



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5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)

— FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

福島廃炉安全工学研究所 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 and Engineering Institute
University of Fukui

September 2025

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5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 福島廃炉安全工学研究所
廃炉環境国際共同研究センター

福井大学

(2025年2月6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5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3年度から令和5年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究では、酸化物デブリの形成条件の推定研究として、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ウランを含有する模擬燃料粒子を合成し、その生成条件と性状をまとめた。また、JAEA によりサンプリングデータに基づき作成された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などを得た。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の模擬金属デブリへの落下試験を行いその生成物を分析した。その結果ステンレス鋼温度が 1000 °C 程度の場合には溶融金属の Zr 濃度に関わらず薄い反応相を形成してステンレス鋼損傷が抑制されることがわかり、また B₄C 及びジルカロイのステンレス鋼融体への溶出速度を定量化した。さらに、ステンレス鋼と Zr の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を拡充し、大型試験体系での解析可能な簡素化反応速度式を提案した。また、圧力容器下部の材質を参照した大型試験体の実験と反応速度式より、溶融金属と圧力容器構造材との反応による圧力容器下部破損挙動や溶融物流出挙動を評価した。さらに、圧力容器下部におけるデブリ再溶融過程でのウラン化合物とステンレス鋼等の金属物質の反応試験データを拡充し、金属デブリ層へのウラン移行挙動を評価した。また、試験技術の整備として、二酸化ウランと Zr と金属との半溶融模擬デブリの合成と分析、CCIM 炉とガス浮遊炉を用いた少量のウランの模擬燃料デブリ合成試験の検討を行った。

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)

— FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

University of Fukui

(Received February 6, 2025)

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 FY2023.

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 from FY2021 to FY2023.

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 prepared simulated fuel particles by the aerodynamic levitation method and ejection of melted oxides from a tungsten pipe with a small hole and summarized the relationship between preparation conditions and the properties of the particles. We also demonstrated the formation of simulated fuel debris obtained by the sampling in 1F and clarified the difference between the experimental results and thermodynamic calculation. From the estimation of mixing, melting and solidified states of metallic debris, it was found that the formation of thin reaction layer suppresses the damage of SUS in spite of Zr content around 1000 °C, and we quantify the elution rate of B₄C and Zircaloy to the melted SUS. We extended reaction rate data between various pressure vessel with SUS and Zr and welding parts and suggested reaction rate equation for large scale experiment. We also estimated the failure behavior of lower plenum of pressure vessel and outflow behavior of melt. Furthermore, we estimated transition behavior of Uranium melt to metallic debris melt in the re-melting process of pre-dropped metallic debris. As the experimental techniques in the future, we prepared the semi-melted debris from oxide and metals and analyzed the reaction products and discussed the formation of simulated debris with a small amount of uranium oxide using a CCIM furnace and the aerodynamic levitation method.

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
7. 令和 5 年度 採択課題	14
付録 成果報告書	17

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
7. Accepted Proposal in FY2023.....	14
Appendix Result Report	17

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）

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 2 課題、日露 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DESTAL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	慶應義塾大学

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）

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）

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
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

課題名	研究代表者	所属機関
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）

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 (～R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1～)
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
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

7. 令和5年度 採択課題

令和5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5年3月1日～令和5年4月14日（課題解決型）

令和5年4月12日～令和5年6月15日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：9 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7 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5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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学
簡易非破壊測定に向けた革新的なn・γシンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペDESTAL部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研究	五十嵐 豪	名古屋大学
動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速3次元炉内環境モデリング	中村 啓太	札幌大学
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

課題名	研究代表者	所属機関
高バックグラウンド放射線環境における配管内探査技術の開発	鳥居 建男	福井大学
PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔光計測技術の研究開発	椎名 達雄	千葉大学

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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学
燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカオリンベースのジオポリマーの設計と特性評価	Yogarajah Elakneswaran	北海道大学

本報告書は、以下の課題の令和 3 年度から令和 5 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 5 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 R05I043)

成果報告書

令和 6 年 3 月

国立大学法人福井大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人福井大学が実施した「燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化」の令和3年度～令和5年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	ix
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・熔融・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5年度の成果の目標および業務の実施方法	2-5
2.3.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析	2-5
2.3.2 金属デブリの混合・熔融・凝固状態の評価	2-5
2.3.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備	2-6
2.3.4 Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価	2-6
2.3.5 研究推進	2-6
3. 実施内容および成果	3-1
3.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析【令和3年度～令和5年度】	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 (再委託先：大阪大学)【令和3年度～令和5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5年度】	3-10
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 (福井大学、再委託先：大阪大学)【令和3年度～令和5年度】	3-28
3.2 金属デブリの混合・熔融・凝固状態の評価【令和3年度～令和5年度】	3-29
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 (再委託先：東京工業大学)【令和3年度～令和5年度】	3-29
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 (再委託先：東北大学)【令和3年度～令和5年度】	3-39
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(連携先：JAEA) 【令和3年度～令和5年度】	3-50
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(再委託先：東京工業大学、東北大学、連携先：JAEA) 【令和3年度～令和5年度】	3-66
3.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備【令和3年度～令和5年度】	3-69
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 (再委託先：東京工業大学)【令和3年度～令和5年度】	3-69

3.3.2	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～令和5年度】	3-71
3.4	Forward Analysis と Backward Analysis の総合評価（福井大学、連携先：JAEA）	
	【令和3年度～令和5年度】	3-76
3.5	研究推進【令和3年度～令和5年度】	3-76
4.	結言（各章のまとめ）	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 （福井大学、再委託先：大阪大学）	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

研究代表者

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. 1-1	4 %H ₂ -Ar ガスを用いたガス浮遊法によって1分間浮遊溶解状態を保持する前後の試料重量と減少した質量	3-6
表 3. 1. 2-1	試料組成 (mol%)	3-12
表 3. 1. 2-2	試料加熱条件等	3-12
表 3. 1. 2-3	試料冷却条件等	3-13
表 3. 1. 2-4	U1-No. 15 の PATH1 試験 粉末ペレットの混合比	3-21
表 3. 1. 2-5	U1-No. 15 徐冷試料の分析結果まとめ	3-22
表 3. 1. 2-6	U1-No. 22 の出発物質の組成	3-23
表 3. 2. 1-1	Fe-15Zr/SS 実験結果一覧	3-35
表 3. 2. 1-2	酸化膜有試験の試料および実験結果一覧	3-35
表 3. 2. 1-3	解析ケース	3-35
表 3. 2. 2-1	ジルカロイの金属相および酸化物層の組成	3-44
表 3. 2. 2-2	実験条件	3-44
表 3. 2. 3-1	構造材の反応量	3-55
表 3. 2. 3-2	金属デブリー-ウラン酸化物反応試験条件	3-55
表 3. 2. 3-3	1223 °C 120 分保持試料の EDX 分析結果	3-55
表 3. 2. 3-4	1423 °C 120 分保持試料の EDX 分析結果	3-56
表 3. 2. 3-5	1623 °C 60 分保持試料の EDX 分析結果	3-56
表 3. 3. 2-1	令和 4 年度のガス浮遊溶解試験結果	3-71
表 3. 3. 2-2	ガス浮遊溶解法の大型化検証のための試験結果	3-74

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	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	3-2
図 3.1.1-3	浮遊溶解後の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料断面の SEM/EDS 分析結果	3-2
図 3.1.1-4	Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した Bi の (a)、(b) (左から) 横から観察した試料外観、斜め上から観察した試料外観。(c)、(d) はフィルターによって捕集したエアロゾルの SEM 観察結果。(a)、(c) は Bi の温度が融点+100 °C 程度、(b)、(d) は Bi の温度が融点+500 °C 程度	3-3
図 3.1.1-5	4 % H_2 -Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した Fe の (a) (左から) 横から観察した試料外観、斜め上から観察した試料外観。(b)、(c) はフィルターによって捕集したエアロゾルの SEM 観察結果	3-4
図 3.1.1-6	4 % H_2 -Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した (a) Zr と (b) ZrO_2 の横から観察した試料外観と斜め上から観察した試料外観	3-4
図 3.1.1-7	4 % H_2 -Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した $(\text{UO}_2)_{(1-x)/3}\text{Zr}_x$ ($X = 0.57$) の (左から) 2 色放射温度計の測定結果、横から観察した試料外観、斜め上から観察した試料外観	3-5
図 3.1.1-8	(a) 4 % H_2 -Ar ガス (露点-79 °C) と、(b) 4 % H_2 -Ar ガス (露点 15 °C) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した UO_2	3-5
図 3.1.1-9	(a) 4 % H_2 -Ar ガス (露点-79 °C) と、(b) 4 % H_2 -Ar ガス (露点 15 °C) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した UO_2 から生じたエアロゾルの SEM 観察画像	3-7
図 3.1.1-10	(a) 4 % H_2 -Ar ガス (露点-79 °C) と、(b) 4 % H_2 -Ar ガス (露点 15 °C) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した UO_2 から生じたエアロゾルの XRD 測定結果	3-7
図 3.1.1-11	4 % H_2 -Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した $(\text{UO}_2)_{(1-x)/3}\text{Zr}_x$ ($X = 0.57$) 試験後試料の外観写真と断面 SEM/EDX 観察画像	3-8
図 3.1.1-12	4 % H_2 -Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した $(\text{UO}_2)_{(1-x)/3}\text{Zr}_x$ ($X = 0.57$) 試験後試料の XRD 測定結果	3-8
図 3.1.1-13	4 % H_2 -Ar ガス (露点-79 °C) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した UO_2 の (左) 横からバックライトを使用して観察した試料外観、(右) 斜め上から観察した試料外観	3-9
図 3.1.2-1	UO_2 試料微粒子①	3-13
図 3.1.2-2	UO_2 試料微粒子②	3-13
図 3.1.2-3	YSZ 試料微粒子①	3-13
図 3.1.2-4	模擬デブリ試料微粒子①	3-14
図 3.1.2-5	模擬デブリ試料微粒子②	3-14

