

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（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—

Uncertainty Reduction of the FPs Transport Mechanism and
Debris Degradation Behavior and Evaluation of the Reactor Contamination of
Debris State on the Basis of the Accident Progression Scenario of
Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 and 3 (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
東京工業大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Tokyo Institute of Technology

February 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

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
(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

東京工業大学

(2022 年 10 月 24 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「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」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。

本研究では、シールドプラグ下高線量の原因究明、事故時の Cs 移行経路や、Cs の構造材付着・堆積状態の解明および先行溶落したと推定される金属リッチデブリ特性評価を行うため、事故進展最確シナリオ評価に基づく材料科学的アプローチとして、3 項目 ((1)Cs 分布評価の不確かさの低減、(2)金属デブリの酸化変質評価、(3)総合評価) に取り組んでいる。

本年度は各要素技術法に関する実験的研究シミュレーション研究を進める上で必要な基盤の整備及び予備実験などに着手するとともに、本研究で抽出した Backward Analysis の 2 個の課題について、Forward Analysis 専門家との相互連携による現象理解と炉内状況把握の精緻化に向けての方針の検討を行った。その結果、事故進展最確シナリオを参照して、燃料デブリとセシウムの化学状態変化と移行経路について認識を共有することができ、今後の研究展開について展望した。

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、東京工業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

Uncertainty Reduction of the FPs Transport Mechanism and Debris Degradation Behavior and Evaluation
of the Reactor Contamination of Debris State on the Basis of the Accident Progression Scenario of
Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 and 3

(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

Tokyo Institute of Technology

(Received October 24, 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 “Uncertainty reduction of the FPs transport mechanism and debris degradation behavior and evaluation of the reactor contamination of debris state on the basis of the accident progression scenario of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 and 3” conducted in FY2021.

The present study aims to elucidate the cause of the high dosage under shield plug by clarification of the cesium behavior of migration, adhesion to structure and deposition as well as evaluate the properties of metal-rich debris predecreasing melted through the materials science approach based on the most probable scenario of accident progression of Unit 2 and 3. In this fiscal year, the followings were achieved. Chemical configuration and composition in gaseous phase of cesium were extensively analyzed by MAAP code and its reaction in steam atmosphere was also examined. Molten cesium silicate and ferrite were investigated in viewpoint of viscosity to clarify the fluxion and formation mechanism of cesium compounds. Oxidation behavior of metallic debris was investigated by sim-test with the preparation of oxidation equilibria test and viscosity measurement test molten metallic debris.

Keywords: Cesium, Fission Products, Metallic Debris, Decommissioning, Material Science, FDNPS

This work was performed by Tokyo Institute of Technology 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	山崎 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	渡邊 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号機ペダ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	渡邊 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	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティ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	渡邊 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 啓太郎	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	浅間 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。

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

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

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
(契約番号 R03I150)

成果報告書

令和 4 年 3 月
国立大学法人東京工業大学

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、国立大学法人東京工業大学が実施した「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」の令和 3 年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vii
1. はじめに	1
2. 業務計画	2
2.1 全体計画	2
2.2 実施体制	3
2.3 令和3年度の成果の目標及び業務の実施方法	4
2.3.1 Cs分布評価の不確かさの低減	4
2.3.2 金属デブリの酸化変質評価	4
2.3.3 総合評価	5
2.3.4 研究推進	5
3. 令和3年度の実施内容及び成果	6
3.1 Cs分布評価の不確かさの低減に向けた評価	6
3.1.1 2、3号機最確シナリオに基づいたRPV内部Cs化学形熱力学評価	6
3.1.2 2、3号機最確シナリオに基づいたPCV内部Cs化学形熱力学評価	10
3.1.3 Ce及びZr混入酸化物の高温物性評価	15
3.1.4 Cs挙動確認試験	21
3.2 金属デブリの酸化変質評価	25
3.2.1 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価	25
3.2.2 2、3号機最確シナリオに基づいた熱力学解析を補完する平衡データ取得 及び酸化進展のkinetics	32
3.2.3 2、3号機最確シナリオに基づく酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定	43
3.3 総合評価	47
3.4 研究推進	58
4. 結言	59
参考文献	62

執筆者リスト

事業代表者

国立大学法人東京工業大学

教授 小林 能直
特任助教 伊藤 あゆみ

委託先

国立大学法人九州大学

准教授 齊藤 敬高

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

研究員 プシェニチニコフ アントン
多木 寛

表一覧

表 3.1.1-1	Cs と着目元素 (I、Mo、B) との相互反応調査に関する熱力学計算条件	9
表 3.1.3-1	高温粘度を測定した酸化物系の化学組成 (mass%)	18
表 3.1.3-2	高温粘度を測定した酸化物系の化学組成 (mol%)	18
表 3.1.4-1	熱分析予備試験の試験条件 (試験体 : CsOH/316L ステンレス鋼)	24
表 3.2.1-1	316L ステンレス鋼材の水蒸気酸化試験の条件	30
表 3.2.1-2	鉄とホウ素の共晶反応物及び模擬金属デブリの水蒸気酸化試験の条件	31

図一覧

図 2.2-1	実施体制図	3
図 3.1.1-1	Cs-Mo 系における Case 1 (水蒸気潤沢条件) の計算結果	9
図 3.1.2-1	400 °Cにおける Cs-Mo 系における Mo 添加量と生成させる化学種量の変化に関する計算結果	13
図 3.1.2-2	800 °Cにおける Cs-Mo 系における Mo 添加量と生成させる化学種量の変化に関する計算結果	13
図 3.1.2-3	Cs-Si 系における Si 添加量と生成させる化学種量の変化の計算結果	14
図 3.1.2-4	Cs-Fe 系における Fe 添加量と生成させる化学種量の変化の計算結果	14
図 3.1.3-1	回転法による酸化物融体の粘度測定原理図	19
図 3.1.3-2	回転法による粘度測定装置の概略図	19
図 3.1.3-3	Na ₂ O-Fe ₂ O ₃ 系酸化物融体の粘度測定例	20
図 3.1.3-4	CaO-Fe ₂ O ₃ 系酸化物融体の粘度測定例	20
図 3.1.4-1	熱分析装置 (NETZSCH Japan K.K.、STA 2500) の外観と試料装荷部分	23
図 3.1.4-2	本研究で得られた典型的な熱分析曲線	24
図 3.2.1-1	熱分析試験用に切り出した CLADS-MADE-01 試験体の一部	28
図 3.2.1-2	316L ステンレス鋼材の水蒸気酸化試験中の重量増加曲線 (Ar+20 % 水蒸気)	28
図 3.2.1-3	模擬金属デブリの水蒸気酸化試験中の重量増加 (Ar+20 % 水蒸気)	29
図 3.2.1-4	熱分析試験後にオフガスラインで回収されたホウ酸を主成分とするエアロゾル	29
図 3.2.2-1	Fe-Zr-O 三元系状態図 (1773 K) における液相・固液二相領域	38
図 3.2.2-2	Fe-Zr-O 三元系状態図 (1873 K) における液相・固液二相領域	38
図 3.2.2-3	Fe-Zr 液相における Zr 活量計算結果 (1873 K)	39
図 3.2.2-4	化学平衡法による予備実験概要	39
図 3.2.2-5	実験後 Fe-Zr 合金の外観図と断面反射電子像	40
図 3.2.2-6	Fe-Zr/YSZ 界面酸化物粉末の XRD 回折パターン	40
図 3.2.2-7	Fe-Zr 合金の元素マップ	41
図 3.2.2-8	SUS316 合金の元素マップ	41
図 3.2.2-9	SUS316/YSZ 試料の YSZ 界面における XRD 回折パターン	42
図 3.2.3-1	SUS316L 系溶融合金の粘度測定例	45
図 3.2.3-2	トルクセンサー (Anton Paar GmbH、DSR502) の外観写真	45
図 3.2.3-3	トルクセンサーを備えた雰囲気調整可能な電気炉の模式図	46
図 3.3.1-1	圧力容器内予想図、炉心・下部ヘッド状況予測及び炉心温度予測に関する 2号機事故進展シナリオ (RPV 破損以前)	50
図 3.3.1-2	ガス/Cs 化合物移行図、ガス移行挙動、RPV 内ガス雰囲気及び Cs 移行挙動の予測に関する 2号機事故進展最確シナリオ (RPV 破損以前)	50
図 3.3.1-3	圧力容器内予想図、炉心・下部ヘッド状況予測及び炉心温度予測に関する 2号機事故進展シナリオ (RPV 破損以降)	51

図 3.3.1-4	ガス/Cs 化合物移行図、ガス移行挙動、RPV 内ガス雰囲気及び Cs 移行挙動の予測に関する 2 号機事故進展最確シナリオ (RPV 破損以降)	51
図 3.3.1-5	圧力容器内/ペDESTAL 予想図、炉心/下部ヘッド/PCV 状況予測及び炉心温度予測に関する 3 号機事故進展シナリオ	52
図 3.3.1-6	ガス/Cs 化合物移行図、ガス移行挙動及び Cs 移行挙動の予測に関する 3 号機事故進展最確シナリオ	52
図 3.3.2-1	FP 移行経路概念図	56
図 3.3.2-2	FP 放出源のパターン概念図	56
図 3.3.2-3	圧力容器破損過程における金属系デブリの鋼材溶融反応と Zr 水蒸気反応の競合関係概念図	57

略語一覧

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
BAF	: 有効燃料底部
BWR	: 沸騰水型軽水炉
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (廃炉環境国際共同研究センター)
CRGT	: 制御棒案内管
D/W	: ドライウェル
EDS	: エネルギー分散型 X 線分光法
FP	: 放射性核分裂生成物
HPCI	: 高圧注水系
ICP	: 高周波誘導結合プラズマ
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
MCCI	: 燃料デブリ・コンクリート相互作用
PCV	: 原子炉格納容器
RCIC	: 原子炉隔離時冷却系
RPV	: 原子炉圧力容器
SC	: サプレッションチャンバー
SEM	: 走査型電子顕微鏡
SRV	: 主蒸気逃し安全弁
VB	: 真空破壊弁
WDS	: 波長分散型 X 線分光法
XRD	: X 線回折
東電	: 東京電力ホールディングス株式会社

概略

東京電力ホールディング株式会社福島第一原子力発電所（以下、1F と略記。）の過酷事故から 11 年が経過した現在、各号機の炉内破損状況やデブリ分布に合致した方法で、燃料デブリ取り出し方策が検討されている。安全かつ可能な限り迅速な廃炉を行うための基礎データとして、炉内状況把握、事故シナリオの精緻化が期待されている。他方、1F 内部調査や 1F サンプル分析の進捗で事故炉内部の状況が次第に明らかになるに伴って、従来想定していた以上に米国スリーマイル原発事故の解析に基づいて評価された「典型的な事故条件からの推定」と実際の 1F 炉内状況が異なっていることが分かってきている。従来実施されている、事故進展解析コード等を用いた事故シナリオ解析「Forward Analysis」では、このような 1F 固有の炉内状況の理解を精緻化するのに限界が見えてきている。そこで、現場知見に立脚して、従来十分に検討されていなかった重要事故事象を抽出し、その現象的的確な把握・モデルに取り組み、より精度の高い、そしてより適切なデータを材料実験で取得して検証するという「Backward Analysis」の必要性が示されている。

本研究では、現状の 1F 炉内状況における喫緊課題として、1F 2、3 号機のシールドプラグ下高線量の原因究明に向けた事故時の Cs 移行経路や、Cs の構造材付着・堆積状態の解明、及び、1F 2、3 号機で、原子炉圧力容器（以下、RPV と略記。）から原子炉格納容器（以下、PCV と略記。）に先行溶落したと推定される金属リッチデブリ特性評価（溶落時の酸化特性の評価）に着目した Backward Analysis に取り組む。「研究課題(1) Cs 分布評価の不確かさの低減」では、2、3 号機事故進展の最確シナリオに基づく MAAP 解析結果から、RPV 及び PCV 内の事故時化学環境と物質移行を評価し、Cs 化学形態の変化を予備的に評価した。さらに、Cs 含有試料を用いて、水蒸気雰囲気中で熱分析試験を行い、Cs と鋼材等との反応傾向を予備的に調査した。また、燃料デブリ・コンクリート相互作用（以下、MCCI と略記。）過程で燃料デブリ中の残留 Cs がコンクリート成分含有酸化物融体の流動性に影響を及ぼし Cs 放出挙動に与える影響を予測するために、高温で $\text{CeO}_2(-\text{ZrO}_2)-\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系高温融体の粘度測定を試みるとともに、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系エアロゾル形成現象解明ため同融体の粘性を見積もった。これらにより、残留 Cs はわずかな量であってもコンクリート成分含有酸化物融体の粘性を劇的に低下させるが、同時に流動性の上昇により Cs は直ちに放出されるため事故進展事象に与える影響は非常に限定的であることを示した。さらに、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{FeO}$ 系は化学的に親和性が高く容易に融体化し、事故炉内条件によっては燃料デブリからの残留 Cs と熔融ステンレス鋼の反応によってこれまで想定されていなかった Cs-Fe-O 系エアロゾルが発生し、RPV 上部の高線量状況に関与した可能性があることを示した。「研究課題(2) 金属デブリの酸化変質評価」では、模擬金属デブリの水蒸気雰囲気での熱分析試験により、その酸化時変質を予備的に評価した。金属熔融デブリと酸化物デブリの反応基礎となる熔融 Fe-Zr 系金属融体と ZrO_2 平衡の予備実験に着手し、圧力容器破損機構解明の重要因子である金属融体中の未酸化 Zr 反応寄与割合を定めるために必要な Zr 活量測定手法の妥当性を確認した。さらに、圧力容器破損時に流出する固液共存金属物質の流動予測に不可欠な金属デブリの粘度測定条件を決定した。これらにより、下部プレナムで金属系デブリが再溶解して水蒸気によって酸化変質しながら鋼材を熔融し、圧力容器破損に至る過程を解析するための要素パラメータを抽出・測定手法を確立した。「研究課題(3) 総合評価」では、各実施課題における成果を総合的に勘案し本研究で重点的に検討する事象の特定とシナリオを決定した。すなわち、現場で課題となっている高線量状況に至った Cs 移行挙動の不確かさを低減するため

には、高温かつ水蒸気枯渇状態における Cs 反応及び燃料デブリからの放出時におけるエアロゾル形成過程に着目した RPV 上部への移行を重点的に調査していくこと、及び、金属系デブリの再熔融に伴う圧力容器破損事象は、競合関係にある水蒸気による酸化変質（気液反応）、及び、鋼材熔融（固液反応）のそれぞれにおける要素反応を検証することが重要であることを示した。

このように、令和 3 年度は各要素技術法に関する実験的研究シミュレーション研究を進める上で必要な基盤の整備及び予備実験などに着手するとともに、本研究で抽出した Backward Analysis の 2 個の課題について、Forward Analysis 専門家との相互連携による現象理解と炉内状況把握の精緻化に向けての方針の検討を行った。その結果、事故進展最確シナリオを参照して、燃料デブリと Cs の化学状態変化と移行経路について認識を共有することができ、今後の研究展開について展望を行った。

また、本研究では放射性核分裂生成物（以下、FP と略記。）由来酸化物を含む多元系システムの熱力学評価に定評のあるロシア・サンクトペテルブルク大学との協力関係を活用し、炉内汚染状況推定の不確かさを低減に向けた評価の高度化を目指す。ロシアでは、1F 事故を背景とした原子力安全研究の一環として、事故進展における Cs 蒸発移行モデルや MCCI 解析手法の高度化を検討している。そのような背景から、事故条件における Cs 化学形に関する物性データの拡充は重要な基礎基盤研究テーマであるとされているため、一旦蒸発した Cs の RPV 外 (ex-vessel) デブリへの吸着・再蒸発現象に関する知見を拡充する目的で、Cs 酸化物及びコンクリート成分を含む $\text{Cs}_2\text{O}-\text{SrO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系における蒸気圧データを取得する。日本側では、サンクトペテルブルク大学で取得したデータのうち、高温における Cs 物性データに加えて、我々が直接実施しない中程度の蒸発性を持つ Sr の物性データを活用して、炉内 FP 汚染状況に Sr が及ぼす影響を評価することを目的とする。

令和 3 年度は、目的とする多元系システムのうち、サブシステムである $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 二元系及び $\text{SrO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 二元系のデータ取得から着手するための試験条件を決定した。次に予備実験として、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3$ システムでは 2 試料の、 $\text{SrO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ システムでは 3 試料のサンプルを作製し、粉末 XRD 分析によって作製試料における形成組織の相同定を行った。

さらに、令和 4 年度より予定している本格試験に向けて、Cs 及び Sr を含む多元系システムの高温実験（～2700 K）の実施方法について文献調査を実施した。サンクトペテルブルク大学の熱力学評価実験は、クヌーセンセルを用いた高温質量分析法に基づいている。試料を目的温度まで昇温保持し、発生するガスを装置にてイオン化したデータを解析して、ガス化した化合物の蒸気圧を決定した。このため、予備実験によって目的とするシステムがガス化した場合に発生しイオン化する化合物形を決定した。

1. はじめに

1F 2、3号機の炉内状況把握における重要課題である、シールドプラグ下高線量の原因究明などのCs分布の理解の精緻化に向けて、事故進展時のCs移行経路や、Csの構造材への付着・堆積状態の解明に取り組む。及び、事故進展時にRPVからPCVに先行溶落したと推定される金属リッチデブリの特性、特に下部プレナムに先行的に崩落した金属系デブリが燃料からの崩壊熱によって再溶融する過程で水蒸気によって酸化されながら鋼材を溶融し圧力容器破損に至る過程に着目し、同現象の機構解明に必要な要素事象を抽出しモデル化に必要なパラメータを実験的に取得する。これらの解析・評価のための材料科学的アプローチとして、最新の事故進展シナリオ解析結果に基づいて事故時の化学環境変化を推定し、それを参照したCs化学形解析と検証試験によりCs蒸発・移行・吸着・脱離・堆積の1F事故条件でのメカニズムの理解を深化させる。それにより、過酷事故解析コードのFP移行モデルで考慮しきれていないCs移行シナリオを抽出し、現場における高線量状況の理解に資する仮説の提示を目指し、モデル化に向けたパラメータ及び境界条件の提示を行う。これらの研究で精緻化した反応メカニズム・モデルを、事故進展解析にフィードバックし、事故解析（マクロな理解）と材料特性メカニズム（局所反応の理解）の観点で炉内状況推定精度を向上させる。これらの研究成果により、廃炉事業者による燃料デブリ取り出し方法の検討に対し基礎知見を提示することを目的とする。

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 の結果を取りまとめる。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 Cs 移行プロセス及び金属系デブリの再熔融による圧力容器破損プロセスを評価し、炉内燃料デブリ・FP 推定図を更新する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 Cs 分布評価の不確かさの低減

2、3号機のシールドプラグ下高線量は、事故時の Cs 移行経路や Cs の構造材付着及び体積状態が関与していると考えられる。実施項目①、②では、これまでの格納容器内部調査や事故進展解析結果に基づいて、Cs 移行経路に影響を及ぼす炉内の化学状況変化という観点から事故進展最確シナリオを評価し、熱力学的解析によって RPV 上部への移行条件（温度、水素／水蒸気比等）の範囲を明らかにする。実施項目③では、事故進展過程で形成される可能性のある Cs を含む酸化物が熔融した際の移行挙動を推定するために CaO-SiO₂-Al₂O₃ 系酸化物融体の粘性に及ぼす CeO₂-ZrO₂ 及び Cs₂O の影響を評価する。また、実施項目④では、①または②の熱力学的解析の妥当性を評価するための検証実験を行う。

2.1.2 金属デブリの酸化変質評価

2、3号機では、圧力容器破損時の最高到達温度が、従来、LOCA（冷却水喪失シナリオ）で想定される典型的事故条件で想定される温度よりも数百 K 低かったのではないかと推定されている。このため、融点が高い酸化物系デブリがまだ十分に熔融するよりも低い温度で、融点が高い金属系デブリが下部プレナムへ先行的に崩落・熔融したことが 1F 事故炉に固有の破損状態に関与している可能性がある。この事故シナリオでは、下部プレナムへ落下した際に一旦固化した金属系デブリが、主に酸化物デブリに由来する崩壊熱によって加熱され再熔融する過程で、周辺の燃料由来酸化物（未熔融）及び構造材由来ステンレス鋼（金属系デブリに熔融する可能性）が反応に関与することが想定される。その反応メカニズムを調べるため、実施項目①では金属系デブリが水蒸気によって酸化されてどのように変質するか、実施項目②では金属系デブリが熔融した際に水蒸気との気液反応と鋼材を熔融する固液反応のどちらがより安定に進行するか、実施項目③では酸化物の析出程度が流動性をどの程度低下させて熔融を妨げることになるか、という観点から要素事象を評価し、圧力容器破損過程における金属デブリの変質特性を評価する。これらと事故進展解析結果を照し合せ、2号機ペDESTALからの試験的燃料デブリ取り出しに向けて、金属デブリ特性（再酸化可能性、U 金属残留可能性等）に関する知見を提示する。

2.1.3 総合評価

上記実施項目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 Cs 分布及び RPV 破損過程における金属デブリ変質の高精度化を行う。得られた結果は、炉内推定図更新に資する基礎データとして整備し本研究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

本業務の実施体制を図 2.2-1 に示す。

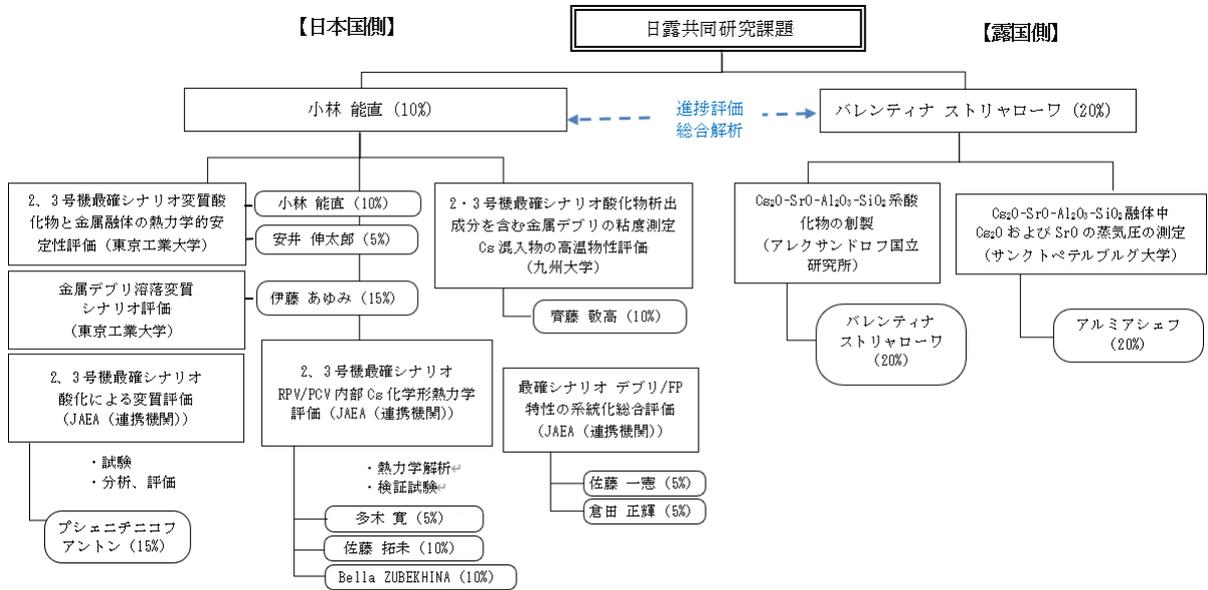


図 2.2-1 実施体制図

2.3 令和3年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.3.1 Cs 分布評価の不確かさの低減

(1) 2、3号機最確シナリオに基づいたRPV内部Cs化学形熱力学評価（連携先：JAEA）

2、3号機事故進展の最確シナリオに基づくMAAP解析結果から、RPV内の事故時化学環境と物質移行を評価する。これらに基づいて、2、3号機のRPV領域ごとで熱力学解析を行い、Cs化学形態の変化（気相中、鋼材やデブリへの吸着、等）を予備的に評価する。

(2) 2、3号機最確シナリオに基づいたPCV内部Cs化学形熱力学評価（連携先：JAEA）

Csの水相中での化学状態について文献調査を行う。2、3号機事故進展の最確シナリオから、蓋然性の高いPCV内の事故時化学環境（雰囲気や壁面の温度、等）を推定する。これらに基づいて、2、3号機のPCV内をいくつかに分けて熱力学解析を行い、Cs化学形態の変化（気相中、鋼材やコンクリートへの吸着、デブリへの再吸着、S/C水相中、等）を予備的に評価する。

(3) Ce及びZr混入酸化物の高温物性評価（再委託先：九州大学）

$\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系高温融体の粘度を幅広い組成範囲にて測定するための条件設定を行う。当該酸化物系の高温における粘度範囲を $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系の文献情報より予測する。その後、るつぽ回転法粘度測定装置（現有設備）を用いて1873 K以下の高温で $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2\text{-CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系高温融体の粘度測定を試みる。

(4) Cs挙動確認試験（連携先：JAEA）

(1)、(2)の解析や文献調査で評価される、蓋然性の高いCs含有試料を用いて、水蒸気雰囲気中で熱分析（TG-DTA）試験を行い、Csと鋼材、コンクリート、その他物質との反応傾向を予備的に調査する。

2.3.2 金属デブリの酸化変質評価

(1) 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価（連携先：JAEA）

2、3号機事故進展の最確シナリオから、デブリのRPVからPCVペDESTAL崩落時点における蓋然性の高い事故時化学環境を（雰囲気組成、デブリ温度、等）を推定する。JAEAが従来試験で調製した模擬金属デブリ（CLADS-MADE試験体）を分取し、水蒸気雰囲気での熱分析（TG-DTA）試験により、その酸化時変質を予備的に評価する。

(2) 2、3号機最確シナリオに基づいた熱力学解析を補完する平衡データの取得及び酸化進展のkinetics

2、3号機の最確シナリオに基づいた熱力学計算ソフトによる熱力学量の見積もり値を参考にして、各熱力学化学平衡法による熔融 Fe-Cr-Ni-Zr-B 系金属融体中の化合物相飽和溶解度の測定方法を確立し、 $\text{ZrO}_2 \cdot \text{CeO}_2$ などの酸化物共存時の相安定性、平衡関係を明らかにするための予備実験に着手する。

(3) 2、3号機最確シナリオに基づく酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定
(再委託先：九州大学)

一般的に金属融体の粘度は、酸化物融体の粘度に比較して非常に小さく mPa・s オーダーであることから、回転運動によって発生するトルクも微小であり検出が困難であるので、より低粘性領域においても精度よく粘度測定が可能と考えられるトルクセンサー（現有設備）による粘度測定装置のセットアップを志向し、必要な解析技術やコンタクトマテリアルの選定を行う。

2.3.3 総合評価（東京工業大学、連携先：JAEA）

Cs 挙動確認評価結果を現状の事故進展最確シナリオの熱・物質量バランス解析に適用し Cs 分布を評価する方法の検討を行う。金属デブリ溶落時における流動過渡の変質程度を解析的に評価する方法の検討を行う。

2.3.4 研究推進

研究の円滑な推進のため、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 と略記。）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. 令和3年度の実施内容及び成果

