

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4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)

-FY2022 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

August 2024

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 研究開発推進部 科学技術情報課
〒319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
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 Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

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4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

(2024年3月19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4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はじ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、令和3年度に採択された研究課題のうち、「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4年度分の研究成果について取りまとめたものである。

酸化物デブリの逆解析では、ガス浮遊法や微小な穴を持つタングステンパイプから溶融・噴出させる方法により模擬燃料粒子の合成に成功した。さらに、サンプリングデータに基づき作成された U1-No. 15 試料の凝固パス図を再現し、鉄の挙動が熱力学予測と少し異なる結果を得た。金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価では、溶融させた金属デブリのステンレスへの落下試験や溶融ステンレスを模擬金属デブリへの落下試験より、それぞれ溶融反応が低下するメカニズムを明らかにした。さらに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データに基づく大型試験体系での解析可能な簡素化モデルを提示、また圧力容器下部の材質を参照した大型試験体の実験より酸化物が圧力容器破損に与える影響を評価、さらに炉心部から先行して溶融・移行したステンレス鋼等の金属物質の再溶融過程におけるウラン混入条件の評価を行った。また、試験技術の整備として、二酸化ウランとジルコニウムと金属との半溶融模擬デブリの合成、少量のウランを用いる模擬燃料デブリ合成に最適な加熱炉の検討を行った。

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

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)

– FY2022 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 March 19, 2024)

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 FY2022.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F), 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 FY2022.

The present study aims to clarify the debris formation mechanism and utilize the results to refine the accident scenario. In the backward analysis of oxide debris formation, we succeeded in the formation of simulated fuel particle by the aerodynamic levitation method and ejection of melted oxides from tungsten pipe with a small hole. And we demonstrated the formation of simulated fuel debris of U1-No.15 obtained by the sampling in 1F. From the estimation of mixing, melting and solidified states of metallic debris it is found that the formation of precipitates may suppress the reaction between melted metallic debris and stainless steel or melted stainless steel and metallic debris. We also suggested a simplified model for large scale experiment system, estimated the effect of oxide on the failure of pressure vessel in the large scale experiment and effect of uranium to the re-melting process of pre-dropped metallic debris. We also prepared the semi-melted debris from oxide and metals and investigate the furnace to melt a small amount of uranium oxide as the experimental techniques in the future.

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
6. 令和 4 年度 採択課題	12
付録 成果報告書	15

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
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result Report	15

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ティアップ型人材育成	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 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 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

6. 令和4年度採択課題

令和4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4年3月1日～令和4年5月6日（課題解決型）

令和4年4月7日～令和4年6月16日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：8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）

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4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
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニタの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

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
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の探求	塚原 剛彦	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和4年度分の研究成果について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 4 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 R04I027-1)

成果報告書

令和 5 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4年度分の研究成果をと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4年度の成果の目標及び業務の実施方法	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.	実施内容及び成果	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 (令和3年度～令和4年度)	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 (令和3年度～令和4年度)	3-8
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年度～令和4年度)	3-19
3.2	金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価	3-20
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 (令和3年度～令和4年度)	3-20
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 (令和3年度～令和4年度)	3-29
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 (令和3年度～令和4年度)	3-40
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 (令和3年度～令和4年度)	3-60
3.3	デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備	3-64
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	3-64
3.3.2	燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計	3-68
3.4	Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価 (令和3年度～令和4年度)	3-72
3.5	研究推進 (令和3年度～令和4年度)	3-72

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（再委託先：大阪大学）	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（福井大学）	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 （再委託先：大阪大学、福井大学）	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 （再委託先：東京工業大学）	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 （再委託先：東北大学）	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（連携先：JAEA）	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（再委託先：東北大学、東京工業大学、連携先：JAEA）	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）	4-2
4.3.2 燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計（福井大学）	4-3
4.4 Forward AnalysisとBackward Analysisの総合評価（福井大学、連携先：JAEA）	4-3
4.5 研究推進	4-3

執筆者リスト

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	加熱試験温度条件及び噴出の有無	3-9
表 3.1.2-2	MF0=0.60 凝固経路図での出発物質の組成と重量比	3-14
表 3.1.2-3	OXL 相生成物	3-16
表 3.1.2-4	HTF 相生成物	3-16
表 3.1.2-5	1900 °Cでの反応生成物	3-17
表 3.1.2-6	界面付近の反応層の EPMA 分析結果	3-19
表 3.2.3-1	金属デブリ-構造材反応試験の試験条件	3-45
表 3.2.3-2	構造材の反応量	3-45
表 3.2.3-3	金属デブリ-構造材の反応速度	3-46
表 3.2.3-4	模擬金属デブリとウラン酸化物の高温反応試験の試験条件	3-46
表 3.3.2-1	熔融炉の分類	3-69
表 3.3.2-2	試験条件と重量変化	3-70

図一覧

図 3.1.1-1	浮遊型レーザー加熱炉の概要	3-1
図 3.1.1-2	(FeO) _{91.8} (UO ₂) _{3.8} (ZrO ₂) _{4.4} 焼結体の外観	3-2
図 3.1.1-3	(FeO) _{91.8} (UO ₂) _{3.8} (ZrO ₂) _{4.4} 焼結体の SEM/EDS 分析結果	3-2
図 3.1.1-4	(a) 浮遊型レーザー加熱炉によって浮遊溶解中の (FeO) _{91.8} (UO ₂) _{3.8} (ZrO ₂) _{4.4} 試料、(b)浮遊溶解後の試料、(c) フィルターによって捕集されたエアロゾル	3-3
図 3.1.1-5	フィルターによって捕集した (FeO) _{91.8} (UO ₂) _{3.8} (ZrO ₂) _{4.4} 試料から発生したエアロゾルの SEM/EDS 分析結果	3-3
図 3.1.1-6	フィルターによって捕集した (FeO) _{91.8} (UO ₂) _{3.8} (ZrO ₂) _{4.4} 試料から発生したエアロゾルの SEM 観察結果	3-4
図 3.1.1-7	浮遊溶解後の (FeO) _{91.8} (UO ₂) _{3.8} (ZrO ₂) _{4.4} 試料断面の SEM/EDS 分析結果	3-4
図 3.1.1-8	(a) 浮遊型レーザー加熱炉によって浮遊溶解中の (Al ₂ O ₃) _{0.84} (UO ₂) _{0.16} 試料、(b)浮遊溶解後の試料、(c) フィルターによって捕集されたエアロゾル	3-5
図 3.1.1-9	フィルターによって捕集した (Al ₂ O ₃) _{0.84} (UO ₂) _{0.16} 試料から発生したエアロゾルの SEM/EDS 分析結果	3-6
図 3.1.1-10	フィルターによって捕集した (Al ₂ O ₃) _{0.84} (UO ₂) _{0.16} 試料から発生したエアロゾルの SEM 観察結果	3-6
図 3.1.1-11	浮遊溶解後の (Al ₂ O ₃) _{0.84} (UO ₂) _{0.16} 試料断面の SEM/EDS 分析結果	3-7
図 3.1.2-1	加熱溶解試験時のセットアップ	3-10
図 3.1.2-2	加熱後試料断面の SEM/EDS 観察結果 (中央やや下部断面)	3-10
図 3.1.2-3	加熱後試料断面の SEM/EDS 観察結果 (やや上部断面)	3-11
図 3.1.2-4	捕集した試料の様子	3-11
図 3.1.2-5	YSZ 微粒子①	3-11
図 3.1.2-6	YSZ 微粒子②	3-12
図 3.1.2-7	模擬燃料微粒子①	3-12
図 3.1.2-8	模擬燃料微粒子②	3-12
図 3.1.2-9	模擬燃料微粒子③	3-12
図 3.1.2-10	模擬燃料微粒子④ (左：全体像、中：中央部拡大、右：粒付近拡大)	3-12
図 3.1.2-11	球形サンプル元素分析結果 (右図 302~304 が白い粒部分)	3-13
図 3.1.2-12	液滴サンプル元素分析結果 (右図 45~55 が白い部分)	3-13
図 3.1.2-13	HTF 及び OXL 試料の反応前後の試料外観	3-14
図 3.1.2-14	OXL 試料の反応後の X 線回折パターン	3-15
図 3.1.2-15	OXL 相の分析結果	3-15
図 3.1.2-16	1900 °Cでの反応生成物の SEM/EPMA 分析	3-17
図 3.1.2-17	反応対試験試料	3-18
図 3.1.2-18	加熱試験後の試料	3-18
図 3.1.2-19	界面付近の反応層の EPMA 分析結果	3-19

図 3.2.1-1	実験装置概観図	3-26
図 3.2.1-2	Fe-87Zr/ステンレス鋼反応後試料外観	3-26
図 3.2.1-3	Fe ₁₃ Zr ₈₇ /Fe の反応温度依存性	3-27
図 3.2.1-4	制御棒由来デブリ模擬物質作製手順	3-28
図 3.2.2-1	試験装置概略図	3-35
図 3.2.2-2	試料の構成	3-35
図 3.2.2-3	試験後の試料の状態	3-35
図 3.2.2-4	Ar-12.2%H ₂ O、2 時間保持試料断面の組成分布	3-36
図 3.2.2-5	Ar-12.2%H ₂ O、2 時間保持試料高さ方向 C、B の濃度分布	3-36
図 3.2.2-6	金属融体中 B 濃度変化	3-37
図 3.2.2-7	金属融体中 C 濃度変化	3-37
図 3.2.2-8	金属融体ホウ化物懸濁相厚さ変化	3-37
図 3.2.2-9	ステンレス鋼-B-C 系計算状態図上での固相飽和液相組成と試験による液相組成	3-38
図 3.2.2-10	反応後試料の金属相表面近傍の炭素濃度分布	3-38
図 3.2.2-11	B ₄ C の金属融体への溶解機構模式図	3-39
図 3.2.2-12	H ₂ O 酸化処理を施した Zry-4 の断面 EPMA 像	3-39
図 3.2.3-1	試験体模式図	3-47
図 3.2.3-2	MEISAN 試験装置外観 (炉内)	3-47
図 3.2.3-3	インコネル試験体断面の光学顕微鏡観察結果	3-48
図 3.2.3-4	ステンレス鋼試験体断面の光学顕微鏡観察結果	3-49
図 3.2.3-5	1200 °C 保持試験の模擬金属デブリ-構造材反応界面の SEM/EDS 分析結果	3-50
図 3.2.3-6	金属デブリ-構造材の反応速度	3-51
図 3.2.3-7	高周波誘導炉外観及び試験体模式図	3-52
図 3.2.3-8	模擬金属デブリ SEM-EDS 分析結果	3-52
図 3.2.3-9	UO ₂ +Zry-2 2000 °C 10 分保持試料の SEM-EDS 分析結果	3-53
図 3.2.3-10	UO ₂ +Zry-2 2000 °C 10 分保持試料の熔融 Zry-2 中の微小組織 SEM-EDS 分析結果	3-53
図 3.2.3-11	UO ₂ +Zry-2 2200 °C 30 分保持試料の外観及び断面 BSE 像	3-54
図 3.2.3-12	UO ₂ +Zry-2 2200 °C 30 分保持試料の SEM-EDS 分析結果	3-55
図 3.2.3-13	(U, Zr)O ₂ +JAEA 過去試験模擬デブリ 2200 °C 30 分保持試料の SEM-EDS 分析結果	3-56
図 3.2.3-14	(U, Zr)O ₂ +JAEA 過去試験模擬デブリ 2200 °C 30 分保持試料の金属層微細組織の SEM-EDS 分析結果	3-57
図 3.2.3-15	試験体外観	3-58
図 3.2.3-16	試験中の様子 (上部からのその場観察)	3-58
図 3.2.3-17	試験後の試験体外観及び試験体断面	3-58
図 3.2.3-18	解析体系	3-59
図 3.2.3-19	試解析結果 (インコネル材-金属デブリとの反応生成物の分布)	3-59
図 3.2.4-1	2 号機事故シナリオ (RPV 破損まで)	3-63
図 3.2.4-2	金属デブリ挙動の概略図	3-63

図 3.3.2-1	出発混合物の SEM/EPMA 分析結果	3-70
図 3.3.2-2	試料の外観 (a)加熱前、(b)加熱後、(c)加熱中、左：試験 2、 右：試験 4	3-71

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	廃炉環境国際共同研究センター
東電	: 東京電力ホールディングス株式会社	
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	
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

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関わ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、燃料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。

(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析

①1、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。))

令和3年度は、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、比較的蒸気圧が高くエアロゾルが容易に生じるとされる ZrO_2 や Fe_2O_3 を用い、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、エアロゾル捕集方法について検討した。

令和4年度は、浮遊型レーザー加熱炉で試料を加熱溶融させることでエアロゾルを発生させ、捕集した。捕集したエアロゾルは電子顕微鏡等により分析した。 UO_2 を試料として用いたホット試験も実施し、Uを含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確立した。

UO_2 、 Al_2O_3 、 FeO 、 ZrO_2 を試料として共晶組成の $(Al_2O_3)_{0.84}(UO_2)_{0.16}$ と $(FeO)_{91.8}(UO_2)_{3.8}(ZrO_2)_{4.4}$ の焼結体を作製し、それぞれを浮遊型レーザー加熱炉によって加熱溶融した。フィルターを用いて発生したエアロゾルを捕集した。捕集したエアロゾルを走査型電子顕微鏡（以下、「SEM」と略す。）とエネルギー分散型X線分析（以下、「EDX」と略す。）によって分析した。これらのホット試験により、Uを含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確立した。

②PCV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。))

令和3年度は、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、タングステンパイプに詰めた UO_2 の加熱試験を実施した後、溶融凝固サンプルを作製し1μm程度の粒子の生成が認められた。1F試料評価委員会で紹介された分析結果と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、反応試験条件を決定した。

令和4年度は、令和3年度に改造した装置を用いて試料を3000℃以上の温度に加熱し、模擬粒子試料の作製を行い、性状を観察した。令和3年度にまとめた UO_2 粒子の分析結果等をもとに $(U, Zr, Fe)O_2$ 模擬デブリ合成を試み、物性を測定した。

その結果、微粒子を安定的に作製できる条件を把握した。生成した微粒子は、数マイクロメートルの扁平な粒子や液滴が気中で固まったと考えられる粒子などが見つかった。またサンプリングデータ(U1-No.15)について熱力学的に予測された化合物が得られたが、fluorite相における鉄の固容量は少なく、また金属鉄が析出するなど熱力学的予測と異なる結果も得られた。

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)

令和 3 年度は、項目 (1) ①及び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。

令和 4 年度も項目 (1) ①及び②の本年度の成果をもとに、酸化物デブリの形成過程のメカニズムについて検討した。その結果、①については、浮遊型レーザー加熱炉で浮遊熔融させる $(FeO)-(UO_2)-(ZrO_2)$ 試料の組成の影響を評価するために、実際にこれまで見つかった粒子の組成を参考に次年度の試料の組成を決定することとした。

(2) 金属デブリの混合・熔融・凝固状態の評価

①2、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。))

令和 3 年度は、炉心崩落時の非平衡熔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及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 °C）で熔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。

令和 4 年度は令和 3 年度に検討した試験条件に基づき、構築した二段式電気抵抗炉を用いて高温（ \sim 最高温度 2100 °C）で高濃度ジルコニウム熔融物の形成が予想されるシナリオに基づいて熔融させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させる試験を実施した。試料の金属組織観察・金属間化合物及び酸化物の偏析状態・反応相同定から生成物の材料学的性質を評価した。その結果、高 Zr 含有熔融金属がステンレス鋼に接触する際に界面に金属間化合物が形成されると物質移動が抑制され、ステンレス鋼の熔融が進行を遅らせる傾向を示した。

②2、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。))

令和 3 年度は、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、熔融ステンレスと 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。

令和 4 年度は、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、熔融ステンレスと B_4C 、ジルカロイの接触試験を行い B、C 及び Zr のステンレス融体への移行挙動に関する基礎データを収集した。その結果、 B_4C の熔融ステンレス鋼に接触した場合、初期において熔融は速やかに進行するが、次第に界面にホウ化クロム及び炭素が析出し溶解速度が低下する傾向を示した。

③2、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、「JAEA」と略す。))

令和 3 年度は、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、JAEA 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熔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熔融し、ウランと反応して熔融・凝固挙動を把握するための試験条件を提示した。

令和4年度は、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データに基づいて、大型試験体系で解析可能な簡素化モデル（反応速度暫定式）を提示した。その結果、ステンレス鋼とジルコニウム混合物（Zrリッチ混合物を使用）と圧力容器材のうちニッケル基合金との反応・溶融が促進される傾向を示した。

圧力容器下部構造や使用されている材質を参照した大型試験体を製作した上で、ステンレス鋼やジルコニウムの金属物質、水蒸気により酸化したジルコニウム等の酸化物と、圧力容器からの溶融物流出挙動に関わる大型試験データを取得し、酸化物が圧力容器破損に与える影響を評価した。その結果、ステンレス鋼とジルコニウム混合物（ステンレス鋼リッチ混合物を使用）とジルコニウム酸化物と圧力容器材との反応・溶融・流出挙動に関わる大型試験により、溶融金属と構造材との反応・溶融の進行が遅くなる傾向を示した。

ウラン化合物による、炉心部から先行して溶融・移行したステンレス鋼等の金属物質の再溶融過程での、これら金属物質へのウラン混入試験データを取得し、混入条件を評価した。その結果、ウランとジルコニウムの酸化物と溶融金属（ステンレス鋼-ジルコニウム混合物）の反応により、金属ジルコニウムが酸化物となり、残存する溶融金属は鉄成分が多く存在する傾向を示した。

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：JAEA）

令和3年度は、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及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及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。

令和4年度も項目(2)①、②、③の結果をもとにして、溶融金属物質による圧力容器下部破損挙動を評価した。その結果、溶融金属と構造材料間の反応挙動による圧力容器下部破損挙動が、溶融金属の組成に依存する可能性を示した。

(3) デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

①3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）

令和3年度は、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及び評価方法を確立した。

令和4年度は、令和3年度に構築したコールドクルーシブル実験装置と策定した組成条件を用いて二酸化ウラン・ジルコニウムと金属（ジルコニウム、ステンレス鋼）が半溶融状態で混合した状態の模擬デブリを作製する試験を実施した。試験後試料の金属組織観察・組成分析・相同定等から、生成物における金属間化合物及び酸化物の偏析状態を評価した。その結果、ウラン・ジルコニウム酸化物の完全溶融状態からコールドクルーシブルの出力を制御して試料上部と下部で融点の異なる部分的に凝固している不均一状態が形成されていたことを示し、半溶融状態の模擬デブリ作製に成功した。

②燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計（福井大学）

令和3年度は、数グラムのUO₂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コールドクルーシブル溶解（CCIM）溶融装置の設計のために、UO₂の模擬としてHfO₂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。しかし、CCIM炉で所期の目標を達成する炉の設計は難しいと判断し、令和4年度は契約変更によりガス浮遊炉による炉を検討することとした。

令和4年度は、大阪大学で用いられているガス浮遊炉をもとに、5 g程度のUO₂試料の熔融・水冷が可能な大型化に向けた概念設計を行った。検討にあたり、燃料デブリ製造に用いる熔融法を比較整理し、ガス浮遊炉を設計対象とする理由をとりまとめた。

その結果、CCIM炉は100 g程度の不均一な試料を合成して様々な物性を測定するのに適しているのに対し、ガス浮遊炉は1 g程度の均一な試料を合成し、結晶構造と組成の同定と容体の物性測定に適していることなどをまとめた。また、大阪大学の現有装置（試料量：数十mg、レーザー出力：100 W）をもとに5 gの試料を熔融できるよう大型化した場合、8000 Wのレーザー出力が必要であることなどが見積もられた。

(4) Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、連携先：JAEA）

令和3年度は、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、JAEA、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4年度も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、JAEA、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。

(5) 研究推進

令和3年度は、4回の研究推進委員会を行い、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（CLADS）等との連携を密にして研究を進めた。

令和4年度も、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、令和4年5月30日に第1回研究推進委員会、令和4年10月24日に第2回研究推進委員会、令和5年3月6日に第3回研究推進委員会、令和5年3月30日に第4回の研究推進委員会を開催し、各研究項目を推進するための議論を実施した。

前年度までの成果報告書：

JAEA-Review 2022-046、<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-046>

以上、3カ年計画の2年目である令和4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・保障措置に関わる項目、取扱い安全に関わ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み込み、燃料デブリ取出し設計に反映・活用するのかが、喫緊の課題となっている。

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関わ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、燃料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み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 (熔融・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及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・熔融・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、TMI-2 の PWR 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熔融した後、熔融物が圧力容器からペDESTAL に短時間で溶落) と異なり、最高到達温度が PWR 事故条件より数百°C 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、金属デブリの熔融、酸化物デブリの半熔融、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DESTAL からの試験的燃料デブリ取出しに向けて、金属デブリ特性に関する知見を提示する。また、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熔融・凝固進展に関する検証試験を実施し、3 号機ペDESTAL デブリで懸念されている諸物性の偏在に関わる知見を取得する。

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熔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熔融・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熔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関わる知見を得る。さらに、国内で U 酸化物試料を熔融・凝固できる装置の設計・製造に向けて、100 g 程度の U を含む試料を用いた実験については国内の CCIM 炉メーカーに UO_2 (融点: 2800 °C) の模擬として HfO_2 (融点: 2758 °C) を用いた燃料、被覆管及び構造材の同時熔融試験を委託する。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熔融させようとした場合、先に熔融した金属中に未熔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、酸化物が熔融する前に蒸発してしまうという技術課題を解決する。また、数十 mg の U を含む試料を用いた実験については、今後大阪大学のガス浮遊炉を用いてセラミックスと金属の試料の熔融や大型化を検討する。これらの結果をもとに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 2.1.1~2.1.3 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

<p>課題全体のとりまとめ：宇埜正美 30%</p>		
<p>(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析 ①1, 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</p>		
<p>研究責任者：大石佑治 10%</p>	<p>学生 A</p>	
<p>レーザー加熱炉整備、実験条件検討</p>	<p>実験、分析</p>	
<p>(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析 ②PCV 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</p>		
<p>研究責任者：宇埜正美 30%</p>	<p>有田裕二 10%</p>	<p>福元謙一 10%</p>
<p>FCC 型 UO₂ 共存相の生成条件の把握</p>	<p>溶融燃料急冷時の粒子組織観察</p>	<p>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</p>
<p>(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に基づく酸化物デブリの形成メカニズムの解明</p>		
<p>福井大学</p>	<p>宇埜正美 30%</p>	<p>有田裕二 10%</p>
<p>大阪大学</p>	<p>大石佑治 10%</p>	<p>福元謙一 10%</p>
<p>(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 ①2、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（東工大）</p>		
<p>研究責任者：小林能直 10%</p>	<p>伊藤あゆみ 20%</p>	<p>学生 A</p>
<p>非平衡反応実験装置整備実験条件検討</p>		<p>実験、分析</p>
<p>(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 ②2、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）</p>		
<p>研究責任者：植田滋 10%</p>	<p>岩間崇之 10%</p>	<p>学生 B</p>
<p>(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 ③2、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（JAEA（連携機関））</p>		
<p>JAEA 事業責任者：永江勇二 10%</p>		
<p>研究責任者：佐藤拓未 10%</p>	<p>下村健太 10%</p>	<p>須藤彩子 5%</p>
<p>博士研究員 A</p>	<p>ウラン試験、分析評価</p>	
<p>水蒸気雰囲気での中型試験、シミュレーション</p>	<p>水蒸気雰囲気での大型試験、シミュレーション</p>	

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
 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
 （東北大、東工大、JAEA）

東北大学

小林能直 10%

伊藤あゆみ 20%

JAEA

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
 ①3号機下部プレナム条件を模した、酸化燃料デブリ化学状態の調査（東工大）

研究責任者：小林能直 10%

伊藤あゆみ 5%

外注(CVR)

実験条件検討
 試験立ち合い

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燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計（福井大学・宇釜）

研究責任者：宇釜正美 30%

外注（シンフォニア）

溶融模擬試験

(4) Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大・JAEA（連携機関））

福井大学

研究責任者：宇釜正美 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%

JAEA

永江勇二 10%

佐藤拓未 10%

下村健太 10%

須藤彩子 5%

2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

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)

浮遊型レーザー加熱炉で試料を加熱溶解させることでエアロゾルを発生させ、捕集する。

捕集したエアロゾルは電子顕微鏡等により分析する。UO₂を試料として用いたホット試験も実施し、Uを含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確立する。

(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）

令和3年度に改造した装置を用いて試料を3000℃以上の温度に加熱し、模擬粒子試料の作製を行い、性状を観察する。令和3年度まとめたUO₂粒子の分析結果等をもとに（U、Zr、Fe）O₂模擬デブリ合成を試み、物性を測定する。

(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)及び(2)の本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・熔融・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)

令和3年度に検討した試験条件に基づき、構築した二段式電気抵抗炉を用いて高温（～最高温度2100℃）で高濃度ジルコニウム溶解物の形成が予想されるシナリオに基づいて溶解させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させる試験を実施する。試料の金属組織観察・金属間化合物及び酸化物の偏析状態・反応相同定から生成物の材料学的性質を評価する。

(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、熔融ステンレスとB₄C、ジルカロイの接触試験を行いB、C及びZrのステンレス融体への移行挙動に関する基礎データを収集する。

(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：JAEA）

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データに基づいて、大型試験体系で解析可能な簡素化モデル（反応速度暫定式）を提示する。圧力容器下部構造や使用されている材質を参照した大型試験体を製作した上で、ステンレス鋼やジルコニウムの金属物質、水蒸気により酸化したジルコニウム等の酸化物と、圧力容器からの溶解物流出挙動に関わる大型試験データを取得し、酸化物が圧力容器破損に与える影響を評価する。ウラン化合物による、炉心部から先行して熔融・移行したステンレス鋼等の金属物質の再熔融過程での、これら金属物質との反応挙動試験データを取得し、金属デブリの形成挙動を評価する。

(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：JAEA)

2.3.2項(1)(2)(3)の結果をもとにして、金属デブリ形成メカニズム及び下部プレナム破損メカニズムを評価する。

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、酸化燃料デブリ化学状態の調査 (再委託先：東京工業大学)

令和3年度に構築したコールドクルーシブル実験装置と策定した組成条件を用いて二酸化ウラン・ジルコニウムと金属（ジルコニウム、ステンレス鋼）が半熔融状態で混合した状態の模擬デブリを作製する試験を実施する。試験後試料の金属組織観察・組成分析・相同定等から、生成物における金属間化合物及び酸化物の偏析状態を評価する。

(2) 燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計（福井大学）

大阪大学で用いられているガス浮遊炉をもとに、5 g程度のUO₂試料の熔融・水冷が可能な大型化に向けた概念設計を行う。検討にあたり、燃料デブリ製造に用いる熔融法を比較整理し、ガス浮遊炉を設計対象とする理由をとりまとめる。

2.3.4 Forward AnalysisとBackward Analysisの総合評価（福井大学、連携先：JAEA）

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、JAEA、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. 実施内容及び成果

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

(令和3年度～令和4年度)

(1) 令和3年度までの概要

令和3年度は、エアロゾル生成と捕集のための技術を確認することを目標とし、ウラン含有エアロゾルの関連物質及び比較的蒸気圧が高くエアロゾルが容易に生じるとされる物質である 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解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及び 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。 Sb については直径 $1 \mu m$ 以下の球状の粒子が確認できた。 Bi については直径 $100 \mu m$ 程度の微小な粒子が確認できた。 Fe_2O_3 と ZrO_2 の粒子は確認できず、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。最も蒸気圧が低い ZrO_2 について、堆積物が ZrO_2 由来であるかを確認するために EDX による元素分析を実施した。その結果、堆積物には Zr が含まれており、堆積物は ZrO_2 由来であることが示された。これにより、浮遊型レーザー加熱炉を用いたエアロゾル生成と捕集が可能であることを確認した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

令和4年度も引き続き浮遊型レーザー加熱炉で試料を加熱溶解させることでエアロゾルを発生させ、捕集した。捕集したエアロゾルは電子顕微鏡等により分析した。 UO_2 を試料として用いたホット試験も実施し、U を含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確認した。図 3.1.1-1 に、用いた浮遊型レーザー加熱炉の概要を示す。試料はノズルから噴出させた Ar ガスによって浮遊させ、上下からレーザーを照射することで加熱溶解させた。溶解した試料から発生するエアロゾルはポンプで吸引し、フィルターを用いて捕集した。以下にその詳細を示す。

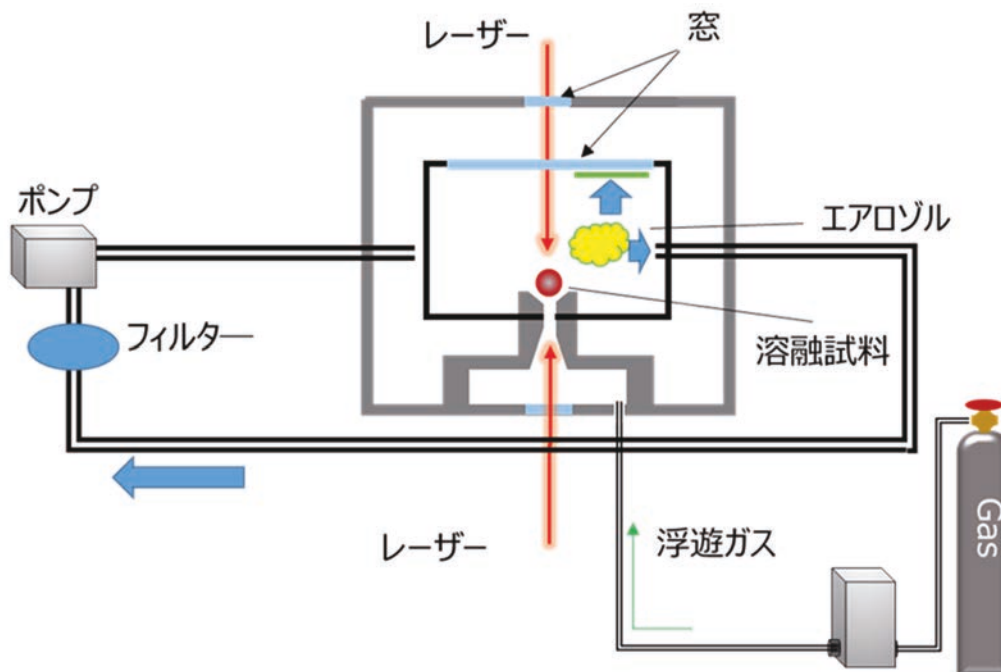


図 3.1.1-1 浮遊型レーザー加熱炉の概要

①FeO-UO₂-ZrO₂系

ウラン含有粒子にはFe、Zr、U等が含まれていることが知られている。それらの酸化物であるFeO-UO₂-ZrO₂の3元系では、(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4}が共晶組成となる[1]。

そこで、(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4}を用いた試験を実施した。

出発物質はFe₂O₃粉末（純度99.9%、高純度化学研究所）とZrO₂粉末（純度99.99%、フルウチ化学）とUO₂粉末であり、これらを(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4}の組成となるように秤量し混合してから放電プラズマ焼結法によって焼結して焼結体を作製した。焼結は温度1000℃、圧力100MPa、Arフロー雰囲気下で行った。図3.1.1-2に焼結体の外観写真を示す。また、図3.1.1-3にSEMによる表面観察及びEDXによる元素マッピングの結果を示す。浮遊型レーザー加熱炉に用いる試料サイズは1mm程度であることから、浮遊型レーザー加熱試験に用いるのに十分均質な焼結体を作製できたと言える。



図 3. 1. 1-2 (FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4} 焼結体の外観

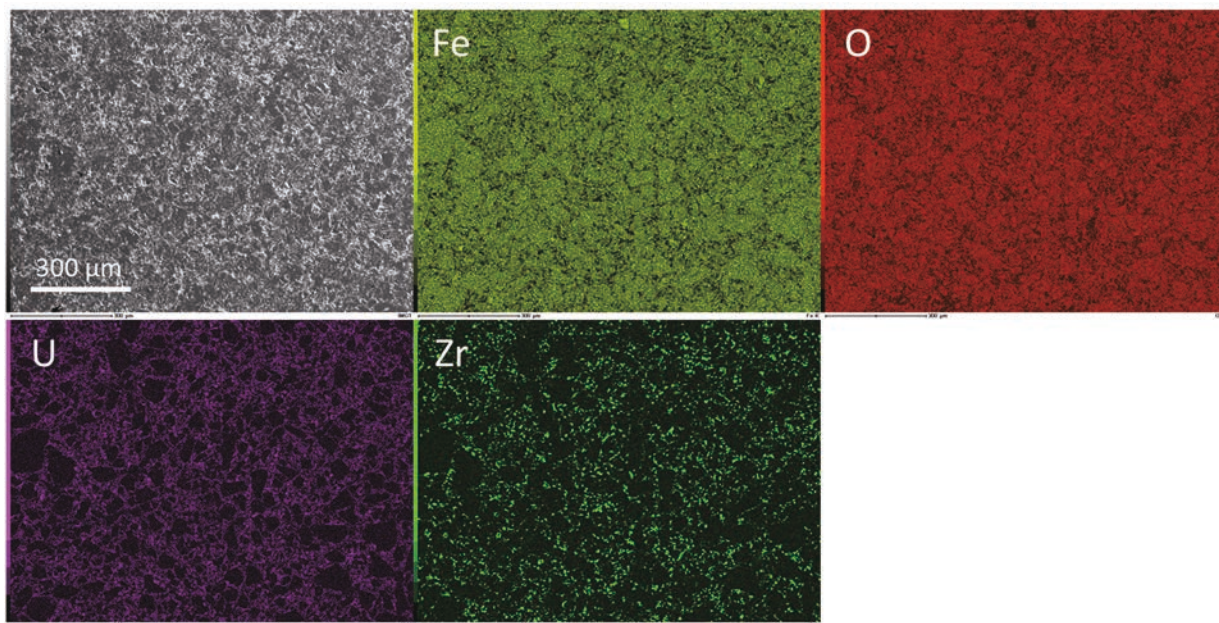


図 3. 1. 1-3 (FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4} 焼結体の SEM/EDS 分析結果