図 3.1.2-6	ガラス付着微粒子（金属リッチ試料・真空中）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）	3-14
図 3.1.2-7	ガラス付着微粒子（酸化物リッチ試料・真空中）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）	3-14
図 3.1.2-8	ガラス付着微粒子（酸化物リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）	3-15
図 3.1.2-9	ガラス付着微粒子の元素分布像	3-15
図 3.1.2-10	微粒子①（金属リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）	3-16
図 3.1.2-11	微粒子②（金属リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：元素分布 EDS 像）	3-16
図 3.1.2-12	微粒子③（金属リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：元素分布 EDS 像）	3-17
図 3.1.2-13	微粒子④（酸化物リッチ試料、真空中）（左：SEM 像、右：Zr 分布 EDS 像）	3-17
図 3.1.2-14	微粒子⑤（酸化物リッチ試料、還元雰囲気）（左：SEM 像、右：元素分布 EDS 像）	3-17
図 3.1.2-15	急冷試料断面の様子	3-18
図 3.1.2-16	急冷試料断面拡大（左：巢の部分、右：凝固物部分）	3-18
図 3.1.2-17	徐冷試料断面（左：凝固部分、右：拡大）	3-18
図 3.1.2-18	XRD パターン（上 3 個：試料、下 3 個：原料粉末）	3-19
図 3.1.2-19	CeO ₂ -ZrO ₂ -Fe 系状態図（2000 °C）	3-20
図 3.1.2-20	CeO ₂ -ZrO ₂ -Fe 系状態図（1200 °C）	3-20
図 3.1.2-21	U1-No. 15 徐冷試料の SEM/EDS 分析	3-21
図 3.1.2-22	U1-No. 15 徐冷試料の XRD パターン	3-22
図 3.1.2-23	U1-No. 22 試料の SEM/EDS 分析結果	3-23
図 3.1.2-24	U1-No. 22 試料の分析結果まとめ	3-23
図 3.1.2-25	U1-No. 22 試料の XRD パターン	3-24
図 3.1.2-26	PATH2 試験における加熱後の試料（i）と SEM/EDS 写真（ii）	3-25
図 3.1.2-27	PATH2 試験における金属部分の分析結果	3-25
図 3.1.2-28	PATH2 試験における金属部分の XRD パターン	3-25
図 3.1.2-29	PATH2 試験における酸化物部分の分析結果	3-26
図 3.1.2-30	PATH2 試験の酸化物部分の XRD パターン	3-26
図 3.2.1-1	実験装置概略図	3-36
図 3.2.1-2	試料外観図（Fe-15Zr/SS）	3-36
図 3.2.1-3	酸化膜有試験後試料の外観	3-37
図 3.2.1-4	Fe-Zr, Ni-Zr および Fe-Zr-5Ni における混合熱計算値	3-37
図 3.2.2-1	実験装置概略図	3-45
図 3.2.2-2	水蒸気中で加熱したジルカロイ試料の断面(a)15分、(b)30分、(c)60分	3-45
図 3.2.2-3	ステンレス鋼とジルカロイを15分加熱した試料の外観	3-45
図 3.2.2-4	酸化物の厚さ(a)0 μm、(b)50 μm、(c)150 μm、(d)250 μmの試料をステンレス鋼の融液中で15分間保持した試料の断面	3-46

図 3.2.2-5	生成層近傍の相構造	3-46
図 3.2.2-6	生成層内の鉍物相組成	3-47
図 3.2.2-7	ステンレス鋼溶液中で保持した酸化膜厚 150 μm の試料断面	3-47
図 3.2.2-8	二次酸化層の生成機構	3-48
図 3.2.2-9	ジルコニアから溶出した Zr 量	3-48
図 3.2.2-10	Zry-4 板表面の酸化膜の厚さと B の値の関係	3-49
図 3.2.2-11	金属相中の C と B の濃度分布の時間変化	3-49
図 3.2.3-1	試験体系 (左) 試験体模式図 (右) MEISAN 試験装置	3-57
図 3.2.3-2	インコネル試験体断面の光学顕微鏡観察結果	3-57
図 3.2.3-3	ステンレス鋼試験体断面の光学顕微鏡観察結果	3-58
図 3.2.3-4	1300 °C60 分保持試験の模擬金属デブリ-構造材反応界面の SEM/EDX 分析結果 (左) ステンレス鋼 (右) インコネル	3-58
図 3.2.3-5	状態図 (左) Fe-Zr (右) Ni-Zr	3-59
図 3.2.3-6	各組成の金属デブリ-構造材の反応速度	3-59
図 3.2.3-7	金属デブリ-構造材の反応速度	3-60
図 3.2.3-8	試験体系模式図	3-60
図 3.2.3-9	1223 °C 120 分保持試料の断面観察結果 (光学顕微鏡)	3-61
図 3.2.3-10	1423 °C 120 分保持試料の断面観察結果 (光学顕微鏡)	3-61
図 3.2.3-11	1623 °C 60 分保持の断面観察結果	3-62
図 3.2.3-12	試験前の試験体外観	3-63
図 3.2.3-13	試験後試験体の断面観察結果	3-64
図 3.2.3-14	落下溶融物の観察結果	3-65
図 3.2.3-15	解析体系	3-65
図 3.2.3-16	解析結果 (模擬金属デブリの分布)	3-65
図 3.2.4-1	2 号機事故シナリオ (RPV 破損まで)	3-67
図 3.2.4-2	事象進展に従った金属デブリ形成、圧力容器下部構造の破損挙動	3-68
図 3.2.4-3	温度上昇に従った金属デブリ形成、圧力容器下部構造の破損挙動	3-68
図 3.3.2-1	令和 4 年度実施したガス浮遊溶解試験後の試料	3-72
図 3.3.2-2	完全溶融した試料の SEM/EDS 分析結果	3-72
図 3.3.2-3	部分溶融した試料の SEM/EDS 分析結果	3-73
図 3.3.2-4	部分溶融した試料 (50 mg) の SEM 写真	3-74

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency Collaborative Laboratories	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
CLADS	: 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 線回折
PCV	: Primary Containment Vessel	原子炉格納容器
RPV	: Reactor Pressure Vessel	原子炉圧力容器
PID 制御	: Proportional Integral Differential Controller	ピーアイディー制御
EDS	: Energy Dispersive Spectroscopy	エネルギー分散型分光計
WDS	: Wave Dispersive Spectrometry	波長分散型分光計

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、燃料デブリの熔融・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らし合せ、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、燃料デブリ取り出しにおいて合理的に排除したい発生確率の低いリスクについて検証試験を行い、このようなリスクが発生する化学条件が、どの程度蓋然をもって発生したのかを調査する。これらの検討結果を、本研究の実施者と事故進展解析専門家で共有し、燃料デブリ分析データ活用と、デブリ取り出し設計の合理化・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

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

(再委託先：国立大学法人大阪大学（以下、「大阪大学」と略す。))

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、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解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、 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解し、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 (SEM) とエネルギー分散型 X 線分析 (EDX) によって分析し、U を含むエアロゾルを捕集し分析する技術を確認した。

令和5年度は、ウラン含有試料を用いて様々な条件でエアロゾル粒子を作製し、捕集したエアロゾル粒子を分析した。これにより、実際にこれまで見つかっている粒子の特徴を再現するような粒子生成条件を明らかにした。 Bi 、 Fe 、 $(UO_2)_{(1-x)/3}Zr$ ($x = 0.57$)、 UO_2 等についてガス浮遊溶解試験を実施した。エアロゾルが発生したものについては、エアロゾルを捕集して分析した。

