JAEA-Review
2022-046
DOI:10.11484/jaea-review-2022-046

燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化（委託研究）

－令和３年度　英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業－

Clarification of Debris Formation Conditions on the Basis of the Sampling Data and Experimental Study Using Simulated Fuel Debris and Reinforcement of the Analytical Results of Severe Accident Scenario (Contract Research)
-FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project-

福島研究開発部門　福島研究開発拠点　廃炉環境国際共同研究センター
福井大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
University of Fukui

January 2023
Japan Atomic Energy Agency
日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（https://www.jaea.go.jp）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　JAEA イノベーションハブ　研究成果利活用課
〒 319-1195　茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section,
JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2023

JAEA-Review 2022-046

燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化
（委託研究）
－令和 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業－

日本原子力研究開発機構　福島研究開発部門　福島研究開発拠点
廃炉環境国際共同研究センター

福井大学

（2022 年 10 月 3 日受理）

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉環境国際共同研究センター（CLADS）では、令和 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、令和 3 年度に採択された「燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化」の令和 3 年度の研究成果について取りまとめたものである。

格納容器内部調査等の現場情報、燃料デブリ周辺物質の分析データを参照した模擬実験を行い、号機・領域ごとに、燃料デブリの溶融・凝固メカニズム、デブリ形成プロセスを逆推定し、再現されうる事故条件を検証・評価する（Backward Analysis）。評価結果をこれまで得られている知見と照し合せ、燃料デブリデータベースを高度化する。また、燃料デブリの堆積状態の逆推定から燃料デブリ分析の課題であるサンプル代表性に係る知見の取得を試みる。さらに、燃料デブリ取出しにおいて合理的に排除したい発生確率の低いリスクについて検証試験を行い、このようなリスクが発生する化学条件が、どの程度蓋然をもって発生したのかを調査する。これらの検討結果と最新の事故進展挙動解析結果（Forward Analysis）を本事業の実施者と事故進展解析専門家で共有し、燃料デブリ分析データ活用と、デブリ取出し設計の合理化・効率化に向けた知見を議論する。そのために、酸化物デブリ化学状態の逆解析、金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価およびデブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備を行い、それら結果をもとに Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価を行った。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、福井大学が実施した成果を取りまとめたものである。
廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

JAEA-Review 2022-046

Clarification of Debris Formation Conditions on the Basis of the Sampling Data and Experimental Study Using Simulated Fuel Debris and Reinforcement of the Analytical Results of Severe Accident Scenario
(Contract Research)
－ FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project －

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

University of Fukui

(Received October 3, 2022)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to "the Project") in FY2021.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2021, this report summarizes the research results of the "Clarification of debris formation conditions on the basis of the sampling data and experimental study using simulated fuel debris and reinforcement of the analytical results of severe accident scenario" conducted in FY2021.

The research on fuel debris so far is based on TMI-2 accident that is typical PWR accident but resent scenario analysis of sever accident progression and sampling data of the in reactor materials predict that fuel debris is diversity and piled up complicatedly depending on the unit and in reactor position. We are necessary to presume the thermodynamic condition of fuel debris during the accident in order to estimate accumulation state of debris. However the Forward analysis cannot explain the formation conditions of debris obtained by the sampling, the failure behavior of the RPV by metal rich debris et cet.. The present study aims to reinforce the analytical results of severe accident scenario (Forward Analysis) by debris formation conditions on the basis of the sampling data and experimental study using simulated fuel debris (Backward Analysis). For this purpose, we clarify the formation mechanism and summarizing the properties of oxide debris by reproduction of the sampling data using simulated fuels debris, summarize the properties of metallic debris by preparation of more realistic metallic debris and demonstrate the failure behavior of lower head by the metal-rich debris and preparation of the infrastructure for further research on heterogeneous partially molten oxide-metallic debris. And then on the basis of these results we discuss on the debris formation mechanism and summarizing the debris properties by the experts of Forward/Backward Analysis.

Keywords: Oxide Debris, Metallic Debris, Backward Analysis, Infrastructure, Formation Mechanism

This work was performed by University of Fukui under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 1
2. 平成 30 年度 採択課題 2
3. 令和元年度 採択課題 5
4. 令和 2 年度 採択課題 8
5. 令和 3 年度 採択課題 10

付録　成果報告書 13

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project 1
2. Accepted Proposal in FY2018 2
3. Accepted Proposal in FY2019 5
4. Accepted Proposal in FY2020 8
5. Accepted Proposal in FY2021 10

Appendix Result Report 13

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン（平成 26 年 6 月文部科学省）」等を踏まえ、平成 27 年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」（以下、「本事業」という。）を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」という。）では、平成 27 年に廃炉国際共同研究センター（以下、「CLADS」という。現：廃炉環境国際共同研究センター）を組織し、「東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所廃炉（以下、「1F 廃炉」という。）に係る研究開発を進めている。

また、平成 29 年 4 月に CLADS の中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後は CLADS を中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム（令和元年度より新設）に再編した。

2.　平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム	11 課題（若手研究 6 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム	6 課題
国際協力型廃炉研究プログラム	2 課題（日英共同研究）

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山﨑 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー加速器研究機構

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム　7 課題（若手研究 2 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム　4 課題
国際協力型廃炉研究プログラム　4 課題（日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題）
研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (～R2.3.31) 大曲 新矢 (R2.4.1～)	産業技術総合研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島 2･3 号機ペデスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 大輔	日立ＧＥニュークリア・エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (～R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1～)	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (～R3.3.31) 岡山大学 (R3.4.1～)

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (～R2.3.31) 竹下 健二 (R2.4.1～)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

4.　令和 2 年度 採択課題

令和 2 年度は、2 つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和 2 年 3 月 17 日～令和 2 年 5 月 14 日（課題解決型）
　　令和 2 年 5 月 13 日～令和 2 年 7 月 15 日（国際協力型）

課題数：10 課題
　課題解決型廃炉研究プログラム　　8 課題（若手研究 2 課題、一般研究 6 課題）
　国際協力型廃炉研究プログラム　　2 課題（日英共同研究）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。
その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

令和 2 年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム
【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れの調査	楊 会龍 （～R4.7.31） 村上 健太 （～R4.8.1）	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー加速器研究機構
α／β／γ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邉 豊	東北大学
β、γ、X 線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・航空技術研究所

5. 令和 3 年度 採択課題

令和 3 年度は、2 つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。
公募の概要は以下のとおりである。

公募期間：令和 3 年 3 月 16 日～令和 3 年 5 月 17 日（課題解決型）
令和 3 年 4 月 13 日～令和 3 年 7 月 1 日（国際協力型 日英共同研究）
令和 3 年 7 月 12 日～令和 3 年 8 月 18 日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題
課題解決型廃炉研究プログラム　8 課題
国際協力型廃炉研究プログラム　2 課題（日英）、2 課題（日露）

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英・日露共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。
その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和 3 年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データーベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学

課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究	人見 啓太朗	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価	中瀬 正彦	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (～R4.1.31) 三輪 修一郎 (R4.2.1～)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御	淺間 一	東京大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化	小原 徹	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和 3 年度の研究成果を取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化	宇埜 正美	福井大学

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録

成果報告書

This is a blank page.

令和３年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化

（契約番号　R03I137）

成果報告書

令和４年３月

国立大学法人福井大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人福井大学が実施した「燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化」の令和 3 年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

1. はじめに 1-1

2. 業務計画 2-1
2.1 全体計画 2-1
2.1.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析 2-1
2.1.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 2-1
2.1.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備 2-1
2.1.4 Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価 2-2
2.2 実施体制 2-3
2.3 令和 3 年度の成果の目標および業務の実施方法 2-5
2.3.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析 2-5
2.3.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 2-5
2.3.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備 2-6
2.3.4 Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価 2-6
2.3.5 研究推進 2-6

3. 実施内容および成果 3-1
3.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析 3-1
3.1.1 1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価 . 3-1
3.1.2 PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価 3-5
3.1.3 模擬物質の合成試験に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明 3-10
3.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 3-10
3.2.1 2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価 3-10
3.2.2 2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価 3-16
3.2.3 2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価 3-26
3.2.4 模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明. 3-49

3.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備 3-57
3.3.1 3 号機下部プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査 3-57
3.3.2 燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計 3-63
3.4 Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価 3-69
3.5 研究推進 3-69

4. 結言 4-1
4.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析 4-1
4.1.1 1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価 . 4-1

4.1.2　PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価 4-1
4.1.3　模擬物質の合成試験に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明 4-1
4.2　金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 4-1
4.2.1　2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価 . 4-1
4.2.2　2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価 4-2
4.2.3　2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価 4-2
4.2.4　模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明 4-2
4.3　デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備 4-2
4.3.1　3 号機プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査 4-2
4.3.2　燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計 4-3
4.4　Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価 4-3
4.5　研究推進 4-3

参考文献　..... 5-1

執筆者一覧

事業代表者

国立大学法人福井大学	教授	宇埜正美
	教授	有田裕二

委託先

国立大学法人大阪大学	准教授	大石佑治
国立大学法人東京工業大学	教授	小林能直
	助教	伊藤あゆみ
国立大学法人東北大学	教授	植田滋
	助教	岩間崇之

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

グループリーダー	永江勇二
研究職	佐藤拓未
研究職	下村健太
主査	須藤彩子

表一覧

表 3.1.2-1　観測試料の形状の特徴 3-6
表 3.2.2-1　2 時間保持した試料断面上の組成 3-23
表 3.2.2-2　4 時間保持した試料断面上の組成 3-24
表 3.2.3-1　試験条件 3-33
表 3.2.3-2　酸化物/金属反応試験組成および重量 3-33
表 3.2.3-3　酸化物/金属反応試験重量収支 3-33
表 3.2.3-4　各生成相の代表的な元素組成（EF0） 3-33
表 3.2.3-5　各生成相の代表的な元素組成（EF1） 3-34
表 3.2.3-6　各生成相の代表的な元素組成（EF2） 3-34
表 3.2.3-7　X 線回折で検出された相（EF1） 3-34
表 3.2.3-8　X 線回折で検出された相（EF2） 3-34
表 3.3.1-1　Fe-Fe_2O_3-ZrO_2 予備実験試料の組成 3-60
表 3.3.1-2　BSAF プロジェクトによる炉内燃料デブリ平均組成解析結果 3-60
表 3.3.2-1　Hong 等の報告例 3-63
表 3.3.2-2　ZrO_2 溶融試験条件 3-64
表 3.3.2-3　ZrO_2 単体での溶融試験結果 3-65
表 3.3.2-4　ZrO_2、HfO_2、SUS 同時溶融試験条件 3-66
表 3.3.2-5　ZrO_2、HfO_2、SUS 同時溶融試験結果 3-66
表 3.3.2-6　2-3 試料の構成相 3-67
表 3.3.2-7　ZrO_2、HfO_2、SUS 同時溶融試験結果 3-68
表 3.3.2-8　溶解結果のまとめ 3-68
表 3.3.2-9　原料粉末の見直し例 3-69

図一覧

図 3.1.1-1　ZrO_2、Fe_2O_3、Sb、Bi 関連の化学種の蒸気圧 3-1
図 3.1.1-2　ZrO_2 と Fe_2O_3 焼結体の XRD パターン 3-2
図 3.1.1-3　エアロゾル発生試験に用いた ZrO_2、Fe_2O_3、Sb、B 3-2
図 3.1.1-4　浮遊型レーザー加熱炉の概要 3-2
図 3.1.1-5　ノズルカバーへの導電性ガラスと Si ウエハ設置の様子 3-3
図 3.1.1-6　Si ウエハへの Bi 堆積の様子 3-3
図 3.1.1-7　堆積物の SEM 観察結果 3-4
図 3.1.1-8　ZrO_2 試料の SEM/EDX 分析 3-4
図 3.1.1-9　Sb と Bi 堆積物の XRD パターン 3-5
図 3.1.2-1　加熱炉（左図）および試料加熱時の様子（右図：およそ 1500 ℃時） 3-7
図 3.1.2-2　加熱に用いた試料 3-7
図 3.1.2-3　採取した噴出微粒子① 3-7
図 3.1.2-4　微粒子② 3-8
図 3.1.2-5　微粒子③ 3-8
図 3.1.2-6　塊状粒子① 3-8
図 3.1.2-7　塊状粒子② 3-8
図 3.1.2-8　凝固試料 3-8
図 3.2.1-1　下段試料設置領域における温度分布解析形状 3-14
図 3.2.1-2　実験体系および予備実験概要 3-15
図 3.2.2-1　乾燥空気およびアルゴン中での SUS316L の重量変化 3-21
図 3.2.2-2　アルゴン中での SUS316L の DTA 3-21
図 3.2.2-3　るつぼと試料ホルダー 3-22
図 3.2.2-4　2 時間加熱後の試料の断面 3-22
図 3.2.2-5　2 時間保持した試料の断面 3-23
図 3.2.2-6　4 時間保持した試料の断面 3-24
図 3.2.2-7　1450 ℃におけるステンレス鋼-B-C 系状態図 3-25
図 3.2.3-1　試験体模式図 3-35
図 3.2.3-2　MEISAN 試験装置への試料配置図 3-35
図 3.2.3-3　No.1:1200 ℃試験試料の断面観察写真 3-35
図 3.2.3-4　No.1:1200 ℃試験試料の SEM-EDS 分析結果 3-36
図 3.2.3-5　No.2-1:1300 ℃模擬金属デブリ-ステンレス材試験試料の試験後観察写真 .. 3-37
図 3.2.3-6　No.2-1:1300 ℃模擬金属デブリ-ステンレス材試験試料の SEM-EDS 分析結果 3-37
図 3.2.3-7　No.2-2:1200 ℃模擬金属デブリ-インコネル試験試料の試験後観察写真 3-38
図 3.2.3-8　No.2-2:1300 ℃模擬金属デブリ-インコネル材試験試料の SEM-EDS 分析結果 3-38
図 3.2.3-9　解析モデル 3-39
図 3.2.3-10　解析結果 3-39
図 3.2.3-11　試験体の模式図 3-40
図 3.2.3-12　集光加熱装置模式図 3-41
図 3.2.3-13　試料外観写真（EF0）および装荷イメージ 3-41

図 3.2.3-14　反応試験試料外観写真（EF0）..... 3-41
図 3.2.3-15　EF0 断面金相写真および元素分析領域 3-42
図 3.2.3-16　領域 EF0_1 と EF0_2 の二次電子像および元素分析結果..... 3-42
図 3.2.3-17　領域 EF0_3 と EF0_4 の二次電子像および元素分析結果..... 3-42
図 3.2.3-18　領域 EF0_5 と EF0_6 の二次電子像および元素分析結果..... 3-43
図 3.2.3-19　領域 EF0_7 の二次電子像および元素分析結果..... 3-43
図 3.2.3-20　酸化物/金属の広範囲での面分析結果（EF0）..... 3-43
図 3.2.3-21　反応試験中ビデオキャプチャ写真および反応試験後の外観写真（EF1）.... 3-44
図 3.2.3-22　EF1 断面金相写真および元素分析領域 3-44
図 3.2.3-23　領域 EF1_1 の二次電子像および元素分析結果..... 3-44
図 3.2.3-24　領域 EF1_2 と EF1_3 の二次電子像および元素分析結果..... 3-45
図 3.2.3-25　領域 EF1_4 と EF1_5 の二次電子像および元素分析結果..... 3-45
図 3.2.3-26　領域 EF1_6 と EF1_7 の二次電子像および元素分析結果..... 3-45
図 3.2.3-27　試料装荷イメージ、反応試験中ビデオキャプチャ写真および反応試験後の外観写真（EF2）..... 3-46
図 3.2.3-28　EF2 断面金相写真および元素分析領域 3-46
図 3.2.3-29　領域 EF2_1 の二次電子像および元素分析結果..... 3-46
図 3.2.3-30　領域 EF2_2 と EF2_3 の二次電子像および元素分析結果..... 3-47
図 3.2.3-31　EF2_4 の二次電子像および元素分析結果 3-47
図 3.2.3-32　試料断面の X 線回折プロファイル（EF1）..... 3-48
図 3.2.3-33　試料断面の X 線回折プロファイル（EF2）..... 3-48
図 3.2.4-1　2 号機事故シナリオ 3-53
図 3.2.4-2　3 号機事故シナリオ 3-53
図 3.2.4-3　2 号機格納容器内　CRD 周辺..... 3-54
図 3.2.4-4　2 号機格納容器内　グレーチング部 3-54
図 3.2.4-5　2 号機格納容器内　ペデスタル底部 3-55
図 3.2.4-6　3 号機格納容器内　CRD ハウジング支持金具ハンガーロッド..... 3-55
図 3.2.4-7　3 号機格納容器内　プラットフォーム周辺 3-56
図 3.2.4-8　3 号機格納容器内　ペデスタル堆積物 3-56
図 3.3.1-1　コールドクルーシブル装置を用いた予備実験..... 3-61
図 3.3.1-2　本試験組成における平衡相割合の温度依存性..... 3-62
図 3.3.2-1　CCIM 炉内構成① 3-64
図 3.3.2-2　2-3 試料のマクロ観察結果 3-66
図 3.3.2-3　分散物近傍（左）とメタルマトリックス部(右)の SEM 観察結果..... 3-66
図 3.3.2-4　CCIM 炉内構成② 3-67
図 3.3.2-5　3-1 試料の断面観察結果 3-68
図 3.3.2-6　3-1 試料の表面観察結果 3-68

略語一覧

SEM　：Scanning Electron Microscope　走査型電子顕微鏡
EDX　：Energy dispersive X-ray spectroscopy　エネルギー分散型 X 線分析
XRD　：X-ray Diffraction X 線回析
1F　：東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所

概略

本研究では、格納容器内部調査等の現場情報、燃料デブリ周辺物質の分析データを参照した模擬実験を行い、号機・領域ごとに、燃料デブリの溶融・凝固メカニズム、デブリ形成プロセスを逆推定し、再現されうる事故条件を検証・評価する。評価結果をこれまで得られている知見と照し合せ、燃料デブリデータベースを高度化する。また、燃料デブリの堆積状態の逆推定から燃料デブリ分析の課題であるサンプル代表性に係る知見の取得を試みる。さらに、燃料デブリ取出しにおいて合理的に排除したい発生確率の低いリスクについて検証試験を行い、このようなリスクが発生する化学条件が、どの程度蓋然をもって発生したのかを調査する。これらの検討結果を、本研究の実施者と事故進展解析専門家で共有し、燃料デブリ分析データ活用と、デブリ取出し設計の合理化・効率化に向けた知見を整理することを目的に実施している。

以下に、3 カ年計画の 1 年目である令和 3 年度の業務実績を述べる。

(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析

① 1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価

（再委託先：国立大学法人大阪大学（以下、「大阪大学」と略す。））

エアロゾル生成と捕集のための技術を確立することを目標とした。比較的蒸気圧が高くエアロゾルが容易に生じると思われる ZrO_2 や Fe_2O_3 を試料として用い、浮遊型レーザー加熱炉で加熱溶融させることで実際にエアロゾルを発生させた。エアロゾル捕集方法について検討し、効率的にエアロゾルを捕集するための方法を決定して実際にエアロゾルを捕集した。ZrO_2 と Fe_2O_3 の焼結体を作製し、エアロゾル発生試験を行った。また、ZrO_2 や Fe_2O_3 よりも蒸気圧の高い Sb、Bi についても同様にエアロゾル発生試験を行った。浮遊型レーザー加熱炉に Si ウエハや導電性ガラスを設置し、エアロゾルを堆積させた。これにより、エアロゾルの捕集が可能であることを確認した。

② PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価

（国立大学法人福井大学（以下、「福井大学」と略す。））

ウラン粒子合成のために試料を 3000 ℃以上の温度に加熱できるように装置を改造し、模擬試料の作製を行った。大電流直流電源を整備し、タングステンパイプに詰めた UO_2 の加熱試験を実施し溶融凝固サンプルを作製し、1 μm 程度の粒子の生成が認められた。また、これまでに得られている UO_2 粒子の分析結果をまとめ、令和 4 年度以降の $(U,Zr,O)O_2$ 模擬デブリ合成条件をまとめた。1F 試料評価委員会で紹介された分析結果、1F 事故進展基盤研究に関わる分科会で報告された 4 つの凝固パスフローの考え方等に基づき、サンプリングの分析より得られた U:Zr:Fe 比に該当する擬二元系状態図上において、同定された相より得られる Mole fraction of oxygen（以下、「MFO」と略す。）線上の 1300 ℃前後の固相のみが存在する領域の化合物を出発物質とし、不活性雰囲気で冷却速度を変えて反応試験を行うこととした。

③ 模擬物質の合成試験に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明

（再委託先：大阪大学、福井大学）

項目(1)①および②の令和 3 年度の成果をもとに、酸化物デブリの形成過程の解明のための試験条件について検討した。令和 3 年度はそれぞれの実験条件について議論するとともに実験に必要な UO_2 の確保を行った。

(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

① 2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価

（再委託先：国立大学法人東京工業大学（以下、「東京工業大学」と略す。））

炉心崩落時の非平衡溶融凝固反応を模擬する実験体系を構築し、2、3 号機炉内金属デブリの材料学的性質を評価するための検証および分析方式を確立した。そのために、カーボン発熱体を用いた電気抵抗炉を改良し、高温（～2100 ℃）で溶融させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させたのち、形成組織を金属学的に分析し試験条件との相関を評価した。制御棒材などの金属物質が炉内下部構造材との反応・凝固挙動を把握するために、上チャンバーに金属物質を溶融できる発熱体およびるつぼホルダーを設置し、下チャンバーにその溶融金属と反応させるステンレス板材と受け皿を設置し、高温融体と低温固体金属を反応させるための非平衡溶融凝固反応試験炉を構築した。当該実験装置の温度分布測定および予備試験として Fe/Zr 溶融落下試験を実施した。反応後試料分析から、Fe-ステンレスでは伝熱のみ、Zr-ステンレスでは伝熱・反応の双方が起こることを確認した。

② 2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価

（再委託先：国立大学法人東北大学（以下「東北大学」と略す。））

ステンレス融体の組成の変化に及ぼす固体構造物の接触状態と温度、雰囲気の影響を評価するために、溶融ステンレスと B_4C、ジルカロイの接触による成分元素移行挙動を速度論的に解析するための試験条件を決定した。まず、反応試験の準備と、反応条件設定のために TG-DTA によるステンレス鋼加熱の予備試験を行い、温度域および雰囲気などの試験条件の概略を決定した。さらに、試験炉の整備およびジルコニア飽和下における B_4C と溶融ステンレス鋼の接触による反応を解析するための予備試験を行い、試験方法および解析方法の確立を行った。以上より令和 4 年度以降の試験条件を決定した。

③ 2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価

（連携先：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」と略す。））

ステンレス鋼とジルコニウム混合物の、各種圧力容器部材や溶接部材との反応速度の違いに関わる予備試験データを取得した。また、原子力機構で取得した不活性ガス中での圧力容器下部破損挙動の実験解析が可能であることを示した。さらに、水蒸気雰囲気での圧力容器からの溶融物流出挙動に関わる試験体系を構築した。ステンレスとジルコニウム混合物が先行して溶融し、ウランと反応して溶融・凝固挙動を把握するための試験条件を提示した。

金属物質（ステンレス鋼とジルコニウム混合物）と、圧力容器部材や溶接部材（ステンレス鋼やニッケル合金）との反応予備試験により、材質による反応速度の違いに関わる知見を得た。また、流体解析ソフトウエア（Ansys Fluent）により、従来試験の温度分布を表現できることを確認した。さらに、水蒸気が圧力容器下部破損に与える影響を、試験的に評価するための試験体系を構築した。ウラン酸化物と金属物質（ステンレス鋼とジルコニウム混合物、ステンレス鋼）との反応予備試験により、材質による反応速度の違いに関わる知見を得た。

④ 模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明

（再委託先：東北大学、東京工業大学、連携先：原子力機構）

項目(2)①、②、③の結果をもとにして、金属デブリ形成メカニズムおよび下部プレナム破損メカニズムの解明に向けての研究計画を検討した。シビアアクシデント解析コード（以下、「SA コード」と略す。）による炉内燃料デブリ分布に関わる BSAF-1 報告書（OECD/NEA）や、現状の事故進展の最確シナリオを参照し、令和 4 年度から実施する、下部プレナムにおける金属物質の移行挙動、および金属物質が関係する圧力容器下部の破損挙動に関わる試験方針を立案した。

(3) デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

① 3 号機下部プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査

（再委託先：東京工業大学）

コールドクルーシブルによる半溶融酸化物デブリの模擬物質作製および評価方法を確立した。そのために、酸化物と金属の混合物を融点に到達しない温度域で保持し固液二相状態を呈する模擬デブリを作製し金属組織と温度履歴の相関を評価した。固液二相状態を放射温度計で温度制御する方法を確立するために $Fe-Fe_2O_3-ZrO_2$ 混合物を用いた予備実験を実施し、1)酸化物・金属の混合物を溶融し、2)出力を下げて固液二相状態を作製し、3)ステンレス棒を上部から挿入し、4)一定時間保持した後、出力を落として凝固させる、という方法によって模擬物質を作製できることを確認した。試験後試料切断面の観察および蛍光 X 線分析から、ステンレス鋼を溶融した金属領域とジルコニウムを含む酸化物領域、鉄・ジルコニウムからなる重い金属領域を確認した。試験温度における平衡組成（解析値）に概ね整合する混合状態を得ることができた。

② 燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計（福井大学）

数グラムの UO_2 を含む多様な模擬燃料デブリの合成と特性評価ができる Cold Crucible Induction Melting（以下、「CCIM」と略す。）装置の設計のために、UO_2 の模擬として HfO_2 を用いた溶融・凝固試験を外注し、酸化物が溶融する前に蒸発してしまうことなく同時溶融が可能なことを確認した。その結果、SUS を主体とする溶湯生成が可能であることがわかり、SUS 溶湯と直接接する酸化物の溶解の可能性が示された。挿入する全ての酸化物を溶解のためには、SUS とジルコニウムを主体とする溶湯を生成させ、その後時間をかけて HfO_2 を溶解させる方法が提案された。

(4) Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、連携先：原子力機構）

本研究実施者による項目(1)～(3)で得られた知見に基づく号機・領域ごとの事故進展シナリオと燃料デブリ性状推定結果に加え、原子力機構、東京電力ホールディングス株式会社（以下、「東電」と略す。）、必要に応じてプラントメーカー、解析研究機関等がそれぞれアップデートされた知見を持ち寄って、号機ごとのデブリ特性、形成メカニズムの評価を行うとともに、さらなる高精度化のための今後の試験条件を検討した。令和 3 年 11 月 18 日に開催された第 1 回 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会、令和 4 年 3 月 2 日に開催された第 2 回 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会[1]、および令和 3 年 11 月 19 日に開催された 1F 試料評価委員会などで、本英知事業関係者に加え、他の英知事業や CLADS、東電、早稲田大学などと、SA コードによる事故進展シナリオやサンプル分析の結果に基づいたウラン粒子形成や圧力容器下部破損挙動に関わる知見をもとに本研究の試験条件について議論した。CLADS のプロジェクトで提案された 4 つの凝固パスフローの考え方等をふまえ模擬燃料デブリの組成を決定することとした。また、SA コードからでは推定できないことがあり、材料科学的な知見を取り入れることが重要との認識を共有した。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」と略す。）等との連携を密にして研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。令和 3 年 11 月 11 日に第 1 回目の研究推進会議、令和 4 年 3 月 30 日に第 2 回目の研究推進会議をいずれも CLADS、早稲田大学および東電の事故進展挙動解析の専門家も加えて本事業の試験条件等を議論した。

以上、3 カ年計画の 1 年目である令和 3 年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

1. はじめに

燃料デブリ取出しに向け、燃料デブリ物量、広がり、諸特性・物性、線量・発熱、再臨界性評価や計量管理・保障措置に係る項目、取扱い安全に係る項目などを把握する必要がある。これまでに、TMI-2 事故を参照した PWR の典型的な事故条件で形成される典型的な燃料デブリを参照して、燃料デブリデータベースが整備され、これに基づいて各種設計・検討が進められている。

他方、最近の 1F 内部調査や事故進展解析の進捗により、1F では、PWR 典型的事故条件に比べ相当に多様で複雑に燃料デブリが堆積していることが明らかになってきている。このような多様性・複雑性を、如何に合理的・効果的に燃料デブリデータベースに組込み、燃料デブリ取出し設計に反映・活用するのかが、喫緊課題となっている。

さらに、燃料デブリ取出しに向けて必要な項目のいくつか（例：再臨界性評価で必要となる核物質成分や中性子吸収材成分のマクロな分布、等）は、燃料デブリサンプルの分析データを積み上げるだけでは十分に評価することができない。このような項目については、事故進展途中の化学環境（最高到達温度、冷却速度、酸化度、等）を推定し、そこからデブリ形成メカニズムを検討することで、燃料デブリ分析から直接得られる知見を拡充・補完・検証しながらデブリ形成条件を精緻化していく必要があると考えられる。特に燃料デブリ取出しの初期（試験的な燃料デブリ取出し～段階的な燃料デブリ取出し量の拡大）においては、このような『1F 事故科学捜査』とも言うべき手法を具体的に確立する必要がある。

これまでに、『1F 事故科学捜査』の観点では、プラントデータ、内部観察結果、燃料デブリ周辺物質の分析等を参照したシビアアクシデント解析やデブリ伝熱解析（Forward Analysis）により、事故進展中のマクロなデブリ熱状態の変化が号機ごとに推定されている。しかし、これらの解析結果を、燃料デブリの取出しで必要となる上述の諸項目の高精度化に反映するには、デブリの溶融・凝固時の詳細な特性や状態の変化について、主に材料科学的な手法で理解を補強する必要がある。

そこで本研究では、格納容器内部調査などの現場情報、燃料デブリ周辺物質の分析データを参照した模擬実験を行い、号機・領域ごとに、燃料デブリの溶融・凝固メカニズム、デブリ形成プロセスを逆推定し、そのような堆積状態、周辺物質の物理化学的な特性が再現されうる事故条件を検証・評価する（Backward Analysis）。評価結果を Forward Analysis で得られた知見と照し合せ、燃料デブリデータベースを高度化する。

また、事故過程でどのような炉心物質の塊がどの程度の物量で溶融して存在していたのかを逆推定することで、燃料デブリ分析で大きな課題となっているサンプル代表性に係る知見の取得を試みる。

さらに、燃料デブリ取出しにおいて合理的に排除したい発生確率の低いリスク（例：燃料デブリ中の活性金属の残留、等）について検証試験を行い、1F 事故進展シナリオにおいて、このようなリスクが発生する化学条件が、どの程度蓋然をもって発生したのかしなかったのかを調査する。

これらの検討結果を、本研究の実施者と事故進展解析専門家で共有し、燃料デブリ分析データ活用と、デブリ取出し設計の合理化・効率化に向けた知見を整理する。

2. 業務計画

2.1 全体計画

以下の要素課題について、本研究で取り組む Backward Analysis の結果をとりまとめる。本研究成果と既往の事故進展解析の結果（Forward Analysis）を照し合せ、号機・領域ごとの事故時化学環境の変化と、そこから予測される燃料デブリ形成プロセスを評価し、燃料デブリデータベースに組込むための知見を整備する。知見の整備にあたっては、Forward Analysis の検討結果を熟知した専門家を交えた専門家コアチームによる意見交換の結果を反映する。

2.1.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析

格納容器内あるいは建屋内の様々な場所で得られた U 含有粒子中では、号機・領域ごとに異なった化学状態が観測されている。これまでの 1F サンプル中で検出されている様々な U 含有粒子の合成を試み、その形成条件（溶融・凝固条件、最高到達温度、酸化度、等）の範囲を明らかにするとともに、試験で得られた形成条件を事故進展解析にフィードバックし、U 含有粒子が形成された事故過程の推定、および事故進展解析による事故時化学環境の推定結果の妥当性を検討する。

2.1.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

2、3 号機については、最近の事故進展解析により、PWR 典型事故条件（圧力容器下部プレナムで酸化物デブリと金属デブリが完全に溶融した後、溶融物が圧力容器からペデスタルに短時間で溶落）と異なり、最高到達温度が典型条件より数百℃低い評価結果が得られている。2、3 号機では、圧力容器破損・デブリ堆積状態の違い、ひいては燃料デブリ特性の違いには、金属デブリの溶融、酸化物デブリの半溶融、それらの凝固のメカニズムが大きく影響していると考えられる。事故進展解析と 1F サンプル分析結果に基づいて、従来研究よりも 1F での現実に近い模擬金属デブリを合成し主要な物性を測定するとともに、下部プレナム試験体の破損再現試験を実施し金属デブリによる局所破損モードを解明する。併せて、模擬金属デブリの水蒸気雰囲気中での凝固時酸化・偏析や模擬金属デブリ中への U 金属含有条件に関するデータを取得する。これらと事故進展解析結果を照し合せ、2 号機ペデスタルからの試験的燃料デブリ取出しに向けて、金属デブリ特性（偏析条件、U 金属残留可能性、等）に関する知見を提示する。また、金属デブリの特性を明確化することで、2 号機ペデスタルでの金属デブリによるコンクリート腐食の程度に係る検討を行う。さらに、3 号機での下部プレナム事故条件を模して、金属デブリと酸化物デブリの溶融・凝固進展に関する検証試験を実施し、3 号機ペデスタルデブリで懸念されている諸物性の偏在に係る知見を取得する。

2.1.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

1F では、3 号機で酸化物デブリが溶融途中から徐冷された可能性が高いなど、非平衡状態で生成された非均一性の高い燃料デブリが多く形成されていると推定される。海外では kg オーダー以上の U を含む大型試験体を用いた溶融・凝固試験においてこのような模擬デブリを得ることができるが、1F 事故条件を反映し、より詳細で現実に近い燃料デブリの性状を把握