図 3. 1. 1-4(a) に、浮遊型レーザー加熱炉によって浮遊溶解中の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料の様子を示す。浮遊溶解させたのは 10 秒間程度の時間であったが、試料から多量のアεροゾルが発生し試料が小さくなっていく様子が観察できた。図 3. 1. 1-4(b) に、浮遊溶解試験後の試料外観を示す。試料の色に変化はなかったが、溶解したことで表面に光沢が見られるようになっている。図 3. 1. 1-4(c) に、フィルターによって捕集されたアεροゾルの外観を示す。フィルターは円形の白色であり、茶色のアεροゾルが捕集されていることがわかる。

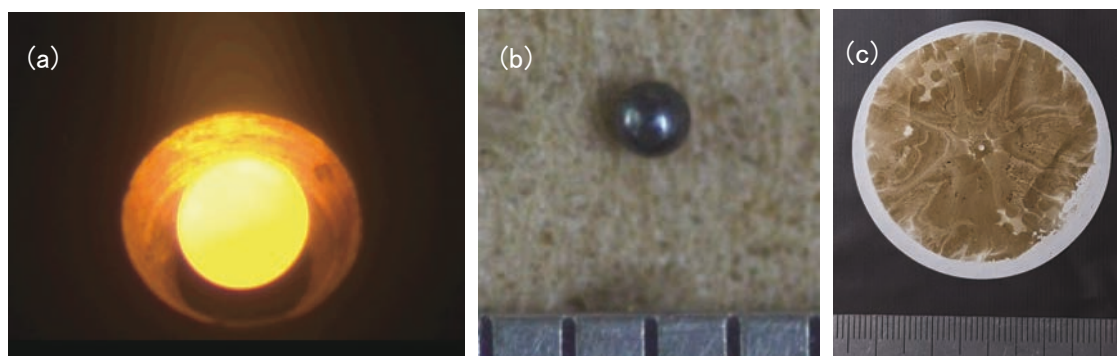


図 3. 1. 1-4 (a) 浮遊型レーザー加熱炉によって浮遊溶解中の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料、(b) 浮遊溶解後の試料、(c) フィルターによって捕集されたアεροゾル

図 3. 1. 1-5 に、フィルターで捕集した $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料から発生したアεροゾルの SEM/EDS 分析結果を示す。Fe、U、Zr は 100 μm オーダーでは均一に分布していた。EDX による定量分析によると Fe:U:Zr=90:3:7 であり、アεροゾルの主成分は Fe で U、Zr がわずかに存在していることがわかった。1 号機原子炉格納容器 (PCV) 底部堆積物は鉄さび上にウラン含有粒子 $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$ が混在していることが確認されており、今回の試験で得られたアεροゾルの組成は上記堆積物と類似したものとなっている。

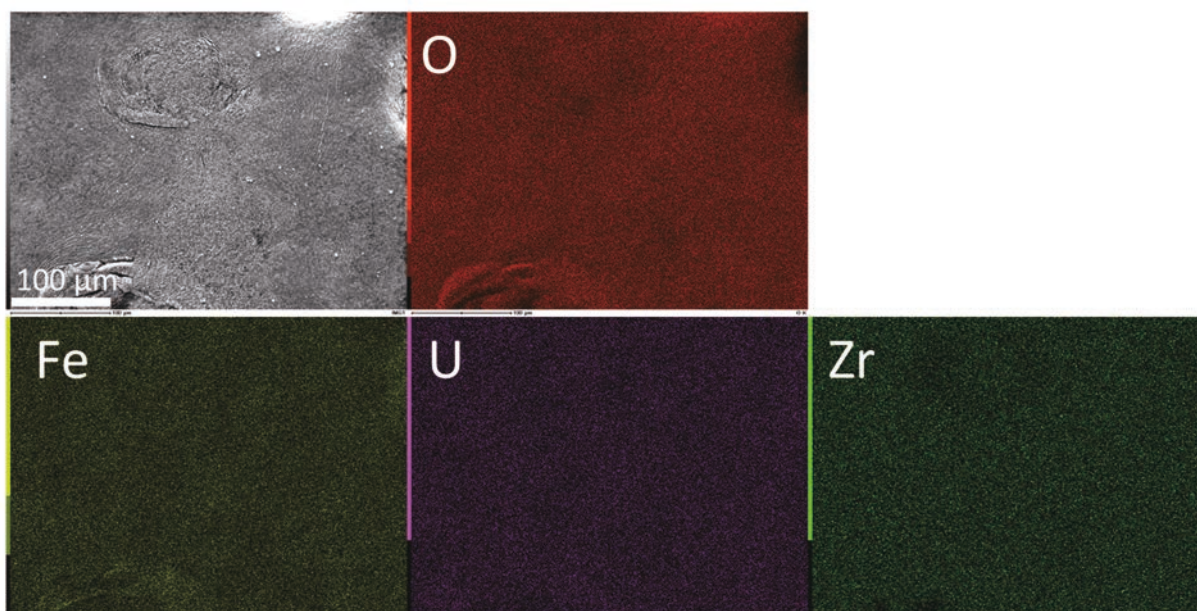


図 3. 1. 1-5 フィルターによって捕集した $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料から発生したアεροゾルの SEM/EDS 分析結果

図 3. 1. 1-6 に、フィルターで捕集した $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料から発生したアεροゾルの高倍率 SEM 観察結果を示す。SEM のスケールバーから判断すると、図中に矢印で示した最も大き

い粒子の直径が約 200 nm である。図中の大半の粒子の直径は矢印で示した粒子の半分にも満たないことから、捕集された多くのエアロゾル粒子のサイズは 100 nm 以下であった。この結果より、浮遊型レーザー加熱炉によって生じたエアロゾルは 100 nm 以下の微細な粒子であったと考えられる。

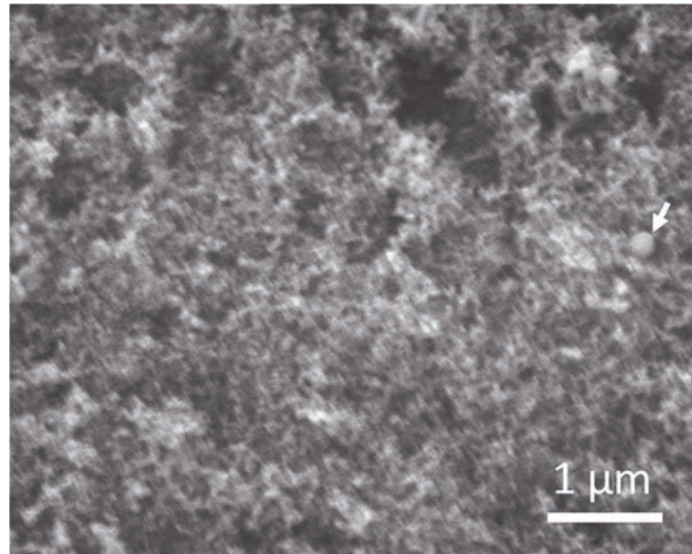


図 3. 1. 1-6 フィルターによって捕集した $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料から発生したエアロゾルの SEM 観察結果

浮遊熔融後の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料は 1000 K/s 程度の冷却速度で冷却凝固したため、高温で発生した熔融状態のエアロゾルが急冷したときの組織に関する知見が得られると考えられる。図 3. 1. 1-7 に、浮遊熔融後の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料断面の SEM/EDS 分析結果を示す。Fe リッチなマトリックス中に、U と Zr を含む粒子が分布していることがわかる。U と Zr を含む粒子中では、U と Zr が共存している領域とほとんど Zr のみからなる領域に分離している。1 号機 PCV 底部堆積物では U リッチな立方晶 $(\text{U, Zr})\text{O}_2$ と Zr リッチな正方晶 $(\text{Zr, U})\text{O}_2$ が確認されており、今回の試験で得られた結果は 1 号機 PCV 底部堆積物の組織と類似していると言える。

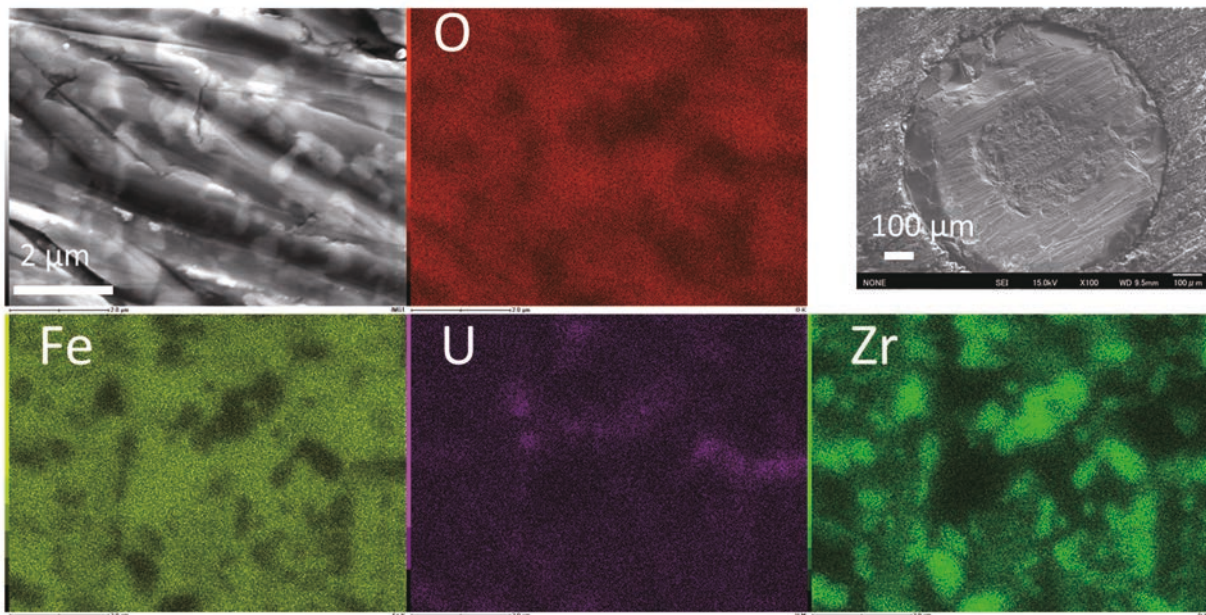


図 3. 1. 1-7 浮遊熔融後の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料断面の SEM/EDS 分析結果

②UO₂-Al₂O₃系

(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4} 試料から生じるエアロゾル中の組成比は EDX による定量分析によると Fe:U:Zr=90:3:7 であり、U は 3 %程度しか含まれていない。浮遊型レーザー加熱試験によって U を含むエアロゾルを発生させることが可能であることを確かめるために、よりウランリッチなエアロゾルが発生すると予想される (Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} 試料でも試験を実施した。(Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} は UO₂-Al₂O₃ 系の共晶組成であり、(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4} よりも U の組成は大きい。また、Al₂O₃ は蒸気圧が低いため、(Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} からは U リッチなエアロゾルが発生することが予想される。

出発物質は Al₂O₃ 粉末 (純度 99.99 %、高純度化学研究所) と UO₂ 粉末であり、これらを (Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} の組成となるように秤量し混合してから放電プラズマ焼結法によって焼結して焼結体を作製した。焼結は温度 1400 °C、圧力 100 MPa、Ar フロー雰囲気下で行った。

図 3.1.1-8(a) に、浮遊型レーザー加熱炉によって浮遊熔融中の (Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} 試料の様子を示す。図 3.1.1-8(b) が浮遊熔融後の試料外観であり、熔融したために光沢のある表面となっていることがわかる。図 3.1.1-8(c) はフィルターによって捕集されたエアロゾルであり、図 3.1.1-4(c) に示した (FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4} 試料から生じたエアロゾルより薄い色となっている。

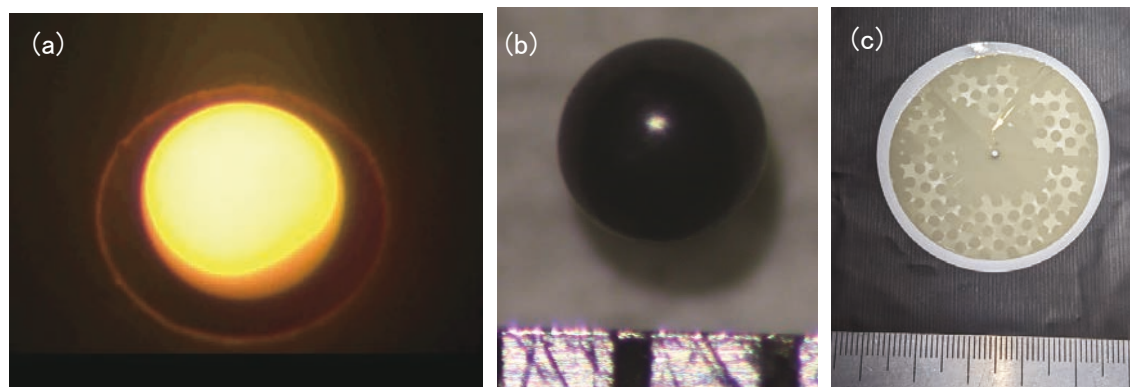


図 3.1.1-8 (a) 浮遊型レーザー加熱炉によって浮遊熔融中の (Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} 試料、
(b) 浮遊熔融後の試料、(c) フィルターによって捕集されたエアロゾル

図 3.1.1-9 に、フィルターによって捕集した (Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} 試料から発生したエアロゾルの SEM/EDS 分析結果を示す。SEM 画像中の明るい領域がエアロゾルに相当し、EDX による U の分布と一致していることがわかる。EDX の定量分析では U:Al=92:8 であり、エアロゾルは U リッチであった。以上により、浮遊型レーザー加熱試験によって U を含むエアロゾルを発生させることが可能であることが確かめられた。

図 3.1.1-10 に、フィルターによって捕集した (Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16} 試料から発生したエアロゾルの高倍率の SEM 観察結果を示す。(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4} 試料から生じたエアロゾルと同様に粒子の多くは 100 nm 以下であり、エアロゾルは微小な粒子からなることがわかった。

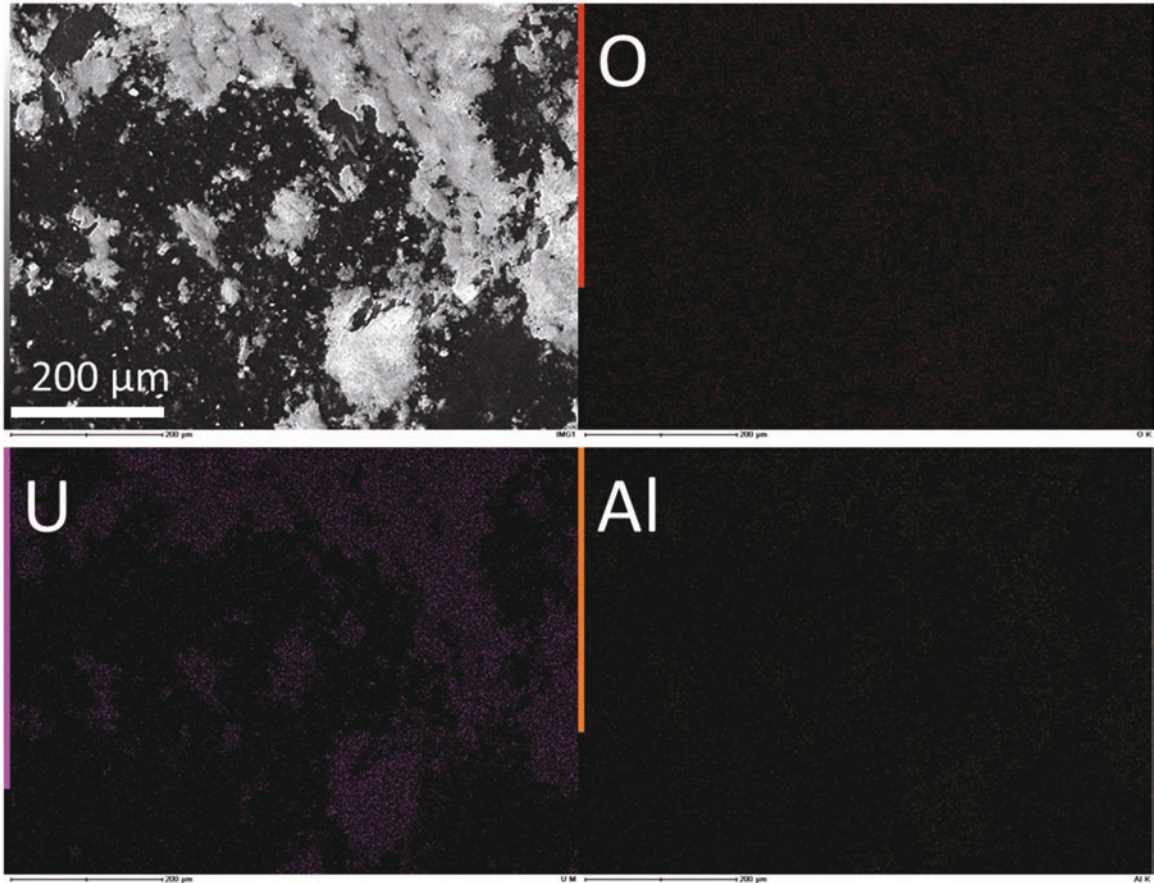


図 3.1.1-9 フィルターによって捕集した $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0.84}(\text{UO}_2)_{0.16}$ 試料から発生したエアロゾルの SEM/EDS 分析結果

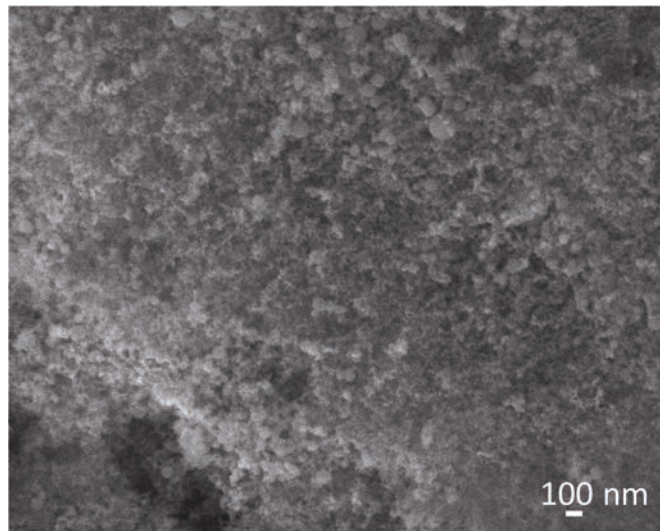


図 3.1.1-10 フィルターによって捕集した $(\text{Al}_2\text{O}_3)_{0.84}(\text{UO}_2)_{0.16}$ 試料から発生したエアロゾルの SEM 観察結果

図 3.1.1-11 に、浮遊溶融後の $(Al_2O_3)_{0.84}(UO_2)_{0.16}$ 試料断面の SEM/EDS 分析結果を示す。 UO_2 と Al_2O_3 の共晶組織と思われる微細な組織が確認できる。 図 3.1.1-7 に示した $(FeO)_{91.8}(UO_2)_{3.8}(ZrO_2)_{4.4}$ 試料断面の組織とは大きく異なっており、浮遊溶融後試料の断面観察により組織の分析が可能であることが確かめられた。

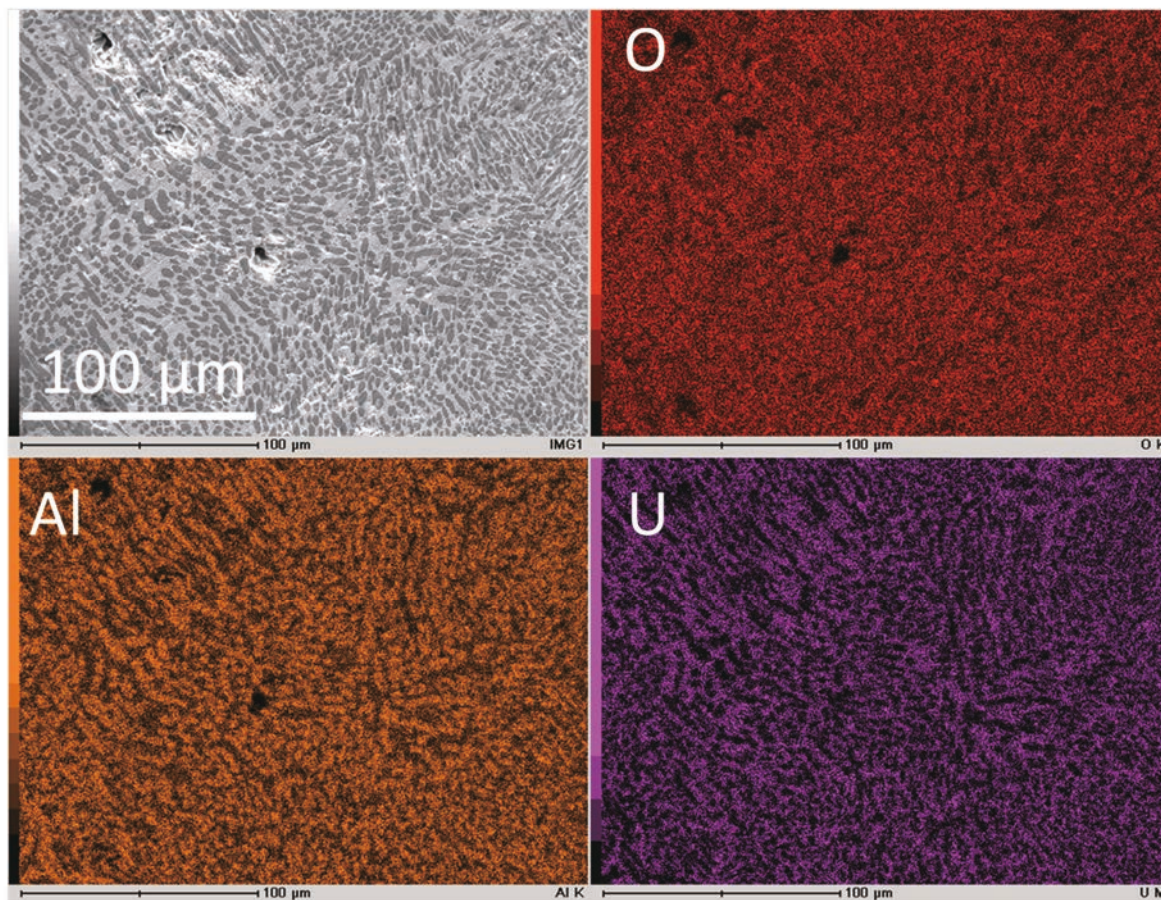


図 3.1.1-11 浮遊溶融後の $(Al_2O_3)_{0.84}(UO_2)_{0.16}$ 試料断面の SEM/EDS 分析結果

(3) 令和 4 年度まとめ

UO_2 、 Al_2O_3 、 FeO 、 ZrO_2 を試料として共晶組成の $(Al_2O_3)_{0.84}(UO_2)_{0.16}$ と $(FeO)_{91.8}(UO_2)_{3.8}(ZrO_2)_{4.4}$ の焼結体を作製し、それぞれを浮遊型レーザー加熱炉によって加熱溶融した。発生したエアロゾルはフィルターを用いて捕集した。捕集したエアロゾルを走査型電子顕微鏡とエネルギー分散型 X 線分析によって分析した。これらのホット試験により、U を含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確立した。

参考文献

[1] Almjashv, V.I., et al., Phase equilibria in the $FeO_{1+x}-UO_2-ZrO_2$ system in the FeO_{1+x} -enriched domain, J. Nucl. Mat. Vol.15, 2010, pp.119-126.

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（令和 3 年度～令和 4 年度）

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及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（令和 4 年度）

令和 3 年度に改造した装置を用いて、試料を 3000 °C 以上の温度に加熱し、模擬粒子の作製を行い、性状を観察した。以下に模擬燃料を用いて粒子を作成する条件や観測された粒子の形状等について示す。

(1) 粒子合成試験

令和 3 年度に大電流直流電源（最大 20 V-260 A）を増強し 3000 °C 以上の高温に加熱できるようにした装置を用いて、模擬燃料として同じ蛍石型構造をもち、融点も UO_2 （融点 2800 °C 程度）と近く、Pu や希土類 FP も模擬できる 3 % イットリア安定化ジルコニア（YSZ：融点 2720 °C 程度）を用いて加熱溶融試験を行った。加熱用試料は直径 3 mm 高さ 12 mm 程度の圧粉体を 1400 °C、大気中で 100 時間焼結したペレットを用いた。試料ペレットの密度は 96 %TD 程度であった。

加熱溶融試験は図 3.1.2-1 に示すように加熱チューブの中に試料を詰めて行った。高温になる中央部以外は試料節約のために下はタングステン棒で支えるとともに上部は上から押さえるようにした。また、チューブの穴から噴出した微粒を捕集するため、穴の正面に捕集用のガラス（ホウケイ酸ガラス管を半割にした物）を設置した。

a. 黒鉛チューブを用いた加熱試験

まず、高温まで強度が保たれ、加工もしやすい黒鉛チューブでの加熱試験を行った。その結果、高温では炭素の蒸発が盛んとなることや抵抗が大きく加熱が十分できず、試料の溶融によって粒子が噴出しないことがわかった。図 3.1.2-2 及び図 3.1.2-3 に加熱後試験の試料断面観察結果を示す。図 3.1.2-2 では試料が一度溶けて固まったことがわかるが、表面には炭素が蒸着していることが観察された。また、チューブ中央からやや上側の断面である図 3.1.2-3 では試料は溶融していないことがわかった。

以上のことから黒鉛チューブではうまく粒子作製ができないことがわかった。

b. タングステンチューブを用いた加熱試験

タングステンチューブに上記黒鉛チューブと同様に YSZ 試料を詰めて加熱試験を行った。何回か加熱試験を行ったが穴から溶融試料がにじみ出るものの噴出しなかったため、チューブの両端をセラミックス充填剤で密封したところ、試料の噴出と微粒子の生成が確認できた。加熱試験の温度条件等を表 3.1.2-1 に示す。5th run の条件を基本として以降の溶融・噴出試験を実施した。図 3.1.2-4 に捕集ガラスに付着した試料の様子を示す。次節でこの観察結果をまとめる。

以上、微粒子を安定的に作製できる実験条件を把握した。

(2) 生成粒子の評価

捕集・採取した微粒子サンプルを電子顕微鏡にて性状を観察した。観察された YSZ 微粒子の様子を図 3.1.2-5 及び図 3.1.2-6 に示す。気中で凝集したような数マイクロメートルの扁平形状や、噴出時の液滴の形状を保ったまま気中で固まったようなものなどが観察できた。

YSZ 試料で微粒子作製の試験条件がわかったので、模擬燃料として $CeO_2+ZrO_2+SUS316L$ 粉末混合試料をタングステンチューブに充填して溶融・噴出試験も実施した。採取できたサンプルの SEM 写真を図 3.1.2-7～図 3.1.2-10 に示す。微粒子が塊になったような形状や液滴のような形状、比較的大きな球状など様々な形状の微粒子が 1 回の試験で得られた。そのうち、大きな球状粒子は表面に微細な構造が見られた (図 3.1.2-10)。SEM-EDS で元素分析を行ったところ、ベースは CeO_2 と ZrO_2 の固溶体に少し Cr や Fe が混合しており、白く見える点は Fe が核になっていることがわかった (図 3.1.2-11)。また、液滴状微粒子には表面に何か付着しているように見えるが、分析の結果 SUS の成分と Cu が観察され、これらの合金成分が表面を覆っていることがわかった (図 3.1.2-12)。

今回の試験結果から、溶融した模擬燃料が飛び散る際には数マイクロメートルから百数十マイクロメートルの大きさの微粒子が発生することがわかった。また、その中の成分分析結果から被覆管材や構造材などの成分も取り込んだ形での微粒子生成も起こることが示された。

今後、形成場所による成分の偏りや温度・雰囲気などの条件を 1F 内の状況に合わせて試験を行うことで、1F 内で実際に見つかる粒子の形状・組成等との関連を調べることで炉内状況の把握につながる知見が得られることが期待される。また、異なる条件下での試験も併せて行うことで微粒子生成経路の理解が深まると期待される。

表 3.1.2-1 加熱試験温度条件及び噴出の有無

加熱条件	温度履歴	試料の様子
1st run (両端開放)	2000K (予加熱) - 2800K (2 秒) - 3050K (5 秒) - 2800K (3 秒) - 放冷	噴出無し
2nd run (両端開放)	2900K (4 秒) - 3200K (2 秒) - 3300K (1 秒) - 2900K (2 秒) - 3400K (2 秒) - 2900K (2 秒) - 3500K (2 秒) - 放冷	噴出無し
3rd run (両端開放)	2900K (2 秒) - 3500K (2 秒) - 2900K (2 秒) - 3500K (3 秒) - 放冷	噴出無し チューブ溶断
4th run (両端開放)	2500K (3 秒) - 2600K (3 秒) - 2900K (2 秒) - 2500K (4 秒) - 3300K (2 秒) - 2500K (4 秒) - 3300K (2 秒) - 2500K (4 秒) - 3300K (2 秒) - 2500K (4 秒) - 3300K (2 秒) - 放冷	噴出無し
5th run (両端密封)	2000K (予加熱) - 2800K (2 秒) - 3050K (5 秒) - 2800K (3 秒) - 放冷	噴出した

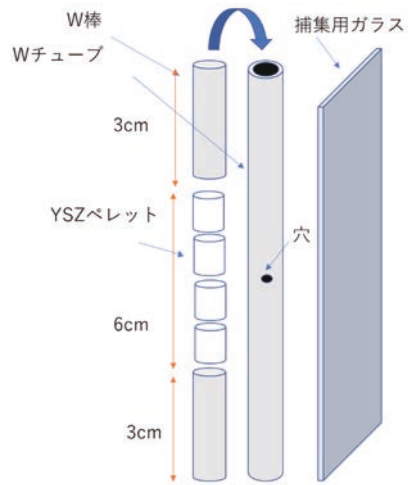


図 3. 1. 2-1 加熱溶融試験時のセットアップ

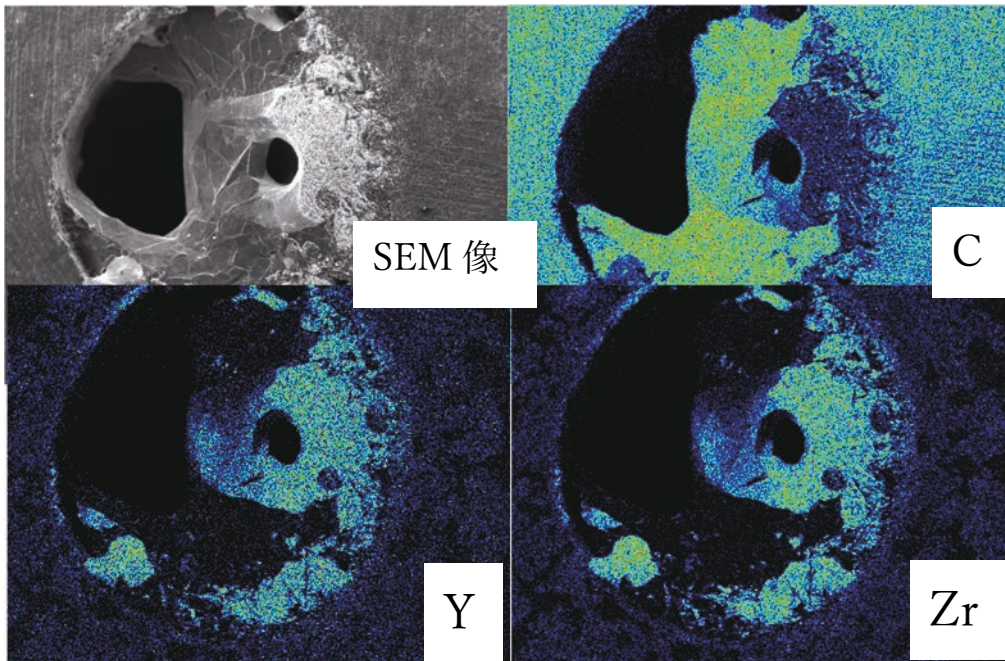


図 3. 1. 2-2 加熱後試料断面の SEM/EDS 観察結果（中央やや下部断面）

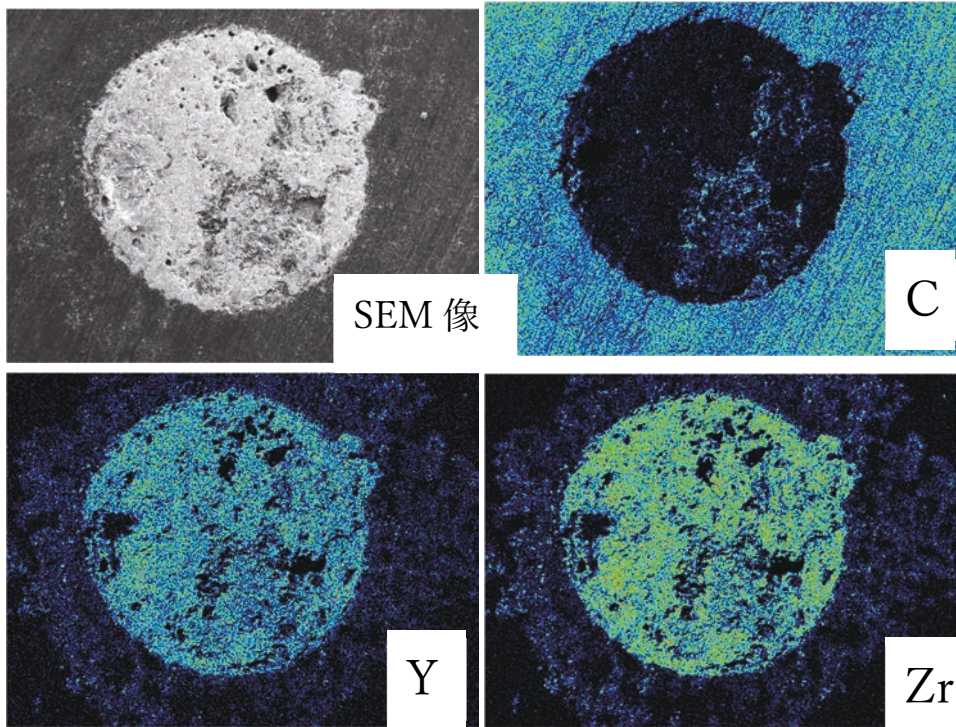


図 3. 1. 2-3 加熱後試料断面の SEM/EDS 観察結果 (やや上部断面)

