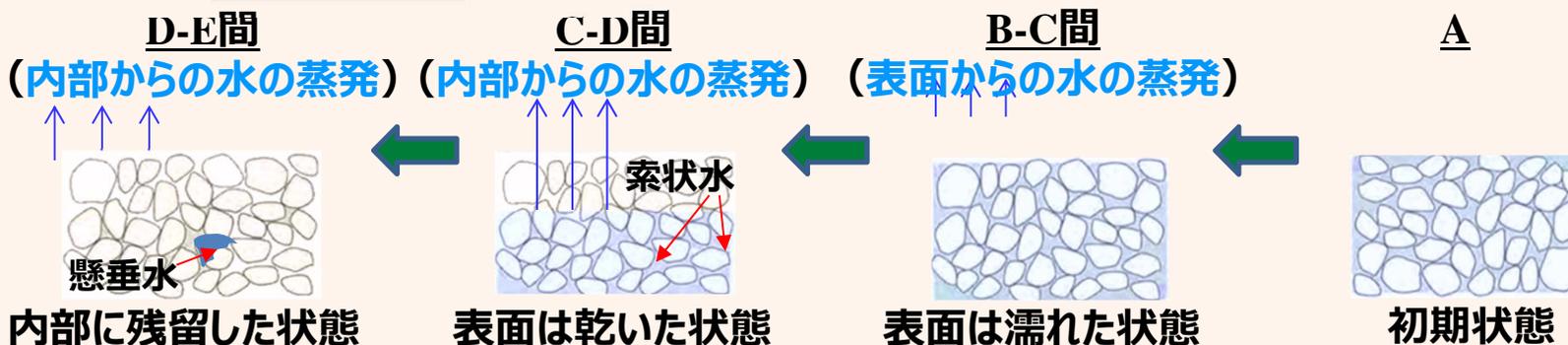
乾燥重量 : W₁
含水重量 : W₂

限界含水率 : W_c

定率乾燥期間から減率乾燥期間に移行する時の含水率

平衡含水率 : W_e

乾燥がそれ以上進行しない含水率



(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

◆ 燃料デブリ含水・乾燥特性の評価（粉体の乾燥特性）

成果概要

- 乾燥特性（定率乾燥時に乾燥速度の変動）に粒径の影響が現れたが（10～30 μm に閾値:図1）、材質による乾燥特性の違いはなかった。また、スラリー状の方が試料が自由に動きやすいことが影響し乾燥速度曲線が乱れた（図1）。（試験条件：温度;100 $^{\circ}\text{C}$,300 $^{\circ}\text{C}$ 、材質; Al_2O_3 , SiO_2 , ZrO_2 ）。
- 但し、乾燥に要する時間で整理すると、粒径よりも乾燥温度や初期含水率に強く影響を受ける（図2）。

乾燥時間では温度と初期含水率に強く影響を受けることから、収納缶設計の観点からは温度条件を可能な限り高く設定することが望ましい。

⇒乾燥条件設定に資するデータを提供。乾燥条件を収納缶の設計条件に利用。

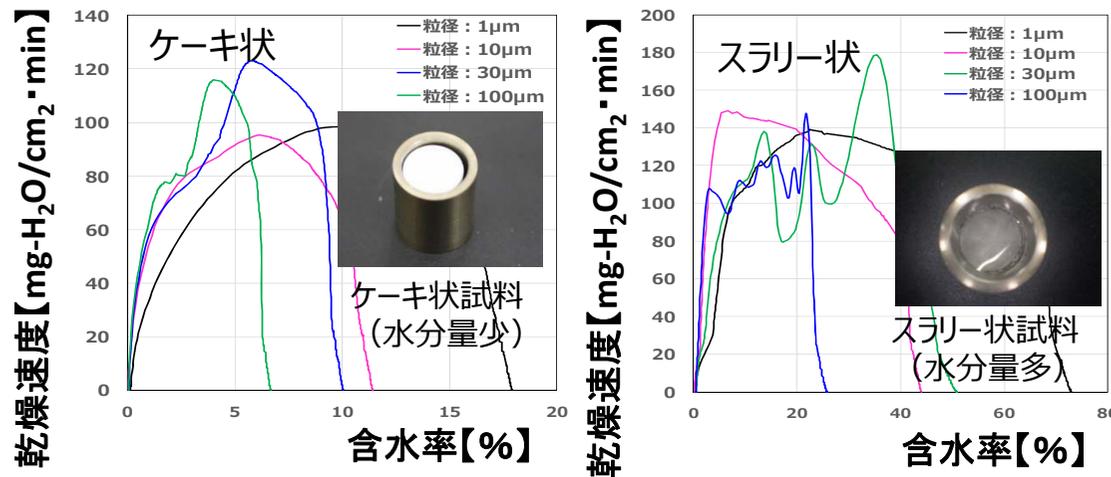


図1 粉体の乾燥特性曲線（例 ZrO_2 , 300 $^{\circ}\text{C}$ ）

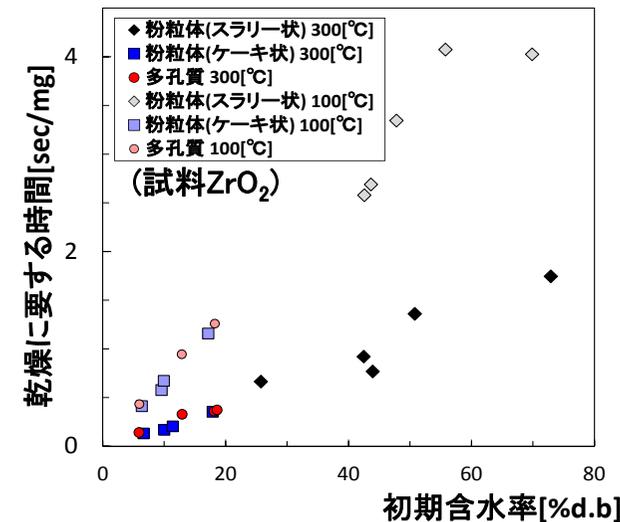


図2 初期含水率と乾燥に要する時間の関係

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

◆ 燃料デブリ含水・乾燥特性の評価 (MCCI生成物、劣化セメント再水和水の乾燥に与える影響)

成果概要

- MCCI生成物では、非晶質 (ガラス質) の生成により最後に乾燥速度が落ち、乾燥しにくくなる傾向を示したが、その影響はわずかであった(図1) (試験条件: 温度; 100℃, 300℃、材質; 模擬MCCI生成物)。
- 500℃以上ではCa(OH)₂、800℃以上ではCaCO₃が分解し、900℃以上ではエーライト、ビーライト等のセメントの原料成分が確認され、熱劣化の温度により異なる組成になることを確認した(図2)。
- セメントは高温により劣化し水和水が減少する。しかし、水への浸漬により再水和が起こり、**浸漬時間が1週間を超えると劣化の程度に関係なく、300℃の乾燥処理後の残留水和水量は変わらなくなった(図3)。**

MCCI生成物の非晶質 (ガラス質) の乾燥処理に与える影響は少ないが、MCCI生成物に同伴するコンクリート (熱劣化セメントも同様) の水和水については考慮する必要がある。
 ⇒ 乾燥条件設定に資するデータを提供。乾燥条件を収納缶の設計条件に利用。

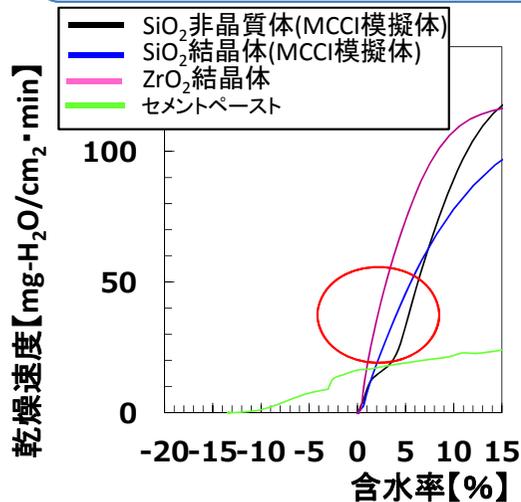


図1 非晶質体の乾燥への影響(300℃)