し、近い将来に予定されている実デブリ分析の結果を補完していくには、国内に、数 g 規模の U を用いて、きめ細かい実験条件での模擬デブリを合成して検証試験を行う試験フィールドを整備することが必要である。そのためには、U を含む酸化物試料をその溶融温度以上まで加熱し、徐冷あるいは水中への急冷等様々な条件で冷却できる装置が必要である。現在、国内ではそのような装置を所有する核燃料物質使用施設はない。そこで、海外の試験施設を利用して、非平衡状態での模擬デブリ合成とその性状把握を行うことで、段階的デブリ取り出しにおいて重要となる非均質燃料デブリの特性把握に係る知見を得る。さらに、国内で数 g の U 酸化物試料を溶融・凝固できる装置の設計・製造に向けて、国内の CCIM メーカーに UO_2（融点：2800 ℃）の模擬として HfO_2（融点：2758 ℃）を用いた燃料、被覆管および構造材の同時溶融試験を委託する。ここでは、CCIM を用いて金属とそれより融点の高い酸化物を同時に溶融させようとした場合、先に溶融した金属中に未溶融の酸化物が沈みこみ、投入したエネルギーが表面の金属のみを加熱し、酸化物が溶融する前に蒸発してしまうという技術課題を解決し、次の研究フェーズで、国内に実用性の高い模擬酸化物デブリの研究フィールドが導入できるようにする。

2.1.4　Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価

上記実施項目①～③で得られた知見に基づき、核燃料研究の専門家と事故進展挙動解析の専門家の連携による専門家コアチームを設け、号機・領域ごとの事故進展シナリオと燃料デブリ性状推定の高精度化を行う。得られた結果は、燃料デブリ基盤データベース、debrisWiki に格納可能なデータとして整備し本事業成果が公開された後に廃炉事業者や他の英知事業実施者などが閲覧できるようにする。

2.2　実施体制

課題全体の取りまとめ：宇埜正美　30%

(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析
① 1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価（大阪大学）

- 研究責任者：大石佑治　10%　レーザー加熱炉整備、実験条件検討
- 学生 A　実験、分析

(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析
② PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価

- 研究責任者：宇埜正美　30%　FCC 型 UO_2 共存相の生成条件の把握
- 有田裕二　10%　溶融燃料急冷時の粒子組織観察
- 福元謙一　10%　模擬燃料デブリの化学組成分析と構造同定による微細組織評価

(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析
③ 模擬物質の合成試験の基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明

- 福井大学
- 宇埜正美　30%
- 有田裕二 10%
- 福元謙一　10%
- 大阪大学
- 大石佑治　10%

(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価
① 2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価（東京工業大学）

- 研究責任者：小林能直　10%
- 伊藤あゆみ　20%　非平衡反応実験装置整備実験条件検討
- 学生 A　実験、分析

(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価
② 2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価（東北大学）

- 研究責任者：植田滋　10%
- 岩間崇之　10%
- 学生 B

(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価
③ 2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価（原子力機構（連携機関））

- 原子力機構事業責任者：永江勇二
- 研究責任者：佐藤拓未　10%　水蒸気雰囲気での中型試験シミュレーション
- 下村健太　10%　水蒸気雰囲気での大型試験、シミュレーション
- 須藤彩子　5%
- 博士研究員 A　ウラン試験、分析評価

実施体制（体制図）つづき

(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価
③ 模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明
（東北大学、東京工業大学、原子力機構）

東北大学
- 小林能直　10%
- 伊藤あゆみ　20%

原子力機構
- 永江勇二　10%
- 佐藤拓未　10%
- 下村健太　10%
- 須藤彩子　5%

(3) デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備
① 3 号機下部プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査（東京工業大学）

- 研究責任者：小林能直　10%
- 伊藤あゆみ　5%
  - 実験条件検討
  - 試験立ち合い
- 外注（CVR）
  - コールドクルーシブル整備
  - 実験、分析

(3) デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備
② 燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計（福井大学・宇埜）

- 研究責任者：宇埜正美　30%
- 外注（シンフォニア）
  - 模擬溶融試験

(4) Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、原子力機構（連携機関））

福井大学
- 研究責任者：宇埜正美　30%
- 有田裕二　10%
- 福元謙一　10%

大阪大学
- 大石佑治　10%

東京工業大学
- 小林能直　10%
- 伊藤あゆみ　20%

東北大学
- 植田滋　10%
- 岩間崇之　10%

原子力機構
- 永江勇二　10%
- 佐藤拓未　10%
- 下村健太　10%
- 須藤彩子　5%

2.3　令和 3 年度の成果の目標および業務の実施方法

2.3.1　酸化物デブリ化学状態の逆解析

(1) 1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価
（再委託先：大阪大学）

エアロゾル生成と捕集のための技術を確立することを目標とする。比較的蒸気圧が高くエアロゾルが容易に生じると思われる ZrO_2 や Fe_2O_3 を試料として用い、浮遊型レーザー加熱炉で加熱溶融させることで実際にエアロゾルを発生させる。エアロゾル捕集方法について検討し、効率的にエアロゾルを捕集するための方法を決定して実際にエアロゾルを捕集する。

(2) PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価（福井大学）

ウラン粒子合成のために試料を 3000 ℃以上の温度に加熱できるように装置を改造し、模擬試料の作製を行う。これまでに得られている UO_2 粒子の分析結果をまとめ令和 4 年度以降の $(U,Zr,Fe)O_2$ 模擬デブリ合成条件をまとめる。

(3) 模擬物質の合成試験に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明
（再委託先：大阪大学、福井大学）

項目(1)および(2)の令和 3 年度の成果をもとに、酸化物デブリの形成過程の解明のための試験条件について検討する。

2.3.2　金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

(1) 2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価
（再委託先：東京工業大学）

炉心崩落時の非平衡溶融凝固反応を模擬する実験体系を構築し、2、3 号機炉内金属デブリの材料学的性質を評価するための検証および分析方式を確立する。そのために、カーボン発熱体を用いた電気抵抗炉を改良し、高温（～2100 ℃）で溶融させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させたのち、形成組織を金属学的に分析し試験条件との相関を評価する。

(2) 2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価
（再委託先：東北大学）

ステンレス融体の組成の変化に及ぼす固体構造物の接触状態と温度、雰囲気の影響を評価するために、溶融ステンレスと B_4C、ジルカロイの接触による成分元素移行挙動を速度論的に解析するための試験条件を決定する。

(3) 2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価（連携先：原子力機構）

ステンレス鋼とジルコニウム混合物の、各種圧力容器部材や溶接部材との反応速度の違いに関わる予備試験データを取得する。また、原子力機構で取得した不活性ガス中での圧力容器下部破損挙動の実験解析が可能であることを示す。さらに、水蒸気雰囲気での圧力容器からの溶融物流出挙動に関わる試験体系を構築する。ステンレスとジルコニウム混合物が先行して溶融し、ウランと反応して溶融・凝固挙動を把握するための試験条件を提示する。

(4) 模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明
（再委託先：東北大学、東京工業大学、連携先：原子力機構）

項目(1)～(3)の結果をもとにして金属デブリ形成メカニズムおよび下部プレナム破損メカニズムの解明に向けての研究計画を検討する。

2.3.3　デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

(1) 3 号機下部プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査
（再委託先：東京工業大学）

コールドクルーシブルによる半溶融酸化物デブリの模擬物質作製および評価方法を確立する。そのために、鉄酸化物・ジルコニウムと金属の混合物を融点に到達しない温度域で保持し固液二相状態を呈する模擬デブリを作製し金属組織と温度履歴の相関を評価する。

(2) 燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計（福井大学）

数グラムの UO_2 を含む多様な模擬燃料デブリの合成と特性評価ができる CCIM 装置の設計のために、UO_2 の模擬として HfO_2 を模擬物質とした溶融・凝固試験を外注し、酸化物が溶融する前に蒸発してしまうことなく同時溶融が可能なことを確認する。

2.3.4　Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、連携先：原子力機構）

本研究実施者による項目 2.3.1～2.3.3 で得られた知見に基づく号機・領域ごとの事故進展シナリオと燃料デブリ性状推定結果に加え、原子力機構、東電、必要に応じてプラントメーカー、解析研究機関等がそれぞれアップデートされた知見を持ち寄って、号機ごとのデブリ特性、形成メカニズムの評価を行うとともに、さらなる高精度化のための今後の試験条件を検討する。

2.3.5　研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

3.　実施内容および成果

3.1　酸化物デブリ化学状態の逆解析

3.1.1　1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価

(1) 緒言

エアロゾル生成と捕集のための技術を確立することを目標とし、ウラン含有エアロゾルの関連物質として ZrO_2、Fe_2O_3、比較的蒸気圧が高くエアロゾルが容易に生じると思われる物質である Sb、Bi を試料として用い、浮遊型レーザー加熱炉で加熱溶融させることで実際にエアロゾルを発生させた。また、エアロゾル捕集方法について検討し、効率的にエアロゾルを捕集するための方法を決定して実際にエアロゾルを捕集した。

Sb、Bi を試料として用いた理由は、これらの物質の蒸気圧が極めて高く、エアロゾル捕集実験が容易であるためである。図 3.1.1-1 に、Fact53 データベースを用いて計算しこれらの物質に関連した化学種の蒸気圧を示す。Sb と Bi は高い蒸気圧を有しており、容易に蒸発することが予想されることがわかる。

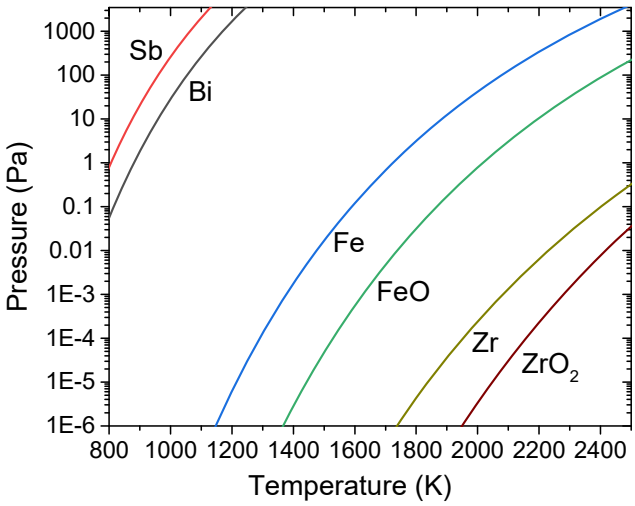


図 3.1.1-1　ZrO_2、Fe_2O_3、Sb、Bi 関連の化学種の蒸気圧

(2) 実験方法

ZrO_2 と Fe_2O_3 については焼結体を放電プラズマ焼結法によって作製した。出発物質は Fe_2O_3 粉末（純度 99.9%、株式会社高純度化学研究所）と ZrO_2 粉末（純度 99.99%、フルウチ化学株式会社）であり、これらを放電プラズマ焼結法によって焼結して ZrO_2 と Fe_2O_3 の焼結体を作製した。これらの焼結体の XRD（X-ray Diffraction）パターンを図 3.1.1-2 に示す。これらの焼結体を砕いて 2 mm 程度の大きさの小片を用い、エアロゾル発生試験を行った。また、ZrO_2 や Fe_2O_3 よりも蒸気圧の高い Sb と Bi についても同様にエアロゾル発生試験を行った。エアロゾル発生試験に用いた試料の外観を図 3.1.1-3 に示す。

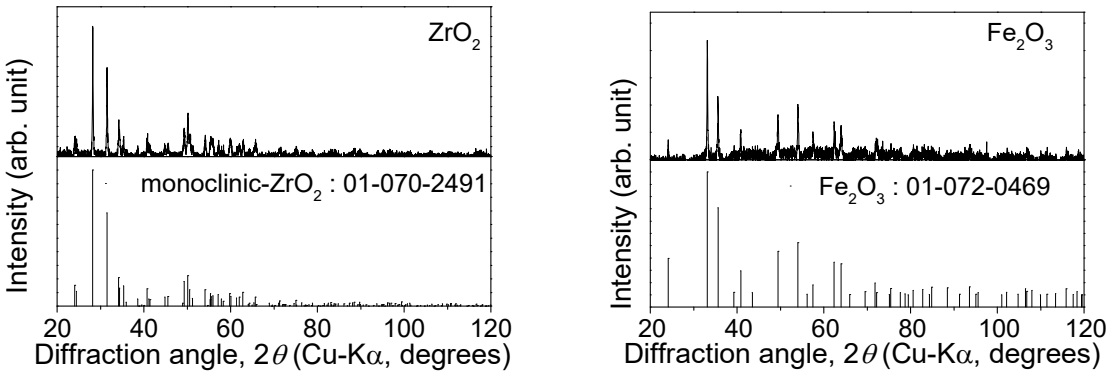


図 3.1.1-2　ZrO_2 と Fe_2O_3 焼結体の XRD パターン

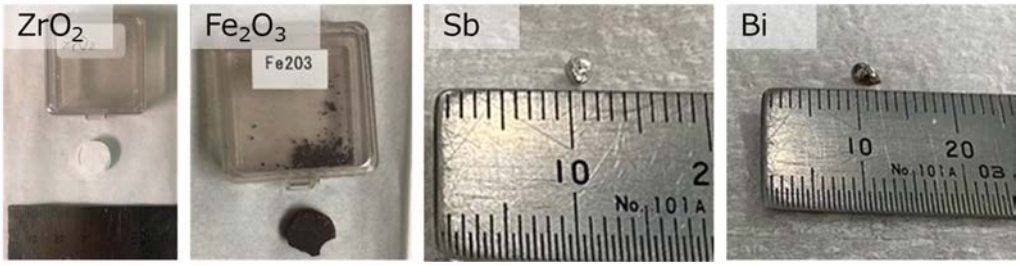


図 3.1.1-3　エアロゾル発生試験に用いた ZrO_2、Fe_2O_3、Sb、Bi

図 3.1.1-4 に、本研究で用いた浮遊型レーザー加熱炉の概要を示す。ガス浮遊法によってノズル上で試料を浮遊させ、レーザーを照射することで試料を加熱溶融させる。ノズルにはノズルカバーを設置し、ノズル上方に窓を設置してある。Bi と Sb の加熱にはファイバーレーザー（出力 100 W、波長 976 nm）を用い、Ar を用いて浮遊させた。Fe_2O_3 と ZrO_2 の加熱には CO_2 レーザー（出力 100 W、波長 10.6 μm）を用い、Fe_2O_3 は 30%O_2-Ar ガス、ZrO_2 は Ar ガスを用いて浮遊させた。浮遊溶融させる時間は約 1 分間とした。

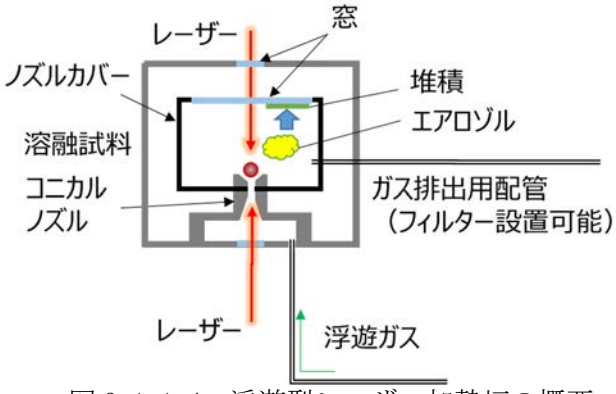


図 3.1.1-4　浮遊型レーザー加熱炉の概要

図 3.1.1-5 に、本研究で作製したノズルに設置するノズルカバーの概形を示す。ノズルカバーは気密性があり、ノズルカバー内部のガス置換が可能である。ノズルカバー上部にはサファイア等の窓が設置してある。発生したエアロゾルはこの窓に堆積する。また、エアロゾル捕集のためにガス排出用の配管中にフィルターを設置することも可能である。

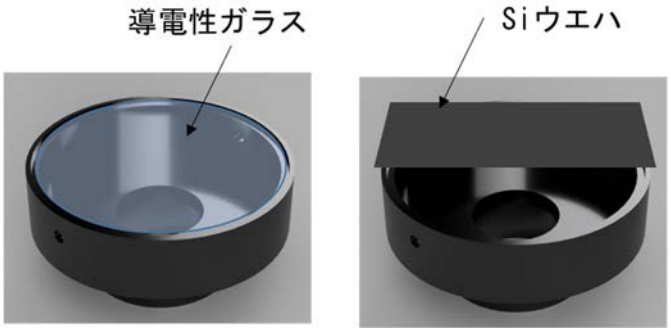


図 3.1.1-5　ノズルカバーへの導電性ガラスと Si ウエハ設置の様子

本研究では堆積したエアロゾルを SEM（Scanning Electron Microscope）/EDX（Energy dispersive X-ray spectroscopy）により分析するため、エアロゾルを導電性の基板に堆積させる必要がある。そこで、図 3.1.1-5 のように浮遊型レーザー加熱炉に設置したノズルカバーに導電性基板として導電性ガラスと Si ウエハを設置し、エアロゾルを堆積させてエアロゾルの捕集と分析を試みた。Bi と Sb の試験には Si ウエハを、Fe_2O_3 と ZrO_2 の試験には導電性ガラスを用いた。

(3) 結果

図 3.1.1-6 に、試験前の Si ウエハ設置の様子と、Bi を用いて試験した後の Si ウエハおよびサファイア窓の様子を示す。ノズルカバー上部の窓にエアロゾルが堆積していること、および Si ウエハにも堆積物が付着していることがわかる。

図 3.1.1-6　Si ウエハへの Bi 堆積の様子

図 3.1.1-7 に、Sb、Bi、Fe_2O_3、ZrO_2 の浮遊試験後の堆積物の SEM 観察画像を示す。Sb については直径 1 μm 以下の球状の粒子が確認できる。Bi については直径 100 nm 程度の微小な粒子が確認できる。一方、Fe_2O_3 と ZrO_2 については Sb と Bi に比べて堆積物の量は明らかに少なかった。また、Fe_2O_3 と ZrO_2 の粒子は確認できなかった。液相のまま基板に付着し、基板上で凝固したような組織が見られた。

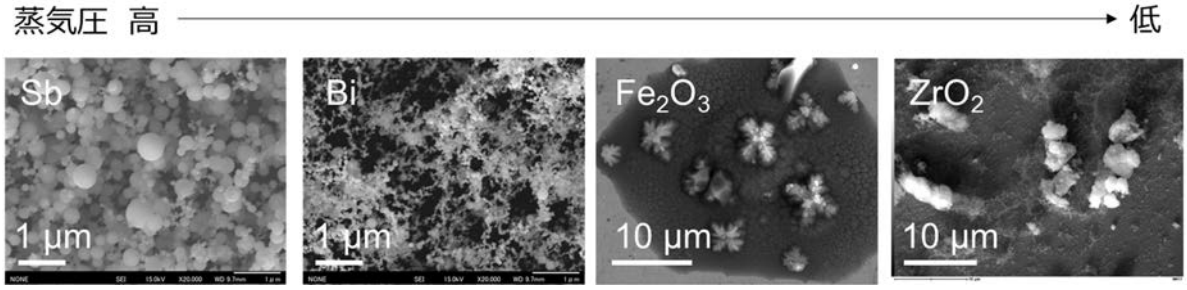


図 3.1.1-7　堆積物の SEM 観察結果

最も蒸気圧が低い ZrO_2 について、堆積物が ZrO_2 由来であるかを確かめるために EDX による元素分析を実施した。その結果を図 3.1.1-8 に示す。堆積物には Zr が含まれており、堆積物は ZrO_2 由来であることが明らかとなった。この結果は、本手法により ZrO_2 からのエアロゾルも発生可能であることを示している。

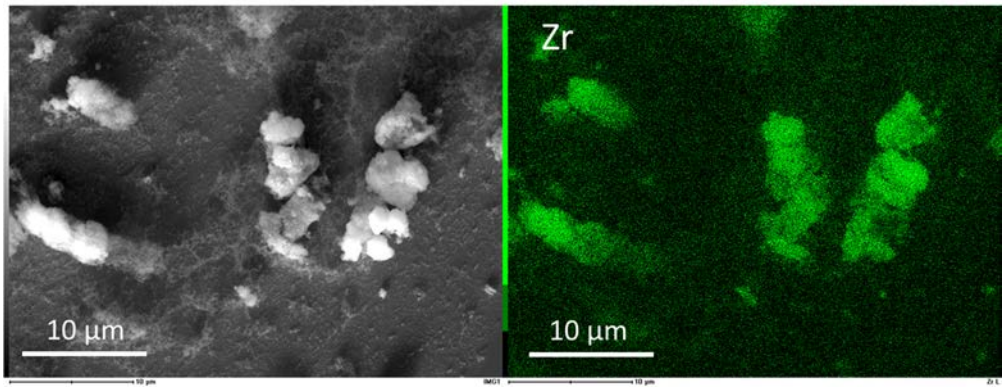


図 3.1.1-8　ZrO_2 試料の SEM/EDX 分析

堆積物の XRD 分析が可能かについて調べるために、Bi と Sb の堆積物の XRD 測定を行った。その結果を図 3.1.1-9 に示す。それぞれ、Sb と Bi に起因するピークが確認できた。これにより、堆積物の XRD 分析も実施可能であることが示された。なお、Fe_2O_3 と ZrO_2 については得られた堆積物の量が少なかったため、今回は XRD 分析を実施しなかった。

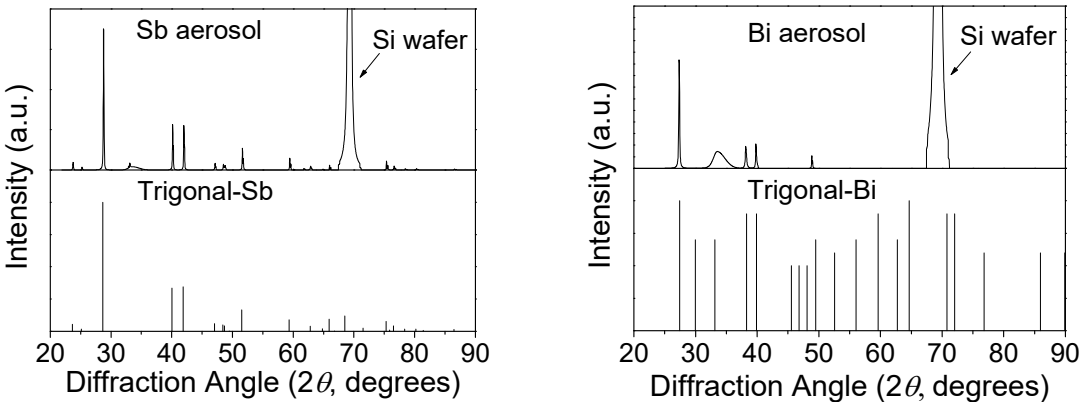


図 3.1.1-9　Sb と Bi 堆積物の XRD パターン

(4) まとめ

ZrO_2、Fe_2O_3、Sb、Bi を試料として用い、浮遊型レーザー加熱炉で加熱溶融させることで実際にエアロゾルを発生させた。発生させたエアロゾルを導電性ガラスおよび Si ウエハに堆積させることで捕集した。堆積物の SEM/EDX や XRD による分析を実施した。これにより、エアロゾルの捕集が可能であることを確認した。

3.1.2　PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価

3.1.2.1　はじめに

格納容器内あるいは建屋内の様々な場所で得られた U 含有粒子中では、号機・領域ごとに異なった化学状態が観測されている。U 含有粒子の化学状態の違いは、これまでの燃料デブリ研究や事故解析研究ではあまり取り上げられておらず、その形成条件も定かでない。

本実施項目では、これまでの 1F サンプル中で検出されている様々な U 含有粒子の合成を試み、その形成条件（溶融・凝固条件、最高到達温度、酸化度、等）の範囲を明らかにするとともに、試験で得られた形成条件を事故進展解析にフィードバックし、U 含有粒子が形成された事故過程の推定、および事故進展解析による事故時化学環境の推定結果の妥当性を検討する。

3.1.2.2　タングステンパイプを用いたウラン粒子合成

(1) ウラン粒子合成

ウラン酸化物粒子合成のため試料を 3000 ℃以上の温度に加熱するため、大電流直流電源（最大 20 V-260 A）を加熱炉に接続し電源の増強を実施した。真空ポンプで加熱炉内を真空にした状態で、セリアを添加した UO_2 を詰めたタングステンパイプに電流を流して加熱試験を実施した。加熱炉と試料加熱の様子を図 3.1.2-1 に示す。加熱に供した試料は図 3.1.2-2 に示すようにタングステンパイプに UO_2 などの試料を詰めた物を使用した。

3000 ℃以上で溶融した UO_2 がタングステンパイプの隙間から吹き出し凝固したサンプルを採取し電子顕微鏡にて作製サンプルの性状を観察した。観察されたウラン酸化物微粒子の様子を図 3.1.2-3 から図 3.1.2-8 に示す。溶けた UO_2 が壁で急速に冷却凝固したと思われるものや若干時間

をかけて凝固したと思われる物など何種類かの形態が観測された。表 3.1.2-1 に微粒子の形態と考えられる凝固様式をまとめた。特徴的な形態としては急速凝固によりひび割れて角張った粒子形状をとる物と、壁面に一様にくっついて固まった物、さらに凝固速度が遅く 1 μm 程度の粒状の粒子が生成したと推測される状態などが観測されている。今後、形成場所や温度条件、雰囲気などの条件を制御して試験を行い、粒子の形状・組成等との関連を調べるとともに、加熱容器内に残った試料の組成・形態を観察し、微粒子だけでなくデブリ本体の性状把握に資するデータをとりまとめていく。

表 3.1.2-1　観測試料の形状の特徴

試料	特徴	生成過程（想定）
微粒子①	1～10 μm 程度の角張った粒子	噴出時に溶けていない UO_2 部分が一緒に出てきた可能性。
微粒子②	数 μm 程度の長さを持つ直方体状粒子	塊状粒子①が細かく砕けたものの可能性。
微粒子③	表面がカリフラワー状の数 μm 程度の粒子	微粒子②などの上に蒸発もしくは溶融微粒子が付着しながら成長した可能性。
塊状粒子①	ひび割れした数十 μm 程度の塊	噴出した溶融物が外部壁面で固化した可能性。冷却時の収縮によってひび割れた可能性。
塊状粒子②	ひびがなく数十 μm 沖に筋のある塊	溶融物が固化の際にタングステンチューブに付着しある程度ゆっくり凝固した可能性。
凝固試料	塊状粒子②で、表面が平滑な状態(左側)から徐々に 1 μm 程度粒状の粒子が生成（右側）	凝固速度が異なり、ある程度早く凝固した部分は平滑な表面となり、比較的ゆっくり凝固した部分では粒成長が起こり 1 μm 程度の粒が先に固まり基板部分がその後一気に凝固した可能性。

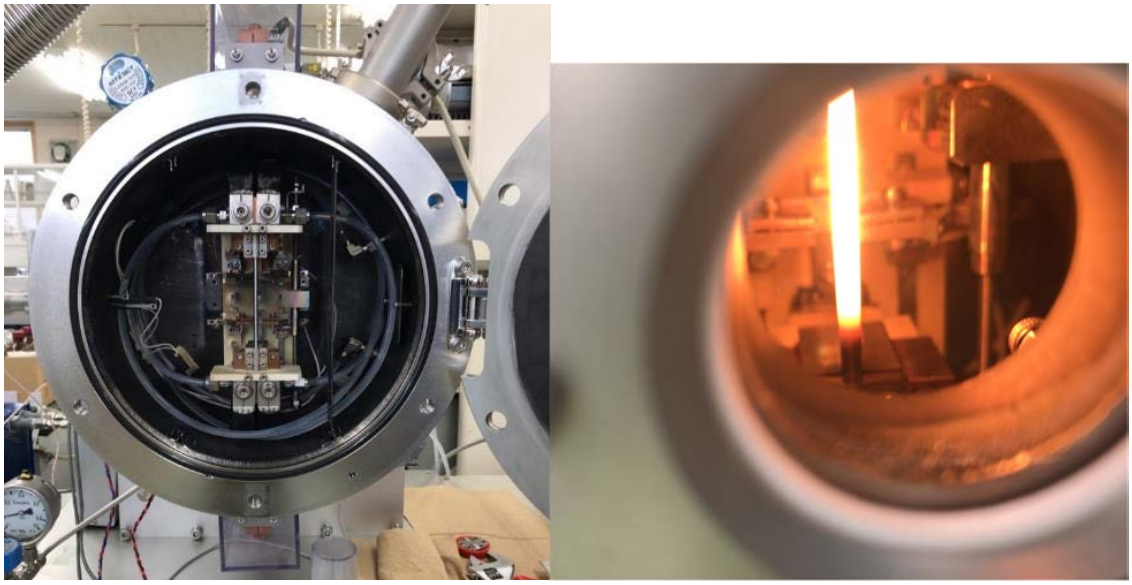


図 3.1.2-1　加熱炉（左図）および試料加熱時の様子（右図：およそ 1500 ℃時）

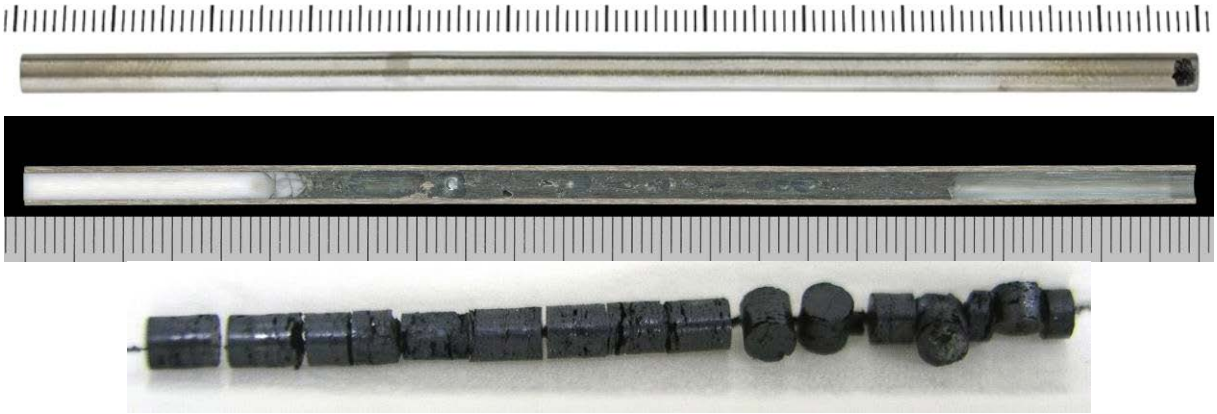


図 3.1.2-2　加熱に用いた試料（上：タングステンパイプ、中：アルミナを 2500 ℃で加熱溶融した際の断面、下：試料観察のために用いたセリア添加 UO_2 試料）