3.1 Cs 分布評価の不確かさの低減に向けた評価

3.1.1 2、3号機最確シナリオに基づいた RPV 内部の Cs 化学形熱力学評価

(1) 目的

1F の内部調査等により、炉内状況が少しずつ明らかになってきている^[1]。しかしながら、事故時の Cs のふるまい（化学形態や移行挙動、エアロゾル形成メカニズム）に関しては、いまだに不確かさが大きいのが現状である。このために、現在の炉内における Cs 分布に関しても不確かさが大きいと考えられる。今後、本格的なデブリ取り出しを実施するにあたり、Cs のふるまいを解明し、事故進展最確シナリオの精緻化を進めていき、Cs 分布評価をする必要があると考えられる。本実施項目では、事故記録、MAAP 等による過酷事故（以下、SA と略記。）解析、及び文献調査^{[2][3]}から RPV 内の事故時化学環境と物質移行に関する 2、3号機の事故進展最確シナリオ（事故発生から数日間）を作成し、それに基づき RPV 内の Cs 化学形態変化に関する予備的な熱力学解析を行い、解析で予想される気相中の Cs の安定相（化学種）の傾向を系統的に整理することを目的とした。

(2) Cs 化学形熱力学解析評価

2、3号機の事故進展シナリオと Cs 挙動の予測から、RPV 内における Cs 挙動に関しては、以下のような特徴が挙げられる。

2号機

- Cs が燃料から放出すると予測される時間帯（3月14日 18:40 頃～21:30 頃）では、ガス雰囲気の変動した可能性が指摘できる。
- Cs が燃料から放出される時間帯では、構造材温度は、場所によらず低温であると予測される（約 500 K）。→PCV 内に沈着した可能性
- RPV 内箇所ごと（Upper head、Steam dryer、等）に最高到達温度等に違いがあると予測される（最高到達温度幅：約 625 K～1050 K）。→再蒸発傾向が異なる可能性

3号機

- 水蒸気雰囲気で Cs が放出され、その後、ガスとともにサプレッションチャンバー（以下、SC と略記。）に移行したと予測される。→PCV 内沈着は制限された可能性

RPV 内における Cs は放出後、主に気相中でその他物質（水蒸気、揮発性 FP、制御棒、構造材など）と反応し、2号機の場合は RPV 内構造材に沈着し、3号機の場合はガスとともに SC に移行したと考えられる。また、2号機の場合は、Cs 放出時のガス雰囲気の変動した可能性がある。そこで、令和3年度の本実施項目では、気相中の Cs 挙動に及ぼす雰囲気（水蒸気／水素比）の影響を熱力学平衡計算により予備的に評価を行った。また、Cs と鋼材との反応挙動を予備的に評価した。

(3) 気相中の予備的熱力学解析

① 解析手法

本研究では、熱力学データベースとして、OECD/NEA の国際プロジェクトで開発している TAF-ID^[4]を用いた。また、平衡計算ツールは化学平衡計算ソフトウェア Thermo-Calc^[5]を用いた。表 3.1.1-1 に熱力学計算条件を示す。ガス雰囲気の影響を調査のために水蒸気/水素比を変化させた 3 つのケースを設定した。また、Cs と相互反応を評価するために主要な FP であるヨウ素 (I) とモリブデン (Mo) 及び制御棒由来のボロン (B) を着目元素とし、計算添加量を 0 mol から 0.2 mol の範囲に設定した。温度は 1500 K (冷却材損失事故の典型的な温度^[45])、圧力は 1 atm (低圧力時の事故現象を想定) と設定した。

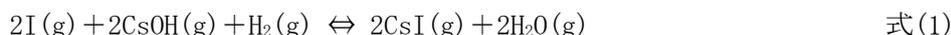
② 熱力学解析結果

図 3.1.1-1 に Cs-Mo 系における Mo 添加量と生成させる化学種量の変化に関する Case 1 (水蒸気潤沢条件) の計算結果を示す。この Thermo-Calc^[5]による熱力学解析条件では、気相中の Mo 分圧の増加に伴い、Cs-Mo の相互作用反応で Cs₂MoO₄ 及び H₂MoO₄ が出現し、それらが支配的になることが確認された。

計算結果を基に各系における気相中の安定化学種の傾向を以下にまとめる。

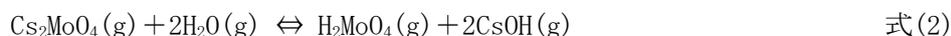
1) Cs-I 系

雰囲気 (水蒸気/水素比) に依存せず、気相中の I 分圧増加に伴い、CsI が出現して、支配的になる傾向を示した。CsI (g)、CsOH (g)、I (g) に関する化学反応式を式 (1) に示す。CsI の生成量は水蒸気/水素比に依存すると考えられ、水蒸気量が大きくなると CsI の生成は抑制されると考えられる。



2) Cs-Mo 系

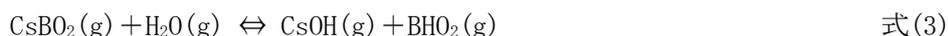
水蒸気潤沢条件において、Mo 分圧増加に伴い、CsMoO₄ 及び H₂MoO₄ が出現して、支配的になる傾向を示した。Cs₂MoO₄ (g)、H₂MoO₄ (g)、CsOH (g) に関する化学反応式を式 (2) に示す。水蒸気量が大きくなると CsMoO₄ の生成は抑制されると考えられる。



水蒸気枯渇条件では、Cs-Mo 相互反応は確認されなかった。Cs-Mo 系で形成される化学種は、水蒸気/水素濃度比の影響を特に受けやすいことが確認された。

3) Cs-B 系

雰囲気 (水蒸気/水素比) に依存せず、気相中の B 分圧増加に伴い、CsBO₂ が出現して、支配的になる傾向を示した。ガス移行時に Cs-B 化合物が移行した可能性がある。CsBO₂ (g)、CsOH (g)、BHO₂ (g) に関する化学反応式を式 (3) に示す。水蒸気量が大きくなると CsBO₂ の生成は抑制されると考えられる。



上記に挙げた特徴より、2号機事故初期の水蒸気枯渇条件などにおいては、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{g})$ の発生は制限されていた可能性が示唆される。また、 $\text{CsI}(\text{g})$ 及び $\text{CsBO}_2(\text{g})$ は水蒸気量の増加に伴い生成が抑制される傾向があるので、事故の進行に伴う水蒸気発生がCs安定相（化学種）に影響することが考えられる。

令和4年度以降は、計算温度域（炉心熔融時の高温領域及び凝集・沈着を考慮するために低温領域）を広げ、さらに詳しくCsの安定相（化学種）の傾向を系統的に整理する。

(4) 鋼材に関する予備的熱力学解析

① 解析手法

Csと鋼材との反応に関する熱力学解析において、TAF-IDにはCsと鋼材（Fe、Si、Cr等）の反応に関するデータの格納が不十分であることが確認された。令和4年度には、これら（Cs-Fe-O、Cs-Cr-O、Cs-Si-Oシステム）に関するデータがTAF-IDに格納予定であり、格納後、詳細な計算を実施する予定である。そこで、令和3年度に関しては、TAF-IDの代替データベースとして、低温域のCs-Si-Oシステムに関して利用可能であったSGTEデータベースを用いて、CsとSi（鋼材の一部）との相互反応に関する解析を実施した。温度はCsOHが液体として存在する800Kを採用し、雰囲気は水蒸気潤沢雰囲気想定し、水蒸気及び水素濃度を $\text{H}_2\text{O}=1\text{ mol}$ 、 $\text{H}_2=0.1\text{ mol}$ とした。また、Cs濃度を0.1 molに設定し、Si濃度を0 molから0.2 molとし、Siに関する感度解析を実施した。

② 熱力学解析結果

図3.1.1-2にCs-Si系におけるSi添加量と生成される化合物の変化に関する800K、水蒸気潤沢雰囲気の結果を示す。Siの添加量に伴い、 $\text{Cs}_2\text{SiO}_3(\text{s})$ が生成され、支配的になる傾向が確認された。また、Siの添加量の増加に伴い、 $\text{Cs}_2\text{SiO}_3(\text{s}) \rightarrow \text{Cs}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{s}) \rightarrow \text{Cs}_2\text{Si}_4\text{O}_9(\text{s})$ とCs-Si系化合物が変化することが確認された。

(5) まとめ

2、3号機の事故進展最確シナリオ評価で得られた圧力容器内部の化学条件変化（温度、水素・水蒸気比等）からCsの移行挙動を予備的に推定し、Cs化学形のなかでも特に重要なCs-I、Cs-Mo、Cs-B系について1500Kにおける安定化合物の水素・水蒸気比依存性を熱力学解析によって評価した。その結果、2号機事故初期の水蒸気枯渇条件などにおいては、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{g})$ の発生は制限されていた可能性が示唆される。また、 $\text{CsI}(\text{g})$ 及び $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{g})$ は水蒸気量の増加に伴い生成が抑制され、一方、 CsBO_2 は水蒸気量の増加に伴い生成が促進される傾向があるので、事故の進行に伴う水蒸気発生がCs安定相（化学種）に影響することが考えられる。令和4年度以降は、計算温度域（炉心熔融時の高温領域及び凝集・沈着を考慮するために低温領域）を広げ、さらに詳しくCsの安定相（化学種）の傾向を系統的に整理する。

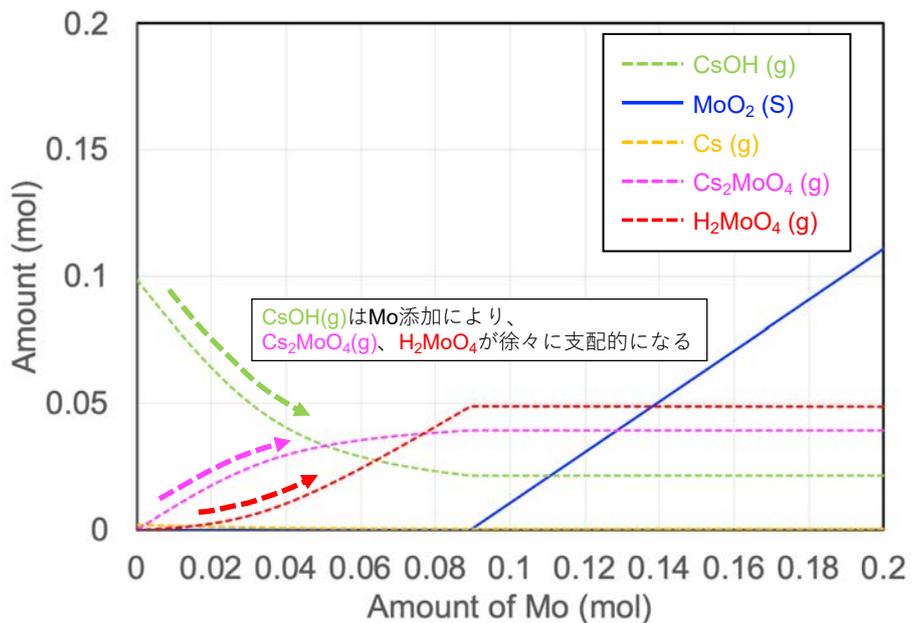


図 3. 1. 1-1 Cs-Mo 系における Case 1（水蒸気潤沢条件）の計算結果

表 3. 1. 1-1 Cs と着目元素（I、Mo、B）との相互反応調査に関する熱力学計算条件

計算Case	成分 (mol)				温度 (K)	圧力 (atm)
	H ₂ O	H ₂	Cs	着目元素 (I, Mo, B)		
Case 1 (水蒸気潤沢条件)	1000	100	0.1	0 - 0.2	1500	1.0
Case 2	550	550				
Case 3 (水蒸気枯渇条件)	100	1000				

3.1.2 2、3号機最確シナリオに基づいたPCV内部のCs化学形熱力学評価

(1) 目的

2、3号機でのデブリ取り出しに向けた事故炉内でのCs分布の評価精度の向上がデブリへのアクセスルート構築、デブリ取り出し工程の設計等で喫緊の重要課題となっている。PCV内部でのCsのふるまいは、Cs化合物の水相を介した移行^{[6][7][8]}やCs化合物とコンクリート・鋼材との反応^[9]と様々なメカニズムが入り混じり、複雑になっていると考えられる。これらのメカニズムを1つ1つ解明し、主要因を特定することができれば、Cs炉内分布の精度向上に繋がると考えられる。

本項3.1.2では、Cs炉内分布に強く影響すると考えられる事故時の化学的な環境について、前項3.1.1と同様に、事故時のプラントデータ等の記録の調査、MAAP等によるSA解析及びCsの水相中化学状態に関する文献調査^{[2][3][6][7][8]}等を行い、蓋然性の高いPCV内の事故時化学環境と物質移行に関する2、3号機の事故進展最確シナリオを検討した。しかし、現状知見だけでは、2、3号機最確シナリオに直接対応したPCV内部の化学環境を取りまとめることはできなかった。そこで、事故時のPCV内壁の温度測定データ（約400℃）とRPVペデスタル内側領域の温度解析データ（約800℃）がある1号機の事故シナリオ^[1]に基づいて、Cs化学形態の変化を評価した。これにより、2、3号機最確シナリオにおいて重要な評価因子となる事故時のPCV内の温度の違いを予備的に評価することができる。

(2) Cs化学形熱力学解析評価

① 事故時の化学環境の選定

現状の2、3号機のプラントデータ及びMAAP解析結果からは、2、3号機の事故進展シナリオとCs挙動の予測から、PCV内での着目する反応項目としては、以下のものが挙げられる。PCV内におけるCs化学形態の評価をするために必要となる、事故時温度データを解析に十分な精度で設定することはできなかった。これは、本研究プロジェクト内の専門家による今年度の意見交換では、十分な定量根拠で合意できず、解析に十分な精度で化学条件を選定できなかったためである。その代わりに、PCV内温度データについて、すでに妥当な定量値が得られている1号機シナリオを参考に、計算基準となる2つの箇所の温度（400℃及び800℃）を、2、3号機の参照条件として設定した^[1]。

- ・PCVドライウエル（以下、D/Wと略記。）壁面：400℃
- ・RPV下ペデスタル領域内部の最高到達温度：800℃

前者は、東電による事故進展時の測定値、後者は、JAEAによる熱解析の評価値である。いずれもdebrisWiki^[1]での記載を参照した。これらの温度は、直接2、3号機最確シナリオに基づいて選定した値ではないが、事故時に起こりうるPCV内部位の違いによる温度差を予備的に評価するための参照値として活用できる。データベースとして標準データベースSGTEを用い、平衡計算ツールはThermo-Calc^[5]を用いた。計算条件に関しては、3.1.1(3)①のCase1（水蒸気潤沢条件： $H_2O=1000\text{ mol}$ 、 $H_2=100\text{ mol}$ 、 $Cs=0.1\text{ mol}$ 、着目元素（I、Mo、B） $=0\text{ mol}\sim 0.2\text{ mol}$ 、圧力 $=1\text{ atm}$ ）で、温度条件を400℃及び800℃として計算を行った。

図3.1.2-1及び図3.1.2-2に400℃及び800℃、それぞれのCs-Mo系におけるMo添加量と生成させる化学種量の変化に関する計算結果を示す。どちらの温度条件においても、Mo添

加量増加に伴い、Cs-Mo の相互作用反応で $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{s})$ が出現し、それが支配的になることが確認された。計算結果を基に各系における安定化学種の傾向を以下にまとめる。

1) Cs-I 系

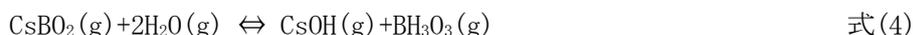
400 °C の場合、I 濃度増加に伴い $\text{CsI}(\text{s})$ が出現し、支配的になる傾向を示した。一方、800 °C の場合、I 濃度増加に伴い $\text{CsI}(\text{g})$ が出現し、支配的になる傾向を示した。このことより、Cs-I 系で生成される化学種は、ドライウエル壁面のような低温領域においては、 $\text{CsI}(\text{s})$ として沈着しうると評価される。他方、燃料デブリが凝固したあとであっても、ペDESTAL 内領域のように、これが雰囲気中に露出する条件では、ガス相として蒸発が継続する可能性を示している。

2) Cs-Mo 系

400 °C 及び 800 °C とともに、Mo 濃度増加に伴い、 $\text{CsMoO}_4(\text{s})$ が出現して、支配的になる傾向を示した。このことより、Cs-Mo 系の化合物については、燃料デブリが凝固したあとに、ある程度の高温雰囲気（本解析では 800 °C を選定。）が維持されても、燃料デブリや構造材に吸着された状態を維持することが示唆される。

3) Cs-B 系

400 °C の場合、B 添加量増加に伴い、 $\text{CsBO}_2(\text{s})$ が出現して、支配的になる傾向を示した。一方、800 °C の場合、B 添加量増加に伴い、 $\text{CsBO}_2(\text{g})$ が出現して、支配的になる傾向を示した。 $\text{CsBO}_2(\text{g})$ 、 $\text{CsOH}(\text{g})$ 、 $\text{BH}_3\text{O}_3(\text{g})$ に関する化学反応式を式(4)に示す。 $\text{CsBO}_2(\text{g})$ の生成は水蒸気量に依存すると考えられる。



これらのことから、Cs-B 系化合物については、D/W 壁面のような低温領域では沈着される一方、燃料デブリ近傍では蒸発が継続される可能性が示唆される。また、その時の蒸発種については水蒸気濃度の影響を受けると示唆される。

これら 3 個の系の解析結果に基づくと、ペDESTAL 内のような PCV 内での比較的高温となる領域では、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{s})$ が他の Cs 化合物に比べて化学的に安定化し、燃料デブリや構造材に吸着可能性が示唆される。また、D/W 壁面のような比較的低温となる領域においては、様々な系の固相 ($\text{CsI}(\text{s})$ 、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{s})$ 及び $\text{CsBO}_2(\text{s})$) が吸着する沈着した可能性が示唆される。本解析から、今後の実デブリ等のサンプル分析における参照知見を得ることができた。

② コンクリート及び鋼材との反応に関する熱力学予備解析

令和 3 年度の熱力学解析では、PCV 内部で Cs と化合物を生成する重要元素として、Si (コンクリート主成分) 及び Fe (酸化鉄、鋼材主成分) に着目した。

解析手法は、3.1.2①と同様のデータベース及び平衡計算ツールを用いた。PCV 内の主な雰囲気は水蒸気雰囲気であると考えられるので、計算条件としては 3.1.1(3)①の Case 1 (水

蒸気潤沢条件) の条件 ($H_2O=1000$ mol、 $H_2=100$ mol、 $Cs=0.1$ mol、着目元素= 0 mol \sim 0.2 mol、温度= 1500 K、圧力= 1 atm) で、着目元素を Si : コンクリート主成分、Fe : 鋼材主成分とした。

Si、Fe に関する標準データベース SGTE による予備解析の結果を、図 3.1.2-3 及び図 3.1.2-4 に示す。Si 添加量の増加に対して Cs との化合物形成は予測されていないが、過去に行われた CsOH-SUS 反応実験^{[21][22][23]}では Cs-Si-O 化合物が確認されており、既往データベースに格納されている知見が不十分であることが分かった。令和 4 年度以降、TAF-ID データベースに Cs-Fe-O 及び Cs-Si-O に関するデータが格納される予定であるので、再度、熱力学解析を実施する。

(3) まとめ

2、3 号機最確シナリオにおいて重要な評価因子となる事故時の PCV 内の温度に関して、事故時の PCV 内壁の温度測定データと RPV ペDESTAL 内側領域の温度解析データがある 1 号機の事故シナリオに基づいて、Cs 化学形態の予備的に評価した。その結果、事故時の PCV 内箇所との温度の違いが Cs 安定相 (化学種) の状態に影響することを確認した。特に、凝固途中の燃料デブリ近傍のような比較的高温領域 (ペDESTAL 内を想定) では、 Cs_2MoO_4 が吸着する可能性が示唆された。また、気相中の Cs とコンクリート (及び鋼材) との反応及び安定化合物の特徴について、既往のデータベースを用いた予備的な熱力学解析を実施したが、既往データベースでは格納されているデータが不十分なため、定量的な知見を得ることができなかった。令和 4 年度に予定されている熱力学データベースの拡充後に再度評価を実施する。

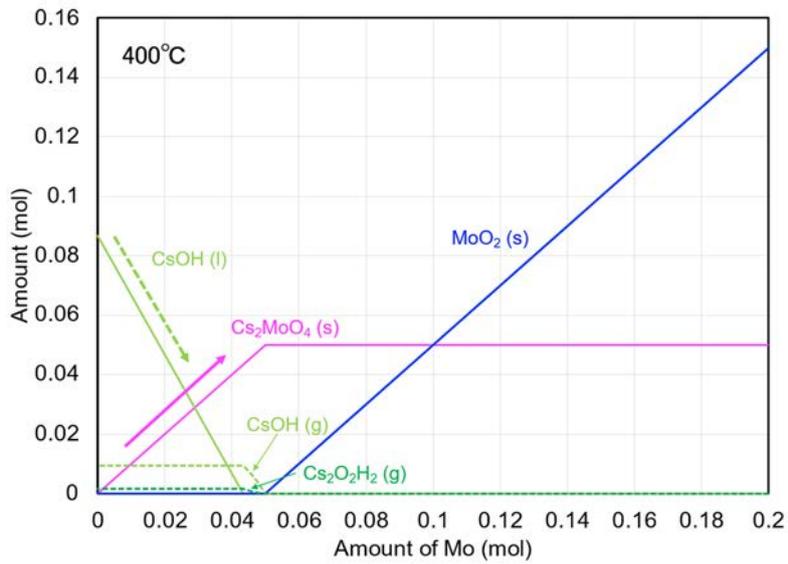


図 3. 1. 2-1 400 °Cにおける Cs-Mo 系における Mo 添加量と生成させる化学種量の変化に関する計算結果

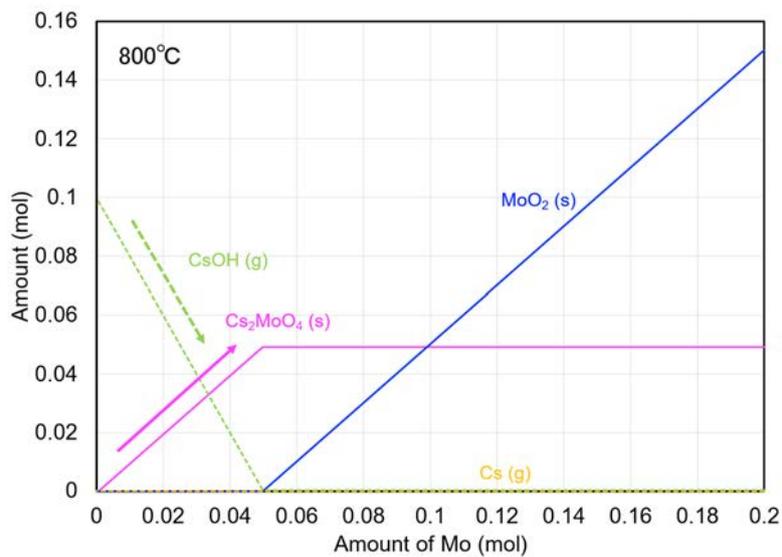


図 3. 1. 2-2 800 °Cにおける Cs-Mo 系における Mo 添加量と生成させる化学種量の変化に関する計算結果

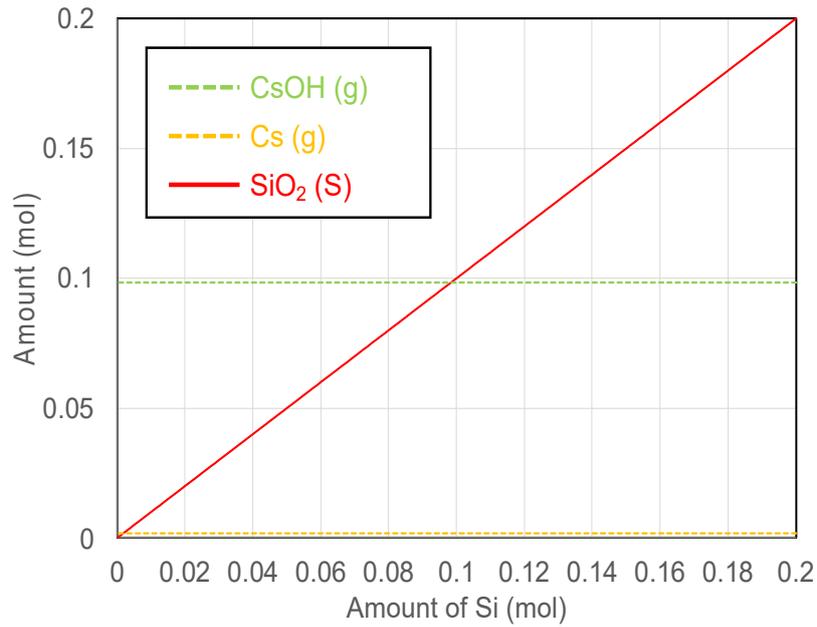


図 3. 1. 2-3 Cs-Si 系における Si 添加量と生成させる化学種量の変化の計算結果

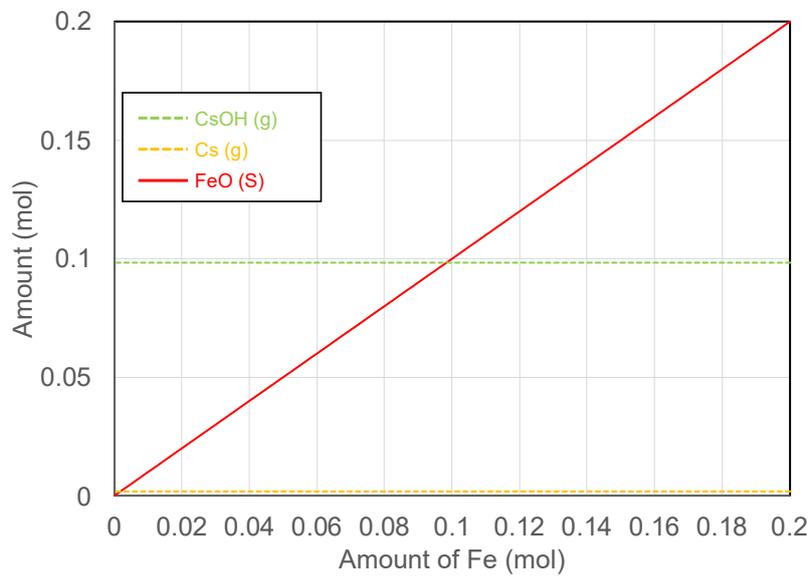


図 3. 1. 2-4 Cs-Fe 系における Fe 添加量と生成させる化学種量の変化の計算結果

3.1.3 Ce 及び Zr 混入酸化物の高温物性評価

(1) 目的

事故時において、燃料デブリが RPV の下部プレナムにスランピングをしたのちに再溶融することによって、下部ヘッドを破損させると、RPV 下部からペDESTALへ溶融した燃料デブリが移行する。また、1F のペDESTAL底部は玄武岩系コンクリートが使用されており、溶融落下した燃料デブリとの高温下における反応である MCCI を引き起こし、ex-vessel デブリを形成すると考えられている。MCCI の進行に影響を与えると考えられる諸因子として、コンクリートの材質や溶融落下した燃料デブリの組成や温度等が挙げられるが、コンクリートと燃料デブリが溶融混合した融体の粘度はペDESTAL上における濡れ広がりや物質移動を司る物性値である。そこで、本項目においては、 $\text{CeO}_2(-\text{ZrO}_2)-\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系高温融体の粘度を幅広い組成範囲にて測定するための条件設定を行い、当該酸化物系の高温における粘度範囲を玄武岩系コンクリートの基本組成となる $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系の文献情報より予測した。その後、現有設備であるるつぼ回転法粘度測定装置を用いて 1873 K 以下の高温で $\text{CeO}_2(-\text{ZrO}_2)-\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系高温融体の粘度測定を試みた。