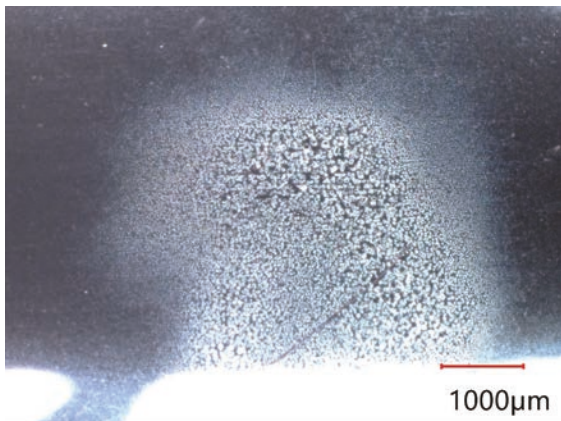


図 3. 1. 2-4 捕集した試料の様子

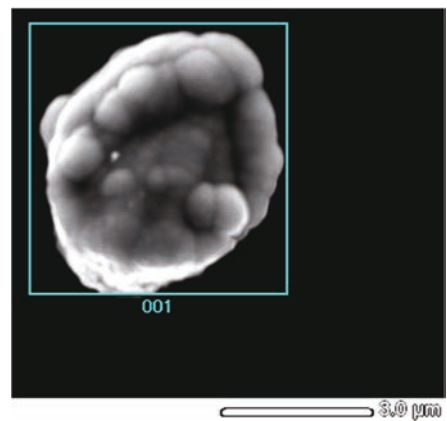


図 3. 1. 2-5 YSZ 微粒子①

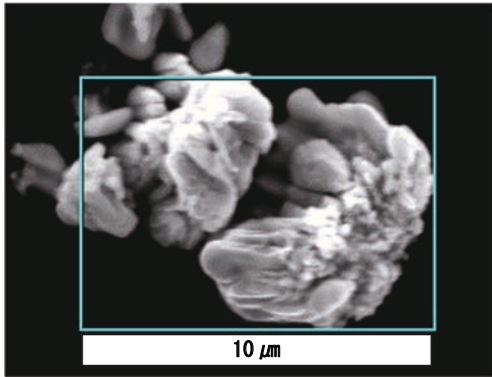


图 3.1.2-6 YSZ 微粒子②

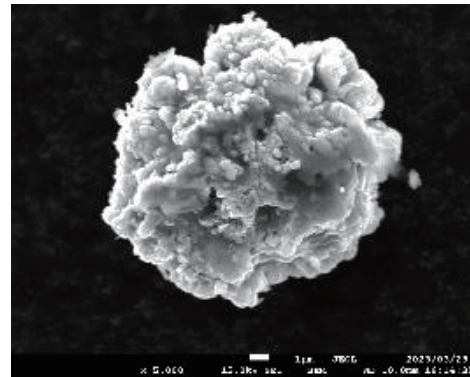


图 3.1.2-7 模擬燃料微粒子①

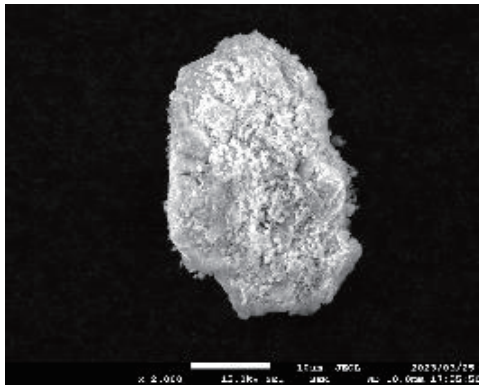


图 3.1.2-8 模擬燃料微粒子②



图 3.1.2-9 模擬燃料微粒子③

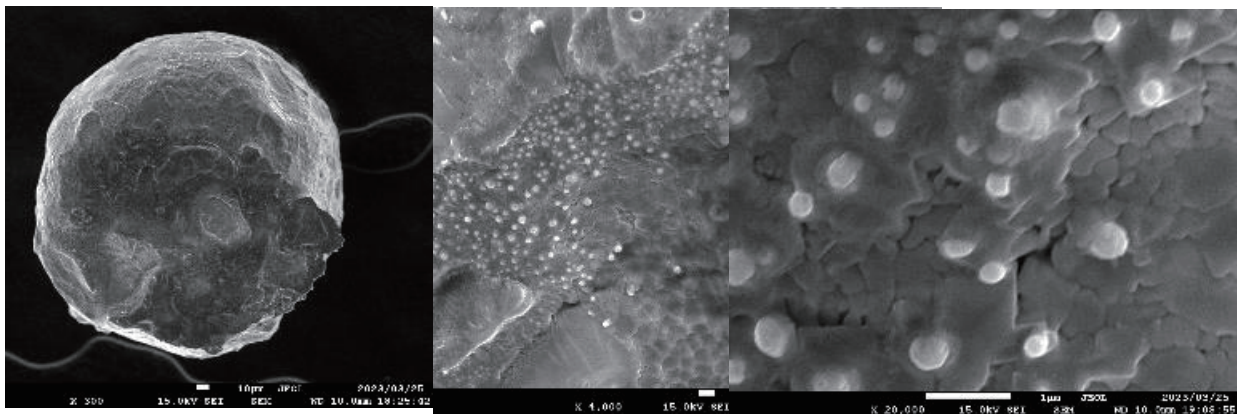


图 3.1.2-10 模擬燃料微粒子④ (左：全体像、中：中央部拡大、右：粒付近拡大)

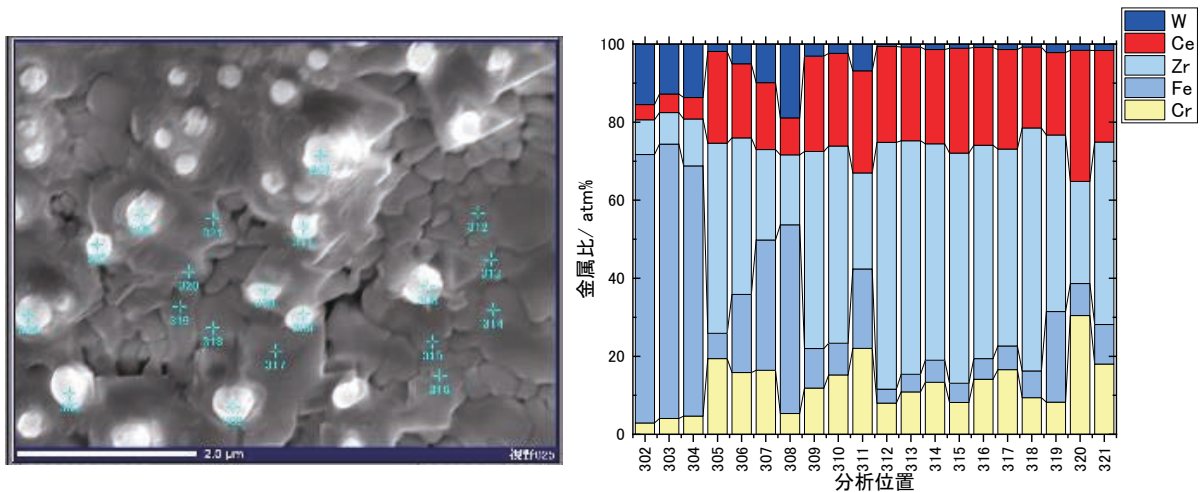


図 3.1.2-11 球形サンプル元素分析結果（右図 302～304 が白い粒部分）

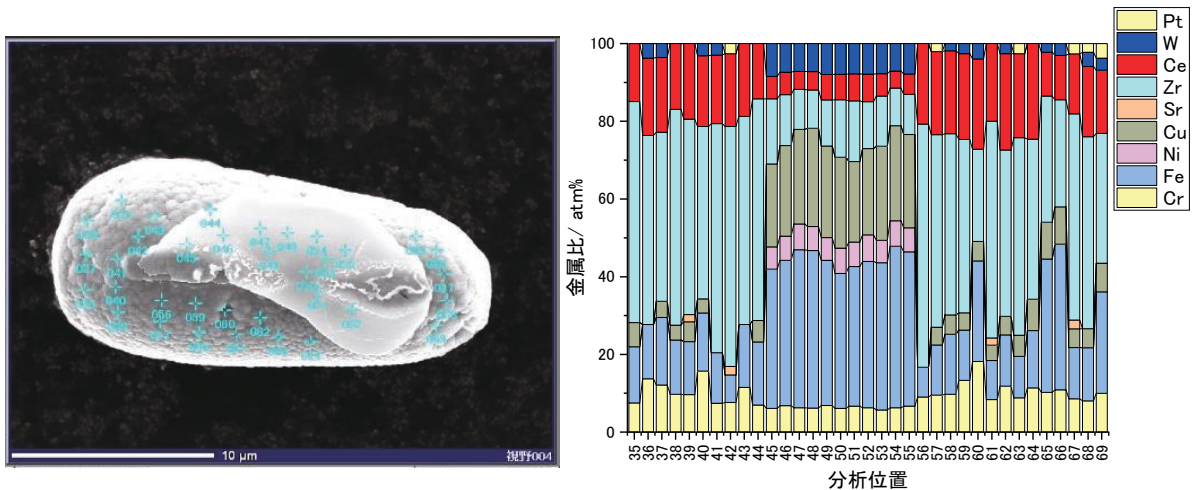


図 3.1.2-12 液滴サンプル元素分析結果（右図 45～55 が白い部分）

(3) まとめ

以上今回は安定的に微粒作製ができる条件を把握するとともに模擬燃料の微粒子作製・観察に成功し当初の目的を達成した。

3.1.2.3 非平衡状態を模擬した反応試験

(1) 令和3年度の概要

これまで報告されているサンプリングデータを UO_2 粉末、Zr 又は ZrO_2 及びその他の構造材を出発物質として合成し、その合成条件から実際のデブリ合成条件の推定を行う。そのために、サンプリングデータの金属元素比を固定し酸素含有量をパラメータとして熱力学計算を用いて作成された疑二元系状態図上の酸素含有量の大小に応じた凝固パス (Solidification Path) ^[1] を用いて、その室温における物質がサンプリングデータと対応する酸素濃度領域の凝固パスを検証する。

ただし、事故前の初期状態である UO_2 ペレットの入ったジルカロイ被覆管とその他の構造材を UO_2 の溶融する高温で試験するのは困難なため、パス 1：疑二元系状態図の 1500~1000 °C における固相を出発物質として、不活性雰囲気下、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。パス 2：上記の出発物質を UO_2 、ジルカロイ、SUS を用いたより高温での反応試験により生成を確認する。令和 4 年度は U1-No. 15、令和 5 年度は U1-No. 22 を検証することとした。

(2) 令和 4 年度の成果

U1-No. 15 と U1-No. 22 試料で同定された化合物の組成をもとに U1-No. 15 について凝固パス図が作成されている^[1]。昨年度の報告書でも述べたように疑二元状態図は TEM 等の分析結果に基づく金属元素の比を固定し、酸化物が UO_2 のみの場合の酸素量から全ての構成元素が酸化物となった場合の酸素量までを MF0 として横軸のパラメータとして計算されている。今回検証した MF0=0.6 のケースは全ての構成元素が酸化物となった場合の酸素量に相当するため、実際の燃料デブリ生成条件としては、 UO_2 以外の全ての構成元素が酸化し、また酸化物になるのに十分な酸素が存在していた条件となる。PATH 1 の検証試験では、凝固パス図上の High temperature fluoride 相（以下、「HTF」と略す。）及び Oxidic liquid 相（以下、「OXL」と略す。）を検証する。これも JAEA により熱力学的に計算されたこの 2 つの相の金属元素比に基づいて計算された出発物質、 UO_2 、 ZrO_2 及び FeO の重量比を表 3.1.2-2 に示す。これらの出発粉末を秤量、混合した後、10 kN の圧力でプレスした。プレスした後、不活性雰囲気 (Ar)、1500 °C で 5 時間反応させた。

状態図からの予測では、HTF では Fluorite 型（以下、「F-」と略す。）の $(U, Zr, Fe)O_2$ 、Tetragonal 型（以下、「T-」と略す。） ZrO_2 、Monoclinic 型（以下、「M-」と略す。） ZrO_2 が、OXL 相では Fe_3O_4 、FeO と F- $(U, Fe)O_2$ 、T- ZrO_2 、M- ZrO_2 である。

反応前後の HTF 相ペレット及び OXL 相ペレットの写真を図 3.1.2-13 に示す。いずれもペレットの直径は 10 mm 弱である。OXL 相の反応生成物の X 線回折パターンを図 3.1.2-14 に示す。予想どおり F- UO_2 、T- ZrO_2 及び M- ZrO_2 のピークが見られるが、予想に反して鉄の酸化物のピークは見られず、わずかに金属鉄と思われるピークが観察されている。この試料の SEM/EPMA による分析結果を図 3.1.2-15 に示す。ウランの含有量の多い酸化物相（以下、「U リッチ酸化物相」と略す。）、Zr 含有量の多い酸化物相（Zr リッチ酸化物相）及び Fe 金属相が観察されている。分析結果に基づき得られた相をまとめると表 3.1.2-3 となる。なお酸素の含有量は正確ではないが、一定量の酸素が検出されており、便宜上酸化物とした。

表 3.1.2-2 MF0=0.60 凝固経路図での出発物質の組成と重量比

出発物質	組成(at%)	重量比(wt%)
HTF	U:Zr:Fe:O=10.97 : 20.13 : 3.36 : 65.55	UO_2 : ZrO_2 :FeO=52.12 : 43.64 : 4.24
OXL	U:Zr:Fe:O=11.24 : 10.99 : 16.56 : 61.21	UO_2 : ZrO_2 :FeO=54.39 : 24.27 : 21.33



(a) HTF 反応前 (b)HTF 反応後 (c)OXL 反応前 (d)OXL 反応後

図 3.1.2-13 HTF 及び OXL 試料の反応前後の試料外観

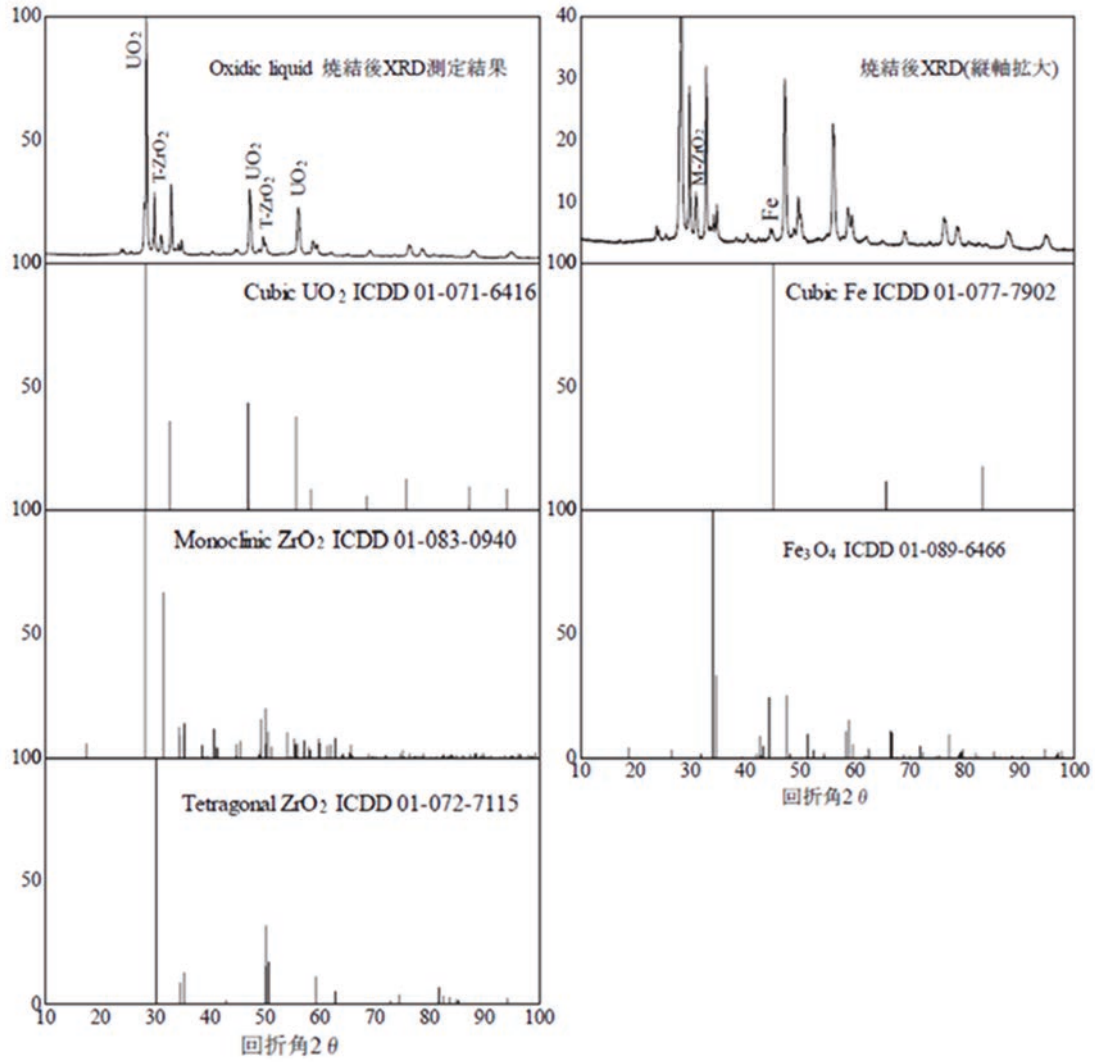


図 3. 1. 2-14 OXL 試料の反応後の X 線回折パターン

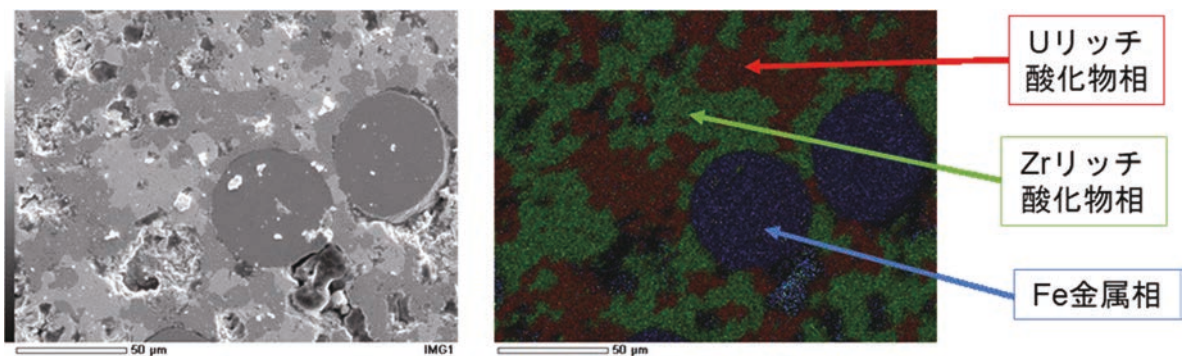


図 3. 1. 2-15 OXL 相の分析結果

表 3.1.2-3 OXL 相生成物

	組成
U リッチ酸化物相	$(U_{0.933}Zr_{0.064}Fe_{0.003})O_2$
Zr リッチ酸化物相	$(Zr_{0.677}U_{0.316}Fe_{0.007})O_2$
Fe 金属相	$Fe_{0.998}U_{0.001}Zr_{0.001}$

一方 HTF 相について得られた生成物の X 線回折パターン及び SEM/EPMA 分析より、U リッチ酸化物と Zr リッチ酸化物が明確に同定された。鉄も X 線回折パターンからそれらしきピークが見られたが、ピークの重なりが大きく、また SEM で明確な鉄相は観察されなかった。HTF 相の同定された相を SEM/EPMA 分析結果とともにまとめると表 3.1.2-4 となる。

表 3.1.2-4 HTF 相生成物

	組成
U リッチ酸化物相	$(U_{0.906}Zr_{0.093}Fe_{0.001})O_2$
Zr リッチ酸化物相	$(Zr_{0.700}U_{0.299}Fe_{0.001})O_2$

以上のように概ね熱力学計算により予測されたウラン及びジルコニウム系酸化物が観察され、提案されている凝固パスが観測されているサンプリングデータの凝固パスに相当することが予測される。OXL 相では鉄の酸化物が観察されず、鉄は金属で存在していた。鉄の化学状態は当然その雰囲気依存するが、今回出発物質として用いた FeO は高温から冷却すると 550 °C 以下の温度で、下記のような不均化反応を起こす。



したがって、これにより生成する鉄の酸化物の量は出発物質の量の 1/8 に減少するため、X 線回折等で検出しづらく、また F-UO₂ に固溶すると金属鉄に比較してさらに検出することは難しくなると考えられる。このことは逆に言うと、酸化物の中の鉄の酸化状態を調べることにより、その冷却挙動に関する情報が得られることになる。

一方、凝固パス図の HTF 相の組成は熱力学計算によると $(U_{0.318}Zr_{0.584}Fe_{0.097})O_2$ 、LTF 相の組成は $(U_{0.782}Zr_{0.013}Fe_{0.205})O_2$ である。熱力学予測では F-UO₂ 相中の鉄の含有量は温度が下がるとともに増加し、最終的には金属元素の 1/4 を占めることが予測されている。しかし今回の実験では、F-UO₂ 中の鉄の含有量は 1/1000 のオーダーである。このことより今回用いた反応温度、1500 °C では、固溶反応そのものが十分起こらなかったと考えられる。

そこで次に、鉄の固溶状態に関する知見を得るため、鉄の含有量の多い OXL の組成の出発物質を 1900 °C で 15 分加熱した。この場合は、擬二元系状態図によると UO₂ に Fe 及び Zr が固溶した HTF 相、UO₂ に主に鉄が固溶した LTF 及び T-ZrO₂ 及び M-ZrO₂ を生成するはずである。得られた生

成物の SEM/EPMA 分析結果を図 3.1.2-16 に示す。2 種類の U リッチな酸化物相、Zr リッチ酸化物相、Fe 金属相及び Fe 酸化物相が観察された。X 線回折パターンの結果と合わせて同定された U リッチ酸化物相及び Zr リッチ相をまとめると表 3.1.2-5 のようになる。

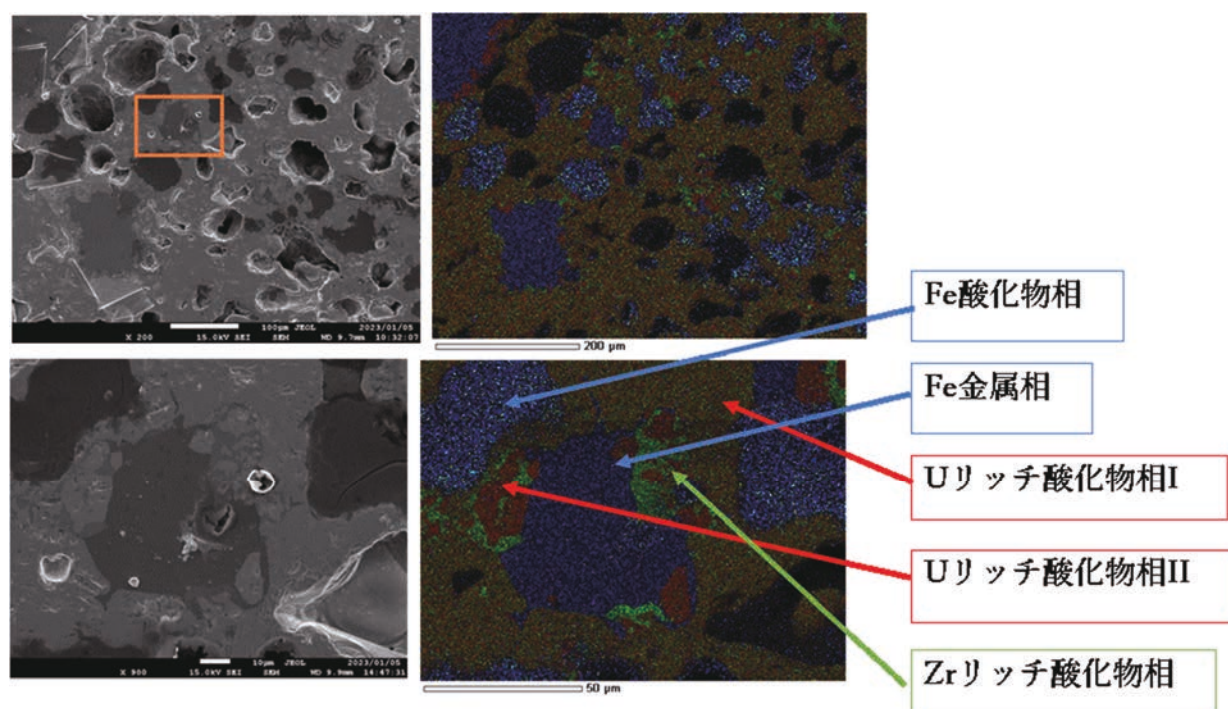


図 3.1.2-16 1900 °Cでの反応生成物の SEM/EPMA 分析

表 3.1.2-5 1900 °Cでの反応生成物

	組成
U リッチ酸化物相 I	$(U_{0.717}Zr_{0.272}Fe_{0.011})O_2$
U リッチ酸化物相 II	$(U_{0.882}Zr_{0.100}Fe_{0.019})O_2$
Zr リッチ酸化物相	$(Zr_{0.646}U_{0.333}Fe_{0.020})O_2$

いずれの酸化物相においても Fe の濃度が増大した。また、U リッチ酸化物に Zr の濃度の高い Fluorite 相と鉄の濃度の高い Fluorite 相が同定された。前者が HTF 相に相当し、後者が LTF 相に相当すると考えられる。また、F-UO₂ 相中の鉄の濃度は最高温度に依存すると思われる。

以上、U1-No. 15 の凝固パス上、1500～1900 °C 程度の温度領域からの凝固パスの検証を行った。その結果

- ・凝固経路図通り、高温域では (U, Zr, Fe)O₂ が生成することや低温域では固溶体の UO₂ 相と ZrO₂ 相に分離して析出することが示唆された。
- ・加熱条件を変化させても Fe は金属単独で存在することが観察された。
- ・サンプルに含まれる U リッチ酸化物相中の Zr や Fe 濃度を調べることによって温度履歴に関する情報が得られる可能性も示唆された。

次に PATH 2 の検証である。こちらは燃料の初期状態が UO_2 ペレットと Zry 被覆管（及びその酸化物）と SUS 系構造材の集合体からなることを想定して、 UO_2 ペレットと Zr 又は ZrO_2 と SUS を接触させた反応対を加熱し、界面での生成物を調べることにより、PATH 1 で採用した出発物質、U1-No15 では FeO 、鉄及び Zr の固溶した Fluorite 型 UO_2 (HT-Fluorite) の存在を確認する。この試験でも装置の関係上加熱雰囲気の不活性雰囲気に限られているが、PATH1 試験と異なり、「組成」という概念はなく、U1-No. 15 と U1-No. 22 の出発物質の差を、Zr や鉄に ZrO_2 や FeO 等を添加することと、加熱温度、保持時間及び冷却速度を変えた試験の結果より明らかにする。

今年度は、その 1 回目の試験として、図 3. 1. 2-17 に示すように $\phi 20$ mm の BN 保護るつぼに $\phi 10$ mm の BN るつぼを入れ、そこに UO_2 ペレットを敷き、その上に Zry-2 と SUS304 を入れた試料を 2000 °C で比較的短時間である 15 分保持する加熱試験を行った。昇温速度は 20 °C/min、降温速度は 4 °C/min であった。

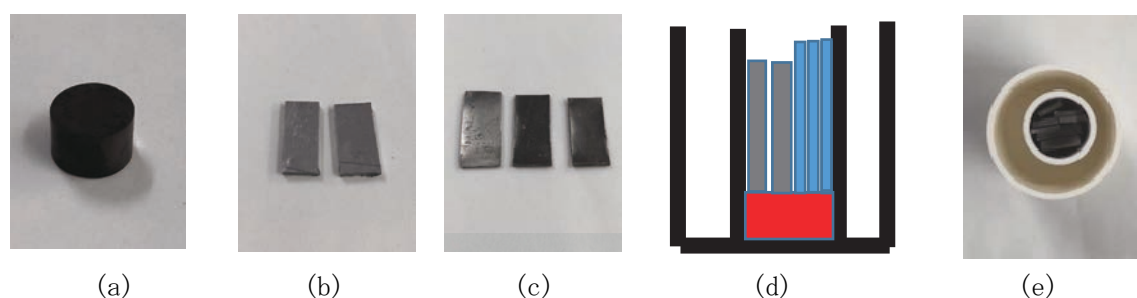


図 3. 1. 2-17 反応対試験試料

(a) UO_2 ペレット、(b) SUS304、(c) Zry-2、(d) 試料セット模式図、(e) るつぼ上部からの外観

加熱試験後の写真を図 3. 1. 2-18 に示す。今回 BN のるつぼを用いたため、るつぼの上部の部分は Zr と BN の反応により ZrN が生成し、るつぼが破損したようである。

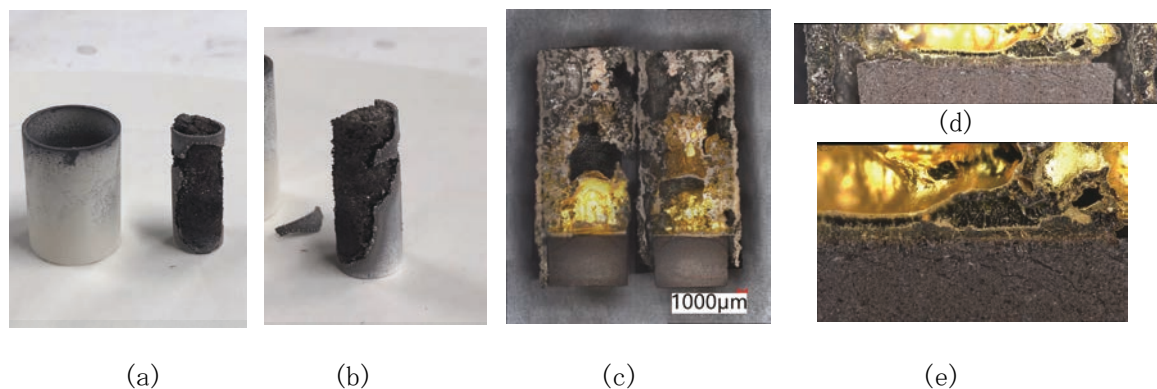


図 3. 1. 2-18 加熱試験後の試料

(a) 保護ルツボとルツボ、(b) ルツボと反応した試料、(c) 試料断面図、
(d) UO_2 ペレット界面付近拡大図 1、(e) UO_2 ペレット界面付近拡大図 2

Zr 及びステンレス鋼は大部分溶融したが、 UO_2 は溶融していないので、図 3. 1. 2-18(d) に示す UO_2 の初期界面と思われる部分の拡大写真を図 3. 1. 2-18(e) に示す。この部分をさらに拡大した図 3. 1. 2-19 に示す部分を中心に SEM/EPMA を用いた分析を行った。結果を図 3. 1. 2-19 及び表 3. 1. 2-6 に示す。表 3. 1. 2-6 より、Zr の含有量のかなり少ない $(U, Zr)O_2$ と B の固溶した ZrN 及び B の固溶したステンレス鋼が生成しているようである。

金属元素の分析値と比較し、酸素→窒素→B の順に分析精度が低下し、その絶対値の信頼性も低くなるが、今回、酸素の添加量が少なかったためステンレス鋼の金属、また BN るつぼを用い

ZrNが生成したためかZrO₂やZr濃度の非常に低いUO₂が得られた。次年度は、るつぼをZrO₂に変えけるとともに実際に1Fでは雰囲気酸化反応を考慮し、出発物質にZrO₂及びFe₂O₃等を加えて実験を行う予定である。