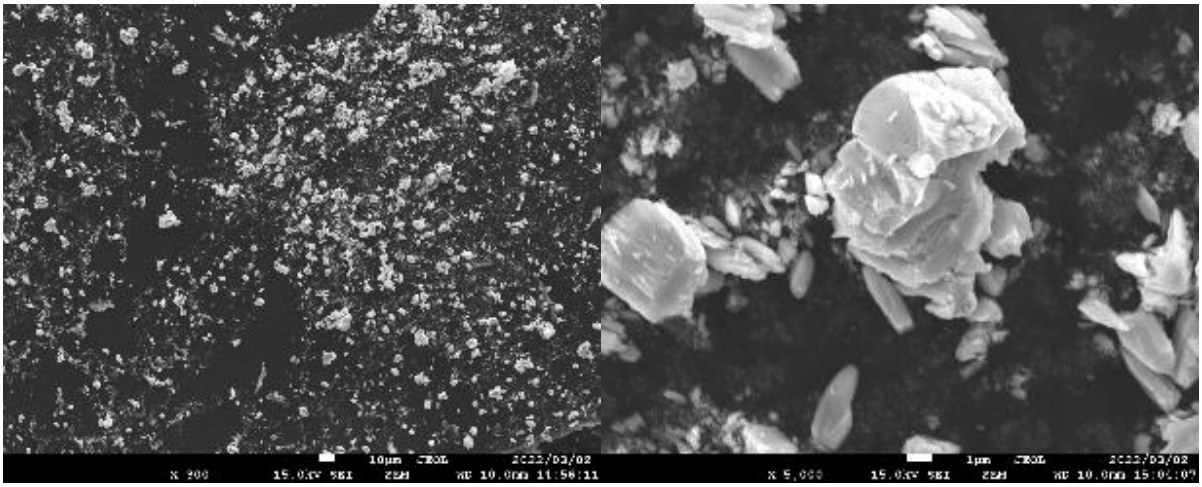


図 3.1.2-3　採取した噴出微粒子①（左：低倍率観察結果、右：拡大写真）

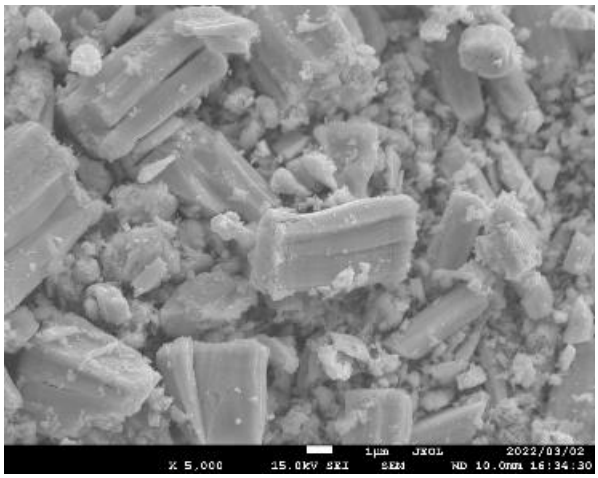


図 3.1.2-4　微粒子②

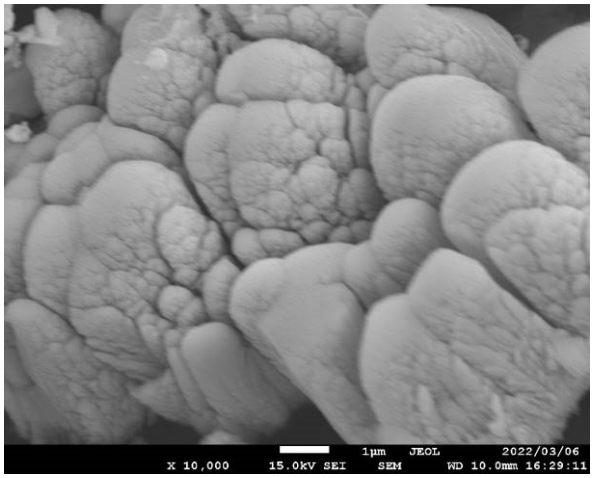


図 3.1.2-5　微粒子③

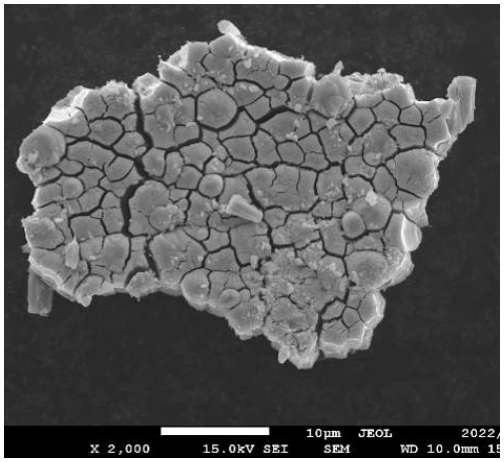


図 3.1.2-6　塊状粒子①

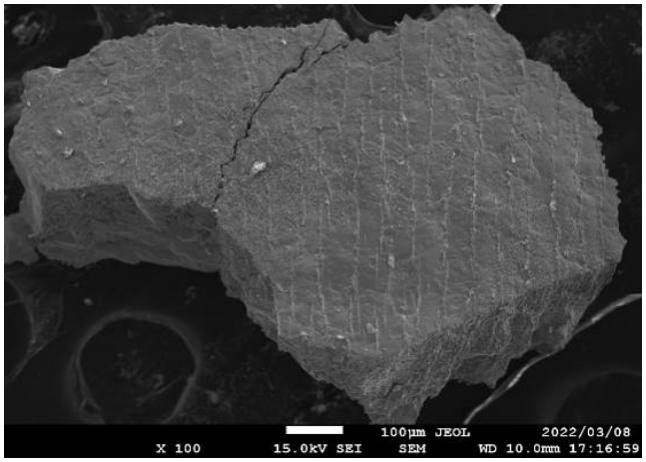
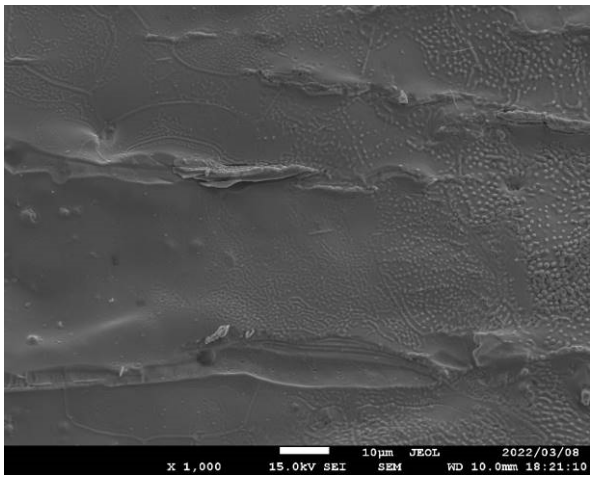


図 3.1.2-7　塊状粒子②



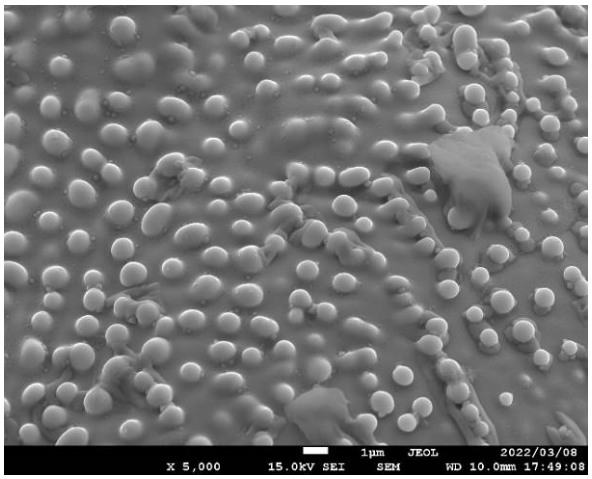


図 3.1.2-8　凝固試料（左：低倍率観察、右：粒状部分拡大）

(2) まとめ

今回の試験では、ウラン酸化物粒子が溶融し、凝固する過程で、形状の異なる微粒子が形成されることを明らかとした。今後の試験条件変えた試験により、1F 内でサンプリングされた微粒子サンプル形状やデブリ本体の生成過程への理解に資するデータが得られることが期待される。

3.1.2.3　非平衡状態を模擬した反応試験

これまでの 1F 試料評価委員会、1F 事故進展基盤研究に関わる分科会では技術研究組合国際廃炉研究開発機構（IRID）事業で得られた様々なサンプリングデータが報告されている。これに対して、UO_2ペレット、ジルカロイ被覆管およびその他の構造材を出発物質として、報告されている化合物・混合物を直接合成するのは困難である。なぜなら、詳細な温度や雰囲気条件が不明であるのに加えて、UO_2 が使え、UO_2 の溶融までを含む温度領域、雰囲気および冷却速度を自由に制御し、場合によっては物質の出入りを模擬できる装置が少なくとも現時点では存在しないからである。現に本研究でも、UO_2を試験する場合は 2000 ℃程度までの温度範囲、原則不活性雰囲気での実験と限定される。

これらサンプリングデータの多くは TEM による分析結果の場合であるが、金属元素の比は比較的正確であるが、O/M 比の不確かさは大きい。そこで、測定された金属元素の比を固定し、酸素含有量を横軸にとり、縦軸に温度をとった擬二元系状態図を作成し、そこにこれまでのサンプリング結果と照らし合わせることにより、酸素含有量の大小に応じた 4 つの固化パス（Solidification Path）で整理する考え方が提案されている。このような図を用い、室温でのサンプリングデータと対応する酸素濃度領域を高温にたどれば、高温での安定相を見つけ出すことができる。従ってこの状態図上で分析結果の示す酸素濃度で 1500～1000 ℃付近における固体相を出発物質として、不活性雰囲気下、途中相変化があるため、冷却速度をパラメータとし熱処理試験をすれば、サンプリングデータを模擬できる可能性は高い。一方で、炉内の最初の状態は、前述したようにUO_2ペレットの入ったジルカロイ被覆管とその周りの様々な構造材であるので、この状態から先ほどの擬二元系状態図上の 1500～1000 ℃の固相にたどり着くパスも考える必要がある。従って、本研究では、（UO_2 ペレット、ジルカロイ被覆管およびその他の構造材）からサンプリングデータにたどり着く試験方法として、以下の 2 つのルートを考える。

○ルート 1：

擬二元系状態図の 1500～1000 ℃における固相をまず合成しておいて、これを出発物質として、所定の酸素分圧、冷却速度をパラメータとして、反応試験を行い、得られた生成物を分析する。この場合、粉末混合物質によるバルク体の試験が主となる。この冷却速度が事故進展挙動解析にフィードバックされる。

○ルート 2：

上記の出発物質を UO_2、ジルカロイ、SUS から作製する。この場合はルート 1 より高温での反応試験となるため装置の関係上、不活性雰囲気に限定される場合もあるが、UO_2 と Zry（＋ZrO_2）＋SUS のある接触状態から上記出発物質の生成が認められれば良いので、バルクの試験である必要はなく、反応対試験等で部分的にでも良いので該当する物質の生成を試みる。反応条件（何と何が接触して、何度で反応したか）が事故進展挙動にフィードバックされる。これも装置の関係上、UO_2 や ZrO_2 の溶融温度まで達しない場合があるので、別途溶融物質を出発物質とする場合もある。

このような試験に加えて、熱力学的な説明が困難な次のようないくつかの現象を個別に確認する必要がある。

・UO_2 と SUS の接触による UO_2 の還元と溶融合金相の生成

・蛍石型(U,Zr,Fe)O_2 の生成

ⅰ　(U,Zr)O_2＋SUS から(U,Zr,Fe)O_2

ⅱ　U-Zr-Fe 合金の酸化

これまでに得られている UO_2 粒子の分析結果をまとめ、令和 4 年度以降の(U,Zr,Fe)O_2 模擬デブリ合成条件をまとめた。4 つの凝固パスフローの考え方等に基づき、サンプリングの分析より得られた U:Zr:Fe 比に該当する擬二元系状態図上において、同定された相より得られる MFO 線上の 1300 ℃前後の固相のみが存在する領域の化合物を出発物質とし、不活性雰囲気で冷却速度を変えて反応試験を行うこととした。

3.1.3　模擬物質の合成試験に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明

令和 3 年 11 月 11 日に第 1 回目の研究推進会議、3 月 30 日第 2 回目の研究推進会議をいずれも CLADS、早稲田大学および東電の事故進展挙動解析の専門家も加えて本研究の試験条件等を議論した。また実験に必要な UO_2 の確保を行った。

3.2　金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

3.2.1　2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価

(1) 目的

1F 2、3 号機では、圧力容器破損時の最高到達温度が従来の想定よりも数百℃低かったのではないかと推定されており、融点が高い酸化物系デブリよりも融点が低い金属系デブリの先行崩落・溶融の関与が疑われている。このため、下部プレナムへ先行的に崩落したと考えられる金属系デブリが形成される過程を理解することが重要な課題である。本実施項目では、炉心溶融進展で溶融金属が流下する過程における鋼材の溶損挙動に着目し、高温液体金属が低温ステンレス鋼に接触した場合の溶融凝固挙動を評価する実験を行う。令和 3 年度は実験装置の構築、予備実験による動作確認、本試験条件の策定を実施した。

(2) 実施内容

① 実験装置の構築

実験装置は、金属溶融部を上段、反応部を下段に配置した上下二段式電気抵抗炉に温度制御・測定部、雰囲気ガス系統、水冷系統から成る。上下二段式電気抵抗炉はステンレス製のチャンバーが中央部で取り外し可能となっており、試料の装荷を行う。上段にはカーボン製発熱体を設置し、最高温度 2100 ℃（常用温度 2000 ℃）が可能である。溶融金属試料は予め底面にφ8 mm の穴を開けたイットリア安定化ジルコニア（Yttria stabilized zirconia（以下、「YSZ」と略す。））製るつぼ（φ17-21×50 mm、8 mol%）、株式会社ニッカトー）に装荷し、さらにカーボン製試料ホルダーを電気抵抗炉中央部から上段チャンバーの所定位置に設置できるようにした。下段チャンバーにはアルミナ製断熱材を配置し反応領域を作製した。この際、後述する伝熱解析の結果を参考にして反応領域径を決定した。

電気抵抗炉への出力電圧は、発熱体から数センチ外側の温度をB熱電対（1700 ℃以下）で検知した値を参照値として用いて制御する。このため、試料が装荷される炉心中心部と制御温度には差が生じることになる。また、電気抵抗炉上段フタにはガラス窓が設置されており、二色放射温度計（株式会社チノー、IR-SAS）を用いて溶融させる試料表面温度を測定できるようにした。なお、溶融落下実験を行う前に、制御温度と炉内中心温度の対応関係を評価し、同じ条件における二色放射温度計による指示値が妥当であることを確認するための炉内温度分布測定を実施した。炉心温度を 1700 ℃以上に昇温する際は制御用熱電対を外側に引き抜いて出力を上昇させる。このため、引き抜き距離に対する炉心中心温度の対応を測定した。

炉下段には熱電対ポートを16対設置可能とし、下段に設置するステンレス板の温度測定を複数点にわたって実施可能とした。予備実験では、動作確認を目的として2点の温度測定を行った。

雰囲気ガスは入口ポートを上段上部に、出口ポートを下段下部に配置し、上段下部には真空置換するための排気ポートを設置した。予備実験はArガス（純度99.99%）に真空置換したのち、Arフロー（200 ml/min）で行った。

炉上段・下段ともに水冷ジャケット方式により放熱している。なお、本項目では下段に設置するステンレス試料の温度を変化させたい場合は、下段内部の断熱材設置体積を変化させて対応するが、それだけで不十分である場合は外部から加熱またはさらに冷却させる必要がある。このため、ヒーターを外部に設置できるように専用のポートを持たせた。

下段チャンバー正面下部には覗き窓が設置されており、下段試料領域の一部の様子を確認できるようにしている。覗き窓から溶融落下物の有無を確認する。

② 低温試料設置領域を決定するための伝熱解析

炉上段では最高温度2100 ℃まで昇温するが、この際の輻射伝熱によって下段温度が上昇する。この際、輻射面面積によって昇温程度が変化するため、下段試料設置領域として適切な径を決定するためにAnsys Fluent R20[2]を用いて伝熱計算を行った。図3.2.1-1に解析形状を示す。上面は溶融金属面で最高温度2100 ℃、上段試料装荷部（断熱面）、下段試料設置領域（断熱面）からなり、下段試料設置領域の径を120/160/200 mmとして下段上部温度の平衡到達温度を比較した。ここで、伝熱計算はエネルギー方程式に輻射モデル（S2Sモデル）を併用し定常解析を行った。空間離散化は二次精度風上差分法を用い、ソルバーの圧力-速度連成はCoupled法を採用した。物性値には、ジルコニウム、カーボン、アルミナの密度、比熱、熱伝導率および放射率をそれぞれ設定した。また、S2Sモデルは輻射に寄与する表面間の放射エネルギーを解析するが、この際に用いられる形態係数は Fluent によって作成されたメッシュ情報からソフトウェアによって自動計算されている[3]。

③ 鉄・ジルコニウムによる予備実験

上段試料に鉄またはジルコニウムを装荷して、構築した装置の動作確認、および、落下時の温度指示値や試料の反応状態との整合性を確認することを目的として溶融落下実験を行った。

溶融用の試料として、電解鉄・純ジルコニウム（株式会社ニラコ）をアーク溶解炉（大亜真空株式会社、ACM-S01）で溶解して、φ14 mmのボタン状合金を準備した。反応させるステンレス板は厚さ0.3 mmのSS薄板を100×80 mmに切断し、背面にR熱電対をZrO_2製スミセラムで接着し、下チャンバー試料部に装荷した。前述した手順によって炉内を昇温し、るつぼに装荷した合金を

溶融・落下させた（図 3.2.1-2）。落下後試料の外観、必要に応じて SEM/EDS（JEOL JCM7000）による金相観察を実施した。

(3) 結果および考察

① 下段試料領域径の設定

金属溶融面を 2100 ℃としたときの輻射伝熱による到達温度は、下段試料域径に対して次の通りであった。すなわち、1) φ120 mm のとき 1417 ℃、2) φ160 mm のとき 1289 ℃、3) φ200 mm のとき 1219 ℃、であった。下段試料温度がステンレス融点以上とならないようにするには、径を 160 mm 以上にする必要があることがわかった。そのため、本実験ではφ160～200 mm となるように下段に断熱材を設置した。

② 炉内温度分布と試料装荷位置

はじめに、制御温度と炉内中心の鉛直方向における温度分布を測定した。室温から制御温度 1450 ℃まで 10 ℃/min で昇温して熱平衡させた後、B 熱電対を上段上部中心のポートから挿入し、上段部の温度分布を測定した。その結果、制御用熱電対と同一高さにおける炉内中心部温度は 1654 ℃であり、制御温度表示値よりも約 200 ℃高かった。制御温度が 1000 ℃以上においては、炉内中心温度が 200 ℃高い状態で推移したことから、高温領域では温度差がほぼ一定値（200 ℃）で維持された状態で制御されていた。

次に、炉心中心部の試料装荷部に温度測定用にカーボン片を置いて、電気炉上部に二色放射温度計を設置して 1700 ℃以上まで昇温した時の温度分布を測定した。先の手順と同様に、制御温度 1450 ℃にして昇温し熱平衡させた後、制御用熱電対を引き抜いて発熱体への出力電圧をかけ炉内温度を上昇させた。引き抜き前の放射計温度指示値は 1650±30 ℃であり、先の炉内温度分布測定結果と整合した。引き抜きによって放射計温度指示値は上昇し、引き抜き距離 30 mm において 1980±20 ℃、40 mm において 2080±20 ℃を安定的に達成し、目標とした 2100 ℃による溶融試験が可能な状態であることを確認した。

また、1700 ℃以上の高温試験時では下段上部温度を R 熱電対で測定した。金属溶融面が 2100 ℃であったときの下段温度は 1204 ℃であった。先の解析値よりも 85 ℃低い結果となったが、概ね予想した範囲の温度まで加熱することができた。今回の解析条件を用いて、炉内の熱的状況を模擬することが可能であることがわかった。

③ 鉄・ジルコニウム溶融落下物の相違点

鉄の融点は 1538 ℃であるため、制御用熱電対を引き抜かなくても溶融して落下することが想定されたが、実験の結果は想定通りであった。制御温度 1450 ℃へ昇温する過程において、下段ステンレス試料に接着した R 熱電対指示値が上昇を示し、このとき、放射温度計が 1537～1543 ℃を指示していた。溶融した鉄が落下して下段のステンレス板に接触し、熱輸送によって温度が上昇したためと考えられる。覗き窓から下段試料域を確認したところ、銀色の溶融落下物（長さ 48 mm）がみられた。電気抵抗炉の電源を落とし炉冷（約 40 ℃/min）にて冷却し下段試料領域からステンレスおよび溶融落下物を取り出したところ、落下した鉄はステンレス板表面に張り付いていた。溶融落下物は手で剥がすことができて、界面に反応した様子は全くみられなかった。鉄とステンレスは反応しないので納得できる。ステンレス表面は Ar ガスに若干含まれる酸素によって

Cr_2O_3 不働態膜が形成されており緑色であった。不働態膜の存在によって熱伝導も抑止されたと考えられる。実際、落下時におけるステンレス板の温度上昇はわずか 38 ℃であった。

ジルコニウムの融点は 1855 ℃であるため、制御用熱電対の引き抜き距離が 20 mm 程度で目的温度に到達し溶融して落下することが想定された。しかし、実際に覗き窓から落下を確認できたのは放射温度計が 2050±10 ℃の時点であった。下段ステンレス試料に装着した R 熱電対は異常値を示したため、落下による温度上昇を確認することはできなかった。電気抵抗炉の電源を落とし炉冷にて冷却し、下段試料領域からステンレスおよび溶融落下物を取り出したところ、ジルコニウム落下領域は完全にステンレスを溶融し、黒くて硬い物質が形成されていた。反応生成物とみられる黒い物質の長さは 28 mm であり、さきの鉄溶融物に比べるとステンレス落下後の流動長さが 4 割ほど短かく上に盛り上がった形状であった。

ジルコニウム落下試験によって形成された反応生成物を詳しく調べるために、試料を樹脂埋めし一部切り出して SEM/EDS によって金相観察を行った。ジルコニウム落下面からステンレス板背面に向かって、ジルコニウムを主相とする組織とジルコニウム・鉄の金属間化合物 Fe_2Zr を主相とする組織が形成されていることを確認した。当該領域における Zr/(Fe+Zr)比（at%）を求めたところ 0.37～0.77 の範囲であった。Fe-Zr 二元系状態図[4]で確認すると、この範囲の凝固組織が形成されるのはジルコニウム濃度が 50 at%以上である液相の相分離によって起こることがわかる。したがって、本予備試験における接触によって 930～1600 ℃に相当する共晶反応が起きたと考えられる。落下面に近い領域でジルコニウム濃度が高いことから、落下接触時の伝熱によって界面温度が共晶溶融温度 1000 ℃まで上昇し、液相中の原子拡散によってステンレス板背面方向まで反応が広がり高融点金属間化合物 Fe_2Zr を形成したところでステンレス板をすべて消費し雰囲気によって冷却されて反応が止まったと考えられる。今後、ステンレス板の厚みを大きくすることによって、深さ方向への反応度とステンレス板表面方向への流動を観察することが可能となることがわかった。それによって、溶融金属デブリがステンレス鋼に落下して反応する場合の凝固物の特徴を理解することができる。

さらに、溶融ジルコニウムの落下が 2050 ℃まで起こらなかった原因について調べるために、上段溶融試料装荷部に残った物質の状態を確認したところ、YSZ るつぼには落下しなかったジルコニウムが残っていた。外観から気泡がみられ反応時には完全に溶融していたことがわかる。特徴的なことは、るつぼ内側の金属はるつぼ面に対する濡れ角が若干大きいことであった。過去の溶融ジルコニウムと酸化物(ZrO_2/UO_2)の高温反応実験から、溶融ジルコニウムは酸素濃度が低い場合は濡れ性が悪く表面張力が強いが、一定程度を超えると濡れ角が 90° を大きく下回って濡れ広がることが報告されている[5]。このことから、るつぼ内側と外側でジルコニウム中酸素濃度に違いがあるのではないかと考えて、金属を砕いて赤外線吸収法による酸素濃度分析装置（LECO、ONH836）を用いて酸素濃度を測定した。その結果、るつぼ内部領域で 2.1-2.5 mass%（～10 at%）、るつぼ底部領域で 4.8-5.7 mass%（～20 at%）であった。落下したジルコニウムの酸素濃度は後者に近く、当該組成における融点は Zr-O 状態図[6]から 2050 ℃であり本実験の落下時温度に整合する。このことから、溶融したジルコニウムによって YSZ るつぼが還元されて溶融合金中酸素濃度が上昇して落下に至ったと考えられる。この結果から、融点に到達しても直ちには落下せず、酸化物に対する濡れ性が金属溶融デブリの流動挙動を評価するうえで重要な因子であることを認識した。

④ 金属デブリ形成挙動の違いに関する見通し

令和 3 年度実施した純鉄およびジルコニウムの溶融落下実験は、ステンレス鋼に対して対照的な性質をもつ溶融金属の特徴を示す結果となった。すなわち、溶融鉄は（炉心材料の中では）低融点・低粘性であり反応性が乏しく、溶融ジルコニウムは高融点・(YSZ 還元により）粘性が比較的高く、反応性も高い、という性質をもつ。これらがステンレス鋼と接触した際、溶融鉄はステンレス板の形状に全く影響を及ぼさずに流動過程で凝固したが、溶融ジルコニウムはステンレス板を溶損しつつ反応生成物が一体化することによって形状を変化させた。したがって、溶融金属の熱的物性と接触時反応機構の相関を明らかにすることが、金属デブリ形成の特徴的な挙動を解析的に評価する手法につながる。

実用的な解析手法としては、数値流体力学解析（有限体積法解析）に材料反応を簡易的に組み込むことである。そのためには、熱力学平衡近似を組み込む境界条件を実験によって得ることが重要である。構築した実験装置を用いて、接触時界面温度およびステンレス板内部への溶融金属移動量に関する情報を得ることにより、近似が有効となる温度などの条件を導出することが可能になると考える。

(4) まとめ

制御棒材などの金属物質が炉内下部構造材との反応・凝固挙動を把握するために、上チャンバーに金属物質を溶融できる発熱体およびるつぼホルダーを設置し、下チャンバーにその溶融金属と反応させるステンレス板材と受け皿を設置し、高温融体と低温固体金属を反応させるための非平衡溶融凝固反応試験炉を構築した。当該実験装置の温度分布測定および予備試験として鉄・ジルコニウム溶融落下試験を実施した。反応後試料分析から、鉄-ステンレスでは伝熱のみ、ジルコニウム-ステンレスでは伝熱・反応の双方が起こることを確認した。

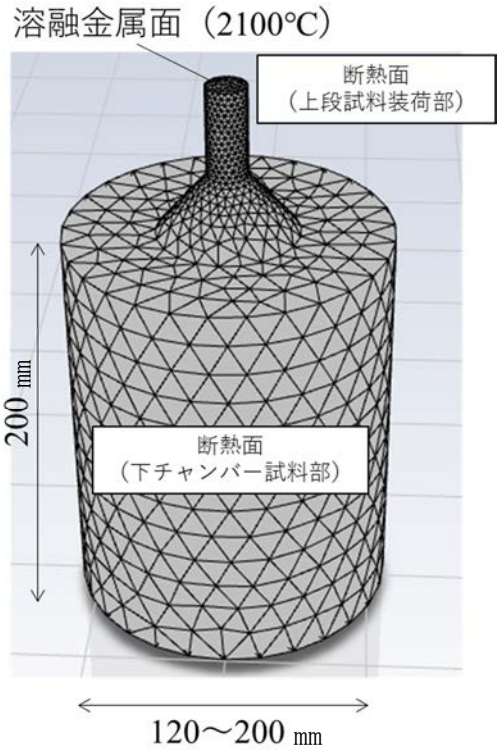


図 3.2.1-1　下段試料設置領域における温度分布解析形状

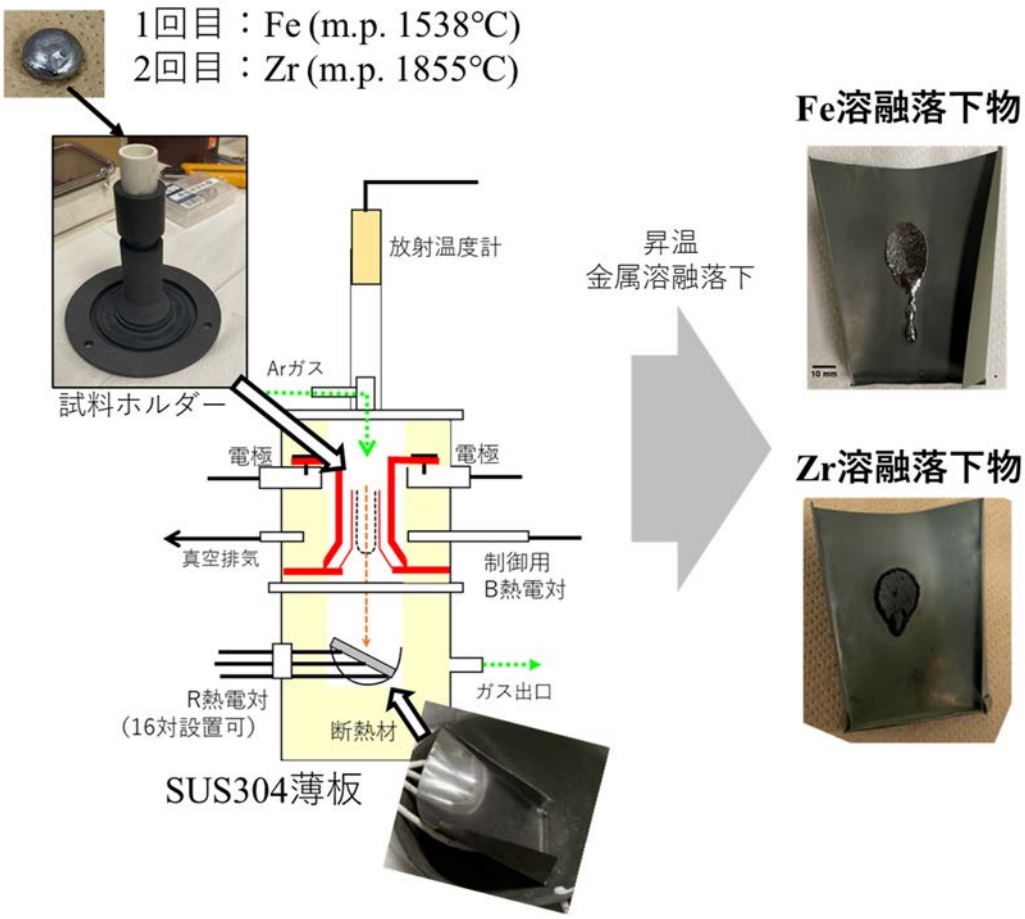


図 3. 2. 1-2　実験体系および予備実験概要

3.2.2　2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価

本項目は、炉心崩落時に構造材および下部プレナムに溶融・移行したステンレス鋼を主とした金属融体と B_4C、ジルカロイとの反応による、生成した金属デブリの組成への影響を、検証試験および平衡・速度論解析により提示し、2、3 号機内部調査結果などに基づく炉内金属デブリ分布形成状況を評価するための基礎データを取得整備することを目的とする。制御棒およびステンレス鋼材由来の金属系融体および半溶融物を温度および雰囲気を制御した高温下で B_4C およびジルカロイと接触させ、B およびジルコニウムのステンレス鋼融体への移行挙動を実験的に提示する。

令和 3 年度は、令和 4 年度に実施する試験条件設定のための TG-DTA による予備試験、試験炉の整備および試験方法の確立を行った。

(1) 予備試験

・TG－DTA による試験温度域雰囲気の決定

ステンレス鋼系溶融物が下部プレナムの構造物と接触し、下部プレナム破損に至る温度域を、ステンレス鋼溶融物生成温度より高く、液相線温度＋50 ℃未満の温度域と想定し、試験温度とする。この試験温度の条件を決定するために予備試験を行った。

溶融挙動は、表面の酸化物生成により変化するため、空気雰囲気と不活性雰囲気下でのステンレス鋼の溶融挙動を測定した。TG-DTA（セイコーインスツル株式会社、TG/DTA6300N）を用いて SUS304 および SUS316L ステンレス鋼粉末の加熱試験を行った。株式会社ニラコ製の SUS304 および SUS316L 粉末（<149 μm）をステンレス鋼として用いた。φ5 mm×2.5 mm アルミナるつぼに 10～20 mg程度のステンレス鋼粉末を装入し、乾燥空気或いは高純度アルゴン流通雰囲気で加熱を行った。試料およびるつぼは 5 K/min で 1450 ℃まで昇温した。

・TG－DTA による予備試験結果

ステンレス鋼はある一定の温度以上で雰囲気中の酸素と反応し、酸化鉄を主体とした酸化物を生成するため、表面が FeO となった場合 1400 ℃程度、Fe_3O_4 となった場合 1500 ℃以上と試料表面の融点が変化する。SUS304 は金属の溶融が 1450 ℃程度と報告されているが、1450 ℃までの加熱中における酸化の進行のため溶融挙動が確認できなかった。一方、試験後の SUS316L 試料は、乾燥空気中で 1450 ℃まで加熱した試料は粉末状の酸化物、高純度アルゴン雰囲気中で加熱した試料は一部溶融した金属と酸化物の混合物となった。

乾燥空気中および高純度アルゴンで加熱した、SUS316L の重量変化を図 3.2.2-1 に示す。左図（空気中加熱）の 1000 ℃から 1140 ℃で重量の増加が確認できる。特に 1050 ℃から 1140 ℃では重量変化率が大きく酸化が進行することがわかる。また、右図（アルゴン雰囲気中加熱）では 1080 ℃から 1350 ℃の範囲で重量が上昇する。重量変化率は空気中より小さく酸化の進行が遅いことがわかる。また 1350 ℃以上ではわずかに分解が進行する。高純度アルゴンとして 6 N 以上のグレードを用いているが、TG-DTA 加熱炉内の構造物に付着したガス成分などが不純物として混入する可能性がある。このアルゴン中での重量増加よりガス中の不純物成分および流通経路における汚染による酸素が酸化の原因となることが明確に示された。以上より、SUS316L 粉体の加熱においては、わずかの酸素を含む気相であっても 1050 ℃程度以上で試料の酸化が進行する。鉄が酸化しない条件での試験には、無処理の高純度アルゴンガスは適さず、別途脱酸を行い気密下で用いるか、化学反応の平衡を用いた酸素分圧制御が必要であることが明確になった。また、一部酸化した試料は 1400 ℃以上で溶融し始める。ここで用いた粉体試料、本研究で対象とする金属

融体に比べると比表面積が大きいため雰囲気により影響を受けやすいが、試験における酸素分圧に関する雰囲気制御が試料の状態に影響することが示された。また、固体ステンレス鋼と共存する溶融ステンレス鋼を想定する場合、液相線温度に近い温度が望ましいため、1400 ℃以上でかつ近傍の温度域が望ましい。

高純度アルゴン中でのDTAを図3.2.2-2に示す。1080 ℃と1390 ℃に発熱、1400 ℃から1410 ℃に吸熱が確認できる。TGおよびDTAの結果は1080 ℃の発熱は酸化反応を示し、1390 ℃の発熱は相変態を示唆する。また、1400 ℃での吸熱反応は溶解によるものであると考えられる。

この結果より、B_4Cおよびジルカロイと溶融ステンレス鋼の反応試験では、ステンレス鋼の安定した単一融体を得るために1450 ℃程度の試験条件が適していると評価した。

(2) 試験装置の調整と試験方法の確立のための予備試験

・装置および試料

ステンレス鋼とB_4Cの反応試験を行うために、シリコニット発熱体を装備した、竪型管状炉を整備した。反応管にはφ60（i.d.50）×1000 ㎜アルミナ製磁製管を装備し、管外部に設置した白金熱電対とコントローラによりPID制御を行い、均熱帯を設定温度±1 ℃に制御可能である。上下にガスと内部試料を操作できるような機構をもつ蓋を設置し、雰囲気を制御しながら、均熱帯に試料の装入を行うことができる。均熱帯温度が1450 ℃に安定するように、炉を昇温した。均熱帯は高さ方向に40 ㎜程度あり、炉内に試料を設置することで試料全体を均熱体内に入る。

図3.2.2-3にるつぼと試料ホルダーの外観を示す。ここではφ32 ㎜のZrO_2るつぼとモリブデン製試料ホルダーを用いた。るつぼ内部にSUS316L試薬粉末を15 g、B_4Cタブレットを5 g装入し、ホルダーに固定した。φ12 ㎜ダイスを用いて、富士フイルム和光純薬株式会社製の炭化ホウ素（粒径：50 μm）を約2.5 gのB_4Cタブレットに圧粉成型した。