② 原子炉格納容器 (PCV) 内サンプル分析に基づく、ウラン粒子特性と形成条件の評価

(国立大学法人福井大学（以下、「福井大学」と略す。))

令和3年度は、試料を $3000\text{ }^\circ\text{C}$ 以上の温度に加熱できるように装置を改造してタングステンパイプに詰めた UO_2 の加熱試験を実施し、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度の粒子の生成が認められた。また、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つの凝固パズ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、模擬粒子試料の作製を行い、性状を観察した結果、微粒子を安定的に作製できる条件を把握した。また、 $(U, Zr, Fe) O_2$ 模擬デブリを作製し、物性を測定した。その結果、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。

令和5年度は試料を $3000\text{ }^\circ\text{C}$ 以上の温度に加熱し、 $(U, Fe) O_2$ 模擬粒子試料の作製を行うとともに、試料徐冷による、凝固部位の性状の変化を観察し、温度履歴による試料性状の影響について評価した。令和4年度に行った試料の検証に引き続き、模擬デブリ合成を試み、物性を測定した。得られた結果の比較により、この2種類のウラン含有デブリの微細組織評価から組織形成モデル推定によるデブリ形成条件を解明した。また、令和4年度に行った試料の検証に引き続き、模擬デブリ合成を試み、物性を測定した。得られた結果の比較により、この2種類のウラン含有デブ

りの微細組織評価から組織形成モデル推定によるデブリ形成条件を解明した。Zr 含有量の異なる 2 種類のウラン酸化物固溶体と Zr 酸化物など生成が見られたが、鉄の酸化物は生成せず、凝固パス図とは部分的に一致した。さらに、酸素濃度が低い条件では酸素を含む金属 Zr が生成し、ZrO₂ が還元されることも示唆された。

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および②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 年度も、項目 (1) ①および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)-(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令和 5 年度の試料の組成を決定することとした。

令和 5 年度は、項目 (1) ①および②のこれまでの成果を取りまとめ、酸化物デブリの形成過程のメカニズムを解明した。令和 5 年 8 月 21 日および令和 6 年 3 月 8 日に酸化物燃料デブリの形成のために必要な温度、雰囲気等について議論した。

(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：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および分析方式を確立した。

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 (～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、試料の金属組織観察・金属間化合物およ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。

令和 5 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 (～最高温度 2100 °C) で低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・金属間化合物およ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。令和 3～4 年度に実施した試験結果と併せてデータを整理し、項目 (2) ④の形成メカニズム評価の基礎データとした。平衡論と数値流体を組み合わせた解析的評価法を整備し、実験しきれない条件に対する推定を行うことを可能とした。実施した実験結果に基づいて非等温反応によるステンレス損傷量の評価法を実施した結果、ステンレス鋼温度が 1000 °C 程度の場合は熔融金属の Zr 濃度に関わらず薄い反応相を形成し、ステンレス鋼損傷が抑制されることが分かった。

② 2、3 号機金属デブリサンプル組成に基づくデブリ反応履歴解析と特性評価

(再委託先：国立大学法人東北大学 (以下、「東北大学」と略す。))

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 B₄C、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 および 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および炭素が析出し溶解速度が低下する傾向を示した。

令和5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 および 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取得整備した。压力容器下部を想定した条件でのステンレス鋼融体中での固相生成挙動、B、C および Zr 濃度の変化を評価した。その結果、 B_4C およびジルカロイのステンレス鋼融体への溶出速度を定量化した。

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

(連携先：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「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压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压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、水蒸気雰囲気での压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压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）と压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。压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作製した上で、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、压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、酸化物が压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压力容器材との反応・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。

令和5年度は、ステンレス鋼とジルコニウム混合物の各種压力容器部材や溶接部材との反応速度データを拡充し、大型試験体系で解析可能な簡素化反応速度式を提案した。熔融金属物質による压力容器下部破損挙動の大型試験における試験体を分析するとともに、提案する反応速度式による大型試験の実験解析と併せて、熔融金属と压力容器構造材との反応による压力容器下部破損挙動、熔融物流出挙動を評価した。また、压力容器下部におけるデブリ再熔融過程でのウラン化合物とステンレス鋼等の金属物質の反応試験データを拡充し、金属デブリ層へのウラン移行挙動を評価した。熔融金属物質が高 Zr 濃度の場合と低 Zr 濃度の場合における、各種压力容器部材や溶接部材であるステンレス鋼や Ni 合金との簡素化反応速度式を提案した。その式を適用した実験解析により压力容器下部破損状況を評価し、その妥当性を確認した。また、ウラン化合物と金属

物質との反応状況の温度依存性を評価し、約 2000 °C を超える温度域でその反応が顕著になることを確認した。

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

令和 4 年度も、項目 (2) ①、②、③の結果をもとにして、熔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、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。

令和 5 年度も、項目 (2) ①、②、③の結果をもとにして、金属デブリ形成メカニズムおよび下部プレナム破損メカニズムを解明した。金属デブリ形成においては、熔融した金属物質と固体の炉内構造材などとの反応は限定的であることを明らかにした。ただし、高 Zr 濃度の熔融金属物質との反応は低 Zr 濃度の場合と比して速い傾向があった。圧力容器下部における破損においては、高 Zr 濃度の金属物質の場合には Ni 合金との反応が進みやすいこと、低 Zr 濃度の金属物質の場合には炉内構造材の融点に達して熔融が進みやすいことを明らかにした。

(3) デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備

① 3 号機下部プレナム条件を模した、酸化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 (以下、「CCIM」と略す。) による半熔融酸化燃料デブリの模擬物質作製およ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 CCIM 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、生成物における金属間化合物およ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熔融状態から CCIM 実験装置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、半熔融状態の模擬デブリ作製に成功した。

令和 5 年度は、令和 3 年度に構築した CCIM 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 (2 回目) 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および酸化物の偏析状態を評価した。令和 4 年度に実施した 1 回目試験の結果と併せて得られた模擬物質の金属組織特性について整理し、3 号機燃料デブリ化学状態として考えられる性状について知見を取りまとめ、金属デブリ熔融凝固試験の傾向と比較し、項目 (2) ①の機構論的解析に反映させた。上記熔融・浸漬実験により、ジルコニウムおよびステンレス鋼の熔融および侵入挙動の把握、ウラン系エアロゾルおよび鉄クロム複合酸化物生成の確認、ボロンの溶解挙動の把握を行った。

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g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CCIM実験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、5g程度のUO₂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取りまとめた。その結果、CCIM炉は100g程度の不均一な試料を合成して様々な物性を測定することに適しているのに対し、ガス浮遊炉は1g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。

令和5年度は、令和4年度にガス浮遊法により作製した模擬デブリを分析し、ガス浮遊法によるウラン含有模擬デブリの溶融条件を見出すとともに、可能な最大試料量とその際の炉の仕様についても検討した。得られた検討結果等をもとにCCIM炉法およびガス浮遊法を用いたそれぞれの炉の仕様と最適なウラン溶融試験方法について取りまとめた。これまでの議論からUO₂とZrおよびSUSの融点・沸点を考慮し、少量の金属を含む酸化物の短時間の溶融試験をガス浮遊炉で、溶融凝固した大量の酸化物デブリと金属デブリの部分溶融試験をCCIM炉で行うことが提案された。

(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、東京電力ホールディングス株式会社（以下、「東電」と略す。）、必要に応じてプラントメーカー、解析研究機関等がそれぞれアップデートされた知見を持ち寄って、号機ごとのデブリ特性、形成メカニズムの評価を行うとともに、さらなる高精度化のための今後の試験条件を検討した。

令和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。

令和5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、国立大学法人九州大学（以下、「九州大学」と略す。）の外部委員を交えて、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い、事故進展シナリオの高度化に反映し得られた結果は、燃料デブリ基盤データベースに格納可能なデータとして整備し、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した。令和5年7月5日に研究実施者と第1回の研究推進委員会を開催し、令和4年度の成果、令和5年度の計画および最終的な成果物について議論した。また、令和5年12月21日に第2回の研究推進委員会を開催し、これまでの研究進捗について議論した。令和6年3月8日第3回の研究推進委員会を開催し、燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。さらに、令和6年3月25日に第4回の研究推進委員会を開催し、最終的成果およびそこから導きだされた燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。また、令和4年度の報告書公開版を作成してデータベースに登録し、閲覧できるようにした。