(2) 実施内容

1F ペDESTAL部を構成する玄武岩系コンクリート組成は $14.1\text{CaO}-68.7\text{SiO}_2-17.0\text{Al}_2\text{O}_3$ mass%^[10]であることが知られており、酸化物融体の物性値便覧である Slag Atlas 2nd ed. によると 1773 K において均一溶融し、5 Pa·s (50 poise) 程度の粘度を有することが分かった^[11]。

また、この融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる手法は回転法^[12]であり、コンタクトマテリアルとして酸化物融体に対して反応性が低く高温における強度を有する Pt-20 mass% Rh 合金製のるつぼ及びロッド（回転モーメント；トルクを検出する測定子）を採用した。

図 3.1.3-1 に回転法の測定原理図を示す。半径が R_1 、 R_2 である無限長の共軸円筒間に粘度 (η) の液体を満し、外筒を角速度 (ω) で回転させるとき内筒に生じるトルク (*Torque*) と粘度 (η) の関係は式(3.1.3-1)で与えられる。(ただし、試料融体が①ニュートン流体であり、②層流をなして流れ、③器壁における滑りがない場合に限る。)

$$\eta = \frac{\text{Torque}}{4\pi\omega h} \cdot \left(\frac{1}{R_1^2} - \frac{1}{R_2^2} \right) \quad \text{式(3.1.3-1)}$$

式(3.1.3-1)より、測定の幾何学条件が既知であればトルクの測定によって粘度を求めることができる。しかし、正確なトルク値を直接測定することは難しいため、本研究ではトルクに比例する量をトーションワイヤーのねじり弾性を利用して電位差として測定し、あらかじめ粘度既知のシリコンオイルを用いて作成した検量線に電位差を代入することにより、見かけの粘度を算出した。その後、式(3.1.3-2)により、るつぼ及びロッドの熱膨張による影響を補正して粘度を求めた。

$$\eta = \frac{\eta'}{(1 + \alpha T)^3} \quad \text{式(3.1.3-2)}$$

ここで、 η ：粘度、 η' ：見かけの粘度、 α ：線熱膨張係数、 T ：絶対温度である。

図 3.1.3-2 に回転法による粘度測定装置の概略図を示す。Pt-20 mass% Rh 合金製のるつぼ及びロッドの形状及び寸法は図 3.1.3-2(a)に示すとおりである。試料融体を満たした外筒(るつぼ)に内筒(ロッド)を浸漬し、一定の角速度でるつぼを回転させることによって融体の粘性抵抗によってロッドにトルクが生じる。このトルクを図 3.1.3-2(b)に示す差動トランスを用いて、電位差に変換して検出した。また、差動トランス下部のオイルダンパーはロッドの水平をとり、変位角をすばやく安定させる働きがある。加熱炉はU字型のMoSi₂製発熱体を6本配置することによって、最高1873 Kまでの測定が可能である。

試料融体の温度検出はB-Type (Pt-6 mass% Rh/Pt-30 mass% Rh) 熱電対をるつぼの真横に設置して行った。また、回転は支持台をモーター (Oriental Motor、MSM425-402) に接続して行った。ダンパーオイルの粘度、モーターの回転数、るつぼの形状、ロッドの浸漬深さ、トーションワイヤーの径または長さ等については、粘度既知のシリコンオイルを用いて検定を行っており、高温での検定はSRM2を用いて行った^[13]。

表 3.1.3-1 (mass%) 及び表 3.1.3-2 (mol%) に本項目で高温粘度を測定した酸化物系の組成を示す。①は1FペDESTAL部を構成する玄武岩系コンクリート組成^[10]、これに対して②は10 mass%模擬燃料コリウム^[10]を加えた組成である。ただし、UO₂は実験に用いることが困難であるため代替としてCeO₂を用いた。また、③は②に対してCs₂Oを1 mass%添加した組成である。各種酸化物試薬 (CaO 及び Cs₂O は炭酸塩試薬) を所定の組成に秤量混合したのちに、混合粉末をPt-20 mass% Rh 合金製のるつぼに入れて炉内に設置し、1873 Kまで昇温した。

その後、1873 Kにおいて融体状態の安定化のため1時間の保持を行い、回転数50 rpmによって25 Kごとに試料融体の粘性抵抗によって生じる電位差を測定した。また、各測定温度における保持時間は20分であった。この電位差をあらかじめ作成しておいた検量線の式に代入して見かけの粘度を求めたあと、各温度におけるPt-20 mass% Rh 合金製のるつぼ及びロッドの熱膨張による影響を補正して粘度とした。なお、粘度測定は大気雰囲気にて行い、またロッド等の測定系を懸垂するトーションワイヤーはφ0.46×L30 mmを採用した。

(3) 結果及び考察

測定の結果、1873 Kにおいて①は70.55 Pa·s (705 poise) の粘度を示すことが分かった。これは、文献調査の結果である1773 Kにおける粘度値5 Pa·s (50 poise) に比較して一桁以上高い値であるが、表 3.1.3-2 に示すように①は、本項目において測定を行った酸化物系では陽イオン-酸素間引力の観点から、Network Former (網目形成酸化物) として挙動すると考えられるSiO₂を73.2 mol%も含有しているため、今回の測定値はリーズナブルであると考えられる。つまり、文献値は50 poiseではなく50 Pa·sの誤記載である可能性があると思われるが、より詳細な文献調査が必要と思われる。次に、1873 Kにおいて③は39.1 Pa·s (391 poise) の粘度を示すことが分かった。これより、10 mass%の模擬燃料コリウム及び1.0 mass%のCs₂Oが混合することによって、大幅に粘度が低下することが明らかとなった。これは、陽イオン半径が大きなCe⁴⁺、Zr⁴⁺、及びCs²⁺が酸化物融体中においてNetwork Modifier (網目修飾酸化物) として挙動することによって、測定を行った酸化物系において主たるネットワーク構造であるアルミノシリケートの流動ユニットを小さくしたためであると考えられる。しかしながら、Cs₂Oに関しては1 mass% (0.2 mol%) とその含有量が非常に少ないため、融体粘度に与える影響は小さいと考えられる。

(4) 令和4年度以降の研究計画

ここで、令和3年度研究開始当初は上記に示すとおり ex-vessel 条件にて玄武岩系コンクリートに対して、熔融酸化物デブリ（コリウム）が反応した際の粘度測定を行い、そこへのCs酸化物の影響を測定する計画を立てていた。しかし、事故進展最確シナリオの検討により、ex-vessel 条件で存在が予想される Cs₂O 量が燃料デブリバルクの粘性に影響を与えるほどではないことが明らかとなった。むしろ、RPV内（in-vessel）条件にて、いったん蒸発したCsや燃料ペレット中に残留したCsが、構造材の1つであるステンレス鋼（SUS316L）表面に付着しこれと反応することによって、その表面 Cs₂O-Fe₂O₃ 系融体を形成する可能性が高いことが示された。事故進展に伴う温度上昇により、この融体からエアロゾルが形成・飛散すると考えられ、炉内でのCs移行・最凝縮に影響を与えると考えられる。本研究では、後者のメカニズム理解の重要性に着目し、研究計画の追加を行った。これによって、2、3号機のCs移行挙動の評価に必要なCs₂O酸化物系の粘度を精緻に測定することで、炉内セシウム分布の評価精度向上に資する融体からのエアロゾル形成プロセス理解の一助となる流動物性に関する知見を拡充することを目的とした。ここではまず、Cs₂O-Fe₂O₃ 系融体の物性を予見するため、似通った性質を有すると思われる R₀-Fe₂O₃ 系熔融酸化物（R:アルカリ、アルカリ土類）の粘度に関する文献調査を行った。

角田らは、るつぼ回転法により大気雰囲気下において、Na₂O-Fe₂O₃ 系酸化物融体（20～50 mass% Na₂O）の高温粘度を測定した^[15]。その結果、図 3.1.3-3 に示すように温度及び組成に応じて、0.01～0.5 Pa・s の範囲に粘度が分布することが分かる。また、Na₂O 量が増加するに伴って Na₂O-Fe₂O₃ 系酸化物融体の粘度が上昇することが分かる。これは、Na⁺イオンが Network Former として挙動する酸素四配位構造の Fe³⁺イオンである FeO₄⁵⁻に対する電荷補償陽イオンの役割を担うことによって上記の粘度上昇が生じたものと推定できる。また、本項目執筆者である Saito らは、同じくるつぼ回転法により大気雰囲気下において、CaO-Fe₂O₃ 系酸化物融体の高温粘度を測定した^[13]。その結果、図 3.1.3-4 に示すように、1873 K において組成に応じて 0.002～0.03 Pa・s の範囲に粘度が分布することが分かる。また、CaO 量が増加するに伴って CaO-Fe₂O₃ 系酸化物融体の粘度が上昇することが分かるが、これは前述のように Ca²⁺イオンが FeO₄⁵⁻に対する電荷補償陽イオンとして挙動するためであると考えられる。加えて、SiO₂ 及び Al₂O₃ 量が増加することによって粘度が上昇することが分かる。以上の文献調査より、代表的な R₀-Fe₂O₃ 系熔融酸化物融体は 10⁻³～10⁻¹ Pa・s 程度の粘度有することが分かった。以上より、この融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる手法は回転法^[13]であり、コンタクトマテリアルとして酸化物融体に対して反応性が低く高温における強度を有する Pt-20 mass% Rh 合金製のるつぼ及びロッドを今後採用する。なお、粘度測定は大気雰囲気にて行い、またロッド等の測定系を懸垂するトーションワイヤーはφ0.20×L300 mm を採用する。

(5) まとめ

CeO₂(-ZrO₂)-CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系高温融体の粘度を幅広い組成範囲にて測定するための条件として、測定系を懸垂するトーションワイヤーの直径及び長さ、測定に際して検量を行う粘度範囲を設定して粘度測定を行った。当該酸化物系の高温における粘度範囲を CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系の文献情報より予測した。その後、るつぼ回転法粘度測定装置（現有設備）を用いて 1873 K 以下の高温で、CeO₂(-ZrO₂)-CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系高温融体の粘度測定を試みた。コンタクトマ

テリアルの選定及び CaO-Al₂O₃-SiO₂ 系溶融酸化物の粘性に関する文献調査より、1773 K において均一溶融し、5 Pa・s 程度の粘度を有することが分かった。この融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる条件の設定を行った。

また、in-vessel 条件で SUS316L 表面において生成すると考えられる、Cs₂O-Fe₂O₃ 系メルトからのエアロゾル形成メカニズム理解に向けて、基本形となる Cs₂O-Fe₂O₃ 系の物性を予見するため、RO-Fe₂O₃ 系溶融酸化物 (R: アルカリ、アルカリ土類) の粘性に関する文献調査を追加として行った。その結果、10⁻³~10⁻¹ Pa・s 程度の粘度有することが分かり、本系融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる条件の設定を行うことができた。

表 3.1.3-1 高温粘度を測定した酸化物系の化学組成 (mass%)

	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	CeO ₂	ZrO ₂	Cs ₂ O
①	68.8	14.1	17.1	-	-	-
②	61.9	12.7	15.4	7.8	2.2	-
③	61.3	12.6	15.2	7.8	2.1	1.0

表 3.1.3-2 高温粘度を測定した酸化物系の化学組成 (mol%)

	SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	CeO ₂	ZrO ₂	Cs ₂ O
①	73.2	16.1	10.7	-	-	-
②	70.1	15.4	10.3	3.1	1.2	-
③	69.9	15.3	10.2	3.1	1.2	0.2

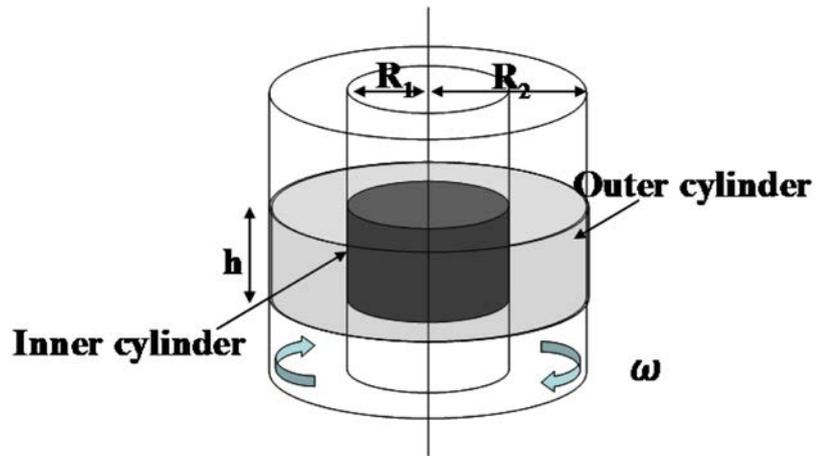


図 3. 1. 3-1 回転法による酸化物融体の粘度測定原理図

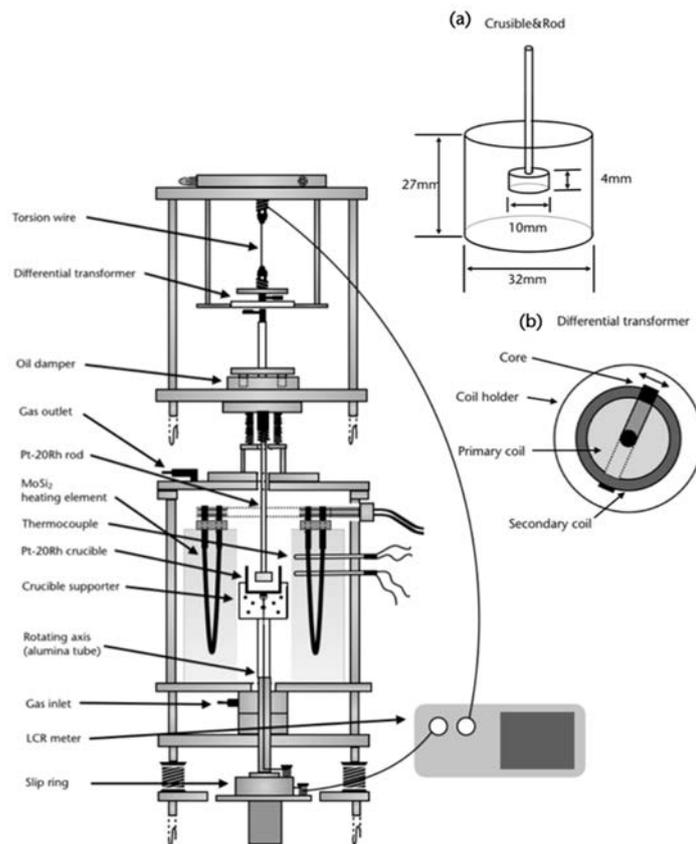


図 3. 1. 3-2 回転法による粘度測定装置の概略図

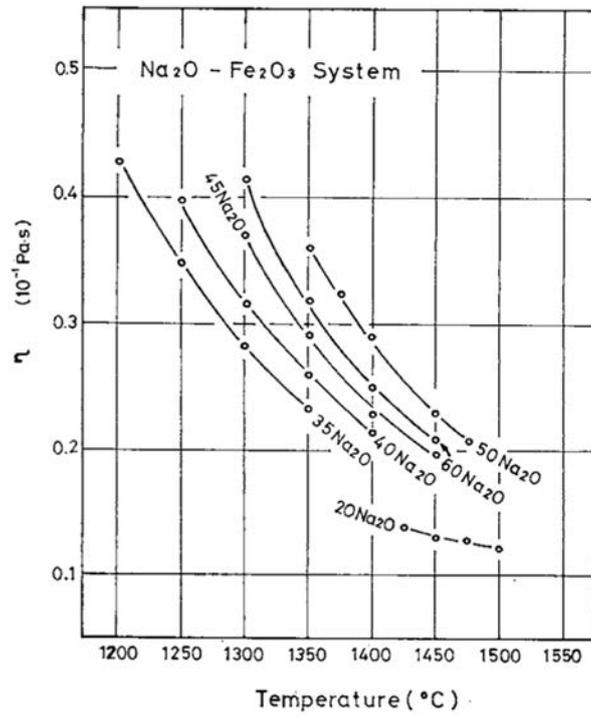


図 3.1.3-3 $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系酸化物融体の粘度測定例
(出典：日本金属学会誌^[15])

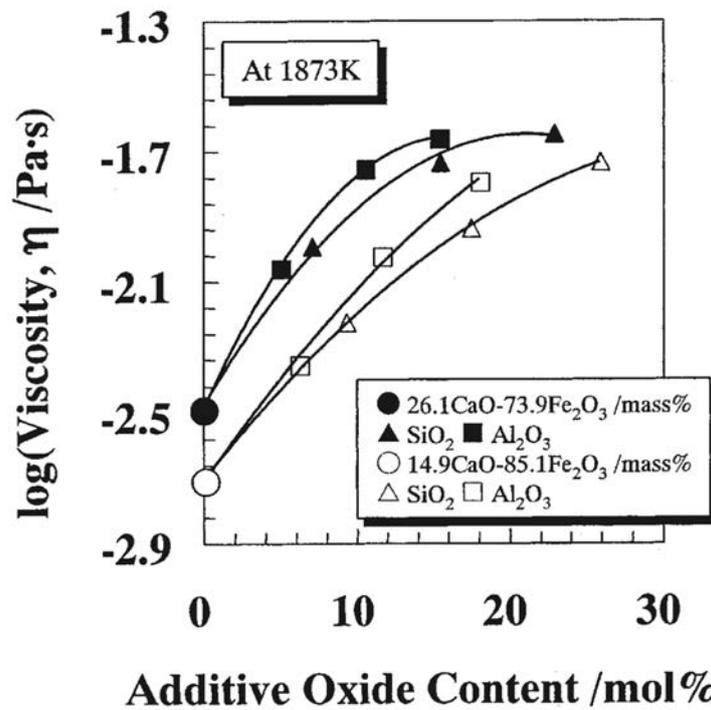


図 3.1.3-4 $\text{CaO}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系酸化物融体の粘度測定例
(出典：Metallurgical and Materials Transactions B^[13])

3.1.4 Cs 挙動確認試験

(1) 目的

本課題における本研究項目では、令和3年度に以下を実施する。1F事故の現状での最確事故シナリオを参考に、その条件で最も形成されやすいと考えられるCs化合物と鋼材及びコンクリートとの相互作用に関する予備的検討を行う。これら予備試験により、令和4年度に実施する包括的なパラメータ試験に向けた基礎知見を取得する。

(2) Cs のふるまいに関する既往知見の整理

被覆管内に溜まっているCsが被覆管の破損により、炉内の水蒸気と反応して、CsOHやCsIなどのCs化合物を形成し、ガス状となって環境中に移行したり、原子炉内やPCV内外に移行したりして、最終的に吸着、凝集する。事故時に形成される最も重要な化学種はCsOHであり、化学活性の高いアルカリ元素系化合物である。500℃以下ではあまり活性が高くないが^[16]、それ以上の温度では、ステンレス鋼や他の物質と反応して放射性Csを含有する安定な化合物を形成すると報告されている^{[17][18][19]}。

鋼材などの酸化された表面は一般的に粗い構造であることから、液相や気相のCs化合物が吸着されやすいと考えられる。従来、室温でも、粘土層中の鉱物粒子析出相へのCs吸蔵現象があることが示されている^{[19][20]}。しかし、Cs化合物が、相対的に高温で鋼材表面に吸着するケースでは、吸着メカニズムは異なると考えられる。Allen^[21]による温度勾配条件での試験で確認されたように、Csは約550℃で水溶性あるいは非水溶性の化合物を形成して鋼材表面に残留し、さらに、約950℃で保持されたステンレス鋼材の酸化物層中に急速に侵入する。Elrickら^[22]は、約1000℃で酸化させた試料表面を分析し、酸化物層の界面にCs化合物が存在していることを観測した。Cs化合物が酸化物相中にトラップされる場合には、Csの蒸発を抑制する可能性が指摘された。Nakajimaら^[23]は、約800℃で3時間維持したステンレス鋼中に、Cs-Si-Fe-O系の化合物が形成されていることを確認している。

また、3.1.1、3.1.2の2、3号機最確シナリオ評価から、事故進展において炉内のステンレス鋼は1000℃以下の水蒸気雰囲気曝される可能性が高いことが分かった。上記の文献調査からステンレス鋼表面酸化膜がCs化合物の吸着及び蒸着に影響を及ぼしていることが示唆されるが、実際の事故条件における酸化膜成長に対してCsの吸着挙動を定量的に評価するほどの機構論的考察は得られていない。したがって、本研究では事故進展過程におけるステンレス鋼表面酸化状態の変化に伴うCsの吸着量の評価精度を向上させることを目的として、最も反応性が高いと考えられるCsOHを対象に最尤温度範囲500～900℃における吸着挙動の基礎過程を理解するために、最も基礎となる「酸化膜なしステンレス鋼」に対するCsOH反応試験を実施した。

(3) 実験条件

予備試験では、NETZSCH Japan K.K.製の熱分析装置(STA 2500)を用いた(図3.1.4-1)。熱重量分析により、酸化による重量増加、あるいは蒸発による重量減少を測定できる。液相化やその他の相変態は、温度変化曲線における吸熱ピークとして現れる(図3.1.4-2)。

令和3年度は、まず最も重要なCsOHの熱分析測定を実施した。測定には、Pt製のるつぼを使用した。500℃に到達する以前に、CsOHはほぼ全量蒸発することを確認した。次に、CsOH

を同様に Pt 製のつぼ内に装荷した後に、その上に 316L ステンレス鋼の板状試料を装荷する条件で熱分析を実施した。316L ステンレス鋼は、BWR の制御棒ブレードのシース材として用いられている材料である。試験条件は表 3.1.4-1 に示した。試験は水蒸気雰囲気中で実施し、温度は 500、700、800、900 °C で、保持時間は 500 °C では 15 分、他の条件では 30 分とした。蒸発した Cs 化合物は、オフガスラインに設けた水槽トラップで回収した。

(4) 結果と考察

図 3.1.4-2 に本研究で得られた CsOH の熱分析データ (TG-DTA データ) を示す。この測定では、保持温度 500 °C の条件で、他の物質表面へ吸着していない Cs 化合物の蒸発特性を、基準条件として測定した。図中には、赤の点線で試料の温度変化を、緑線で試料の重量変化 (TG) を、青線で試料と標準試料の温度差の履歴 (DTA) をそれぞれ示す。TG 曲線では、約 230~300 °C あたりで急激な重量減少が観測される。試料温度が 500 °C に到達したあとの等温保持条件でも、試料重量が少しずつ減少している。このことは、昇温中と等温保持中の蒸発速度の変化が大きく異なることを意味している。DTA 曲線では、228 °C に吸熱ピークが明確に観測された。これは、CsOH の固相/液相変態に相当すると考えられる。文献^[18]では、CsOH の液相化温度は 315 °C と報告されている。本研究での測定値は文献値^[18]より約百°C低い値であった。文献^[18]のデータは数十年以上前に取得されており、試薬が水分吸収していた可能性がある。これらのことから、炉内環境のような実用的な条件では、CsOH の液相化温度が、雰囲気中の湿潤条件に応じて、およそ 220~315 °C の範囲にあると推定される。これらの測定データにより、液相状態の CsOH からの蒸発性が高いことが確認された。試験後試料を観察したところ、保持温度 500 °C の条件において、Pt 製のつぼからほぼすべての Cs 化合物が蒸発していた。

次に、表 3.1.4-1 にステンレス鋼と CsOH を用いた各条件での重量変化と試験後の試料外観を示す。令和 3 年度の前備試験により、酸化物表面が形成されていないステンレス鋼材への CsOH 吸着は物理吸着が支配的であり、加熱により容易に蒸発することが確認された。このことから、今回の TG-DTA 試験条件では、加熱中にステンレス鋼表面の酸化が進展していないと推察した。このことは、水蒸気雰囲気中においても、CsOH 液相層が表面に形成され、ステンレス鋼がこれによって完全に覆われると、ステンレス鋼の酸化を抑制する方向に働く可能性を示唆している。本試験では、CsOH 自体は短時間の反応では、ステンレス鋼を大きく腐食することはなかった。しかし、CsOH 堆積物がステンレス鋼材上に長期的に付着する場合には、腐食が発生する可能性がある。

700~900 °C の条件でそれぞれ 30 分保持した条件でも、500 °C で 15 分保持した条件とほぼ同様の結果が得られた。保持温度を 700~900 °C まで上昇させても、ステンレス鋼表面の酸化はあまり進まず、Cs 化合物の残留は見られなかった。このことは、今回の試験条件のすべてで、ステンレス鋼表面への CsOH 吸着が、物理吸着が支配的であったことを示唆しており、鋼材表面にわずかな CsOH のみが残留することを確認した。しかしながら、保持温度を 900 °C 以上にすると、その温度に到達する以前に CsOH がほぼ蒸発してしまうため、さらに高温で他の反応メカニズムがあるかどうかは判断できなかった。このことから、実際の 1F 事故炉内でも、圧力容器がベントされる前の閉鎖系の条件の時に、CsOH と鋼材の反応が進展した可能性が示唆される。

本研究で得られた予備的な試験データと、上に示した典型的な事故時のCs移行ふるまいから、令和4年度に実施する1F 2、3号機の最確事故シナリオ（RPV内の条件）に基づく、Csと構造材の系統的な反応試験について概略計画を示す。温度条件は500～1000℃とし、化合物としてはCsOHとCsIの試薬を用いる。構造材側の条件としては、ステンレス鋼材表面に3～5μmの予備酸化被膜を付与した試料、鉄とホウ素の共晶物、表面に予備酸化被膜を付与した鉄とホウ素の共晶物を用いる。コンクリート材とCs化合物との反応については、300～1200℃の範囲で、コンクリート材へのCsOHとCsIの吸着及び脱離反応を調査する。コンクリートとの反応ではケイ酸化合物の安定性が重要な因子と推定されるため、 Cs_2SiO_3 をコンクリート材中に予め混入させる。これらのコンクリート材との反応は、PCV内でのCsふるまいを想定している。

(5) まとめ

CsOHとステンレス鋼との反応性を検討するための熱分析予備試験により、ステンレス鋼表面に形成される酸化層がCsOHとの反応性に関連している可能性が示唆される。

令和4年度では、Cs試薬としてCsOH、CsI、 Cs_2SiO_3 等とステンレス鋼との反応性に及ぼすステンレス鋼の表面酸化膜の影響を評価し、1F炉内環境で形成しうるCs化合物の化学形について検討する計画である。また、Cs化合物とジルカロイやコンクリートとの相互作用も調査する計画である。