均熱帯が1450 ℃となるように電気抵抗炉を加熱し、温度を安定させた。試料をホルダーごと炉内上部につるし、反応管の上下の蓋（シリコーン栓）を閉じた。炉内を不活性条件とするため、リン酸を用いて脱水した高純度アルゴンガスを200 ml/minで炉内に流入し雰囲気を制御した。反応管内がアルゴンで満たされた後、試料をホルダーごと徐々に降下し均熱帯に設置し、1450 ℃に加熱保持した。この時、高純度アルゴンを200 ml/minで炉内に流入し続けた。所定の時間（2時間および4時間）経過後に、上部のシリコーン栓を外し、試料を取り出し、水中に浸漬し、急冷した。この際、るつぼ内に残存したB_4Cタブレットは自然に粉砕し、水中に懸濁した。水中より、急冷した固体試料として金属と表面に付着した黒色の相からなる試料塊が得られた。この金属と付着物の界面が観察できるように試料全体を樹脂に埋め込み、切断および研磨を施した。図3.2.2-4に2時間加熱後の試料の断面を示す。下部にステンレス鋼を主体とした金属相がある。また、薄赤で示した左上部領域には、B_4Cタブレットが高温保持時に存在していたと推定される。タブレットと金属相の境界は黒色となり、不規則な表面形状を示した。これらの試料はEPMAによる、断面観察および組成分析に供した。

・試験方法の確立のための予備試験結果

上記の試験により1450 ℃で2時間および4時間保持した試料を得た。2時間保持した試料の断面の金属相と黒色相の界面近傍をEPMAにより観察した試料を図3.2.2-5に示す。上部黒色部は樹脂、分析点1-3が位置する濃灰色部がB_4Cタブレットと金属相の境界に相当する黒色付着物相、分析点4-7が位置する灰色部がステンレス鋼相である。冷却前の黒色付着物上部には、B_4Cタブレッ

トが載っていたため、この相は B_4C と溶融ステンレス鋼の界面に存在する相である。この相の厚みはおよそ 1 mm である。相には色の異なる 2 相が存在することがわかる、また、金属の相内にも色の異なる複数の相が存在することがわかる。

図 3.2.2-5 中に示した 1-7 における組成を表 3.2.2-1 に示す。1-2（灰色）では C 1 mass%、B 6 mass%程度でクロム 12-14 mass%であり、溶融ステンレス鋼に C、B が溶け込んだ相を示す。一方、3（濃灰色）ではクロムと B 濃度が高く、ホウ化クロムを含む可能性がある。

4-6 ではクロムが 20 mass%以上、ニッケル 3-5 mass%と相により組成に違いがみられる。また、分析点 7 は 4-6 と異なり、ニッケル濃度が高い。ステンレス鋼は高温状態では単相であるが、冷却により複数の相に分離し、C および B に分布が生じたと推定する。Zr は 1%以下であるが検出され、ZrO_2 分解による溶解が確認できる。

同様に 4 時間保持した試料の断面を EPMA により観察した試料を図 3.2.2-6 に示す。分析点 1-3 が位置する濃灰色部が黒色付着物相、分析点 4-10 が位置する灰色部がステンレス鋼相である。1-3 ではホウ化クロムとステンレス鋼の相が観察され、金属相は、4-7 を含む部位と、8-10 を含む部位の間に亀裂が存在する。黒色付着物が接していた相の厚みはおよそ 1.5 mm であり、図 3.2.2-5 中の 2 時間保持の試料に比べ厚い。4-7 を含む部位に色の異なる 2 相が存在することがわかる。100 μm を超える大きな不定形粒が濃灰色相として分布する。7-10 を含む金属の相内にも色の異なる 2 相が存在するが、濃灰色の粒子は前者に比べ小さい。この組織の分布が異なることから、高温状態において 4-7 と 7-10 を含む部位は異なる 2 相であった可能性がある。

図 3.2.2-6 中に示した分析点の組成を表 3.2.2-2 に示す。1、8 は C 濃度が高く、2 はニッケル濃度が高い。3、6、7 の組成が類似しておりクロムと B の濃度が高い。4, 5、9 の組成も類似している。亀裂で別れた 3 か所では組織の形状の相違はあるが、3 相あるいは 4 相共存の相であるように見える。検出された組成から、3 層それぞれの構成鉱物相を導出すると、上部の相は金属相にほう化鉄（FeB）、ほう化クロム（CrB_2）が懸濁、中間相は金属に CrB_2 が懸濁、下部相は金属相のうち低 B 相と、低 Cr,高 B 相の混合物であると推定される。下部相は高温状態では単相の液相であり、また、上部相は B_4C に溶融ステンレス鋼が含浸して生成し、界面の金属側である中間相では、CrB_2 が懸濁した金属液相であったと推定する。

以上より、本条件で反応試験を行った場合 2 時間では飽和の達成が確認されない。また、B_4C と金属融体の境界となる黒色相が時間とともに厚くなる傾向がみられたため、この境界相に反応の律速過程が関連していることが推定でき、2～数時間の反応試験により、平衡および反応速度のデータ取得が期待できる。

(3) 計算状態図の導出

熱力学データベース（FactSage）を用いて 1450 ℃におけるステンレス鋼-B-C 系の状態図を算出した。得られた状態図を図 3.2.2-7 に示す。この図は Fe-C-B 三元系に投影した状態を表し、Fe-18 mass% Cr-8 mass% Ni からなる合金と B、C 系である。Fe を主とした合金近傍の組成では単一液相領域が存在し、C、C/CrB_2、C/CrB_2/FeB、B_4C/C/CrB_2/FeB 飽和の液相域に囲まれる。B_4C が共存する B_4C/C/CrB_2/FeB 飽和の液相中の B 濃度は 20 mass%以上、C 濃度は 5 mass%程度である。

この状態図を基に上記試験の結果を考察すると、表 3.2.2-1 および表 3.2.2-2 の組成は、B_4C 飽和のステンレス鋼融体の B、C 濃度より低く、計算状態図上において、この液相は B_4C で飽和していない。この試験、結果からは、固液が平衡に達していないのか、実際の飽和液相組成がこの値

なのかは判断できない。また、クロムおよびBが濃縮した相が4時間保持試料の金属融体相中に検出されていることから、CrB_2飽和になっていたことが推定できる。

また、4時間保持試料から観察された、上部相はB_4Cにステンレス鋼の融体が含浸することで、CrB_2、FeBが生成した、また、中間層では、金属液相とCrB_2が平衡したことが説明できる。ステンレス鋼成分とBが固相を生成するため、単体のCも同時に生成するが、これが金属相中に浸炭したか、境界面に蓄積されたかは本測定では明確に判断できない。しかし、金属液相がいったんC飽和となると、ホウ化合物が生成する際に界面に固体Cを生成するため、反応を阻害する可能性がある。

(4) ZrO_2の溶出について

本試験では、ZrO_2るつぼから溶融金属相に1%以下のジルコニウムが溶出したことが検出された。ここで、Fe-Zr-O系において、ZrO_2と平衡する溶存ZrとO反応および平衡定数Kは以下のように表される。

$$ZrO_2(s) = \underline{Zr} + 2\underline{O}$$

$$\log K = \ = -57{,}000/T+21.8$$ [7]

ここで下線は鉄中における元素の重量%濃度、Tは絶対温度を表す。

ジルカロイ等が酸化されてジルコニアを生成した場合、溶融鉄への溶解はジルコニウムと酸素の溶解濃度の積により決定される。炉内での反応を考慮すると水蒸気と水素から化学的に決定される酸素分圧がジルコニウムの濃度に影響することになる。

さらにFe-H-O系を考慮すると、反応式と平衡定数は、

$$H_2(g) + \underline{O} = H_2O(g)$$

$$\log K = \ = 7040/T-3.224$$ [8]

と表され、鉄中酸素濃度は雰囲気中のH_2/H_2O比で決定されることになる。前述のZrO_2の鉄融体との平衡反応と合わせると

$$ZrO_2(s) + 2H_2(g) = \underline{Zr} + 2H_2O(g)$$

$$\log K = \ = -42920/T+15.352$$

が導出され、H_2/H_2O比より平衡する鉄中ジルコニウム濃度が導出できる。この平衡定数Kを展開すると

$$K = \frac{[\%Zr]\cdot P_{H_2O}^2}{a_{ZrO_2}\cdot P_{H_2}^2} = 2.77\times10^{-10} \qquad \text{at 1450 ℃}$$

となる。この式にZr濃度を、試験結果を鑑み0.7 mass%と仮定して代入すると、1450 ℃における雰囲気は$P_{H2O}/P_{H2}=1.99\times10^{-5}$となる。本試験では、高純度アルゴンを用いているため、気相内の酸素自体の存在量は少ないものの、$P_{H2O}/P_{H2}=1.99\times10^{-5}$の平衡酸素分圧より十分高い酸素分圧とな

る。したがって、気相と平衡する場合 ZrO_2 から溶鉄に対して溶出するジルコニウムは試験結果より低濃度となり、試験結果のようなジルコニウムの溶出は難しいと評価する。

実効酸素分圧が低下している理由としては、B_4C が分解して生成する、C あるいは金属相中に溶融した C により低下する溶存酸素濃度の低下があげられる。鉄中での溶存 C と O の平衡は

$$CO\ \ (g) = \underline{C} + \underline{O}$$

$$\log K = -1160/T\text{-}2.003$$ [2]

と表され、気相中の CO 分圧により決定される。試験は、アルゴン気流中で行ったため、生成した CO は気相中に逃散し、気液間では平衡に達しない。実効 CO 分圧は、CO の生成速度と気相内での拡散速度に依存するが、1 気圧に比べて低い値となるため、C 共存下において極低酸素状態の達成が可能である。試験の結果から、溶鉄中の C 濃度 4%、Zr 濃度 0.7%を仮定すると 1450 ℃における平衡 CO 分圧が 0.005 atm と導出できる。実際に起こりうる程度の実効分圧であると評価する。このように、B_4C の分解により生成した C による ZrO_2 の分解を考慮すると、液相への 1%弱程度のジルコニウムの溶解が説明できる。

即ち B_4C は ZrO_2 に対して還元剤として機能し、鉄系溶融合金へのジルコニウムの溶解を促進すると評価できる。また同時に B_4C の B が Cr、Fe と化合物を生成するために、反応界面において C が過剰となる可能性が示唆される。試験においては B_4C の分解により生成する C が実効酸素分圧に影響するため、H_2/H_2O および CO/CO_2 混合ガス等の酸素供給が可能でかつ酸素分圧制御が可能な気相を選択する必要がある。

(5) まとめ

本項目では、制御棒ステンレス鋼材由来の金属系融体および半溶融物を温度および雰囲気を制御した高温下で B_4C およびジルカロイと接触させ、B およびジルコニウムのステンレス鋼融体への移行挙動を実験的に求めるために、試験の準備と、条件設定のための TG-DTA による予備試験、試験炉の整備および試験方法の確立を行った。令和 3 年度に確立した試験手法および条件設定を用いて、反応時間と組成、および界面組織の変化を明確にすることとで、高温ステンレス鋼と B_4C、ジルカロイとの反応による、生成した金属デブリの組成への影響を、検証試験および平衡・速度論解析が可能となる。

試験の条件の決定のために以下の知見を得た。

- ステンレス鋼融体の移動が可能であり、接するステンレス鋼容器を迅速に溶解することのない温度域として 1450 ℃程度が妥当である。
- 接触による固液反応は 2 時間で平衡に達しないため、2～数時間の反応試験により、平衡および反応速度のデータ取得が妥当である。
- B_4C の分解による生成する C が酸素分圧に影響するため、酸素供給が可能でかつ酸素分圧制御が可能な気相を選択する必要がある。

B_4C は溶融ステンレス鋼に対して B と C を同時に供給する。B は固体 FeB、CrB_2 生成に寄与するため、雰囲気の影響がない場合 B_4C の溶解に伴い、C が過剰となる。溶融ステンレス鋼と共存する

過剰なCは、ジルカロイ表面に生成するZrO_2系酸化物のステンレス鋼への溶解を促進する。一方、気相中に、H_2Oなど酸素を供給するガス種が存在する場合、CはCOを生成し消費される。Cの共存の有無が大きく酸素ポテンシャルに影響するため、気相中の酸素の影響は、溶融ステンレス鋼と接する多種の酸化物の溶解挙動全体に影響する。

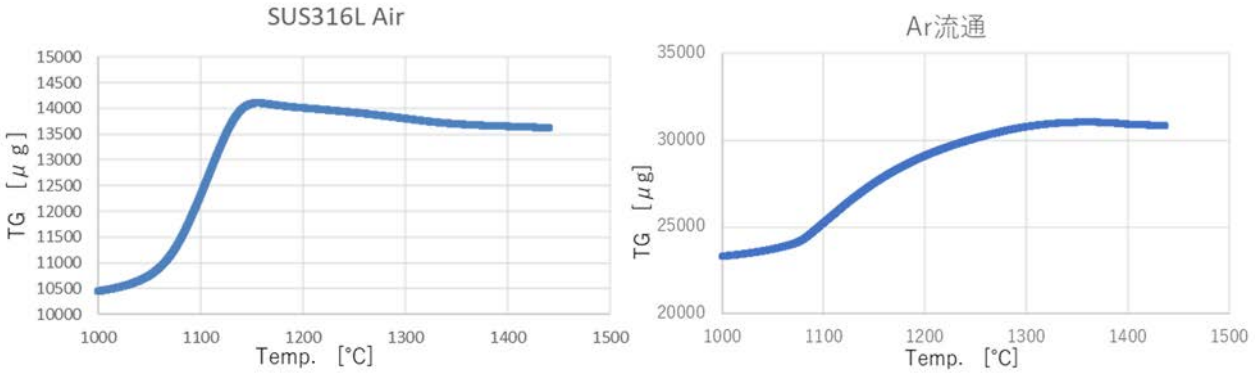


図 3.2.2-1　乾燥空気およびアルゴン中での SUS316L の重量変化

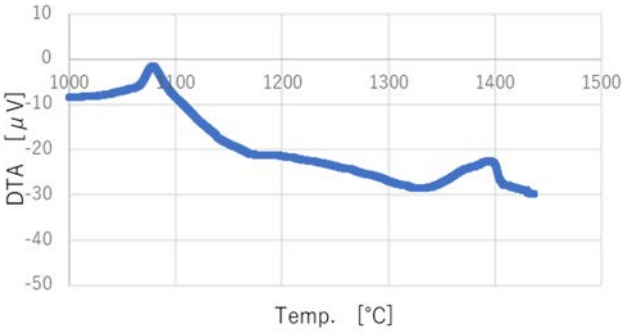


図 3.2.2-2　アルゴン中での SUS316L の DTA

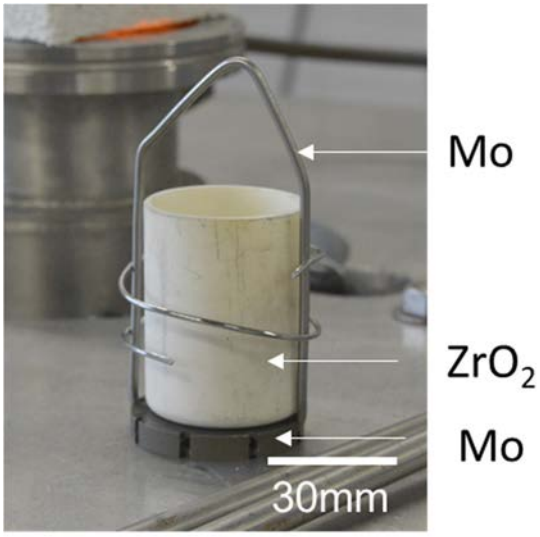


図 3.2.2-3　るつぼと試料ホルダー

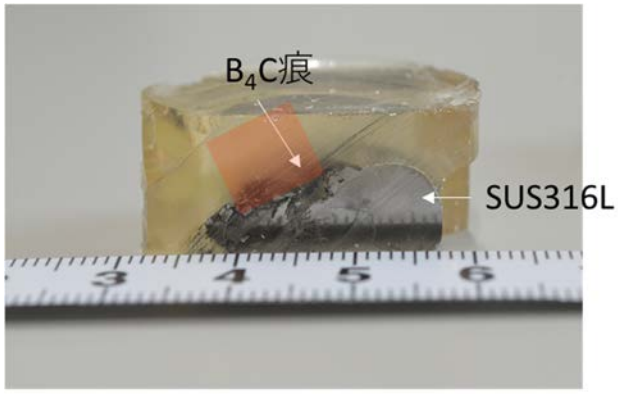


図 3.2.2-4　2 時間加熱後の試料の断面

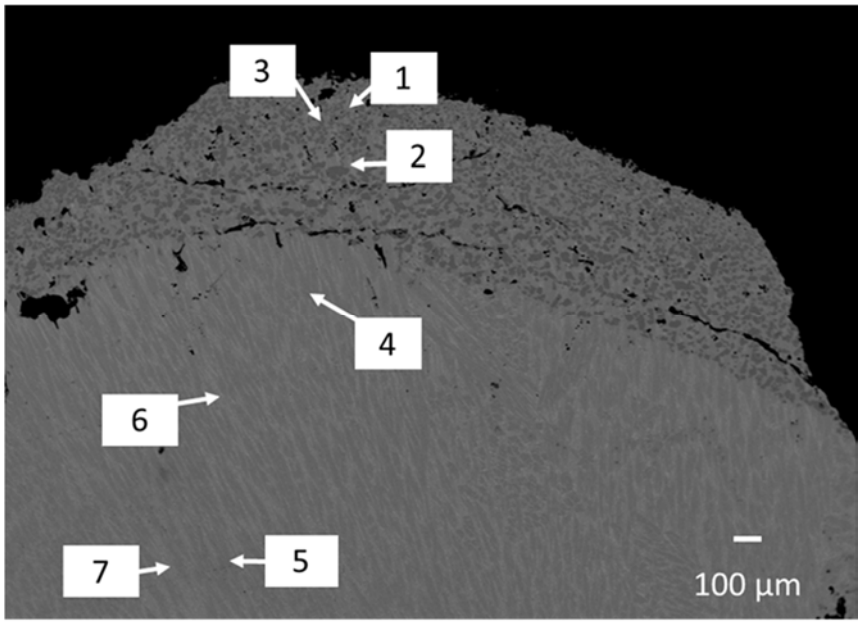


図 3.2.2-5　2 時間保持した試料の断面

表 3.2.2-1　2 時間保持した試料断面上の組成（単位：mass%）

	C	Fe	Si	Cr	B	Mo	Zr	Mn	O	Ni
1	1.06	68.64	0.06	11.99	6.01	0.31	0.97	0.13	0.00	6.89
2	1.33	67.22	0.01	13.56	4.94	0.54	0.60	0.13	0.00	7.42
3	1.17	37.98	0.03	38.07	11.53	2.46	0.92	0.20	0.00	1.05
4	4.26	59.30	0.04	21.02	1.57	2.74	0.54	0.27	0.00	5.20
5	0.99	57.43	0.01	24.51	4.79	0.61	0.54	0.20	0.00	3.23
6	4.02	60.04	0.04	20.51	1.96	2.87	0.72	0.21	0.00	4.87
7	2.23	64.96	0.36	8.37	3.53	4.75	0.78	0.18	0.00	10.15

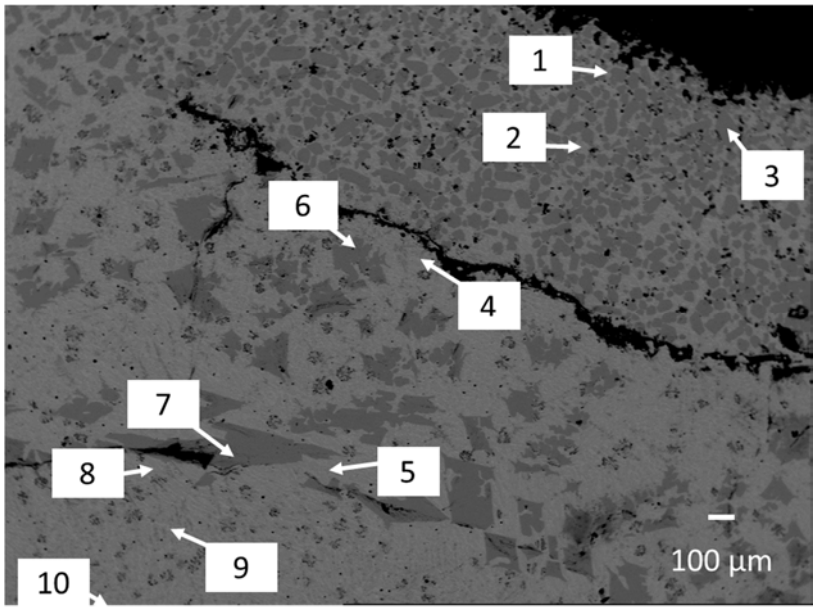


図 3.2.2-6　4 時間保持した試料の断面

表 3.2.2-2　4 時間保持した試料断面上の組成（単位：mass%）

4h	C	Fe	Si	Cr	B	Mo	Zr	Mn	O	Ni
1	4.60	55.20	0.50	18.10	2.44	5.77	0.32	0.18	0.00	11.33
2	2.71	55.09	3.76	8.05	0.53	4.33	0.43	0.21	0.40	24.45
3	1.10	36.49	0.02	41.90	15.89	2.62	0.35	0.22	0.00	0.92
4	1.01	70.38	0.13	12.18	7.18	0.53	0.52	0.17	0.00	7.19
5	0.88	71.08	0.04	11.91	7.17	0.42	0.59	0.16	0.00	6.26
6	1.29	28.37	0.13	48.92	14.32	3.50	0.59	0.28	0.00	0.56
7	1.12	29.66	0.01	48.71	16.16	3.15	0.40	0.22	0.00	0.60
8	4.78	63.32	0.08	18.12	2.36	1.97	0.41	0.23	0.00	6.21
9	0.89	70.24	0.05	13.04	6.63	0.37	0.59	0.17	0.00	6.33
10	1.77	69.39	0.77	8.87	6.93	0.98	0.39	0.13	0.25	10.47

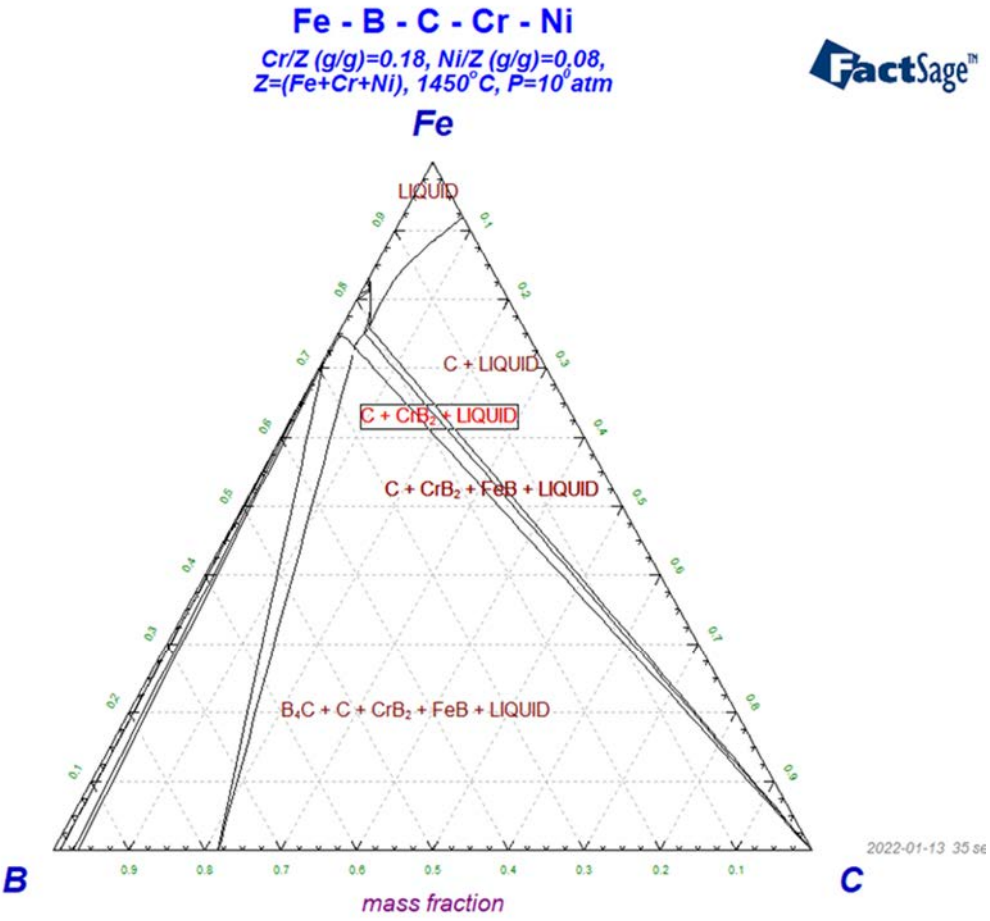


図 3.2.2-7　1450 ℃におけるステンレス鋼-B-C 系状態図

3.2.3　2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価

1F　2、3 号機では、下部プレナムで金属リッチデブリによる溶融プールが形成されたと推定されている。この溶融金属プールにより下部プレナム構造物が材料反応を起こし溶融する可能性がある。また、溶融金属と燃料酸化物 UO_2 との反応により、金属ウランが形成され、金属デブリにウランが移行する可能性も挙げられる。そのため、金属デブリとの構造材間の反応挙動および金属ウランの形成挙動を理解することが重要である。本項目では、金属デブリと各種圧力容器部材や溶接部材との反応速度の違いに関わる予備試験データを取得する。また、原子力機構で取得した不活性ガス中での圧力容器下部破損挙動の実験解析が可能であることを示す。さらに、水蒸気雰囲気での圧力容器からの溶融物流出挙動に関わる試験体系を構築する。ステンレスとジルコニウム混合物が先行して溶融し、ウランと反応して溶融・凝固挙動を把握するための試験条件を提示する。

(1) 模擬金属デブリ-下部プレナム構造材高温反応試験

① 試験条件

金属デブリによる下部プレナム破損挙動を解明するため、模擬金属デブリと下部プレナム構造材との高温反応試験を実施した。模擬金属デブリとしては、低融点組成（融点 1100 ℃程度）の初期溶融物を模擬して、SUS304（以下、「SS」と略す。）-83 wt%Zr 組成とし、アーク溶解により直径約 30 mm×高さ約 10 mm のペレットを作製した。下部プレナム構造材としては、制御棒駆動（以下、「CRD」と略す。）機構のハウジングや溶接部に使用されている[9][10]SS とインコネル 600（株式会社ニラコ製）板材を縦 20 mm×横 20 mm×板厚 5 mm に切断して用いた。これらを図 3.2.3-1 のように、アルミナの四角るつぼに構造材の上に模擬金属デブリが接触するように配置した。反応試験は制御棒崩落試験装置（MEISAN：Medium-scale Equipment for Investigation of Severe Accidents in Nuclear reactors）を使用した（図 3.2.3-2)。本装置は加熱部にボイラーで発生させた水蒸気を流入することで、水蒸気雰囲気下での高温試験を実施することができる。令和 3 年度においては、構造材の違いによる影響を調査するための予備試験として、水蒸気は流さずに不活性雰囲気での試験とした。試験条件を表 3.2.3-1 に示す。上述の模擬金属デブリと構造材を接触させた試料を、Ar 雰囲気で 1200 ℃および 1300 ℃で 30 分保持し、材料間の反応を観察した。加熱試験後、試料を切断し、断面を鏡面研磨後、SEM による組織観察、EDS による元素分析を実施した。

② 試験結果

1200 ℃保持試料 1 の断面観察写真を図 3.2.3-3 に示す。模擬金属デブリはペレット形状を維持しており、反応試験中に完全には溶融していなかったと考えられる。構造材との接触面においては、インコネル材との界面部にわずかに反応層が形成されていることが確認された。一方で、ステンレスとの接触面では顕著な反応層は見られなかった。図 3.2.3-4 に SEM-EDS 分析結果を示す。模擬金属デブリとインコネルの接触面では、約 700 μm の反応領域が形成されていることが確認された。反応領域では白色の ZrNi 相と灰色の Cr、Fe を含む Zr_9Ni_{11} と見られる相の 2 相が検出された。ステンレス接触面では、僅かな反応領域の形成が見られた。反応層は $FeZr_2$ と見られる灰色相が形成されており、模擬金属デブリのジルコニウム元素とステンレスが反応したと考えられる。

模擬金属デブリ表面においては ZrO_2 の酸化物相が形成されており、アルゴン雰囲気下であったが、試料が酸化して溶融を妨げたと考えられる。

次に、1300 ℃模擬金属デブリ-ステンレス試料 2-1 の断面観察写真を図 3.2.3-5 に示す。1300 ℃では模擬金属デブリが完全に溶融していることがわかる。しかし、ステンレスは板形状を維持しており、反応層もわずかに形成されている程度である。SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-6 に示す。模擬金属デブリ-ステンレス界面に 300 μm 程度の反応層が形成されており、ステンレス固相を侵食している様子が観察された。模擬金属デブリ液相のジルコニウム元素とステンレスの反応により、$FeZr_2$ と見られる反応相が形成したと考えられる。

最後に、1200 ℃模擬金属デブリ-インコネル試料 2-2 の断面観察写真を図 3.2.3-7 に示す。試料 2-1 と同様に模擬金属デブリが完全に溶融していることがわかる。板厚 5mm のインコネル板材のほぼ全量が模擬金属デブリと反応し溶融していることが確認された。本試料の SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-8 に示す。インコネル板材が配置されていた領域においても均一な 2 相からなる組織が観察された。このことからも、インコネル板材は溶融して均一な液相を形成していたことが示唆される。この液相部では、白色の Zr_2Ni 相と灰色の Zr(Ni,Fe,Cr)相の 2 相が存在し、Zr-Ni 液相を形成していることが確認された。

③ 模擬金属デブリ-構造材反応挙動

模擬金属デブリは融点が 1100 ℃程度の低融点組成を用いたが、1200 ℃では溶融せず、1300 ℃では完全に溶融する結果となった。1200 ℃試験の断面および反応領域を見てみると（図 3.2.3-4,5）、模擬金属デブリペレットが変形してインコネル、ステンレス板材に接触、反応していることがわかる。このことからある程度の変形性を持っていたと考えられ、一部が溶融又は固液共存状態であった可能性がある。図 3.2.3-4 の模擬金属デブリ表面には、酸化膜が形成されている。表面付近のジルコニウムが酸化されることで融点が上昇し、溶融を妨げたと考えられる。一方で、1300 ℃では完全に溶融しており、この温度では表面酸化膜を破って溶融が進展したと考えられる。構造材との反応性についても 1200 ℃に比べて 1300 ℃の方が大きくなる結果となった。1300 ℃では、温度が高いだけでなく、金属液相との接触することで、元素拡散だけでなく対流による浸食作用により大きく反応が進展したと考えられる。

材質による反応性の違いについては、1200 ℃と 1300 ℃ともにステンレスは接触界面近傍の限定的な反応であったことに対して、インコネルは大きく反応、溶融する結果となった。ステンレスの界面（図 3.2.3-6）では Fe-Zr の反応によって、液相が形成され、それがステンレス部を侵食する様子が観察された。一方で、インコネルの界面（図 3.2.3-4）では Ni-Zr の反応による液相が形成されていることがわかる。Fe-Zr と Ni-Zr は双方ともに、共晶反応によって低融点の液相を形成するため、ステンレスとインコネル共に模擬金属デブリ中のジルコニウムが主に反応に寄与していると考えられる。原子炉構造材間の反応速度については過去の試験[11]から、1200 ℃において、ジルカロイ-SUS316 で 5.64×10^{-11} m^2/s、ジルカロイ-インコネルで 1.00×10^{-9} m^2/s と見積もられている。インコネルの方がステンレスに比べて 2 桁ほど反応速度が早くなっており、本試験の傾向と一致する。

以上のように、模擬金属デブリと構造材の反応には、金属デブリの溶融や接触状態、つまり表面の酸化膜形成といったことが大きく影響することが確認できた。これらの物質の反応については Fe-Zr と Ni-Zr の反応が支配的であり、金属デブリ中に含まれる Zr 量や状態によって影響されると考えられる。そのため、金属デブリ組成において特に Zr 割合、表面酸化膜や酸化度による反

応速度の違いを評価する必要がある。構造材質についてはインコネルの反応、溶融速度が大きく、実際の下部プレナムを想定すると、溶接部が優先的に溶融、破損する可能性が考えられる。破損箇所やその順番を推定するために、インコネルとステンレスの反応速度差を算出することが必要である。

(2) 下部プレナム破損試験

令和 4 年度に実施する大型試験体の製作および試験の準備として、原子力機構に整備している水蒸気雰囲気制御棒ブレード破損試験（Large-scale Equipment for Investigation of Severe Accidents in Nuclear reactors、以下、「LEISAN」と略す。）で過去に実施した、アルゴンガス中での圧力容器下部破損試験に対する実験解析を実施した。過去の試験では、圧力容器下部ヘッド部を模擬した試験体内に金属デブリとしてステンレス鋼-ジルコニウム混合物を充填し、試験装置内で黒鉛ヒーターにより加熱を行い、圧力容器下部ヘッド部と溶融金属物質の反応による溶融物の流出挙動を観察した[12][13]。

令和 3 年度は、試験装置内の内部流体をアルゴンとし、ヒーターによる輻射および伝熱を考慮し、汎用流体解析ソフトウェア Ansys Fluent（バージョン：2022R2）を用いた実験解析を行った。輻射計算手法としてモンテカルロモデルを適用し、図 3.2.3-9 に示す試験体、黒鉛ヒーター、断熱材、試験体支持機構および試験装置の構成材料について、公開文献[14][15][16]や Ansys Fluent 物質データベースを基に特性値（密度、比熱、熱伝導率、放射率、吸収係数）を設定した。今回の解析では、金属デブリが溶融するまでを対象とした。試験初期昇温設定温度 1650℃を黒鉛ヒーター温度（固定）とし、断熱材および試験装置については完全断熱状態での定常解析を行った。比較対象データとして、試験時に得られた CRD 機構ハウジング溶接部高さでの CRD ハウジング部の軸方向温度を用いる。金属物質が溶融し、液相プールが形成された時点での CRD ハウジング部の軸方向温度差が約 320 ℃であった。解析結果を図 3.2.3-10 に示すが、解析評価において軸方向温度差が約 330 ℃であり、試験結果と同等の値となっており、解析により試験の再現が可能であることを確認した。