(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、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 5 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、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。JAEA、東電、九州大学の外部委員を交えて、令和 5 年 7 月 5 日に研究実施者と第 1 回の研究推進委員会を開催し、令和 4 年度の成果、令和 5 年度の計画および最終的な成果物について議論した。また、令和 5 年 12 月 21 日に第 2 回の研究推進委員会を開催し、これまでの研究進捗について議論した。令和 6 年 3 月 8 日第 3 回の研究推進委員会を開催し、燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。さらに、令和 6 年 3 月 25 日に第 4 回の研究推進委員会を開催し、最終の成果およびそこから導きだされた燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。

前年度までの成果報告書：

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

令和 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

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

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

令和 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

JAEA-Review 2024-014. DOI: 10.11484/jaea-review-2024-014

以上、3 カ年計画の 3 年目である令和 5 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

燃料デブリ取り出しに向け、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（以下、「1F」と略す。）内部調査や事故進展解析の進捗により、1F では、PWR 典型的な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、燃料デブリ取り出し設計に反映・活用するのが、喫緊の課題となっている。

さらに、燃料デブリ取り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。特に燃料デブリ取り出しの初期（試験的な燃料デブリ取り出し～段階的な燃料デブリ取り出し量の拡大）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、燃料デブリの取り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、デブリの熔融・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、燃料デブリの熔融・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らし合せ、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熔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、燃料デブリ取り出しにおいて合理的に排除したい発生確率の低いリスク（例：燃料デブリ中の活性金属の残留、等）について検証試験を行い、1F 事故進展シナリオにおいて、このようなリスクが発生する化学条件がどの程度蓋然をもって発生したのか、しなかったのかを調査する。

これらの検討結果を、本研究の実施者と事故進展解析専門家で共有し、燃料デブリ分析データ活用と、デブリ取り出し設計の合理化・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 の結果を取りまとめる。本研究成果と既往の事故進展解析の結果 (Forward Analysis) を照らし合せ、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 (溶融・凝固条件、最高到達温度、酸化度、等) の範囲を明らかにするとともに、試験で得られた形成条件を事故進展解析にフィードバックし、U 含有粒子が形成された事故過程の推定および事故進展解析による事故時化学環境の推定結果の妥当性を検討する。

2.1.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

2、3 号機については、最近の事故進展解析により、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溶融した後、溶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、金属デブリの溶融、酸化物デブリの半溶融、それらの凝固のメカニズムが大きく影響していると考えられる。事故進展解析と 1F サンプル分析結果に基づいて、従来研究よりも 1F での現実に近い模擬金属デブリを合成し主要な物性を測定するとともに、下部プレナム試験体の破損再現試験を実施し金属デブリによる局所破損モードを解明する。併せて、模擬金属デブリの水蒸気雰囲気中での凝固時酸化・偏析や模擬金属デブリ中への U 金属含有条件に関するデータを取得する。これらと事故進展解析結果を照らし合せ、2 号機ペDESTAL からの試験的燃料デブリ取り出しに向けて、金属デブリ特性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溶融・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溶融途中から徐冷された可能性が高いなど、非平衡状態で生成された非均一性の高い燃料デブリが多く形成されていると推定される。海外では kg オーダ以上の U を含む大型試験体を用いた溶融・凝固試験においてこのような模擬デブリを得ることができるが、1F 事故条件を反映し、より詳細で現実に近い燃料デブリの性状を把握し、近い将来に予定されている実デブリ分析の結果を補完していくには、国内に数 g 規模の U を用いて、きめ細かい実験条件での模擬デブリを合成して検証試験を行う、試験フィールドを整備することが必要である。そのためには、U を含む酸化物試料をその溶融温度以上まで加熱し、徐冷あるいは水中への急冷等、様々な条件で冷却できる装置が必要である。現在、国内ではそのような装置を所有する核燃料物質使用施設はない。そこで、海外の試験施設を利用して非平衡状態での模擬デブリ合成とその性状把握を行うことで、段階的デブリ取り出しにおいて重要となる非均質燃料デブリの特性把握に関わる知見を得る。さらに、国内で U 酸化物試料を溶融・凝固できる装置の設計・製造に向けて、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 メーカーに UO₂ (融点：

2800 °C) の模擬として HfO_2 (融点 : 2758 °C) を用いた燃料、被覆管および構造材の同時熔融試験を委託する。ここでは、CCIM 炉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 UO_2 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、本研究成果が公開された後に廃炉事業者や他の英知事業実施者などが閲覧できるようにする。

2.2 実施体制

課題全体の取りまとめ：宇埜正美 30 %		
(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析 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（大阪大学）		
研究責任者：大石佑治 10 %	学生 A	
レーザー加熱炉整備、実験条件検討	実験、分析	
(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（福井大学）		
研究責任者：宇埜正美 30 %	有田裕二 10 %	福元謙一 10 %
FCC型UO ₂ 共存相の生成条件の把握	溶融燃料急冷時の粒子組織観察	模擬燃料デブリの化学組成分析と構造同定による微細組織評価
(1) 酸化物デブリ化学状態の逆解析 ③模擬物質に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（福井大学、大阪大学）		
福井大学	宇埜正美 30 %	有田裕二 10 %
大阪大学	大石佑治 10 %	福元謙一 10 %
(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（東京工業大学）		
研究責任者：小林能直 10 %	伊藤あゆみ 20 %	学生 A
非平衡反応実験装置整備実験条件検討		実験、分析
(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（東北大学）		
研究責任者：植田滋 10 %	岩間崇之 10 %	学生 B
(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価 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））		
JAEA 事業責任者：永江勇二 10 %		
研究責任者：佐藤拓未 10 %	下村健太 10 %	須藤彩子 5 %
水蒸気雰囲気での中型試験シミュレーション	水蒸気雰囲気での大型試験、シミュレーション	ウラン試験、分析評価

実施体制（体制図）つづき

(2) 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

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
（東北大学、東京工業大学、JAEA（連携機関））

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

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（東京工業大学）

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）

研究責任者：宇埜正美 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（福井大学・JAEA（連携機関））

福井大学

研究責任者：宇埜正美 30 %

有田裕二 10 %

福元謙一 10 %

大阪大学

大石佑治 10 %

東京工業
大学

小林能直 10 %

伊藤あゆみ 20 %

東北大学

植田滋 10 %

岩間崇之 10 %

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5年度の成果の目標および業務の実施方法

2.3.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析

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

(再委託先：大阪大学)

ウラン含有試料を用いて様々な条件でエアロゾル粒子を作製し、捕集したエアロゾル粒子を分析する。これにより、実際にこれまで見つかった粒子の特徴を再現するような粒子生成条件を明らかにする。

(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）

試料を3000℃以上の温度に加熱し、模擬(U,Fe)O₂模擬粒子試料の作製を行うとともに、試料徐冷による、凝固部位の性状の変化を観察し、温度履歴による試料性状の影響について評価する。令和4年度に行った試料の検証に引き続き、模擬デブリ合成を試み、物性を測定する。得られた結果の比較により、この2種類のウラン含有デブリの微細組織評価から組織形成モデル推定によるデブリ形成条件を解明する。

(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

(福井大学、再委託先：大阪大学)

2.3.1項(1)および(2)のこれまでの成果を取りまとめ、酸化物デブリの形成過程のメカニズムを解明する。

2.3.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

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

(再委託先：東京工業大学)

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℃）で低濃度ジルコニウム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する。試料の金属組織観察・金属間化合物およ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。令和3～4年度に実施した試験結果と併せてデータを整理し、2.3.2項(4)の形成メカニズム評価の基礎データとする。

平衡論と数値流体を組み合わせた解析的評価法を整備し、実験しきれない条件に対する推定を行うことを可能とする。

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

(再委託先：東北大学)

ステンレス融体の組成の変化に及ぼす固体構造物の接触状態と温度、雰囲気の影響を評価するために、溶融ステンレスとB₄C、ジルカロイの接触試験を行いB、Cおよび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取得整備する。圧力容器下部を想定した条件でのステンレス鋼融体中での固相生成挙動、B、CおよびZr濃度の変化を評価する。

(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を拡充し、大型試験体系で解析可能な簡素化反応速度式を提案する。溶融金属物質による圧力容器下部破損挙動の大型試験における試験体を分析するとともに、提案する反応速度式による大型試験の実験解析と併せて、溶融金属と圧力容器構造材との反応による圧力容器下部破損挙動、溶融物流出挙動を評価する。また、圧力容器下部におけるデブリ再溶融過程でのウ

ラン化合物とステンレス鋼等の金属物質の反応試験データを拡充し、金属デブリ層へのウラン移行挙動を評価する。

- (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および下部プレナム破損メカニズムを解明する。

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CCIM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（2回目）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および酸化物の偏析状態を評価する。令和4年度に実施した1回目試験の結果と併せて得られた模擬物質の金属組織特性について整理し、3号機燃料デブリ化学状態として考えられる性状について知見を取りまとめ、金属デブリ熔融凝固試験の傾向と比較し、2.3.2 項 (1) の機構論的解析に反映する。