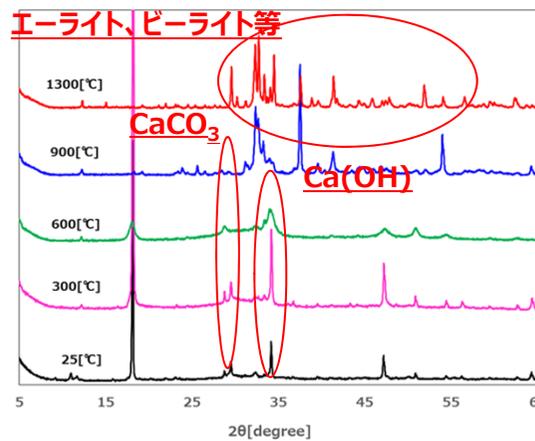


図2 熱劣化セメントのXRD

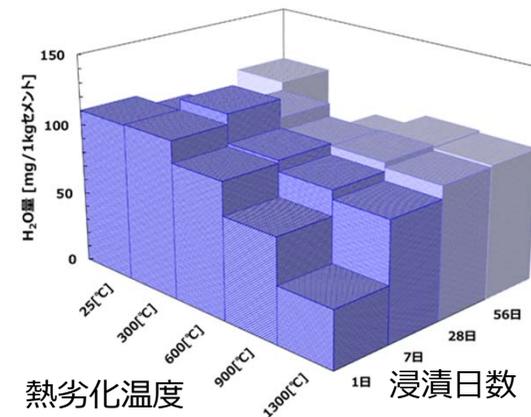


図3 300℃で乾燥後の残留水分

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ① 燃料デブリ特性データの把握

c. 収納・保管に影響を与える燃料デブリ特性の把握

◆ 燃料デブリ乾燥特性の評価（粉化挙動評価）

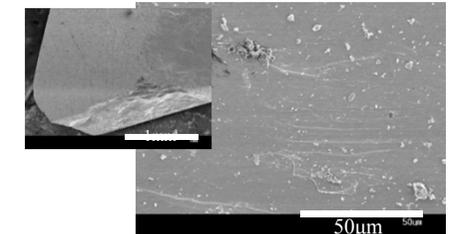
成果概要

- 温度、酸素分圧及び組成中のU量が上がるとO/Uが上昇しクラックが発生しやすくなるが、温度300℃、酸素分圧 10^{-3} [atm]の熱処理試験では全ての試料においてクラックの発生がなく（図）、 $(U_{0.75}Zr_{0.25})O_2$ の15時間加熱試験以外はO/Uの変化もなかった。

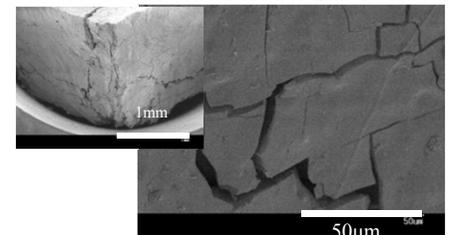
300[℃] の熱処理試験ではクラックが発生しなかったことを踏まえ、乾燥温度条件としては状態変化（粉化）の観点から収納缶設計の許容温度として300℃以下が望ましい。
 →乾燥条件設定に資するデータを提供。乾燥条件を収納缶設計条件に利用

表 O/U変化に対する温度、酸素分圧、組成の影響結果

温度の影響 ・組成： $(U_{0.50}Zr_{0.50})O_2$ ・酸素分圧： 10^{-3} [atm] ・時間：5[h]	300[℃] → O/U=2.000（変化なし） クラック発生なし 400[℃] → O/U=2.022 クラック発生有り 500[℃] → O/U=2.037 クラック発生有り 600[℃] → O/U=2.161 クラック発生有り
酸素分圧の影響 ・組成： $(U_{0.50}Zr_{0.50})O_2$ ・温度：600[℃] ・時間：5[h]	10^{-5} [atm] → O/U=2.013 クラック発生有り 10^{-3} [atm] → O/U=2.161 クラック発生有り
組成の影響 ・酸素分圧： 10^{-3} [atm] ・温度：600[℃] ・時間：5[h]	$(U_{0.25}Zr_{0.75})O_2$ → O/U=2.028 クラック発生有り $(U_{0.50}Zr_{0.50})O_2$ → O/U=2.161 クラック発生有り $(U_{0.75}Zr_{0.25})O_2$ → O/U=2.198 クラック発生有り $UO_2+ZrO_2+5mol\%SiO_2+1mol\%CaO(U=46\%)$ → O/U=2.085 クラック発生有り



300℃,低酸素雰囲気下での熱処理後の状況（クラック発生なし）



600℃,低酸素雰囲気下での熱処理後の状況（クラック発生あり）

図 熱処理時の粉化挙動試験で発生したクラックの様子

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

a. MCCI生成物の特性評価

● 過去の大型MCCI試験生成物を利用した特性評価（平成27～28年度）

仏国CEAの所有する過去の大型MCCI試験生成物を利用した特性評価（生成相や硬さ等の評価）を継続する。

● 福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製（平成28年度）

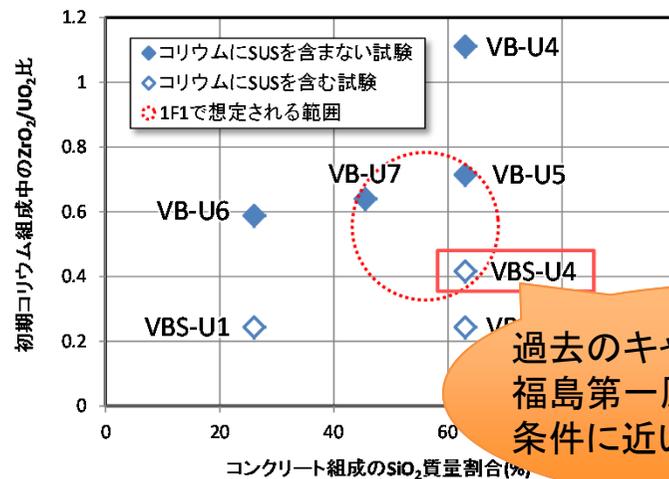
福島第一原子力発電所でのMCCI条件を考慮し、過去の試験では十分に考慮されないパラメータの影響を評価可能な大型MCCI試験をCEA協力のもと準備し、作製に着手する。

● MCCI生成物の生成相に関する機械的性質の評価（平成27年度）

大型MCCI試験生成物の分析や熱力学評価によって想定されるMCCI生成物の主な生成相について機械的性質を評価する。

【目標を達成するための指標】

- 過去のCEAの大型MCCI試験生成物から5種類以上のサンプルが選定され、これらの組成分析および機械的物性データが取得されていること。（平成27～28年度） ⇒平成27年度取得完了、追加実施取得完了
- MCCI生成物およびコンクリート劣化物として想定される材料3種類以上について、機械的性質（硬さ、弾性率、破壊じん性）のデータが取得されていること。（平成27年度） ⇒平成27年度取得完了
- 福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製に着手していること。（平成28年度） ⇒作製完了



過去のキャンペーンから
福島第一原子力発電所の
条件に近いものを選んで試験

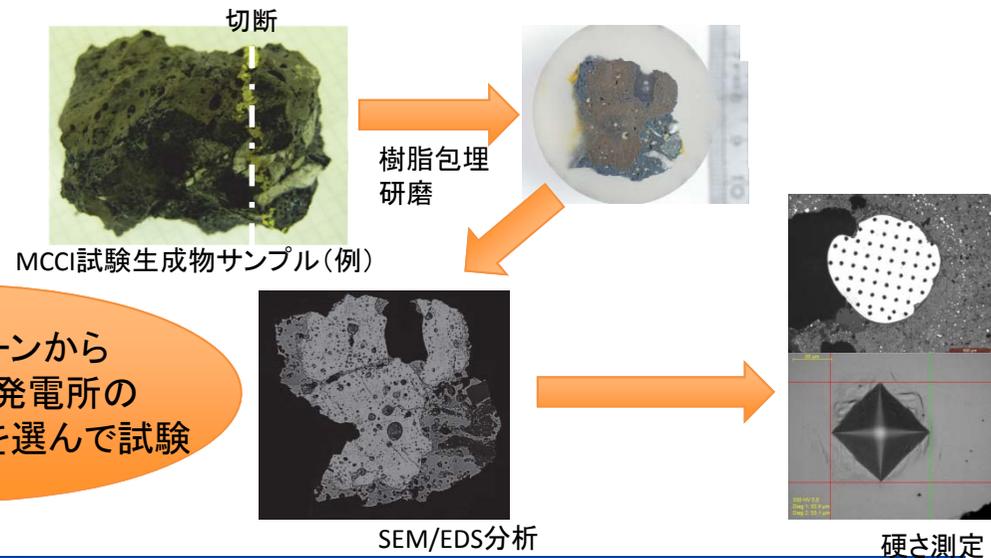


図 CEA VULCANO試験条件

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

a. MCCI生成物の特性評価

◆ 過去の大型MCCI試験生成物を利用した特性評価

成果概要

- 徐冷条件のサンプルでは結晶構造を有する SiO_2 や ZrSiO_4 等が観察されたが、急冷条件の本サンプルでは観察されずに代わりに**非晶質（ガラス質）の SiO_2 等**が観察された（図2）。
- 硬さを比較すると、急冷条件のサンプルは徐冷条件のサンプルに比べて、硬い化合物が増える傾向を示した。