過去に実施した圧力容器下部ヘッド破損試験では、試験体内に充填する模擬デブリとして金属系（Fe-Zr 混合物）のみを考慮していた。炉内構造物の内、チャンネルボックスや燃料棒に含まれている Zr は酸化しやく、ジルコニウムの酸化で形成される ZrO_2 や金属デブリ混合物の酸化による圧力容器下部ヘッド破損挙動への影響を検討する必要があると考える。令和 4 年度では、金属デブリの酸化や酸化物が圧力容器下部ヘッド破損挙動に与える影響について、大型試験体により LEISAN 装置を用いて実施する。試験体の模式図を図 3.2.3-11 に示す。

(3) 金属ウラン形成条件の検討

① 試験条件

溶融金属とウラン酸化物の反応試験の試験条件を提示するため、集光加熱装置での不活性雰囲気における反応試験を行った。試料としては、予備試験として U を含まない系$(Zr,Gd)O_2$/溶融金属 ZrH_2:SS=60:40 wt%（FE0）の反応試験を行い、その後 U を含んだ系として UO_2/溶融金属 ZrH_2:SS=60:40 wt%（FE1）、UO_2/SS=100 wt%（EF2）の計 3 条件での試験を行った。

$(Zr,Gd)O_2$ は空気中で 500 ℃×1 時間脱水処理した ZrO_2 粉末と空気中で 500 ℃、1 時間脱水処理した Gd_2O_3 粉末をモル比 85:15 で混合し、遊星ボールミルで十分粉砕した後 φ10 mm ペレット状

に成型し、これを高純度アルゴン気流中、1700 ℃以上で焼結して固溶体化したものである。UO_2 は Ar-5 %H_2 混合気流中 850 ℃以上で定比組成に還元処理した UO_2 を遊星ボールミルで十分粉砕した後にφ10 mm ペレット形状に成型し、これを高純度アルゴン気流中 1700 ℃以上で焼結したものである。ZrH_2 粉末は、旧日本原子力研究所が分析用標準試料として作製・頒布していた金属ジルコニウムチップ（JAERI-Z21、99.9%）を、Ar-20 %H_2 混合気流中、約 450 ℃で加熱して水素化したものである。ZrH_2 は加熱試験中金属 Zr と水素ガスに分解することが予測される。金属材料の ZrH_2 および SS 粉末（株式会社ニラコ製）は表 3.2.3-2 に示す混合組成となるよう秤量し、乳鉢中で混合した後混合粉末を成型体一個当たり約 2 g となるよう分取し、タングステンカーバイド製のダイス（内径 10.3 mm）を用いて約 100 MPa の圧力でペレット状に成型した。

反応試験は集光加熱装置（Crystal System Corporation、IRM-3000-X）で行った。集光加熱装置の模式図を図 3.2.3-12 に示す。上部のキセノンランプは最大 3 kW の出力を持ち、キセノンランプからの光はドーム型反射板で試料上部に集光され試料は加熱される。出力は試料表面の溶融状態をビデオカメラで確認しながら手動で調整した。キセノンランプからの光により放射温度計による試料の温度測定が不可能であるため、試料の温度測定は行っていない。

酸化物焼結体および金属材料成型体は図 3.2.3-13 に示す通り、酸化物を上部に、金属が下部に位置するよう設置し、多孔質 MgO るつぼ内に装荷した。これは、上部からの集光により酸化物が先行して加熱され、高温の酸化物と伝熱によって溶融した金属との反応を起こさせるためである。試料を装荷した MgO るつぼは ZrO_2 粉末を敷いた安定化ジルコニアるつぼ内に装荷し、集光加熱炉に設置しアルゴンガス約 2 L/min で 5 分間置換した。試料に集光し徐々に出力を上げ、下部金属試料が溶融したのを確認し、その時点での出力で 10 分保持してから出力を落とした。EF1、EF2 ではランプを点灯した時点で上部酸化物焼結体が熱衝撃で破損したため、3～4 個の破損片を金属試料上に設置しなおし、試験を行った。

自然冷却した試料はアクリル樹脂に包埋した後に精密切断機で鉛直方向に切断し、断面を研磨紙およびダイヤモンドペーストで鏡面研磨した。研磨面について、Cu 管球による X 線回折（XRD）測定、光学顕微鏡および SEM による組織観察、EDS による元素分析を行い、生成相の同定と各生成相中の金属元素組成評価を行なった。二次電子像には、多数の点分析によって評価した各相の平均的な元素組成（at%）を示した。

② 試験結果

EF0、EF1、EF2 それぞれについて反応試験後の重量収支をまとめた結果を表 3.2.3-3 に示す。

EF0（$(Zr,Gd)O_2$-SS/ZrH_2）の外観写真を図 3.2.3-14 に示す。光学顕微鏡による断面全体像および元素分析領域を図 3.2.3-15 に示す。下部白色部分が金属、上部灰色部分が酸化物である。上部酸化物は焼結体の形状を保持しており、2 つに割れていることがわかる。一方で下部金属は楕円状の形状になり、一度完全に溶融したことがわかる。金属の表面には～0.5 mm 程度の酸化膜が確認される。図中の各領域において SEM/EDS 分析を実施した。酸化物領域 EF0_1 および EF0_2 の二次電子像（SE 像）および元素分析結果を図 3.2.3-16 に示す。ともに $(Zr,Gd)O_{2-x}$ の一相のみが検出され、Zr/Gd 比に差はない。初期組成と比べでも若干ジルコニウム濃度が高くなっているが大きな差はない。酸化物と金属の境界の領域 EF0_3 および EF0_4 の SE 像を図 3.2.3-17 に示す。棒状の明るい灰色の $FeZr_2$ 型金属相（Zr-Fe-Cr-Ni）と、暗い酸化物（ZrO_2）が確認できた。金属領域の内部領域 EF0_5 および EF0_6 の SE 像を図 3.2.3-18 に示す。明るい灰色の $FeZr_2$ 型金属間化合相であり、暗い金属相は Fe_2Zr 型金属間化合物相であると推測される。金属中に Gd は検出されな

かった。金属領域下部の領域 EF0_7 の SE 像を図 3.2.3-19 に示す。上部には明灰色の $FeZr_2$ 型金属間化合物相と、暗灰色の Fe_2Zr 相が観察された。一方、下部では ZrO_2 が検出された。酸化物・金属それぞれについて広範囲の領域（～2.5 mm）の面分析結果を図 3.2.3-20 に示す。それぞれの領域での平均組成は、酸化物領域で 86.6 at% Zr、13.4 at% Gd、金属領域で 49.1 at% Zr、34.1 at% Fe、10.9 at% Cr、5.8 at% Ni であった。ジルコニウム濃度が初期組成と比較して上昇しているが、酸化物/金属間の顕著な元素移行挙動は確認されなかった。

EF1（UO_2-SS/ZrH_2）の反応試験中のビデオキャプチャ写真および反応試験後の外観写真を図 3.2.3-21 に示す。EF1 の断面全体像および元素分析領域を図 3.2.3-22 に示す。白色部分が金属、灰色部分が酸化物である。酸化物は 3～4 個ほどに分かれており、焼結体の形状を保持しているが、金属との境界では反応が起こっている様子が確認できる。一方で金属は楕円状の形状になり、一度完全に溶融したことがわかる。また、内部には約 1 cm の空洞が 2 か所できている。また、金属の表面には～0.1 mm 程度の酸化膜があることがわかる。酸化物領域 EF0_1 の SE 像を図 3.2.3-23 に示す。UO_2 の一相のみが検出され、反応試験中も未溶融であったと考えられる。酸化物と金属の境界の領域 EF1_2 および EF1_3 の SE 像を図 3.2.3-24 に示す。酸化物近傍の EF1_2 の領域では、U rich (U,Zr,Fe)O_2 の白色相と領域 Zr rich (U,Zr)O_2 灰色相、Zr rich (U,Zr)O_2 暗灰色相の三相が検出された。比較的金属に近い EF1_3 領域のでは、Zr rich (U,Zr)O_2 の黒色相と、棒状の金属相（～19 at% U）白色相、$FeZr_2$ 相（Zr-Fe-Ni-U-Cr）灰色相、Fe_2Zr 相（Fe-Zr-Cr-Ni-U）暗灰色相の 4 相が確認された。金属内部領域 EF1_4 および EF1_5 の SE 像を図 3.2.3-25 に示す。両方ともに 2～3 μm ほどの金属（U rich 金属、細かい粒子のため元素組成の同定不可）の白色相、U-rich 金属（～20 at% U）明灰色相、10～20 μm ほどの $FeZr_2$ 金属（Zr-Fe-Ni-U-Cr）灰色相、Fe_2Zr 金属（Fe-Zr-Cr-Ni-U）暗灰色相の 4 相が確認できた。反応試験中この領域では酸化物中の U は金属相に移行したことが考えられる。金属表面酸化物層の EF1_6 および EF1_7 の SE 像を図 3.2.3-26 に示す。ジルコニウム rich (U,Zr)O_2 が観測され、金属層表面が試験中に酸化されたと考えられる。

次に EF2（UO_2-SS）の試料写真、試料装荷イメージ、反応試験中のビデオキャプチャ写真および反応試験後の外観写真を図 3.2.3-27 に示す。光学顕微鏡による EF2 の断面全体像および元素分析領域を図 3.2.3-28 に示す。白色部分が金属、右側灰色部分が酸化物である。酸化物は焼結体の形状を保持している一方で、金属は丸みを帯びた形状になり、一度完全に溶融したことがわかる。金属下部に、100 μm ほどの酸化物が複数確認された。酸化物領域の EF2_1 の SE 像を図 3.2.3-29 に示す。この領域は UO_2 一相のみが検出され、反応試験中も溶融しなかったと考えられる。金属内部の領域 EF2_2 および EF2_3 の SE 像を図 3.2.3-30 に示す。ほぼ均一な Fe-Cr-Ni-Si 金属相（SS 構成元素）であり、反応試験中に酸化物からの元素の移行はなかったと推定される。下部酸化物領域の EF2_4（図 3.2.3-31）では MgO が検出されており、MgO るつぼが試料下部に付着したものと考えられる。

③ X 線回折による結晶相の同定

EF1 断面の X 線回折プロファイルを図 3.2.3-32 に示す。また、各相の元素組成を参考として ICDD データベース[17]と照合して同定できた相を表 3.2.3-7 に示す。EF1 で検出された相は、面心立方晶 UO_2、$FeZr_2$ 型金属間化合物、Fe_2Zr 型金属間化合物であった。立方晶二酸化物の格子定数は、UO_2 の 0.5471 nm に対し、EF1 では 0.54697 nm とおおよそ一致している。SEM/EDX で検出された (U,Zr)O_2 については、UO_2 のピークが近接しているため、ピークがかぶってしまっていることが考えられる。$FeZr_2$ 型金属間化合物および Fe_2Zr 型金属間化合物の検出は SEM/EDX による組成分析と

整合する。SEM/EDX で検出されたウラン rich 金属については回折ピークが検出されず、同定できなかった。EF2 断面の X 線回折プロファイルを図 3.2.3-33 に、同定できた相を表 3.2.3-8 に示す。EF2 で検出された相は、面心立方晶 UO_2、面心立方晶(Fe,Cr,Ni)型合金、MgO、α-Fe であった。立方晶二酸化物の格子定数は、UO_2 の 0.5471 nm に対し、EF2 では 0.54698 nm とおおよそ一致している。(Fe,Cr,Ni)型合金およびるつぼ材である MgO の検出は SEM/EDX による組成分析と整合する。α-Fe に相当する回折ピークが確認されたが、データベースと一致するピーク本数が少ないため、断定できない。

④ 金属層へのウラン移行挙動

FE0、FE1、FE2 で同定された代表的な相について、それぞれ表 3.2.3-4、表 3.2.3-5、表 3.2.3-6 に示す。FE0 の ZrO_2 と模擬金属デブリ（SS＋ZrH_2）の反応では、金属側接触部が酸化し ZrO_2 が形成された。しかし、金属層中の Zr 濃度上昇はわずかであり、酸化物元素の金属層への移行はほとんど起こらなかったと考えられる。FE1 の UO_2 と模擬金属デブリ（SS＋ZrH_2）の反応では、接触部に U-rich $(U,Zr,Fe)O_2$ と Zr-rich $(Zr,U)O_2$ が形成されている。また、金属層側にも U の固溶および U-rich 金属相（～18 at%U）が形成されており、U の金属層への移行が確認された。一方で、FE2 の UO_2 とステンレス金属ではほとんど反応は起こらなかった。3 試験においてステンレス成分の酸化物相は確認されておらず、ギブス生成エネルギーの比較的高い[18][19]これらの元素は酸化されなかったと考えられる。一方で Zr はギブス生成エネルギーが低く酸化されやすいため、金属 Zr が還元剤として働き U 金属の生成に関与したと考えられる。そのため、ウラン金属生成には金属ジルコニウムと UO_2 酸化物の反応が主であり、金属ジルコニウムの存在が必要だと考えられる。また、金属 U は Fe_2Zr や $FeZr_2$ といった金属化合物層や U-rich 金属相に固溶、形成して金属層に移行することが確認されている。金属デブリ組成における金属 U の移行相や形成量といった金属ウラン形成挙動への影響の調査が必要である。

(3) まとめ

本項目では、下部プレナムに金属リッチデブリが存在する際の、構造物との反応、破損挙動および燃料ウランと反応による金属ウラン形成挙動を実験的に求めるために、反応試験を実施した。また、原子力機構で過去に実施した下部ヘッド構造物破損試験の数値解析体系を整備し、令和 4 年度の大型試験条件設定を行った。

金属デブリと構造物の破損挙動においては、模擬金属デブリと構造材のステンレス、インコネルを用いた高温反応試験を実施し、反応挙動の基礎的なデータ、材質による反応挙動の違いを確認するための予備試験を実施した。令和 3 年度の試験は、アルゴン雰囲気下での試験であったが、模擬金属デブリ表面の酸化膜が溶融、構造材との反応に大きな影響を与えることを確認した。インコネルとステンレスそれぞれでの主成分である Ni と Fe が模擬金属デブリ中のジルコニウムと反応することが分析結果から示唆された。また、インコネルの方がステンレスに比べて反応速度が速く、優先的に溶融することが判明した。酸化の有無や、材質ごとの反応速度を評価することで、事故時の下部プレナムの破損箇所や破損時間を推定することが可能になる。

下部ヘッド構造物破損試験については、Ansys Fluent により、従来試験の温度分布を表現できることを確認し、解析体系を整備した。令和 4 年度以降に、反応溶融と流動挙動の解析を実施し、破損挙動の検証が可能になる。さらに、令和 4 年度の大型下部ヘッド構造物破損試験として、金属デブリの酸化度が圧力容器下部破損に与える影響を評価するための試験条件を構築した。

金属ウランの形成挙動試験では、集光加熱による高温反応試験により UO_2 と金属ペレットを反応させることで、金属ウランの形成条件の知見を得た。金属ウランの形成、つまり UO_2 の還元には主に金属 Zr が必要であることを確認した。反応試験後の金属デブリ中には、ウランの数%程度の固溶が確認され、一部ウラン金属相が形成されることが判明した。金属ウラン形成条件としては金属デブリ組成としてジルコニウムの割合や酸化度に着目する必要がある。

表 3.2.3-1　試験条件

No.	温度	保持時間	昇温速度	雰囲気	試料	
	℃	min	℃/h		模擬デブリ	構造材
1	1200	30	800	Ar	SS-83 wt%Zr ペレット	SS 板材＋ インコネル 600 板材
2-1	1300	30	800	Ar	SS-83 wt%Zr ペレット	SS 板材
2-2	1300	30	800	Ar	SS-83 wt%Zr ペレット	インコネル 600 板材

表 3.2.3-2　酸化物/金属反応試験組成および重量

		EF0	EF1	EF2
酸化物焼結体 (wt%)	$Zr_{0.85}Gd_{0.15}O_{2-X}$	33.2	-	-
	UO_2	-	37.5	31.7
酸化物重量	-	1.0 g	1.2 g	1.2 g
金属成型体 (wt%)	SS	26.7	25.0	68.3
	ZrH_2	1.20	37.5	-
金属重量	-	2.0 g	2.0 g	2.6 g

表 3.2.3-3　酸化物/金属反応試験重量収支

	EF0	EF1	EF2
加熱前　MgO るつぼ＋試料（g）	19.02	19.04	20.21
加熱後　MgO るつぼ＋試料（g）	18.95	18.95	20.19
回収率（%）	99.67	99.57	99.92

表 3.2.3-4　各生成相の代表的な元素組成（EF0）

酸化物領域	$Zr_{0.87}Gd_{0.13}O_{2-x}$
金属領域	$FeZr_2$ 型金属（66Zr-21Fe-10Ni-3Cr）， Fe_2Zr 型金属（43Fe-38Zr-16Cr-3Ni）， ZrO_2

表 3.2.3-5　各生成相の代表的な元素組成（EF1）

酸化物領域	UO_2
酸化物/金属の境界領域	U rich (U,Zr)O_2 ($U_{0.6}Zr_{0.39}Fe_{0.1}O_2$) Zr rich (U,Zr)$O_2$ ($U_{0.2}Zr_{0.8}O_2$) $FeZr_2$ 型金属（61Zr-23Fe-7Ni-5U-4Cr） Fe_2Zr 型金属（42Fe-37Zr-17Cr-3Ni-1U） U rich 金属（51Zr-19U-18Fe-12Ni）
金属領域	$FeZr_2$ 型金属（63Zr-21Fe-7Ni-5U-4Cr） Fe_2Zr 型金属（43Fe-37Zr-16Cr-3Ni-1U） U rich 金属（50Zr-20U-18Fe-12Ni） U rich 金属（2～3 μm ほどの粒子） $U_{0.09}Zr_{0.91}O_2$

表 3.2.3-6　各生成相の代表的な元素組成（EF2）

酸化物領域	UO_{2-x}
金属領域	Fe-Cr-Ni 系合金（68Fe-21Cr-10Ni-1Si） MgO

表 3.2.3-7　X 線回折で検出された相（EF1）

酸化物	面心立方晶 UO_2 (a=0.54697 nm)
金属	$FeZr_2$ 型金属間化合物 Fe_2Zr 型金属間化合物

表 3.2.3-8　X 線回折で検出された相（EF2）

酸化物	面心立方晶 UO_2 (a=0.54698 nm)
金属	面心立方晶 (Fe,Cr,Ni)型合金 α-Fe
るつぼ材	MgO

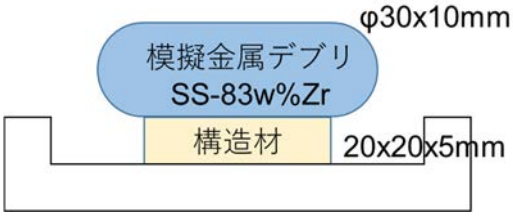


図 3.2.3-1　試験体模式図

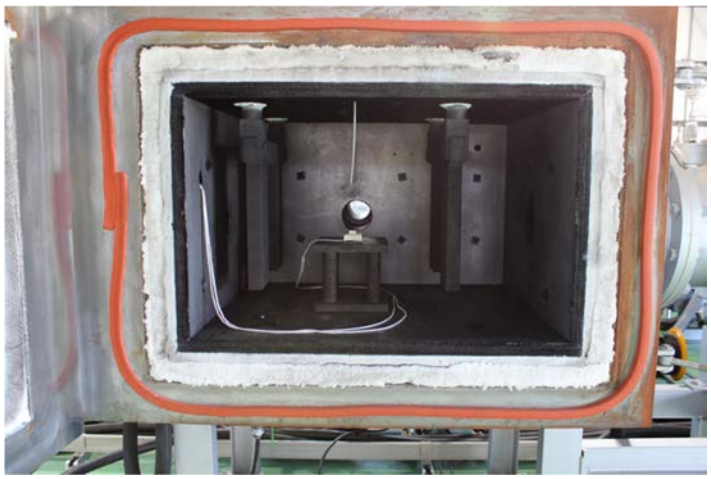


図 3.2.3-2　MEISAN 試験装置への試料配置図

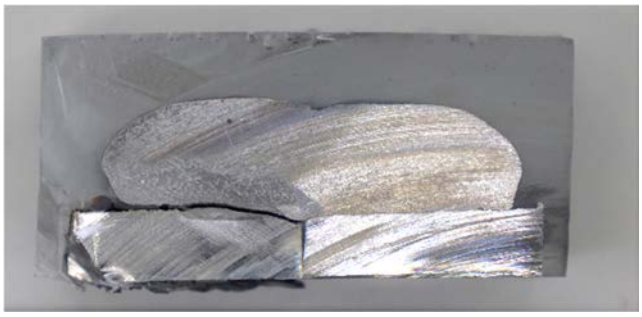
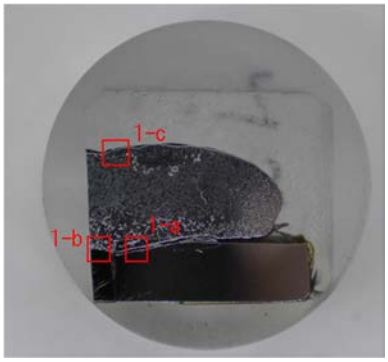
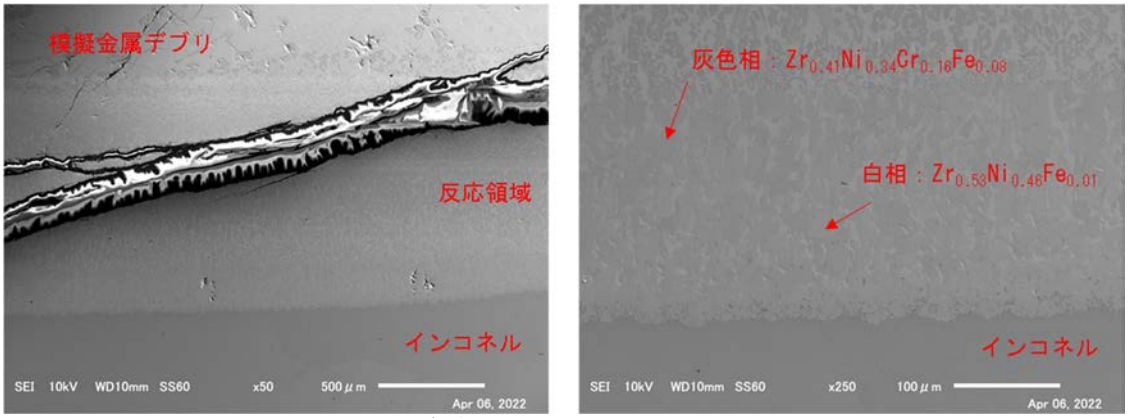


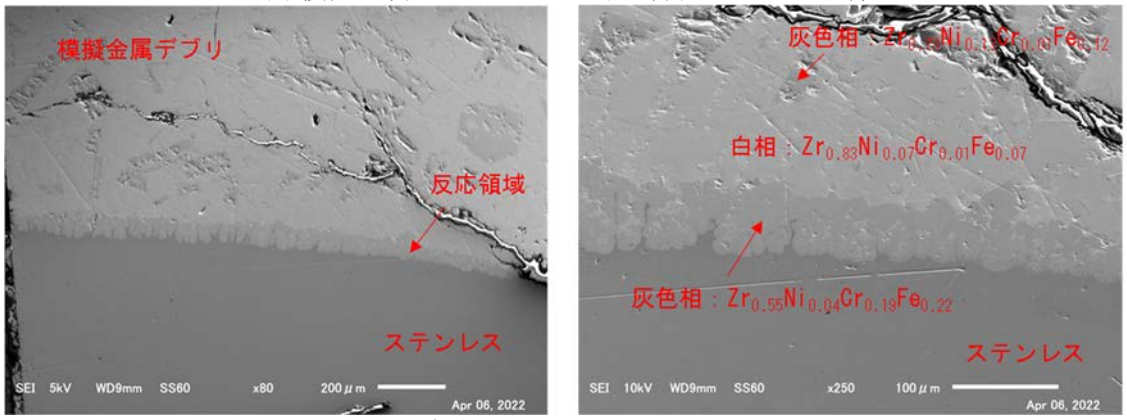
図 3.2.3-3　No.1：1200 ℃試験試料の断面観察写真
左下：インコネル板材、右下：ステンレス板材



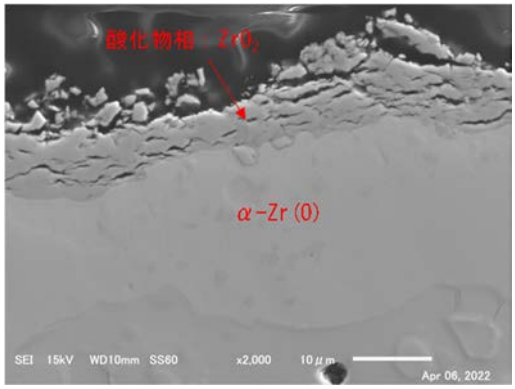
(a)分析位置



(b)模擬金属デブリ-インコネル界面 1-a の SEM 像



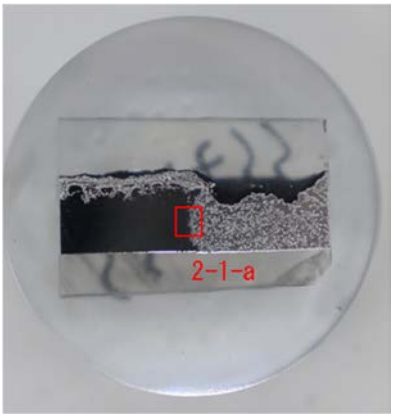
(c)模擬金属デブリ-ステンレス界面 1-b の SEM 像



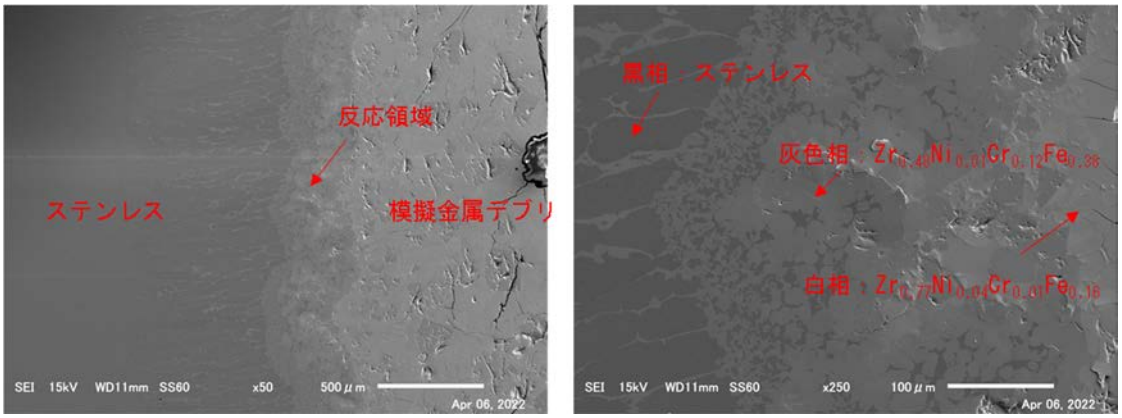
(d)模擬金属デブリ上部表面 1-c の SEM 像

図 3.2.3-4　No.1：1200 ℃試験試料の SEM-EDS 分析結果

図 3.2.3-5　No.2-1：1300 ℃模擬金属デブリ-ステンレス材試験試料の試験後観察写真
左：断面、右：底部



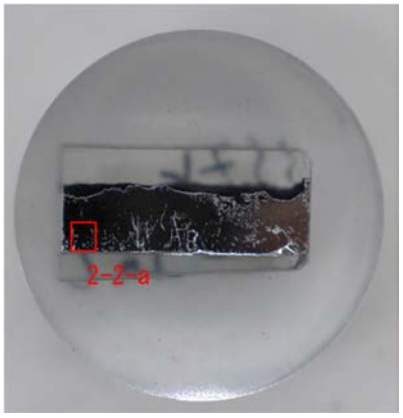
(a)分析位置



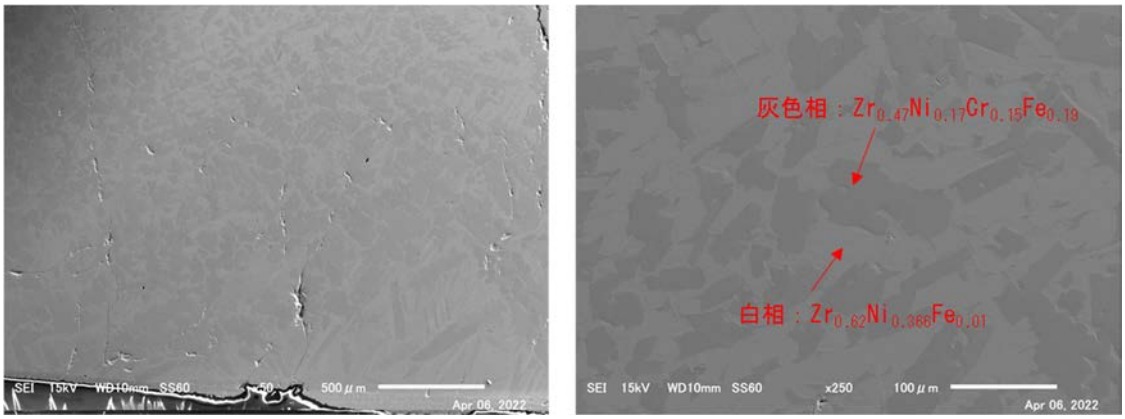
(b)反応部 2-1-a の SEM 像

図 3.2.3-6　No.2-1：1300 ℃模擬金属デブリ-ステンレス材試験試料の SEM-EDS 分析結果

図 3.2.3-7　No.2-2：1300 ℃模擬金属デブリ-インコネル試験試料の試験後観察写真
左：断面、右：底部

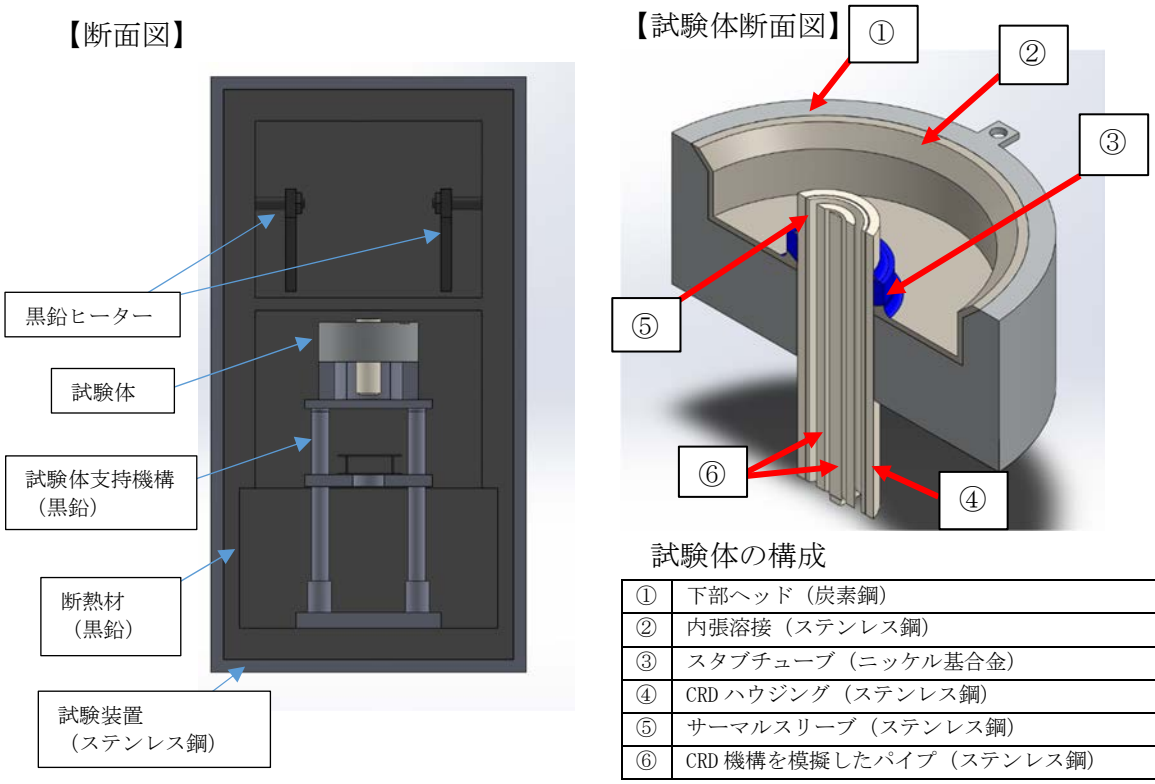


(a)分析位置



(b)反応部 2-2-a の SEM 像

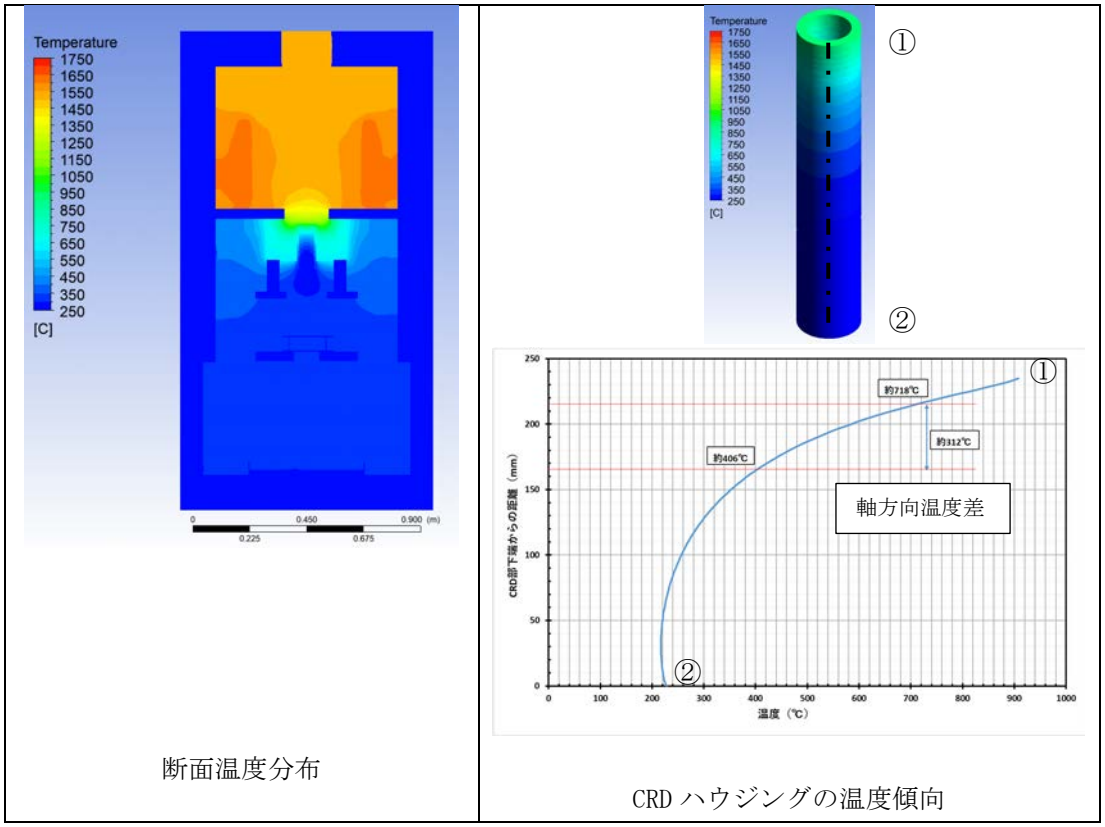
図 3.2.3-8　No.2-2：1300 ℃模擬金属デブリ-インコネル材試験試料の SEM-EDS 分析結果