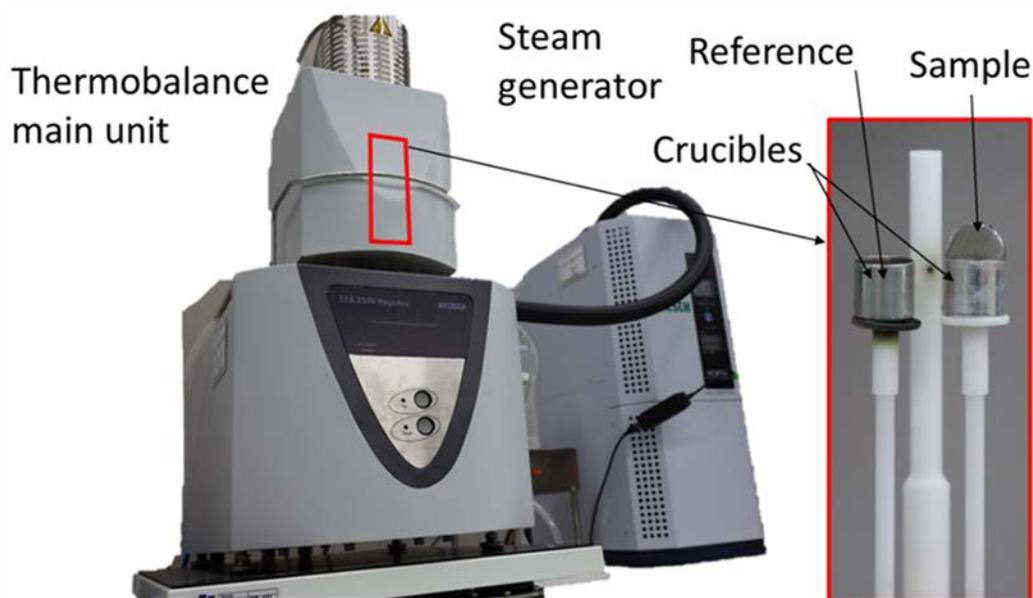


図 3.1.4-1 熱分析装置（NETZSCH Japan K.K.、STA 2500）の外観と試料装荷部分

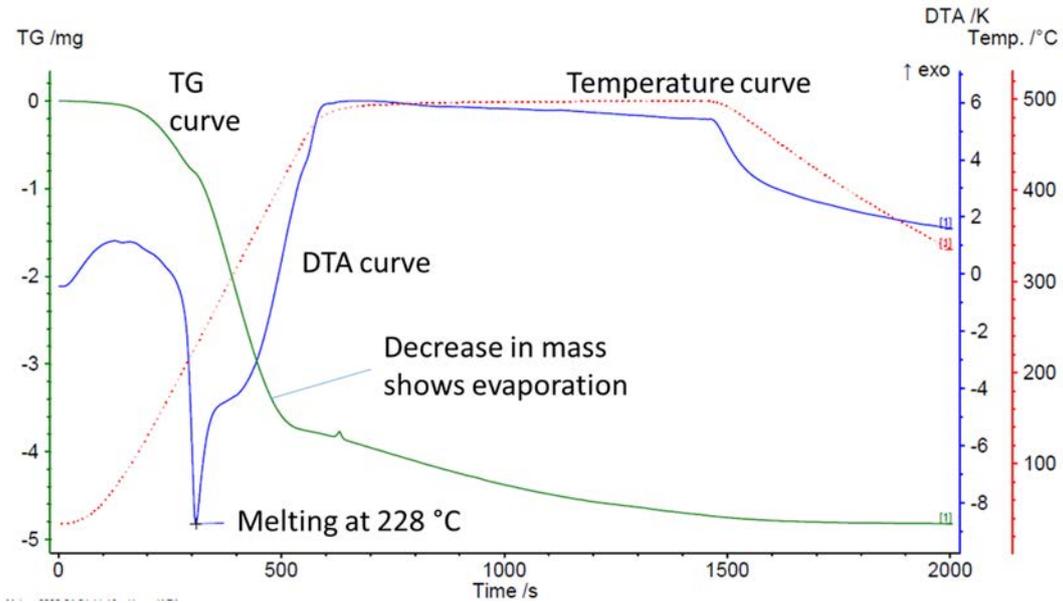


図 3.1.4-2 本研究で得られた典型的な熱分析曲線
 (試験条件：CsOH 試薬のみ装荷、Pt るつぼ、保持温度 500 °C、保持時間 15 分)

表 3.1.4-1 熱分析予備試験の試験条件 (試験体：CsOH/316L ステンレス鋼)

保持温度 (°C)	昇温速度 (K/s)	保持時間 (分)	雰囲気	ステンレス鋼材の初期重量 (mg)	CsOH の初期重量 (mg)	試験後の重量変化 (mg)	試験後の外観 (* るつぼあり)
500	1	15	Ar + 20 % H ₂ O	139.13	46.98	-8.3	
700	1	30	Ar + 20 % H ₂ O	168.81	37.57	-33.75	
800	1	30	Ar + 20 % H ₂ O	172.9	39.85	-37.98	
900	1	30	Ar + 20 % H ₂ O	180.51	96.52	-94.09	

3.2 金属デブリの酸化変質評価

3.2.1 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価

(1) 目的

本研究における令和3年度の目的は、鉄系材料とホウ素を含有する模擬物質を用いた TG-DTA 試験により、熔融状態の金属デブリの酸化挙動の概略について予備的に検討することである。

(2) 金属デブリのふるまいに関する既往知見の整理

沸騰水型軽水炉（以下、BWR と略記。）では、燃料集合体には、チャンネルボックスや被覆管にジルコニウム合金が、炉心下部プレナム内には、数多くの制御棒案内管（以下、CRGT と略記。）などにステンレス鋼が使用されており、これら金属物質の酸化挙動を評価する必要がある^[24]。

使用されている物質間の共晶熔融反応は相対的に低い温度で起こるため^[25]、形成される金属物質の熔融物（以下、金属熔融物と略記。）は、相対的に低い温度で水蒸気に曝される。従って、金属熔融物の酸化は限定的であり、金属成分を多く保持したまま、下部に移行すると考えられる。このため、炉心に装荷されていたジルコニウムや鉄の相当量が限定的な酸化度のまま PCV に移行する可能性がある。この 1F 事故初期フェーズにおける金属リッチデブリ形成の可能性は、CLADS に整備した大型試験装置（LEISAN）を用いた模擬燃料バンドルの破損・熔融試験の結果から推察された^[26]。さらに、金属熔融物が比較的低温で形成され、炭化ホウ素を完全に熔融しないため^[27]、鉄系材料と炭化ホウ素の混合物が RPV 下部プレナムを局所熔融し破損させた可能性が考えられている^[28]。RPV は鋼材の塊であり、炉心部で形成された金属熔融物と反応することで、金属リッチデブリの物量が増加すると考えられる。PCV 内に移行したあとでも同様である。同時に、金属熔融物中にはホウ素が溶け込み、凝固時に固有していること、あるいは、一部がホウ化物として析出することで、金属デブリは硬化し、切削加工しにくくなっている可能性が考えられる。これは廃炉作業において課題となる可能性がある。さらに、金属熔融物中にジルコニウムが熔融している場合には、酸化物デブリと反応して発熱反応が起こり、炉心破損を促進する可能性も考えられる。

前述の事故進展最確シナリオ、及び、事故進展中に冷却水供給が不十分であったという事故過程を考慮すると、1F 2号機では、炉心部で金属デブリが熔融して移行・崩落する段階では、水蒸気枯渇条件であったと考えられる。したがって、1F 2号機では金属デブリが多く残留していると考えられている。一方、1F 3号機では、発生した水素の物量から、事故過程でデブリの酸化がかなり進んだと考えられている。このように 1F 2号機と 3号機では、事故進展シナリオがかなり異なっているが、金属熔融物が形成される初期フェーズでは、その酸化が限定的であることは共通していると思われる。したがって、その後の過程において、2、3号機ともに金属熔融物は RPV を破損し、高温熔融物として RPV ペDESTAL 領域に移行したと考えられる。また、崩落過程では金属熔融物が広がり、反応表面が増加する。このような金属成分を多く含む高温熔融物は、凝固するまでに酸化が進行すると考えられる。金属デブリを切削加工する際には、エアロゾルが飛散する可能性がある。RPV 内に残留、あるいは PCV に移行した金属デブリの特性については、これまでほとんど知見がなく、模擬金属デブリの特性研究が進められている。これらを踏まえて、蓋然性の高い事故時化学環境として雰囲気組成、デブリ温度等を推定した。

(3) 実験条件

ステンレス鋼と炭化ホウ素からなる模擬金属デブリ（以降、本項目では模擬金属デブリと呼ぶ。）の酸化挙動を調べるために、3.1.4項で掲載したのと同じ NETZSCH Japan K.K. 製の TG-DTA 熱分析装置を用いた（図 3.1.4-1）。熱分析曲線上では、金属デブリの酸化が起こると重量が増加し、酸化物の蒸発が起こると重量が減少する。

この試験では、鉄と Pt の反応を起こさないように、Pt 製るつぼの代わりにアルミナ製るつぼを使用した。最初に、316L ステンレス鋼の板材を、実機同等の制御棒ブレード試験体から一部切り出して試験に用いた（表 3.2.1-1）。次に、模擬金属デブリサンプルは、CLADS-MADE-01 試験^[30]で回収した模擬金属デブリから切り出した（表 3.2.1-2、図 3.2.1-1）。熱分析試験では、まず所定の温度まで 100 % のアルゴン雰囲気中で加熱した。次に、雰囲気を 80 % Ar + 20 % H₂O に切り替えて 60 分保持してから冷却した。

試験中に放出されたエアロゾルは、試験装置内排気ライン中に設置したコールドトラップ（空冷トラップ、水バブルトラップ）で回収した。また、試験中のオフガスをサンプリングしてガスクロマトグラフで測定したところ、水素と二酸化炭素を検出した。回収したエアロゾルは、ラマン分光装置で分析し、そこに含まれる物質の化学状態を調べた。

(4) 結果と考察

本研究では、ホウ素を含有する模擬デブリの酸化試験により、ステンレス鋼の酸化との違いが以下のように示された。

図 3.2.1-2 に、316L ステンレス材（以下、316L と略記。）における重量変化を示す。1100 °C 以上の条件で、初期には重量増加が限定的であるのに対し、ある段階で急速に重量増加する現象が観測された。その原因を調査するため、試験体の形状や装荷の方法を変えて再現試験を実施したが、重量増加の絶対値は異なるものの、加熱初期に重量増加が抑制される傾向が確認された。そのメカニズムとして、表面酸化層（不動態相）の形成とその破損によるブレークアウェイ（内部での新たな酸化物層の形成）が推察された。このような反応メカニズムは、クロムリッチ層を持つ鋼材中での Fe₂O₃ 析出物の形成による酸化進展の典型現象として報告されている^[29]。文献^[29]によると、316L の表面にはクロム酸化物は検出されていない。本試験でも同様の反応が起こった可能性がある。ステンレス鋼中の hematite 層の下に形成されるクロムリッチ層は酸化鉄を微細化させ、酸化を促進する可能性がある。

316L 表面の酸化物層の二次電子線像（SEI）からは、局所的な腐食点为非均質に形成されていることを示した。この現象は、酸化鉄層の脆性により、容易にそのブレークアウェイを引き起こすと推定される。このようなブレークアウェイ現象が支配的である場合、酸化進展は拡散律速でなくなり、重量増加は双曲線則に従わないと考えられる。しかし、反応時間 60 分での重量増加と温度は、およそ、アレニウスプロットにおいて直線関係を示していた。これは、ジルカロイなど金属材料酸化に見られる傾向であった。さらに、316L と模擬金属デブリを比較すると、316L ではより明確な直線性が見られ、酸素の拡散が支配的であることが確認された。模擬金属デブリでは直線性がやや乏しく、副次的な反応が起きていることが推察された。

図 3.2.1-3 に模擬金属デブリと重量変化を示す。重量増加は双曲線則に従い、アレニウスプロットでは直線で近似された。316L と異なり、模擬金属デブリ中にはホウ素が含有されているため、900~1200 °C の範囲では、ホウ素の酸化が大きく発生した。他方、模擬金属デブリ中にはより安定な Fe₃O₄ が形成された（316L では Fe₂O₃）。これらの反応の結果として、重量増加はおよそ双曲線則に従った。おそらく、ホウ素リッチ領域にクロムの濃化が起きていると

推察され^{[30][31][32]}、これが、より緻密な Fe_3O_4 による酸化鉄層の形成に寄与している。

このような模擬金属デブリの酸化とジルカロイ-4の酸化を比較すると、1000℃以下では、模擬金属デブリの酸化速度はジルカロイ-4より小さいと考えられる。約1100℃では両者の酸化速度は概ね一致する。しかし、約1180～1220℃で、ホウ素を約5wt%含有する模擬金属デブリの共晶熔融が起こるため、金属デブリの酸化メカニズムが変化する。金属デブリは温度上昇により急速に熔融して、温度の低い下方に移行する。移行反応は酸化よりも速いと推察される。一方で、共晶熔融温度直下での酸化速度が増大する効果も無視できない可能性がある。これは、共晶熔融温度直下では表面酸化物層の安定性が低下するためである。おそらく、図中の1150℃のデータは、双曲線則から離れ、酸化量が増加している可能性があり、詳細に検討中である。

金属デブリの酸化過程においては、ホウ素は金属デブリのバルクから表面に移行し、ホウ酸として酸化される。走査型電子顕微鏡（以下、SEMと略記。）分析によると、酸化された領域にはほとんどホウ素が検出されなかった。模擬金属デブリの表面酸化層は2種類の相からなっていた。そのうちの1相が残留するホウ素のほぼすべてを含有していた。このことから、反応前には、この領域は主にクロムとホウ素を含有しており、反応後には酸化したクロムは選択的に内側の酸化物層に拡散し、ホウ酸が残留したというメカニズムを推察した。逆に言うと、ホウ素が選択的に表面に拡散した。内側の酸化物層は鉄とホウ素が濃化した相、鉄とクロムが濃化した相及び鉄とニッケルが金属として残留した相で形成されていた。このようなニッケルを多く含む金属析出にはほとんど酸素が検出されなかった。この金属析出物は1150℃でも形成されていた。この残留金属析出物のふるまいは今後着目すべき点である。また、熱分析試験後にオフガスラインで回収された白色の結晶（図3.2.1-4）をラマン分光法で分析したところ、ホウ酸（ H_3BO_3 ）であることが確認された。

令和3年度の試験結果を踏まえて、以下のような試験を令和4年度に計画した。まず、より高温状態の知見を拡充する。より高温では、おそらくホウ素の酸化量が増大し、さらに金属デブリ表面から蒸発していくと推察される。蒸発したホウ素は、おそらく、蒸気配管などのコールドスポットに付着・凝縮すると考えられる。令和4年度、ホウ素化合物の蒸発挙動についても調査する。

(5) まとめ

ステンレス鋼板材とステンレス鋼と炭化ホウ素を含有した模擬金属デブリの、水蒸気雰囲気での熱分析予備試験を実施した。熱分析試験中の重量増加は限定的であったが、金属物質表面に形成された酸化物層は不働態相ではなかった。このような酸化において、クロムが表面酸化物の不働態層の形成を妨害している可能性が考えられた。このメカニズムにより、酸化反応は直線的に進まない可能性が見出された。

しかし、ステンレス鋼と炭化ホウ素が十分に反応した模擬金属デブリでは、酸化による成分の再分布が起こっていた。金属デブリ中でクロムとホウ素が凝集された析出物により、金属デブリの酸化挙動が影響を受けていた。模擬金属デブリの酸化は、見かけ上拡散律速であり、反応速度は双曲線則で近似できた。

令和4年度は、水蒸気雰囲気での、ジルコニウムを含有する模擬金属デブリの酸化挙動（溶解状態）を重点的に調査するとともに、ステンレス鋼と炭化ホウ素溶解物に対する他の成分の反応挙動を調査する。



図 3.2.1-1 熱分析試験用に切り出した CLADS-MADE-01 試験体の一部

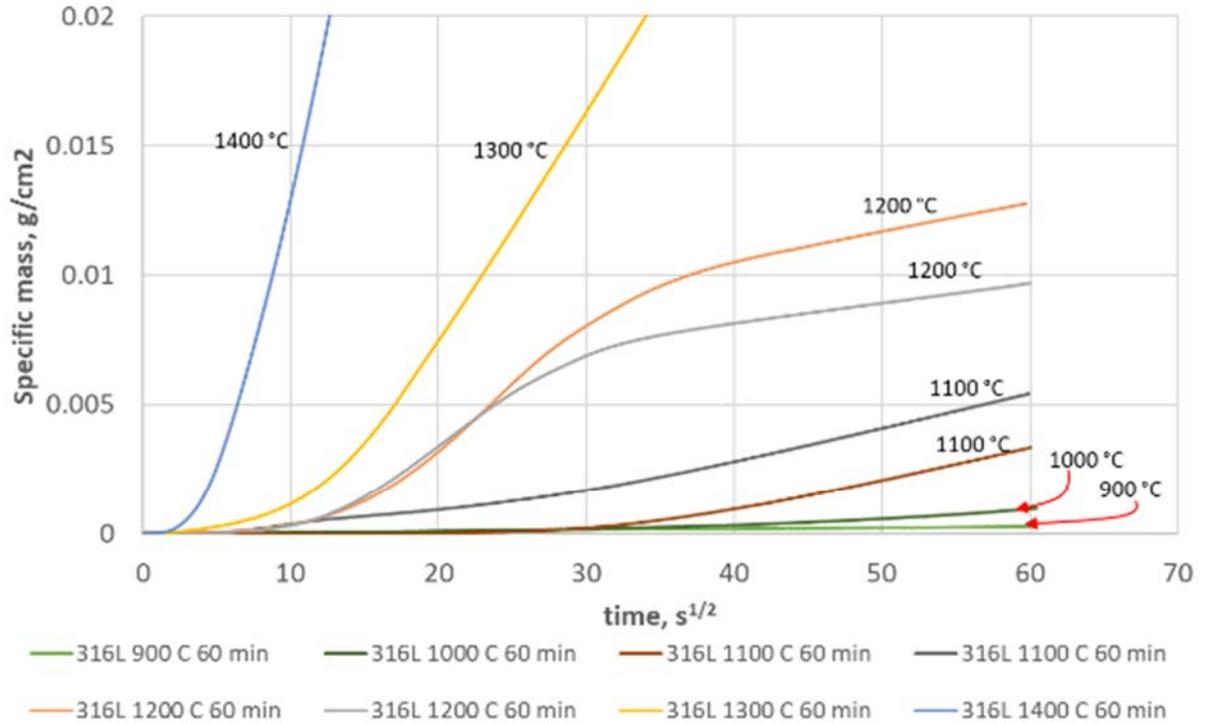


図 3.2.1-2 316L ステンレス鋼材の水蒸気酸化試験中の重量増加曲線 (Ar+20 %水蒸気)

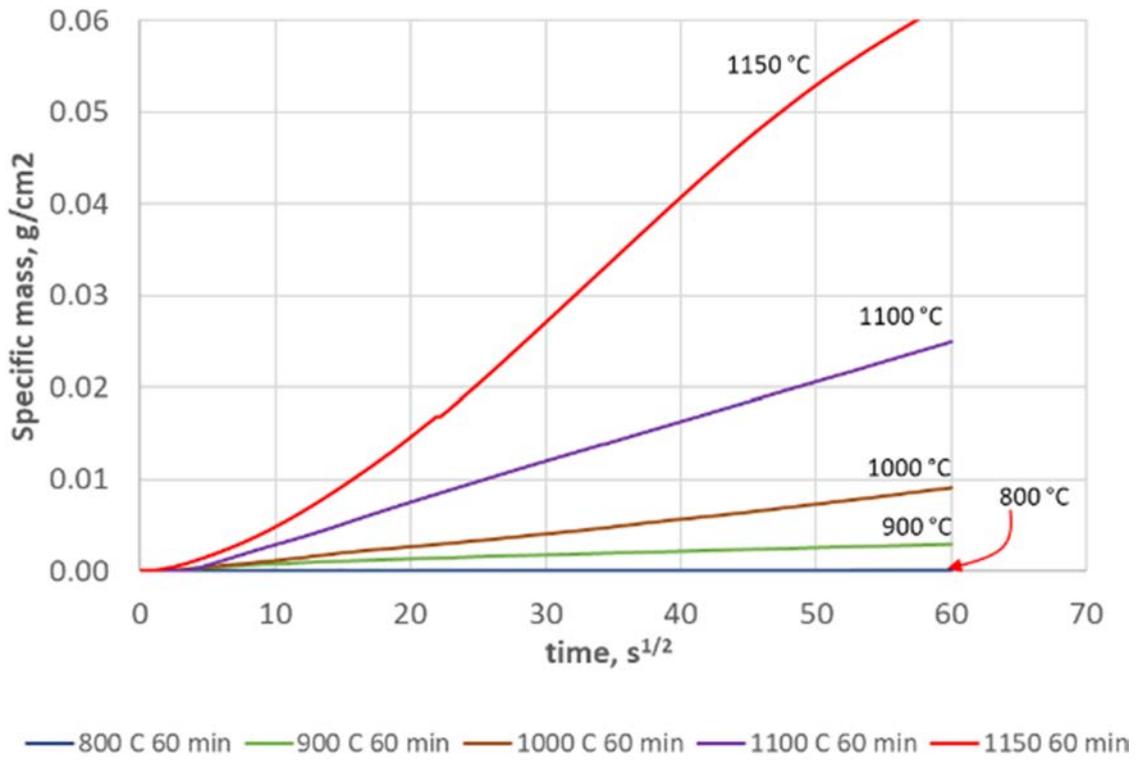


図 3. 2. 1-3 模擬金属デブリの水蒸気酸化試験中の重量増加 (Ar+20 %水蒸気)

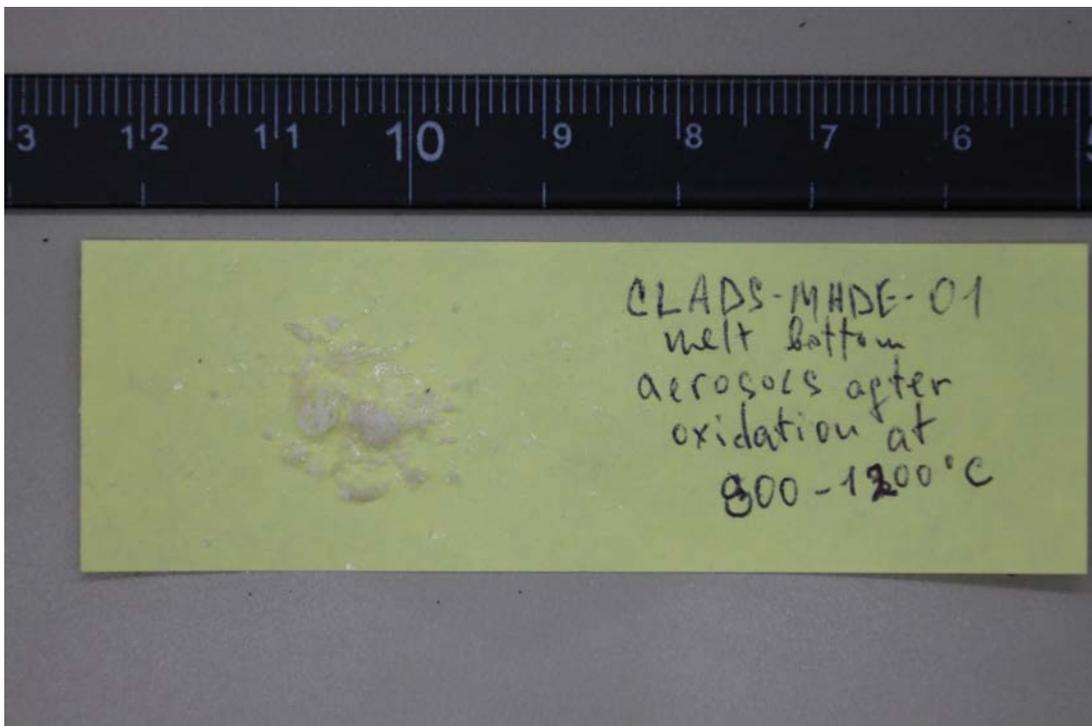


図 3. 2. 1-4 熱分析試験後にオフガスラインで回収されたホウ酸を主成分とするエアロゾル

表 3.2.1-1 316L ステンレス鋼材の水蒸気酸化試験の条件

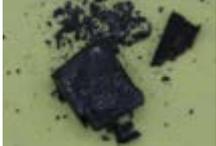
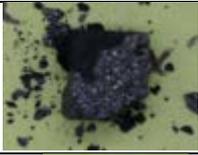
保持温度 (°C)	昇温速度 (°C/s)	保持時間 (分)	雰囲気	試験後外観 (* with crucible)
900	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1000	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1100	1	60	Ar+2.0 % H ₂ O	
1200	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1300	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1400	1	60	Ar+20 % H ₂ O	 *

表 3.2.1-2 鉄とホウ素の共晶反応物及び模擬金属デブリの水蒸気酸化試験の条件

保持温度 (°C)	昇温速度 (°C/s)	保持時間 (分)	雰囲気	試験後の外観 (* with crucible)
800	1	90	Ar+20 % H ₂ O	
900	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1000	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1100	1	60	Ar+20 % H ₂ O	
1150	1	60	Ar+20 % H ₂ O	 *

3.2.2 2、3号機最確シナリオに基づいた熱力学解析を補完する平衡データ取得及び酸化進展の kinetics

(1) 目的

1F 2、3号機では、RPV 破損時の最高到達温度が、従来、典型的事故条件で想定される温度よりも数百 K 低かったのではないかと推定されている。このため、融点が高い酸化物系デブリがまだ十分に溶融するよりも低い温度で、融点が高い金属系デブリが下部プレナムへ先行的に崩落・溶融したことが 1F 事故炉に固有の破損状態に関与している可能性がある。この事故シナリオでは、下部プレナムへ落下した際に一旦固化した金属系デブリが、主に酸化物デブリに由来する崩壊熱によって加熱され再溶融する過程で、周辺の燃料由来酸化物（未溶融）及び構造材由来ステンレス鋼（金属系デブリに溶融する可能性）が反応に関与することが想定される。その反応メカニズムを調べるため、酸化物共存環境における金属系デブリ溶融反応の熱力学的安定性を系統的に評価することが必要である。この観点から、本項目では金属デブリの主要元素である Fe と Zr の液相状態に着目し ZrO_2 との熱的安定性に関する予備的評価を実施した。再溶融した Zr-Fe 金属系デブリに含まれる Zr は水蒸気によって酸化されるか（気液反応）、または、鋼材に含まれる Fe や Ni との化学的親和性によって溶融が促進される（固液反応）と考えられる。前者は Zr 酸化物の析出を伴い、後者の鋼材溶融反応の促進を妨げるため、両反応は競合関係にある。Zr-Fe 金属融体中 Zr 活量（金属融体中の溶解度に活量係数を乗じた値）は気液反応に寄与する割合としてパラメータ化し、気液反応に寄与しない分が鋼材の溶融反応に消費されるとモデル化することによって事故炉の化学条件（雰囲気・温度）が変化する過程におけるデブリの酸化変質と鋼材溶融過程を数値的に解析することが可能となる。したがって、本研究では Zr-Fe 金属系デブリの Zr 活量を直接的に測定できる実験的方法を確立することを目指す。さらに、Fe を鋼材合金（ステンレス鋼等）に置き換えた時の Zr 活量が Zr-Fe 系に比較してどの程度変化するかを捉えることによって、二元系熱力学データベースによる理論的活量データを適宜補正してモデルに導入する方策を検討し、より実践的な解析モデルの構築につなげることができる。このように液相中 Zr 活量は重要な役割を果たす物性値であり、令和 3 年度は化学平衡法による Zr 活量を測定する方法の確立、及び、文献値^[4]によって推定可能な条件における測定を予備的に行い、実験方法の妥当性を確認することを目的とした。