急冷条件のサンプルは、ガラス質の SiO_2 等の生成が顕著になり徐冷条件のサンプルに比べて硬い化合物が増える傾向を示した。

⇒燃料デブリ特性リストに反映し、燃料取り出しのモックアップ試験を行う際の模擬デブリの選定に利用

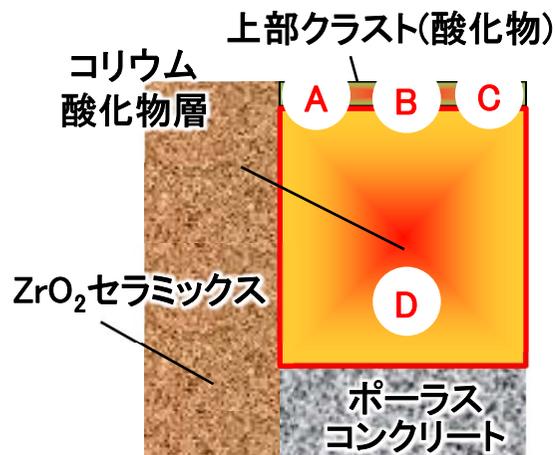


図1 VW-U1試験生成物 概要図
(冷却水の循環により急冷した試験生成物)

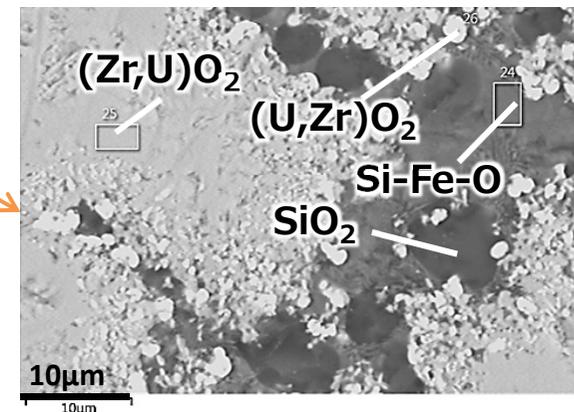
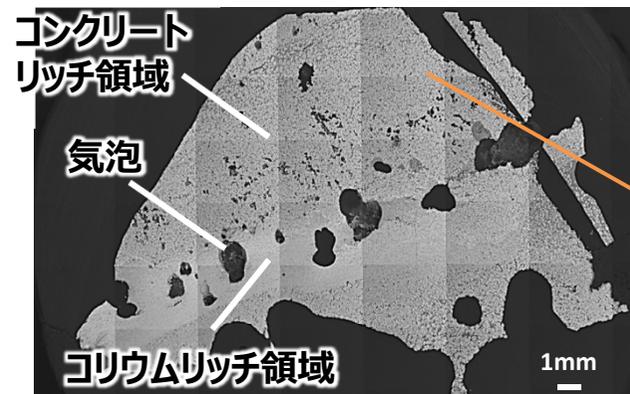


図2 サンプルAの組織

(2)模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

a. MCCI生成物の特性評価

◆ 福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製

試験条件及び試験方法

- ・福島第一原子力発電所1号機の燃料及び炉内構造物の重量^{※1}を参考として初期装荷物組成を設定、福島第一原子力発電所1号機の原子炉建屋のコンクリート成分、福島第一原子力発電所3号機の骨材産地^{※2}を参考にコンクリートを調整し、CEAで実施したシミュレーション結果から加熱条件を設定した。
- ・図の試験装置を用い、高周波誘導により加熱し目標のコンクリート浸食量になるまで試験を実施した。なお、福島第一原子力発電所事故では溶融デブリが落下しコンクリートが浸食したものと推定されているため、その体系を模擬した実験体系にはなっていない。

初期装荷物組成 [wt%] (総量46.4kg)

UO ₂	ZrO ₂	Zr	ステンレス
58.8	16.2	11.8	13.2

試験用コンクリート組成(推定値) [wt%]

SiO ₂	CaO	CaCO ₃	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	H ₂ O
62.4	8.6	4.4	11.3	5.4	7.9

初期装荷物加熱方法：誘導加熱装置による直接加熱
誘導加熱条件：160 kHz、32 kW、コンクリート浸食量が初期コリウム量の1.5倍になるまで加熱継続

※1 東京電力株式会社プレス資料（平成23年11月30日）、
 「福島第一原子力発電所1～3号機の炉心状態について」
 ※2 小澤他、日本原子力学会2014年春の年会予稿集G35。
 野村他、コンクリート・ジャーナル12(6) (1974)

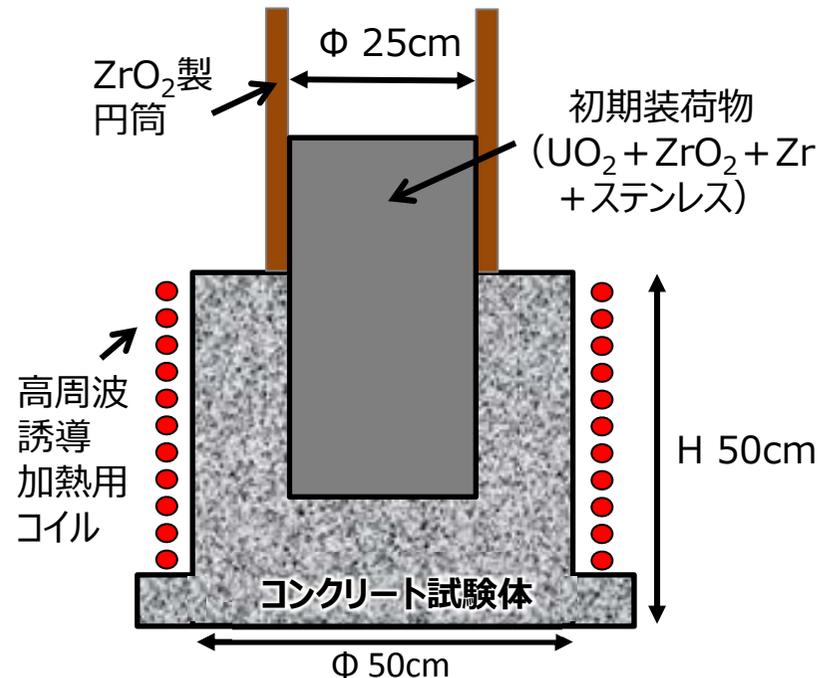


図 試験装置の断面図

(2) 模擬デブリを活用した特性評価 ③ 性状不均一に係る評価

a. MCCI生成物の特性評価

◆ 福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製

成果概要

- ・大型MCCI試験生成物を作製し、最終的な試験セクションの形状（コンクリート浸食範囲、浸食形状の概要）を取得した（図）。
- ・得られた生成物の特徴や試験サンプルの解体状況等から金属／酸化物を判断した。
→平成29年度に大型MCCI試験生成物の分析及び試験セクションの詳細な浸食形状を把握する予定。

MCCI生成物の性状推定として、金属や大きな空隙の有無などマクロ的な視点での知見を得た。
⇒燃料デブリ特性リストに反映し、燃料取り出しのモックアップ試験を行う際の模擬デブリの選定に利用

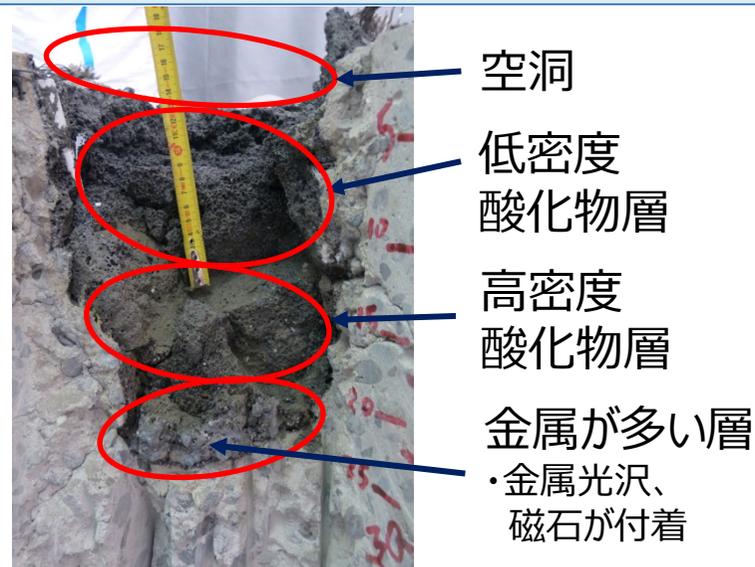
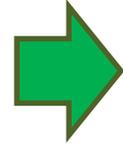