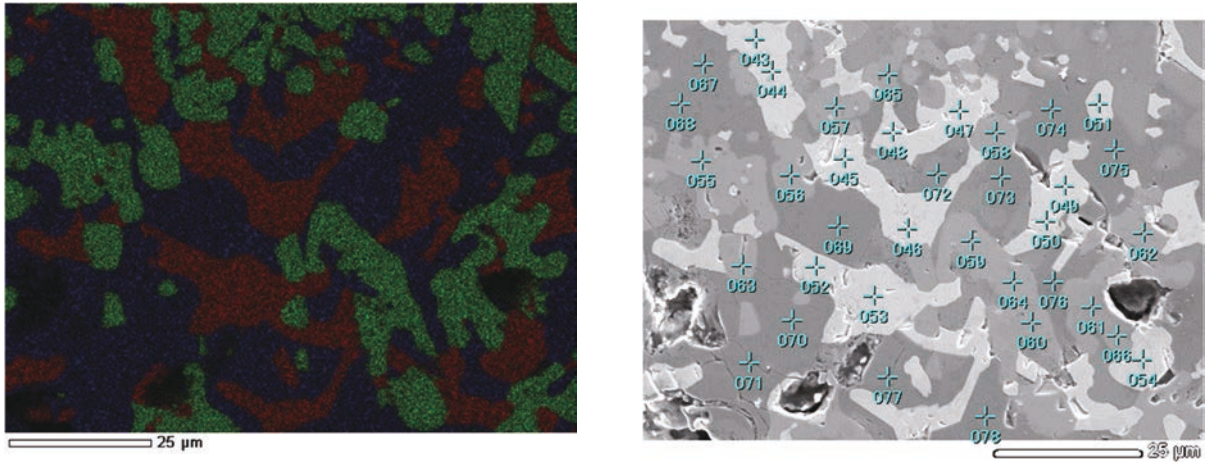


図 3.1.2-19 界面付近の反応層の EPMA 分析結果

表 3.1.2-6 界面付近の反応層の EPMA 分析結果

	U	Zr	Ni	Fe	Cr	O	N	B
U優勢相	60.9	1.1	0.1	0.7	0.1	37.1	0.0	0.0
Zr優勢相	1.4	58.0	0.2	0.8	0.1	2.8	10.2	26.4
Fe優勢相	0.1	0.1	2.1	60.2	19.8	0.4	0.5	16.9

参考文献

[1] 1F 事故進展基盤研究に関わる分科会 配布資料 令和4年3月2日。

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年度～令和4年度）

令和3年度は、項目3.1.1及び3.1.2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UO₂の確保を行った。

令和4年度は、項目3.1.1及び3.1.2の本年度の成果をもとに、酸化物デブリの形成過程のメカニズムについて検討した。

浮遊型レーザー加熱炉で浮遊熔融させる(FeO) - (UO₂) - (ZrO₂) 試料の組成の影響を評価するために、実際にこれまで見つかっている粒子の組成を参考に次年度の試料の組成を決定することとした。

また、令和4年5月30日に第1回研究推進委員会、令和4年10月24日に第2回研究推進委員会、令和5年3月6日に第3回研究推進委員会、令和5年3月30日に第4回の研究推進委員会を開催し、当該期間までの進捗を報告し、以降の計画を議論するとともに、それらをもとに酸化物デブリ形成メカニズムに関して議論した。

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（令和3年度～令和4年度）

(1) 令和3年度までの概要

令和3年度は、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、高温融体と低温固体金属を反応させるための二段式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及び予備試験として Fe、Zr 溶融落下試験を実施した。反応後試料分析から、Fe-ステンレス鋼では伝熱のみ、Zr-ステンレス鋼では伝熱・反応の双方が起こることを確認した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

①はじめに

令和4年度は、令和3年度に構築した実験装置を用いて、高濃度 Zr 溶融物の形成が予想されるシナリオに基づいて溶融させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させる試験を実施した。当該事象は2号機の炉心損傷初期における鋼材金属溶融を想定している。山下ら^[1]は2018年までに収集された2号機の格納容器内部調査結果を総合的に評価し、ペDESTALのステンレス製ケーブルトレイにはほとんど損傷がないこと、堆積物がペDESTAL床全体に広がっていること、などから原子炉圧力容器（RPV）から溶融落下した燃料デブリはステンレス鋼融点よりも低く一定程度の流動性をもつ（粘性が低く金属濃度が高い）状態であったことが示唆されることを示した。また、東電による事故時のRPV及びPCV圧力解析では炉心損傷初期において炉内の水素分圧が高い時間帯（3/14 19:00～22:00頃まで）があったと評価されており^[2]、水蒸気枯渇雰囲気での鋼材金属溶融反応が起きていた可能性が高い。これらの点をふまえると、鋼材由来の金属溶融物が炉心下部構造物へ移行する際の金属デブリ形成過程を理解することが重要である。本研究では、当該時間帯に起こりえる事象、特にステンレス融点近傍の Zr 合金構造物を巻き込んだ金属溶融物による炉心下部構造物（ステンレス鋼）への損傷挙動を理解するため、低酸素ポテンシャルにおける試験を実施した。今年度は特に Zr 濃度が高い溶融物を模擬する合金（Fe-Zr）を作製し、落下先の状況としてステンレス鋼、水蒸気酸化させたステンレス鋼を実施した。また、炉心損傷の極めて早い段階で制御棒が溶融・移行することから、Zr-Fe 溶融物は既に溶融落下した固化状態の制御棒由来デブリの上に移行する可能性もあるため、応用的な状況として制御棒由来デブリの模擬物質を作製し、その上に溶融落下させる試験も実施した。

②Zr 高濃度融体とステンレス鋼の非平衡反応実験

1) 実験装置

令和3年度の実験によりカーボン発熱体が消耗し、高温では雰囲気中に微細カーボン粒子が飛散して溶融 Zr を炭化させる問題が頻発した。このため、今年度は消耗したカーボン部品を交換するとともに、雰囲気から試料を保護するために反応部をアルミナチューブで隔離する改良を行った。この際、不活性雰囲気における反応をよく観察するため真空加熱する方法をとった（図3.2.1-1）。反応チューブの上部から溶融用合金試料をタンタルワイヤーで吊るし、反応チューブの下部から熱電対を装着した試料台を装荷する。予め温度制御装置の温度指示値、放射温度計指示値、試料台温度指示値の測定を実施し炉内温度分布を作製した。

2) 試料準備

(a) Fe-Zr 合金

予め電解鉄と Zr（イーマタルズ）を目的組成となるように秤量しアーク溶解炉にて Fe-87Zr（at%）及び Fe-50Zr（at%）を作製した。それぞれボタン状合金を 10 g ずつ作成し、溶融落下実験

用に 1.5 g ずつの金属片に切断した。いずれの合金も Fe-Zr 二元系状態図^[3]から融点は 1500 °C である。

(b) ステンレス鋼の前処理

低温で反応させるステンレス鋼（イーメタルズ、SUS316L $\phi 10 \times 100$ mm）を 10 mm の高さに切断し、反応面を SiC 研磨紙（#400）で磨いて試料タイプ 1（as-received sample）とした。また、試料タイプ 1 を予め Ar+水蒸気（バブリング温度 90 °C、炉内温度 1000 °C）で 60 分保持した後空冷し、表面に酸化膜を形成させたものを試料タイプ 2（oxidized sample）とした。

3) 実験方法

アルミナ反応チューブの上部に Fe-Zr 合金をタンタルワイヤーで吊るし、ステンレス鋼試料を置いた試料台を下部から装荷して両端を密閉した状態で、炉内を真空排気（真空度 1.5 kPa 程度）する。チャンバーの水冷を開始し、電源を投入し炉内温度を上昇させる。この際、溶融部温度と試料台温度が目的温度になるよう出力を制御する。今年度は、高濃度 Zr を含む合金組成（Fe-87Zr at%）の溶融合金を 890~1290 °C までの様々な温度のステンレス鋼に落下させる条件で試験を実施した。溶融部温度が Fe-Zr 合金の融点に達すると、合金が溶融しタンタルワイヤーの試料支持部を焼き切って落下する。このとき、Fe-Zr 合金とタンタルの共晶反応を利用しているために落下時の温度（1500 °C 近傍）に誤差が生じる。また、放射温度計によって溶融部の温度を確認しているため、落下時の温度には ± 50 °C 程度の誤差が含まれている。溶融物が落下すると放射温度計指示値が直ちに低下するが、放射温度計のスクープからも目視で確認することができる。溶融物がステンレス鋼と接触すると、試料台に装着した熱電対温度指示値が上昇する。この際の温度変化が一定値に安定化するのを確認した後、電気抵抗炉の電源をオフにして炉冷を開始する（1 K/s 程度）。炉内温度が室温に戻ったらアルミナ反応チューブ内を大気圧に戻して、試料を取出す。取出した試料を切断して樹脂埋め、研磨（SiC#80→#320→ダイヤモンド 9 μm →ダイヤモンド 3 μm →シリカ 0.08 μm ）を行ったのち、SEM/EDS（JEOL, JCM 7000）による断面の金属組織観察、一部の試料については、微小 XRD 測定（Bruker, D8 Discovery）を実施して結晶構造を分析した。SEM/EDS においては入射電圧 15 keV にて観察を実施し、半定量法（ZAF 法）による組成分析を実施した。一般に EDS 分析の評価誤差は約 1~5 % 程度と言われており、特に軽元素になると誤差は大きくなる傾向である。また、酸素や炭素は試料準備の過程で付着した汚れなどから容易に検出されてしまう。しかし、金属原子の組成比などを見る場合は、少数第一位程度で信頼できる。このような理由により、本研究においては金属間化合物については EDS 分析による組成比を参考に、酸化物又は酸素を固溶した化合物については適宜 XRD 回折を合わせて実施することによって相同定の確からしさを高めることとする。微小 XRD 測定においては、コリメータサイズ 0.3 mm（分析範囲面積は約 1 mm^2 ）、 θ -2 θ 法による二次元回折パターンのうち 0~33.3° で回折強度を積分処理したものを 3 フレームに分割して $2\theta = 14\sim 71^\circ$ まで求めた。この際の走査時間は 1 フレームあたり 540 秒とした。

4) 結果と考察

(a) Fe-87Zr 溶融物とステンレス鋼の反応

高 Zr 濃度溶融物（Fe-87Zr）については、3 種類のステンレス鋼温度に対して落下試験を実施した。溶融落下時の Fe-87Zr 合金は後述する金属組織観察結果からいずれも完全に溶融した状態で、ステンレス鋼と接触したと考えられる。落下したときのステンレス鋼の温度によって、接触面だけが反応し溶融物のほとんどが凝固しただけの場合と、反応界面が広がって溶融物がステン

レス鋼全体を覆う場合が見られた。図 3. 2. 1-2 に試験後試料の外観を示す。また、以下に各ケースについて詳細に述べる。

落下時のステンレス鋼が 890 °C であった場合、ステンレス鋼試料位置の温度が 15 °C 上昇しており、3 パターンの中で最も温度変化が大きかった。反応界面には非常に薄い反応相（～10 μm）が形成された以外はほとんどステンレス鋼の上で凝固したことがわかる。反応相より上側の領域にはステンレス鋼成分は全く検出されておらず、FeZr₂ と β-Zr (0) の二相領域と見られる組織を呈しており、両者の面積比率から計算した平均組成は凡そ元の組成（Fe-87Zr）と一致した。界面に形成された反応相は EDS 点分析結果の平均値から、(Fe+Cr+Ni)/Zr (at%比) が 1.7±0.4 であり、(Fe, Cr, Ni)₂Zr laves 相であったと考えられる。また、反応相に隣接して見られる組織の平均組成比は (Fe+Cr+Ni)/Zr (at%比) が 0.5±0.1 であり、反応相は Laves 相+Zr 高濃度液相が凝固したものであると考えられる。このことから界面における反応は共晶溶融によって形成された液相からの Laves 相晶出と想定されて、状態図からは 998 °C 以上であったと言える。溶融物から熱を奪って界面温度が上昇し反応に至ったが、形成される Laves 相によって物質移動が抑制され、溶融物の大部分は輻射冷却によって凝固したと考えられる。

落下時のステンレス鋼温度が 1230 °C の場合は全く異なる様相を呈しており、ステンレス鋼の周囲を反応相が完全に覆っている状態となった。溶融物とステンレス鋼が接触したときに温度変化がほとんど見られず、溶融物のエネルギーはほとんど界面反応に使われたことがわかる。EDS 分析による金属元素組成比と微小 XRD 分析結果から反応相の構造は α-Fe-Cr-Ni+(Fe, Cr, Ni)₂₃Zr₆ + (Fe, Cr, Ni)₂Zr + (Fe, Cr, Ni)Zr₂ + β-Zr であると考えられる。このうち、(Fe, Cr, Ni)Zr₂ + β-Zr は液相が冷却過程で相分離したものと考えられる。

落下時のステンレス鋼温度が 1100 °C の場合は、先述した 2 例の中間的な状態となっている。すなわち、溶融物がステンレス鋼に接触する過程で反応相を形成しつつステンレス鋼の半分程度を覆っている状態であった。これは反応しながら広がる速度よりも輻射冷却による凝固が速かったことが要因と考えられる。EDS 分析による金属元素組成比は、1230 °C ステンレス鋼との接触後試料に近く反応相の構造は同様であった。

この界面反応は、次のような化学反応式によって表すことができ、溶融物に対する Fe 反応量 ($\delta \leq 0.1$) を変数とすることにより熱力学データベースによって計算が可能である（この式は溶融物に Fe が溶けて液相と Laves 相が晶出することを示している）。

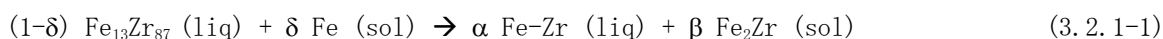


図 3. 2. 1-3 に OECD/NEA プロジェクトで開発された TAF-ID データベース (ver. 14) ^[4] を用いて計算した反応熱を示す。溶融物が低温のステンレス鋼に接触したとき、溶融物の熱損失による温度低下とステンレス鋼の熱利得による温度上昇のバランスにより界面反応温度が決まる。図から、界面温度が 1200 °C を超えると極少量の Fe 溶解に対して吸熱反応であるが Fe 溶解が進むにつれて発熱反応に転じ、反応に正のフィードバックがかかる。しかし、反応によって融点が高い Laves 相が形成されるとステンレス鋼バルクへの物質移動は抑制されるため、外側へと反応相が広がっていった結果、薄い反応相で全体が覆われたと考えられる。

(b) Fe-87Zr 溶融物と酸化ステンレス鋼の反応

ステンレス鋼に酸化膜を作製した試料に対して Fe-87Zr 溶融物を落下させた。落下時のステンレス鋼温度は 860 °C であった。落下させた合金はステンレス鋼に融着しておらず容易に分離して分析することができた。界面が酸化膜に保護されているため、未酸化ステンレス鋼の場合と異なり接触面の反応に伴う界面接着は起こらなかった。接触面はわずかに反応した様子であったが、EDS 分析ではステンレス鋼から Zr は検出されなかった。

(c) Fe-50Zr 溶融物とステンレス鋼の反応

溶融物落下時のステンレス鋼温度が高い場合に、Zr 濃度が異なるとどのような違いが生じるのかを予備的に観察するために、融点と同じだがやや Zr 濃度が低い Fe-50Zr 合金を用いて落下試験を実施した。落下時のステンレス鋼温度は 1290 °C であった。Fe-87Zr 合金のように反応物がステンレス表面を覆うのではなく、接触面に数百ミクロンの反応相を形成した状態であった。落下時の溶融物温度は Fe-87Zr とほとんど同じであったこと、ステンレス鋼温度は高かったことを考えると、両者の違いは伝熱挙動ではなく反応挙動の違いに起因するものということがわかる。Fe-Zr 二元系状態図を見ると Fe 高濃度側の共晶温度が Zr 高濃度側に比べて数百°C 高いことから、Fe 濃度が高い方が吸熱反応から発熱反応に転換する温度が高くなることが予想されるため、本試験結果と整合する。

③ Zr 高濃度融体と制御棒由来デブリ模擬物質の非平衡反応実験

1) 試料準備

ステンレス製丸パイプ（イーメタルズ、SUS304、φ5-6 mm）を 10 cm の長さに切断し、一端を溶接して密閉する。この中に中性子吸収材として使われている B₄C 粉末（和光製薬、純度 99.99 %）を詰めて、開いている方を万力で機械的に閉じる（模擬制御棒片）。このようにして作成した模擬制御棒片をアルミナるつぼ（ニッカトー、SSA-H）の底に入れたアルミナ断熱材に立てて試料とする。予め 100 ml/min の Ar フロー（G2、99.99 %）で温度 1300 °C に加熱した電気抵抗炉に試料を装荷し、60 分保持した後、取出して空冷した。この温度及び保持時間は、JAEA/CLADS により実施された 2 号機の制御棒溶融を模擬した大型実験^[5]において、水蒸気枯渇雰囲気中に曝された箇所の溶融挙動を模擬したものである。当該試料の作製手順を図 3.2.1-4 に示す。得られた試料を約 3 g 程度の金属片に切断し非平衡実験に用いた。

2) 実験方法

②で用いた二段型非平衡実験炉の反応管チューブの上部から Fe-87Zr 合金をタンタルワイヤーで吊るし、試料台に制御棒由来デブリ模擬物質試料を置いて下部から装荷し密閉した。その後は②と同様の手順で反応試験を実施し、取出した試料を SEM-EDS 金属組織観察、反応相の微小 XRD 分析及びビッカース硬さ測定（MATSUZAWA, MMT-X10）を実施した。

3) 結果と考察

(a) 制御棒由来デブリ模擬物質（模擬デブリ物質）の組織

作成した模擬物質は B₄C とステンレス鋼が完全に混合溶融して凝固している部分と、内部に B₄C 粉末が残り外側が金属化合物に覆われているような部分に分かれていた。これは、過去に JAEA/CLADS で実施された福島第一原発 2 号機の初期炉心損傷を模擬した MADE 実験で得られた物質と類似しており、試料の一部を砕いて粉末化した状態に対して実施した XRD 分析（Bruker, D2 Phaser）から B₄C 及び 2 種類のホウ化物（(Fe, Cr)B と (Fe, Cr)B₂）のパターンが検出された。

(b) Fe-87Zr 溶融物落下試験

溶融物落下時の模擬デブリの温度は 860 °C であった。反応後試料 Fe-87Zr は界面近傍で非常に薄い反応相を形成し、ほとんどは元の組成のまま凝固しており、その様相は Fe-87Zr/SUS316 (890 °C) に類似している。模擬デブリ物質はほとんど溶融物の影響を受けておらず、また、落下時の温度変化は非常に大きかったことから、界面で非常に速く薄い反応相が形成されたのち溶融物のエネルギーは輻射冷却によって雰囲気に伝熱したと考えられる。反応後試料の界面近傍のみが非常に硬く切断が非常に困難であった。界面近傍のみ超硬合金切断用の砥石を用いて断面を切り出し、ビッカース硬さを測定したところ、Fe-87Zr 領域は 263 ± 7 HV、模擬デブリ物質領域は 645 ± 103 HV、界面近傍は 1040 ± 166 HV であった。反応によって形成された化合物を同定するために、微小 XRD 分析を実施した。得られた回折パターンを結晶構造データベース (ICDD PDF-2) でサーチマッチングした結果、反応界面近傍 (領域 1) 及び模擬デブリ物質 (領域 2) に $(\text{Cr, Fe})\text{B}_2$ 、 Fe_2B 、 Zr_3O が含まれると考えられる。領域 1 により顕著な $(\text{Cr, Fe})\text{B}_2$ と Zr_3O のパターンが確認されたことから、高硬度の原因はホウ化物の中でも安定度の高い MB2 型化合物と Zr であることが考えられる。これより、溶融物に含まれる Zr が模擬デブリ物質のホウ化物と反応してさらに高硬度の Zr を含む反応相を形成したことがわかった。 $(\text{Cr, Fe})\text{B}_2$ の融点は 1500~1900 °C、 Zr_3O の融点は 2000 °C 程度と高い融点をもつことから、事故進展及び形成された場合は容易に変化しないものと思われる。また、この場合、ホウ素は制御棒由来デブリに閉じ込められた状態で移行する。

④ 炉心の流路閉塞状況への影響について

②の結果から、高 Zr 含有溶融金属 (Fe-87Zr 融点 1500 °C) がステンレス鋼構造物と接触して反応する場合、ステンレス鋼温度の違いによる反応機構の差は見られなかった。いずれの場合においても融点の高い Fe-Zr 系金属間化合物の晶出を伴う共晶反応が起きると、固相中の原子拡散が律速して物質移動が抑制されるので反応の進行よりも輻射冷却による凝固の進行が速くなる。しかし、ステンレス鋼温度が高い場合は、金属間化合物の形成反応が吸熱反応から発熱反応に転じるため、よりステンレス鋼が溶融するが金属間化合物の存在によってステンレス鋼バルクへの物質移動が抑制されて、金属間化合物を避けるようにして外側へ濡れ広がりながら反応が進んでいく。いずれの場合にしても、界面に形成された金属間化合物による物質移動抑制効果によって、ステンレス鋼そのものの溶融はそれほど進行しないことを確認した。

今年度の試験で得られた知見から、水蒸気枯渇雰囲気での鋼材溶融・移行に関してどのようなことが言えるかについて考察する。Zr が高濃度含まれる鋼材由来溶融物が炉心構造物表面を沿って下方へ移行する際に、高水素分圧でステンレス表面が還元状態で 1000 °C 以上の高温である場合は、Fe-Zr 系反応によって金属間化合物を形成しながら表面を覆うようにして非常に速く移行すると考えられる。しかし、反応が吸熱反応に転じる低温度領域に到達すると、たちまち界面のみが反応した状態で凝固してしまい、その結果、突起状の閉塞物を形成すると考えられる。溶融物の組成 (Zr 濃度)、接触時の界面温度、界面状態によって閉塞状況は異なるが、ステンレス鋼が 1000 °C 以下の領域になると溶融物が表面に接着した状態で突起状に凝固するという状況が起こると冷却材流路の閉塞が進行して輻射による炉心温度急上昇につながる可能性は十分考えられる。このようにしてスランピングに至ったとすれば、凝固突起物が炉心下部に形成された状態で下部プレナムに移行した可能性がある。この突起物は輻射冷却のため急冷に近く金属濃度が高い状態を維持されれば、下部プレナムにおける再溶融時には金属デブリとして振る舞う。したがって、炉心損傷の初期段階において水蒸気枯渇雰囲気炉心下部がどのような閉塞状態でスランピングに至ったかを定量的に評価できるモデルを開発することができれば、1F 事故における金属デブリ挙動をより深く理解することになる。

⑤モデル化について

②で実施した Zr 濃度を用いた場合に界面には類似の反応相が形成されているが、熔融物の濡れ広がり程度が小さかったことから、熔融物とステンレス鋼による閉塞物の形成機構としては Fe-Zr 系金属間化合物の晶出を伴う液相領域の未熔融ステンレス鋼への濡れ広がり現象としてモデル化が可能であることが示唆される。また、熔融物が反応する相手として、ステンレス鋼以外に制御棒由来デブリ模擬物質についても同様の機構を適用できることがわかった。

(3) まとめ

令和 3 年度に構築した装置を用いて、高 Zr 含有熔融金属がステンレス鋼や炉心損傷初期に先行的に熔融固化した制御棒由来デブリと非等温的に接触する際に起こる反応を評価した。その結果、高 Zr 含有熔融金属が接触する際に界面に金属間化合物が形成されると物質移動が抑制され、ステンレス鋼の熔融そのものの進行を遅らせる傾向を示した。反応物の形成挙動は Fe-Zr 系状態図における Zr 高濃度液相からの金属間化合物晶出反応によって説明できて、1F2 号機で炉心下部の金属デブリ形成機構の一つの可能性として考えうることを示した。

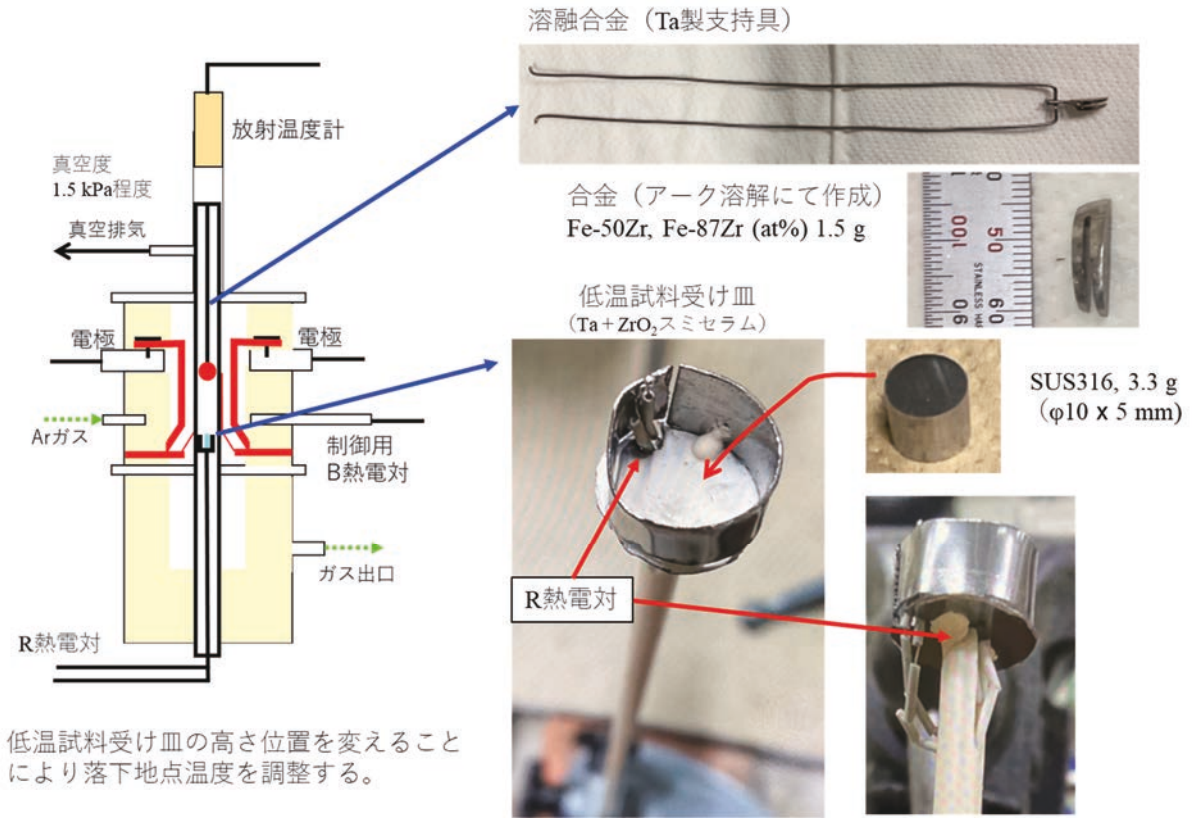


図 3. 2. 1-1 実験装置概観図

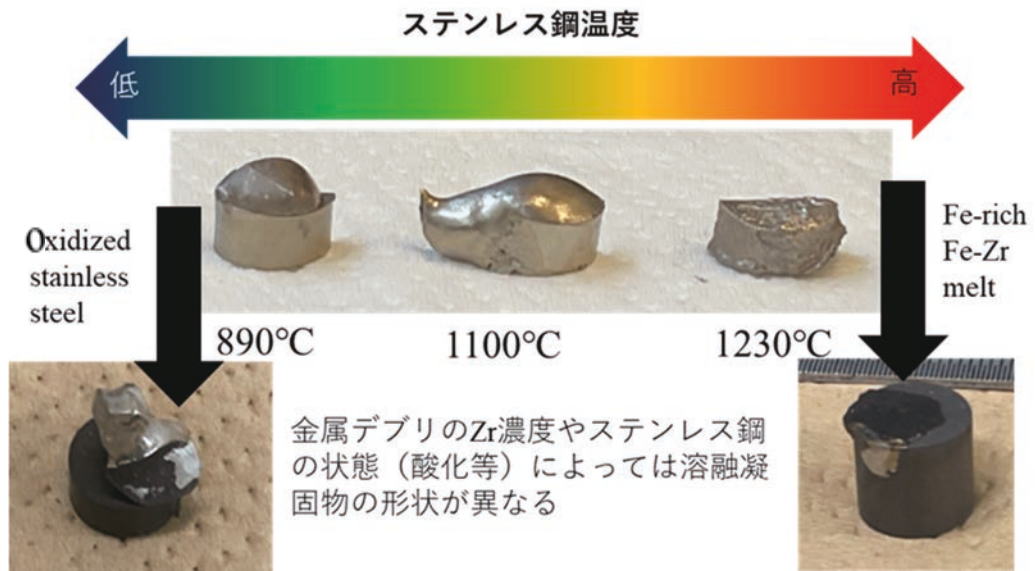


図 3. 2. 1-2 Fe-87Zr/ステンレス鋼反応後試料外観

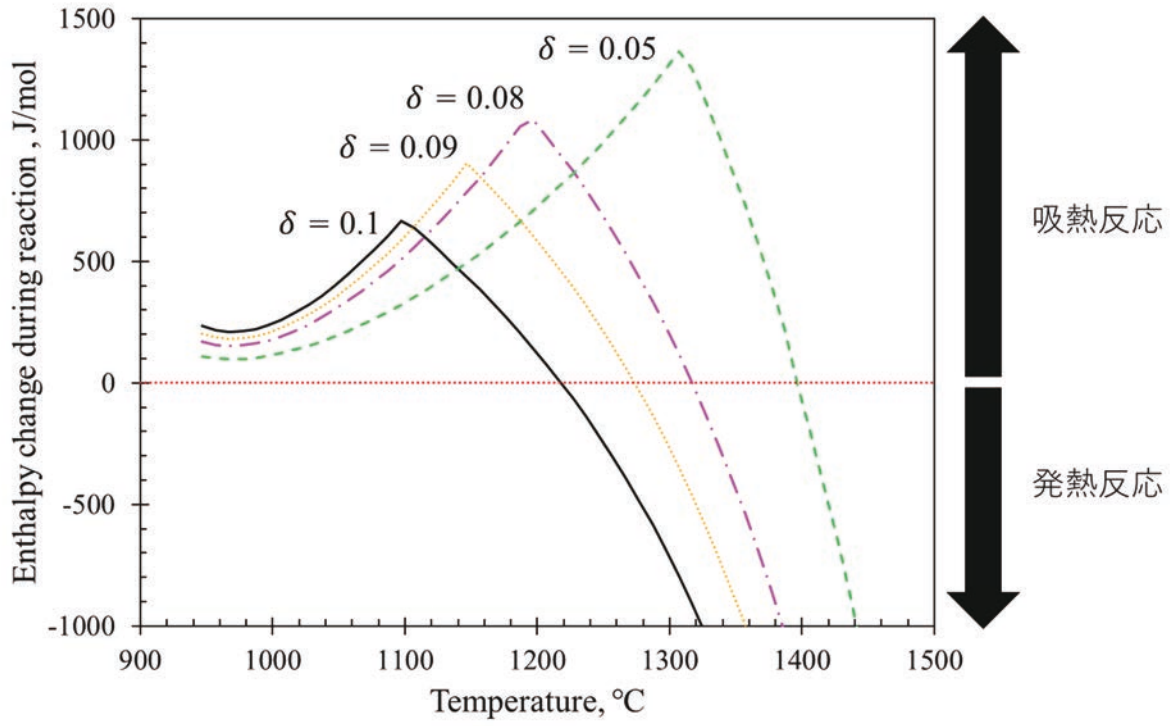


図 3.2.1-3 Fe₁₃Zr₈₇/Fe の反応温度依存性

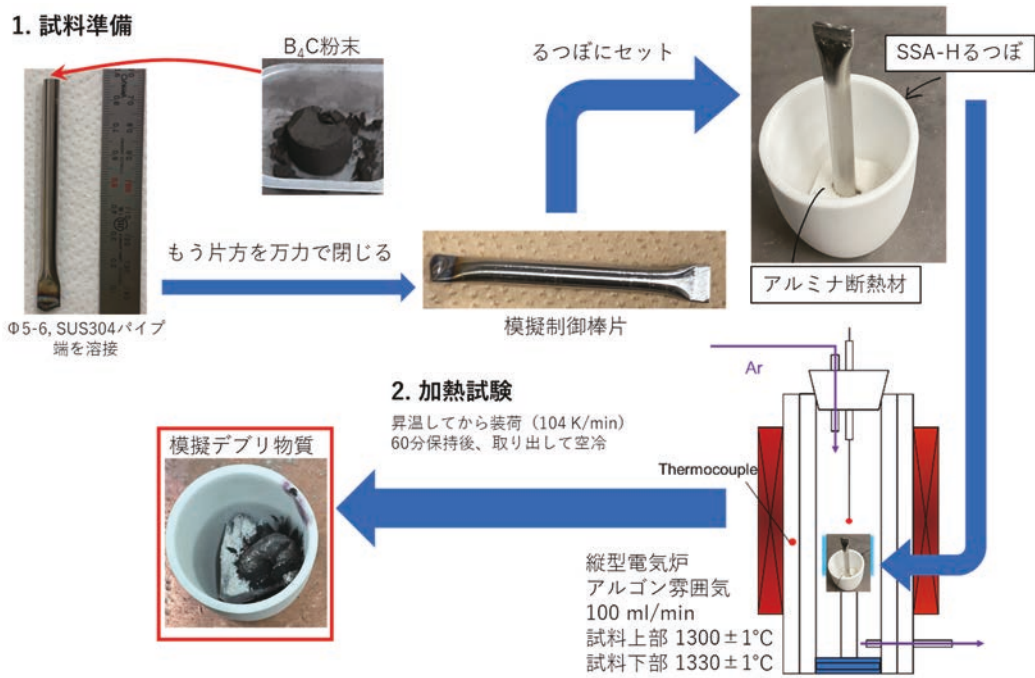


図 3. 2. 1-4 制御棒由来デブリ模擬物質作製手順

参考文献

- [1] Yamashita, T., et al., Comprehensive Analysis and Evaluation of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2, Nucl. Tech., Vol.206, No.10, 2020, pp.1517-1537.
- [2] 東京電力ホールディングス, 福島第一原子力発電所 1~3 号機の炉心・格納容器の状態の推定と未説明問題に関する検討第 6 回進捗報告, 2022, p.37, https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/pdf/221110_j0103.pdf
- [3] Pelton, A. D., Leibowitz, L. and Blomquist, R. A, Thermodynamic analysis of phase equilibria in the iron-zirconium system, J. Nucl. Mat., Vol.201, 1993, pp.218-224.
- [4] Guéneau, C., et al., TAF-ID : An international thermodynamic database for nuclear fuels applications, Calphad, Vol.72, 2021, 102212.
- [5] Pshenichnikov, A., et al., Features of A Control Blade Degradation Observed in Situ during Severe Accident Conditions in Boiling Water Reactors, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.56, No.5, 2019, pp.440-453.