(2) 実施内容

① 酸化物共存条におけるステンレス鋼由来液相の熱力学的安定性評価

2、3号機の事故進展最確シナリオによると、下部プレナムにおいて再溶融する金属は未酸化 Zr とステンレス鋼由来の Fe を主成分とする液相であり、あまり溶融していない酸化物相と固液共存状態を形成していると考えられる。圧力容器破損に至った状況において固液共存状態であったという最確シナリオに基づけば、Fe-Zr-O 三元系において液相または固液共存状態が顕著になり始めると予測される温度を実験温度の下限值とするのが合理的である。したがって、有効な実験温度の下限値を定めるためにステンレス融点近傍における液相・固液共存領域となる組成範囲を評価した。なお、すべての熱力学計算は OECD/NEA によって開発された TAF-ID データベース^[4]を用いて熱力学計算ソフトウェア Thermo-Calc^[5]によって行った。

上記計算による熱力学量の見積値として、図 3.2.2-1～図 3.2.2-2 に 1773 K 及び 1873 K における Fe-Zr-O 三元系状態図を示す。ステンレス融点（～1723 K）直上温度である 1773 K において液相領域は FeO (liq) に由来したわずかな領域である。一方、1873 K では Fe 及び FeO が融点以上となるため Fe+FeO 領域が液相領域となり、酸素ポテンシャルが高いほど液相になりやすいことが分かる。このことは、ステンレス鋼の酸化度が高いほど、より溶融範囲が広がることを意味している。また、Fe-Zr 系に着目すると Fe 高濃度液相（～21 at% Fe）が ZrO₂ と平衡状態に、Zr 高濃度液相（47～85 at% Zr）はやや酸化度の低い α-Zr(O)/β-Zr(O) と平衡状態になる。つまり、ZrO₂ と平衡状態を保ちながらステンレス鋼または Fe-Zr 系金属デブリの溶融が進行する。特に Fe-Zr 系金属デブリの溶融が進展する過程における Zr 活量の変化は、溶融反応の親和性を評価する上で重要な因子である。

図 3.2.2-3 に 1873 K の Fe-Zr 液相における Zr 活量計算結果を示す。液相中の Zr 活量が Fe 高濃度液相においては理想溶体から大きく負に乖離していることが分かる。溶体の自由エネルギーは、構成元素が完全にランダムに混合する理想的な状態（理想溶体）を仮定して理論的に求めることができるが、実在の溶体は必ずしも理想溶体で記述できるとは限らない。本計算に用いた熱力学モデルは、理想溶体に対して過剰となる自由エネルギー項を付加することによって近似する正則溶体を適用している。正則溶体における自由エネルギー G は下記の式(3.2.2-1)によって与えられる。

$$G = G_{\text{ideal}} + \sum_{i,j} \Omega_{ij} \cdot x_i x_j \quad \text{式(3.2.2-1)}$$

ここで、 G_{ideal} は理想溶体の自由エネルギー、 Ω_{ij} は成分原子 i 、 j 間の相互作用係数、 x_i は成分原子 i のモル分率である。

成分原子間の相互作用性により Ω_{ij} の値は変わる。すなわち、理想溶体では $\Omega_{ij} = 0$ 、成分原子間の親和性が高い場合は $\Omega_{ij} < 0$ 、成分原子同士が反発する場合は $\Omega_{ij} > 0$ となる。したがって、Fe-Zr 液相の Fe 高濃度側においては理想溶体から大きく負に乖離しているため、Fe-Zr 間の親和性が非常に高く容易に気相反応に寄与しない、すなわちステンレス鋼の溶融反応がより進みやすい傾向にあることが推定される。逆に、Zr 高濃度側の液相は理想溶体からの乖離が Fe 高濃度側ほどではないため、Zr と系外の反応性が高くなることが推定される。したがって、下部プレナムにおいて金属系デブリの溶融が進展しやすい化学条件を確認するための第一段階としては 1873 K における Fe 高濃度側 Fe-Zr 液相の実効的濃度（活量）を実験的に求めることが有用であると考えられる。

② ZrO₂ 飽和 Fe-Zr 液相における Zr 活量測定実験

高温液体金属中の成分元素活量を求めるのには、凝縮相の平衡状態を達成した状態で参照物質中の目的元素濃度を測定する化学平衡法^[33]が適している。相平衡状態では参照物質中及び目的物質における成分元素の化学ポテンシャルが等しくなることを利用している。参照物質には、Fe をほとんど溶解せず、かつ、Zr を適度に溶解する物質として Ag を選択した^{[34][35]}。

図 3.2.2-4 に実験方法の概要を示す。目的物質である Fe-Zr 液相として 11 mol% Zr を含有する Fe-Zr 合金（以下、Fe-11 mol% Zr と略記。）を採用した。あらかじめ電解鉄と純ジルコニウム片を秤量したものをアーク溶解炉で合金化し 14.9 g の金属片としておく（Fe-Zr 合金）。この Fe-Zr 合金と参照物質である Ag (3.0 g) をイットリア安定化 ZrO₂ (YSZ) りつぼ (φ17~21×50 mm) に入れた状態で Ti 製のりつぼに装荷する。高温実験中の酸化を防止するために、Ti りつぼ内部に Ar ガスを封入して溶接密閉した。次に、あらかじめ 1873 K に昇温した電気抵抗炉に Ti りつぼを装荷し、Ar+H₂ フロー (200 ml/min) 下で 24 時間保持したのち、取り出して水冷した。その後 Ti りつぼを切断し、Fe-Zr 合金を取り出して SEM/EDS (JEOL、JCM7000) による断面組織観察と、りつぼ界面近傍の粉末 XRD 分析を行った。

③ Zr 活量の妥当性評価

本実験方法の妥当性を検証するために、参照物質 (Ag) 中の Zr 濃度から評価される Zr 活量と、正則溶体モデルから理論的に導出される活量に相互作用パラメータ文献値を代入して得られる値を比較し、文献値^[4]から大きく乖離しないことを確認する。

一般に A-B 二元系システムを正則溶体モデルで近似する時、系のモルギブスエネルギーは次の式で与えられる。

$$G_m = \sum_{i=A,B} x_i {}^0G_m^i + RT \sum_{i=A,B} x_i \ln(x_i) + \sum_{i=A,B} \sum_{j>i} x_i x_j \Omega_{i,j} \quad \text{式(3.2.2-2)}$$

式(3.2.2-2)で右辺第3項は構成元素 A、B 間の相互作用によって与えられる過剰ギブスエネルギーである。正則溶体モデルでは、実在溶体の過剰ギブスエネルギーを再現するのに相互作用パラメータ $\Omega_{i,j}$ が濃度依存性を持つとして次式(3.2.2-3)の Redlich-Kister (以下、R-K と略記。) 級数が用いられている。

$$\Omega_{i,j} = \sum_{n=0}^v L_{i,j}^{(n)} (x_i - x_j)^n \quad \text{式(3.2.2-3)}$$

R-K 級数係数 $L_{i,j}^{(n)}$ は次式(3.2.2-4)のような温度依存性を持つ。

$$L_{i,j}^{(n)}(T) = a + bT + cT \ln T + \dots \quad \text{式(3.2.2-4)}$$

ここで、 a 、 b 、 c は定数であり、種々の実験値を最もよく再現できるように最適化され、文献化されている。

ある組成における化学ポテンシャルはモルギブスエネルギーの組成に関する一次微分で与えられることから、二相平衡にある状態の構成元素の化学ポテンシャル μ_A 、 μ_B はそれぞれの相のモルギブスエネルギーの共通接線と A、B 両軸が交わる点によって与えられて、次式(3.2.2-5)と式(3.2.2-6)によって求めることができる。

$$\mu_A = G_m - x_B \left(\frac{dG_m}{dx_B} \right)_{T,P,N} \quad \text{式(3.2.2-5)}$$

$$\mu_B = G_m + x_A \left(\frac{dG_m}{dx_B} \right)_{T,P,N} \quad \text{式(3.2.2-6)}$$

一方、活量の定義から

$$\mu_i = G_m^i + RT \ln(a_i) \quad \text{式(3.2.2-7)}$$

であるから、相互作用係数が 1 次の R-K 級数として $\Omega_{A,B} = L^{(0)} + (x_A - x_B)L^{(1)}$ で与えられる場合、A-B 二元系における元素 B の活量は式(3.2.2-2)を式(3.2.2-6)に代入し式(3.2.2-7)と比較することによって次のように求めることができる。

$$a_B = x_B \exp \left(\frac{x_A^2(L^{(0)} + (x_A - x_B)L^{(1)}) - 2x_A^2x_B L^{(1)}}{RT} \right) \quad \text{式(3.2.2-8)}$$

本実験において Fe-Zr 合金液相と参照物質 Ag 液相が相平衡に至ると、各相における化学ポテンシャルは等しい値になるから、Ag 中 Zr 活量は Fe-Zr 中 Zr 活量に等しくなる。Ag-Zr 二元系における相互作用係数の R-K 級数は文献値^[4]から次式(3.2.2-9)で表される^[36]。

$$L_{\text{Ag,Zr}}^{(0)} = -23481.8 + 16.7326 \times T \quad \text{式(3.2.2-9)}$$

$$L_{\text{Ag,Zr}}^{(1)} = +16991.4 + 1.8009 \times T$$

一方、TAF-ID を用いて計算した Fe 高濃度 Fe-Zr 液相における Zr 活量は、図 3.2.2-3 に示す通り活量係数が 0.046~0.206 の範囲にある。実験組成は 11 mol% Zr であるので、活量係数の幅はさらに狭まり 0.046~0.11 となる。予備実験の妥当性検証として、測定した Zr 濃度と式(3.2.2-9)を式(3.2.2-8)に代入して得られる Zr 活量と TAF-ID によって計算した Zr 活量を比較し、両者が同オーダー程度に収まっていることを確認する。

④ ZrO₂ 飽和 SUS316 液相における Zr 活量測定予備実験

①で実施した熱力学評価からは SUS316 が完全に溶解した状態では ZrO₂ と平衡状態を維持し、Fe の酸素ポテンシャルが一定以上まで上昇しない限り ZrO₂ からの Zr 溶解は予測されない。つまり、未酸化ステンレス鋼の溶解によって Zr 酸化物デブリが溶解する反応を考慮する必要がない基本となる状態であり、実現象においてもそのような想定が成立することを確認しておくことは重要である。この観点から、ZrO₂ 飽和状態におけるステンレス鋼融体が平衡状態にある場合の液体金属の相安定性を確認するために、②で実施した予備実験と同じるつば、雰囲気、保持時間、目的物質を SUS316 として同様の予備的な実験を実施した。酸化燃料デブリの主成分は UO₂ と ZrO₂ であるが、U の利用は実験的な困難が伴うため、類似の化学的性質を持つ CeO₂ が代替物質として用いられることが多い。燃料デブリによるステン

レス鋼の溶融では ZrO_2 とステンレス鋼との反応性をまず理解することが重要であることから、今年度は酸化物に ZrO_2 のみを用いた。令和3年度は水冷後取り出したるつぼを切断し、SUS316 合金を取り出して SEM/EDS による断面組織観察とるつぼ界面近傍の粉末 XRD 分析を行った。

(3) 結果及び考察

① Fe-11 mol%Zr 液相における Zr 活量評価

実験後試料の外観及び取り出した Fe-Zr 合金断面の反射電子像を図 3.2.2-5 に示す。試料表面には薄い酸化膜が見られたが、簡単に剥がすことができる状態であった。また、界面近傍の反射電子像からは酸化膜が形成されている様子が分かる。酸化膜を削り取って粉末 XRD 分析 (Bruker, D2Phaser) を行ったところ、Zr または Zr と Y からなる複合酸化物のパターンを確認した (図 3.2.2-6)。複合酸化物中の Y 濃度はるつぼ成分 (8 mol% Y_2O_3 - ZrO_2) よりもわずかに上昇していることと ZrO_2 パターンが含まれることから、Fe-Zr 液相との平衡界面で ZrO_2 を形成した分の Y が濃化したと考えられる。したがって、界面は(2)①で評価した通り Fe-Zr(L) + ZrO_2 (S) であったことが分かる。

次に試料断面の反射電子像からは、均一な合金中に組成の異なる粒径 20~100 μm 程度の分散相が確認できる。図 3.2.2-7 は当該領域の元素マップを示しているが、Ag にわずかに Zr を含んでいたため、分散相領域内をランダムに 10 点以上取って EDS 点分析 (加速電圧 15 kV) を行って平均値を取ったところ、Ag 中の Zr 濃度は 0.30 mol% であった。先述の(2)②に示した式(3.2.2-8)に測定した濃度を代入し、式(3.2.2-9)の文献値を適用すると、Zr 活量は 1.83×10^{-3} となった。一方、TAF-ID データベースから計算した試験後の合金中 Zr 濃度 (11 mol%) における Zr 活量は 5.13×10^{-3} であるから、実験的に得られた活量は計算値より 6 割程度小さい値となったがオーダーとしては同じ程度であった。

合金部に不純物などの存在は見られず、Ag 分散相とそれ以外の領域において均一した組成になっており Ag/Fe-Zr、 ZrO_2 /Fe-Zr が平衡に達したと考えて良いことから、Ag を参照物質として Zr 濃度測定と正則溶体モデルを組み合わせることによって Zr 活量を求める手法が適用できることを確認することができた。一方、Zr 濃度の測定精度に改善する余地がある。一般に EDS 分析の精度は重量%で小数点以下第 1 位程度であるから、波長分散型 X 線分光法 (WDS) 分析または高周波誘導結合プラズマ (ICP) 分析による精度向上が今後の課題である。今回参照物質として使用した Ag 量が、Fe-Zr 合金に比して少量であったために高温実験中に Fe-Zr 液相内に分散してしまった可能性が高く、材料の比率を再考することによって Ag を一定程度分離することができれば、湿式分析と表面分析を併用することが可能となる。

求めた活量データの妥当性に関して、検証に用いた Ag 活量は正則溶体モデルからの導出であるため計算の過程において誤差が含まれる可能性がある。今後は Ag 中の Zr 活量を測定によってあらかじめ得る必要性についても検討していく。

② SUS316 液相と ZrO_2 の平衡状態確認

実験後試料はるつぼに融着することなく容易に塊として取り出すことができた。取り出した合金表面には Cr 由来と見られる酸化膜が見られた。図 3.2.2-8 は合金断面を切り出し、

SEM/EDS 元素マップを作成したものである。界面に薄い Cr 酸化膜（～数 μm ）が見られる以外は、SUS316 成分からなる均一な金属相（Cr17-Ni12-Mo2.5-Fe wt%）であった。また、るつぽ表面を削り取って粉末 XRD 分析を行った結果、Y を含む Zr 酸化物と ZrO_2 のパターンを確認した（図 3.2.2-9）。このことから、界面は主として Fe-Zr O_2 平衡に達しており、 ZrO_2 側への SUS316 成分の移行による化合物形成はなかったと言える。

合金中に Zr が存在しない場合は溶融しても単純に ZrO_2 と平衡状態に至り相互の物質移動がないことを確認した。1F 2、3 号機の下部プレナム底面貫通部は溶接にニッケル基合金が使用されており、Fe-Zr 系金属デブリ、鉄基合金、ニッケル基合金の溶融が関与した複雑な反応であったと考えられる。このような観点から、主要な反応である Fe-Zr-O 系に Cr や Ni などの元素添加が溶融反応に及ぼす影響を調査していくことが重要である。そのような応用に向けた参照状態として、純ステンレス鋼と ZrO_2 が状態図通りに物質移動なく平衡に至ることを確認した。今後は、Fe-Zr 液相における Zr 活量評価法を SUS316-Zr に適用し、両者の結果を比較することによりステンレス鋼成分の影響を調査し、下部プレナムにおける溶融現象評価を行うために Fe-Zr-O 反応に対してどのような補正を行うことが有効であるかを検討することが可能となる。

(4) まとめ

下部プレナムへ先行的に崩落したと考えられている金属系デブリが構造材由来のステンレス鋼を巻き込んで再溶融する際に、酸化物共存環境における金属デブリ溶融反応の熱力学的安定性を系統的に評価することを目的として、 ZrO_2 飽和状態における Fe-Zr 系液相の Zr 活量を測定する実験的手法を確立しその妥当性を確認した。目的物質とともに活量測定に用いる参照物質として Ag を採択し、1873 K における Fe 高濃度合金（Fe11 mol% Zr）の Zr 活量を求めたところ 1.83×10^{-3} となった。一方、TAF-ID データベースによる同条件における Zr 活量推定値は 5.13×10^{-3} であり、同じオーダーにあることを確認した。濃度分析の精度や活量導出式に含まれる誤差を低減する余地があるが、予備実験として得られた結果は化学平衡法による測定の適用が妥当であることを示している。今後は、Fe-Zr 液相における Zr 活量評価法を SUS316-Zr に適用し、両者の結果を比較することによりステンレス鋼成分の影響を調査し、下部プレナムにおける溶融現象評価を行うために Fe-Zr-O 反応に対してどのような補正を行うことが有効であるかを検討することを目指す。

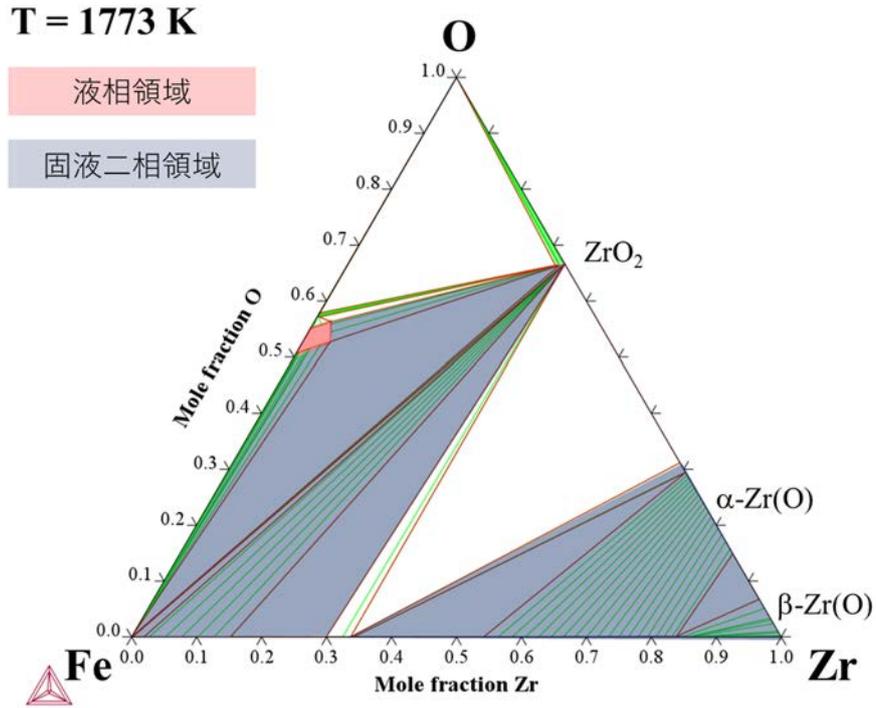


図 3.2.2-1 Fe-Zr-O 三元系状態図 (1773 K) における液相・固液二相領域

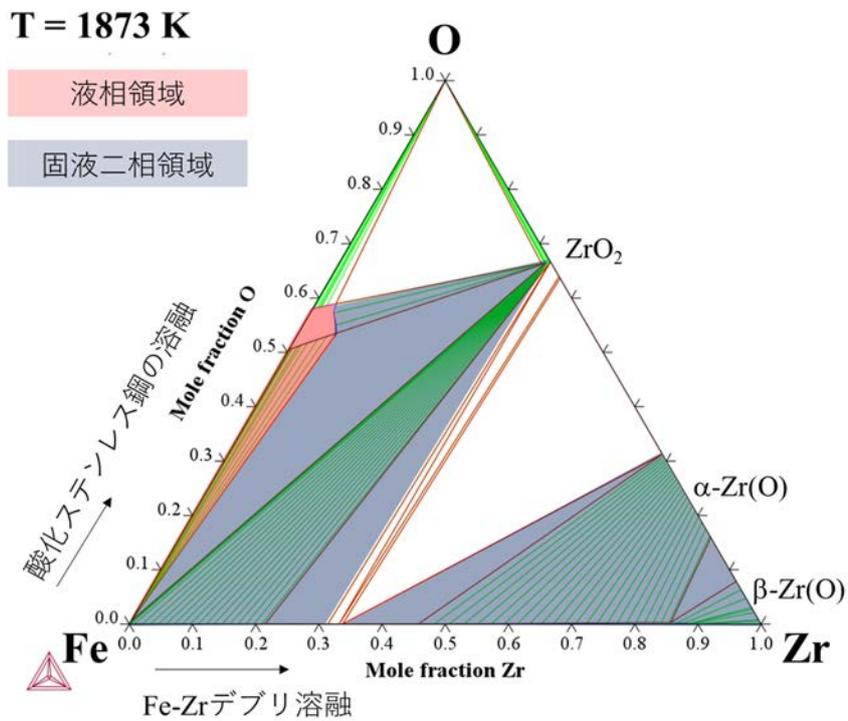


図 3.2.2-2 Fe-Zr-O 三元系状態図 (1873 K) における液相・固液二相領域

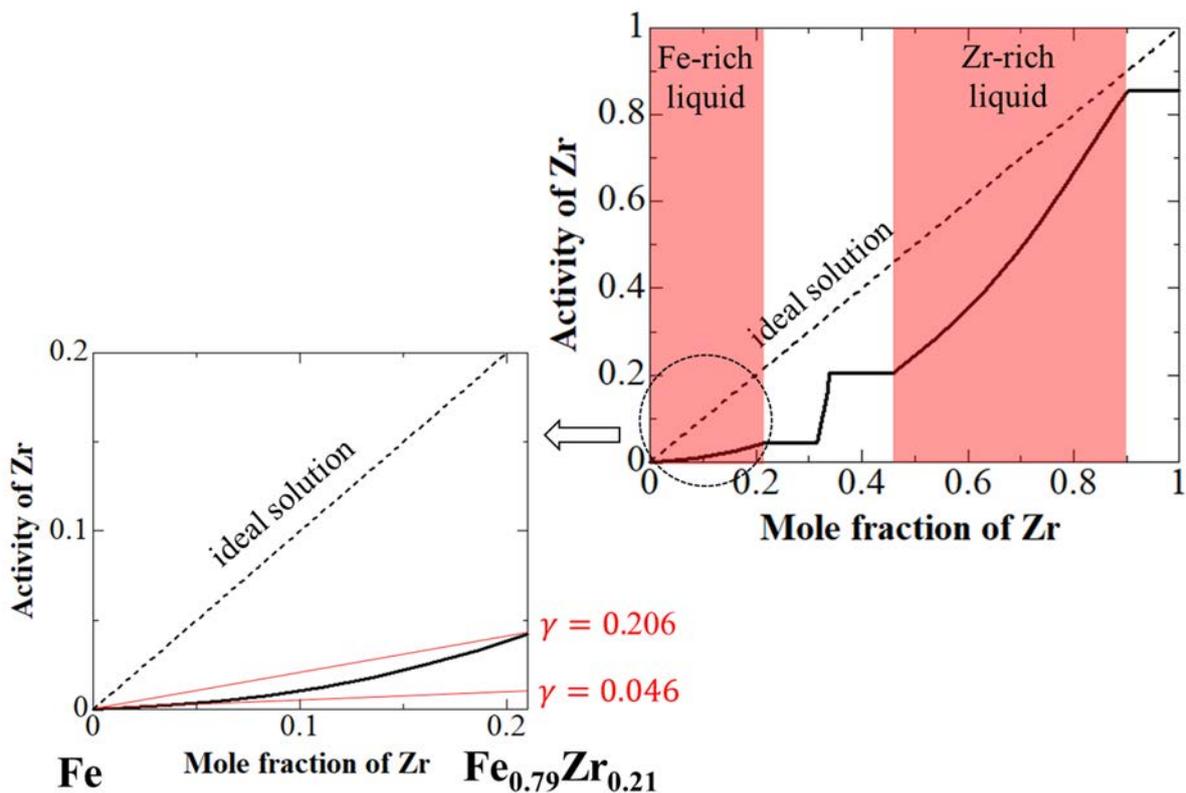


図 3.2.2-3 Fe-Zr 液相における Zr 活量計算結果 (1873 K)