図 大型MCCI試験生成物及びコンクリート試験体の断面写真

参考：大型MCCI試験生成物の解体状況

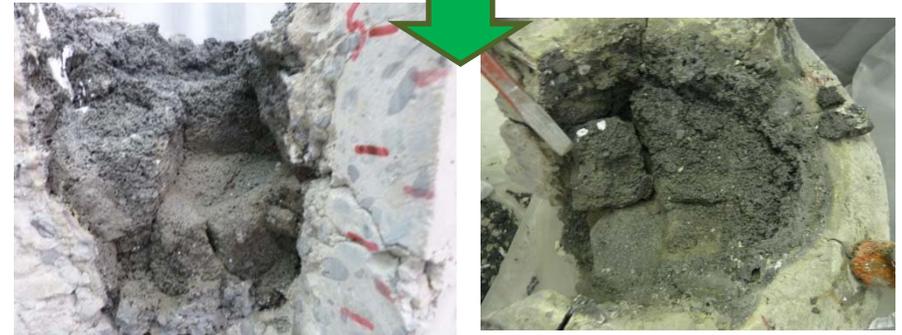


(解体初期)

作業はグラインダー、ノミ+ハンマーによる手作業



<解体作業状況>



(解体中期)



(3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発

① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画の策定

●実施項目(平成27～28年度)

炉内等から得られた燃料デブリの微量サンプルについて、分析・測定可能なように現地での取扱い・分析を含めた分析全体フローの検討を行い、技術開発要素を抽出及び今後の技術開発を立案する。

廃炉作業に必要な燃料デブリ性状を把握するための分析ニーズを調査・整理する。(平成28年度)

【目標を達成するための指標】

➢ 現地での取扱い、輸送を含めた燃料デブリに係る分析全体フローの検討結果が提示されていること。(平成27年度)

→平成27年度実施完了

➢ 今後の技術開発計画が提示されていること。この計画策定に先立って、昨年度の「デブリ標準化」の事例を参考に、ニーズ情報の合意形成を図るための活用側PJとの意見交換打合せを実施すること。(平成27年度)

→平成27年度実施完了
分析ニーズ調査完了

◆分析ニーズ調査

今後既存施設における分析に向けた対応、及びJAEAが新たに設置する放射性物質分析・試験施設第2棟の設計が本格化するに当たり、それらに向けた入力情報として、廃炉作業を進めるに当たって必要になる分析ニーズの調査・整理を実施した。

成果概要

IRIDにおいて、燃料デブリに関係する各廃炉工程（取り出し、臨界管理、収納・移送・保管、廃棄物処理・処分）に係る技術開発を担当する関係者の協力を仰ぎ、各工程毎に、それらの工程を実際に進める際に必要になるであろう分析項目を検討、整理し、施設整備担当組織に情報提供を行った。

廃炉を進める際に必要になるであろう分析項目を検討、整理した。

⇒分析を実施する施設を整備する際の入力情報として、施設整備担当組織に情報提供を行った。

(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 29

a. 分析・測定のための技術開発

●実施項目(平成27～28年度)
 燃料デブリ等の性状等を分析・測定するための技術開発を行う。具体的には、アルカリ融解法の検討を継続し、ICP-AESによる元素の簡易迅速分析法を構築するための検討を行う。また、具体化されていない試験方法及び当該試験にかかるホット環境での試験装置の検討、又は既存の試験装置を利用した試験方法の検討を実施する。さらに、平成27年度の検討において、明確になった技術開発項目について開発を実施する。
 【目標を達成するための指標】
 ▶融剤及び燃料デブリ等の主な共存成分に対し、元素分析への影響が提示されていること。(平成28年度)⇒取得完了
 ▶燃焼・爆発特性等の安全評価方法が提示されていること。(平成28年度)⇒検討完了

○燃料デブリ化学分析方法の検討(平成27～28年度)



検討範囲

- るつぼの腐食等について対策を検討し、るつぼ材料と融剤の組み合わせを検討した。(平成27年度)
- るつぼの腐食等を考慮した条件でのU模擬デブリ等を用いて溶解挙動を確認した。(平成28年度)
- アルカリ融剤や燃料デブリの主成分による元素分析結果への影響を検討した。(平成27～28年度)

○安全評価方法の検討(平成28年度)

「具体化されていない試験方法及び当該試験にかかるホット環境での試験装置の検討、又は既存の試験装置を利用した試験方法の検討を実施する。」に関し、現時点ではニーズから取得データを絞り込めないことを踏まえ、新規の装置検討はせず、既存試験装置や分析装置を基に、汎用性のあるデータが取得可能な試験方法を検討した。

○新規技術開発の実施(平成28年度)

- 昨年度の検討で新たに開発が必要な項目について、技術開発を実施した。(平成28年度)
- X線コンピュータトモグラフィ(X線CT)による燃料デブリ分析技術の開発
 - ICP-MSを用いた多核種合理化分析手法の開発

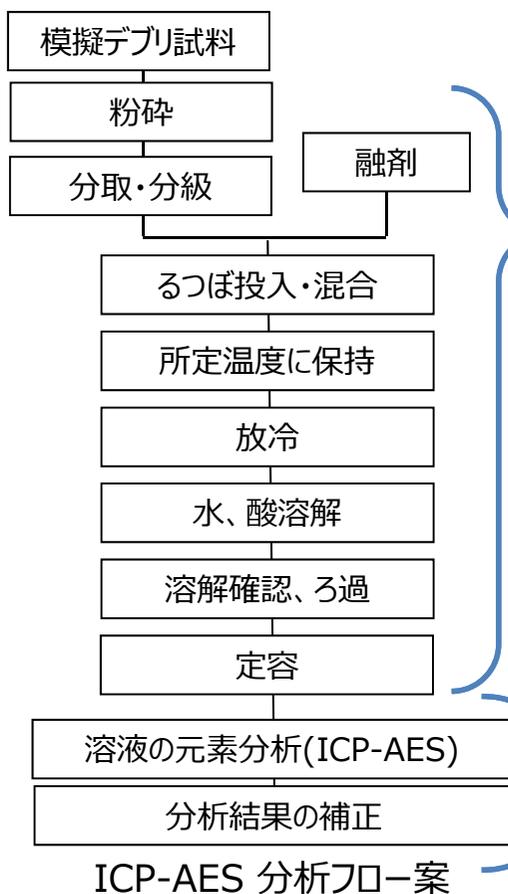
(3)燃料デブリ等の分析要素技術の開発 ②分析に必要となる要素技術開発 30

a. 分析・測定のための技術開発

◆燃料デブリ化学分析方法の検討（燃料デブリの溶解とICP-AESを用いた元素定量分析）

金属相を含む試料を想定しアルカリ融解条件を検討する。また、ICP-AESによる元素分析*における融剤成分（Na）やU等のマトリックス元素の影響を把握し、合理的な補正方法を検討する。**検討結果をまとめ、ICP-AESによる合理的な元素分析手法を構築する。** *分析対象

Zr, Fe, Gd, Al, B, Ca, Cr, K, Mg, Ni, Si, U, Pu



①るつぼ材の検討

- ・Niるつぼ腐食評価、他材料るつぼ評価：平成27年度

②アルカリ融解条件の検討

- ・酸化物試料での検討：平成27年度
 - ・金属を含む試料による検討：平成28年度
- 金属試料の融解条件の検討**

③ICP-AES測定による干渉の評価

- ・Naによるイオン化干渉の把握：平成27年度
 - ・Zr等による分光干渉の把握：平成27年度
 - ・U,Puによる分光干渉の把握：平成28年度
- Uによる他元素分析への影響、Pu測定への影響を検討**
- ・干渉除去方法の検討：平成28年度
- 分析線の変更、化学分離等の検討**

(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 31

a. 分析・測定のための技術開発

◆ 燃料デブリ化学分析方法の検討

成果概要

○アルカリ融解条件の検討

・主要な金属であるSUS,ジルカロイ2, Zr(O)について、アルカリ融解による溶解の適用性を確認した結果、溶解条件を若干変更することで全量溶解できることを確認した。

○ICP-AES測定における干渉及び干渉除去の検討

・対象元素のうち一部の元素(Ni, Al, Pu, Si)は、Uの干渉を受けることが分かった。Ni, Al, Siは化学分離でSi及びPuは補正式による分光干渉の補正で対応することで定量分析可能である見通しを得た(図1,2)。