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（令和3年度～令和4年度）

本項目は、炉心崩落時に構造材及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、検証試験及び平衡・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賦存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。制御棒及びステンレス鋼材由来の金属系融体及び半溶融物を温度及び雰囲気を制御した高温下で B_4C 及びジルカロイと接触させ、B 及び Zr 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、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。

令和4年度は、溶融ステンレス鋼に B_4C タブレット、ジルカロイを接触させ、C 及び B の移行挙動を調査した。

3.2.2.1 溶融ステンレス鋼と B₄C の接触試験

・令和 3 年度までの成果と令和 4 年度の試験方法

令和 3 年度の予備試験によりステンレス融体と B₄C 及びジルカロイの反応試験の温度雰囲気条件を決定した。令和 4 年度はこの条件をもとにステンレス鋼を 1450 °C で溶融し、B₄C と接触保持後に冷却し、EPMA 等の組成分析により C、B の金属融体への移行挙動を調査した。詳細は以下に示す。

1) 装置

ステンレス鋼と B₄C の反応試験を行うために、図 3.2.2-1 のように二珪化モリブデン製発熱体を装備した、堅型電気抵抗炉を用いた。反応管にはφ60 mm (i. d. 50 mm) ×1000 mm 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 1450±1 °C 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 °C に安定するように炉を昇温した場合、均熱帯は高さ方向に 40 mm 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れる。

炉の外部には、H₂、Ar ガス供給用のポンペを設置し、マスフローコントローラにより流量を制御し所定混合ガスを生成することが可能である。H₂O 含有雰囲気での試験ではガス供給系と炉体の間には水蒸気発生装置を設置し、水温を制御することによりガスに飽和水蒸気圧分の水蒸気を添加することを可能とした。

2) 試料

図 3.2.2-2 のようにジルコニアるつぼ (φ28 mmOD、ZrO₂-8 mol%Y₂O₃) に SUS316L 粉末 (ニラコ) 30 g を入れ、その上に緻密な B₄C ペレット 9 g を載せた。るつぼをモリブデンワイヤーと結束し電気炉の反応管内上部の蓋の内側に吊り下げた。モリブデンワイヤーを外部から操作することにより、るつぼを炉上部から均熱帯に移動することができる。雰囲気の制御には高純度 Ar、H₂、また水蒸気発生のための液体として蒸留水を用いた。

3) 雰囲気

令和 3 年度の検討より B₄C の分解により生成する 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ため、中性雰囲気である Ar に加え、H₂O 含有雰囲気を選択した。

ガス供給のために、高純度アルゴン及び高純度 H₂ ガスシリンダーをマスフローコントローラに接続し、それぞれ流量制御を可能とした。Ar 及び H₂ 雰囲気下の試験では、マスフローコントローラから直接ガス導入管にガスを流入し、H₂/H₂O 雰囲気では Ar を水蒸気発生装置に接続し、水蒸気発生装置から出た Ar/H₂O ガスを H₂ と混合した。

水蒸気発生装置は、恒温槽とガスを流通する水槽から構成され、恒温槽の温度を制御することで、流通するガスに水蒸気を付加することができる。この水蒸気の圧力は飽和水蒸気圧に相当することを予め確認した。

4) 試験手順

炉を目的の温度 1450 °C に昇温し、炉内上部に試料を装入したジルコニアるつぼを吊るす。炉内に Ar ガス、水蒸気発生装置を経由した Ar ガスあるいは水蒸気含有 Ar と H₂ の混合ガスを反応管内に流し、反応管内の雰囲気を目的の気相とする。急激な加熱によるるつぼの破損を防止する程度の昇温速度となるように、ゆっくりるつぼを均熱帯におろし、所定の時間保持する。保持時

間経過後に、上部の蓋を開け、試料を速やかに取出し上部から He ガスを吹きかけながら水槽中で、急冷した。

水冷後の試料は B₄C と金属部に分離し、金属部を縦方向に切断したのち、樹脂に埋め込み、断面を研磨した。断面について走査電子顕微鏡 (SEM) 及び電界放出型電子プローブ顕微鏡 (FE-EPMA) による観察・組成の定量を行った。

3.2.2.2 試験結果

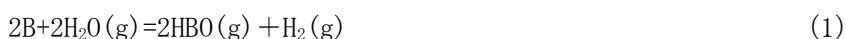
加熱保持により得られた試料の外観を図 3.2.2-3 に示す。反応後の B₄C はステンレス融体の上部に存在した。また、これらは力をかけることなく、分離することができた。B₄C の下面は反応により体積が減少し、反応前の円柱状から半球形に変形していた。金属部は鉄系合金に炭素が溶解したため脆く、容易に 2, 3 片に分割することができた。この金属部から得られた試料片を、樹脂に埋め込み、断面を研磨し EPMA 及び SEM-EDS の観察試料とした。1450 °C の Ar-12.2% H₂O 雰囲気下で 2 時間保持した試料の EPMA による元素分布の測定結果を図 3.2.2-4 に示す。上部は保持後に B₄C に接していた部分である。炭素は一定に分布し、B、Cr は B₄C ペレット接触部近傍に濃縮している。また、B、Cr が高濃度に存在する位置は一致していることがわかり、ホウ化クロム (CrB₂) の生成が推定できる。また、ホウ化鉄 (FeB) を生成している可能性もある。

図 3.2.2-4 中の右上パネル内の赤線で示した位置の B 濃度及び C 濃度の分析を行った結果を図 3.2.2-5 に示す。横軸はホウ化クロム懸濁域からの距離を示す。B 濃度及び C 濃度はそれぞれ 3~4 mass% 程度で位置による濃度の変化は見られない。B₄C の近傍でホウ化物の生成が観察される一方で、B₄C から溶出した B、C は金属融体中において均一であったと評価できる。

次に B 及び C の金属融体中における濃度変化を図 3.2.2-6、図 3.2.2-7 に示す。白抜き○は Ar 中での試験、黒塗り●は Ar-12.2% H₂O 雰囲気下での試験結果を示す。2 時間保持試料においては、Ar 雰囲気、Ar-H₂O 雰囲気下における B、C 濃度に大きな違いは見られない。

Ar 雰囲気は中性であるため、ステンレス鋼-B₄C 系の反応に寄与しないと想定可能だが、Ar-H₂O 雰囲気は H₂O を含むため、凝縮相に対して酸化雰囲気として寄与する。

この際、金属相中に溶解した B 及び C が水蒸気と反応し、



等の反応が進行する。ここで下線は金属融体中に溶解した元素を示す。Ar-H₂O 雰囲気下では式 (1) - (3) のように水蒸気と金属融体に溶解した B、C が反応するため、気相との反応のない Ar 雰囲気と比べ、金属融体中 B 及び C 濃度の上昇が遅くなる可能性がある。しかし本試験結果からは、雰囲気による金属相中の B 及び C 濃度変化への影響は大きくないことがわかり、気相-液相に比べ、固相-液相反応が融体組成に強く影響することが示された。

Ar-12.2% H₂O 雰囲気下では 4 時間経過程度まで B 濃度は上昇する。その一方で C 濃度は 2 時間後には 2.8 mass% 程度、4 時間で 4 mass% 程度まで達するが、その後の上昇は見られない。

計算状態図の項で詳説するが、Bは8時間では飽和に達していない、その一方でC濃度は2時間経過前に飽和に達している可能性がある。

気相に接するB₄Cの上面では、雰囲気による外見の違いがあった。Ar雰囲気下で保持した試料が保持前と変わらず平滑で黒色であった一方で、Ar-H₂O雰囲気下で保持したB₄Cは表面の平滑性が失われ濃灰色となった。このことからH₂OとB₄Cの直接反応が進行したことが確認できる。

・ホウ化クロム懸濁相

クロム濃縮相は図3.2.2-4の右下のパネルから読み取ることができる。B₄Cと接する右側上面と、気相と接する左側上面に存在する。このB₄Cと接する部分のクロム濃度は高く、明確に懸濁部と金属相の基部に分割していることがわかる。

Ar-H₂O雰囲気下で保持した試料のホウ化物が懸濁した層の厚みの変化を図3.2.2-8に示す。B₄Cの溶解とともにメタル中に移行したBが金属相成分と反応し生成するため、保持時間に従いホウ化物懸濁部が厚くなる。このFeB、CrB₂懸濁部の厚さ変化を二次式で示すと、時間t[h]に対して $0.78t - 0.08t^2$ [mm]となる。したがって、懸濁相の厚さは $0.78 - 0.16t$ [mm/h]で変化する。

3.2.2.3 結果の解析

1) 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3.2.2-9に示す。図3.2.2-9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系相平衡図である。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/CrB₂、C/CrB₂/FeB、B₄C/C/CrB₂/FeB飽和の液相域に囲まれる。B₄Cが共存するB₄C/C/CrB₂/FeB飽和の液相中のB濃度は20 mass%程度、C濃度は4~5%程度である。

この状態図をもとに上記試験の結果を考察すると、図3.2.2-6、図3.2.2-7からは図中の黒塗り●で示すように、B₄C飽和のステンレス鋼融体のBは飽和濃度より低く、Cは飽和濃度に近いことがわかる。状態図上の組成はCのみが飽和する液相線上である。試験結果からはB₄C/C/CrB₂/FeB共存が推定されるため、金属融体相はB₄Cとの平衡(平衡組成:○)に達していない。B濃度が8時間経過後も上昇することを考慮すると、金属融体相中のCは飽和しているが、B₄Cは飽和していないためB₄Cの溶解が継続していると評価できる。また、クロム及びBが濃縮した相がどの試料の金属融体中からも検出されていることから、CrB₂飽和になっていたことが推定できる。B濃度変化は初期に早く、その後遅くなるため、Bの供給の律速段階が変化する可能性がある。

B₄Cから金属融体へのB、Cの供給に関して、凝縮相間の主な反応は以下のように表される。



ここで、反応初期では融体中 B、C 濃度が上昇するため式(4)が進行、後期には B 濃度のみが上昇するため式(7)が進行する、と考えられる。B の溶解とともにホウ化物濃縮相が生成するため金属融体中で式(5)、(6)が同時に進行する。金属融体に移行した B はホウ化物の生成と融体中の B 濃度上昇に寄与する。融体中の B 濃度は飽和に達しないため、式(7)により供給された B は式(5)、(6)によりホウ化物生成に消費されていると評価できる。したがって、反応後期では固体 C 析出を伴う式(7)の反応が律速している可能性がある。さらに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、 B_4C と融体の界面に固体 C を生成するため、反応を阻害し、式(7)の反応を阻害する可能性がある。

2) 炭素の析出と雰囲気の影響

B_4C と金属融体の界面における炭素の生成は試験試料でも観察されている。図 3.2.2-10 は観察試料の金属相の表面近傍を示す。(a)は Ar-12% H_2O 雰囲気下で 2 時間保持した試料、(b)は Ar 雰囲気下で 2 時間保持した試料である。左下側が金属相、右上側が試料を埋めた樹脂である。金属相と樹脂の間に C 濃度の高い部分がある。冷却直後に金属から B_4C ペレットが外れたため、 B_4C の表面の残留物の可能性があるが、この部位からは高濃度の B は検出されなかったため、C が単体で存在したと判断した。この図は式(7)の反応により析出した C が B_4C -金属融体界面に留まることを示す。

また、(a) (b) では C 濃縮部の見掛けの C 濃度が異なり、(b) の C 層が厚い。外部の雰囲気の影響を考慮すると式 (3) あるいは



の反応が進行したことが考えられる。この試験の場合、水蒸気を含む雰囲気下でも、炭素の析出が観察されることから式(3)、(8)よりは C 析出を伴う B_4C の溶解式 (7) が早く進行することが分かる。また、図 3.2.2-5、図 3.2.2-6 からは B、C 濃度への雰囲気の影響が確認されていないことから、図 3.2.2-9 でも C 層の厚さの差による反応速度への影響は明確に観測されていない。

式(1)－(3)の雰囲気による酸化反応は、ここの反応の反応速度と物質のマスバランスにより影響されることから、気相と接する金属融体の表面積と、金属融体表面に存在する B_4C 等の反応物の比によって、支配的な反応が変化することに留意する必要がある。

3) 反応挙動のモデル化

上記の反応をまとめると、図 3.2.2-11 のような模式図で表すことができる。まず金属融体に接触した B_4C から B と C が金属相に移行する。この反応では溶解反応が反応性を支配する。その後、ある程度 B 濃度が上昇すると B と金属融体中の Cr、Fe が反応しホウ化物 CrB_2 、 FeB を生成する。さらに反応が進行すると固体 C が B_4C -金属融体界面に生成する。この時は、 B_4C から固体 C を生成する反応が律速反応となる。

3.2.2.4 ステンレス鋼融体－ジルカロイ反応試験

1) 試料調製

ジルカロイの表面酸化の進行については、既に Zheng^[1]が検討しているので、同様の方法で試料の調整を試みた。ジルカロイ-4(Zry. 4)を Ar-水蒸気雰囲気内で部分酸化し、表面に酸化膜を生成する試験を行った。縦型電気抵抗炉内の反応管上部に、Zry-4 を吊るし、反応管内雰囲気を

Ar/H₂O ガスで置換した。そののち、Zry-4 を反応管内の均熱帯におろし、所定の時間保持した後、試料を取出し急冷した。

2) 試料の状態

図 3.2.2-12 に 1200 °C、Ar-30 %H₂O 雰囲気下で 1 時間保持した Zry-4 試料の断面を示す。酸化膜は緻密で、その厚さは 263.6 μm であった。反応時間の制御により数十 μm から数百 μm 程度の酸化膜を任意に生成できると考える。稼働中の原子炉内で用いられているジルカロイ表面の酸化膜が 20~30 μm 程度であり、これより厚い酸化膜を調製できれば良いため、本方法により過酷事故時に酸化されたジルカロイの状態を模擬する試料の生成が可能である。

3.2.2.5 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及び半熔融物を温度及び雰囲気を制御した高温下で B₄C 及びジルカロイと接触させ、B 及び Zr 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、ZrO₂ りつぼ中 1450 °C で熔融した 316L ステンレス鋼に B₄C を接触し、金属融体への B の移行挙動を調査した。また、Zry-4 をステンレス鋼融体に浸漬する反応試験を行うために、Zry-4 の表面酸化を行い、試料調製方法を確認した。以下に令和 4 年度の成果の概要を示す。

- (1) C が飽和していないステンレス鋼融体への B₄C の溶解速度は速い。
- (2) B が熔融ステンレス鋼中に侵入することで、CrB₂、FeB 等のホウ化物固体が析出した。
- (3) 反応時間が長くなるにつれてホウ化物固体が懸濁している層が厚くなった。
- (4) C の飽和により B₄C の溶解速度が低下した。この際に主要反応は、
B₄C(s)=4B+C から B₄C(s)=4B+C(s) に変化する。

参考文献

[1] Zheng, L., Hosoi, K., Ueda, S., Gao, X., Kitamura, S., Kobayashi, Y., and Sudo, A, Chemical interactions between pre-oxidized Zircaloy-4 and 304 stainless steel-B₄C melt at 1300 °C. Journal of Nuclear Materials, Vol.508, 2018, pp.361-370.

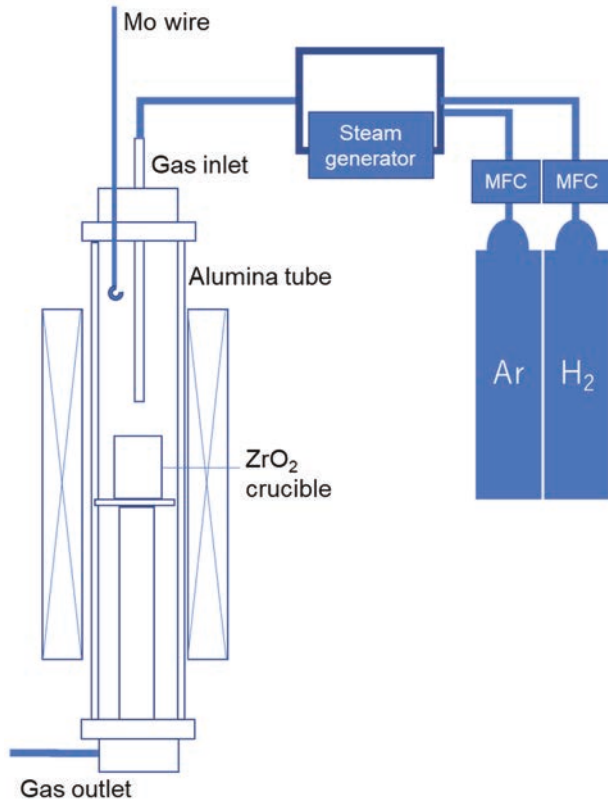


図 3. 2. 2-1 試験装置概略図



図 3. 2. 2-2 試料の構成

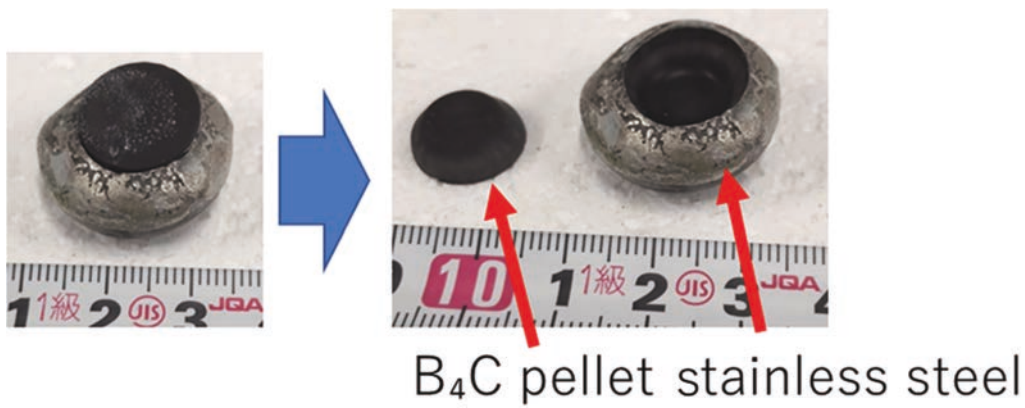


図 3. 2. 2-3 試験後の試料の状態

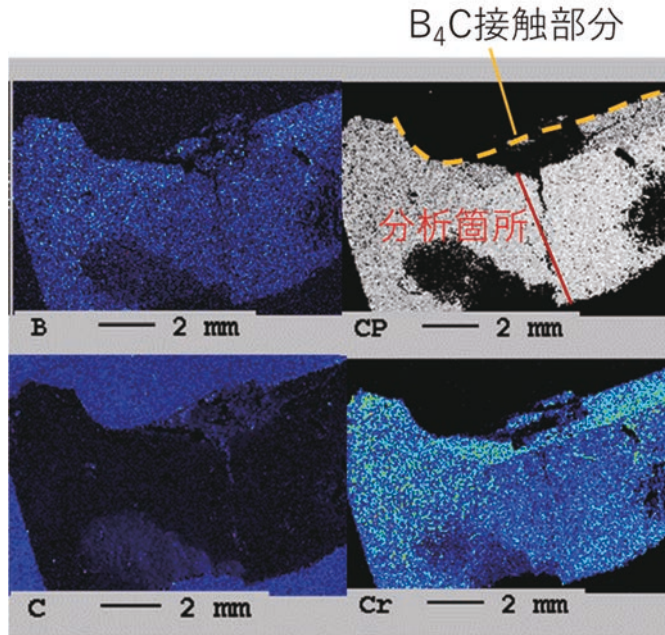


図 3. 2. 2-4 Ar-12. 2% H_2O 、2 時間保持試料断面の組成分布

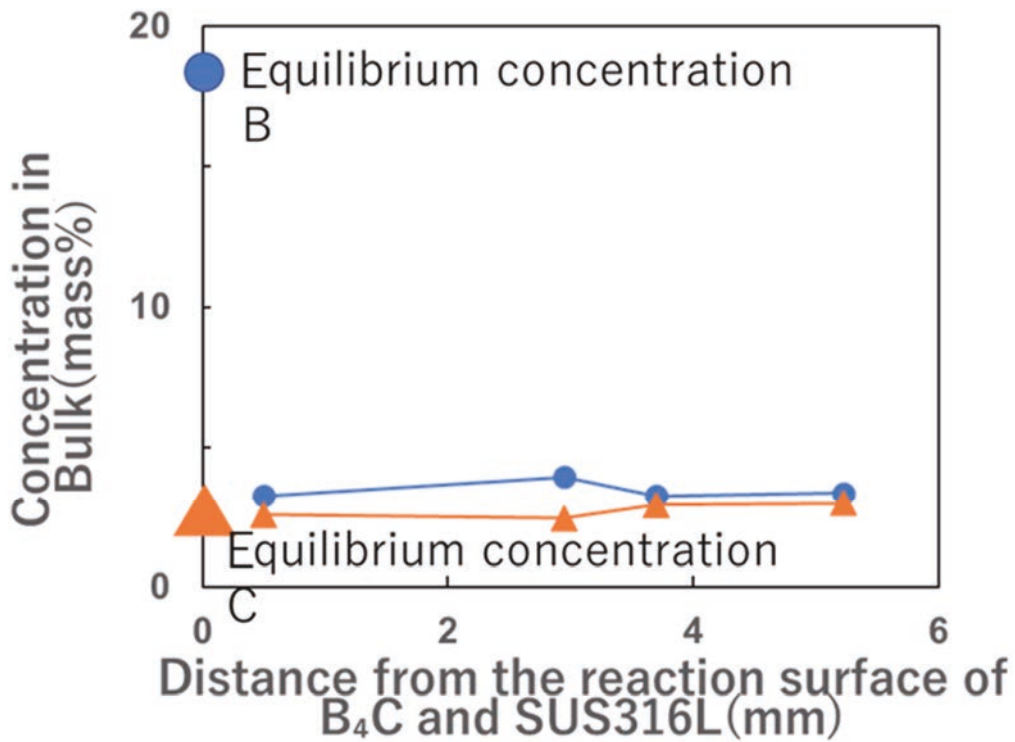


図 3. 2. 2-5 Ar-12. 2% H_2O 、2 時間保持試料高さ方向 B、C の濃度分布

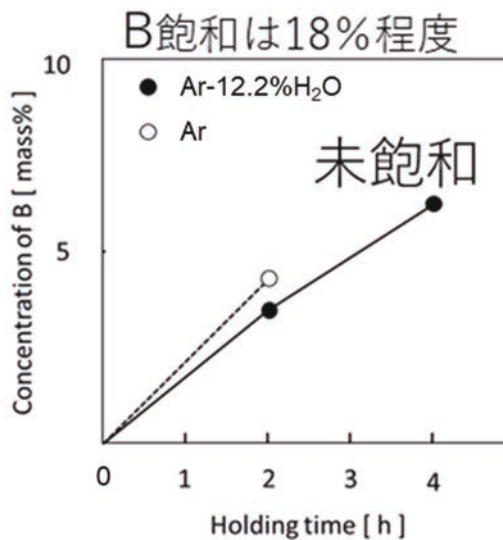


図 3. 2. 2-6 金属融体中 B 濃度変化

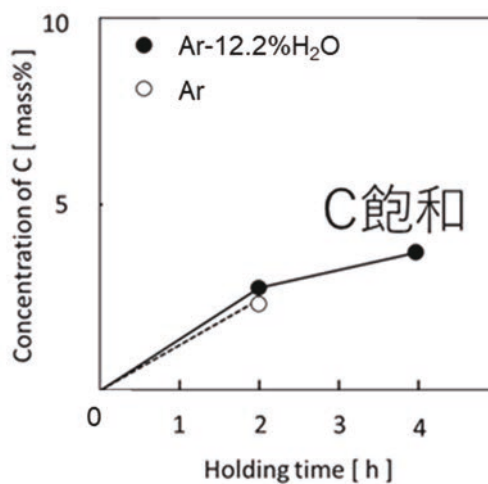


図 3. 2. 2-7 金属融体中 C 濃度変化

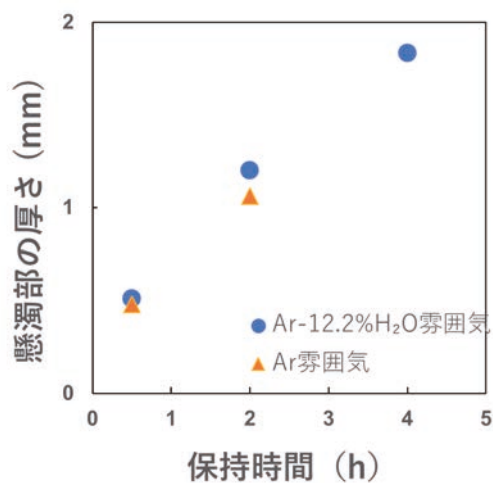


図 3. 2. 2-8 金属融体ホウ化物懸濁相厚さ変化

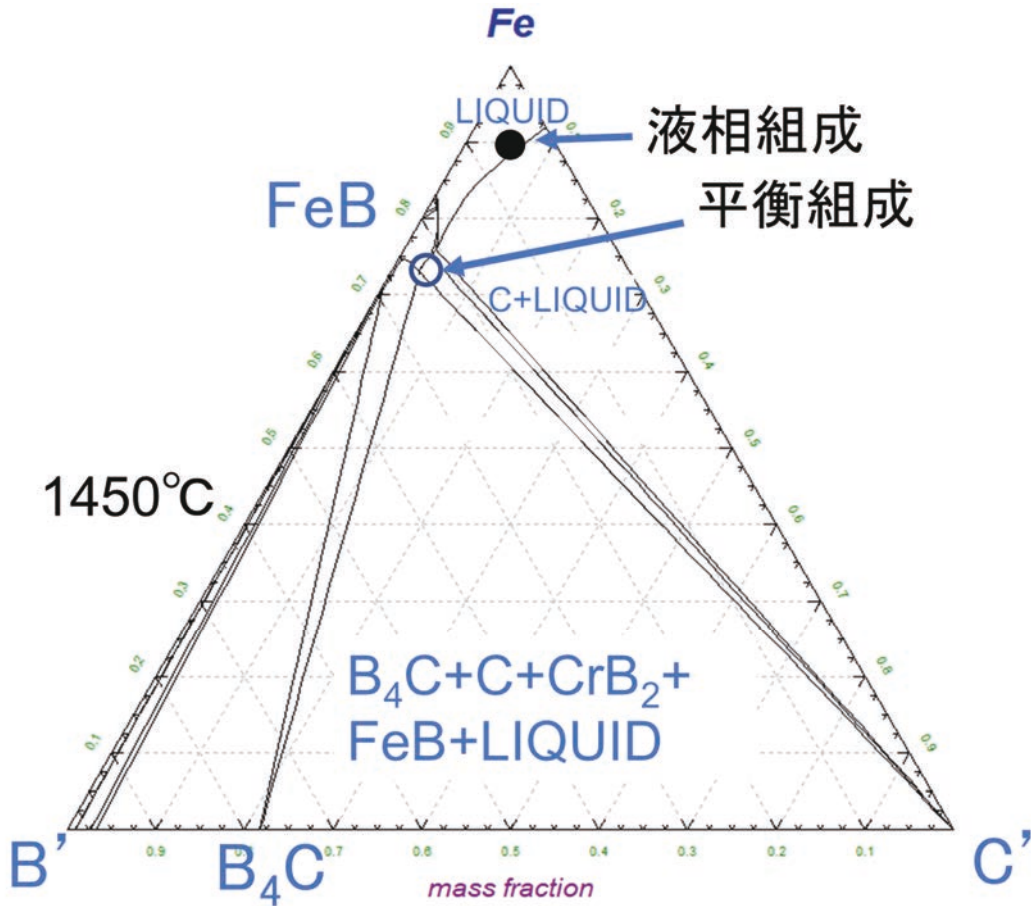


図 3. 2. 2-9 ステンレス鋼-B-C 系計算状態図上での固相飽和液相組成と試験による液相組成

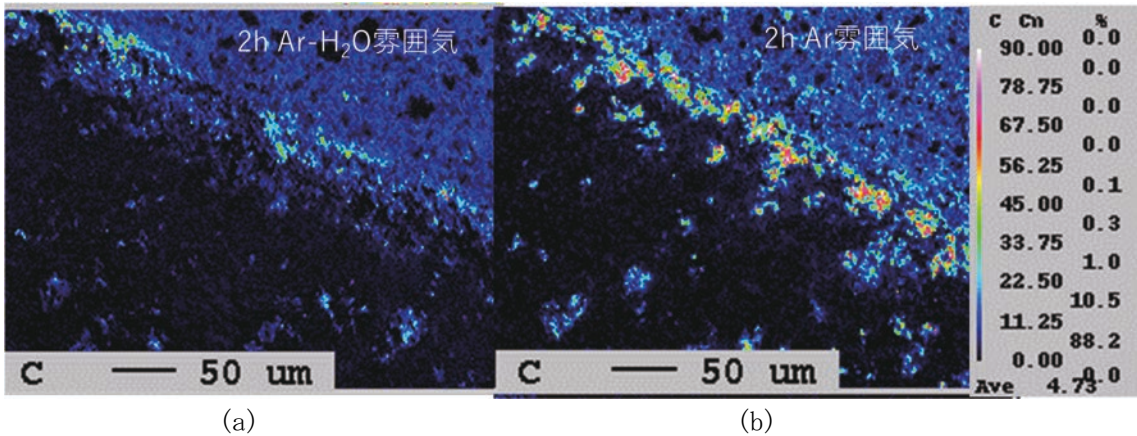


図 3. 2. 2-10 反応後試料の金属相表面近傍の炭素濃度分布

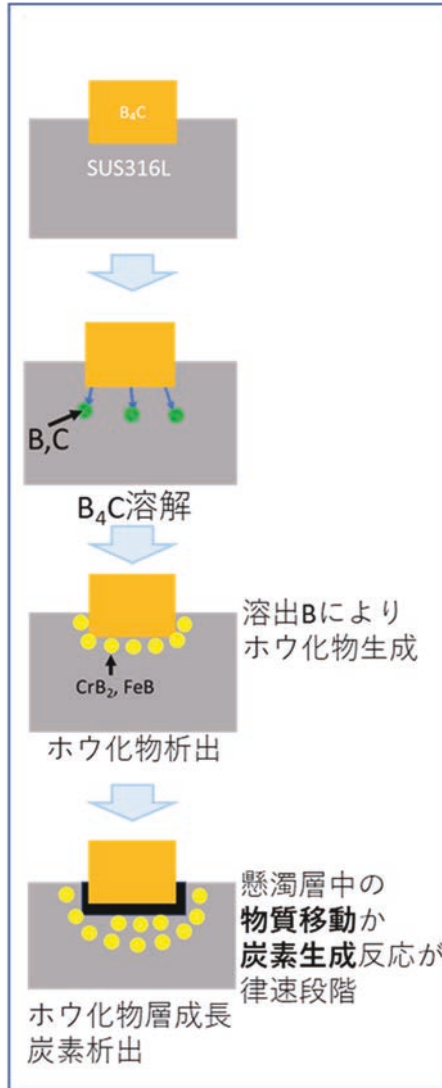


図 3. 2. 2-11 B₄C の金属融体への溶解機構模式図

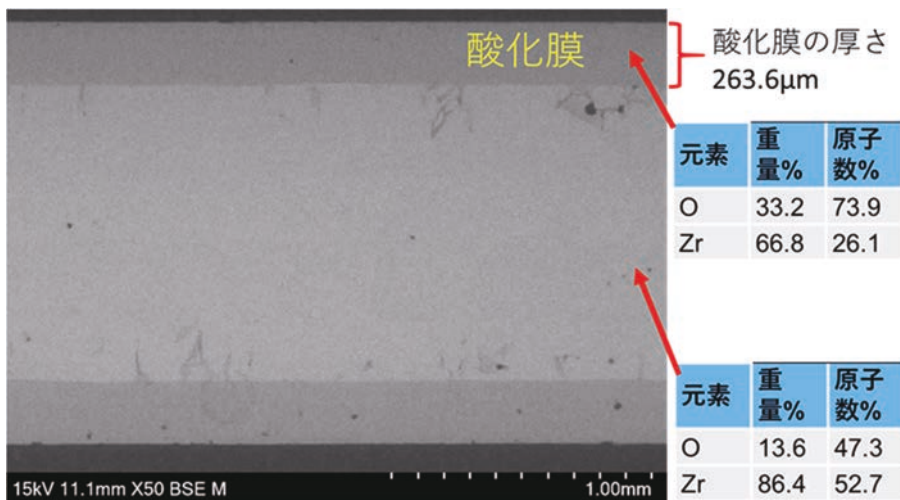


図 3. 2. 2-12 H₂O 酸化処理を施した Zry-4 の断面 EPMA 像

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（令和3年度～令和4年度）

(1) 令和3年度までの概要

1F2、3号機では、炉心溶融物の下部プレナム移行後、その再溶融過程において溶融金属（金属デブリ）プールが形成されたと推定されている^[1]。この溶融金属プールにより下部プレナム破損が進行した可能性がある。本項目では、この金属デブリによる材料反応に着目して下部プレナム破損メカニズムの検討を実施した。金属デブリによる構造材の反応溶融挙動、金属デブリと酸化物デブリの反応挙動、金属デブリによる圧力容器破損挙動についてそれぞれ試験、解析を実施した。