- (2) 燃料デブリ研究用大型ガス浮遊炉の設計（福井大学）

令和4年度にガス浮遊法により作製した模擬デブリを分析し、ガス浮遊法によるウラン含有模擬デブリの熔融条件を見出すとともに、可能な最大試料量とその際の炉の仕様についても検討する。得られた検討結果等をもとに、CCIM炉法およびガス浮遊法を用いたそれぞれの炉の仕様と最適なウラン熔融試験方法について取りまとめる。

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2.3.1 項～2.3.3 項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い、事故進展シナリオの高度化に反映し、得られた結果は燃料デブリ基盤データベースに格納可能なデータとして整備し、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。

2.3.5 研究推進

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

3. 実施内容および成果

3.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析【令和3年度～令和5年度】

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 (再委託先：大阪大学)【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

令和4年度までに、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ガス（Ar等）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融させた。試料の様子は、横方向からと斜め上方向からカメラで観察した。試料の温度は2色放射温度計を用いて計測した。高温の試料の輪郭を明確に観察できるように、斜め上から観察するカメラにはブルーフィルターを設置した。溶融した試料から発生するエアロゾルをポンプで吸引し、フィルターを用いて捕集した。捕集したエアロゾルは、SEM/EDXやX線回析(XRD)によって分析した。また、溶融後の試料も分析した。

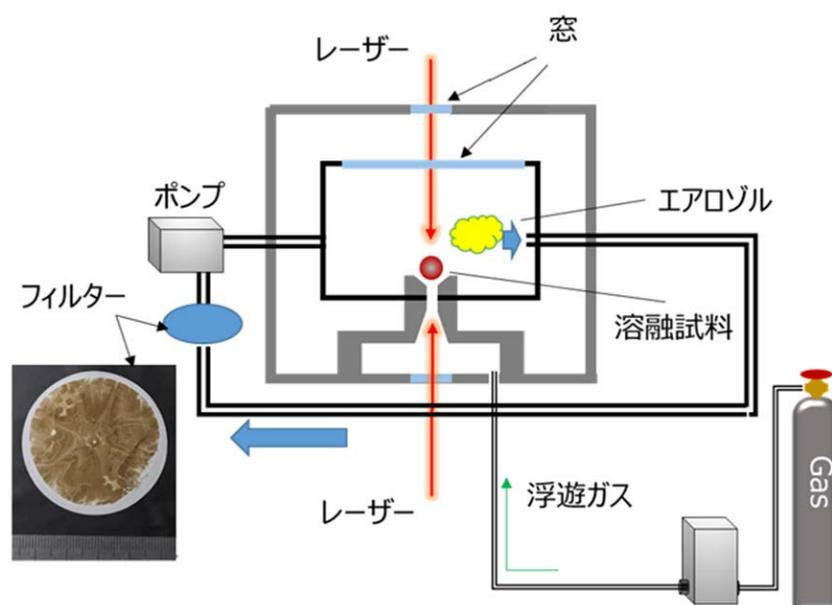


図 3.1.1-1 浮遊型レーザー加熱炉の概要

上記の手法を用い、 $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料から生じたエアロゾルの SEM 観察を行った。その結果を図 3.1.1-2 に示す。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 以下であったと言える。

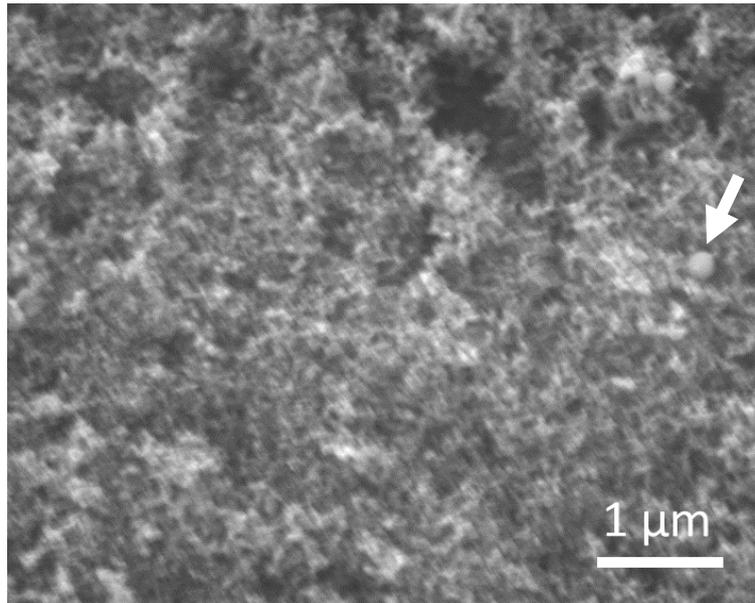


図 3. 1. 1-2 フィルターによって捕集した $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料から発生したエアロゾルの SEM 観察結果

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. 1-3 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 リッチなマトリクス中に、U と Zr を含む相が分布していることが分かる。U と Zr を含む相は、U と Zr が共存している相と Zr リッチな相の 2 種類が見られる。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。

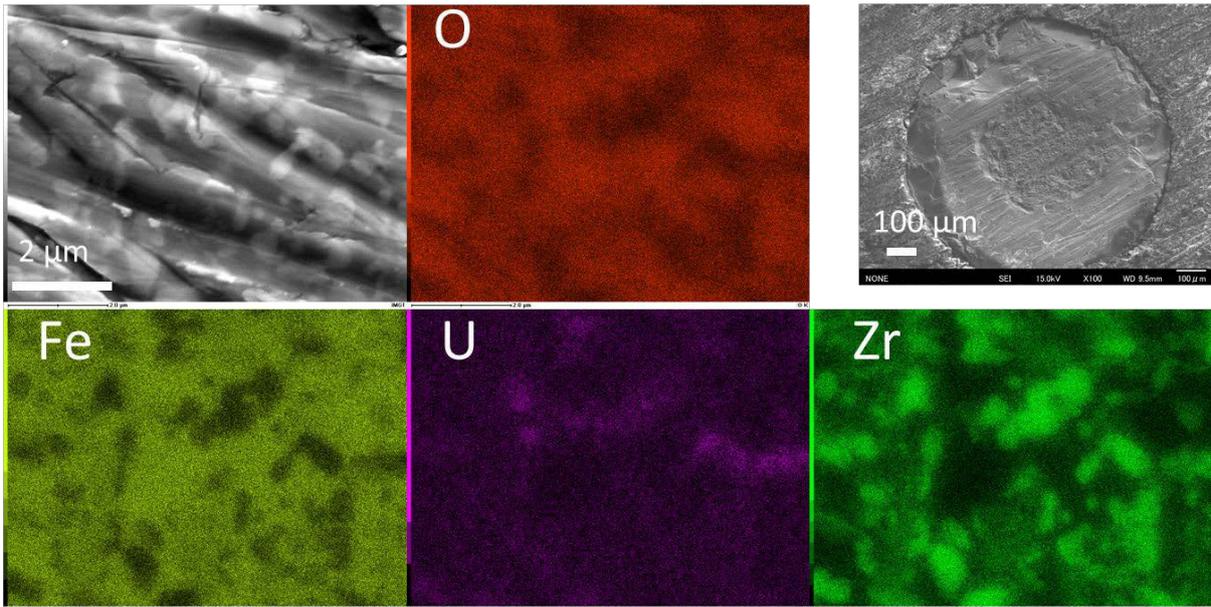


図 3. 1. 1-3 浮遊熔融後の $(\text{FeO})_{91.8}(\text{UO}_2)_{3.8}(\text{ZrO}_2)_{4.4}$ 試料断面の SEM/EDS 分析結果

【令和 5 年度実施内容および成果】

令和 5 年度は、令和 4 年度までに確立したエアロゾル捕集および分析技術を用い、ウラン含有試料を含む Bi、Fe、Zr、ZrO₂、UO₂、(UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57) について様々な条件でエアロゾル粒子を作製し、捕集したエアロゾル粒子を分析した。これにより、実際にこれまで見つかった粒子の特徴を再現するような粒子生成条件を明らかにした。なお、これらの試験においてはドライアイスを用いて、試料の浮遊に用いたガスの露点を -79 °C に制御した。

まず、試料温度とエアロゾルの形状の関係を調べるために、融点が低く温度制御が容易である Bi について浮遊熔融状態の Bi の温度が融点+100 °C 程度のとくと融点+500 °C 程度のとくに発生したエアロゾルを SEM で観察した。その結果を図 3.1.1-4 に示す。図 3.1.1-4 (a)、(b) は、融点+100 °C 程度のとくと融点+500 °C 程度のときの Bi の温度と外観を、図 3.1.1-4 (c)、(d) が SEM 画像である。試料外観より、融点+500 °C のときは Bi が赤熱していることが分かる。SEM 画像より、試料温度が融点+500 °C のときの方がエアロゾル粒子のサイズは明らかに大きく、球状となっていることが分かる。このことから、エアロゾル粒子サイズはエアロゾル発生時の温度に依存し、温度が高いほど粒子は大きくなることが分かった。