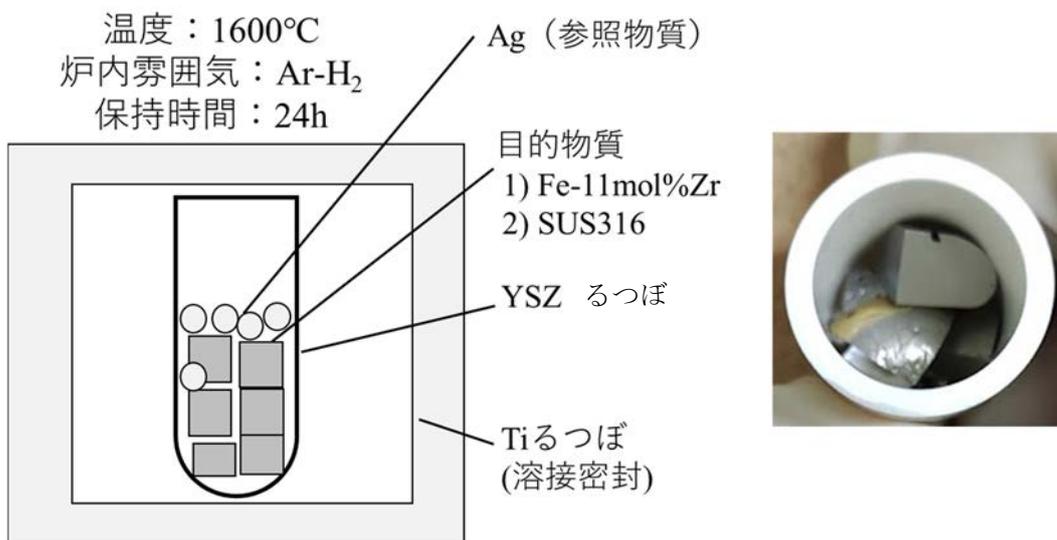


図 3.2.2-4 化学平衡法による予備実験概要

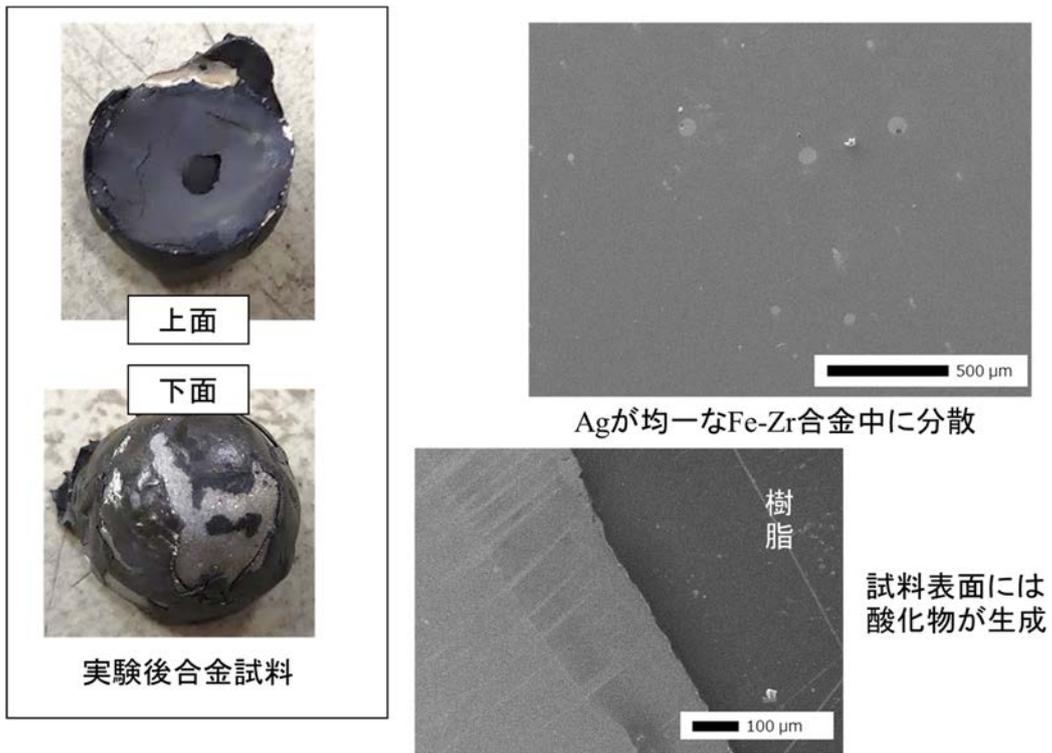


図 3. 2. 2-5 実験後 Fe-Zr 合金の外観図と断面反射電子像

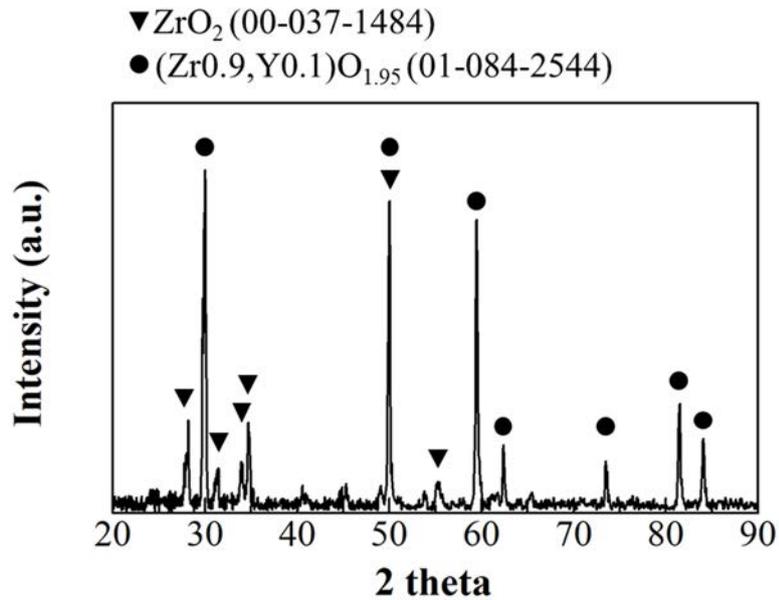


図 3. 2. 2-6 Fe-Zr/YSZ 界面酸化物粉末の XRD 回折パターン

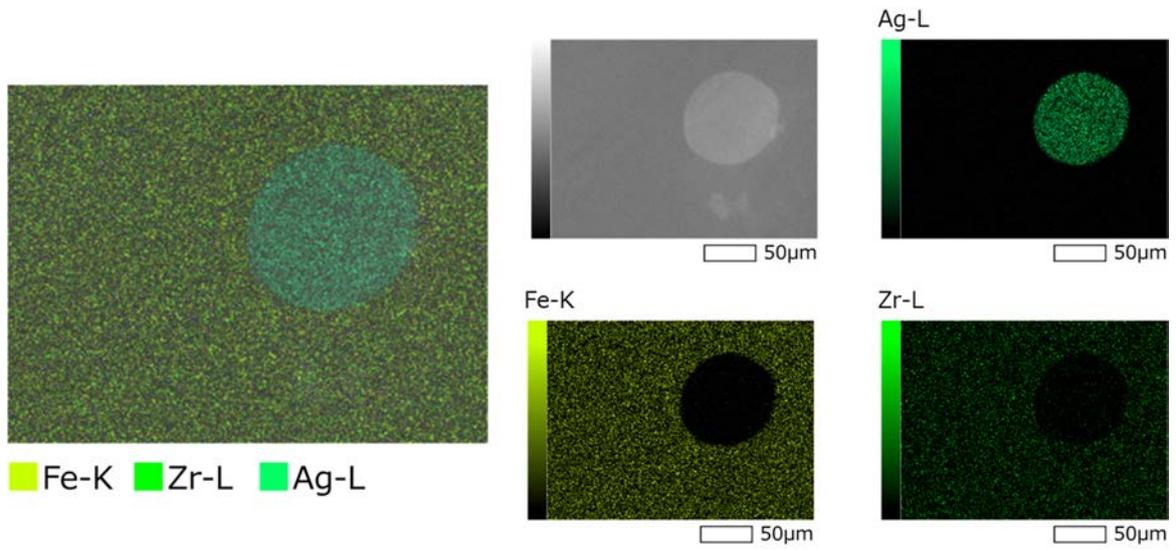


図 3. 2. 2-7 Fe-Zr 合金の元素マップ

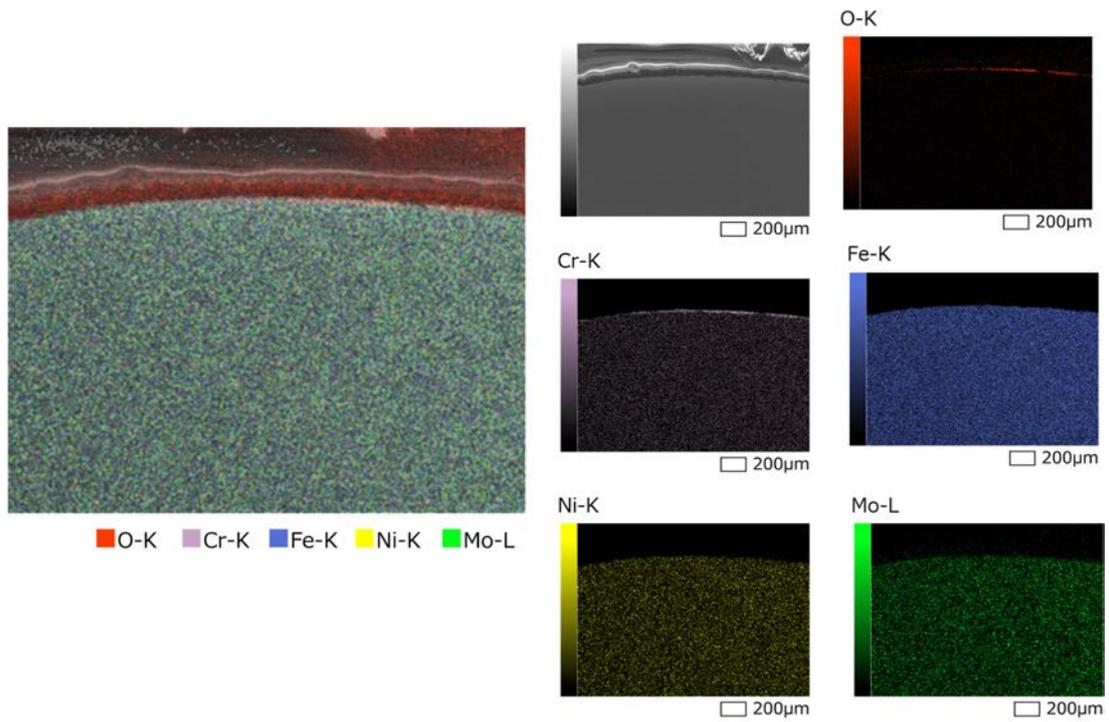


図 3. 2. 2-8 SUS316 合金の元素マップ

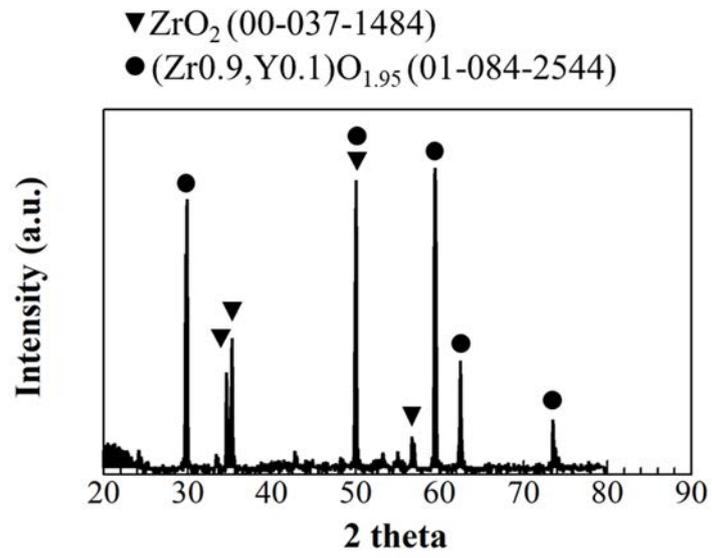


図 3. 2. 2-9 SUS316/YSZ 試料の YSZ 界面における XRD 回折パターン

3.2.3 2、3号機最確シナリオに基づく酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定

(1) 目的

1F 事故後これまでに行われた RPV の内部調査において、ペDESTAL 堆積物の外観や構造物の残存状態から燃料デブリは酸化物溶融する温度域まで到達しておらず、構造材や未酸化ジルコニウム、制御材などを多く含む金属リッチなデブリであり、先行溶落した可能性が指摘されている。また、この金属デブリは均一な融体ではなく酸化・変質を経ることによって析出した酸化物を含む固液共存融体を形成していると考えられるため、その流動挙動を理解するためには非ニュートン性の挙動を示す粘度を系統的に評価することが必要である。この観点から本項目では、まず RPV の構造材である、ステンレス鋼 (SUS316L) を構成する Fe-Cr-Ni 系溶融合金の粘度測定例について文献調査を行った。

(2) 文献調査結果

小久保らはアルミナ製のつぼを用いたるつぼ回転振動法により He 雰囲気下において、SUS316L 系溶融ステンレス合金の高温粘度を測定した^[1]。るつぼ回転振動法は測定試料が高融点かつ低粘度である時に適した粘度測定法である。試料を入れたるつぼを懸垂し、この系に外部から回転振動を与えると、その振動は試料の粘度が抵抗となり減衰する。減衰の様子を測定することによって得られる対数減衰率と振動周期から試料の粘度を求める方法がるつぼ回転振動法である^[37]。

図 3.2.3-1 より、SUS316L 系溶融合金は 1733~1823 K で 5.24~7.8 mPa・s の極低粘度を示すことが分かる。このように、一般的に金属デブリのマトリックスとなる金属融体の粘度は、酸化物融体の粘度に比較して非常に小さく mPa・s オーダーであることから、回転運動によって発生するトルクも微小であり検出が困難であるため、より低粘性領域においても精度良く粘度測定が可能と考えられる現有設備のトルクセンサーによる粘度測定装置のセットアップを志向し、必要な解析技術やコンタクトマテリアルの選定を行った。この時、小久保らはるつぼ回転振動法では固液共存融体の見かけ粘度測定を行うことができないため、回転法によって極低粘度の検出が可能な設計を試みた。

(3) 装置の設計

図 3.2.3-2 にトルクセンサー (Anton Paar GmbH, DSR502) の外観写真を示す。このトルクセンサーはセンサー一部がエアベアリングにて常時浮遊した状態を維持しており、回転法によっても最小 10 nNm のトルクが検出可能である^[38]。

回転法による粘度測定の原理として、半径が R_1, R_2 である無限長の共軸円筒間に粘度 (η) の液体を満たし、外筒を角速度 (ω) で回転させる時に内筒に生じるトルク (*Torque*) と粘度 (η) の関係は式(3.2.3-1)で与えられる。

$$\eta = \frac{\text{Torque}}{4\pi\omega h} \cdot \left(\frac{1}{R_1^2} - \frac{1}{R_2^2} \right) \quad \text{式(3.2.3-1)}$$

また、 h は内筒の試料に対する浸漬深さである。ここで、るつぼ内径及びロッド外径をそれぞれ 34 mm 及び 25 mm とし、回転数及び浸漬深さをそれぞれ 50 rpm 及び 50 mm とすると、1 mPa・s の試料融体が内筒面に発生させるトルクは 1.14 μNm であるため、現有のトルクセンサー (Anton Paar GmbH, DSR502) にて十分測定可能であると考えられる。

図 3.2.3-3 に令和 3 年度に設計を行った 2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉の模式図を示す。炉心管の上下端をステンレス製水冷ジャケットで封止することによって、熔融金属の酸化を防ぐ測定雰囲気制御が可能である。また、炉心管の周囲に U 字型の MoSi_2 製発熱体を複数設置することによって最高 2023 K までの昇温が可能である。なお、熔融 Fe-Cr-Ni 系金属と反応性が低いと考えられる ZrO_2 をコンタクトマテリアル（試料融体と接触するつば及びロッド）として選定した。

(4) まとめ

一般的に金属融体の粘度は、酸化物融体の粘度に比較して非常に小さく $\text{mPa}\cdot\text{s}$ オーダーであることから、回転運動によって発生するトルクも微小であり検出が困難であるので、より低粘性領域においても精度よく粘度測定が可能と考えられるトルクセンサー（現有設備）による粘度測定装置のセットアップを志向し、必要な解析技術やコンタクトマテリアルの選定を行った。2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉の基本仕様・設計を完了した。また、熔融 Fe-Cr-Ni 系金属と反応性が低い ZrO_2 をコンタクトマテリアル（試料融体と接触するつば等）として選定した。

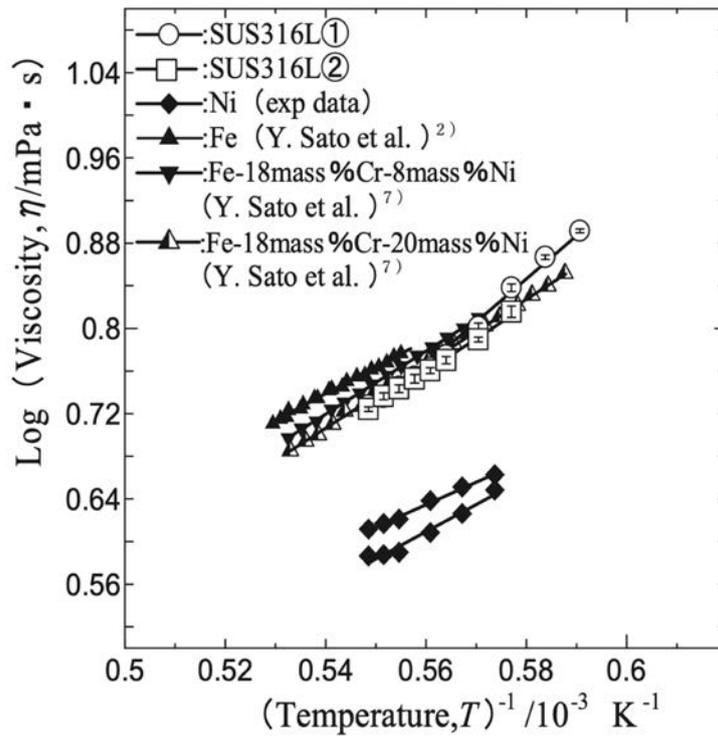


図 3. 2. 3-1 SUS316L 系溶融合金の粘度測定例 (出典：日本金属学会誌^[37])

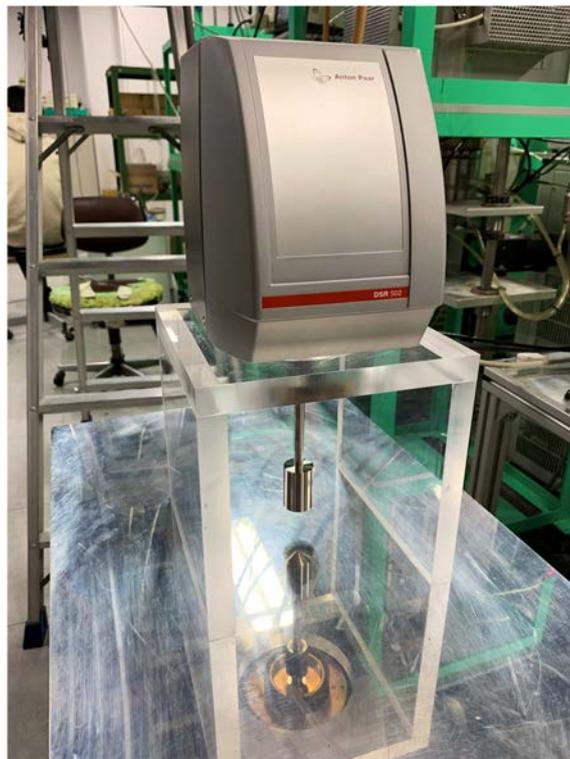


図 3. 2. 3-2 トルクセンサー (Anton Paar GmbH, DSR502) の外観写真

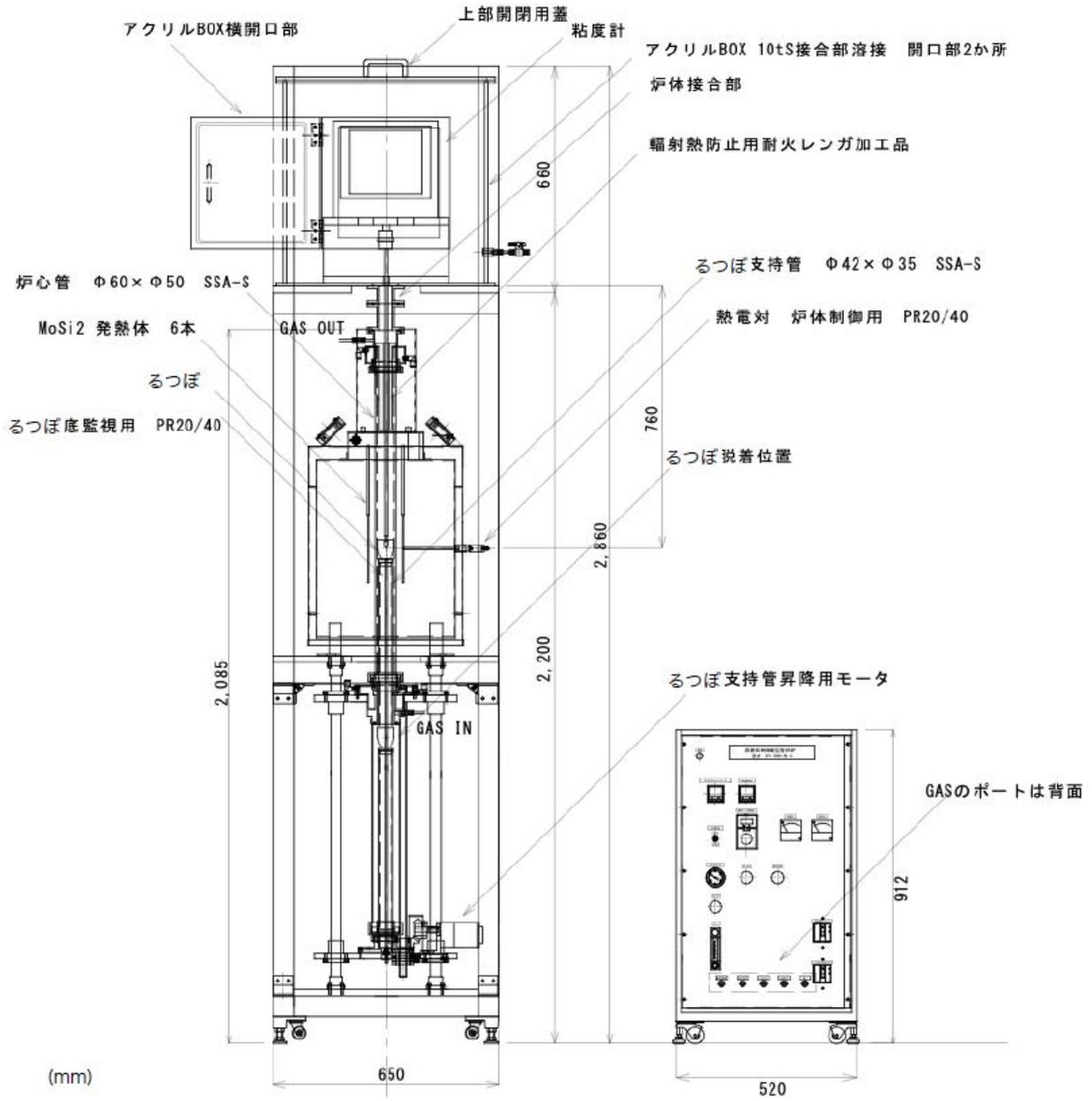


図 3. 2. 3-3 トルクセンサーを備えた雰囲気調整可能な電気炉の模式図

3.3 総合評価

本研究で目的とする「Backward Analysis」として着目すべき重要事故事象として抽出するには、従来の過酷事故解析と PCV 内部調査により分かってきたことと未だ解明されていないことを理解し、未解明事象の理解につながる仮説（モデル）を提示しなければならない。したがって、現時点における現場知見と従来の「Forward Analysis」による炉内事象進展の推定を比較し、双方のギャップを明らかにすることを目的として、2、3号機の事故進展最確シナリオ評価を実施した。さらに、得られたシナリオで未解明かつ材料学的な検討が十分ではない事象を抽出し、本事業項目との関連付け、及び、令和3年度成果の位置付けを明確にした。

(1) 2、3号機事故進展最確シナリオの評価

① 2号機事故進展シナリオ

1) RPV 内部に関する事故進展最確シナリオ（RPV 破損以前）

図 3.3.1-1 に、事故記録（PCV と D/W の圧力経時変化）とともに圧力容器内予想図、炉心・下部ヘッド状況予測及び炉心温度予測を取りまとめた 2 号機事故進展シナリオ（RPV 破損以前）を示す。また、図 3.3.1-2 に、同様にガス/Cs 化合物移行予想図、ガス移行挙動、RPV 内ガス雰囲気及び Cs 移行挙動に関する予測をまとめたものを示す。

2 号機の事故シナリオ（炉心状況）の主な特徴を以下に示す。

- ・主蒸気逃し安全弁（以下、SRV と略記）手動開までは、炉心はほぼ冷却水中（上部はボイド化した可能性）
- ・SRV 開により、減圧沸騰、水位が BAF 以下に、燃料温度 300 °C 程度まで急速低下の可能性
- ・水位が BAF まで戻らない期間があり、水蒸気枯渇条件で金属材料が先行溶落の可能性
- ・最初の RPV 内圧力ピークは、水位の BAF 復帰に伴うジルカロイの急速酸化開始（炉心局部）によるものと推定
- ・崩壊熱により温度上昇し溶融範囲の拡大、溶融プール化し、燃料クラストがプール内金属酸化を抑制した可能性
- ・燃料スランピング開始、崩落燃料による水蒸気発生、崩落した燃料は一旦凝固と推定
- ・SRV 開閉による圧力ピークの発生

2 号機の事故シナリオから予想される Cs 移行挙動の主な特徴を以下に示す。

- ・崩壊熱による温度上昇に伴い、大部分の Cs が燃料から放出
- ・放出された Cs は化合物を形成し RPV 内にエアロゾルとして放出され、沈着・浮遊した可能性
- ・SRV 開により、気相中の Cs 化合物は混合ガスとともに SC に放出され、トラップされる。一部 Cs 化合物は D/W や環境中に放出した可能性
- ・崩壊熱による温度上昇により、沈着 Cs 化合物の再蒸発
- ・浮遊・再蒸発 Cs 化合物が SC に放出される。一部 Cs 化合物は、D/W に至りトップフランジ経由でオペレーションフロアに放出
- ・第 2 ピーク、第 3 ピーク終了の SRV 開時に D/W からトップフランジ経由のオペレーションフロア放出が増加（特に第 2 ピーク後）

2) PCV 内部に関する事故進展最確シナリオ (RPV 破損以降)

図 3.3.1-3 に事故記録 (PCV と D/W の圧力経時変化) とともに圧力容器/ペDESTAL 予想図、下部ヘッド・PCV 状況予測を取りまとめた 2 号機事故進展シナリオ (RPV 破損以降) を示す。また、図 3.3.1-4 に同様にガス/Cs 化合物移行予想図、ガス移行挙動、RPV 内ガス雰囲気及び Cs 移行挙動に関する予測をまとめたものを示す。

2 号機の事故シナリオ (RPV 破損以降) の主な特徴を以下に示す。

- ・ 下部プレナム内液相水喪失 (堆積デブリのドライアウト)
- ・ 下部プレナム堆積デブリの崩壊熱による昇温、その後、下部ヘッドで金属溶融
- ・ 溶融金属がプールを形成、固液体混合状態
- ・ 溶融金属対流伝熱による側部破損、溶融金属の初期流出
- ・ 残留溶融金属の対流伝熱による CRD 貫通部溶融破損と溶融金属 (先行流出物) の流出、CRD 付着
- ・ 酸化物燃料/溶融金属などの伝熱による底面局所破損、金属リッチ燃料デブリの流出
- ・ ペDESTAL への金属デブリ、金属リッチ燃料デブリの堆積、ペDESTAL 内の金属構造物はあまり損傷していない
- ・ ペDESTAL 中段のグレーチングには大穴

2 号機の事故シナリオから予想される Cs 移行挙動の主な特徴を以下にまとめる。

- ・ RPV 破損以前 (図 3.3.1-2) に、D/W に移行していた Cs 化合物がペDESTAL 移行デブリの熱により、再蒸発 (または Cs 化合物は水溶性が高いので、水蒸気とともに移行) し、トップフランジ経由でオペレーションフロアに放出した可能性

② 3 号機事故進展シナリオ

図 3.3.1-5 に、事故記録 (PCV、D/W 及び SC の圧力経時変化) とともに RPV 内/ペDESTAL 予想図、炉心/下部ヘッド/PCV 状況予測及び炉心温度予測を取りまとめた 3 号機事故進展シナリオを示す。また、図 3.3.1-6 に、同様にガス/Cs 化合物移行予想図、ガス移行挙動及び Cs 移行挙動に関する予測をまとめたものを示す。

3 号機の事故シナリオの主な特徴を以下に示す。

- ・ 水位が TAF 以下まで徐々に低下、炉心露出、炉心上部でジルカロイ酸化、デブリ溶融開始 (高圧条件)
- ・ クラスト形成より、金属と酸素の接触がなくなる (スランピング前)
- ・ 部分的にスランピングが開始、その後、大規模スランピング (2 号機より高温状態のデブリが崩落したと推定)、崩落したデブリはある程度塊になっていた可能性
- ・ 崩落燃料による水蒸気発生、崩落した燃料は一旦凝固と推定
- ・ RPV ドライアウト、蒸気発生量が減少、デブリ冷却能の低下
- ・ 下部プレナム堆積デブリの崩壊熱による昇温、金属デブリ先行溶融、固液体混合状態 2 号機より未酸化金属成分が多く残っていた可能性
- ・ 金属デブリによる側面大規模破損、溶融金属デブリの流出が、2 号機と同様に発生した可能性