対象元素間の干渉評価を行い、干渉があるものは除去できる見通しを得た。
⇒成果は分析要領にまとめ、実際の燃料デブリの分析に利用

表 元素間の干渉状況

元素	結果と対応
Ca,Cr, Fe,K, Mg,Zr	定量性に問題なし (分光干渉しない分析線が 設定可能)
B	僅かにPuの干渉を受けるが、定量 性に問題なし
U	僅かにUの干渉があるが、定量性 に問題なし
Gd	僅かにUの干渉があるが、定量性 に問題なし
Ni	U干渉あり
Al	U, Pu干渉あり
Si	U, Pu干渉あり
Pu	U干渉あり

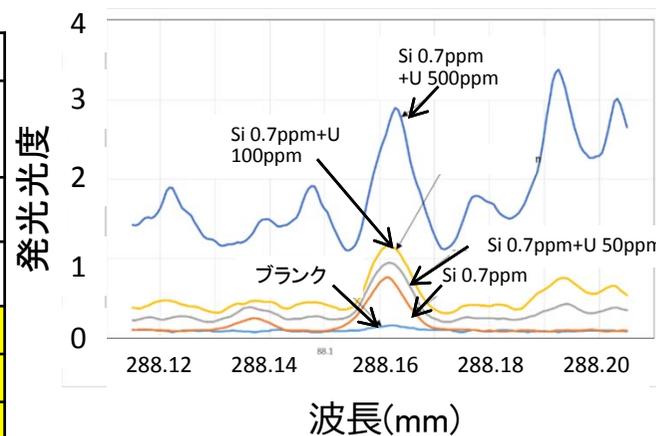


図1 Uを添加した際のSiのプロファイル

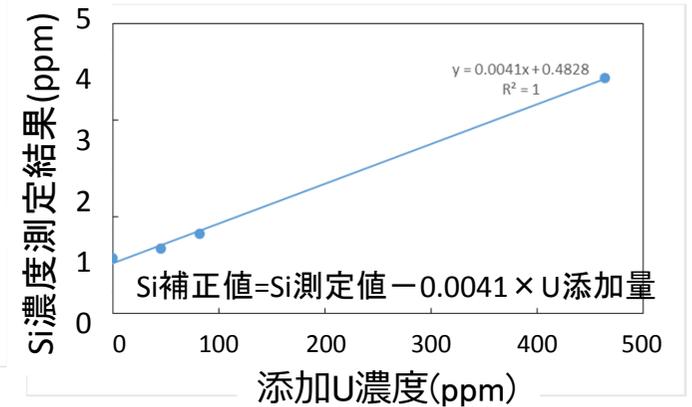


図2 Si分析に伴うU量の影響

(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 32

a. 分析・測定のための技術開発

◆安全評価方法の検討

成果概要

現時点ではニースから取得データを絞り込めないことを踏まえ、新規の装置検討はせず、既存試験装置や分析装置を基に、以下に示す汎用性のあるデータが取得可能な試験方法を検討した。

特性把握試験	各Pjのニース	平成28年度の実施内容
核種放出挙動 (気中)	取り出しPj：取り出し計画立案のためにFPの放出挙動を評価するため 収納・移送・保管Pj：収納缶の気中保管の密閉評価のため	・照射済燃料を用いて、加熱時の放出FPを測定する試験を実施しているため、本既存試験装置を基に試験方法案を検討した。
核種・元素放出挙動 (水中)	取り出しPj：取り出し計画立案のために、冷却水の処理装置の設計に使用するため 収納・移送・保管Pj：収納缶の水中保管の密閉評価のため	・照射済燃料の浸漬試験を行い、浸漬液中の元素、核種を分析して溶出率を評価しているため、実績のある本試験方法を基に検討した。
水素発生特性	収納・移送・保管Pj：燃料デブリ輸送・保管時に発生する水素量を評価するため。	・X線CTによる気孔率の測定結果から保守的に水素発生量を推定することとし、新規装置の検討等に替わり、X線CTによる気孔率の測定に係る技術開発を実施し、測定方法を提示する。なお、核種放出挙動(気中)の試験装置により、水素発生量の実測も可能である。
燃焼・爆発特性	取り出しPj：取り出し作業時、発火・燃焼の可能性を評価するため。特に、レーザ等の熱的切断装置にて切断した際に発火燃焼するか評価したい 収納・移送・保管Pj：現実的な評価により合理化(構造の簡略化)の可能性を評価するため	・TMI-2では、示差走査熱量測定(DSC)を実施(～500℃で加熱：空気雰囲気)したが、発熱反応を示さなかった。また、自然発火試験、スパーク試験、衝撃試験及び燃焼試験が実施され、発火、着火、燃焼等は認められなかった。 ・検討の結果、発火、燃焼の評価では生成物を特定することが重要であるため、燃料デブリの組成分析及び熱量測定分析方法を検討した。
燃料デブリ乾燥特性	収納・移送・保管Pj ①乾燥するために必要なデータ ②乾燥装置の実証	・模擬体を用いた乾燥試験方法として熱重量/示差熱分析装置(TG/DTA)を用いており、本試験方法を基に乾燥基礎データの取得方法を検討した。

(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 33

a. 分析・測定のための技術開発

◆安全評価方法の検討（検討の一例：核種放出挙動（気中））

成果概要

- ・燃料デブリの加熱時のFP等の放出挙動を評価する試験方法について、図に示した既存試験装置*を基に検討し試験方法を作成した。
- ・燃料デブリの元素分析や組成が不明であるため、安全性を考慮し本試験装置を用いて高温加熱する場合には、あらかじめ組成分析等を行い試験方法の修正が必要である。

既存試験装置を基に、汎用性のあるデータ取得として加熱によるFP等の放出試験方法を検討した。
⇒取得データを明確化され必要と判断される場合には、本試験装置をもとに試験装置の設計が可能

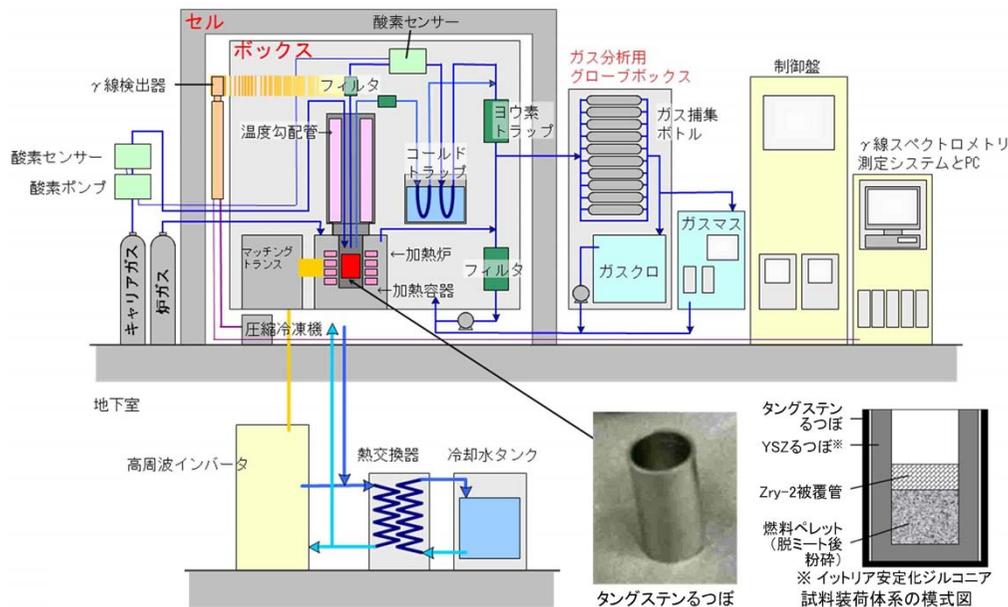


図 FP放出挙動評価試験装置*

試験方法

- ①Wるつぼに試料を入れ、試験装置に装填
- ②加熱雰囲気はArガスフローとし試験温度に設定し昇温
- ③試験後、降温し自然冷却
- ④試験中に放出されたガスについて分析
- ⑤フィルタに捕集されたFP等のγスペクトルを測定
- ⑥ガス捕集ボトルはオフラインによりFPガス等（水素含む）の濃度を測定

* 田中康介ほか“化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチノイドの放出挙動評価—溶融被覆管と照射済MOX燃料の反応による相状態とFP放出挙動—”, JAEA-Research 2013-022.

a. 分析・測定のための技術開発

◆X線CTによる燃料デブリ分析技術の開発

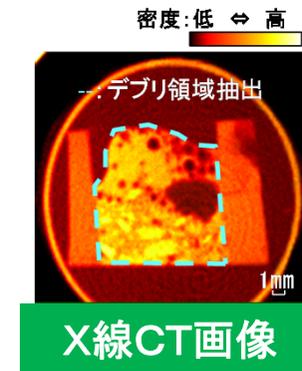
気孔率は水素発生量評価の基礎データとして測定ニーズが高く、分析を実施する上であらかじめ燃料デブリの構成成分を非破壊で識別するニーズも高い。そのため、X線CT等を用いた非破壊分析技術を福島第一原子力発電所燃料デブリへ適用するため下記の技術開発を行う。