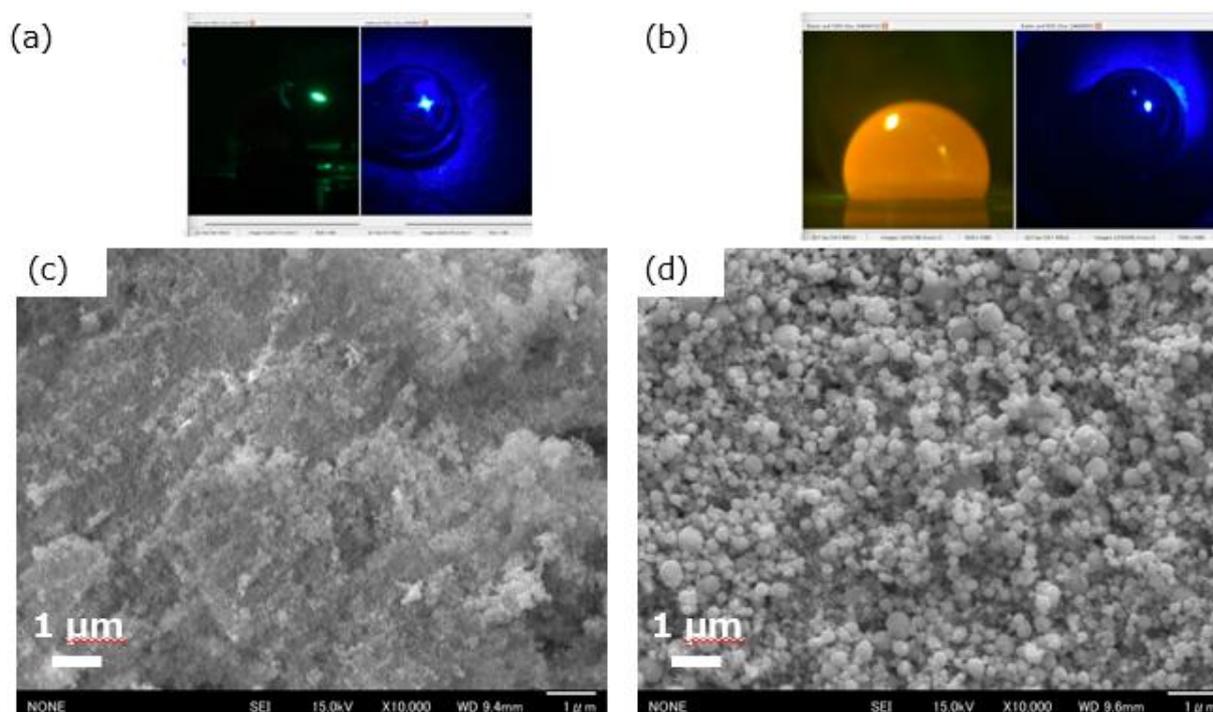


図 3.1.1-4 Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊熔融した Bi の (a)、(b) (左から) 横から観察した試料外観、斜め上から観察した試料外観。
(c)、(d) はフィルターによって捕集したエアロゾルの SEM 観察結果。
(a)、(c) は Bi の温度が融点+100 °C 程度、(b)、(d) は Bi の温度が融点+500 °C 程度

次に、Fe について試験を実施した。浮遊に用いたガスは、Fe の酸化を抑制するために 4 % の H₂ を混合した Ar ガス (4 %H₂-Ar ガス) である。浮遊熔融状態の Fe の温度は、融点+200 °C 程度であった。その結果を図 3.1.1-5 に示す。スケールバーと粒子サイズの比較により、発生したエアロゾルは 100 nm 以下のサイズであることが分かる。

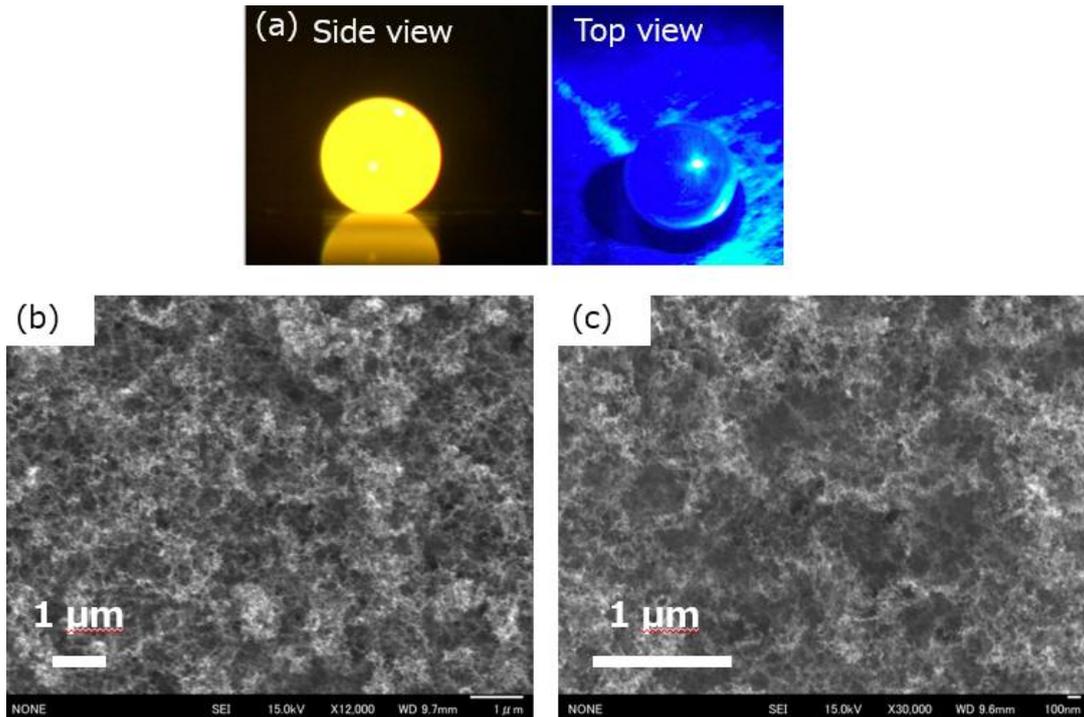


図 3. 1. 1-5 4 %H₂-Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した Fe の(a) (左から) 横から観察した試料外観、斜め上から観察した試料外観。
(b)、(c)はフィルターによって捕集したエアロゾルの SEM 観察結果

同様に Zr と ZrO₂ について実施した試験の結果を図 3. 1. 1-6(a) と (b) にそれぞれ示す。浮遊に用いたガスは、4 %H₂-Ar ガスである。いずれも浮遊溶解状態を 1 分間保持したが、エアロゾルの発生量は少なくエアロゾルの分析はできなかった。

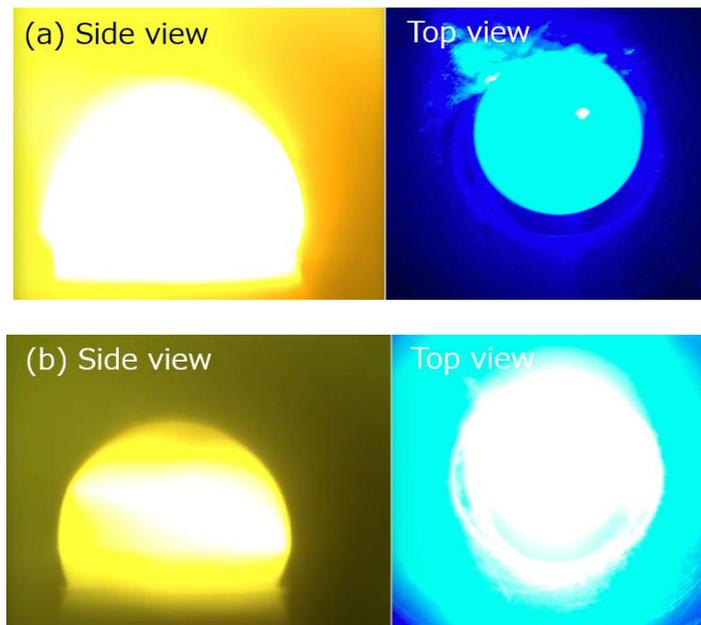


図 3. 1. 1-6 4 %H₂-Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した (a) Zr と (b) ZrO₂ の横から観察した試料外観と斜め上から観察した試料外観