試験体の構成

①	下部ヘッド（炭素鋼）
②	内張溶接（ステンレス鋼）
③	スタブチューブ（ニッケル基合金）
④	CRD ハウジング（ステンレス鋼）
⑤	サーマルスリーブ（ステンレス鋼）
⑥	CRD 機構を模擬したパイプ（ステンレス鋼）

図 3.2.3-9　解析モデル



断面温度分布

CRD ハウジングの温度傾向

図 3.2.3-10　解析結果

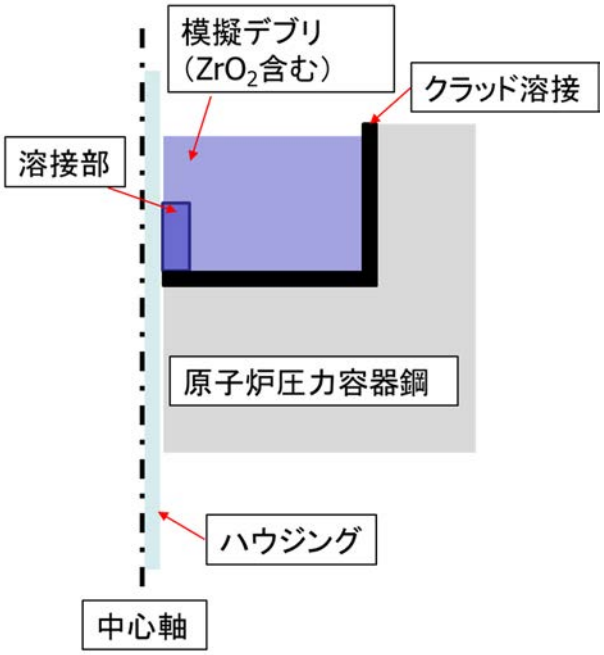


図 3.2.3-11　試験体の模式図

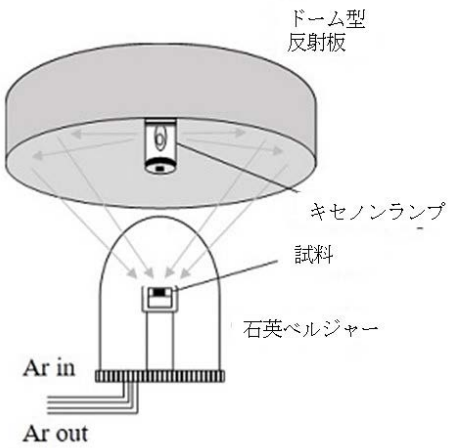


図 3.2.3-12　集光加熱装置模式図

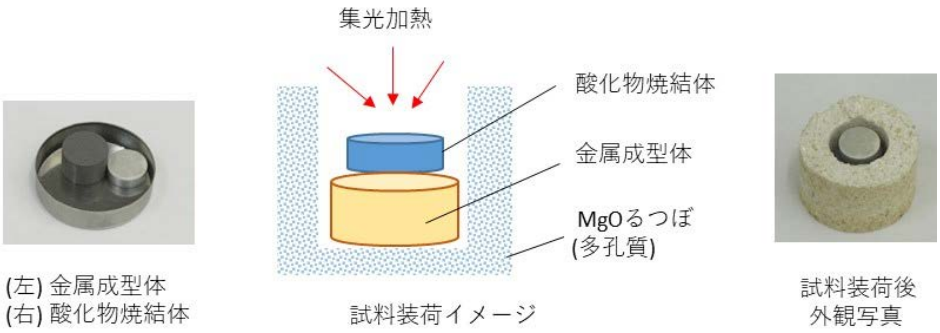


図 3.2.3-13　試料外観写真（EF0）および装荷イメージ

図 3.2.3-14　反応試験試料外観写真（EF0）

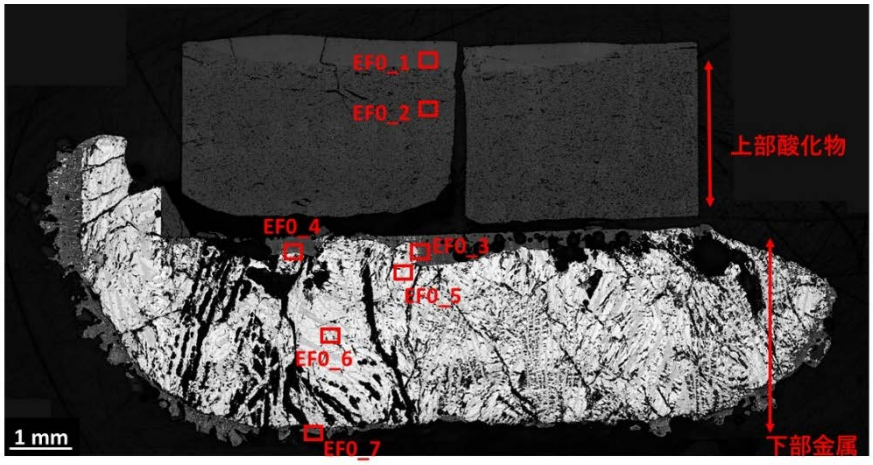


図 3.2.3-15　EF0 断面金相写真および元素分析領域

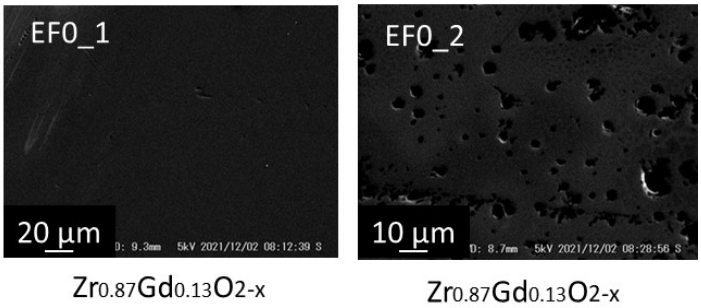


図 3.2.3-16　領域 EF0_1 と EF0_2 の二次電子像および元素分析結果

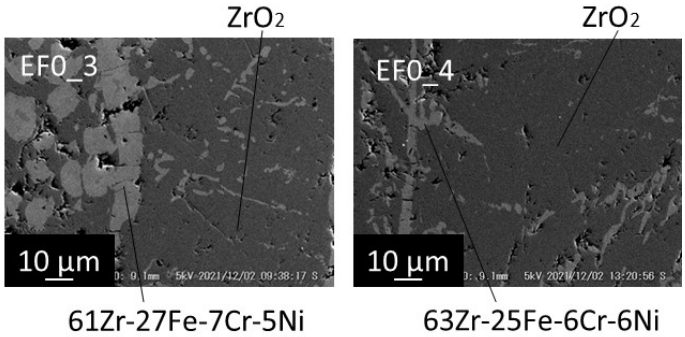


図 3.2.3-17　領域 EF0_3 と EF0_4 の二次電子像および元素分析結果

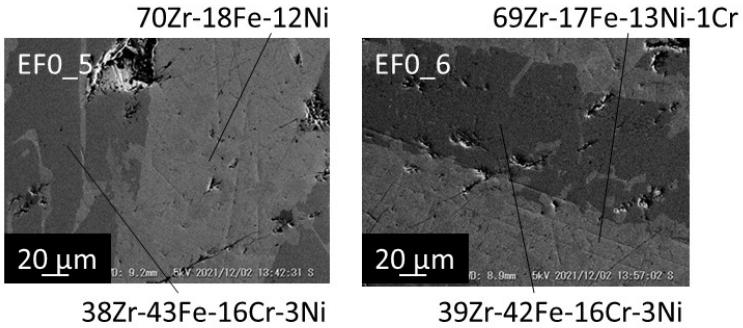


図 3.2.3-18　領域 EF0_5 と EF0_6 の二次電子像および元素分析結果

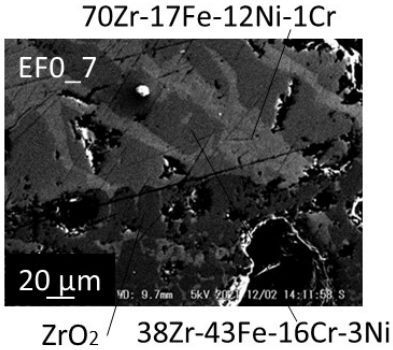


図 3.2.3-19　領域 EF0_7 の二次電子像および元素分析結果

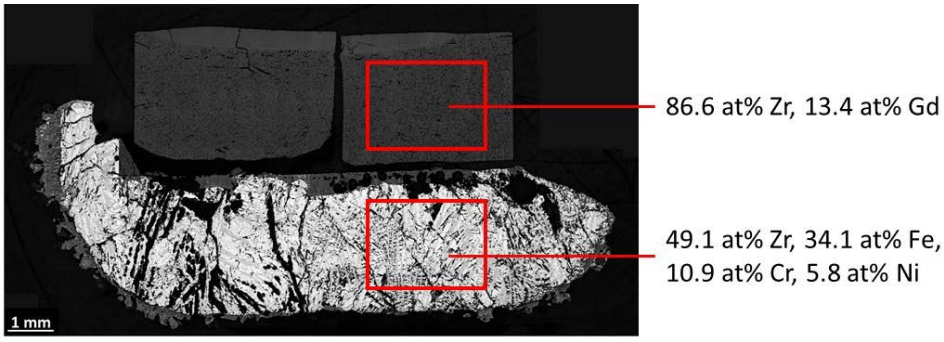


図 3.2.3-20　酸化物/金属の広範囲での面分析結果（EF0）

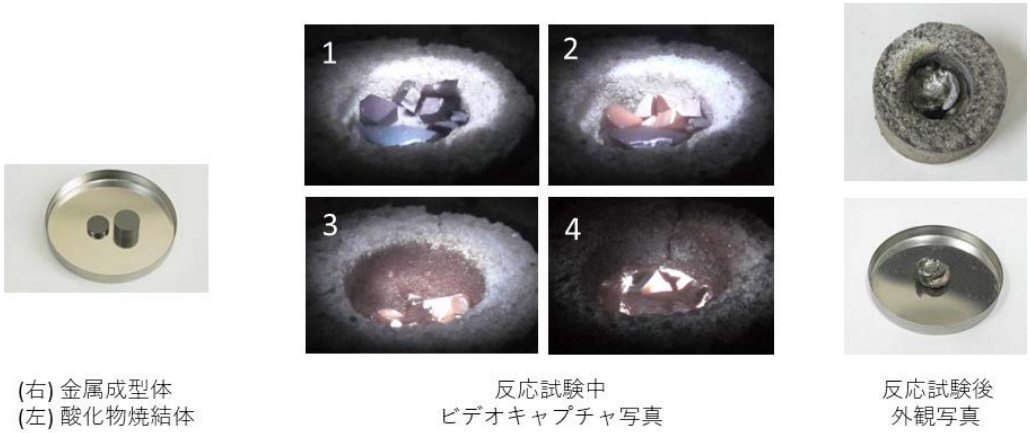


図 3.2.3-21　反応試験中ビデオキャプチャ写真および反応試験後の外観写真（EF1）

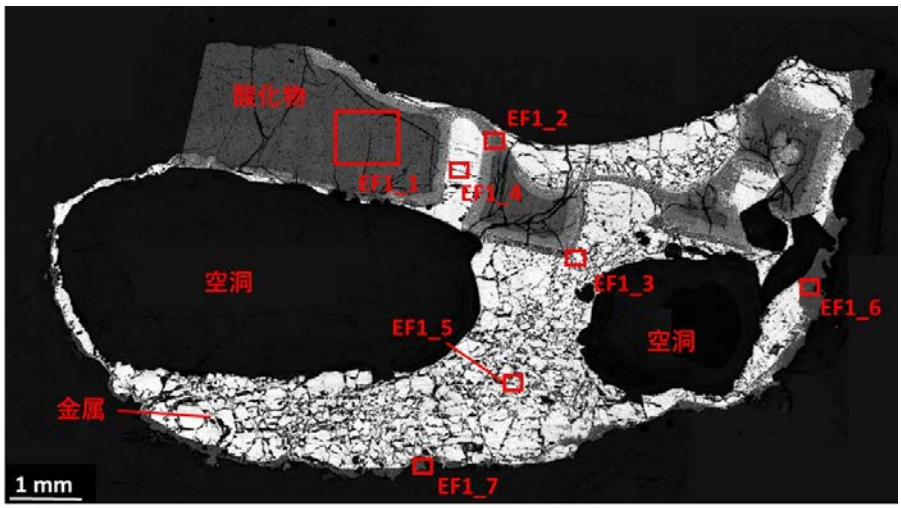
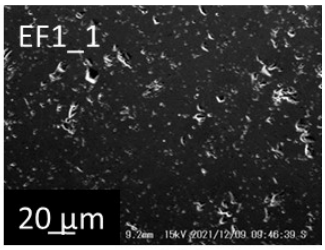


図 3.2.3-22　EF1 断面金相写真および元素分析領域



UO_2 (未溶融)

図 3.2.3-23　領域 EF1_1 の二次電子像および元素分析結果

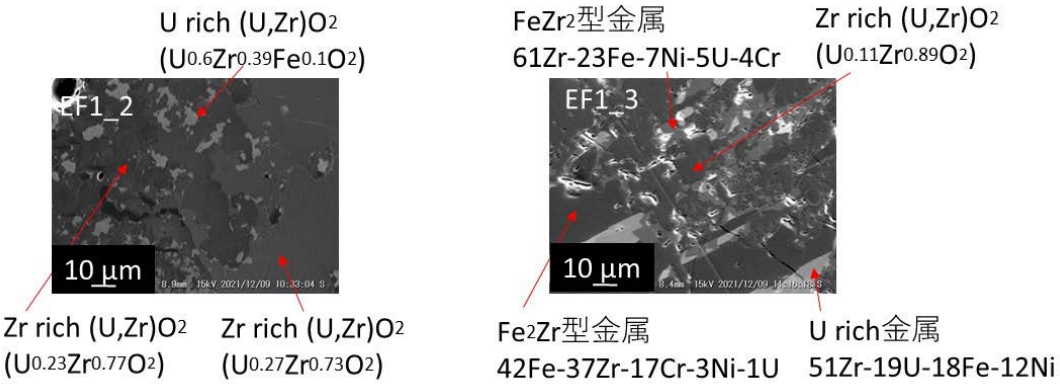


図 3.2.3-24　領域 EF1_2 と EF1_3 の二次電子像および元素分析結果

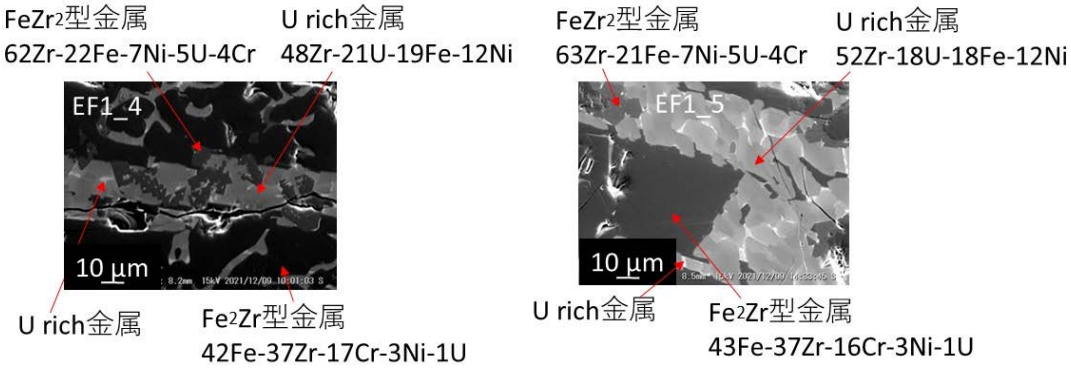


図 3.2.3-25　領域 EF1_4 と EF1_5 の二次電子像および元素分析結果

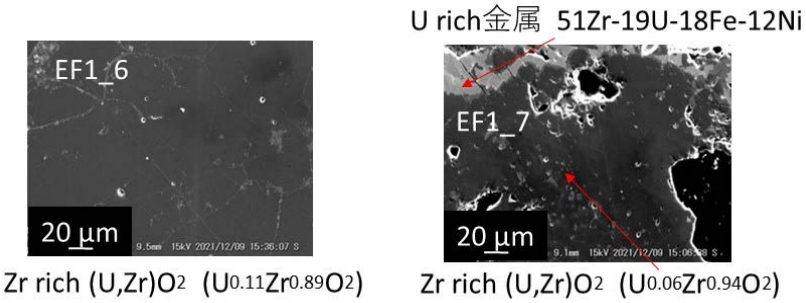


図 3.2.3-26　領域 EF1_6 と EF1_7 の二次電子像および元素分析結果

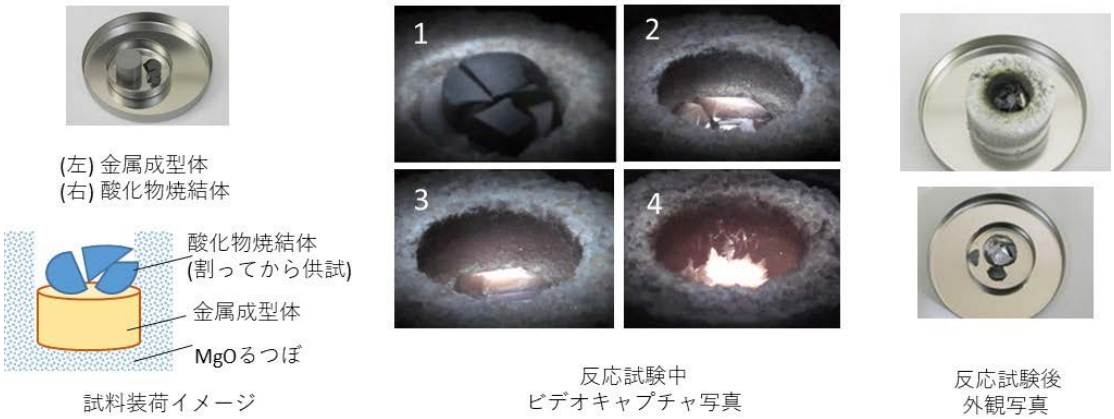


図 3.2.3-27　試料装荷イメージ、反応試験中ビデオキャプチャ写真および反応試験後の外観写真（EF2）

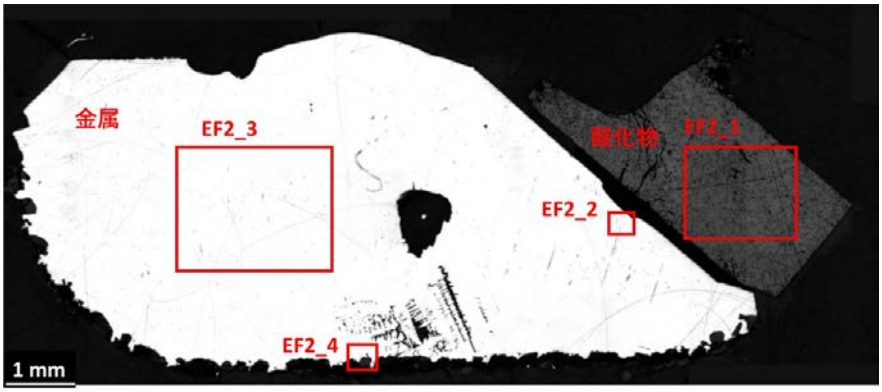


図 3.2.3-28　EF2 断面金相写真および元素分析領域

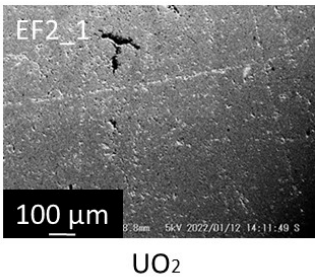


図 3.2.3-29　領域 EF2_1 の二次電子像および元素分析結果

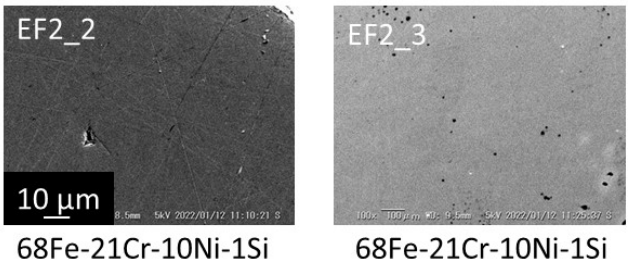


図 3.2.3-30　領域 EF2_2 と EF2_3 の二次電子像および元素分析結果

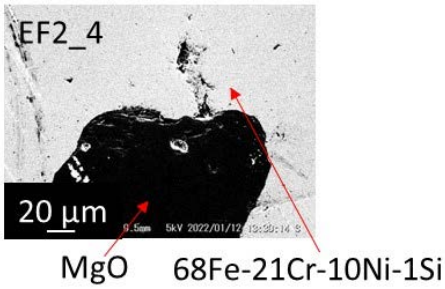


図 3.2.3-31　EF2_4 の二次電子像および元素分析結果

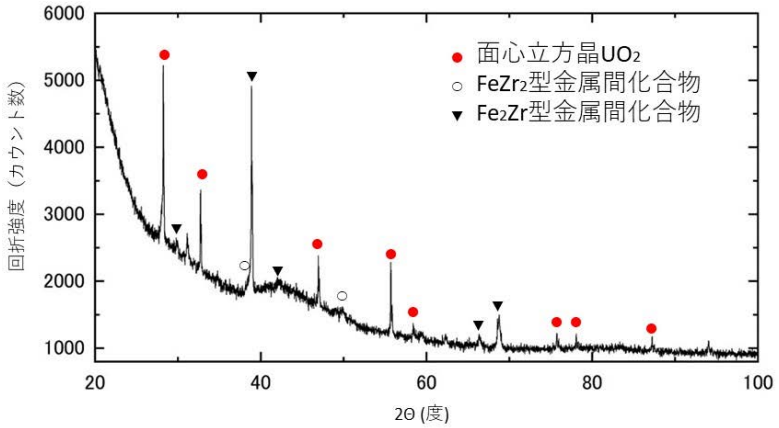


図 3.2.3-32　試料断面の X 線回折プロファイル（EF1）

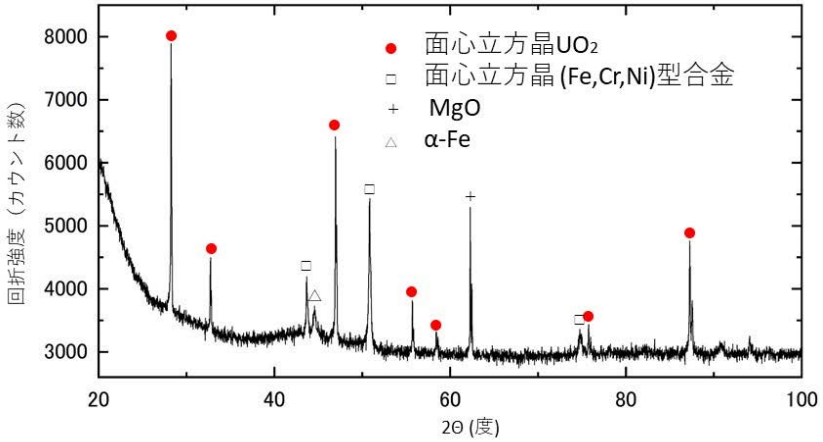


図 3.2.3-33　試料断面の X 線回折プロファイル（EF2）

3.2.4　模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明

本項目では「3.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価」を総括して、1F 2、3 号機における下部プレナムでの金属デブリ形成メカニズム、および原子炉圧力容器（以下、「RPV」と略す。）破損挙動の解明を検討する。令和 3 年度は、1F プラントデータや SA コードによる解析結果から現状の事故シナリオについてまとめた。また、1F の内部調査結果と事故シナリオを比較することで、下部プレナムにおける金属デブリの移行挙動および構造物の破損挙動を推定し、令和 4 年度に実施する試験の方針を整理した。

3.2.4.1　2、3 号機の事故シナリオ

(1) 2 号機事故シナリオ[20][21][22]

図 3.2.4-1 に 2 号機の事故シナリオを示す。事故当時の時刻ごとの RPV および原子炉格納容器（以下、「PCV」と略す。）の圧力測定データとその時の事故進展状況を模式図で示している。2 号機では、炉心溶融からのスランピング、その後のペデスタルへのデブリ流出は、主蒸気逃がし安全弁（以下、「SRV」と略す。）開による RPV 減圧が発生した 3 月 14 日 18:00 頃から 3 月 15 日 16:00 頃までに発生したと推定される。14 日 18:00 頃の SRV 開による急激な減圧の結果、冷却水が減圧沸騰することで、短時間で冷却水水位が低下し、全炉心がボイド化したと考えられる。この減圧、冷却水消失により、炉心は低圧で水蒸気量が少ない条件下で崩壊熱により昇温していったと考えられる。14 日 20:30 頃から RPV 圧力が上昇しており（第 1 圧力ピーク）、このタイミングで炉心溶融が進行した可能性がある。

炉心溶融からスランピングまでには 3 回の RPV 圧力の上昇が測定されている。第 1 圧力ピークについては、炉心への水蒸気供給により、炉心部の金属（ジルカロイ）の酸化反応により水素の発生、反応熱による急速な昇温で炉心溶融が進行したと推定される。この水蒸気は、注水により冷却水水位が炉心底部以上に上昇する、または制御棒ブレード材等の溶融、崩落により発生した可能性が挙げられる。この第 1 ピークでは、制御棒ブレードやチャンネルボックス等の金属が溶融していた可能性はあるが、これは限定的であり、炉心下部や炉心支持板に落下し、そこで凝固していた可能性が高い。燃料棒についても、燃料ペレット-被覆管の反応により一部が溶融を開始していた可能性が存在しているが、第 1 圧力ピークと第 2 圧力ピークの間は RPV、PCV 圧力共に変動が小さいことから大規模な溶融は発生していないと考えられる。第 2 圧力ピークでは、RPV 圧力が大きく上昇し、このタイミングで炉心溶融物のスランピングが発生したと考えられる。炉心溶融からスランピングまでの時間が比較的短い 2 号機では、炉心の溶融プールは限定的であったと考えられる。また、水蒸気量が少ない状況下での炉心溶融と経過時間の短さから、スランピングした炉心溶融物においては金属の酸化は 3 号機に比べて小さかった可能性がある。一方で、スランピングする炉心溶融物は少ないため、スランピング後の水蒸気発生により、炉心に残存している金属物質の酸化反応が進んだ可能性もある。その場合、下部プレナムには酸化度が高いデブリが堆積している可能性がある。第 3 圧力ピークについては、継続していた水蒸気発生と SRV が閉じたことにより発生したと推定される。

スランピング後からデブリの PCV 流出までのシナリオとして、まず 15 日 4:00 過ぎ頃には RPV 圧力が低下しており、冷却水の枯渇、ドライアウトが発生したと考えられる。スランピングで落下した燃料デブリとしては、上述のとおり炉心溶融プールの形成が限定的だったことから粒子状、または炉心構造物が崩落した破片状だった可能性が高い。また、炉心溶融物は酸化度が小さい金

属リッチなデブリとして存在している可能性がある一方で、スランピング時の水蒸気により炉心で酸化した金属および燃料ペレットが崩落した酸化物デブリが存在している可能性もある。RPV のドライアウト後には下部プレナムのデブリの温度が上昇し、デブリの金属成分が溶融して金属プールが形成された可能性がある。金属プールが形成された場合、対流伝熱により RPV 側部が破損し、溶融金属が PCV に流出する可能性がある。続いて CRD 貫通部や RPV 底部の破損が進行し燃料デブリが PCV に流出した可能性がある。PCV へのデブリ流出過程においても比較的短時間で発生していると考えられ、流出したデブリは溶融金属や金属リッチデブリのような低融点の溶融物が主体であった可能性が高く、炉心部には未溶融の酸化物デブリが多く残存している可能性がある。

以上のように、2 号機においては、水蒸気による酸化が限定的な金属リッチなデブリが発生している可能性がある。特に下部プレナムで溶融金属プールを形成し、RPV が破損、PCV に流出した可能性がある。

(2) 3 号機事故シナリオ[20][23]

図 3.2.4-2 に 3 号機の事故シナリオを示す。3 号機の炉心溶融、デブリの PCV への流出は 3 月 13 日に高圧注水系（以下、「HPCI」と略す。）による注水が停止した後から、3 月 14 日 11:00 頃の水素爆発までに発生したと推定される。注水停止後の正門付近で高い線量が検出された 13 日 5:30 頃には炉心溶融が開始していたと予測される。13 日 9:00 時頃の自動減圧機能（以下、「ADS」と略す。）作動により RPV が減圧し、冷却水が減圧沸騰することで、急激に冷却水水位が低下したと考えられる。炉心溶融からスランピングまでの経過時間が 2 号機よりも長く、より高温で規模の大きな溶融プールを形成していた可能性がある。このとき、冷却水中にあった炉心支持板により溶融プールが保持されていた可能性がある。また、この時の炉心には、まだ冷却水が存在しており、高圧で水蒸気量の多い雰囲気であったと考えられ、スランピング時の炉心溶融物、特に金属物質の酸化度は 2 号機よりも大きかった可能性がある。しかし、炉心溶融プールにクラストが形成され、水蒸気との接触が阻害された場合は、溶融物に取り込まれた金属の酸化が抑えられる可能性も存在している。

RPV の圧力上昇が見られる 13 日 10:00 頃と 12:00 頃に、炉心溶融物のスランピングが発生したと考えられる。特に 12:00 頃の圧力上昇が大きく、大規模なスランピングが発生したと考えられる。この際に、炉心物質の多くが下部プレナムに落下し、炉心残存部の水蒸気酸化は 2 号機に比べて小さかったと考えられる。

13 日 20:40 頃からドライウエル（D/W）圧力が低下しており、これは RPV 内の水蒸気発生量の低下に連動しているものと考えられ、下部プレナムのドライアウトが発生した可能性が高い。ドライアウト後は、デブリ温度の上昇により、RPV の破損とデブリの PCV への流出が発生したと考えられる。14 日 0:00 頃からの PCV 圧力上昇から、この時間頃からデブリの PCV 流出が発生したと考えられる。ただし、この時の PCV 圧力上昇は緩やかなことと、同日の 7:00 頃まで圧力上昇が続いていることから、デブリの PCV 流出についても緩慢であった可能性が高い。下部プレナムにスランピングした炉心溶融物は、上述のとおり酸化の進んだ金属や燃料酸化物を含む酸化物デブリが主だと考えられる。一方で、このデブリの温度上昇により、下部プレナム構造物が溶融して金属溶融プールを 3 号機においても形成する可能性がある。この溶融金属が PCV への初期流出物の可能性がある。また、PCV 流出期間が長いことから、酸化物デブリも溶融し PCV へ流出した可能性がある。

以上のように、3 号機では炉心溶融、RPV 破損共に 2 号機に比べて経過時間が長く、溶融の規模が大きかったと考えられる。特に、金属酸化物や燃料酸化物が溶融した酸化物デブリを形成した可能性が高い。

3.2.4.2　2、3 号機の事故シナリオと内部調査結果の比較

(1) 2 号機の内部調査結果と事故シナリオの比較

本項目では 2 号機について、東電が実施した内部調査結果と、3.2.4.1 で述べた事故シナリオを比較し、双方から予測されるデブリの形成メカニズム、性状を推定する。

図 3.2.4-3[24]に 2 号機 RPV 底の CRD 機構部の写真を、図 3.2.4-4[24]にグレーチング部（図 3.2.4-3[24]の真下付近）の写真を示す。CRD 底部や RPV の底には、広い範囲に茶色の付着物が存在していることがわかる。広い範囲に付着しており、低粘性の溶融物が RPV の底を伝って構造物表面に広がったと考えられる。また、CRD 構造物のステンレスが形状を維持しており、この落下物の温度はステンレス融点以下であったと考えられる。これらのことから、先行溶融物として、低粘性、低温の溶融物が存在していた可能性がある。事故シナリオでの溶融金属プールがこの先行溶融物に当たると考えられる。低融点金属プールを形成においては、Fe-B や Fe-Zr の反応が挙げられ、続く RPV 破損メカニズムについても従来の伝熱対流以外に材料反応による溶融の可能性が考えられる。