金属デブリと種々の材料との反応挙動理解のために、金属デブリ-下部プレナム構造材の高温反応試験を実施し、その反応・溶融速度データを取得した。ジルコニウム-ステンレス鋼の模擬金属デブリと、ステンレス鋼やNi基合金の下部プレナム構造材の反応試験においては、Ni基合金の方がステンレス鋼よりも金属デブリとの反応性が高く、溶融が進行しやすい傾向が見られた。また、金属デブリと酸化物デブリの反応による金属デブリ性状変化を評価するために、金属デブリ-ウラン酸化物の高温反応試験を実施し、析出相や元素濃度変化を分析した。金属Zrとウラン酸化物との反応においては、Zrの酸化、Uの還元によりZr酸化物相及びU-Zr-Oの金属相が析出する挙動を示した一方で、ステンレス鋼とウラン酸化物の反応試験においては、顕著な反応は見られない結果となり、ウラン酸化物との反応においては金属Zrの存在が重要な要素であることを確認した。さらに、圧力容器の破損及び溶融物流出挙動を評価するために、大型模擬試験とその数値解析を実施した。令和3年度は、令和4年度大型試験実施に向けて、圧力容器下部構造物の制御棒駆動機構（CRD）を模擬した試験体の設計及び試験条件を選定した。また、流体シミュレーションソフトウェア（Ansys Fluent）を用い、JAEAにて過去に実施した同様の圧力容器破損試験体系を対象にし、物性などの解析パラメータの整理及び熱解析について試解析を実施した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

① 模擬金属デブリ-下部プレナム構造材高温反応試験

1) 実験方法

金属デブリと下部プレナム構造材の材料反応、溶融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、令和3年度と同様に低融点組成（融点1100℃程度）の初期溶融物を模擬して、SUS304-83wt%Zr組成とし、アーク溶解に作製した直径約30mm×高さ約10mmのペレット状のものを用いた。下部プレナム構造材としては、CRDのハウジングや溶接部に使用されている^{[2][3]}ステンレス鋼（SUS304）とNi基合金（Inconel600、以下、「インコネル材」と略す。）の板材を縦20mm×横20mm×板厚5mmに切断して用いた。これらを図3.2.3-1のように、構造材と模擬金属デブリを接触するようにアルミナるつぼ内に配置した。水蒸気雰囲気下制御棒崩落試験装置（MEISAN:Medium-scale Equipment for Investigation of Severe Accidents in Nuclear reactors）を反応試験に使用した（図3.2.3-2）。模擬金属デブリと構造材を接触させた試料をAr雰囲気中、温度及び保持時間を変えて高温で反応させた。各試験条件を表3.2.3-1に示す。反応試験後、試料を切断し断面を研磨した。試料断面を光学顕微鏡及びSEMによる組織観察を実施し構造材側の反応量を算出するとともに、EDSによる各相の元素分析を実施した。

2) 結果及び考察

図3.2.3-3、図3.2.3-4に試験後のインコネル材及びステンレス鋼の断面の光学顕微鏡観察結果を示す。1000℃～1200℃では模擬金属デブリは形状を維持しており、Ar雰囲気中での試験であったが表面が酸化し、溶融が抑制されていたと考えられる。1300℃の試験では、模擬金属デブリは溶融していることがわかる。模擬金属デブリとインコネル材の反応に着目すると（図3.2.3-3）、インコネル材は1000℃から反応溶融により侵食されていることがわかる。試験温度

が高くなり、保持時間が長くなるほど侵食量が多くなっており、特に 1200 °C×120 分保持条件では侵食量の著しい増加が見られる。1300 °Cでは熔融金属デブリとの反応により、10 分保持条件時点でインコネル材の全量が熔融していることがわかる。ステンレス鋼の反応挙動においては (図 3.2.3-4)、インコネル材に比べても反応溶融量が少ないことがわかる。1100 °C×120 分保持からステンレス鋼の侵食が進行する。さらに高温になると、1200 °C×120 分や 1300 °C×極短時間では、模擬金属デブリが熔融することで反応が促進される。1300 °Cではインコネル材は全量が熔融したことに對して、ステンレス鋼では表面部が熔融したに留まっている。

各試験条件における構造材の反応量を表 3.2.3-2 に示す。インコネル材、ステンレス鋼ともに、温度、時間が増加するごとに反応量も増加していることがわかる。特に模擬金属デブリが熔融した 1300 °Cでは双方の材料ともに反応量が著しく上昇している。インコネル材とステンレス鋼を比べてみると、インコネル材の反応が速く、特に低温域ではその差が大きくなっている。代表的なものとして、各構造材の 1200 °C保持試験の反応界面の SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-5 に示す。インコネル材の反応界面に関しては、模擬金属デブリ側は一樣な組織を呈しており、Ni リッチの Ni-Zr 相が存在している。界面には反応層は形成されておらず、特に 120 分保持では、インコネル材が Ni-Zr 液相に侵食されており、熔融が進行する様子が見られる。Ni-Zr は共晶反応により低融点液相を形成するが、インコネル材は模擬金属デブリ中の Zr 成分と界面部で反応し、液相を形成することで熔融の進行が促進されていると考えられる。一方、ステンレス鋼では、反応界面に Laves 相の反応層が形成されていることがわかる。Fe-Zr も共晶反応により融点が低下することが知られているが、この Laves 相はステンレスよりも融点が高く、模擬金属デブリからの Zr 成分の供給と熔融の進展を妨げていると考えられる。模擬金属デブリ自体が熔融開始している 120 分保持条件では、60 分保持条件と比較してこの反応層は減少してきており、反応溶融量が大きくなったと考えられる。1300 °Cでは、インコネル材、ステンレス鋼ともに反応量が大きく増加しているが、これは模擬金属デブリが熔融し、液相を介した物質移動、反応に挙動が変わるため、反応が促進されたと考えられる。特にステンレス鋼では、界面で液相中の対流により反応層 (Laves 相) の形成が抑制され、ステンレス鋼の熔融が進行すると考えられる。

試験で得られた反応量データから反応速度を簡易式 $\delta = \sqrt{kt}$ (δ : 反応量[m]、 k : 反応速度[m²/s]、 t : 時間[sec]) に当てはめ算出した反応速度 k を表 3.2.3-3 及び図 3.2.3-6 に示す。また、対流の影響が大きくなる 1300 °Cを除いた、温度ごと (1000 °C~1200 °C) の反応速度 k をアレニウス式に当てはめると以下のような式を得る。

$$\text{インコネル材:} \quad k = 6.585 \times 10^5 \exp\left(-\frac{2.094 \times 10^5}{RT}\right)$$

$$\text{ステンレス鋼:} \quad k = 4.452 \times 10^9 \exp\left(-\frac{3.276 \times 10^5}{RT}\right)$$

ここで、Rは気体定数[J/K・mol]、Tは温度[K]である。

インコネル材の方がステンレス鋼よりも反応速度が速く、特に低温域での差が大きいことがわかる。模擬金属デブリが熔融する高温域においても、本試験ではインコネル材の方が有意に反応しやすい結果となった。金属デブリ (Zr リッチ) 存在下では、1300 °C以下の比較的低温域にでも構造材の反応溶融が進行する可能性が示唆される。特に、インコネル材は優先的に熔融する可能性が考えられる。

②模擬金属デブリとウラン酸化物の高温反応試験

1) 実験方法

熔融金属デブリと酸化物デブリの反応挙動を評価するため、温度測定が可能な高周波誘導炉を用いて、模擬金属デブリとウラン酸化物の高温反応試験を実施した。本装置は最高温度 2700 °C、試料サイズφ16 mm以下 (炉内W るつば依存)、Ar 雰囲気での試験が可能である。高周波誘導炉外観及び試験体模式図を図 3.2.3-7 に示す。また試験条件を表 3.2.3-4 に示す。外径φ10 mm×

高さ 12 mm の UO_2 りつぼを作製、そこに模擬金属デブリを装荷し、これを高温で保持し、その反応を観察した。

UO_2 りつぼは、Ar-5 % H_2 混合気流中 700 °C 以上で定比組成に U_3O_8 を還元処理した UO_2 を遊星ボールミルで十分粉碎した後に ϕ 10 mm ペレット形状に成型し、片側底面をドリルで深さ 4 mm ほどの穴を開けて、りつぼ状に成形し、これを高純度 Ar 気流中 1700 °C 以上で焼結したものである。 $(U, Zr)O_2$ りつぼも同様の手順で作製し、ペレット形成時に UO_2 粉末に ZrO_2 粉末を $UO_2:ZrO_2=80:20$ になるように混合して作製した。また、模擬金属デブリとしては、Zry-2 及び JAEA で過去に実施した制御棒ブレード崩落試験^[4]にて得られた模擬金属デブリ（ステンレス鋼-ジルコニウム溶融物、SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-8 に示す）を用いた。Zry-2 は 2~3 mm のフレーク状のもの、JAEA 模擬金属デブリはハンマーで粉碎した粉末状のものをそれぞれ UO_2 りつぼに装荷した。

これら試料を 2000 °C~2200 °C で規定時間保持し、反応の様子を観察した。試験後、試料を切断、研磨し、その断面を SEM-EDS により分析した。

2) 結果及び考察

$UO_2+Zry-2$ の組み合わせで、2000 °C×10 分保持試料の SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-9 に示す。Zry-2 は球状になり溶融していたことがわかるが、 UO_2 りつぼとの反応は下部の接触面のみで限定的だった。 UO_2 りつぼ内部形状の凹凸により Zry-2 との接触が悪いため、反応が進展しにくかった可能性がある。 UO_2 と Zry-2 の接触界面では、Zr リッチの $(Zr, U)O_2$ が形成された。金属 Zr が UO_2 との反応により酸化され、U-Zr-O 相を形成したと考えられる。反応界面近傍の UO_2 りつぼはポーラス状になっており、0.5 at%程度 Zr の移行も確認された。Zry-2 のバルク金属層は、比較的均一な組織を有しており、 UO_2 から酸素の供給で $\alpha-Zr(O)$ を形成している。 $\alpha-Zr(O)$ が形成されることで融点が上昇し、凝固したため、反応が限定的だった可能性がある。金属層側にもわずかではあるが U が移行しており、U 含有相として析出している（図 3.2.3-10）。

$UO_2+Zry-2$ の組み合わせで、2200 °C×30 分保持試料の外観及び断面 BSE 像を図 3.2.3-11 に示す。Zry-2 は溶融し、溶融初期に接触していたと見られ、りつぼ側面で UO_2 と反応している。2000 °C の時に比べて全体が UO_2 と反応し、2~6 at%程度 U を含み U-Zr-O 相を形成している。Zry-2 の反応界面及びバルク部の SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-12 に示す。反応界面部及びバルク部ともに、U リッチの $(U, Zr)O_2$ 、Zr リッチの $(Zr, U)O_2$ 、 $\alpha-Zr(O)$ 相が観察された。反応界面近傍の方が外部よりも Zr リッチの $(Zr, U)O_2$ 中の U 濃度が高かった。反応界面の一部のみが反応酸化した 2000 °C の結果とは異なり、2200 °C では Zry-2 全体が UO_2 との反応、酸化し、U-Zr-O 相を形成していることがわかる。一部 Zry-2 マイナー成分の Sn、Fe の微細組織も見られた。

$(U, Zr)O_2+JAEA$ 過去試験模擬デブリの組み合わせで、2200 °C×30 分保持試料の SEM/EDS 分析結果を図 3.2.3-13 に示す。全体としては、模擬金属デブリは $(U, Zr)O_2$ と反応して、酸化物層と金属層に成層化する結果となった。模擬金属デブリ中の Zr 成分が UO_2 からの酸素を優先的に吸収し ZrO_2 を形成し、酸化物層として残存金属層と分離したと考えられる。一方で金属層側では、Zr が酸化されたことで初期組成よりも Zr 濃度が低下しているが、低酸素濃度を保っている。 UO_2 側には Zr 及び、わずかではあるが Fe 成分が移行している。金属層の微細組織 SEM-EDS 分析結果を図 3.2.3-14 に示す。ステンレス鋼由来の Fe-Cr-Ni 及び Zr を含む相を形成しているが、初期と比べて Zr 成分相が減少していることがわかる。金属層中の U 濃度はバルクでは 0.4 at%程度だが、U 含有層を形成している。

ウラン酸化物と模擬金属デブリ（ジルコニウムを含む）の反応では、2000 °C を超える温度域で反応性が増加すると考えられる。ジルコニウム単体とのウラン酸化物の反応では、ジルコニウム全体が酸化し、酸化ジルコニウム相及び $\alpha-Zr(O)$ を形成する結果となった。一方で、ステンレス鋼とジルコニウムの混合物である模擬金属デブリとウラン酸化物を反応させた場合は、模擬金属デブリ中の金属 Zr 成分が優先的に酸化して酸化物層に分離する結果となった。そのため、低酸素濃度の金属層が残存し、酸化物層と成層化を起こすと考えられる。この残存金属層では、Zr 濃度が低下するため、それに対してステンレス鋼成分である Fe 濃度が上昇すると考えられる。金属デブリと反応したウラン成分は主に U-Zr-O 相を形成して、酸化物層に存在する。ウランは金属層側に移行し、ウラン含有層を形成する可能性が考えられるが、本試験体系ではその量はごくわずかであった。

③下部プレナム破損試験

1) 圧力容器破損挙動模擬試験

令和4年度は、圧力容器下部構造や使用されている材質を参照した大型試験体を製作し、模擬金属デブリを装荷して加熱することで、圧力容器下部ヘッド破損の模擬試験を実施した。JAEAではこれまでに ELSA (Experiment on Late In-vessel Severe Accident phenomena)^[5] 試験と称して、同様の圧力容器下部ヘッド破損模擬試験を実施してきている。過去の ELSA-1 試験では、模擬金属デブリとして Zr リッチ合金 (ステンレス鋼-ジルコニウム合金の Zr リッチ共晶組成) を使用して試験を実施し、その結果、ジルコニウムとの反応により比較的低温で下部ヘッド構造物の破損が進行することがわかっている。これと比較するため、本年度の模擬試験としては、ステンレス鋼リッチ金属デブリ及び酸化物 (水蒸気により表面酸化したジルコニウム等) 存在下での下部ヘッド破損挙動を観察した。

大型試験の試験体外観を図 3.2.3-15 に示す。試験体は、BWR の CRD ハウジング溶接部近傍を模擬して製作し、試験時には下記の模擬デブリを試験体内に充填した。

- ・金属デブリ：SUS304-16wt%Zr (SS-Zr の共晶組成の内、SS リッチ側)
- ・酸化物デブリ：SUS304-16wt%Zr、Zr 単体

(水蒸気雰囲気事前に酸化処理、Zr が 50 %酸化する条件 (1200 °C-2h 保持) で実施)

本試験体バンドルを水蒸気雰囲気制御棒ブレード破損試験装置 (LEISAN : Large-scale Equipment for Investigation of Severe Accidents in Nuclear reactors) を用いて、加熱試験を実施した。温度条件としては、既報^[5]から昇温速度 4.88 °C/分にてヒータ温度 1800 °Cまで加熱した。

試験中の試験装置上部からのその場観察結果を図 3.2.3-16 に示す。時間経過による熔融プールの形成は限定的であり、CRD は融点温度に達して熔融消失した。試験後の試験体外観及び断面を図 3.2.3-17 に示す。CRD 内部は熔融したステンレス鋼が充填しており、Laves 相等の反応物の形成は確認されなかった。既報の、Zr リッチ金属デブリ (SUS304-83wt%Zr) を充填した ELSA-1 と比較すると、Fe リッチ金属デブリとジルコニウム酸化物を充填した本試験では、材料反応による熔融は限定的で温度による熔融が支配的であることがわかった。このことから、材料反応による熔融にはある程度の量の金属 Zr の存在が必要であり、また、Zr リッチ金属デブリ存在下で反応生成物 (Laves 相) の形成が生じると考えられる。

2) 圧力容器破損模擬試験の数値解析

令和3年度に実施した解析体系をもとに、Ansys Fluent (バージョン：2022R2) を用いて金属デブリ熔融プールによる、CRD 構造周辺の熔融、反応挙動を解析した。解析体系を図 3.2.3-18 に示す。試験体内に金属デブリが充填されている状態である。試験体及び試験装置の物性は令和3年度と同様の値を使用した。解析時には、Ar ガスの流入、流出及びヒータによる輻射伝熱を考慮した。金属デブリが熔融し、反応する挙動を観察するため、凝固・溶解モデルを適用し、金属デブリの液相温度/固相温度を設定した。公開されている高温での材料間反応 (インコネル材-ジルコニウム等) データ^[6]をアレニウス式に変換して、反応速度を設定した。公開文献での値を使用した試解析結果を図 3.2.3-19 に示す。インコネル材-ジルコニウムの反応生成物の分布から、金属デブリ側にインコネル材の Ni が溶出する挙動を確認した。MEISAN で実施した試験 (図 3.2.3-5) において、金属デブリ側に Ni-Zr の反応物が生成することが確認されており、解析でこの傾向を表現できることを確認した。

(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、破損挙動及び燃料ウランと反応挙動を実験的に求めるために、反応試験を実施した。また、ステンレス鋼リッチ模擬金属デブリとジルコニウム酸化物存在下での圧力容器破損挙動理解のため模擬試験を実施した。模擬金属デブリと構造材の反応試験では、インコネル材の反応溶融速度がステンレス鋼のそれよりも速い傾向を示した。ステンレス鋼は反応界面に反応層が形成され、溶融進展が抑制されると考えられる。ウラン酸化物と模擬金属デブリの反応試験では、金属 Zr 単体では U-Zr-O の酸化物層が形成される結果となった。一方で、模擬金属デブリ（ステンレス鋼-ジルコニウム混合物）では金属 Zr のみが酸化され、酸化物層と金属層に分離する結果となった。ウラン酸化物との反応においても低酸素濃度の金属層は残存するが、Zr 成分は低下する傾向があると考えられる。圧力容器破損試験においては、ステンレス鋼リッチ模擬金属デブリとジルコニウム酸化物存在下では、材料反応による溶融は限定的であり、温度上昇による溶融が支配的になると考えられる。既報の Zr リッチ模擬金属デブリを用いた模擬試験と比べて反応溶融が遅く、反応生成物の形成も抑制される結果となった。

参考文献

- [1] debrisWiki, <https://fdada-plus.info/wiki/> (参照：2023年4月13日)。
- [2] 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.
- [3] 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.
- [4] Pshenichnikov, A, Kurata, M, Nagae, Y, An Investigation of the microstructure and phase composition of the Zr bearing metallic debris in a bypass channel of a BWR fuel after the exothermic reaction in the CLADS-MADE-04 test, Proceedings of the International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (FDR2022), Vol.2022, 2022.
- [5] Yamashita, T, Sato, T, Madokoro, H, Nagae, Y, BWR Lower Head Penetration Failure Test Focusing on Eutectic Melting, Ann. Nucl. Eng., vol.173, 2022, 109129.
- [6] Hering, W, Hofmann, P, Material Interactions during Severe LWR Accidents Summary of Separate-Effects Test Results, KfK-5125, April 1994, 70p.

表 3. 2. 3-1 金属デブリ-構造材反応試験の試験条件

温度 ℃	保持時間 min	昇温速度 ℃/h	雰囲気	試料	
				模擬デブリ	構造材
1000	120	800	Ar	SS-83wt%Zr ペレット	SUS304 板材, Inconel600 板材
1100	60	800	Ar	SS-83wt%Zr ペレット	SUS304 板材, Inconel600 板材
	120				
1200	60	800	Ar	SS-83wt%Zr ペレット	SUS304 板材, Inconel600 板材
	120				
1300	10	800	Ar	SS-83wt%Zr ペレット	SUS304 板材, Inconel600 板材
	30				

表 3. 2. 3-2 構造材の反応量

温度 ℃	時間 min	反応量 μm	
		インコネル	ステンレス
1000	120	329.44	42.42
1100	60	516.40	61.45
	120	726.56	97.62
1200	60	689.22	225.87
	120	2374.05	468.75
1300	10	5360.00*	680.99
	30	5330.00*	1794.75

*インコネル板材の全量が溶融。

表 3.2.3-3 金属デブリ-構造材の反応速度

温度, °C	反応速度 k , m^2/s	
	インコネル	ステンレス
1000	1.39.E-05	8.67.E-08
1100	7.36.E-05	1.23.E-06
1200	5.05.E-04	2.44.E-05
1300	-	1.50.E-03

表 3.2.3-4 模擬金属デブリとウラン酸化物の高温反応試験の試験条件

るつぼ材	金属材	温度, °C	保持時間, min	昇温速度*, °C/min	冷却速度, °C/min
UO ₂ 4.984g	Zry-2 0.105g	2000	10 min	27	40
UO ₂ 5.056g	Zry-2 0.073g	2200	30 min	27	40
(U, Zr)O ₂ 4.858g	ステンレス-ジルコ ニウム 模擬金属デブリ* 0.1728g	2200	30 min	27	40

*JAEA が過去に実施した制御棒ブレード崩落試験[4]の模擬金属デブリ

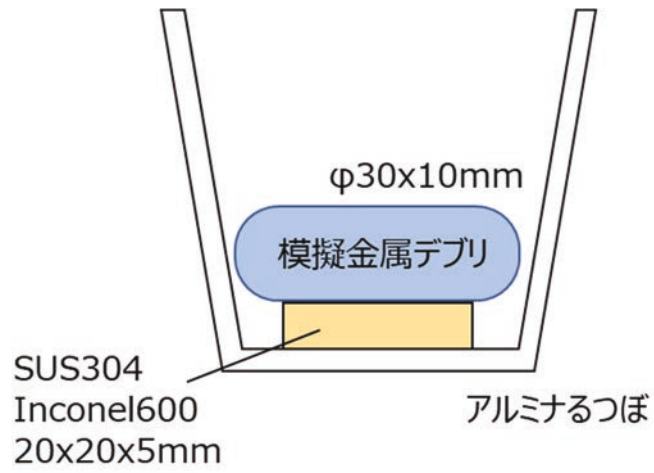


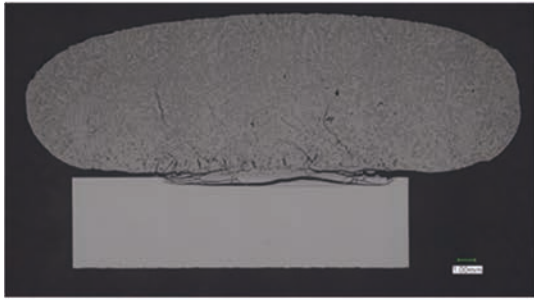
図 3. 2. 3-1 試験体模式図



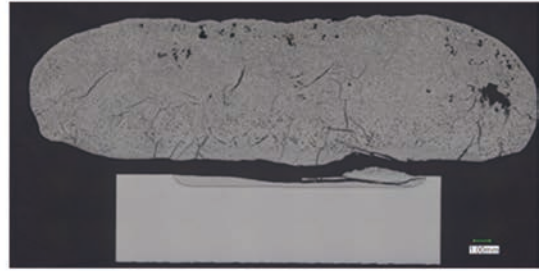
図 3. 2. 3-2 MEISAN 試験装置外観 (炉内)



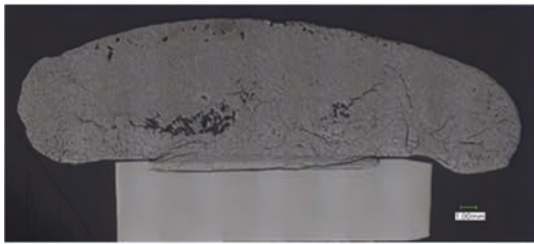
1000 °C 120min保持



1100 °C 60min保持



1100 °C 120min保持



1200 °C 60min保持



1200 °C 120min保持

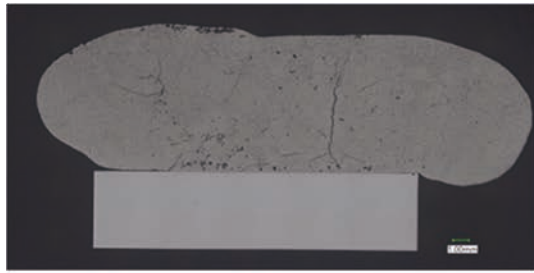


1300 °C 10min保持

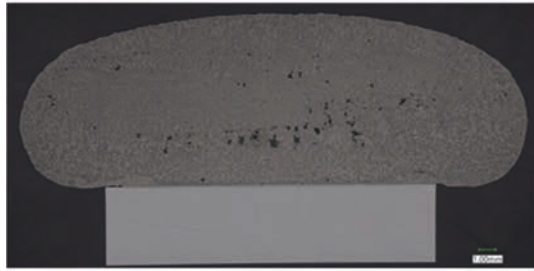


1300 °C 30min保持

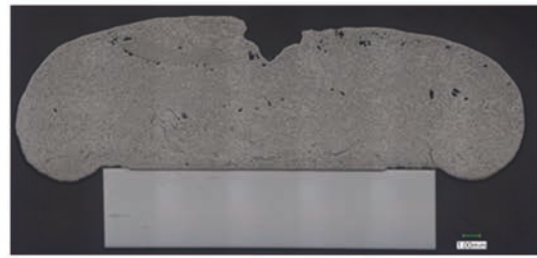
図 3.2.3-3 インコネル試験体断面の光学顕微鏡観察結果



1000 °C 120min保持



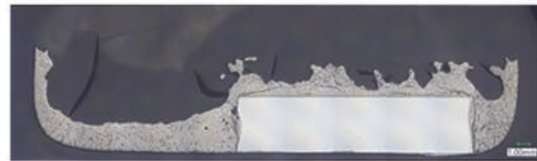
1100 °C 60min保持



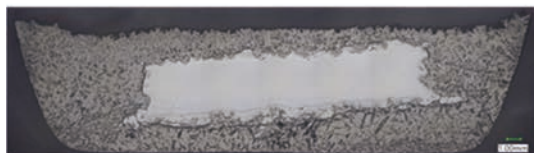
1100 °C 120min保持



1200 °C 60min保持



1200 °C 120min保持



1300 °C 10min保持



1300 °C 30min保持

図 3.2.3-4 ステンレス鋼試験体断面の光学顕微鏡観察結果

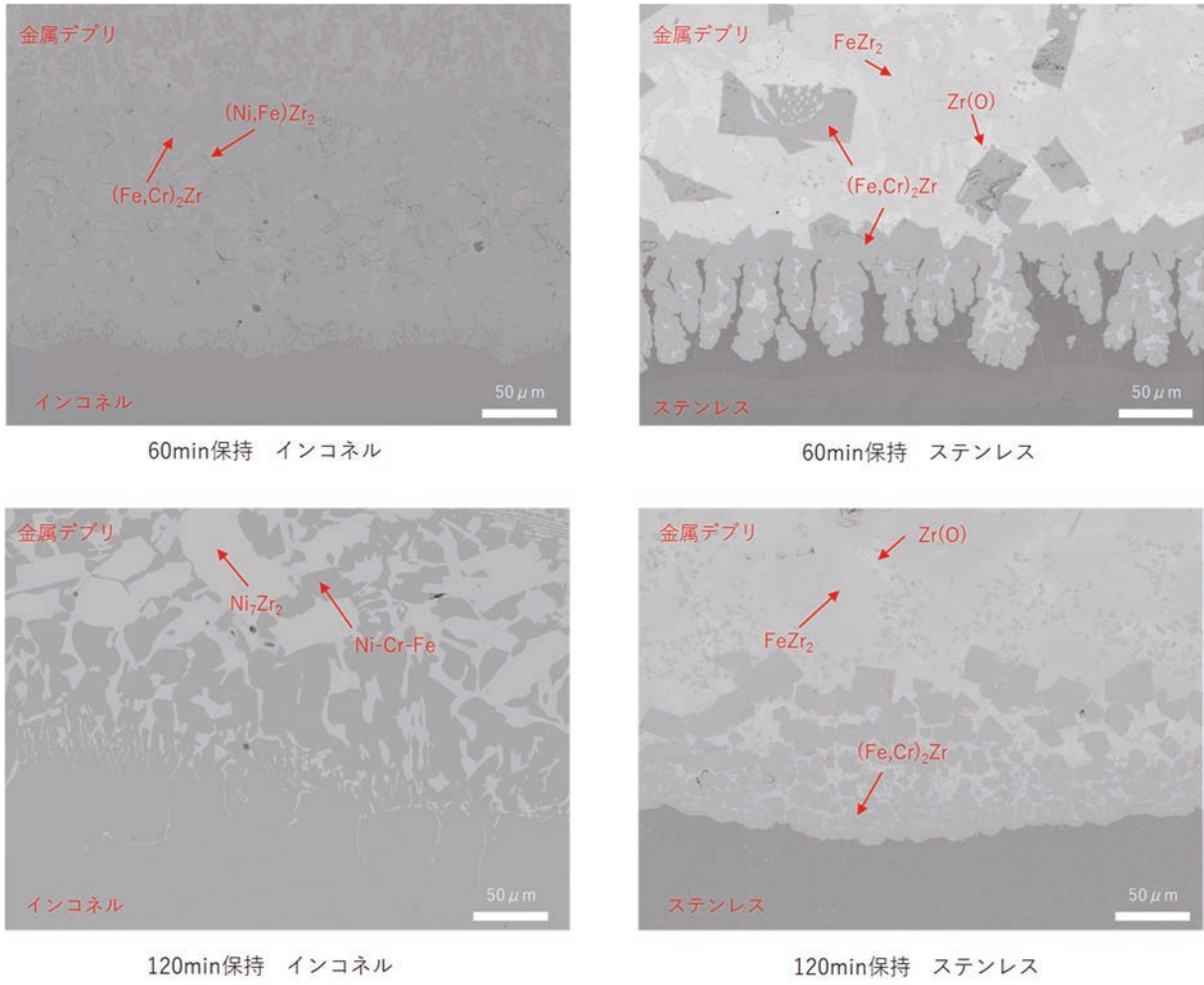


図 3. 2. 3-5 1200 °C保持試験の模擬金属デブリ-構造材反応界面の SEM/EDS 分析結果

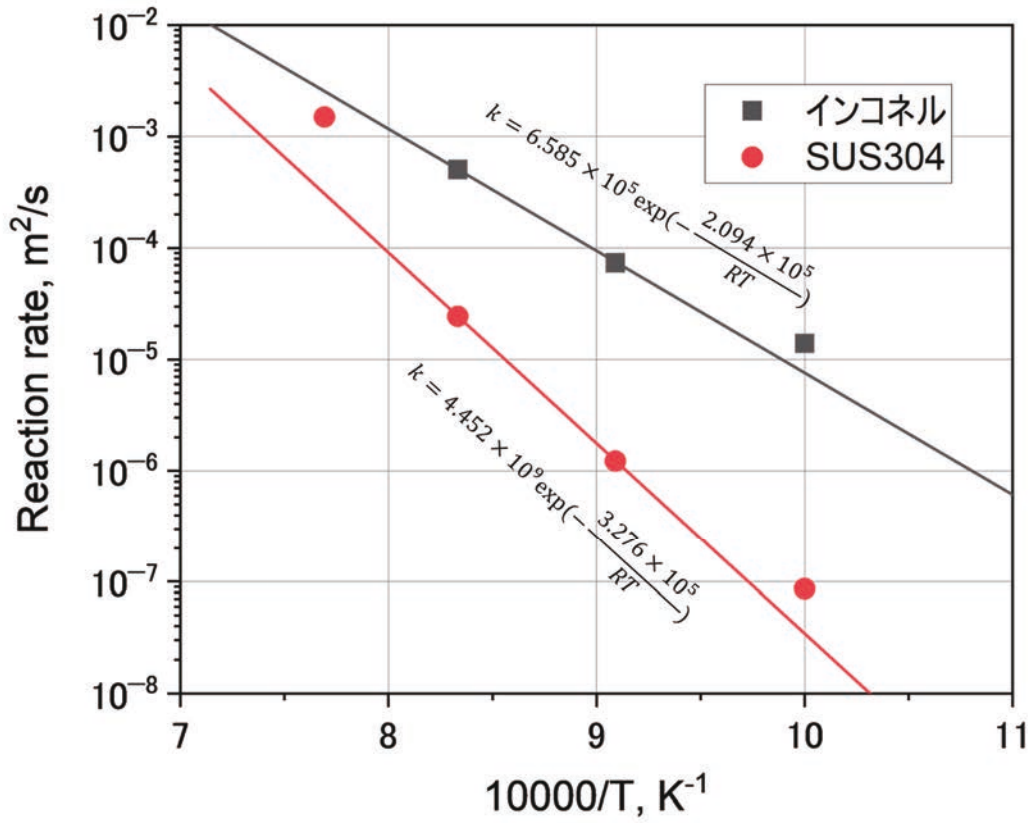


図 3.2.3-6 金属デブリ-構造材の反応速度

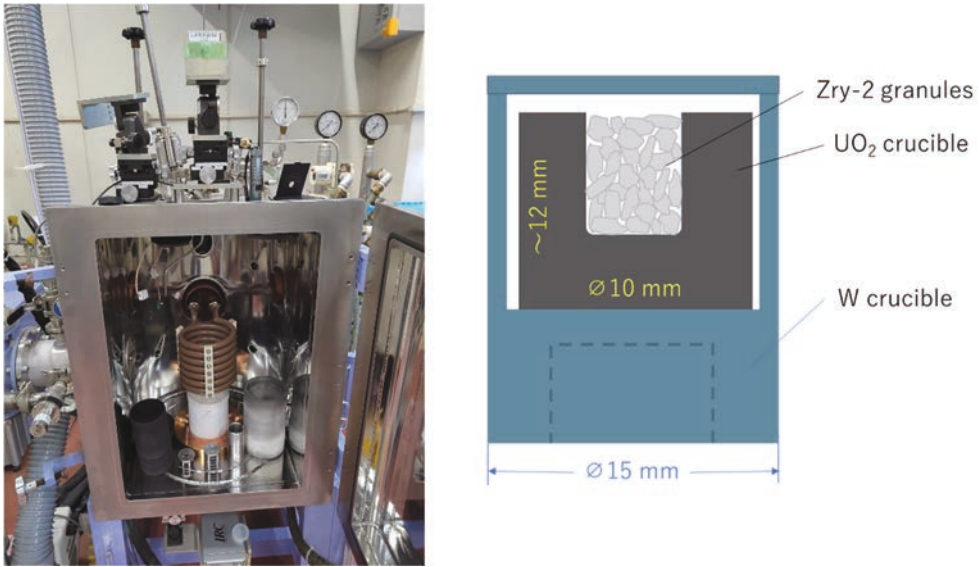
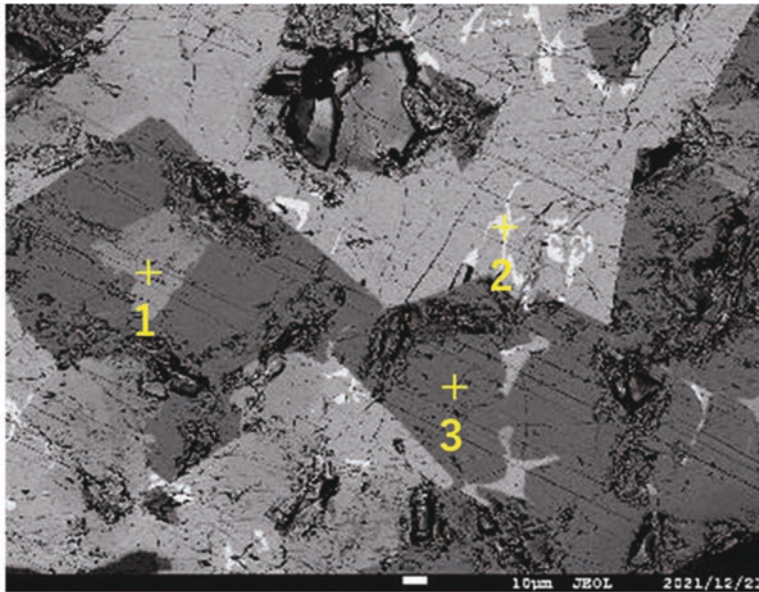
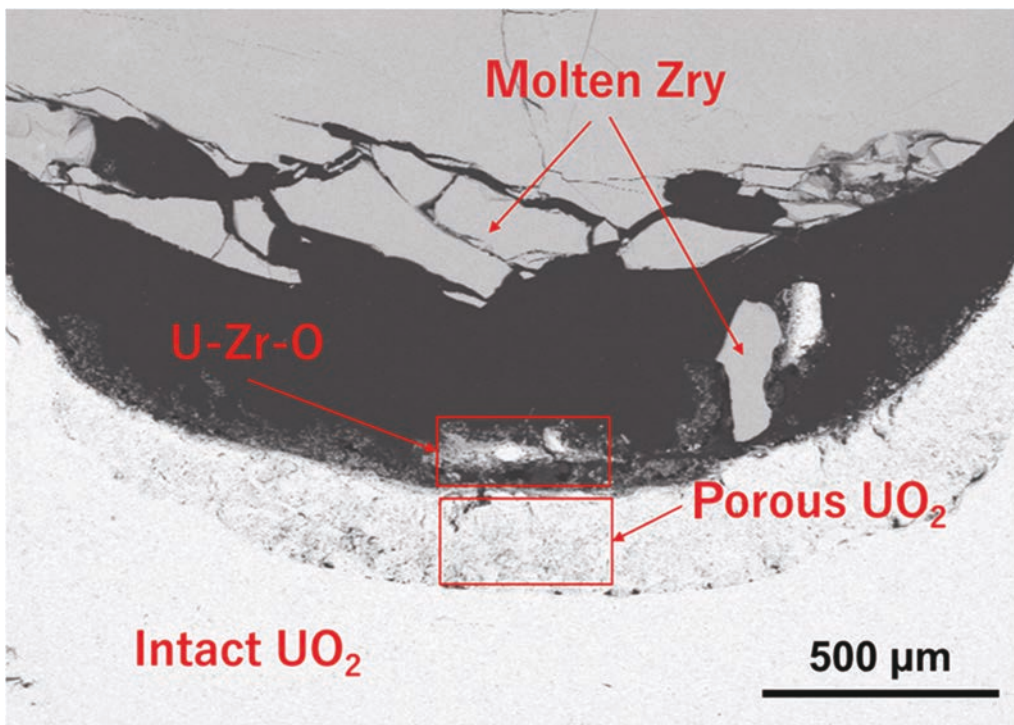