図 3.1.1-7 に、 $(\text{UO}_2)_{(1-x)/3}\text{Zr}_x$ ($X = 0.57$) を 4 % H_2 -Ar を用いて浮遊溶融させた際の試料の様子を示す。浮遊溶融状態を 1 分間保持したが、エアロゾルの発生量は少なくエアロゾルの分析はできなかった。

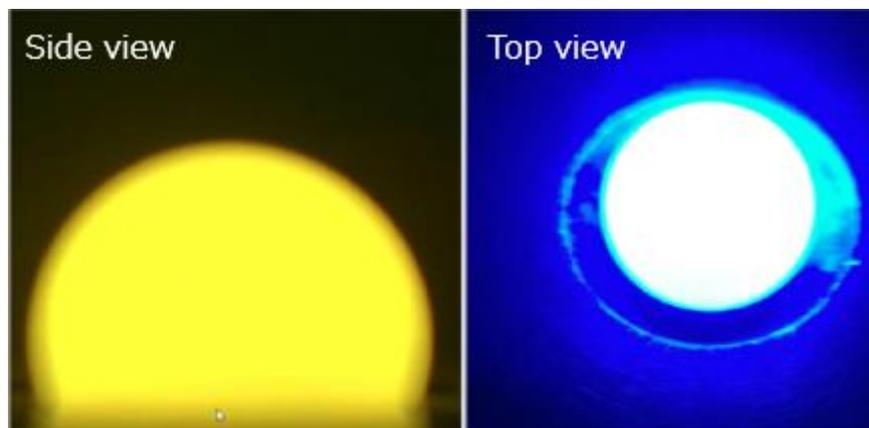


図 3.1.1-7 4 % H_2 -Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶融した $(\text{UO}_2)_{(1-x)/3}\text{Zr}_x$, $X = 0.57$ の (左から) 2 色放射温度計の測定結果、横から観察した試料外観、斜め上から観察した試料外観

UO_2 は水蒸気分圧によって蒸気圧が大きく変化することが知られている。そこで、ドライアイスを用いて露点を $-79\text{ }^\circ\text{C}$ に制御した場合と、室温でバブリングして露点を $15\text{ }^\circ\text{C}$ に制御した場合の 2 通りで実験を行った。図 3.1.1-8(a)、(b) にそれぞれの試料の様子を示す。露点を $-79\text{ }^\circ\text{C}$ に制御した場合は 1 分間の浮遊溶融状態を保つことができたが、露点 $15\text{ }^\circ\text{C}$ の場合は蒸発が顕著であり 15 秒間程度しか浮遊溶融状態を保てなかった。

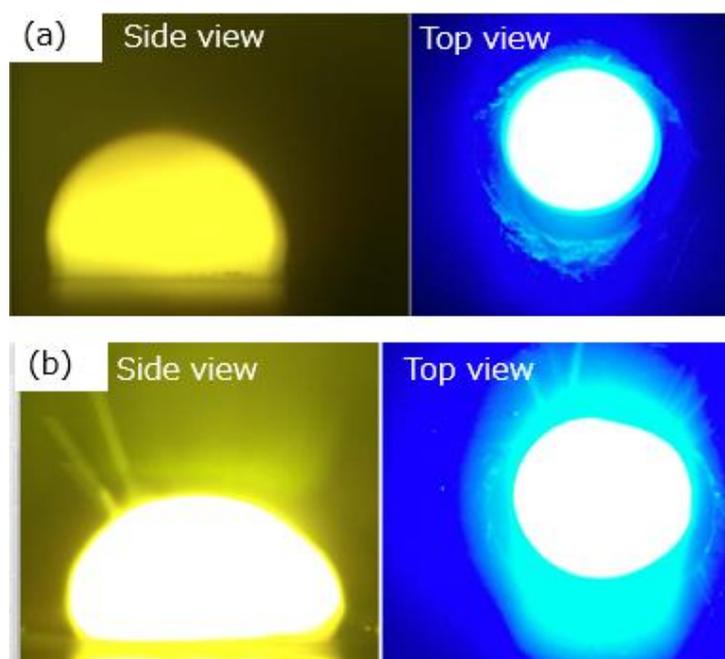


図 3.1.1-8 (a) 4 % H_2 -Ar ガス (露点 $-79\text{ }^\circ\text{C}$) と、(b) 4 % H_2 -Ar ガス (露点 $15\text{ }^\circ\text{C}$) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶融した UO_2

表 3.1.1-1 に、Zr、ZrO₂、(UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57)、UO₂ を 1 分間浮遊溶融させたときの試料の溶融前後の質量と浮遊溶融によって減少した質量を示す。減少した質量が蒸発したとして蒸発量を評価すると、Zr はほとんど蒸発せず、ZrO₂、(UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57)、UO₂ の順に蒸発量が増加することが分かる。また、UO₂ は露点-79 °C と 15 °C では大きく蒸発量が異なることが分かる。UO₂ は水蒸気雰囲気では、顕著に蒸発すると考えられる。エアロゾル中の U と Zr の組成比について検討するために UO₂ と ZrO₂ の蒸発量を Zr/(U+Zr) によって比較すると、露点-79 °C のときは 0.2 程度であり、水蒸気分圧が増加すると UO₂ の蒸発が顕著になることから、Zr/(U+Zr) は 0 に近づくと考えられる。これらの結果より、Zr を含まず U が存在する粒子が蒸発凝縮過程によって形成したと推定するのは妥当であるが、水蒸気分圧次第では Zr/(U+Zr) は 0.2 程度になる場合もあり得ると言える。

表 3.1.1-1 4 %H₂-Ar ガスを用いたガス浮遊法によって 1 分間浮遊溶融状態を保持する前後の試料重量と減少した質量

Sample	Before	After	Evaporation	
			mg	%
Zr (dew point -79 °C)	22.15	22.23	-0.08	-0.4
ZrO ₂ (dew point -79 °C)	13.97	13.61	0.36	2.6
(UO ₂) _{(1-x)/3} Zr _x , X=0.57 (dew point -79 °C)	16.26	15.26	1.00	6.2
UO ₂ (dew point -79 °C)	19.44	17.26	2.18	11.2
UO ₂ (dew point 15 °C)	17.23	14.33*	2.90*	16.8* 67.2**

* 浮遊溶融時間は 15 秒間

** 1 分間換算

図 3.1.1-9 に、露点-79 °C と 15 °C のときに UO₂ から生じたエアロゾルの SEM 画像を示す。図中のインセットはフィルターの外観である。露点-79 °C と 15 °C のいずれの場合も、粒子のサイズは 100 nm 以下である。また、図 3.1.1-10 には露点-79 °C と 15 °C のときに UO₂ から生じたエアロゾルの XRD 分析結果を示す。いずれの場合も、エアロゾルは立方晶の UO₂ であった。このことから、溶融 UO₂ からは微小なサイズの立方晶 UO₂ エアロゾル粒子が生じることが分かった。

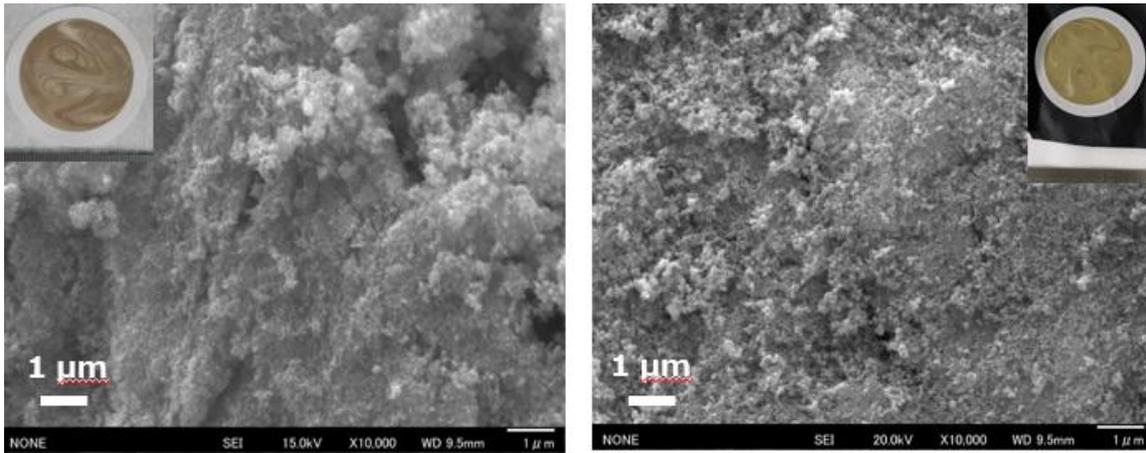


図 3.1.1-9 (a) 4 %H₂-Ar ガス (露点-79 °C) と、(b) 4 %H₂-Ar ガス (露点 15 °C) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶融した UO₂ から生じたエアロゾルの SEM 観察画像