① 気孔率の定量評価手法の構築

【課題】：点在する気孔等の形成状況を定量的に評価できないため、新たに気孔率の定量化手法を構築することが必要

→気孔率定量化のための画像解析手法の構築

- 1)気孔率解析領域の抽出及びCT値を用いた気孔率評価手法の構築
- 2)気孔率の異なる試験体を用いた評価手法の性能評価（精度確認）

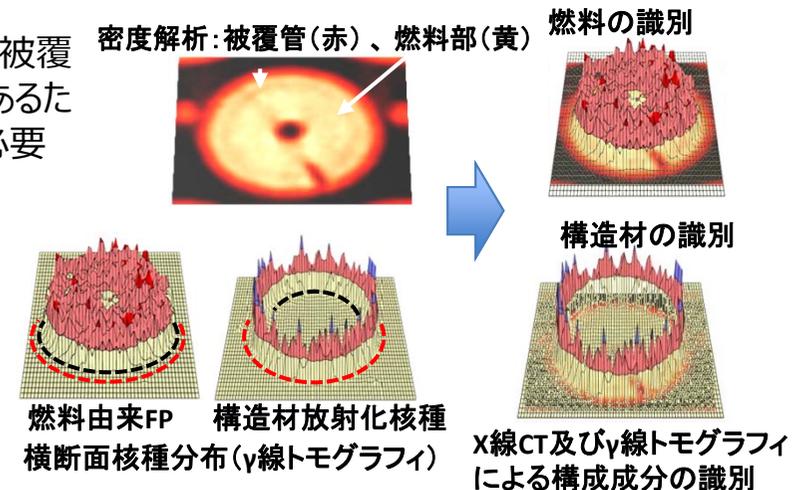


② 燃料デブリ構成成分識別手法の構築

【課題】：密度差を利用したX線CT技術だけでは、多様な物質(燃料、被覆管等)が混在し、熔融により形成した混合物の構成成分識別が困難であるため、混合物（燃料と構造材）の構成成分識別手法を構築することが必要

→γ線トモグラフィ技術を組み合わせた測定技術の開発

- 1) 燃料デブリを想定したγ線トモグラフィ測定手順の確立
- 2) X線CT結果及びγ線トモグラフィ結果を比較評価することによる構成成分識別手法の構築



a. 分析・測定のための技術開発

◆X線CTによる燃料デブリ分析技術の開発

成果概要

○気孔率の定量評価手法の構築

- ・CT値が密度に依存することを利用し、気孔率の定量的評価手法（画像解析）を構築した。
- ・気孔率評価用試験体を用いて性能評価（精度確認）をした結果、±4%で解析可能であった(図1)。

○燃料デブリ構成成分識別手法の構築

- ・既存試料データを用いて、X線CTの密度分布とγ線トモグラフィのγ線強度分布（燃料又は構造材由来の核種を特定）を組み合わせて、構成成分の識別手法を構築した(図2)。

気孔率及び構成成分識別手法を構築し、気孔率については測定精度が確認できた。
⇒成果は分析要領にまとめ、実際の燃料デブリの分析に利用

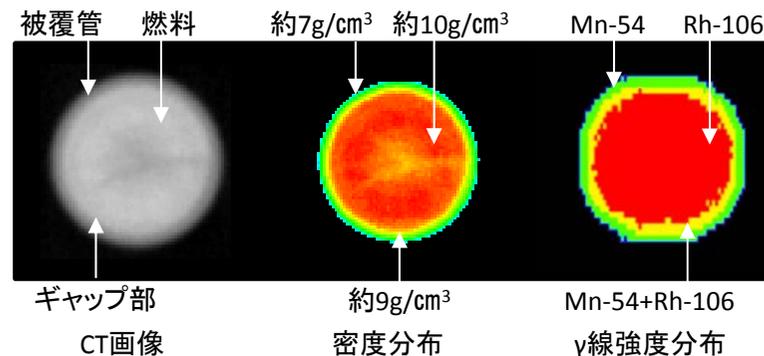
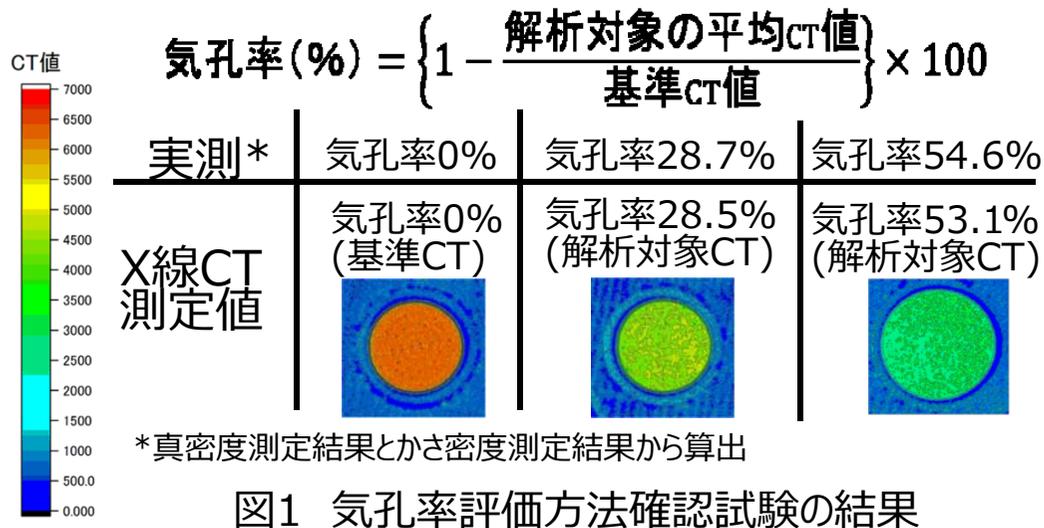


図2 密度分布とγ線強度分布の組み合わせ

(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 36

a. 分析・測定のための技術開発

◆ICP-MSを用いた多核種合理化分析手法の開発

事故廃棄物の分析についてと同様に燃料デブリについてもニーズのある、多数の核種（38核種）の定量分析に関し、放射能測定中心とした従来方法での分析では多数の工程数を要する。このため、同重体の問題を排除できる新型ICP-MSを導入し、同分析装置で29核種の同時分析を行うよう全体フローを改良することで、大幅な合理化（工程数の削減）と、それによる分析能力の大幅向上を実現するための技術開発を行う。

従来フロー→新フロー

H28年度の実施項目 マトリックス除去

【課題】：新型ICP-MS（ICP-QQQ）による多核種同時分析においても、大量のマトリックス（分析物に含まれる分析対象核種以外の主要成分(燃料デブリに含まれる構造材等)）の存在が分析の妨害要因になりうる。

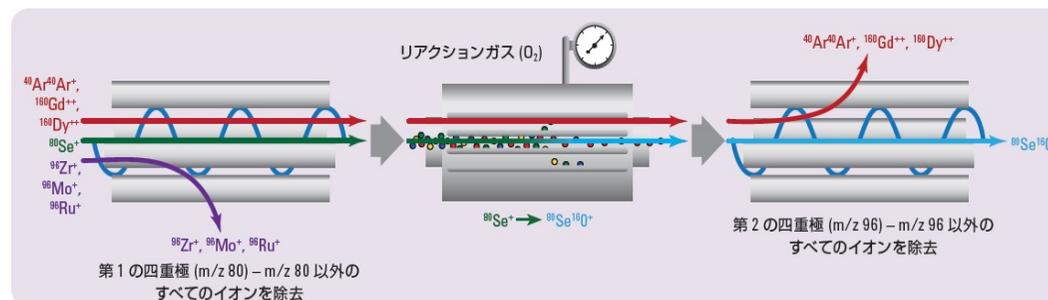
→妨害となるマトリックス成分の把握

- ・マトリックス成分の除去方法の調査 等

→マトリックス成分の影響試験

- ・マトリックス成分の感度と対象核種の感度の比較

・液体シンチレーション	: 12 → 2核種
・α線スペクトル	: 16 → 1核種
・低バックグラウンドβ線	: 1 → 1核種
・γ線スペクトル測定	: 5 → 5核種
・ICP-MS	: 4 → 29核種