次に、グレーチング部では、一部溶融崩落している中、上部に横に広がったような形で付着物が広がっている。こちらの溶融物は、グレーチング材を一部溶融させていることからそのステンレス融点程度の温度で落下してきたと考えられる。また、グレーチング上の横の広がりから、ある程度の粘性を持ち、付着、堆積したと考えられる。落下してきた溶融物としては、ある程度の粘性を持ったステンレス融点程度の温度の溶融デブリも存在している可能性がある。この溶融物は酸化物デブリではなく、金属リッチデブリ（一部酸化物を含む）の可能性が高い。事故シナリオ上でも酸化物デブリの溶融は進展していないと考えられ、溶融金属プールの流出後に、RPV 底部を破損させて流出した金属リッチデブリがこれにあたると考えられる。RPV 底部やグレーチングといった構造物を溶融し下部に移行しているため、その移行経路において、組成や酸化度を変化させながら分布している可能性がある。

図 3.2.4-5[25]に示すペデスタル底部の写真では、炉心構造物が落下していることから RPV が破損し、ある程度の穴が開いていることが示唆される。また、ペデスタルには小石状の堆積物が存在しており、限定的な溶融物が落下していることがわかる。2 号機に関しては、酸化物デブリの溶融、移行は限定的だと考えられ、金属デブリの他には凝固している酸化物や構造物の小片が落下していると考えられる。

(2) 3 号機の内部調査結果と事故シナリオの比較

3 号機についても 2 号機と同様に、デブリの形成メカニズム、性状を推定する。

図 3.2.4-6[26]に 3 号機の CRD ハウジング支持金具ハンガーロッド部の写真を、図 3.2.4-7[26]にプラットフォーム周辺部の写真を示す。CRD のフランジボルト部に茶色の付着物が存在していることが写真から確認できる。またプラットフォーム上部に茶色の盛り上がりが付着している。これらの溶融物は、付着部の構造材が溶融、破損していないことからステンレス融点以下の溶融物であったと考えられる。プラットフォームの付着物は、上面のみに存在しており、液滴が落下、凝固しているように見える。これらのことから、3 号機においても、低粘性かつ低温度の先行溶融

物が存在していたことが示唆される。3 号機においても 2 号機のように下部プレナムで溶融金属プールが形成された可能性がある。事故シナリオ上では、2 号機に比べて金属デブリの酸化が進んでいることが予測されるため、この溶融金属プールは主に下部プレナム構造物（CRD 等）が溶融して形成された可能性がある。

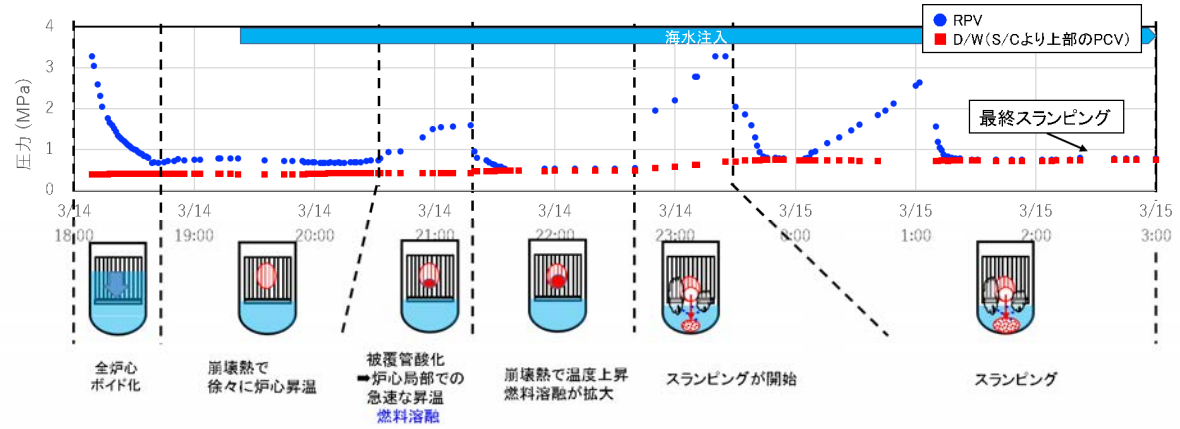
図 3.2.4-8[26]にペデスタル底部の写真を示す。数 m 規模の塊状の堆積物が確認されている。ペデスタル部に、かなりの量の溶融物が落下しており、これが燃料デブリだと考えられる。3 号機はデブリの PCV 流出の移行期間が長く、酸化物デブリも溶融し PCV へと流出したと考えられる。この燃料デブリ移行時の温度については不確かさが大きく、酸化物デブリが溶融しているとすると、温度は 2000 ℃以上になると考えられる。

3.2.4.3　まとめ

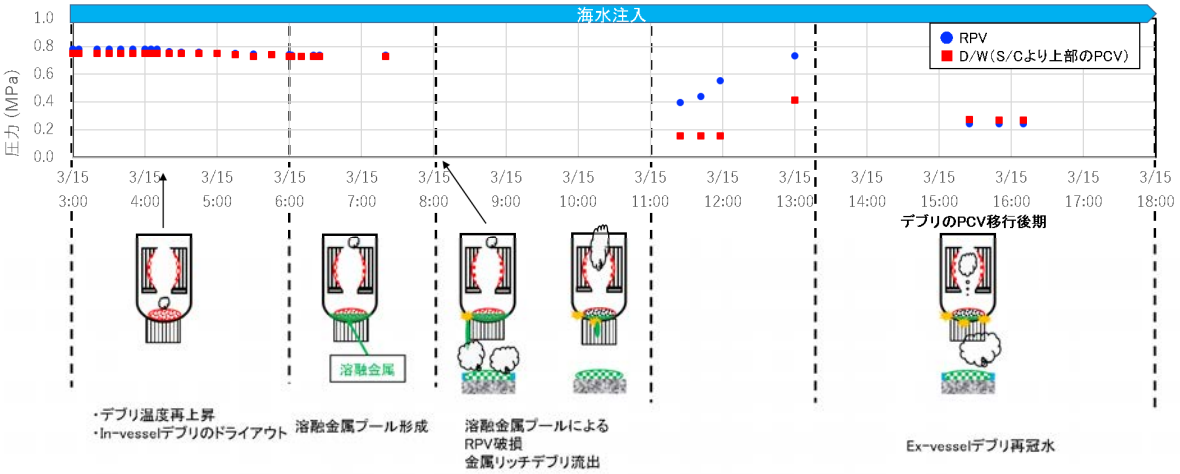
1F のプラントデータやこれまでのシビアアクシデント解析の知見をもとに、2、3 号機の事故シナリをまとめた。また、内部調査結果と照らし合わせてデブリの形成メカニズムと性状に付いての推定を行い、令和 4 年度の試験条件決定のための方針を整理した。

2 号機については、炉心溶融物が短時間でスランピングしたと見られており、炉心金属の酸化が限定的だったと考えられる。そのため、下部プレナムで低融点組成の溶融金属プールが形成し、RPV が破損、先行溶融物として PCV に流出した可能性がある。また、金属リッチデブリの PCV 流出が推定され、酸化物デブリは未溶融で下部プレナムに残存している可能性がある。2 号機においては炉心材料の Fe や B、ジルコニウムの反応による低融点溶融物の形成や、その液相と構造材の反応挙動を理解することが必要である。また、これらの溶融物は構造材と接触、反応し凝固を伴いながら移行するため、それらの複合的な現象を考慮する必要がある。また、2 号機では金属リッチデブリの PCV 流出の可能性があり、その性状を把握するためには酸化物（ウラン等）の金属層への移行挙動を理解する必要がある。

3 号機については、2 号機に比べ炉心溶融物の酸化が進行している条件と推定されるが、下部プレナムにおける溶融金属プールが形成された可能性が示唆されている。そのため、未酸化の金属が残存するメカニズムや、下部プレナム構造物が溶融した際の溶融金属プールの性状を調査する必要がある。また、3 号機では酸化物デブリも溶融し PCV に流出したことが考えられる。酸化物が溶融する高温条件下における RPV 構造材の溶融破損挙動を考慮する必要がある。



(a)



(b)

図 3.2.4-1　2 号機事故シナリオ　(a)スランピングまで　(b)RPV 破損まで

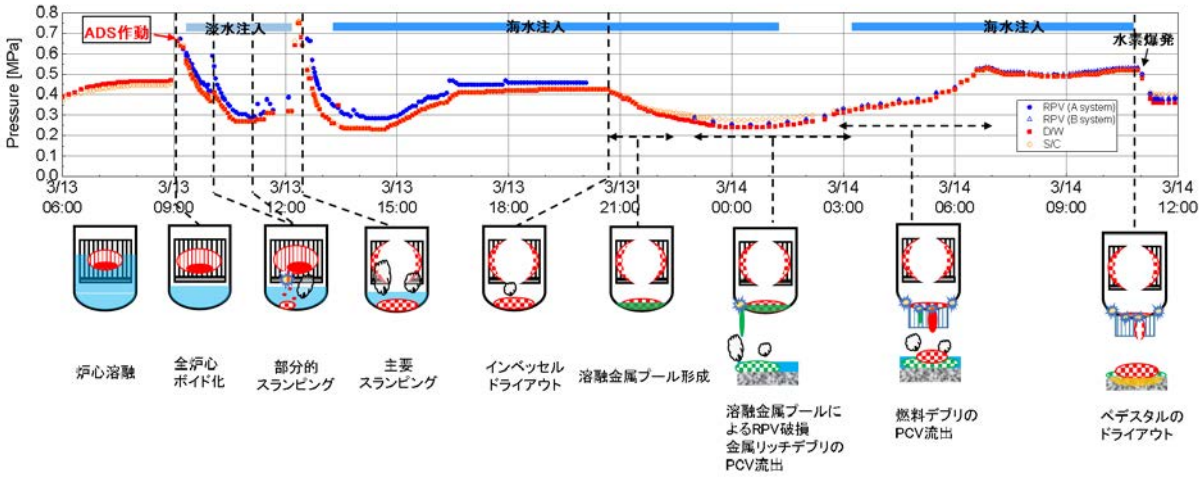


図 3.2.4-2　3 号機事故シナリオ

図 3.2.4-3　2 号機格納容器内　CRD 周辺[24]
（出典：東京電力ホールディングス）

図 3.2.4-4　2 号機格納容器内　グレーチング部[24]
（出典：東京電力ホールディングス）

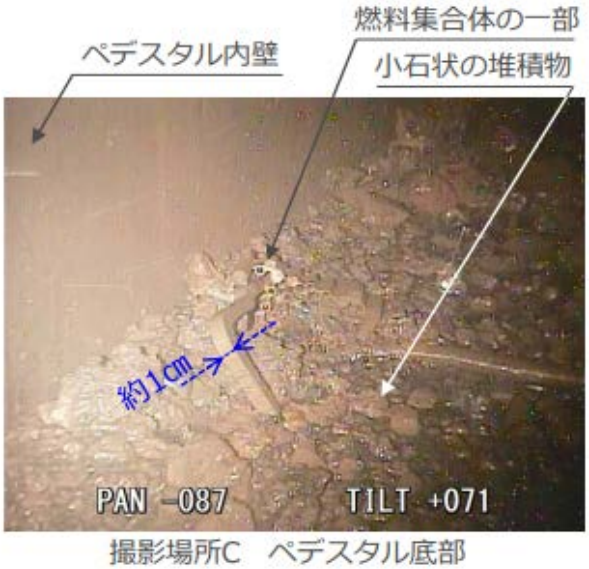


図 3.2.4-5　2 号機格納容器内　ペデスタル底部[25]
（出典：東京電力ホールディングス）

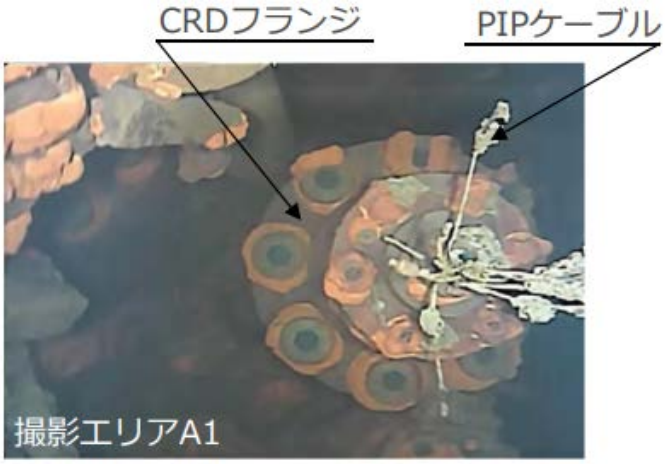


図 3.2.4-6　3 号機格納容器内　CRD ハウジング支持金具ハンガーロッド[26]
（出典：東京電力ホールディングス）

図 3.2.4-7　3 号機格納容器内　プラットフォーム周辺（写真右が上部）[26]
（出典：東京電力ホールディングス）

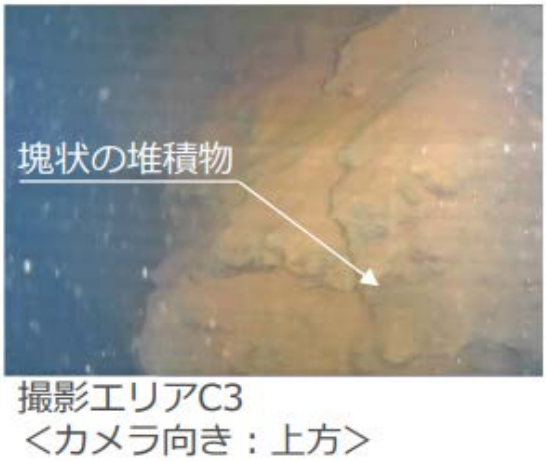


図 3.2.4-8　3 号機格納容器内　ペデスタル堆積物[26]
（出典：東京電力ホールディングス）

3.3　デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

3.3.1　3 号機下部プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査

(1) 目的

最近の事故進展解析により、2、3 号機では事故時炉内の最高到達温度が PWR 典型事故条件に比べて数百度低い評価結果が得られていることから、金属濃度が高い“金属デブリ”が先行的に溶落・移行したと考えられている。3 号機に関しては、溶融金属デブリに酸化物が部分的に溶融した“固液混合デブリ”が形成されたと推定されている。この“固液混合デブリ”は、溶融途中から徐冷された可能性がある、など非平衡過渡で形成された均一性の低い物質であると考えられて、従来の模擬試験で調製されるような平衡・均質状態の物質とは異なる物性を持つと思われる。本実施項目では、これまでに得られている 3 号機の事故進展シナリオに基づいた化学条件で固液混合デブリ模擬物質を作製し性状分析を行うが、令和 3 年度は模擬デブリ作製に必要なコールドクルーシブル実験装置の構築、予備実験による動作確認、本試験に向けた実験条件策定を実施した。

(2) 実施内容

① 実験装置の構築

チェコ共和国原子力研究所（CVR）に既設のコールドクルーシブルを活用し、半溶融酸化物燃料デブリの模擬作成を可能とするための実験システムを構築した。実験装置の外観を図 3.3.1-1 に示す。

コールドクルーシブル（φ5.7 cm）は高周波誘導コイルの内側に装荷されており、上部からステンレス鋼を挿入できるようになっている。炉上部には真空排気管が接続されており、高温溶融過程で発生するエアロゾルを炉外へ効率的に排出する。なお、試験はアルゴン雰囲気で実施するようにガス系統を設置した。水冷されたコイルに交流電流を通じることにより、水冷された銅セグメントで構成されたコールドクルーシブルに誘導電流が生じ、それにより試料がジュール加熱される。その際、コールドクルーシブルと試料に生ずる誘導電流は、逆向きなので反発の電磁力が働き、原理的には浮遊も可能となる装置である。誘導加熱には加熱効率が最大化する位置があり、そのマッチングのため試料台は可動式である。

② Fe-Fe_2O_3-ZrO_2 混合物を用いた予備実験

構築した実験システムの安全性（冷却材喪失や金属溶融物の漏洩が起きない）および放射温度計による固液二相状態の温度測定が適切に実施されるかどうかを確認するために、Fe-Fe_2O_3-ZrO_2 を用いた予備実験を行った。予備実験に用いた試料の組成を表 3.3.1-1 に示す。試料は全体で 700 g となるように調整した。また、クルーシブルの上方にはステンレス棒が設置されており、固液二相状態となった試料へ上から挿入できるようになっている。

あらかじめ酸化物試料 560.4 g をクルーシブルに充填した上に初期溶解用に 5.6 g の小片を置き、所定の位置に設置して電源を投入し加熱実験を開始した。加熱開始から 60 秒後に小片が溶解した。次に加熱効率が最大化する位置まで試料台を上昇させて酸化物を完全溶融し、そのまま 600 秒維持して熱平衡させた。アルゴンガスを炉下部から 33.6 l/min の流量で導入し融体から発生するエアロゾルを滞留させないようにした状態で、鉄 139.6 g を炉内に導入した。この際、アルゴン放電が起きないようにするためにアルゴン流量を 16.8 l/min まで減少させて炉内制御を行った。鉄投入後、240 秒に渡って熱平衡させた。このとき、表 3.3.1-1 に示す組成の理論的融点である 1884 ℃近傍に安定化するのを確認した。次に、固液二相状態を作成するために出力を調整し

て 1500 ℃まで低下させて 20 秒間安定化させた。この状態でステンレス棒を上から挿入した。ステンレス棒の中心に装荷されている R 熱電対を監視したところ、挿入後 10 秒で 800 ℃まで温度が上昇した。この時点で電源を落として実験を終了した。

③ 熱力学評価による試験条件決定

コールドクルーシブルを用いたウラン含有固液混合模擬デブリ作製にあたり、本試験に向けた試験条件を決定するための解析的評価を行った。経済協力開発機構原子力機関（OECD/NEA）が主導して行った福島第一原子力発電所事故ベンチマーク解析プロジェクト(Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station：BSAF）では、SA コードを用いて事故炉内のデブリ分布を解析した[27]。その結果によると、3 号機では RPV 破損を起こすと予測した研究機関と、破損を起こさないと予測した機関に分かれており、前者のケースにおける下部プレナム燃料デブリ平均組成は表 3.1.1-2 の通りである。SA コードに実装されているモデルには、固液混合状態の燃料デブリと鋼材の化学反応について考慮されておらず、UO_2-ZrO_2 酸化物が溶融するまで炉内温度が上昇したかどうかが解析結果に大きく左右する。このため、RPV 破損を予測した機関の燃料デブリ組成は酸化物割合が多く、金属割合（ジルコニウム）が小さい結果となっている。しかし、RPV 破損が PWR 典型事故条件よりも低い温度で起きた可能性を考えると、従来の解析では RPV 破損が起こらないとされていた条件においても、実際には破損に至ることが考えられる。したがって、本実験で作成する模擬デブリは、従来解析結果で「RPV 破損が起きない」とされたケースで得られた燃料デブリ組成を参考にした模擬デブリを作製しステンレス鋼との反応性を評価する。

具体的な組成を決定するために、Thermo-Calc ソフトウェア[28]と TAF-ID 熱力学データベース[29]を用いて熱力学評価を実施した。はじめに各機関の解析結果から燃料デブリにおける UO_2/ZrO_2/Zr 割合を抽出し、U-Zr-O 三元系における理論的融点を計算した。次に、「圧力容器破損が起きない」とされた 2 ケースの理論的融点平均値を求めて模擬試料組成とした。さらに、当該組成における平衡相割合の温度依存性を計算し、固液共存状態が実現する温度領域を定めて実験温度を決定した。

(3) 結果および考察

① Fe-Fe_2O_3-ZrO_2 混合物の変化

試験後試料の切断面には、銀色の金属領域と黒色の酸化物と考えられる領域が不均一にみられる組織であった。切断面から特徴的な 5 点（①インゴット底部の金属領域、②①よりやや上部にある金属領域、③インゴット中側部の黒色領域、④インゴット中心部の金属・黒色混合領域、⑤インゴット中心部の金属領域）を抽出して蛍光 X 線分析（XRF）による組成分析を実施した。

領域①および⑤には Fe98-99 wt%が含まれており、ほぼ完全な鉄に近い状態であった。これらの分析点は、インゴットの中心部から底部にかけて広くみられる金属領域の一点である。特に、インゴット底部には金属領域が広く存在しており、高温状態で液相中の Fe 成分が移動したことによると考えられる。

領域②の組成は Fe-Zr17.98-Hf0.37-Cr0.70-Ni0.25（wt%）であり、ジルコニウムを一定量含む液相であったと考えられる。クロム、ニッケルが検出されたことから、挿入したステンレス棒が固液混合物によって溶解した結果形成されたものであることがわかる。

領域③の組成はFe-Zr50.24-Hf0.85-Cr0.06（wt%）であり、黒色を呈していることからも酸化物であることがわかる。領④は黒色物質と金属物質が入り交ざっている部分の平均組成であるが、領域③に近い組成（Fe-Zr49.9-Hf0.96-Cr3.7-Ni0.22 wt%）であった。インゴット側面部に広く存在する黒色物質とインゴット中心部に金属領域と混ざって存在する部分の黒色物質の Fe/Zr はほぼ同じ（0.88、0.94 at%比）であることから、酸化物固相と金属液相が不均一的に形成されたと考えられて、令和 3 年度の目的であるコールドクルーシブルを用いた固液二相状態の高温金属酸化物を適切な温度制御により作製する方法を確立できたことを確認した。

さらに、試験組成を用いて平衡計算結果との整合性を確認した。平衡計算の結果から 1500 ℃における平衡相は、液相（62 vol%）・ZrO_2酸化物（25 vol%）・Fe（12%）の三相共存領域である。1600 ℃以上では液相はFe と Fe-Zr-O の二相分離することから、本試験では二相分離した液相のうち密度の高い Fe が底部に移行したと考えられる。試料中上部にかけて金属領域に黒い酸化物状のものがみられるのは、出力を低下させて 1500 ℃に降温させる過程で液相中に析出したものと思われ、得られた試料状態と整合する。これらの結果から、酸化物融体に金属を追加投入することで完全に均一溶融させずに固液状態を作製できるような実験システムを構築できたことを確認した。

② 本実験条件の決定

ウランを用いた模擬デブリ作製の本実験条件を評価した。表 3.3.1-2 に示される BSAF プロジェクト参加機関による 3 号機の炉内燃料デブリ平均組成に対する理論的融点は、「RPV 破損を起こす」シナリオにおいて 2500 ℃以上、「RPV 破損を起こさない」シナリオにおいて 2230～2240 ℃であった。したがって、本研究では理論的融点が 2235 ℃となるような U-Zr-O 三元系組成をもつ材料の組み合わせを採用する。「RPV 破損を起こさない」シナリオを示す 2 組成を結ぶライン上で、理論的融点が 2235 ℃であるような組成を平衡計算によって求めたところ、UO_2-22ZrO_2-22Zr (mass%) が適切であると判断した。

次に、当該組成における平衡相割合の温度依存性を計算した結果を図 3.3.1-2 に示す。理論的融点 2350 ℃以上において液相体積率 100%であり、温度を低下させると、2230 ℃付近から $(U,Zr)O_{2-x}$酸化物が、1950 ℃付近からα-Zr(O)が析出し始める。いったん酸化物の析出が始まると固相体積率が急速に増加し、液相体積率は 2180 ℃近傍では 50%、2100 ℃では 30%まで減少する。固液共存領域は 1850～2350 ℃であるが、一定割合以上の液相関与を評価することを目的として 1950～2230 ℃を試験温度域と定めた。

(4) まとめ

固液二相状態を放射温度計で温度制御する方法を確立するためにFe-Fe_2O_3-ZrO_2混合物を用いた予備実験を実施し、1)酸化物・金属の混合物を溶融し、2)出力を下げて固液二相状態を作製し、3)ステンレス棒を上部から挿入し、4)一定時間保持した後出力を落として凝固させる、という方法によって模擬物質を作製できることを確認した。試験後試料の底部に Fe 主成分および中部に Fe-Zr 主成分の金属領域、周辺部に酸化物が得られて、XRF 分析と平衡計算の比較により固液共存状態の溶融物を作製できたことを確認した。

表 3.3.1-1　Fe-Fe_2O_3-ZrO_2 予備実験試料の組成

	mass%	mol%
ZrO_2	37.8	33.0
Fe_2O_3	42.2	28.5
Fe	19.9	38.5
Total	100.0	100.0

表 3.3.1-2　BSAF プロジェクトによる炉内燃料デブリ平均組成解析結果[27]

(wt%)

RPV 破損有無	研究機関（SA コード）	UO_2	ZrO_2	Zr	SUS
no	CIEMAT（MELCOR）	55	18	18	9
no	PSI（MELCOR）	45	20	20	15
yes	IAE（SAMPSON）	65	18	7	10
yes	原子力機構（THARES）	45	25	3.5	20

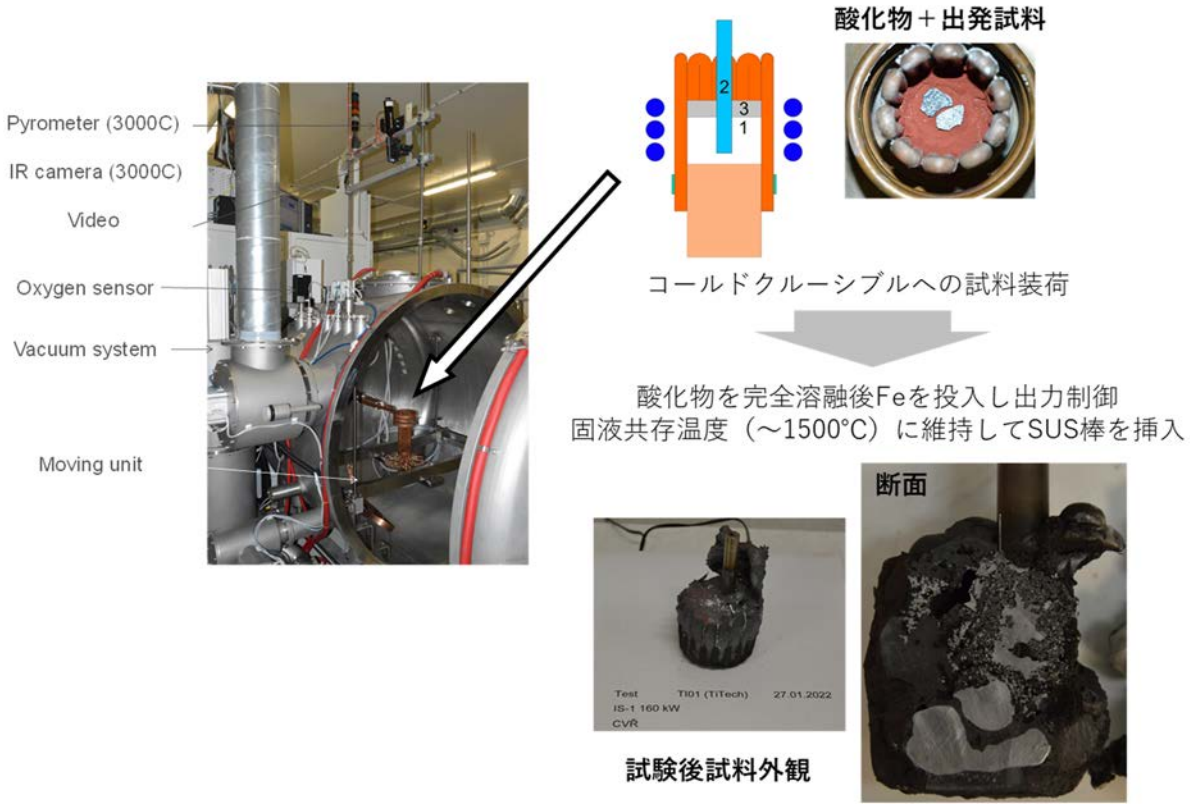


図 3. 3. 1-1　コールドクルーシブル装置を用いた予備実験

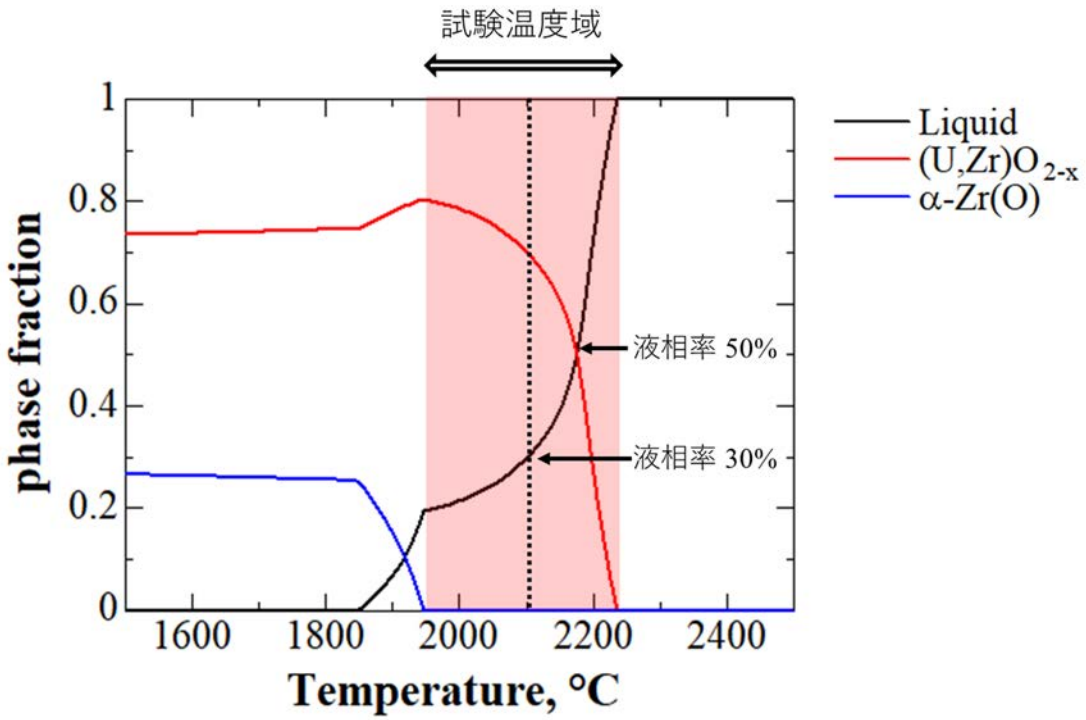


図 3.3.1-2　本試験組成における平衡相割合の温度依存性

3.3.2　燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計

(1) 目的

シビアアクシデント解析やデブリ伝熱解析といった Forward Analysis だけでは、1F 事故の不確かさを減らすことが難しく、材料科学的な模擬試験での補強（Backward Analysis）が望まれている。その状況の中で、UO_2 を含む多様な模擬デブリの合成と特性評価ができる試験装置を設計し、模擬物質による半溶融状態に関する予備的知見を取得することを目的に、本研究を実施した。

(2) 実施計画の概要

シンフォニアテクノロジー株式会社（以下、「シンフォニア」と略す。）が保有する CCIM を用いて HfO_2 を UO_2 の模擬物質とした溶融・凝固試験を行う。この試験で、融点の低いジルコニウムや SUS が、UO_2 が溶融する前に蒸発してしまうことがないような炉の設計および溶融条件を見出す。

(3) スケジュール

令和 3 年度：シンフォニアに HfO_2 を用いた模擬溶融試験を依頼

令和 4 年度：シンフォニアに CCIM 炉を用いた UO_2、Z/ZrO_2 および SUS の同時溶融条件の検討を依頼

令和 5 年度：シンフォニアに UO_2、Z/ZrO_2 および SUS の同時溶融 CCIM 炉の設計を依頼

(4) 実施結果

① 文献ならびに過去の実績調査

S.W.Hong 等は、シビアアクシデントの際の原子炉プラントの安全性を評価するために、ZrO_2 と UO_2 の混合物の溶融物をつくることの必要性を認識し、高融点材料をコンタミネーションなく溶融できる CCIM での UO_2/ZrO_2 溶融試験を実施している[30]。CCIM の RF 周波数は、酸化物融体の電気抵抗値とるつぼ径から最適値を求めている。最初に実施された TiO_2 溶融試験では、“initiator”と称されるチタンリングを TiO_2 粉末中に設置、このチタンリングの加熱・酸化とともに TiO_2 粉末が溶融された。次に、ZrO_2 の溶融試験がジルコニウムリングを“initiator”として実施された。この試験では、溶融試験中に発生する反応性ガスの放散を目的に粉末充填物中央部に φ2～3 cm 深さ 10 cm の穴が開けられた。最後に、UO_2/ZrO_2（7:3 wt%）の溶融試験もこれらの知見を基に実施され、成功裏に溶融試験を終了している。表 3.3.2-1 に TiO_2 と ZrO_2 の溶融試験条件をまとめた。一方、シンフォニアでも ZrO_2 の溶融試験が実施された[31]。彼らは、Hong 等とは異なり、加熱源として黒鉛棒を用い、原料はジルコニア（部分安定化ジルコニア、以下、「PSZ」と略す。）ボールであった。この試験では、黒鉛棒近傍の PSZ ボールが還元されて金属 Zr と思われる溶融物が生成、その溶融物が一定量に達したのを確認の後、黒鉛棒を除去して PSZ ボール全体の溶融が進められている。

表 3.3.2-1　Hong 等の報告例

	TiO_2	ZrO_2
Crucible	φ150×h 200 mm	同左
RF Power/Frequency	30 kw/350 kHz	150 kw/50 kHz
Initiator	Ti ring 粉末表面下 20～30 mm	Zr ring（φ50×h 10 mm） 同左
Hole on powder	φ20～30 mm	φ20～30×100 mm