図 3.2.3-7 高周波誘導炉外観及び試験体模式図



Point	Elemental content, at %							
	O	Mn	Fe	Cr	Ni	Mo	Sn	Zr
1	9.2	0.6	26.9	10.7	2.1	0.8	-	49.7
2	-	-	9.5	-	4.1	-	18.1	68.3
3	4.3	0.7	48.6	14.5	2.0	-	-	29.9

図 3.2.3-8 模擬金属デブリ SEM-EDS 分析結果



Area	Average elemental content, at %			
	O	Zr	Sn	U
Molten Zry (bottom part)	24.5	74	1.3	0.1
U-Zr-O	74	16.5	0.2	9.3
Porous UO ₂	76	0.5	0.5	23
Intact UO ₂	72	0.2	0.8	27

図 3. 2. 3-9 U₂O₃+Zry-2 2000 °C 10 分保持試料の SEM-EDS 分析結果

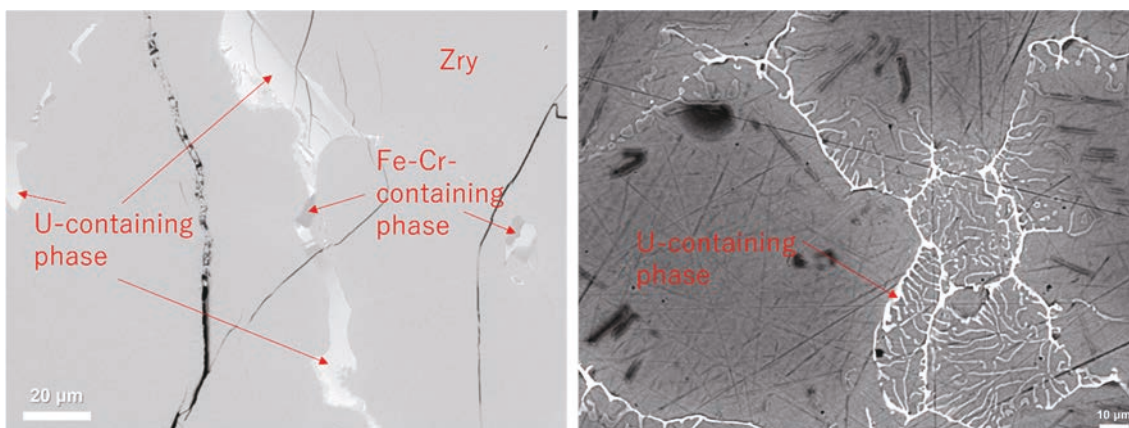


図 3. 2. 3-10 U₂O₃+Zry-2 2000 °C 10 分保持試料の溶融 Zry-2 中の微組織 SEM-EDS 分析結果

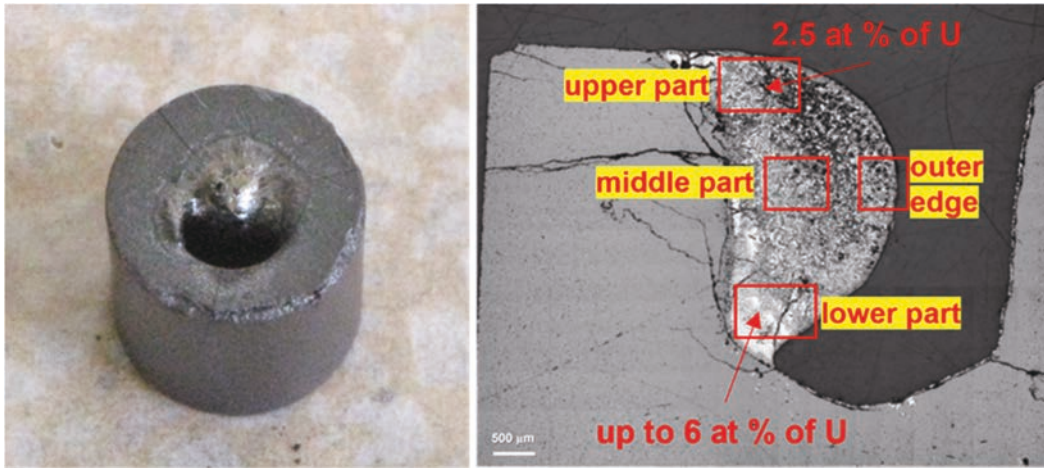
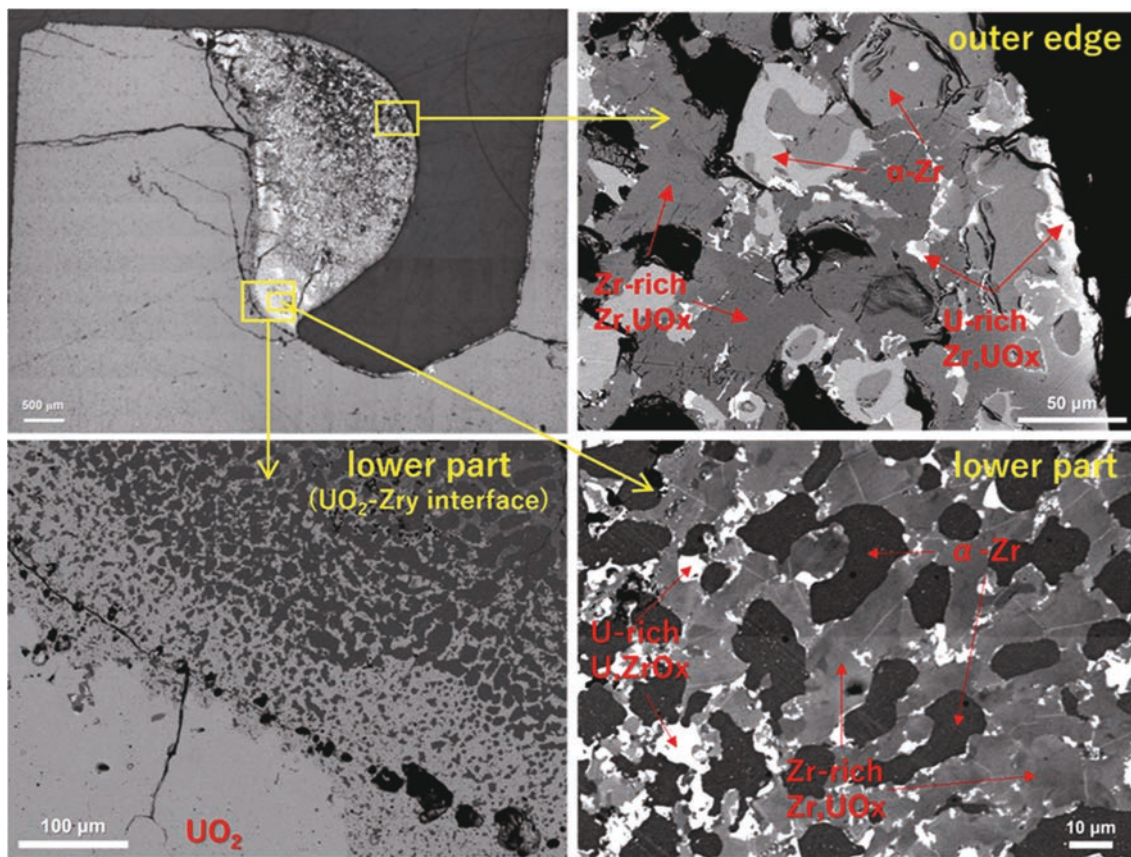
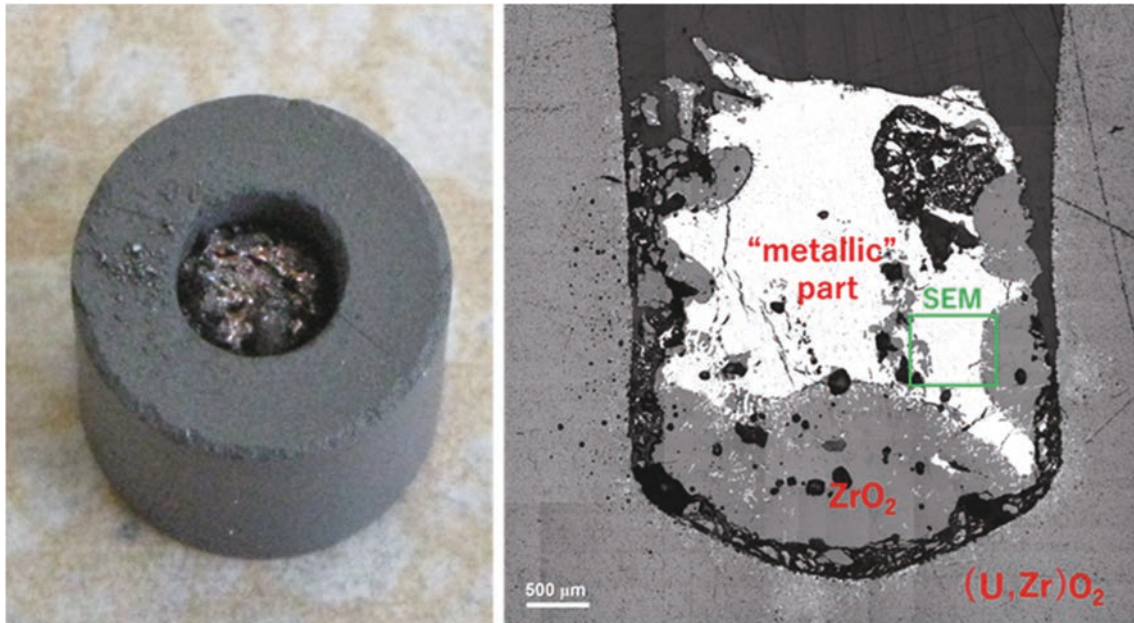


図 3.2.3-11 $UO_2+Zry-2$ 2200 °C 30 分保持試料の外観及び断面 BSE 像



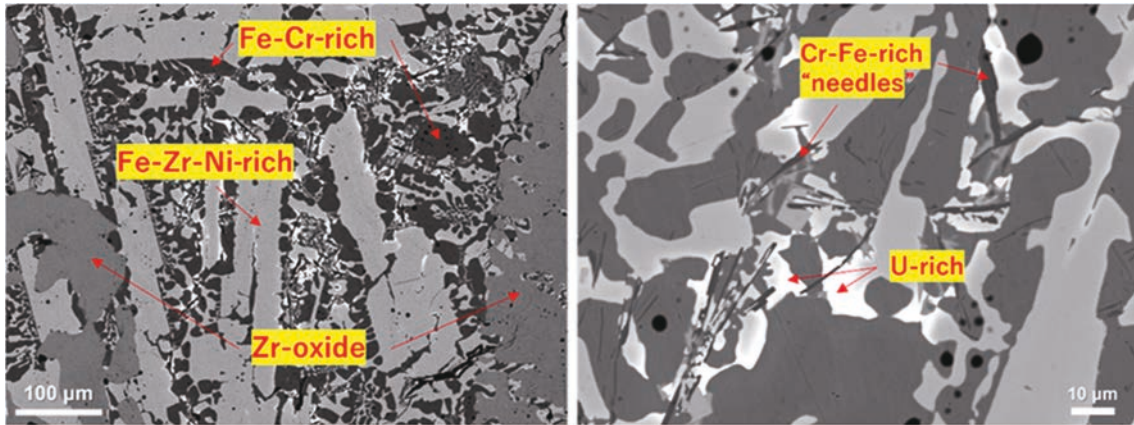
Area /phase (analysis point #)	Elemental content, at %				
	O	Fe	Zr	Sn	U
Main phases					
Zr-rich (Zr,U)O ₂ (lower part)	70-72	< 0.1	20-22	0.1-0.3	7.5-8.4
Zr-rich (Zr,U)O ₂ (middle part)	67-71	< 0.1	24-28	<0.1	4.3-5.5
U-rich (U,Zr)O ₂	72-73	0.1-0.2	9	0.4-0.6	18
α-Zr(O)	33-38	<0.1	61-66	0.1-0.5	0.3-0.4
Minor phases					
Zr-Sn-rich	26-30	0.1-0.4	45-48	24-26	0.4
(Zr,U,Fe)O ₂	62.9	5.2	17.3	0.3	14.3

図 3. 2. 3-12 UO₂+Zry-2 2200 °C 30 分保持試料の SEM-EDS 分析結果



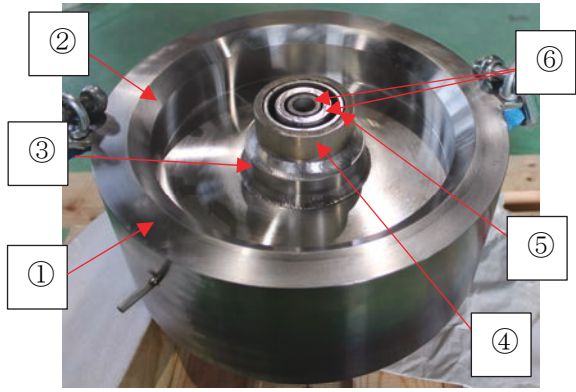
Area	Average elemental content, at %						
	O	Fe	Cr	Ni	Zr	Sn	U
UO ₂ crucible (interface)	71	0.7	0.3	0.3	6	0.5	22
Metallic part	10	53	12	10	14	0.3	0.4
Zr-oxide	66	0.1	-	-	34	-	< 0.1

図 3.2.3-13 (U, Zr)O₂+JAEA 過去試験模擬デブリ 2200 °C 30 分保持試料の SEM-EDS 分析結果



Phase	Average elemental content, at %							
	O	Cr	Fe	Ni	Zr	Mo	Sn	U
Light grey Fe-Zr-Ni-rich	15	4	44	13	22.5	0.3	0.7	0.1-0.4
Dark grey Fe-Cr-rich	5	23	67.5	3	0.1	1.4	0.1	nd
Zr-oxide	65.5	0.2	0.5	0.1	34	nd	nd	0.1
Cr-Fe-rich "needles"	3	58	35	0.5	0.3	2.5	nd	0.1
Grey Fe-Zr-Ni-rich	12	6	50	12	19	0.2	nd	0.6
U-rich phase	17.5	3	38	19	12.5	0.7	0.2	6-13
Grey Mo-Cr-Fe-rich	5	35	20	0.7	1.7	38	nd	nd

図 3.2.3-14 (U, Zr)₂O₇+JAEA 過去試験模擬デブリ 2200 °C 30 分保持試料の金属層微細組織の SEM-EDS 分析結果



試験体外観
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 模擬パイプ (ステンレス鋼)



模擬デブリ装荷状態

図 3. 2. 3-15 試験体外観

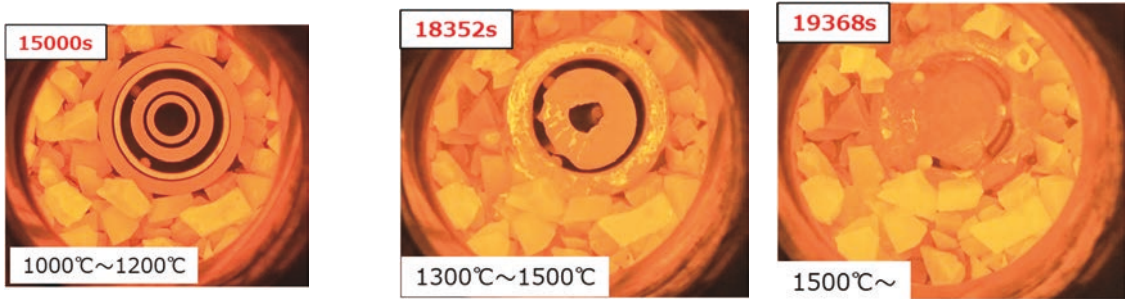


図 3. 2. 3-16 試験中の様子 (上部からのその場観察)



図 3. 2. 3-17 試験後の試験体外観及び試験体断面

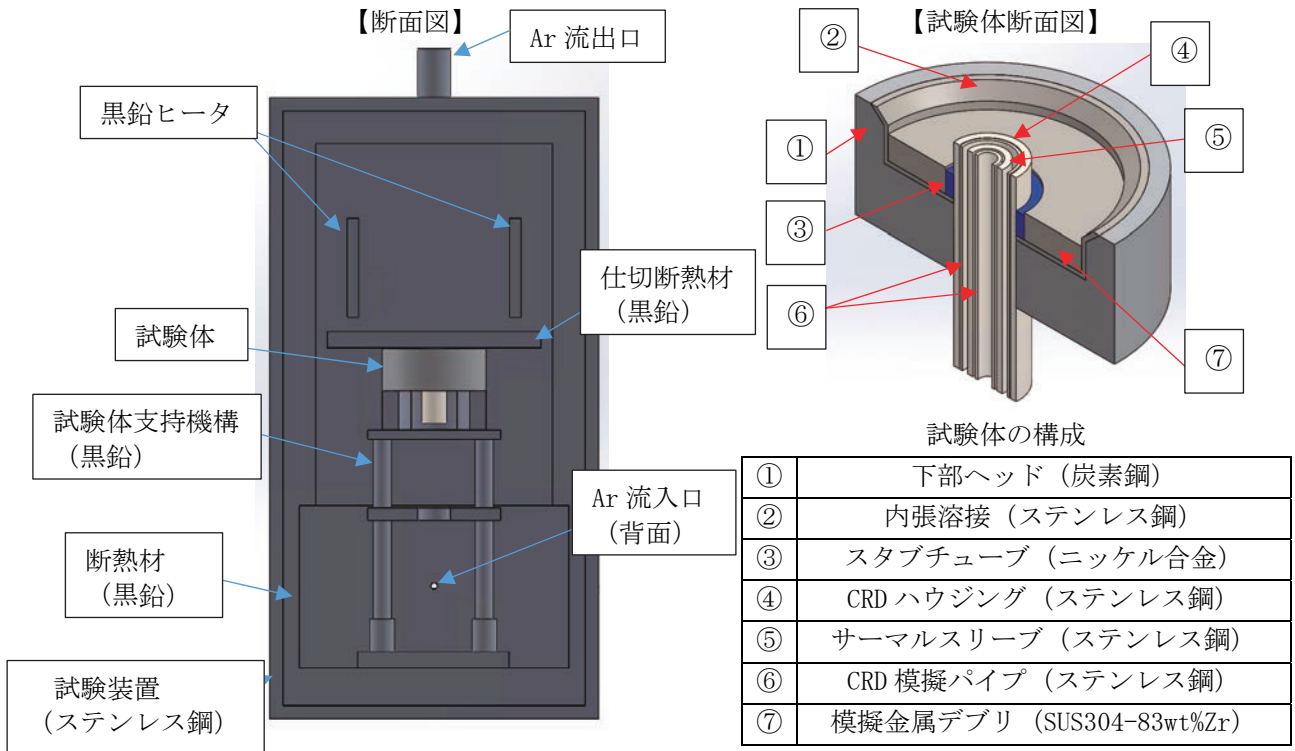


図 3.2.3-18 解析体系

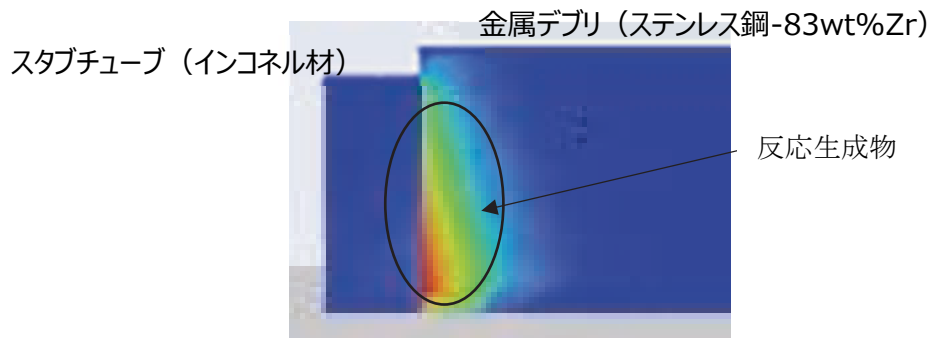


図 3.2.3-19 試解析結果 (インコネル材-金属デブリとの反応生成物の分布)

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（令和3年度～令和4年度）

(1) 令和3年度までの概要

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、1F2、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及びRPV破損挙動の解明を検討した。令和3年度は既報のシビアアクシデント（SA）解析結果などをまとめて、事故シナリオを整理した。2、3号機ともに、下部プレナムでの溶融金属プールの形成、これによる圧力容器の初期破損、圧力容器外への初期流出が起こった可能性が挙げられた。溶融金属プール形成後の酸化物デブリを含む炉心落下物苞の相互反応による金属デブリの形成変化、構造物を反応溶融させることによる圧力容器破損挙動に着目する必要があることを確認した。

(2) 令和4年度実施内容及び成果

3.2節「金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価」では、それ以下の項でそれぞれ金属デブリの形成とこれによる圧力容器破損挙動に着目した模擬試験を実施している。本節では、これらの試験から得られた結果を総括し、その事故時における金属デブリの挙動をまとめる。

1F2、3号機では、下部プレナムで溶融金属プールが形成され、それが圧力容器破損を引き起こした可能性が挙げられている。令和3年度では1Fプラントデータ及びSA解析結果から事故シナリオを整理し、内部調査結果とも比較して金属デブリの形成、格納容器への流出の可能性を整理した^[1]。代表として2号機事故シナリオ^[1]を図3.2.4-1に示す。炉心が溶融し、その後のスランピングで下部プレナムに落下する。その後、下部プレナムにおける炉心溶融物の再溶融過程初期において、金属成分が溶融しプールを形成する可能性がある。この溶融金属により圧力容器の初期破損が発生し、溶融金属が先行的に格納容器へと流出した可能性があると考えられている。3.2節では、この金属デブリの形成から圧力破損までの挙動を理解するためにそれぞれ模擬試験を実施している。本節で着目している金属デブリ挙動の概略図を図3.2.4-2に示す。主に溶融金属形成と、その後の圧力容器破損挙動に着目して各模擬試験を実施している。

①金属デブリの形成メカニズム

ペDESTALでの溶融金属形成までの金属デブリの反応過程に着目して、模擬試験を実施した。

3.2.1項では炉心で溶融した金属がスランピング中に、炉内構造物に接触した際の反応挙動を評価している。ステンレス鋼-ジルコニウムの模擬金属デブリ溶融物を構造材（ステンレス）に流下、接触させる模擬試験では、Zr濃度、鋼材温度が高いほど、模擬金属デブリと鋼材が反応する挙動を示した。1000℃以下の低温域では、模擬金属デブリは鋼材との反応は限定的なものであり、鋼材表面に固着する結果となった。この場合は、金属デブリは反応性が小さく、金属成分が高い金属デブリが固着して残存すると考えられる。

3.2.2項では溶融金属プール中に炉心で残存した制御棒が崩落した際の金属デブリの挙動を評価している。溶融ステンレス中にB₄Cペレットを接触させ、その反応挙動を確認している。B₄Cは溶融ステンレス中に溶解していくが、界面付近においてクロムホウ化物と炭素の反応層を形成する。特にこの界面近傍の炭素濃度が律速となり、B₄Cの溶解速度は低下していくことが確認されている。ホウ化物は高融点化合物であるが、主に接触部付近に形成されること、炉内の物質バランスにおいてステンレス材の量が多いことから、B₄Cが溶融する状況でも溶融金属プールはステンレス鋼-ジルコニウム混合物として形成されると考えられる。

3.2.3項では溶融金属プールの形成時における、周囲の酸化物デブリとの反応挙動を評価している。模擬金属デブリとウラン酸化物の反応試験を実施している。金属側がジルコニウム単体の場合、酸化還元反応により、ジルコニウム全体が酸化されU-Zr-Oの酸化物層を形成する。一方で、ステンレス鋼-ジルコニウム混合物の場合、Zrは酸化され酸化物層が形成されるが、低酸素濃度の金属層が残存し、2層に成層化する結果となった。ウラン酸化物の存在下において金属デブリ（溶融金属）は形成されると考えられる。

ステンレス鋼-ジルコニウムの金属デブリは、B₄Cやウラン酸化物と反応したとしても、溶融金属としてペDESTALにて形成される可能性がある。特に金属デブリ中のジルコニウム濃度が構造

材及び酸化物デブリとの反応性に寄与すると考えられ、これらの反応により徐々に金属デブリ中のジルコニウム濃度が低下する傾向があると考えられる。

②圧力容器破損メカニズム

金属デブリによる圧力容器破損メカニズムの評価のため、3.2.3項では金属デブリ-構造材の要素試験及びペDESTAL構造物を想定した模擬試験を実施している。Zrリッチ模擬金属デブリ（ステンレス鋼-ジルコニウム）と構造材（ステンレス鋼、インコネル鋼）の反応試験を実施した。構造材融点以下の低温域においても金属デブリによる反応溶解が進行し、特にインコネル鋼との反応溶解速度が速い結果となった。

圧力容器破損模擬試験では、ステンレス鋼リッチでの模擬金属デブリ（ステンレス鋼-ジルコニウム）による CRD 構造部の破損挙動を観察した。この条件下では、模擬金属デブリと構造材間の反応は遅く、主として温度上昇によって構造材融点（約 1500 °C）で溶解破損挙動が起こる結果となった。JAEA で過去に実施した Zr リッチ模擬金属デブリを用いた同様の試験^[2]では、模擬金属デブリ中の Zr とインコネル材が反応溶解することで、インコネル材融点以下の比較的低温（約 1200 °C）で圧力容器の破損が進行する結果であった。また、過去の試験では Fe-Zr 反応物がプール上面に形成されていたことに対して、本試験では反応物の形成は見られなかった。

金属デブリの形成挙動と同様に、圧力容器破損についても金属デブリ中の Zr 濃度が大きな影響を与えると考えられる。金属デブリ中のジルコニウム濃度が高い場合は、材料反応による溶解が融点以下の低温で進行し、特にインコネル材が優先的に溶解する可能性が挙げられる。一方で、模擬金属デブリが低ジルコニウム濃度の場合、構造材との反応は限定的で熱や機械的破損が支配的になると考えられる。

(3) まとめ

3.2 節「金属デブリの混合・溶解・凝固状態の評価」で実施している模擬試験結果を総括し、事故時における金属デブリの形成挙動及び金属デブリによる圧力容器破損挙動を整理した。溶解金属デブリ形成に関しては、スランピング流路中では溶解ジルコニウム濃度が鋼材との反応性に寄与していることを確認した。また、溶解金属プール形成時における酸化物デブリとの反応においてもジルコニウムが反応に寄与し、ウラン-ジルコニウムの酸化物層とステンレス鋼-ジルコニウムの低酸素濃度金属層に分離することを確認した。各種反応によりジルコニウム濃度は低下する傾向にあるが、低酸素濃度の金属デブリがペDESTAL部で溶解プールを形成する可能性が考えられる。

金属デブリによる圧力容器破損挙動についても、金属デブリ中のジルコニウム濃度が反応に大きく影響する。金属デブリが高ジルコニウム濃度の場合、構造材と共晶反応を起こし、比較的低温で構造物の溶解が進行する可能性がある。一方で、ジルコニウム濃度が低い場合、構造材との反応は限定的であり、温度上昇による熱破損や、機械的破損など従来考えられていた破損モードが支配的になると考えられる。

参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構, 福井大学, 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, 令和3年度成果報告書, 2023.
- [2] Yamashita, T, 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>