- ・金属デブリまたは酸化物デブリによる底面局所破損、デブリの小規模流出、CRD 付着も発生した可能性
- ・下部プレナム堆積物が塊状だったため、徐熱しにくく、2号機より温度が上がり、酸化物デブリも一部溶融した可能性、したがって、大規模破損発生と推定
- ・固液混合状態の粘性の高いデブリが1～2時間かけてゆっくりペDESTALに崩落（BWRドレナージシナリオ）
- ・したがって、MCCIが大規模に発生していない可能性、金属構造物がデブリ内に残留している可能性

3号機の事故シナリオから予想されるCs移行挙動の主な特徴を以下に示す。

- ・崩壊熱による温度上昇に伴い、大部分のCsが燃料から放出
- ・放出されたCsは化合物を形成しRPV内にエアロゾルとして放出され、沈着・浮遊した可能性
- ・SRV開により、気相中のCs化合物は混合ガスとともにSCに放出され、トラップされる。一部Cs化合物はD/Wや環境中に放出した可能性
- ・崩壊熱による温度上昇により、沈着Cs化合物の再蒸発
- ・浮遊・再蒸発Cs化合物がSCに放出される。一部Cs化合物は、D/Wに至りトップフランジ経由でオペレーションフロアに放出

③ まとめ

本研究でBackward Analysisとして着目すべき事象を抽出するために、現在までの炉内調査や事故解析結果を基に2、3号機の事故進展最確シナリオを評価し、Cs移行挙動及び燃料デブリ状態の観点から特徴を整理した。その結果、2号機に関しては3月14日21:00頃に見られる圧力ピーク直後に低圧の水蒸気枯渇条件で炉心溶融が進行した可能性があり、この際に制御棒や燃料棒被覆管といった金属材料の酸化がそれほど進行せず金属濃度の高い燃料デブリが一定量形成されたと考えられる。さらに、その溶融物が下部プレナムへ移行した際の温度が従来考えられている温度よりも低く（数百K程度）、酸化物を主体とする燃料デブリの多くはRPVに留まっている可能性が示唆された。また、3号機に関しては、原子炉隔離時冷却系（RCIC）と高圧注水系（HPCI）による注水停止後、高圧条件で炉心溶融が進行し、燃料被覆管のジルカロイ酸化が急速に進み温度上昇と水位低下が同時に起こったと考えられる。このため、溶融物の表面には水蒸気酸化による厚い凝固殻（クラスト）が形成されて内部に未溶融金属が閉じ込められる状態に陥ったと考えられて、2号機に比して相対的に熱エネルギーの大きな物質が下部プレナムへ移行し、酸化物を主とするデブリが形成されたと考えられる。さらに、事故時のプラントデータから、炉内は酸化物が完全に溶融する温度まで到達しなかった可能性があり、数時間かけて固液混合状態（2203～2473 K程度）で圧力容器が破損してペDESTALへ移行した可能性が示唆された。

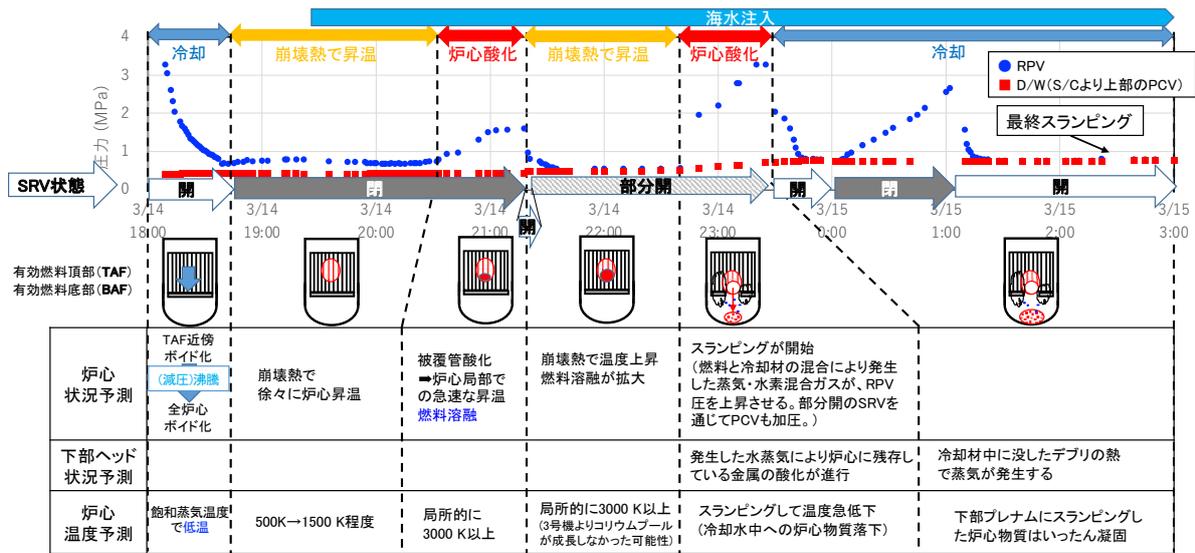


図 3.3.1-1 圧力容器内予想図、炉心・下部ヘッド状況予測及び炉心温度予測に関する 2号機事故進展シナリオ (RPV 破損以前)

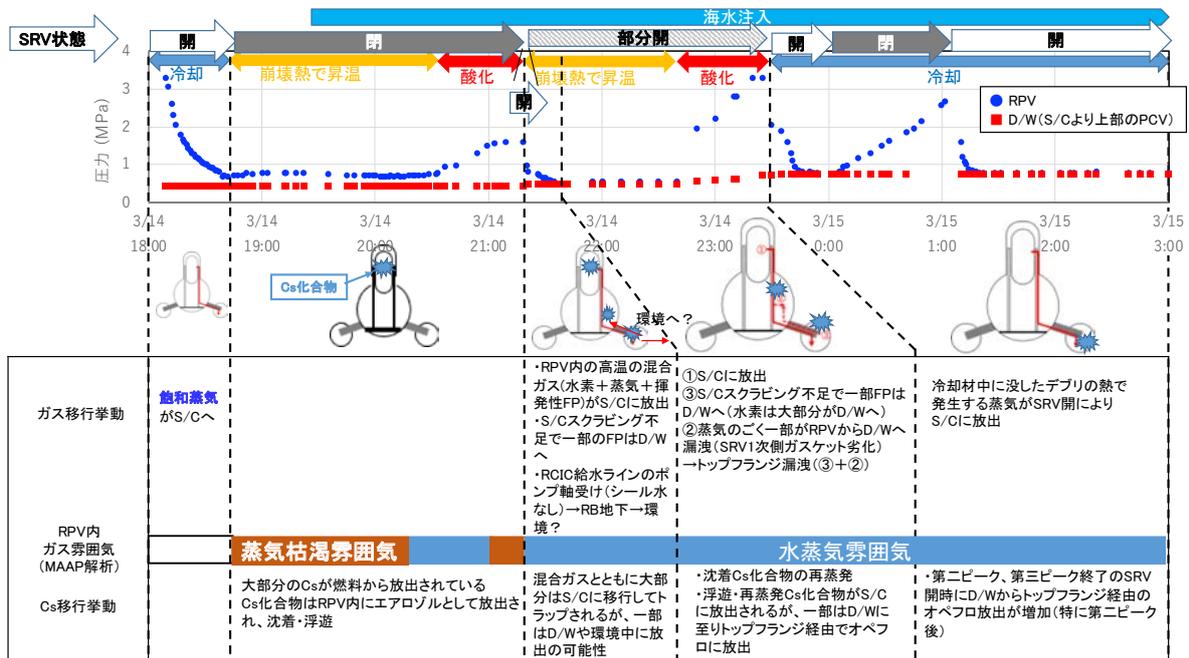


図 3.3.1-2 ガス/Cs 化合物移行図、ガス移行挙動、RPV 内ガス雰囲気及び Cs 移行挙動の予測に関する 2号機事故進展最確シナリオ (RPV 破損以前)

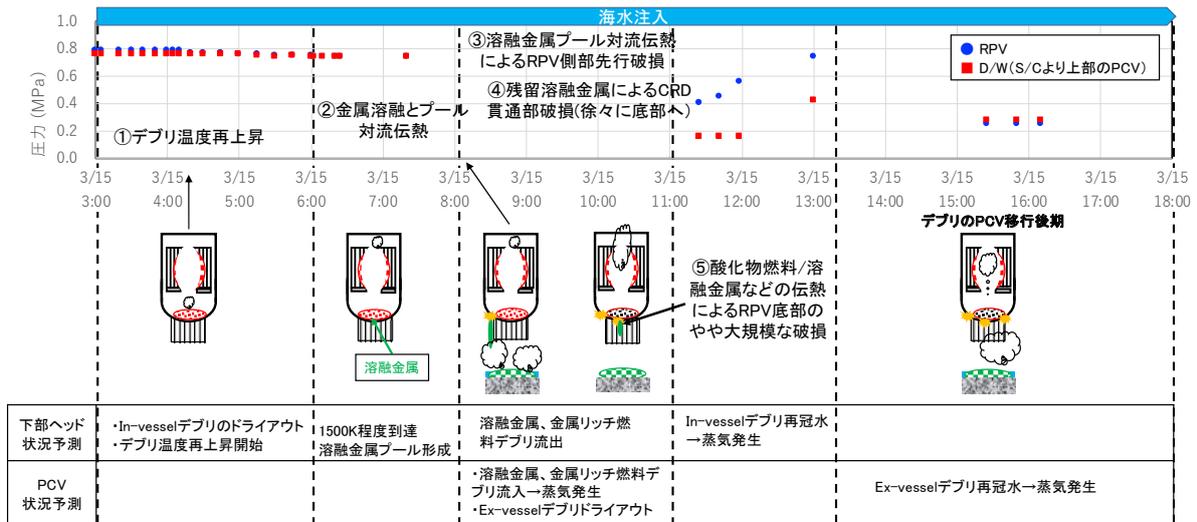


図 3.3.1-3 圧力容器内予想図、炉心・下部ヘッド状況予測及び炉心温度予測に関する 2号機事故進展シナリオ (RPV 破損以降)

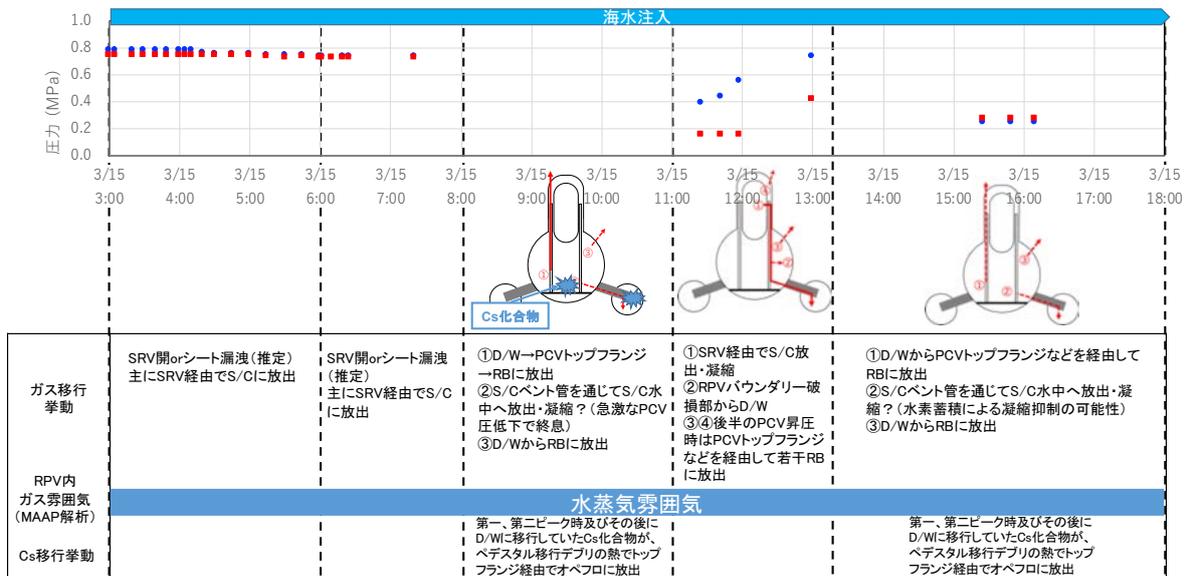


図 3.3.1-4 ガス/Cs 化合物移行図、ガス移行挙動、RPV 内ガス雰囲気及び Cs 移行挙動の 予測に関する 2号機事故進展最確シナリオ (RPV 破損以降)

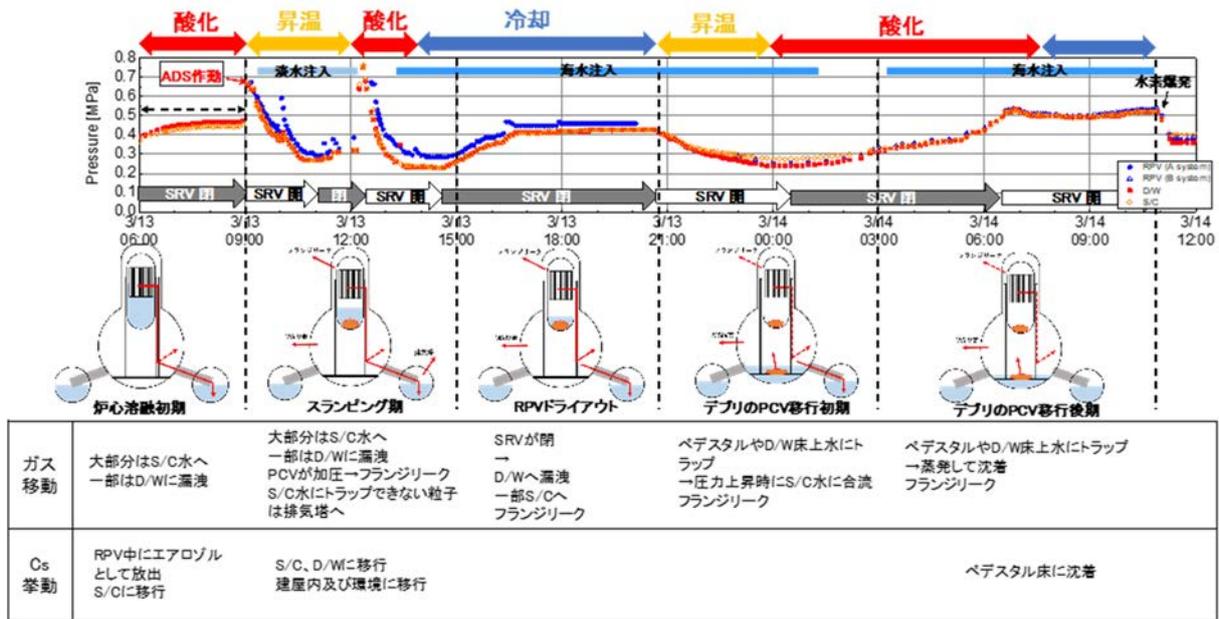


図 3.3.1-5 圧力容器内/ペDESTAL予想図、炉心/下部ヘッド/PCV 状況予測及び炉心温度予測に関する 3号機事故進展シナリオ

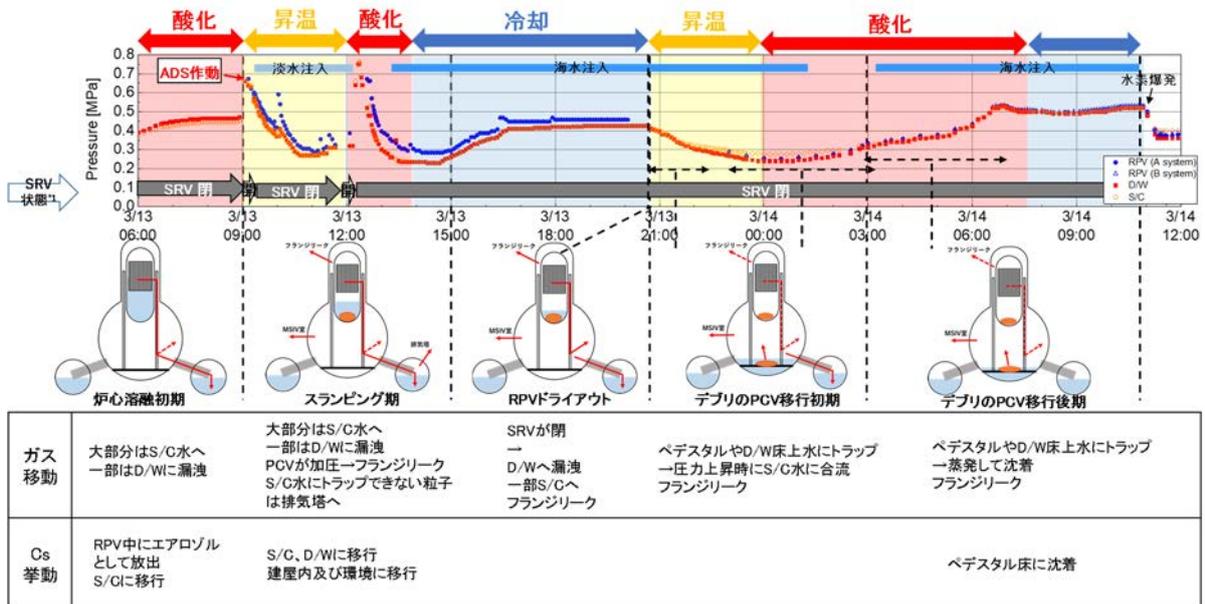


図 3.3.1-6 ガス/Cs 化合物移行図、ガス移行挙動及びCs 移行挙動の予測に関する 3号機事故進展最確シナリオ

(2) 2、3号機事故進展最確シナリオと実施項目の関連付け

① Cs 分布評価の不確かさ低減に向けた評価

1F 2、3号機の事故進展最確シナリオから、スランピング前後においてFP移行経路に差が生じることが示唆される。図 3.3.2-1 はスランピング前の FP 移行経路を示しており、a)RPV リーク箇所から PCV への直接的な移行、b)SRV を経由した SC への移行、c)SC で補足されなかった FP ガスによる真空破壊弁（以下、VB と略記。）を經由した PCV への移行、である。2号機最確シナリオでは、炉心溶融初期段階では SRV が閉じていたこと、及び、炉内雰囲気が高温度の水蒸気枯渇状態であったことから燃料から放出された Cs は水酸化物の形態で RPV 上部構造物を通過したと考えられる。この際、炉内温度（ ~ 3000 K）から急激な温度降下を経験して上部へ移行するが、ドライヤ・セパレータといったステンレス製構造物に反応しながら付着、または、粒径の小さいエアロゾルは構造物に付着することなく移行したといった経路が考えられて、現在 2号機で問題になっている PCV ウェル付近の高線量状態はこの過程における Cs 移行挙動の影響を受けている可能性がある。一方、SRV が開いている状態では、FP は SC へ移行し、ほとんどはプール水によって捕捉されることになるが、水温が高かったり混合ガス中の水素比が高かったりする場合はプールにおける凝縮が不十分となり、水に捕捉されずに SC 気相へ放出される。SC 気相圧力が PCV 圧力より低くなると VB が作動し、その際、ガス中の Cs が PCV へ移行することとなる。Cs は一度水中に放出されているため、エアロゾルが粗大化している可能性があり、その場合は PCV へ移行しても上方へは容易に移行せず、炉内下部に留まると考えられる。したがって、現在、2、3号機で問題となっている PCV ウェル付近への Cs 移行経路評価精度を向上させるには、主として経路①による化学条件を考慮した熱力学的評価を行っていくのが効果的であると考えられる。実施事項 3.1.1～2 では最確シナリオの一部条件を用いて熱力学的評価を実施し、水素／水蒸気比が高い場合に Cs 化合物に Mo が含まれない可能性が高いことが示された。これは 2号機の炉心溶融初期段階で Mo を含まない蒸気圧の比較的高い CsOH が移行した可能性が示唆されるが、もし Mo を含む Cs₂MoO₄ ガスが発生すると蒸気圧が低いことから RPV 上部構造物表面に付着してしまうので PCV ウェルの高線量要因としてはそれを妨げる方向に働く。令和 3 年度は温度条件を限定した解析であったが、さらなる精度向上を目指して今後はより広い範囲において温度・雰囲気依存性評価を行う。

さらに、Cs 放出経路として、従来の過酷事故解析では炉心における健全燃料からの放出率がモデル化されている^[39]が、さらに燃料デブリからの放出可能性を考慮する必要がある。図 3.3.2-2 は、a)スランピング時の燃料温度が低かったために Cs 放出しなかったペレットが下部プレナムで崩壊熱により再溶融する際に放出する場合、b)圧力容器破損によってペDESTAL に流出した燃料デブリがコンクリートと反応すること（MCCI）によって残留 Cs が放出される場合、を示している。令和 3 年度は Cs が燃料デブリに残留している状態でコンクリート溶融が起きた場合（0.2 mol%）に、当該反応が Cs 安定化に作用するかどうかを確認した（実施事項 3.1.3）。わずかな Cs 含有量に対して粘性が劇的に低下したことから、Cs 残留が安定化よりもむしろ融体の流動性を上昇させることにより、むしろ Cs 放出を促進する効果があることが分かった。したがって、もし Cs が燃料デブリに残留していたとしても速やかに放出されてしまい、Cs 挙動という観点からは影響は非常に限定的であると言える。一方、b)の下部プレナムにおける燃料デブリからのステンレス融体との接触を伴う Cs 放出においては、今後よく検討する必要があると考える。Lindemer と Besmann^[40]によれば、Cs

酸化物と Fe 酸化物は反応性が高く Cs-Fe-O 化合物が容易に形成される（生成エンタルピー -700～1100 kJ/mol）。このことから、ステンレス融体に Cs が溶解し Cs-Fe-O 融体として一定程度安定に存在し、液滴化を経てエアロゾル化し、炉内の急激な流動条件によっては RPV 上部へ移行していく可能性がある。環境では 2 号機から炉心溶融過程で発生したと考えられる放射性 Cs を含むエアロゾルが発見されており^{[41][42][43]}、当該粒子は SiO₂ を主成分として Fe も含まれているが、その形成機構やタイミングについては未だ解明されていない。エアロゾル化には化学条件と粘性が重要な因子であることから、令和 4 年度は Cs-Fe-O 系融体の粘性と炉内化学状況から燃料デブリからの Cs エアロゾル発生可能性について検討を行う。

これらを踏まえて、令和 4 年度以降取得する Cs 反応に関する基礎データと、Forward Analysis に搭載されている Cs 移行モデルと比較することにより、現行の事故進展シナリオに内在する Cs 分布推定量の不確かさの幅を評価する。

② 金属デブリの酸化変質評価

1F 2、3 号機最確シナリオでは压力容器下部プレナムにおける最高到達温度は従来の典型事故条件よりも数百度低い温度であったことが示され、PCV 破損時の温度は 2273 K を超えない状況であったと言える。東電によって報告された格納容器内部調査結果^[44]では、炉内の様々な箇所における撮影画像が公開されている。2 号機のグレーチングから上方へ向けて撮影した CRGTハウジングに付着した炉心溶融固化物と見られる物質は構造物表面に塊を作ることなくスムーズに付着した様子が見られることから、RPV から流下したデブリの粘性はそれほど高くなかったことが示唆される。一方、グレーチングに付着している物質はより粘性が高い様子が見られる。ステンレス製構造物の健全性が一定程度保たれていることから、流下物の温度は融点を大きく超える温度ではないことが示唆される。また、3 号機においては、CRGTハウジング付着物は 2 号機よりも粘性が高かった様子が見られるが、ペデスタルの堆積物は破損した CRGTハウジングがそのまま刺さったような箇所もあり、空間的に密ではないことやステンレス製構造物の健全性が一定程度認められることから炉心溶融物による MCCI はあったとしても限定的であると考えられている。これらは内部調査の様子から推定される状況であり、压力容器破損によって流出する物質状態について材料学的な機構解明には至っていない。

金属系デブリが水蒸気雰囲気中で酸化反応を伴いながら鋼材を溶融して压力容器破損に至り、構造物を流下する過程は複雑な相互作用を伴うが、ポイントとなるのは次の 3 点であると考えられる。すなわち、a) 金属系デブリが水蒸気によって酸化されてどのように変質するか、b) 金属系デブリが溶融した際に水蒸気との気液反応と鋼材を溶融する固液反応のどちらがより安定に進行するか、c) 酸化物の析出程度が流動性をどの程度低下させるか、である（図 3.3.2-3）。これらの要素を評価するために、本研究では下部プレナムにおける燃料デブリには一定量の未酸化金属が含まれていたことを前提として、a) 金属系デブリの水蒸気酸化による変質評価（実施事項 3.2.1）、b) Fe-Zr 系金属デブリの酸化物共存状態における熱力学的安定性評価（実施事項 3.2.2）、c) 酸化物析出成分を含むステンレス融体の粘性評価（実施事項 3.2.3）を実施する。

令和 3 年度、実施事項 3.2.1 では過去に実施した制御棒損傷実験の模擬デブリを実際に用いて、水蒸気酸化によってホウ素含有 Fe-B 系デブリは、ホウ素濃度によって酸化挙動に

違いが見られ、制御棒由来金属系デブリにホウ素が残留する可能性が示唆された。当該事象が熱力学的安定性や粘性に与える影響については現時点では判断できないが、今後の検討課題である。実施事項 3.2.2 で扱う Fe-Zr 系金属デブリ融体の Zr 活量は、気液反応と固液反応の競合割合をモデル化するのに必要なパラメータである。予備実験から Fe 高濃度金属系デブリでは Zr 活量が非常に小さいという熱力学的評価を踏襲する結果を得ることができた。最終的なモデル化に当たっては、TAF-ID データベースによる理論的活量曲線を温度と組成の簡易的なテーブルに変換して数値解析に使用可能であるか、という観点で系統的な活量測定を進めていく。さらに、実施事項 3.2.3 ではステンレス融体に酸化物が析出する状況における粘性測定を実施するための装置設計を行った。ステンレス融体は粘性が低く、析出物を混入させた状態で粘性を測定することは容易ではない。流動性に影響を及ぼす析出条件を実験的に得ることにより、CFD による流動解析に材料反応を効果的に反映させることが可能となる。これらを踏まえて、令和 4 年度以降取得する金属デブリ酸化・Zr 活量・粘性などの基礎データと、Forward Analysis に搭載されている RPV 破損モデルを比較することにより、現行の事故進展シナリオに内在するデブリ分布評価の不確かさの幅を評価する。

事故進展最確シナリオ評価から、現場で課題となっている高線量状況に至った Cs 移行挙動の不確かさを低減するためには、高温かつ水蒸気枯渇状態における Cs 反応及び燃料デブリからの放出時におけるエアロゾル形成過程に着目した RPV 上部への移行を重点的に調査していくことが重要であることが分かった。さらに、同シナリオ評価による燃料デブリ形成過程の推定から、金属系デブリの再溶融に伴う圧力容器破損事象は、競合関係にある水蒸気による酸化変質（気液反応）、及び、鋼材溶融（固液反応）のそれぞれにおける要素反応を検証することが重要であることが確認された。このような認識に基づき、精度の高い基礎データを取得するための材料実験装置の構築と予備試験を実施し、本格的なデータ取得に向けた準備を実施することができた。