② シンフォニアでの CCIM による溶融試験

1) ZrO_2 単体での溶融試験

Hong 等の報告ならびにシンフォニアでの実績を参考に、ZrO_2 単体での溶融試験を 3 回実施した。この溶融試験では、高周波による酸化物粉末の直接誘導加熱の可能性も念頭に置き、シンフォニアで実施可能な最も高い周波数（200 kHz）を選択した。また、原料として挿入する ZrO_2 のかさ密度を最大化する目的で、粉末状と顆粒状の混合物を原料とした。使用原料の種類ならびに溶融条件を表 3.3.2-2 に、CCIM 炉内構成を図 3.3.2-1 に示す。

表 3.3.2-2　ZrO_2 溶融試験条件

試験	装入原料	溶融試験条件	加熱源（initiator）
1-1	粉末・顆粒混合品※1 85 g	るつぼ:φ30×90 mm 周波数:200 kHz 出力:約 70 kW 雰囲気:Ar	Zr リング（外径 10 mm、内径 5 mm、厚さ 2 mm）
1-2			黒鉛棒（φ10 mm）
1-3			黒鉛棒（φ10 mm）

※1: 粉末ZrO_2　株式会社高純度化学研究所製 ZR002PB、粒径 約1 μm、重量比 2
顆粒ZrO_2　株式会社高純度化学研究所製 ZR002GB、粒径 1～6 mm、重量比 7

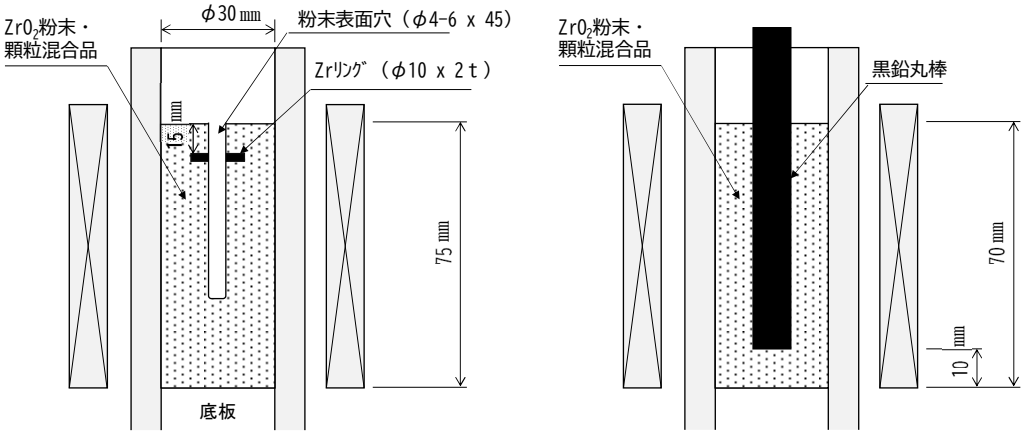


図 3.3.2-1　CCIM 炉内構成①
左：1-1 試験　　右：1-2、1-3 試験

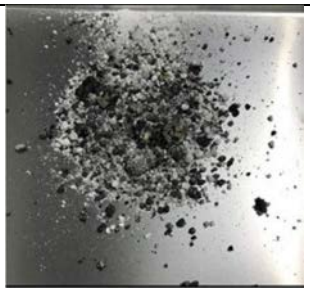
1-1 溶融試験は、Hong 等の報告にあったジルコニウムリングを initiator として用いて実施したが、酸化物粉末を溶融することはできなかった。取り出された白色粉末は、挿入原料と同じ単斜晶ジルコニアであることが XRD で確認された。一方、1-2 溶融試験では、シンフォニア実績を参考に黒鉛棒を加熱源として実施した。その結果、黒色と白色の混ざった物質が取り出され、加熱源として用いた黒鉛棒表面には黒色物質の付着と黒鉛棒の損耗が観察された。XRD での解析の結果、黒色物質は単斜晶 ZrO_2 と ZrC が、黒鉛棒付着物は単斜晶 ZrO_2、ジルコニア低級酸化物と正方晶 ZrO_2 がそれぞれ同定された。加熱源として黒鉛棒を用いることで酸化物の形態に変化があったことから、1-3 試験では、1-2 条件を踏襲し、加熱時に黒鉛棒で原料を攪拌する操作を追加した。その結果、1-2 試験とほぼ同等の結果であったが、黒鉛棒付着物はすべて ZrC になった（表 3.3.2-3）。

これら 3 回の溶融試験の結果、黒鉛棒を加熱源とすることで酸化物原料の状態を変化させることはできたが、酸化物の溶融はできなかった。その原因を Hong 等の報告ならびにシンフォニアでの実績と比較検討した結果、以下の 4 点の相違点が確認された。

・るつぼサイズ:今回の溶融試験のるつぼサイズが φ30 mm と小さかったため、水冷銅るつぼによる冷却がよく効き、温度があがりにくかったのではないかと考えられる。
・RF パワーと周波数:今回の溶融試験では酸化物の直接誘導加熱も念頭に置き、敢えて高い周波数を選択した。そのため RF パワーは小さくならざるを得なかった。誘導加熱されるのはジルコニウムリングと黒鉛棒のみと考えると、RF パワーが低かったために加熱が不十分で酸化物を溶融できなかったのではないかと考えられる。
・黒鉛棒のサイズ:シンフォニア実績では、φ44 mm黒鉛棒を使用しており、その対角長はるつぼ径の約 80%であった。これに対し今回の黒鉛棒は φ10 mmでるつぼ径の 33%である。水冷銅るつぼによる冷却がよく効く外周部に加熱源が存在しない今回の条件では酸化物の加熱が十分でなく溶融できなかったのではないかと考えられる。
・装入原料:シンフォニア実績では、PSZ ボールを原料として用いていた。ただ、PSZ の融点は ZrO_2 同様 2700 ℃と報告されており[32]、この差異が溶融できなかった原因とは考えにくい。

これらの相違点を考慮して、以降の溶融試験を実施した。

表 3.3.2-3　ZrO_2 単体での溶融試験結果

試験	1-1	1-2	1-3
試験後加熱源			
試験後材料			
XRD による相同定結果	白色物質:単斜晶ZrO_2	黒色物質:ZrC+単斜晶ZrO_2 白色物質:単斜晶ZrO_2 Gr付着物:単斜晶ZrO_2+ ZrO+Zr_3O+ 正方晶ZrO_2	黒色物質:ZrC+単斜晶ZrO_2 白色物質:単斜晶ZrO_2 Gr付着物:ZrC

2) ZrO_2、HfO_2、SUS の同時溶融試験 その 1

まず、ZrO_2 単体の溶融試験を過去実績に近い条件で実施した（表 3.3.2-4 の 2-1、2-2）。2-1 試験では、黒鉛棒を用いてシンフォニア実績に近い条件で試みた。その結果、1-2、1-3 試験より明らかに黒色物質の量が増加し、一部溶融した形跡のある結果が得られた。一方、2-2 では、ジルコニ

ウムリングを用いて Hong 等の報告に近い条件で試験したが、1-1 と同様酸化物の溶解はできなかった。そこで、ZrO_2、HfO_2、SUS の同時溶融を行う 2-2 試験は、黒鉛棒を用いた 2-1 条件を採用した。その結果、RF パワーが 170 kW（最高）に達する前の 100 kW の時点で装入原料全体が溶融し、泡だったような状態になった。そこで、黒鉛棒を引上げ、パワーを一旦 60 kW まで下げて、溶湯の泡立ちが収まるのを待った。その後、RF パワーを 100 kW まで再上昇させたが、再度溶湯の泡立ちが認められたことから、最高パワーの 170 kW まで上げることなく溶融試験を終了した（表 3.3.2-5）。

表 3.3.2-4　ZrO_2、HfO_2、SUS 同時溶融試験条件

試験	装入原料	溶融試験条件	加熱源（initiator）
2-1	Y-PSZ ボール：1000 g	るつぼ：φ80×125 mm 周波数：36 kHz 出力：約 170 kW（Max） 雰囲気：Ar	φ44 mm 黒鉛棒
2-2	ZrO_2 粉末：209 g		φ25×t2 mm Zr リング 4 枚
2-3	ZrO_2＋HfO_2 粉末※1：130 g SUS316L 塊：563 g		φ44 mm 黒鉛棒

※1 ZrO_2粉末110 gとHfO_2粉末20 gの混合物。モル比ではZr:Hf:Fe=8:1:91

表 3.3.2-5　ZrO_2、HfO_2、SUS 同時溶融試験結果

試験	2-1	2-2	2-3
試験後材料			

図 3.3.2-2 に 2-3 試料のマクロ観察結果を示す。試料断面には、分散物が存在する領域 1 とメタルマトリックスの領域 2 が見られた。図 3.3.2-3 に領域 1 と領域 2 の SEM 観察結果を示す。SEM 観察の結果、分散物界面には白色粒子が多く存在すること、メタルマトリックスには濃色相、淡色相、白色粒子が見られることがわかった。これら分散物、界面、濃色相、淡色相、白色粒子を SEM-EDX ならびに XRD で解析した結果、表 3.3.2-6 にまとめる相で構成されていることがわかった。

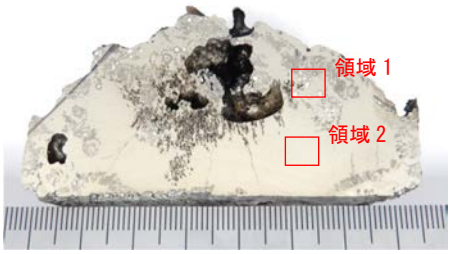


図 3.3.2-2　2-3 試料のマクロ観察結果

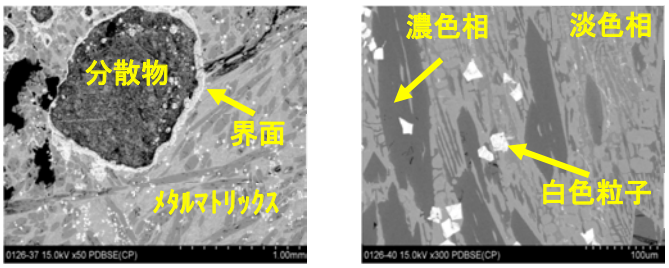


図 3.3.2-3　分散物近傍（左）とメタルマトリックス部（右）の SEM 観察結果

表 3.3.2-6　2-3 試料の構成相

	分散物	界面	濃色相	淡色相	白色粒子
主な構成相	単斜晶 ZrO_2	単斜晶 ZrO_2 ZrC、γ-Fe	M7C3	γ-Fe	ZrC

以上のように、2-3 試験では SUS と酸化物の全量溶融ができたが、作製された鋳塊中には、本来デブリに存在しえない ZrC や M_7C_3 の炭化物が生成していることから、模擬デブリ試作の溶解方法としては適切ではないと思われる。また、表 3.3.2-4 で示したように、2-3 試験で用いた原料組成のモル比は Zr:Hf:Fe=8:1:91 であり、想定しているデブリ組成より Fe が大幅に多い組成となっている。これらの問題点を踏まえ、以降の溶融試験では、デブリ組成に近い Zr:Hf:Fe 比率の原料で黒鉛棒を用いずに溶解できる条件の探索を行った。

3) ZrO_2、HfO_2、SUS の同時溶融試験 その 2

まず、原料の Zr:Hf:Fe 比率は 2-3 試験と同じ Fe 量が多い組成のままとし、黒鉛棒を使用せずに溶融できる条件の検討を行った（表 3.3.2-7:3-1、3-2 試験）。この検討において、加熱源は SUS だけになるため、SUS のるつぼ内配置に工夫を凝らした（図 3.3.2-4）。しかしながら、3-1、3-2 試験とも原料の全量溶融ができず、SUS の鋳塊以外に未溶融粉末が残った（表 3.3.2-7）。また、Zr:Hf:Fe=1:1:3 の原料組成（ZrO_2 96 g、HfO_2 163 g、SUS 133.7 g）で実施した 3-3 溶融試験も 3-1、3-2 同様未溶融粉末が残る結果となった。表 3.3.2-8 に投入原料と得られた鋳塊・未溶融粉末の関係をまとめた。3-1、3-2 の試験では 70%超の粉末が未溶解の状態で残り、原料の Zr:Hf:Fe 比を 3:1:1 とした 3-3 試験では、未溶解比率が 95%にも達した。ただ、これら 3 条件の鋳塊/SUS 比は 6%前後であり、一定量の酸化物は SUS 鋳塊中に取り込まれたことを示している。図 3.3.2-5、図 3.3.2-6 に 3-1 試料の断面ならびに鋳塊表面観察結果を示す。黒鉛棒を用いた 2-3 試料で観察されたメタルマトリックス中の単斜晶 ZrO_2 分散物は、3-1 試料中には全く認められなかった。一方で、試料表面には粉末原料の付着が多数見られたことから、SUS 重量に対する鋳塊重量の約 6%の増加（溶塊/SUS 比）は、これら表面・裏面の酸化物付着物によるものと思われる。

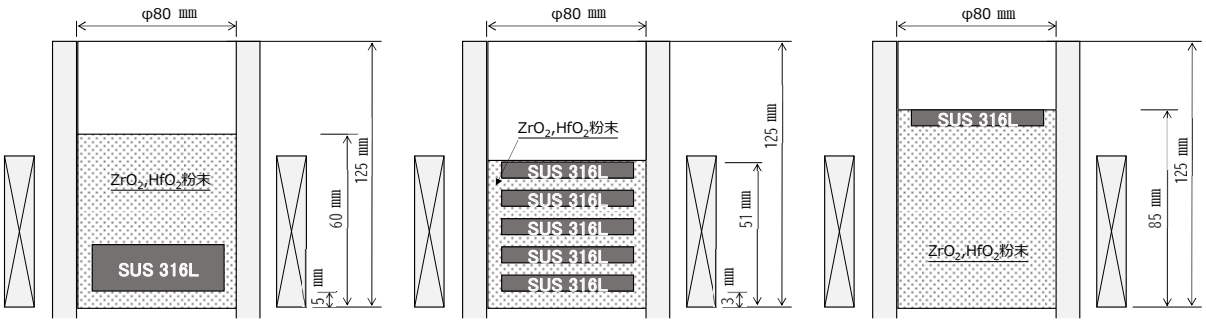


図 3.3.2-4　CCIM 炉内構成②
左：3-1 試験　中：3-2 試験　右：3-3 試験

表 3.3.2-7　ZrO_2、HfO_2、SUS 同時溶融試験結果

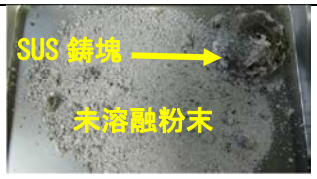
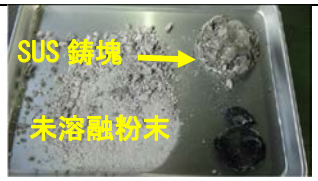
	3-1	3-2	3-3
試験後材料			

表 3.3.2-8　溶解結果のまとめ

	挿入原料(g)			取出し試料(g)			残粉/総粉比	鋳塊/SUS 比
	$ZrO_2$①	$HfO_2$②	SUS③	鋳塊④	粉末⑤	欠片⑥	⑤/(①+②)	(④+⑥-③)/③
2-3	110	20	562.7	666.1	0	4.6	0%	19.2%
3-1	110	20	563.0	595.5	98.1	0	75.5%	5.8%
3-2	110	20	554.9	569.8	95.8	18.9	73.7%	6.1%
3-3	96	163	133.7	142.1	247.4	0	95.5%	6.2%

図 3.3.2-5　3-1 試料の断面観察結果

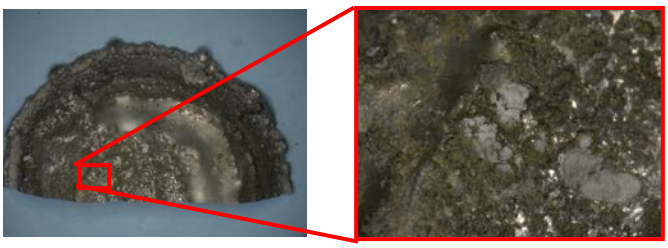


図 3.3.2-6　3-1 試料の表面観察結果

(5) CCIM 炉での UO_2、Z/ZrO_2、SUS 同時溶融のための方向性

黒鉛棒を用いずに CCIM で酸化物を含む原料を確実に溶融するには、以下の 2 つの方向性が考えられる。第 1 の方向性は、溶融時間の長時間化である。酸化物は、先に生成される金属溶湯との界面で加熱され溶融に至ると考えられるが、今回の溶融試験では、パワー投入から停止まで約 30 分、最高パワーでの保持時間は 10 分程度と短かったために酸化物全量を溶融できなかったと考えられる。ちなみに、Hong 等(1)は、パワー投入から停止までが約 2 時間、最高パワー近傍での保持が約 30 分の条件で溶融試験を行っている。

第 2 の方向性は、酸化物原料比率の低減である。今回の試験では、SUS（塊）、ZrO_2（粉末）、HfO_2（粉末）を原料として溶解試験を実施したが、ZrO_2 を Zr に変更して SUS（塊）、Zr（塊）、HfO_2（粉末）にすることで、酸化物原料の比率を重量比率で 66.6%→44.9%、体積比率で 67.1%→38.1%に下げることができる（表 3.3.2-9）。これにより、まず SUS とジルコニアの溶湯を作り、その後 HfO_2 の溶融を進めれば、デブリに近い組成物でも原料の全量溶融が可能になると考えられる。実際、原子炉内でのデブリ生成プロセスも、被覆管のジルカロイ、構造物材料の SUS の溶解から始まり、最

終的に高融点の UO_2 の溶解に至ることを考えれば、この原料の変更は、実際の現象にも矛盾しないと思われる。

表 3.3.2-9　原料粉末の見直し例

原料	重量
ZrO_2（粉末）	95.6
HfO_2（粉末）	163.3
SUS（塊）	130.0

粉末重量比率：　66.6%
粉末体積比率：　67.1%

➡

原料	重量
Zr（塊）	70.8
HfO_2（粉末）	163.3
SUS（塊）	130.0

粉末重量比率：　44.9%
粉末体積比率：　38.1%

3.4　Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価

11 月 18 日に開催された第 1 回 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会、令和 4 年 3 月 2 日に開催された第 2 回 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会、および 11 月 19 日に開催された 1F 試料評価委員会などで、本英知事業関係者に加え、他の英知事業や CLADS、東電、早稲田大学などと、SA コードによる事故進展シナリオやサンプル分析の結果に基づいた、ウラン粒子形成や圧力容器下部破損挙動に関わる知見をもとに本研究の試験条件について議論した。CLADS のプロジェクトで提案された 4 つの凝固パスフローの考え方等をふまえ模擬燃料デブリの組成を決定することとした。また、SA コードからでは推定できないことがあり、材料科学的な知見を取り入れることが重要との認識を共有した。

3.5　研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。令和 3 年 11 月 11 日に第 1 回目の研究推進会議、3 月 30 日に第 2 回目の研究推進会議を、いずれも CLADS、早稲田大学および東電の事故進展挙動解析の専門家も加えて本事業の試験条件等を議論した。

4.　結言（各章のまとめ）

4.1　酸化物デブリ化学状態の逆解析

4.1.1　1、2 号機サンプル分析に基づく、ウラン含有エアロゾル特性と形成条件の評価（再委託先：大阪大学）

エアロゾル生成と捕集のための技術を確立することを目標に、比較的蒸気圧が高くエアロゾルが容易に生じると思われる ZrO_2 や Fe_2O_3 を試料として用い、浮遊型レーザー加熱炉で加熱溶融させることで実際にエアロゾルを発生させた。エアロゾル捕集方法について検討し、効率的にエアロゾルを捕集するために浮遊型レーザー加熱炉に Si ウエハや導電性ガラスを設置し、エアロゾルを堆積させた。また、ZrO_2 や Fe_2O_3 よりも蒸気圧の高い Sb、Bi についても同様にエアロゾル発生試験を行った。これにより、エアロゾルの捕集が可能であることを確認した。

4.1.2　PCV 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価（福井大学）

ウラン粒子合成のために試料を 3000 ℃以上の温度に加熱できるように装置を改造し、模擬試料の作製を行った。大電流直流電源を整備し、タングステンパイプに詰めた UO_2 の加熱試験を実施し溶融凝固サンプルを作製し、1 μm 程度の粒子の生成が認められた。また、これまでに得られている UO_2 粒子の分析結果をまとめ令和 4 年度以降の $(U,Zr,Fe)O_2$ 模擬デブリ合成条件をまとめた。1F 試料評価委員会で紹介された分析結果、1F 事故進展基盤研究に関わる分科会で報告された 4 つの凝固パスフローの考え方等に基づき、サンプリングの分析より得られた U:Zr:Fe 比に該当する擬二元系状態図上において、同定された相より得られる MFO 線上の 1300 ℃前後の固相のみが存在する領域の化合物を出発物質とし、不活性雰囲気で冷却速度を変えて反応試験を行うこととした。

4.1.3　模擬物質の合成試験に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明（再委託先：大阪大学、福井大学）

項目 4.1.1 および 4.1.2 の令和 3 年度の成果をもとに、酸化物デブリの形成過程の解明のための試験条件について検討した。

令和 3 年度はそれぞれの実験条件について議論するとともに実験に必要な UO_2 の確保を行った。

4.2　金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

4.2.1　2、3 号機サンプル分析に基づく、金属デブリ形成メカニズムの検討と特性評価（再委託先：東京工業大学）

炉心崩落時の非平衡溶融凝固反応を模擬する実験体系を構築し、2、3 号機炉内金属デブリの材料学的性質を評価するための検証および分析方式を確立した。そのために、カーボン発熱体を用いた電気抵抗炉を改良し、高温（～2100 ℃）で溶融させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させたのち、形成組織を金属学的に分析し試験条件との相関を評価した。制御棒材などの金属物質が炉内下部構造材との反応・凝固挙動を把握するために、上チャンバーに金属物質を溶融できる発熱体およびるつぼホルダーを設置し、下チャンバーにその溶融金属と反応させるステンレス板材と受け皿を設置し、高温融体と低温固体金属を反応させるための非平衡溶融凝固反応試験炉を構築した。当該実験装置の温度分布測定および予備試験として Fe/Zr 溶融落下試験を実施した。反応後試料分析から、Fe-ステンレスでは伝熱のみ、Zr-ステンレスでは伝熱・反応の双方が起こることを確認した。

4.2.2　2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価
（再委託先：東北大学）

ステンレス融体の組成の変化に及ぼす固体構造物の接触状態と温度、雰囲気の影響を評価するために、溶融ステンレスと B_4C、ジルカロイの接触による成分元素移行挙動を速度論的に解析するための試験条件を決定した。まず、反応試験の準備と、反応条件設定のために TG-DTA によるステンレス鋼加熱の予備試験を行い、温度域および雰囲気などの試験条件の概略を決定した。さらに、試験炉の整備および ZrO_2 飽和下における B_4C と溶融ステンレス鋼の接触による反応を解析するための予備試験を行い、試験方法および解析方法の確立を行った。以上より令和 4 年度以降の試験条件を決定した。

4.2.3　2、3 号機内部調査結果に基づく、金属デブリによる下部プレナム破損メカニズムの検討と金属デブリの特性評価（連携先：原子力機構）

下部プレナムに金属リッチデブリが存在する際の、構造物との反応、破損挙動および燃料ウランと反応による金属ウラン形成挙動を実験的に求めるために、反応試験を実施した。また、原子力機構で過去に実施した下部ヘッド構造物破損試験の数値解析体系を整備し、令和 4 年度の大型試験条件設定を行った。金属物質（ステンレス鋼とジルコニウム混合物）と、圧力容器部材や溶接部材（ステンレス鋼やニッケル合金）との反応予備試験により、材質による反応速度の違いに関わる知見を得た。また、Ansys Fluent により、従来試験の温度分布を表現できることを確認した。さらに、水蒸気が圧力容器下部破損に与える影響を、試験的に評価するための試験体系を構築した。ウラン酸化物と金属物質（ステンレス鋼とジルコニウム混合物、ステンレス鋼）との反応予備試験により、ジルコニム金属存在下での金属ウランの形成を確認した。

4.2.4　模擬試験結果に基づく金属デブリの形成メカニズムと下部プレナム破損メカニズムの解明（再委託先：東北大学、東京工業大学、連携先：原子力機構）

項目 4.2.1～4.2.3 の結果をもとにして金属デブリ形成メカニズムおよび下部プレナム破損メカニズムの解明に向けての研究計画を検討した。

SA コードによる炉内燃料デブリ分布に関わる BSAF-1 報告書（OECD/NEA）や、現状の事故進展の最確シナリオを参照し、令和 4 年度から実施する、下部プレナムにおける金属物質の移行挙動、および金属物質が関係する圧力容器下部の破損挙動に関わる試験方針を立案した。

4.3　デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

4.3.1　3 号機下部プレナム条件を模した、酸化物燃料デブリ化学状態の調査
（再委託先：東京工業大学）

コールドクルーシブルによる半溶融酸化物デブリの模擬物質作製および評価方法を確立した。そのために、酸化物と金属の混合物を融点に到達しない温度域で保持し固液二相状態を呈する模擬デブリを作製し金属組織と温度履歴の相関を評価した。

固液二相状態を放射温度計で温度制御する方法を確立するために Fe-Fe_2O_3-ZrO_2 混合物を用いた予備実験を実施し、1)酸化物・金属の混合物を溶融し、2)出力を下げて固液二相状態を作製し、3)ステンレス棒を上部から挿入し、4)一定時間保持した後出力を落として凝固させる、という方法によって模擬物質を作製できることを確認した。試験後試料切断面の観察および蛍光 X 線分析から、ステンレス鋼を溶融した金属領域とジルコニウムを含む酸化物領域、鉄・ジルコニウ

ムからなる重い金属領域、を確認した。試験温度における平衡組成（解析値）に概ね整合する混合状態を得ることができた。

4.3.2　燃料デブリ研究用 CCIM 炉の設計（福井大学）

数グラムの UO_2 を含む多様な模擬燃料デブリの合成と特性評価ができる CCIM 装置の設計のために、UO_2 の模擬として HfO_2 を模擬物質とした溶融・凝固試験を外注し、酸化物が溶融する前に蒸発してしまうことなく同時溶融が可能なことを確認した。

その結果、SUS を主体とする溶湯生成が可能であることがわかり、SUS 溶湯と直接接する酸化物の溶解の可能性が示された。挿入する全ての酸化物を溶解のためには、SUS とジルコニウムを主体とする溶湯を生成させ、その後時間をかけて HfO_2 を溶解させる方法が提案された。

4.4　Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、連携先：原子力機構）

本研究実施者による 3.1 節～3.3 節で得られた知見に基づく号機・領域ごとの事故進展シナリオと燃料デブリ性状推定結果に加え、原子力機構、東電、必要に応じてプラントメーカー、解析研究機関等がそれぞれアップデートされた知見を持ち寄って、号機ごとのデブリ特性、形成メカニズムの評価を行うとともに、さらなる高精度化のための今後の試験条件を検討した。

令和 3 年 11 月 18 日に開催された第 1 回 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会、令和 4 年 3 月 2 日に開催された第 2 回 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会、および令和 3 年 11 月 19 日に開催された 1F 試料評価委員会などで、本英知事業関係者に加え、他の英知事業や CLADS、東電、早稲田大学などと、SA コードによる事故進展シナリオやサンプル分析の結果に基づいた、ウラン粒子形成や圧力容器下部破損挙動に関わる知見をもとに本研究の試験条件について議論した。CLADS のプロジェクトで提案された 4 つの凝固パスフローの考え方等をふまえ模擬燃料デブリの組成を決定することとした。また、SA コードからでは推定できないことがあり、材料科学的な知見を取り入れることが重要との認識を共有した。

4.5　研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

令和 3 年 11 月 11 日に第 1 回目の研究推進会議、令和 4 年 3 月 30 日に第 2 回目の研究推進会議をいずれも CLADS、早稲田大学および東電の事故進展挙動解析の専門家も加えて本研究の試験条件等を議論した。

参考文献

[1] 私信.
[2] Ansys Inc., Ansys Fluent R1, 2020.
[3] Ansys Inc., Ansys Fluent R20 Theory guide, 2020.
[4] A. D. Pelton, L. Leibowitz, and R. A. Blomquist, Thermodynamic Analysis of Phase Equilibria in the Iron - Zirconium System, Journal of Nuclear Materials, vol.201, 1993, pp.218-224, https://doi.org/10.1016/0022-3115(93)90176-Y.
[5] W. Dienst, P. Hofmann, and D. K. Kerwin-Peck, Chemical Interactions between UO_2 and Zircaloy-4 from 1000 to 2000 ℃, Nucl. Technol., vol.65, no.1, 1984, pp.109-124, https://doi.org/10.13182/NT84-A33378.
[6] H. Okamoto, T. B. Massalski, et al., Binary Alloy Phase Diagrams, 2nd Edition, ASM International, Materials Park, OH, USA, 1990.
[7] Thermodynamic Data for Steelmaking, Ed. M. Hino, K. Ito, Tohoku Univ. Press, Sendai, 2010, 250p.
[8] 製鋼反応の推奨平衡値, 日本学術振興会, 製鋼第19委員会編, 1984, 280p.
[9] 一般社団法人原子力安全推進協会, BWR炉内構造物点検評価ガイドライン［CRDハウジング］第3版, 2014, 72p.
[10] International Atomic Energy Agency, Assessment and Management of Ageing of Major Nuclear Power Plant Components Important to Safety: BWR Pressure Vessel Internals, IAEA-TECDOC-1471, 2005, 116p.
[11] P. Hofmann and W. Hering, Material Interactions during Severe LWR Accidents, Summary of Separate-effects Test Results, KfK-5125, 1994, https://doi.org/10.5445/IR/270035543.
[12] 佐藤拓未ら, BWR圧力容器下部構造物と溶融金属物質の反応による溶融物の流出挙動, 日本原子力学会 2021年秋の大会予稿集, 2021.
[13] T. Yamashita et al., BWR Lower Head Penetration Failure Test Focusing on Eutectic Melting, Ann. Nucl. Eng., vol.173, 2022, 109129, https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.109129.
[14] 原子力安全基盤機構, 複雑形状部機器配管健全性実証（IAF）事業原子炉圧力容器の異材溶接部に関する高温材料特性データ集, JNES-RE-2012-0024, 2013, 122p.
[15] 株式会社クレハ, KRECA 炭素繊維クレカ, https://www.kureha.co.jp/business/material/pdf/KRECA_jpn.pdf（参照日：2022年3月31日）.
[16] 東洋炭素株式会社, 等方性黒鉛（特殊黒鉛製品）, 特性データ, https://www.toyotanso.co.jp/Products/Special_graphite/data.html（参照：2022年4月4日）.
[17] ICDD (International Center for Diffraction Data), Powder Diffraction File, 01-077-2285.

[18] Univ. Cambridge, DoITPoMS, TLP Library; The Interactive Ellingham Diagram, http://www.doitpoms.ac.uk/tlplib/ellingham_diagrams/interactive.php（参照：2022年4月4日）.
[19] H. Kleykamp, The Chemical State of the Fission Products in Oxide Fuels, J. Nucl. Mater., vol.131, no.2-3, 1985, pp.221-246, https://doi.org/10.1016/0022-3115(85)90460-X.
[20] debrisWiki, https://fdada-plus.info/wiki/（参照：2022年4月4日）.
[21] H. Madokoro and I. Sato, Estimation of the Core Degradation and Relocation at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 Based on RELAP/SCDAPSIM Analysis, Nucl. Eng. Des., vol.376, 2021, 111123, https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111123.
[22] T. Yamashita, I. Sato, T. Honda, K. Nozaki, H. Suzuki, M. Pellegrini, T. Sakai, S. Mizokami, Comprehensive Analysis and Evaluation of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2, Nucl. Technol., vol.206, no.10, 2020, pp.1517-1537, https://doi.org/10.1080/00295450.2019.1704581.
[23] I. Sato, Y. Arai, S. Yoshikawa, Evaluation of Core Material Energy Change during the In-vessel Phase of Fukushima Daiichi Unit 3 Based on Observed Pressure Data Utilizing GOTHIC Code Analysis, J. Nucl. Sci. Technol., vol.58, no.4, 2021, pp.434-460, https://doi.org/10.1080/00223131.2020.1862718.
[24] 東京電力ホールディングス株式会社, 福島第一原子力発電所 2号機原子炉格納容器内部調査結果, https://photo.tepco.co.jp/date/2018/201804-j/180426-01j.html（参照：2022年4月4日）.
[25] 東京電力ホールディングス株式会社, 福島第一原子力発電所 2号機 原子炉格納容器内部調査 実施結果, https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/02/20180201.pdf（参照：2022年4月4日）.
[26] 東京電力ホールディングス株式会社, 3号機原子炉格納容器内部調査について, https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/2017/images2/d171130_08-j.pdf（参照：2022年4月4日）.
[27] OECD/NEA, Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (BSAF Project), Phase I Summary Report, NEA/CSNI/R(2015)18, 2016, 51p.
[28] B. Sundman, B. Jansson, J.-O. Andersson, The Thermo-Calc Databank System, Calphad, vol.9, no.2, 1985, pp.153-190, https://doi.org/10.1016/0364-5916(85)90021-5.
[29] C. Guéneau et al., TAF-ID : An International Thermodynamic Database for Nuclear Fuels Applications, Calphad, vol.72, 2021, 102212, https://doi.org/10.1016/j.calphad.2020.102212.
[30] S. W. Hong et al., Application of Cold Crucible for Melting of UO_2/ZrO_2 Mixture, Materials Science and Engineering:A, vol.357, no.1-2, 2003, pp.297-303, https://doi.org/10.1016/S0921-5093(03)00248-X.
[31] Private communication.
[32] 株式会社セライズ, https://ceramic.co.jp/about/zirconia/（参照：2022年 4月4日）.