ICP-QQQによる同重体の排除方法

第1の四重極通過後、リアクションセルでガスと反応させて化学形としての質量数/電荷を変更し、第2の四重極で再度分離する。

a. 分析・測定のための技術開発

◆ ICP-MSを用いた多核種合理化分析手法の開発

成果概要

・燃料デブリのマトリクス主成分と想定されるZrによる測定対象核種に対しての妨害の影響を検証し、Zrの質量数（安定同位体：Zr-90,91,92,94,96,97,98,100）近傍の測定対象核種（Sr-90,Zr-93,Mo-93,Pd-107）の質量数に対して同重体干渉の影響を及ぼすピークが存在することを確認した。

・Zrが及ぼす妨害ピークについて、ICP-QQQ特有のコリジョン/リアクション（CR）セルモードを活用することによる質量分離性能を確認した結果、O₂モードでは同重体を持つ元素でそれぞれ異なる挙動を示し同重体干渉の除去の可能性を確認できた(図)。今後O₂ガス流量等のパラメータを変化させる等の最適化を検討する。

ICP-QQQ特有のCRセルモードを活用することで同重体干渉の除去の可能性を確認できた。
⇒成果は分析要領にまとめ、実際の燃料デブリの分析に利用

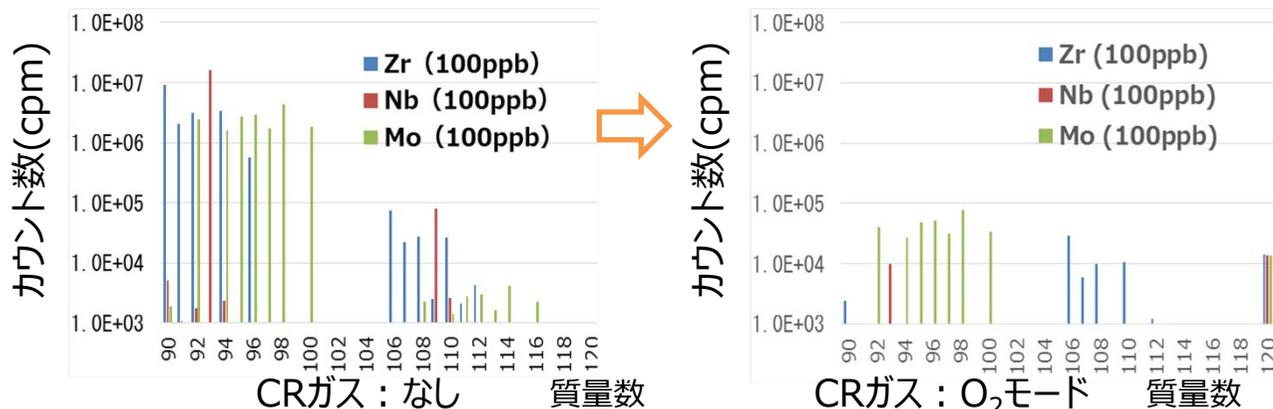


図 CRセル内への導入ガス種類を変化させることによる質量分離性能

表 各分析核種におけるO₂モードでの測定強度比(%)

	M ⁺	MO ⁺	MO ₂ ⁺
Zr-90	0.06	85	15
Nb-93	0.16	1.8	98
Mo-98	55	31	14

注意：検出された信号（カウント数）の強度比で示したものであるため、直接的な濃度比ではない。

(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 38

b. 燃料デブリサンプルの輸送に係る検討

● 実施項目(平成27～28年度)

既存施設による早急な燃料デブリの分析実施も想定し、燃料デブリを試験施設へ輸送して化学的及び物理的な調査を行える準備をしておくことは重要である。そのため、既存輸送容器を用いた核燃料輸送物設計承認に関する詳細検討を行う。また、放射性物質分析・試験施設への輸送については初年度に実施主体(PJ)の調整を含め検討方針を具体化する。

【目標を達成するための指標】

- ▶ 核燃料輸送物設計承認及び容器承認に関する詳細検討結果が提示されていること。(平成27年度) ⇒提示済み
- ▶ 輸送許認可申請の検討結果が提示されていること。(平成28年度) ⇒提示済み

成果概要

- 輸送方法に係る検討の一環として、平成26年度の検討に加えMOX燃料由来の燃料デブリサンプルを想定して輸送容器の安全解析などを実施した結果、法令に定めるB型核燃料輸送物としての技術上の基準(構造、熱、密閉、遮蔽、臨界)に適合することが確認された。また、平成27年度の他PJの検討結果(現地での燃料デブリサンプルの収納容器仕様)を反映した安全解析を実施した。これらにより、輸送時の許認可申請に必要な安全解析の検討が終了した。
- A型輸送の検討も実施し、法令上の制限値に基づく最大収納可能量を評価した。また燃料デブリサンプルが輸送物の種類の解釈によっては、現行の協定等の下では量に関わらずA型輸送容器による輸送ができない可能性があることが示された。
- 今後の放射性物質分析・試験施設への燃料デブリの輸送(構内輸送)の検討に資するため、輸送最大量及び輸送容器を想定し、輸送容器表面等の線量当量率を概算評価した。

輸送時に必要な技術的な検討を行い、B型輸送容器により燃料デブリが輸送できる見通しを得た。
⇒既存施設での燃料デブリの分析に向けて、燃料デブリの輸送に係る解析データを提供

成果まとめ(1/3)

(1) 炉内の燃料デブリの性状の推定

- これまでに得られている知見（TMI-2事故やSA研究の文献等）及び模擬デブリやTMI-2デブリで取得された機械的性質、熱的性質データ等をもとに燃料デブリの性状を推定し、特性リストをとりまとめ、関係プロジェクトに提供した。

(2) 模擬デブリを活用した特性評価

①燃料デブリ特性データの把握

- 金属デブリの機械的性質： α -Zr(O)を作製し機械的性質を測定し、ビッカース硬さが4.6～8GPaなどのデータを取得した。
- 福島第一原子力発電所事故に特有な反応：燃料デブリ主成分である(U,Zr)O₂へのFe、希土類Ca固溶による相状態、機械的性質への影響に関する知見を得た。また、MCCI時の希土類、白金族FP、海水塩の挙動と生成相への影響に関するデータを取得した。
- 燃料デブリの含水・乾燥特性評価：燃料デブリの乾燥方法や収納缶設計の基礎データとするため、燃料デブリの含水・乾燥挙動評価として、セラミックスの多孔質、MCCI生成物に着目した乾燥挙動評価試験や粉化に着目した許容温度評価試験を行い、燃料デブリの含水・乾燥挙動評価データをとりまとめた。得られた知見は収納保管プロジェクトに提供した。

②TMI-2デブリとの比較

- 機械的性質評価：TMI-2デブリを分析し、組成と硬さの相関の知見を得た。また、模擬デブリと同じ傾向を示すことを確認した。
- 分析手法の検討：TMI-2デブリを用いてアルカリ融解を用いた溶解方法の適用性を評価した。一部沈殿物が観察される条件があったがアルカリ融解法をベースに燃料デブリを溶解できることを確認した。

(2) 模擬デブリを活用した特性評価

③ 性状不均一性に係る評価

○ MCCI生成物の特性評価

・過去の大型MCCI試験生成物を利用した特性評価：仏国CEAの所有する過去の大型MCCI試験生成物を利用し、生成条件の違いによる生成物組成を同定するとともに、機械的性質を取得した。また、生成相の分布状況を把握し、冷却速度の影響による生成相の違いの知見を得た。これらの知見は燃料デブリ特性リストに反映した。

・福島第一原子力発電所のMCCI条件を考慮した大型MCCI試験生成物の作製：福島第一原子力発電所でのMCCI条件を考慮した大型MCCI試験をCEA協力のもとで実施し、大型MCCI試験生成物を作製し、金属や大きな空隙の有無などマクロ的な視点での知見を得た。

○ UO_2 を用いた金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価

・カザフスタン国立原子力センターの燃料溶融実験設備を用いて、注水冷却や金属構造材との不均一混合固化した模擬燃料デブリを作製し、燃料デブリ特性を推定した。急冷条件時の粉状デブリの生成状況等の知見を得た。

(3) 燃料デブリ等の分析要素技術の開発

① 燃料デブリ等の分析・測定技術の開発計画

分析のニーズ調査を行い、優先度の高い分析項目が実施可能な茨城地区の既存施設を選定し、解決が必要な課題を整理し、技術開発計画を策定した。

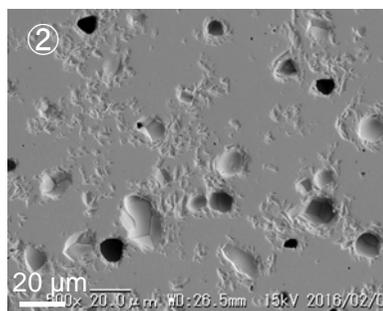
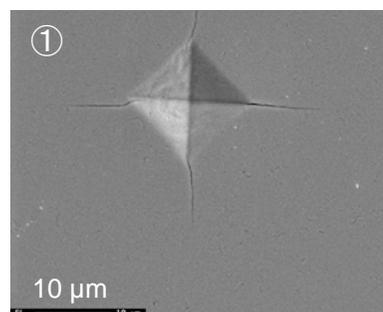
② 分析に必要な要素技術