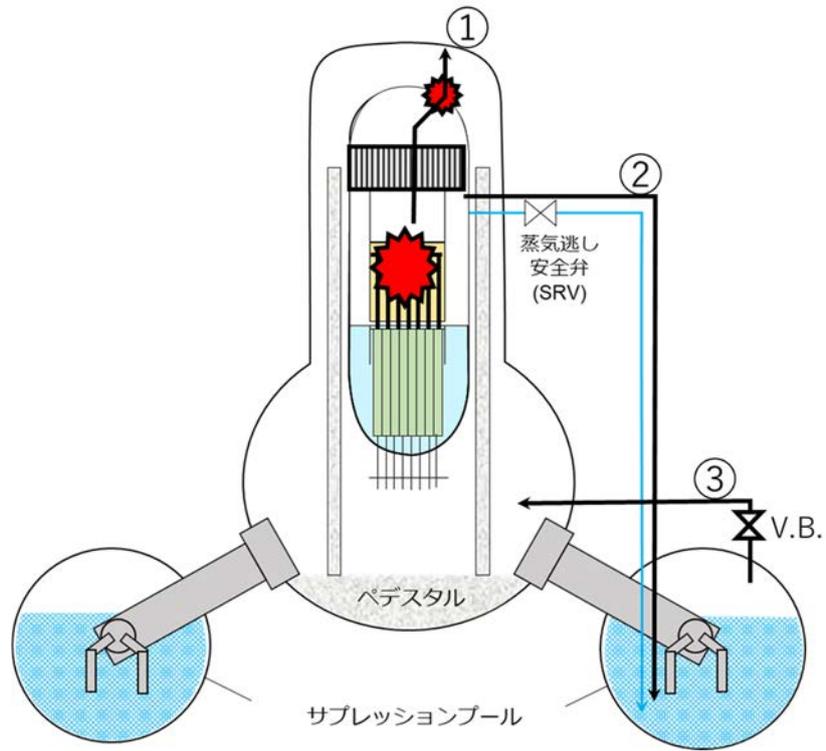


図 3.3.2-1 FP 移行経路概念図

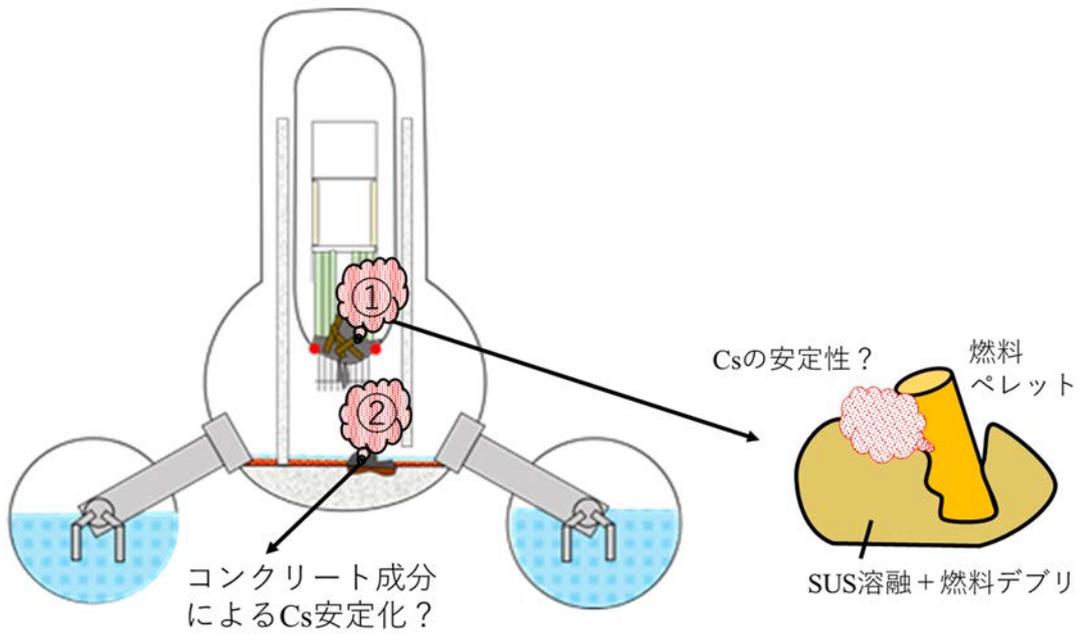


図 3.3.2-2 FP 放出源のパターン概念図

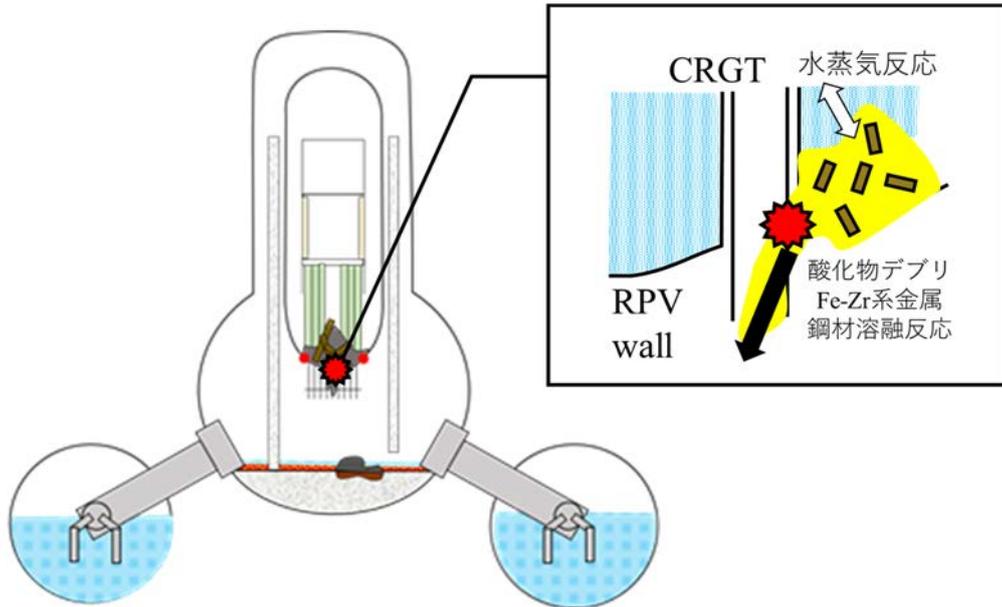


図 3. 3. 2-3 圧力容器破損過程における金属系デブリの鋼材溶融反応と Zr 水蒸気反応の競合関係概念図

3.4 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（月に 1 回以上のリモート会議を実施した）。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 4 年 3 月 31 日に第 1 回目の研究推進会議を実施し本事業の試験条件等を議論した。

連携 3 機関の研究者による 3 回のオンライン会議にて、本事業を実施するにあたり重要な概念となる、Forward Analysis・Backward Analysis の定義と位置付け、及び相互の関連による現象理解と炉内状況予測の高精度化に向けての方針の検討を行った。その結果、事故進展最確シナリオを参照して、デブリと Cs の化学状態変化と移行経路について認識を共有した。さらに、JAEA が開催する 1F 事故進展基盤研究に係る分科会で、本事業の概要を廃炉事業者や大学・プラントメーカー・研究機関等の 1F 事故解析の専門家に報告し、意見交換を進めた。

4. 結言（各章のまとめ）

(1) Cs 分布評価の不確かさの低減

① 2、3号機最確シナリオに基づいたRPV内部Cs化学形熱力学評価（連携先：JAEA）

2、3号機の事故進展最確シナリオ評価で得られた圧力容器内部の化学条件変化（温度、水素・水蒸気比等）からCsの移行挙動を予備的に推定し、Cs化学形のなかでも特に重要なCs-I、Cs-Mo、Cs-B系について1500 Kにおける安定化合物の水素・水蒸気比依存性を熱力学解析によって評価した。その結果、2号機事故初期の水蒸気枯渇条件などにおいては、 $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{g})$ の発生は制限されていた可能性が示唆される。また、 $\text{CsI}(\text{g})$ 及び $\text{Cs}_2\text{MoO}_4(\text{g})$ は水蒸気量の増加に伴い生成が抑制され、一方、 CsBO_2 は水蒸気量の増加に伴い生成が促進される傾向があるので、事故の進行に伴う水蒸気発生がCs安定相（化学種）に影響することが考えられる。令和4年度以降は、計算温度域（炉心溶融時の高温領域及び凝集・沈着を考慮するために低温領域）を広げ、さらに詳しくCsの安定相（化学種）の傾向を系統的に整理する。

② 2、3号機最確シナリオに基づいたPCV内部Cs化学形熱力学評価（連携先：JAEA）

2、3号機の事故進展最確シナリオ評価で得られたPCV内部の化学条件変化（温度、水素・水蒸気比等）からCsの移行挙動を予備的に推定し、Cs化学形のなかでも特に重要なCs-I、Cs-Mo、Cs-B系について1500 Kにおける安定化合物の水素・水蒸気比依存性を熱力学解析によって評価した。気相中における重要元素（Si：コンクリート主成分、Fe：鋼材主成分）とCsの反応について、既往のデータベースを用いた予備的な熱力学解析を実施したが、既往データベースでは格納されている気相データが不十分のため、定量的な知見を得ることができなかったが、令和4年度に予定されている熱力学データベースの拡充後に再度評価を実施する。

③ Ce及びZr混入酸化物の高温物性評価（最委託先：九州大学）

$\text{CeO}_2(-\text{ZrO}_2)-\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系高温融体の粘度を幅広い組成範囲にて測定するための条件設定を行った。当該酸化物系の高温における粘度範囲を $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系の文献情報より予測した。その後、るつぼ回転法粘度測定装置（現有設備）を用いて1873 K以下の高温で $\text{CeO}_2(-\text{ZrO}_2)-\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系高温融体の粘度測定を試みた。コンタクトマテリアルの選定及び $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系溶融酸化物の粘性に関する文献調査より、1773 Kにおいて均一溶融し、5 Pa·s程度の粘度有することが分かった。この融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる条件の設定を行った。

また、in-vessel条件でSUS316L表面において生成すると考えられる、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系メルトからのエアロゾル形成メカニズム理解に向けて、基本形となる $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系の物性を予見するため、 $\text{RO}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系溶融酸化物（R：アルカリ、アルカリ土類）の粘性に関する文献調査を追加として行った。その結果、 $10^{-3}\sim 10^{-1}$ Pa·s程度の粘度を有することが分かり、本系融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる条件の設定を行うことができた。

④ Cs挙動確認試験（連携先：JAEA）

ステンレス鋼板材と、ステンレス鋼と炭化ホウ素を含有した模擬金属デブリの、水蒸気雰囲気での熱分析予備試験を実施した。熱分析試験中の重量増加は限定的であったが、金属物質表面に形成された酸化物層は不動態相ではなかった。このような酸化において、クロムが表面酸

化物の不働態層の形成を妨害している可能性が考えられた。このメカニズムにより、酸化反応は直線的に進まない可能性が見出された。

しかし、ステンレス鋼と炭化ホウ素が十分に反応した模擬金属デブリでは、酸化による成分の再分布が起こっていた。金属デブリ中でクロムとホウ素が凝集された析出物により、金属デブリの酸化挙動が影響を受けていた。模擬金属デブリの酸化は、見かけ上拡散律速であり、反応速度は双曲線則で近似できた。

令和4年度は、水蒸気雰囲気での、ジルコニウムを含有する模擬金属デブリの酸化挙動（熔融状態）を重点的に調査するとともに、ステンレス鋼と炭化ホウ素熔融物に対する他の成分の反応挙動を調査する。

(2) 金属デブリの酸化変質評価

① 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価（連携先：JAEA）

ステンレス鋼板材と、ステンレス鋼と炭化ホウ素を含有した模擬金属デブリの、水蒸気雰囲気での熱分析予備試験を実施した。熱分析試験中の重量増加は限定的であったが、金属物質表面に形成された酸化層は不働態相ではなかった。このような酸化において、クロムが表面酸化層の不働態層の形成を妨害している可能性が考えられた。このメカニズムにより、酸化反応は直線的に進まない可能性が見出された。

しかし、ステンレス鋼と炭化ホウ素が十分に反応した模擬金属デブリでは、酸化による成分の再分布が起こっていた。金属デブリ中でクロムとホウ素が凝集された析出物により、金属デブリの酸化挙動が影響を受けていた。模擬金属デブリの酸化は、見かけ上拡散律速であり、反応速度は双曲線則で近似できた。

令和4年度は、水蒸気雰囲気での、ジルコニウムを含有する模擬金属デブリの酸化挙動（熔融状態）を重点的に調査するとともに、ステンレス鋼と炭化ホウ素熔融物に対する他の成分の反応挙動を調査する。

② 2、3号機最確シナリオに基づいた熱力学解析を保管する平衡データ取得及び酸化進展の kinetics（東京工業大学）

下部プレナムへ先行的に崩落したと考えられている金属系デブリが構造材由来のステンレス鋼を巻き込んで再熔融する際に、酸化物共存環境における金属デブリ熔融反応の熱力学的安定性を系統的に評価することを目的として、ZrO₂ 飽和状態における Fe-Zr 系液相の Zr 活量を測定する実験的手法を確立しその妥当性を確認した。目的物質とともに活量測定に用いる参照物質として Ag を採択し、1873 K における Fe 高濃度合金 (Fe 11 mol% Zr) の Zr 活量を求めたところ 1.83×10^{-3} となった。一方、TAF-ID データベースによる同条件における Zr 活量推定値は 5.13×10^{-3} であり、同じオーダーにあることを確認した。濃度分析の精度や活量導出式に含まれる誤差を低減する余地があるが、予備実験として得られた結果は化学平衡法による測定の適用が妥当であることを示している。今後は、Fe-Zr 液相における Zr 活量評価法を SUS316-Zr に適用し、両者の結果を比較することによりステンレス鋼成分の影響を調査し、下部プレナムにおける熔融現象評価を行うために Fe-Zr-O 反応に対してどのような補正を行うことが有効であるかを検討することを目指す。

③ 2、3号機最確シナリオに基づく酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定
(再委託先：九州大学)

一般的に金属融体の粘度は、酸化物融体の粘度に比較して非常に小さく mPa・s オーダーであることから、回転運動によって発生するトルクも微小であり検出が困難であるため、より低粘性領域においても精度良く粘度測定が可能と考えられるトルクセンサー（現有設備）による粘度測定装置のセットアップを志向し、必要な解析技術やコンタクトマテリアルの選定を行った。2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉の基本仕様・設計を完了した。また、熔融 Fe-Cr-Ni 系金属と反応性が低い ZrO_2 をコンタクトマテリアル（試料融体と接触するつぼ等）として選定した。

(3) 総合評価（東京工業大学、連携先：JAEA）

本研究で目的とする「Backward Analysis」として、着目すべき重要事故事象として抽出するには、従来の過酷事故解析と格納容器内部調査により分かってきたことと未だ解明されていないことを理解し、未解明事象の理解につながる仮説（モデル）を提示しなければならない。したがって、現時点における現場知見と従来の「Forward Analysis」による炉内事象進展の推定を比較し、双方のギャップを明らかにすることを目的として、2、3号機の事故進展最確シナリオ評価を実施した。さらに、得られたシナリオで未解明かつ材料学的な検討が十分ではない事象を抽出し、本研究項目との関連付け、及び、令和3年度成果の位置付けを明確にした。

事故進展最確シナリオ評価から、現場で課題となっている高線量状況に至った Cs 移行挙動の不確かさを低減するためには、高温かつ水蒸気枯渇状態における Cs 反応及び燃料デブリからの放出時におけるエアロゾル形成過程に着目した RPV 上部への移行を重点的に調査していくことが重要であることが分かった。さらに、同シナリオ評価による燃料デブリ形成過程の推定から、金属系デブリの再熔融に伴う圧力容器破損事象は、競合関係にある水蒸気による酸化変質（気液反応）、及び、鋼材熔融（固液反応）のそれぞれにおける要素反応を検証することが重要であることが確認された。このような認識に基づき、精度の高い基礎データを取得するための材料実験装置の構築と予備試験を実施し、本格的なデータ取得に向けた準備を実施することができた。

(4) 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4年3月31日に第1回目の研究推進会議を実施し本研究の試験条件等を議論した。

参考文献

- [1] debrisWiki [in Japanese], <https://fdada-plus.info> (参照：2022年4月8日) .
- [2] Madokoro, H. and Sato, I., Estimation of the Core Degradation and Relocation at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 Based on RELAP/SCDAPSIM Analysis, Nuclear Engineering and Design, vol.376, 2021, 111123.
- [3] Sato, I. et al., 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. Tech., vol.58, no.4, 2021, pp.434-460.
- [4] C. Gueneau, N. Dupin, L. Kjellqvist, E. Geiger, M. Kurata, S. Gosse, A. Quaini, R. Hania, A. L. Smith, M. H. A. Piro, T. Besmann, P. E. A. Turchi, J. C. Dumas, J. Welland, T. Ogata, B. O. Lee, J. R. Kennedy, C. Adkins, M. Bankhead, D. Costa, TAF-ID: An International Thermodynamic Database for Nuclear Fuels Applications, Calphad, vol.72, 2021, 102212.
- [5] Andersson J. O., Helander T., Höglund L., Shi P. F., and Sundman B., Thermo-Calcul and DICTRA, Computational Tools for Materials Science, Calphad, vol.26, no.2, 2002, pp.273-312.
- [6] 日本化学会, 化学便覧 改訂4版 基礎編Ⅱ, 丸善, 1993.
- [7] Dean, J. A. and N. A. Lange, Lange's Handbook of Chemistry Fifteenth Edition, 1999, 1291p.
- [8] 井元純平他, ヨウ化セシウムおよびモリブデン酸セシウムの室温近傍における水への溶解度に関する研究, 日本原子力学会和文論文誌, vol.20, no.4, 2021, pp.179-187.
- [9] Suzuki E. et al., Experimental Study on Cs Chemisorption Behaviour onto Stainless Steel at around 873 K, Proceedings of FDR2019, FDR2019-1068.
- [10] T. Kitagaki, H. Ikeuchi, K. Yano, J. H. Haquet, L. Brissonneau, B. Tormos, P. Piluso and T. Washiya, Characterization of the VULCANO Test Products for Fuel Debris Removal from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Prog. Nucl. Sci. and Tech, vol.5, 2018, pp.217-220, <http://dx.doi.org/10.15669/pnst.5.217>.
- [11] K. C. Mills, Slag Atlas 2nd Edition, Verlag Stahleisen GmbH, Düsseldorf, 1995, p.364.
- [12] 飯田孝道, 喜多善史, 上田満, 森克巳, 中島邦彦, 熔融スラグ・ガラスの粘性-物性工学的アプローチによる多成分系複雑液体の高精度な粘度推算法, アグネ技術センター, 2003, 183p.
- [13] N. Saito, N. Hori, K. Nakashima and K. Mori, Viscosity of Blast Furnace Type Slags, Metall. Mater. Trans. B, vol.34, 2003, pp.509-516, <https://doi.org/10.1007/s11663-003-0018-9>.
- [14] Y. Harada, H. Yamamura, Y. Ueshima, T. Mizoguchi, N. Saito, and K. Nakashima, Simultaneous Evaluation of Viscous and Crystallization Behaviors of Silicate Melts by Capacitance and Viscosity Measurements, ISIJ International, vol.58, no.7, 2018, pp.1285-1292, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2018-009>.

- [15] 角田成夫, 三森隆, 森永健次, 柳ヶ瀬勉, Fe_2O_3 を含むスラグの粘度, 日本金属学会誌, vol.44, no.1, 1980, pp.94-99.
- [16] Johnson C. E., Johnson I., Blackburn P. E. et al., Effect of Oxygen Concentration on Properties of Fast Reactor Mixed-oxide Fuel, *React Technol.*, 1972, vol.15, pp.303-337.
- [17] Götzmann O., Hofmann P., Thümmler F., Attack upon the Cladding of Oxide Fuel Pins by Fuel and Fission Products, *J. Nucl. Mater.*, 1974, vol.52, no.1, pp.33-50.
- [18] Götzmann O., Johnson C. E., Fee D. C., Attack of Stainless Steel by Liquid and Vaporized Cesium Hydroxide, *J. Nucl. Mater.*, 1978, vol.74, no.1, pp.68-75.
- [19] Cremers A., Elsen A., Preter P. D. et al., Quantitative Analysis of Radiocaesium Retention in Soils, *Nature*, 1988, vol.335, no.6187, pp.247-249.
- [20] Koarashi J., Nishimura S., Atarashi-Andoh M. et al., A New Perspective on the ^{137}Cs Retention Mechanism in Surface Soils during the Early Stage after the Fukushima Nuclear Accident, *Sci. Rep.*, 2019, vol.9, no.7034.
- [21] Allen G. C., Bowsher B. R., Wild R. K. et al., Surface Studies of the Interaction of Cesium Hydroxide Vapor with 304 Stainless Steel, *Oxid. Met.*, 1987, vol.28, pp.33-59.
- [22] Elrick R. M., Sallach R. A., Ouellette A. L. et al., Reaction between Some Cesium-iodine Compounds and the Reactor Materials 304 Stainless Steel, Inconel 600 and Silver, Volume 1: Cesium Hydroxide Reactions, Albuquerque, NM, USA: Sandia National Laboratories, 1984, Report No. NUREG/CR-3197, vol.1, SAND83-0395.
- [23] Nakajima K., Nishioka S., Suzuki E. et al., Study on Chemisorption Model of Cesium Hydroxide onto Stainless Steel Type 304, *Mech. Eng. J.*, 2020, vol.7, no.3, 19-00564.
- [24] Ott L. J., Advanced Severe Accident Response Models for BWR Application, *Nucl. Eng. Des.*, 1989, vol.115, no.2-3, pp.289-303.
- [25] Hagen S., Hofmann P., Noack V. et al., Pre-oxidised BWR Test CORA-28: Test Results, Karlsruhe, Germany: Forschungszentrum Karlsruhe, 1997, Report No.FZKA 5571.
- [26] Pshenichnikov A., Kurata M., Bottomley D. et al., New Research Programme of JAEA/CLADS to Reduce the Knowledge Gaps Revealed after an Accident at Fukushima-1: Introduction of Boiling Water Reactor Mock-up Assembly Degradation Test Programme, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2020, vol.57, no.4, pp.370-379.
- [27] Pshenichnikov A., Nagae Y., Kurata M., Raman Characterization of the Simulated Control Blade Debris to Understand the Boric Compounds Transformations during Severe Accidents, *Mech. Eng. J.*, 2020, vol.7, no.2, 19-00477.
- [28] Sehgal B. R. et al., Editor, *Nuclear Safety in Light Water Reactors Severe Accident Phenomenology*, 1st edition, Elsevier Inc., 2012, 740p.
- [29] Allen G. C., Bowsher B. R., Wild R. K. et al., Surface Studies of the Interaction of Cesium Hydroxide Vapor with 304 Stainless Steel, *Oxid. Met.*, 1987, vol.28, pp.33-59.

- [30] Pshenichnikov A., Yamazaki S., Bottomley D. et al., Features of a Control Blade Degradation Observed in Situ during Severe Accident Conditions in Boiling Water Reactors, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2019, vol.56, no.5, pp.440-453.
- [31] Pshenichnikov A., Nagae Y., Kurata M., On the Degradation Progression of a BWR Control Blade under High-temperature Steam-starved Conditions, *Mech. Eng. J.*, 2020, vol.7, no.3, 19-00503.
- [32] Pshenichnikov A., Kurata M., Nagae Y., A BWR Control Blade Degradation Observed in Situ during a CLADS-MADE-02 Test under Fukushima Dai-Ichi Unit 3 Postulated Conditions, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2021, vol.58, no.9, pp.1025-1037.
- [33] 小野英樹, 三木貴博, 中本将嗣, 蒸気圧法ならびに化学平衡法による溶鉄中元素間の相互作用パラメータの測定, *鉄と鋼*, vol.105, no.3, 2019, pp.344-352.
- [34] Okamoto, H., Supplemental Literature Review of Binary Phase Diagrams: Ag-Ni, Ag-Zr, Au-Bi, B-Ni, Co-Sb, Cu-Mn, Cu-Si, Cu-Zn, Fe-Zr, Li-Sb, Mg-Pu, and Si-Zr, *J. Phase Equilibria and Diffusion*, vol.39, 2018, pp.87-100.
- [35] Okamoto, H., Massalski, T. B. et al., *Binary Alloy Phase Diagrams*, ASM International, Materials Park, OH, USA, 1990, p.12.
- [36] H. M. Hsiao, S. M. Liang, R. Schmid-Fetzer, Y. wen Yen, Thermodynamic Assessment of the Ag-Zr and Cu-Zr Binary Systems, *Calphad*, vol.55, no.2, 2016, pp.77-87.
- [37] 小久保宏紀, 西剛史, 太田弘道, 山野秀将, ステンレス鋼-B₄C 溶融混合物の系統的な粘度測定を目指したニッケルおよびステンレス鋼の粘度測定, *日本金属学会誌*, vol.82, no.10, 2018, pp.400-402, <https://doi.org/10.2320/jinstmet.JAW201812>.
- [38] Anton Paar GmbH, 動的粘弾性レオメータ測定ヘッド: DSR 502, <https://www.anton-paar.com/jp-jp/products/details/rheometer-measuring-head/> (参照:2022年4月8日).
- [39] 東北電力, 東京電力, 中部電力, 中国電力, 重大事故等対策の有効性評価に係るシビアアクシデント解析コードについて (第5部 MAAP) , https://www.tepco.co.jp/about/power_station/disaster_prevention/pdf/nuclear_power_150609_04.pdf (参照:2022年4月15日) .
- [40] T. B. Lindemer, T. M. Besmann, C. E. Johnson, Thermodynamic Review and Calculations-alkali-metal Oxide Systems with Nuclear Fuels, Fission Products, and Structural Materials, *J. Nucl. Mater.*, vol.100, no.1-3, 1981, pp.178-226.
- [41] N. Yamaguchi, M. Mitome, A. H. Kotone, M. Asano, K. Adachi, T. Kogure, Internal Structure of Cesium-bearing Radioactive Microparticles Released from Fukushima Nuclear Power Plant, *Sci. Rep.*, vol.6, 2016, 20548.
- [42] N. Yamaguchi, T. Kogure, H. Mukai, A. H. Kotone, M. Mitome, T. Hara, H. Fujiwara, Structures of Radioactive Cs-bearing Microparticles in Non-spherical Forms Collected in Fukushima, *Geochem. J.*, 2018, vol.52, no.2, pp.123-136.
- [43] T. Okumura, N. Yamaguchi, H. Suga, Y. Takahashi, H. Segawa, T. Kogure, Reactor Environment during the Fukushima Nuclear Accident Inferred from Radiocaesium-Bearing Microparticles, *Sci. Reports*, 2020, vol.10, 1352.

- [44] 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事故発生後の詳細な進展メカニズムに関する未確認・未解明事項の調査・検討結果「第5回進捗報告」について, https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/ (参照: 2022年4月15日) .
- [45] Dubourg, R. et al., Fission Product Release in the First Two PHEBUS Tests FPT0 and FPT1, Nuclear Engineering and Design, vol.235, no.20, 2005, pp.2183-2208.

This is a blank page.