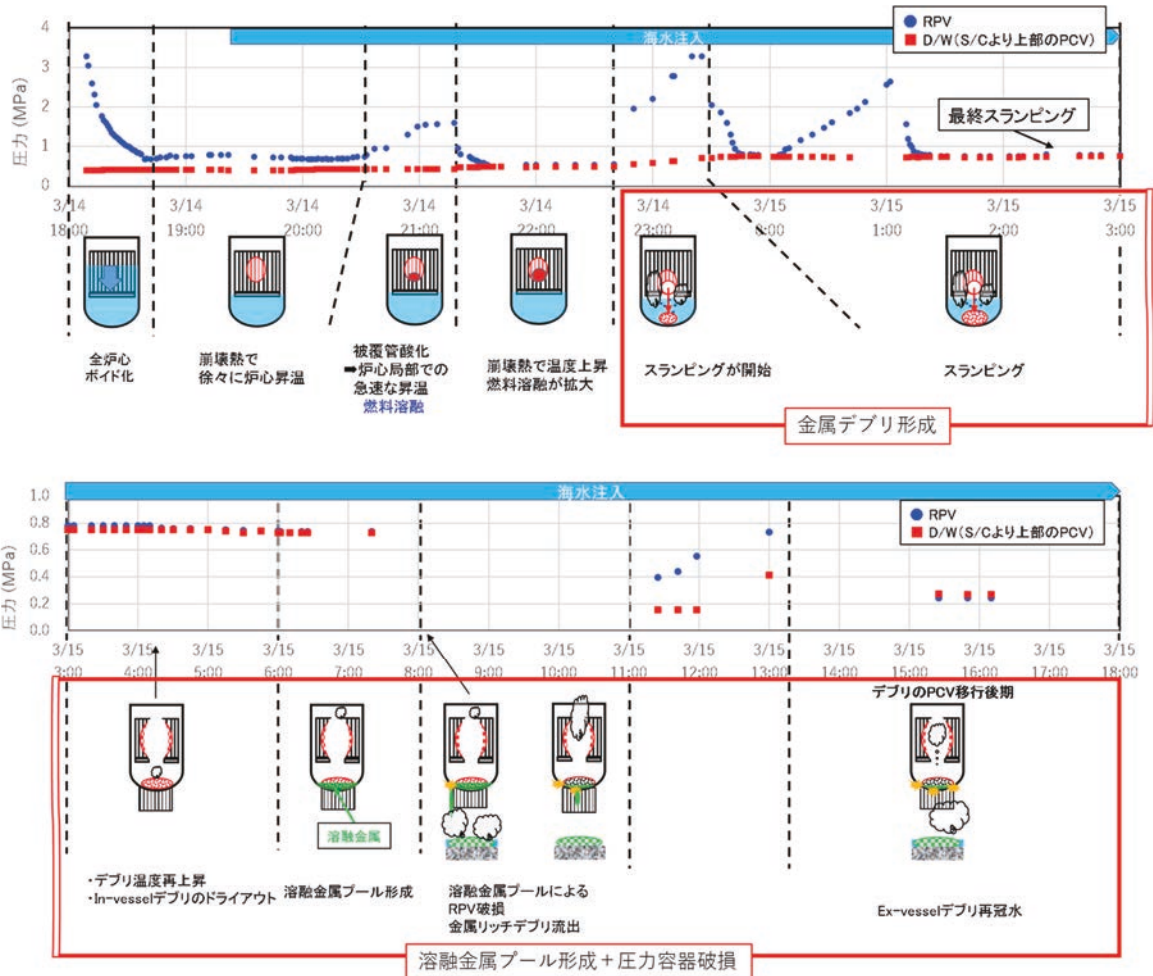
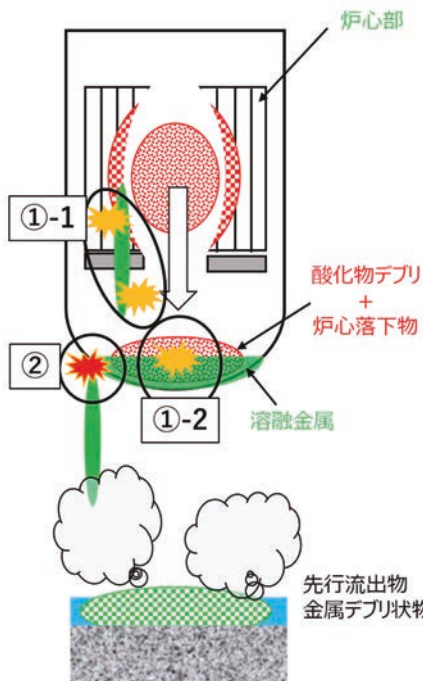


図 3.2.4-1 2号機事故シナリオ^[1] (RPV破損まで)



金属デブリの挙動		
対象現象	場所	対象現象、節
金属デブリ形成	①-1	金属デブリ流下時の鋼材との反応 3.2.1
	①-2	ステンレス融体への個体構造物の溶融 3.2.2 模擬金属デブリと酸化物デブリの反応 3.2.3
圧力容器破損	②	金属デブリと構造材の反応 3.2.3 金属デブリによる圧力容器破損 3.2.3

図 3.2.4-2 金属デブリ挙動の概略図

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、酸化燃料デブリ化学状態の調査

(1) 令和3年度までの概要

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、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-Fe₂O₃-ZrO₂ 混合物を用いた予備実験を実施し、1) 酸化燃料・金属の混合物を熔融、2) 出力を下げて固液二相状態を作製、3) ステンレス棒を上部から挿入、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 主成分及び中部に Fe-Zr 主成分の金属領域、周辺部に酸化物が得られて、蛍光 X 線分析と平衡計算の比較により固液共存状態の熔融物を作製できたことを確認した。

(2) 令和4年度実施内容及び結果

① はじめに

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 事故条件に比べて数百℃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、熔融金属デブリに酸化物が部分的に熔融した“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、熔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もつと思われる。令和4年度は、令和3年度に整備したコールドクルーシブル装置と試料作製手順及び策定した組成条件 (UO₂-22ZrO₂-22Zr mass%) に基づいて、半熔融状態で混合した状態の模擬デブリを作製し性状分析を実施した。

② UO₂-ZrO₂-Zr 半熔融デブリ作製実験

1) 実験方法

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、高温熔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下で実施された。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。

予め酸化燃料試料 (UO₂, ZrO₂) 598.6 g をクルーシブルに充填した上に初期溶解用に 5.1 g の Zr 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熔融し、そのまま 390 秒維持して熱平衡させた。Ar ガスを炉下部から 19.0 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、171.0 g の Zr 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 8.2 l/min まで減少させて炉内制御を行った。完全に放電を防ぐことは難しかったが徐々に出力を下げ 480 秒に渡って熱平衡させ、固液二相状態を作製した。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、1377 °C まで上昇するのを確認し、挿入後 10 秒で電源を落とし反応部を冷却し試料を完全に凝固させた。

試験後、コールドクルーシブル内部の試料を取出して断面を上部・中部・下部に分けて6つの領域に切り出し、樹脂埋め、研磨して、SEM/EDS/WDSにより金属組織観察を行った。また、コールドクルーシブルに設置されている集塵機のフィルターを回収して付着したエアロゾルを観察した。

得られた試料断面はSEM/EDSによってスクリーニングを実施した後、特に高い評価精度が求められる領域について再度SEM/WDSを実施した。樹脂埋めした試料の表面には導電性を確保するためにカーボンを10~30 nm蒸着させた。校正に際しては60個の標準試料（カーボンコーティングあり）を用いた。標準試料を用いた校正によりEDS及びWDSの評価精度はそれぞれ0.1 wt%、0.01 wt%と見積もった。組織観察によって得られた組成情報とTAF-IDデータベース(ver. 14)^[1]を用いて高温反応試験中における温度の分布を平衡計算によって逆推定し、目的とする半熔融状態が達成されたかについて評価した。

2) 結果と考察

(a) 試験前後の重量変化

試験前後の重量変化を下記の式によって算出した。

$$\Delta m = m_{\text{ox}} + m_{\text{st}} + m_{\text{Zr}} + m_{\text{SS}} - m_{\text{cc}} \quad (3.3.1-1)$$

ここで、 Δm は重量変化、 m_{ox} は酸化物 (UO_2 、 ZrO_2)、 m_{st} は初期溶解用に用いた Zr 小片、 m_{SS} は挿入したステンレス鋼、 m_{cc} は試験後にコールドクルーシブルに残留した物質を意味する。投入した Zr 棒の約3分の2は溶けずに残った。

(b) 試料下部の観察結果

試料下部には均一な U-Zr 酸化物 ($(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$)、U 酸化物 (UO_{2-x}) と、不規則な共晶組織が見られる。このうち、共晶組織は冷却開始時点において液相であったと考えられる。したがって、共晶組織の平均組成が液相線に一致するような状態図をもつ温度がわかれば、それが反応時の領域平均温度であったと推定することが可能である。共晶領域組成は2300℃の液相線に近く、共存する $(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$ 酸化物の組成は概ねタイライン上に位置していることから、下部領域の凝固時の温度は約2300℃程度であったと考えられる。共晶領域における Zr/(U+Zr) (at%比) は0.58であり、初期溶解に用いた酸化物中の値(0.54)に対して若干U高濃度側にシフトする結果となった。

(c) 試料中部の観察結果

試料中部には、金属 Zr(0)、 $(\text{Zr}, \text{U})\text{O}_2$ 酸化物及び共晶組織が観察された。各組織の平均組成を状態図と照合すると、 $(\text{Zr}, \text{U})\text{O}_2$ と Zr(0) の二相領域、これに液相を含む三相領域又は Zr(0) と液相の二相領域のいずれかに対応している。観察された組成は Zr 投入前の U/Zr よりも Zr-0 側にシフトしており、この領域では投入した Zr の溶解による Zr(0) 化が進行したと考えられる。一方、試料中部の中心から外れた領域では、中心部に比べて共晶組織が顕著に見られた。試料中部は全体として2000℃における状態を示しているが、中心部は Zr 溶解後の凝固がより進行したが、中心から外れた領域では凝固の程度が小さかったことが示唆される。

(d) 試料上部の観察結果

この部分は投入した Zr 棒の先端が酸化物融体に浸漬して溶解しかかっている状態で試験が終了し、冷却凝固したと考えられる。酸化物融体に浸漬していたと考えられる部分には、Zr 高濃度の酸化物 ($(\text{Zr}, \text{U})\text{O}_2$) と金属 Zr(0) が線状に組織を形成しており、局所的に U 高濃度の酸化物

(U, Zr)O₂ (Zr/(U+Zr) (at%比) ~ 0.53) が析出していた。また、Zr 棒と浸漬部の境界領域は金属 Zr(0) とウランをほとんど含まない ZrO₂ 酸化物となっていた。Zr 棒の内部には多くの亀裂が見られ、拡大すると亀裂の内部に細かい物質が入り込んでいた。亀裂内部（黒くみえる部分）について数点選択して WDS 点分析を実施したところ、ステンレス鋼の成分が含まれていることが確認された。未反応部に多く見られる亀裂は、酸化物融体からの伝熱により温度が上昇し強度が低下したことによる影響と考えられる。すなわち、酸化物融体に投入された Zr 棒は、先端が浸漬により溶解するとともに熱的負荷によって亀裂が入りやすくなり、後から投入したステンレス鋼が溶融した際にその成分が亀裂内部に入り込んだと推定される。

(e) エアロゾルの観察結果

集塵機で回収したエアロゾルの組織観察を行った。一つ目のサンプルからは、初期溶解させた酸化物の Zr/(U+Zr) (at%比) に近い値 (0.56) をもつ粒子状の (U, Zr)O₂ 粒子と Zr をほとんど含まない UO_{2-x} 粒子が確認された。組成分析の結果から非球状の飛散物質には Fe と U が共存していることが示唆される。二つ目のサンプルからは、Zr を含まない UO_{2-x} 粒子が確認された。一方、三つ目のサンプルからは Zr が濃化したような (U, Zr)O₂ 粒子 (Zr/(U+Zr) (at%比) = 0.69) と、Zr を含まない UO_{2-x} 粒子が確認された。Zr 及び ZrO₂ の蒸気圧は低いことから、Zr がエアロゾルとして飛散するメカニズムとしては蒸発凝縮ではなく、熔融物の飛散による凝固（溶融凝固）であったと考えられる。したがって Zr が濃化した粒子に関しては熔融物上部の Zr 濃度が高くなっている液相からの飛散、凝固によるものと推察される。

(f) ステンレス棒先端の観察結果

先端には途中で投入した Zr 棒が付着している。ステンレス棒先端の熔融物には U が多く存在しており、わずかであるがステンレス鋼内部へ浸食している。元素分析から、ステンレス鋼内部の U は (U, Zr)O₂ として存在しており、Fe、Cr は相対的に濃度が低くなっている。(U, Zr)O₂ の領域は Fe や Cr をわずかに含む領域と、(U, Zr)O₂ の領域がある。ステンレス鋼 (Fe-18Cr-12Ni-2Mo) に隣接している領域は Cr、Mn、O が濃化しており組成比は (Mn, Fe)Cr_{1.8}O₃ であることからスピネル型 (Mn, Fe)Cr₂O₃ である可能性が高い。この領域からはわずかに Zr が検出されたが U は検出されなかった。元素分析の結果、Zr 棒と接触している側からの雰囲気及び Zr の移行と熔融物からの U 移行の 2 種類の物質移行経路があることがわかる。ステンレス棒は移行経路 P によってスピネル型酸化物が形成し、U 移行経路によって (U, Zr)O₂ が形成したと考えられる。

(g) 反応時の物質状態について

反応後試料の上部・中部・下部における金属組織及び組成と状態図の関係から、それぞれの領域で凝固し始めたおおよその温度を求めることができる。2000 °C から 2400 °C における U-Zr-O 三元系状態図に、各領域の共晶組織平均組成を照合して凝固開始温度を見積もった。これより試料下部は 2400 °C から、中部は 2200 ~ 2400 °C、上部は 2200 °C 以下から凝固し始めたと考えられる。反応試験中の温度指示値推移と比較すると、初期溶解時の温度は 2300 ~ 2400 °C でありこの段階ではほぼ均一の融体となっていたと考えられる。その後、出力を低下させて 2000 °C 近傍で安定化させる段階（約 1500 ~ 2500 秒）では、下部はほぼ凝固していたと考えられるため、投入した Zr 棒は試料底部まで到達せず浸漬が試料中部に留まってしまい、予定した全量を溶解させることができなかったと考えられる。また、試料下部は概ね初期溶解させた酸化物の U/(U+Zr) (at%比) であるが、上部にいくにつれて Zr-O 側へシフトしていることがわかる。これは

中上部のみに Zr が加えられたことと整合する。これらのことから、Zr 投入時の物質状態としては下部から上部にかけて不均一な状態であったことが示唆される。

3) 1F サンプルとの比較

本試験で確認されたエアロゾルのうち、Zr が含まれない UO_{2-x} 粒子が確認されたが球状物質とは限らず様々な形状であった。一方、2号機オペレーションフロアから検出された“Zr をほとんど含まない U 含有粒子”は球状粒子が凝集したような形状であった。本試験では初期溶解で酸化物を完全に溶解させているため、溶解前に粉末がアルゴンフローによって飛散した可能性は低く、融体からの蒸発凝縮によるものと考えられる。厳密なエアロゾル形成試験ではないが、非球状の蒸発凝縮型粒子が形成されうる可能性があることがわかった。また、Zr を含む $(U, Zr)O_2$ 粒子が多く観察されたが、それらの $Zr/(U+Zr)$ (at%比) は 0.54 から 0.69 の範囲であり、初期溶解させた酸化物の比である 0.56 に近い値であったことから、Zr 投入時に飛散した溶融物が凝固して形成されたものと考えられる。また、本試験では Fe と U が共存する非球状エアロゾルを確認した。ステンレスからは Fe、Cr 等が確認されたが 1F のサンプルに見られたような液相から $(U, Zr, Fe, Cr)O_2$ と $FeCr_2O_4$ に相分離したようなものは見つからなかった。

4) 来年度に向けた見通し

今年度の試験手順で下部はほぼ凝固し、中上部にかけて半分程度が溶融している状態を作製することに成功した。1F2、3号機の下部プレナムにおいては、金属デブリが最初に溶融した後に酸化物デブリが溶融し始め、半溶融状態に至り鋼材と反応したことが想定されるため、半溶融状態の領域に対してステンレス鋼を反応させる点について改良の余地があることがわかった。具体的には、出力を落とした後に投入する Zr の量を減らして溶融物上部の液相割合をなるべく低下させない状態でステンレス棒を挿入するような改善を考えている。

(3) まとめ

令和3年度に構築したコールドクルーシブル実験装置と策定した組成条件を用いて二酸化ウラン・ジルコニウムと金属（ジルコニウム、ステンレス鋼）が半溶融状態で混合した状態の模擬デブリを作製する試験を実施した。試験後試料の金属組織観察と組成分析を実施して、生成物における化合物の偏析状態を評価した。その結果、ウラン・ジルコニウム酸化物の完全溶融状態からコールドクルーシブルの出力を制御して試料上部と下部で融点の異なる部分的に凝固している不均一状態が形成されていたことを示し、半溶融状態の模擬デブリ作製に成功した。

参考文献

- [1] Guéneau, C., et al., TAF-ID : An International Thermodynamic Database for Nuclear Fuels Applications, Calphad, Vol.72, 2021, 102212.

3.3.2 燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計

(1) 令和3年度の概要

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 溶融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であることを確認した。しかし、CCIM 炉で所期の目標を達成する炉の設計は難しいと判断し、令和4年度は契約変更によりガス浮遊炉による炉を検討することとした。

(2) 令和4年度の成果

①加熱炉の分類

まずは様々な加熱炉について、熱源、るつぼ材料、最高使用温度、デブリの溶融の可能性等から分類し、その結果を研究推進委員会で議論した。分類した結果を表 3.3.2-1 に示す。融点 $2800\text{ }^{\circ}\text{C}$ の UO_2 を溶融させるには、 $3000\text{ }^{\circ}\text{C}$ まで加熱することが最低条件となるが、研究推進委員会で、加えて雰囲気調整、水冷の可能性、るつぼからの不純物の混入を考慮した議論の結果、CCIM 炉とガス浮遊炉を候補とすることとなった。

②CCIM 炉とガス浮遊炉の使い分け

現在使用されている装置では CCIM 炉の試料が数百グラム、ガス浮遊炉は数十 mg である。令和3年度の結果、CCIM 炉の試料量は均一な生成物ではないものの 100 g 程度まで減少できることがわかった。一方、ガス浮遊炉を数百 mg まで増加させることができれば、以下のような「使い分け」を提案させることができる。

CCIM 炉を用いて総試料量 100 g の実験をすると、生成物の X 線及び SEM/EPMA 分析に加え、その他機械的性質、熱物性等も測定することができる。しかし、試料は均一ではなく、また UO_2 濃度が高いほど溶融しにくくなる。そこで、第1回目の実験を最も UO_2 含有量の高い条件で行い、その UO_2 濃度の高い部分を取り出して分析する。その後、残った試料に、より融点の低いデブリ成分 (Zr , ZrO_2 及びステンレス鋼等) を加えて、第2回目の溶融試験を行う。2回目の試験はウラン含有量が低くなるが、より低融点の物質を加えて、試料量を 100 g 程度に戻すので、溶融は可能となる。以後、同様の方法で3回、4回と繰り返すが、ウランをはじめ組成は得られた試料ごとに評価しなおす必要があるが、限られたウラン量で、ウラン量をパラメータとする数十 g の模擬溶融デブリが得られ、同定だけでなく様々な物性を評価することが可能である。

一方、ガス浮遊炉は、大阪大学の装置を参考にすると、数十 mg の試料量でも溶融時の粘度等を測定することができ、雰囲気も選べ、水冷も可能である。もし数百 mg の試料量が溶融できると溶融物の X 線回折や SEM/EPMA 分析等の同定も可能である。これも大阪大学の装置 (試料量: 数十 mg、レーザー出力 100 W) を参考に見積もると、 1 g の試料量では、装置の大型化に加え、レーザー出力を 8000 W 程度にする必要があるが、市販の装置で十分可能であることがわかった。

③ガス浮遊炉を用いた試験

融点の高い UO_2 、 ZrO_2 と融点の低い Zr 及び SUS の同時溶融が可能かどうかを確認するため令和3年度同様、 UO_2 の模擬物質として HfO_2 を用いて、大阪大学のガス浮遊炉を使った溶融試験を行った。試料の組成としては、 $HfO_2 : ZrO_2 : SUS316L = 1 : 1 : 1$ と融点の高い酸化物の量を増やした $HfO_2 : ZrO_2 : SUS316L = 1 : 1 : 0.5$ で行った。用いた試験条件を試験後の重量変化とともに表 3.3.2-2 に示す。出発物質は、それぞれの混合粉末を SPS で焼結させた試料の一片である。その SEM/EPMA 分析結果を図 3.3.2-1 に示すが、 HfO_2 、 ZrO_2 及び鉄の均一の混合物である。

表 3.3.2-1 溶融炉の分類

分類	名称	設備仕様			主な用途	テプリ溶解への適用可能性 (左記で可能としたもののみ記載)
		熱源	坩堝	通常使用温度		
金属材料の溶解・加熱用途	熱風炉	熱風	耐火物	1200℃程度。1200℃以上も可能だが、耐火物制約で通常1600℃程度が上限	鉄鋼)高炉の加熱	
	溶解炉	都市ガス	耐火物	1000℃未満	アルミニウムの溶解等	
	加熱炉・熱処理炉	電気ヒータ	耐火物	1400℃程度	鉄鋼材料・各種金属材料の熱処理等	
	VIF	誘導加熱	耐火物	1000℃程度	各種金属材料の溶解等	
	歪と炉	赤外線	耐火物	集光タイプで最高1300℃程度	乾燥、歪と焼鈍等	ZrO ₂ 等高融点酸化物の溶解は不可能
	ガス炉	都市ガス	耐火物	1500℃程度	耐火物・セラミックスの焼結等	
	抵抗加熱炉	カンタルスーパー黒鉛	耐火物	大気炉では、最高1700℃、真空炉では、最高2300℃	耐火物・セラミックスの焼結等	
	高周波加熱炉	誘導加熱	黒鉛	最高2300℃	セラミックスの焼結用等の焼結等	
	SPS焼結炉	パルス通電加熱	黒鉛	最高2300℃	セラミックスの焼結用等の焼結等	
	VAR	アーク		2000℃程度	高融点金属(Ti, Nb, Ta, Ti等)の溶解用等	ZrO ₂ 等酸化物での消耗電極作成は不可能
活性金属・高融点金属の溶解用途	CCIM	誘導加熱	水冷銅るつぽ	3000℃程度	高融点金属(Nb, Ta, Ti等)の溶解用等	黒鉛を誘導加熱してZrO ₂ を溶解することは可能だが、テプリに存在しないZrCが生成し、Zr金属の誘導加熱でのZrO ₂ 溶解は不可能。SUSを誘導加熱する方式では、ZrO ₂ 等酸化物の全量溶解ができなかった。酸化物原料比率の低減(ZrO ₂ →Zr)、溶解時間の長時間化が課題
	PAM	アーク	水冷銅るつぽ	3000℃程度	高融点金属(Nb, Ta, Ti等)の溶解用等	絶縁体の酸化物の溶解は不可能
	EBM	電子ビーム	水冷銅るつぽ	3000℃程度	高融点金属(Nb, Ta, Ti等)の溶解用等	溶解可能。ただし、高真空での溶解のため、溶解後水中投下は不可能
	FZ	集光加熱	なし	3000℃程度	Si化合物半導体の単結晶製造	溶解可能。ただし原理上水中投下不可能
高温物性評価用途	電磁浮遊法	誘導加熱	なし	3000℃程度	高温物性評価用等	誘導加熱での溶解不可能。電磁力でZrO ₂ 等の浮遊が不可能
	静電浮遊法	レーザー	なし	3000℃以上	高温物性評価用等	溶解は可能だが、静電力でZrO ₂ 等の浮遊が不可能
	ガス浮遊法	レーザー	なし	3000℃以上	高温物性評価用等	溶解可能、ガス浮遊可能 5g程度の大規模化が課題。浮遊に必要なガス量、溶解に必要なレーザー出力の検討が必要。

加熱中の写真を図 3.3.2-2(c) に示すが、ほぼ試料全体が溶融しており、また試料温度は 2800 °C 程度にあることが確認されているが、冷却の後の試料については、雰囲気を実験 4 を除いて真球に近い形にならず、いびつな形をしている。雰囲気に酸素を混合することにより、表面の金属相が参加することになるが、重量変化から予測される金属相の蒸発を抑制する可能性もあるが、この形状の理由は不明である。次年度は今回得られた試料の分析を通して、溶融の確認とともにこの原因を明らかにする予定である。

表 3.3.2-2 試験条件と重量変化

組成 (mol 比)	試験番号	浮遊ガス種	試料質量 (mg)		備考
			溶融前	溶融後	
HfO ₂ :ZrO ₂ :SUS316L (1:1:1)	試験 1	Ar	14.98	14.83	
	試験 2	5%H ₂ -Ar	7.46	7.31	
	試験 3-1	5%H ₂ -Ar	5.43	4.95	
	試験 3-2	5%H ₂ -Ar	4.95	4.83	試験 3-1 の再溶解
	試験 4	30%O ₂ -Ar	6.70	6.19	
	試験 5	30%O ₂ -Ar	7.26	6.75	
HfO ₂ :ZrO ₂ :SUS316L (1:1:0.5)	試験 6	5%H ₂ -Ar	8.32	8.11	
	試験 7	30%O ₂ -Ar	7.26	6.75	

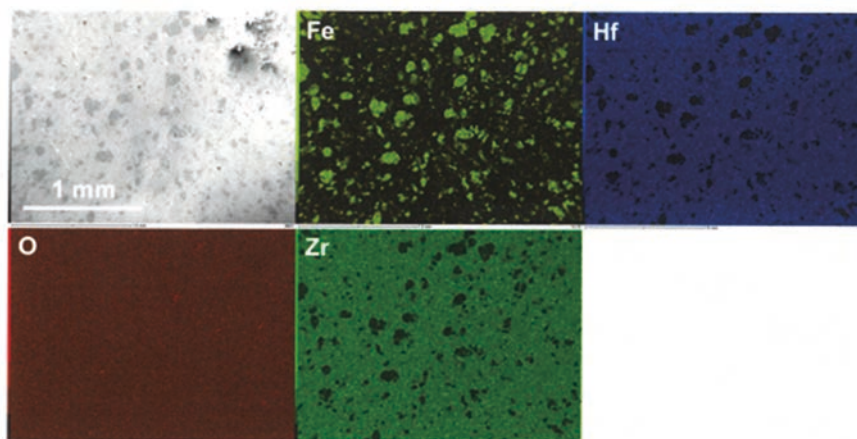


図 3.3.2-1 出発混合物の SEM/EPMA 分析結果

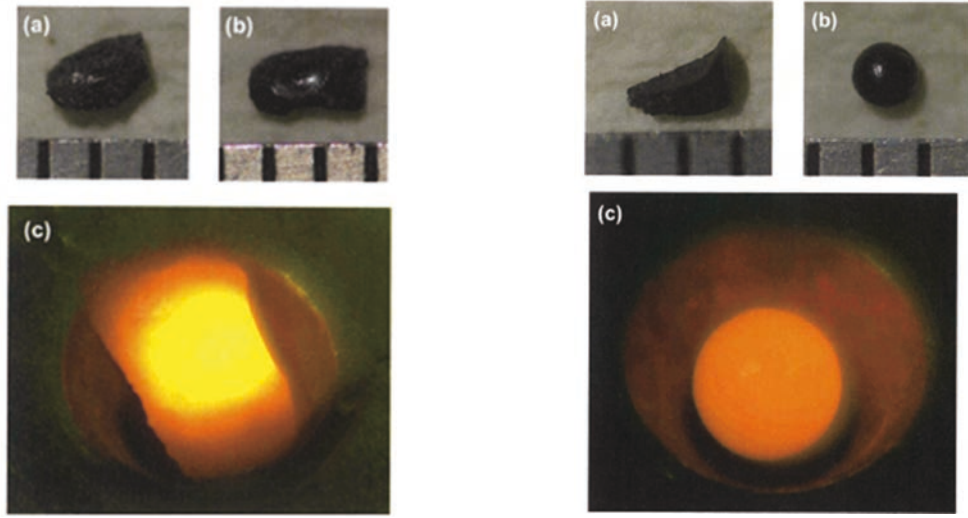


図 3.3.2-2 試料の外観 (a)加熱前、(b)加熱後、(c)加熱中、左：試験 2、右：試験 4

3.4 Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（令和3年度～令和4年度）

令和3年度は、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、JAEA、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4年度も、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及び令和3年11月19日に開催された1F試料評価委員会などで、本研究関係者に加え、他の英知研究やCLADS、東電、早稲田大学などと、シビアアクシデント解析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、シビアアクシデント解析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（令和3年度～令和4年度）

令和3年度は、4回の研究推進委員会を行い、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4年度も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4年5月30日に第1回研究推進委員会、令和4年10月24日に第2回研究推進委員会、令和5年3月6日に第3回研究推進委員会、令和5年3月30日に第4回の研究推進委員会を開催し、各研究項目を推進するための議論を実施した。

4. 結言

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)

浮遊型レーザー加熱炉で試料を加熱溶解させることでエアロゾルを発生させ、捕集した。捕集したエアロゾルは電子顕微鏡等により分析した。UO₂を試料として用いたホット試験も実施し、Uを含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確認した。

UO₂、Al₂O₃、FeO、ZrO₂を試料として共晶組成の(Al₂O₃)_{0.84}(UO₂)_{0.16}と(FeO)_{91.8}(UO₂)_{3.8}(ZrO₂)_{4.4}の焼結体を作製し、それぞれを浮遊型レーザー加熱炉によって加熱溶解した。発生したエアロゾルはフィルターを用いて捕集した。捕集したエアロゾルを走査型電子顕微鏡とエネルギー分散型X線分析によって分析した。これらのホット試験により、Uを含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確認した。

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）

令和3年度に改造した装置を用いて試料を3000℃以上の温度に加熱し、模擬粒子試料の作製を行い、性状を観察した。その結果、微粒子を安定的に作製できる条件を把握した。生成した微粒子は、数μmの扁平な粒子や液滴が気中で固まったと考えられる粒子などが見つかった。

また、令和3年度まとめたUO₂粒子の分析結果等をもとに(U, Zr, Fe)O₂模擬デブリ合成を試み、物性を測定した。その結果、サンプリングデータ(U1-No.15)について熱力学的に予測された化合物が得られたが、fluorite相における鉄の固溶量は少なく、また金属鉄が析出するなど熱力学的予測と異なる結果も得られた。

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及び4.1.2の令和4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。

4.1.1については、浮遊型レーザー加熱炉で浮遊溶解させる(FeO)-(UO₂)-(ZrO₂)試料の組成の影響を評価するために、実際にこれまで見つかった粒子の組成を参考に次年度の試料の組成を決定することとした。令和4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UO₂の確保を行った。

4.2 金属デブリの混合・溶解・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)

令和3年度に検討した試験条件に基づき、構築した二段式電気抵抗炉を用いて高温（～最高温度2100℃）で高濃度ジルコニウム溶解物の形成が予想されるシナリオに基づいて溶解させた金属を低温のステンレス鋼へ落下させる試験を実施した。試料の金属組織観察・金属間化合物及び酸化物の偏析状態・反応相同定から生成物の材料学的性質を評価した。

その結果、高Zr含有溶解金属がステンレス鋼に接触する際に界面に金属間化合物が形成されると物質移動が抑制され、ステンレス鋼の溶解が進行を遅らせる傾向を示した。

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、熔融ステンレスと B_4C 、ジルカロイの接触試験を行い B、C 及び Zr のステンレス融体への移行挙動に関する基礎データを収集した。

その結果、 B_4C の熔融ステンレス鋼に接触した場合、初期において熔融は速やかに進行するが、次第に界面にホウ化クロム及び炭素が析出し溶解速度が低下する傾向を示した。

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：JAEA)

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データに基づいて、大型試験体系で解析可能な簡素化モデル (反応速度暫定式) を提示した。

その結果、ステンレス鋼とジルコニウム混合物 (Zr リッチ混合物を使用) と圧力容器材のうちニッケル基合金との反応・熔融が促進される傾向を示した。

圧力容器下部構造や使用されている材質を参照した大型試験体を製作した上で、ステンレス鋼やジルコニウムの金属物質、水蒸気により酸化したジルコニウム等の酸化物と、圧力容器からの熔融物流出挙動に関わる大型試験データを取得し、酸化物が圧力容器破損に与える影響を評価した。

その結果、ステンレス鋼とジルコニウム混合物 (ステンレス鋼リッチ混合物を使用) とジルコニウム酸化物と圧力容器材との反応・熔融・流出挙動に関わる大型試験により、熔融金属と構造材との反応・熔融の進行が遅くなる傾向を示した。

ウラン化合物による、炉心部から先行して熔融・移行したステンレス鋼等の金属物質の再熔融過程での、これら金属物質へのウラン混入試験データを取得し、混入条件を評価した。

その結果、ウランとジルコニウムの酸化物と熔融金属 (ステンレス鋼-ジルコニウム混合物) の反応により、金属ジルコニウムが酸化物となり、残存する熔融金属は鉄成分が多く存在する傾向を示した。

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：JAEA)

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及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。

その結果、熔融金属と構造材料間の反応挙動による圧力容器下部破損挙動が、熔融金属の組成に依存する可能性を示した。

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)

令和 3 年度に構築したコールドクルーシブル実験装置と策定した組成条件を用いて二酸化ウラン・ジルコニウムと金属 (ジルコニウム、ステンレス鋼) が半熔融状態で混合した状態の模擬デブリを作製する試験を実施した。試験後試料の金属組織観察・組成分析・相同定等から、生成物における金属間化合物及び酸化物の偏析状態を評価した。

その結果、ウラン・ジルコニウム酸化物の完全溶融状態からコールドクルーシブルの出力を制御して試料上部と下部で融点の異なる部分的に凝固している不均一状態が形成されていたことを示し、半溶融状態の模擬デブリ作製に成功した。

4.3.2 燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計（福井大学）

大阪大学で用いられているガス浮遊炉をもとに、5 g 程度の UO_2 試料の溶融・水冷が可能な大型化に向けた概念設計を行った。検討にあたり、燃料デブリ製造に用いる溶融法を比較整理し、ガス浮遊炉を設計対象とする理由をとりまとめた。

その結果、CCIM 炉は 100 g 程度の不均一な試料を合成して様々な物性を測定するのに適しているのに対し、ガス浮遊炉は 1 g 程度の均一な試料を合成し、結晶構造と組成の同定と容体の物性測定に適していることなどをまとめた。また、大阪大学の現有装置（試料量：数十 mg、レーザー出力：100 W）をもとに 5 g の試料を溶融できるよう大型化した場合、8000 W のレーザー出力が必要であることなどが見積もられた。

4.4 Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、連携先：JAEA）

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、JAEA、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。

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、令和 4 年 5 月 30 日に第 1 回研究推進委員会、令和 4 年 10 月 24 日に第 2 回研究推進委員会、令和 5 年 3 月 6 日に第 3 回研究推進委員会、令和 5 年 3 月 30 日に第 4 回の研究推進委員会を開催し、各研究項目を推進するための議論を実施した。