- **燃料デブリ化学分析方法の検討 (ICP-AESを用いた元素定量分析)** : 金属相を含む試料も想定しアルカリ融解条件を検討した。また、ICP-AESによる元素分析における融剤成分 (Na) や U等のマトリックス元素の影響を把握し、合理的な補正方法を検討した。
- **X線CTによる燃料デブリ分析技術の開発** : 気孔率は水素発生量評価の基礎データとして測定ニーズが高く、分析を実施する上であらかじめ燃料デブリの構成成分を非破壊で識別するニーズも高い。そのため、X線CT等を用いた非破壊分析技術を福島第一原子力発電所燃料デブリへ適用するための技術開発を行い、気孔率の測定精度等の知見を得た。
- **ICP-MSを用いた多核種合理化分析手法の開発** : 新型ICP-MSを導入し、同分析装置で29核種の同時分析を行うよう全体フローを改良することで、大幅な合理化と、それによる分析能力の大幅向上を実現するための技術開発を行い、同重体干渉の除去の可能性を確認した。
- **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収納方法に柔軟に対応できるサンプル収納缶の設計及び輸送容器の安全解析を実施するとともに、事業所内運搬の想定量 (5kg) の運搬時に既存 B 型輸送容器を用いた場合の線量等の試評価を実施し、燃料デブリサンプルの輸送時に必要な知見を得た。

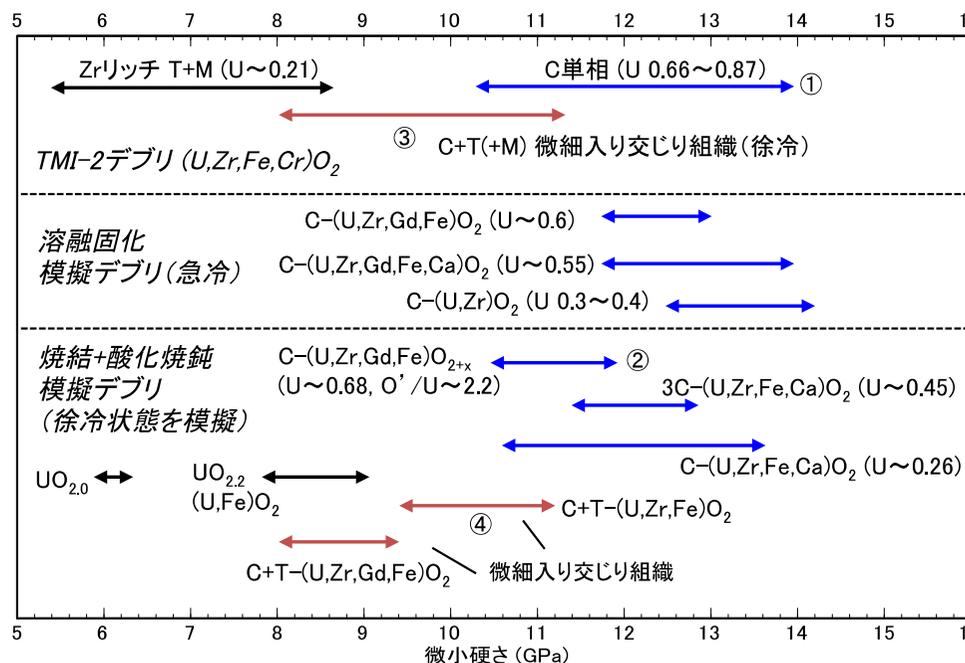
TMI-2デブリと模擬デブリの比較

●実施概要

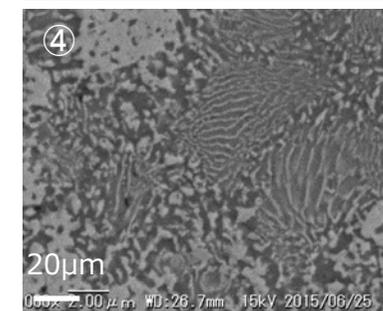
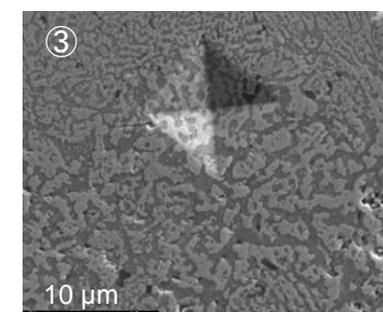
原子力機構に保管しているTMI-2デブリを用いて、硬さデータを取得し、模擬デブリと比較・検証する。



C単相組織



採取部位の異なる5種類のTMI-2デブリの硬さデータ比較



微細入り交じり組織

燃料デブリ主成分の $(U,Zr)O_2$ に関して、TMI-2デブリと種々の模擬デブリの組織・組成と微小硬さの相関を比較検証し、冷え方や固溶元素の影響について、模擬デブリの模擬性が確保されていることを確認した。

参考：平成27年度の主な成果(2/2)

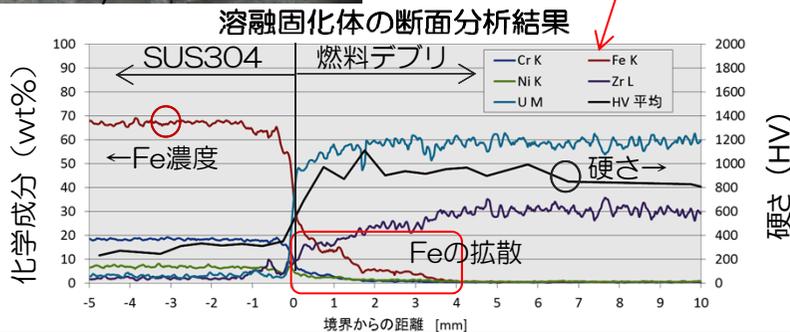
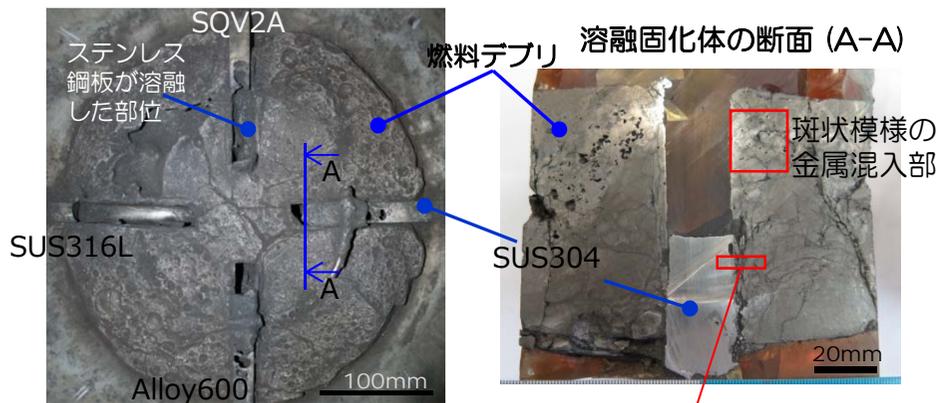
UO₂を用いた金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価

●実施概要

カザフスタン国立原子力センターの燃料溶融実験設備を用いて、注水冷却や金属構造材との不均一混合固化した模擬燃料デブリを作製し、既存知見と合わせて燃料デブリ特性を推定する。

◆ 金属セラミックス溶融固化体の特性評価

試験後外観（徐冷試験）



◆ 粉状デブリの特性評価

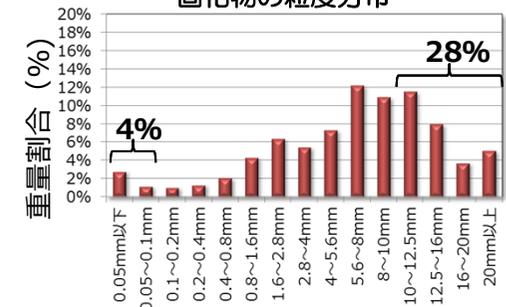
試験後外観（急冷試験）



粉体取り除き後



固化物の粒度分布



UO₂ + Zr + B₄Cと炉内構造材混合物との岩盤状および粉状デブリを作製し、形態や材料物性を把握した。機械的特性や粒径分布、密度データを、情報利用側PJに提示し、活用する。