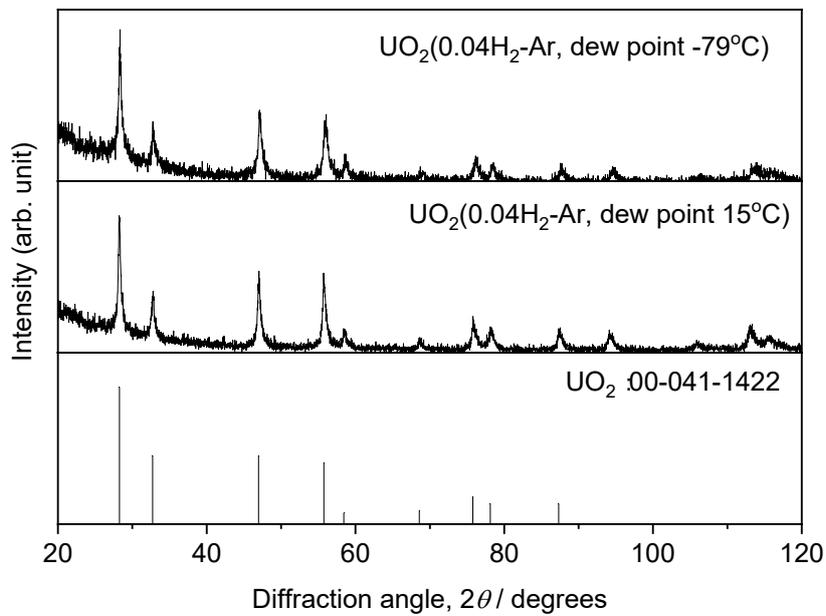


図 3.1.1-10 (a) 4 %H₂-Ar ガス (露点-79 °C) と、(b) 4 %H₂-Ar ガス (露点 15 °C) を用いてガス浮遊法によって浮遊溶融した UO₂ から生じたエアロゾルの XRD 測定結果

4 %H₂-Ar ガスを用いて、ガス浮遊法によって浮遊溶融した (UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57) 試料の断面の SEM/EDX 分析結果を図 3.1.1-11 に、粉末 XRD 分析結果を図 3.1.1-12 に示す。これらの結果より、溶融してから凝固した (UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57) では、立方晶 UO₂ と α-Zr が生じることが分かる。

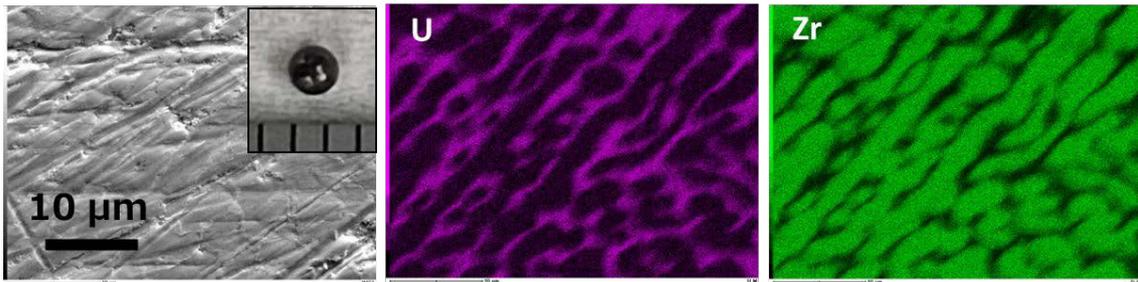


図 3. 1. 1-11 4 %H₂-Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した (UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57) 試験後試料の外観写真と断面 SEM/EDX 観察画像

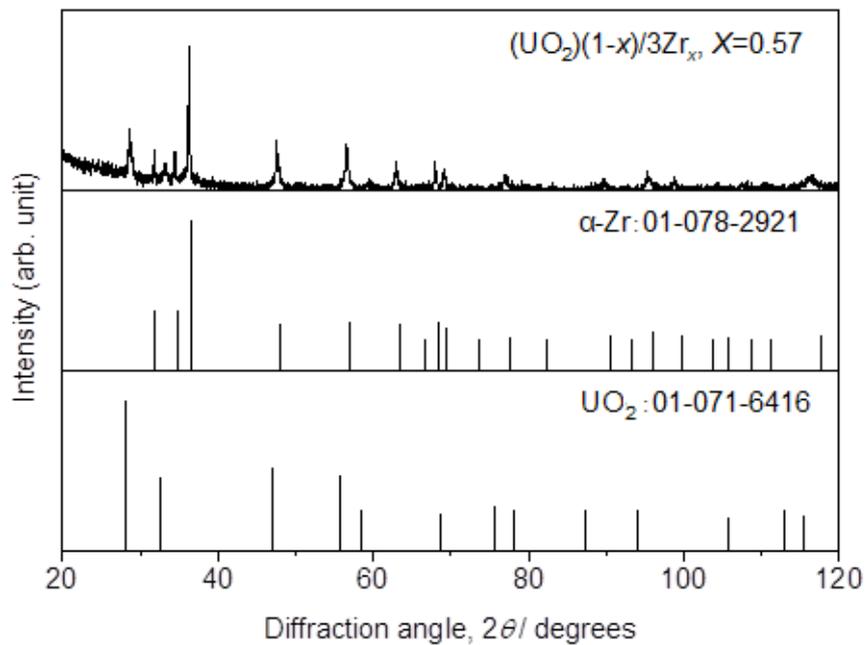


図 3. 1. 1-12 4 %H₂-Ar ガスを用いてガス浮遊法によって浮遊溶解した (UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (X = 0.57) 試験後試料の XRD 測定結果

UO₂ の浮遊溶解実験中に、UO₂ は頻繁に破裂した。その様子を図 3. 1. 1-13 に示す。UO₂ を加熱して浮遊溶解させた後、試料がノズル壁面に付着して急冷されると、試料が破裂した様子を示している。一方、ZrO₂ や Fe 等の他の物質ではこのような現象は見られなかった。UO₂ は分子動力学 (以下、「MD」と略す。) 計算によって高温で熱膨張率が大きく上昇することが予想されており^[1]、これが原因である可能性がある。2 号機トラス室滞留水で、大きな粒子からの破片と推定される UO₂ 粒子が見つかったが、その形成メカニズムと関係していると思われる。

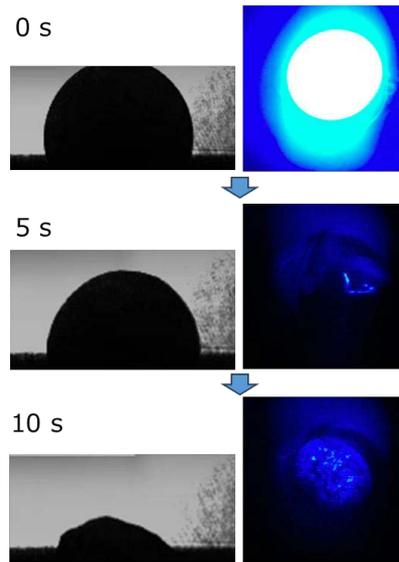


図 3.1.1-13 4 %H₂-Ar ガス（露点-79 °C）を用いてガス浮遊法によって浮遊溶融した UO₂ の（左）横からバックライトを使用して観察した試料外観、（右）斜め上から観察した試料外観

以上、Bi、Fe、Zr、ZrO₂、UO₂、(UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (x = 0.57) の浮遊溶融試験を実施し、発生したエアロゾルを分析した。得られた結果をまとめると、以下の通りである。

- Bi を融点直上と融点+500 °C程度で浮遊溶融させた結果より、高温で発生するエアロゾルは大きな球状粒子となり、低温で発生するエアロゾルは小さな粒子となることが分かった。
- Fe と UO₂ を融点直上で浮遊溶融させた結果生じたエアロゾルは、100 nm 以下のサイズの小さな粒子であった。
- Zr、ZrO₂、(UO₂)_{(1-x)/3}Zr_x (x = 0.57)、UO₂ を還元雰囲気（4 %H₂-Ar、露点-79 °C）で浮遊溶融させ、質量減少から蒸発量を評価した。また、UO₂ は水蒸気雰囲気（4 %H₂-Ar、露点 15 °C）での試験も実施した。その結果、還元雰囲気ではエアロゾル中 U と Zr の組成比 Zr/(U+Zr) は 20 %程度になりえること、水蒸気雰囲気では U の蒸発が支配的となること、水蒸気雰囲気では U の蒸発が顕著となることが分かった。
- 還元雰囲気と水蒸気雰囲気のいずれにおいても、蒸発凝集によって生じた UO₂ 粒子は立方晶であった。

これらの結果より、推定されるエアロゾル粒子生成条件は、以下の通りである。

- 1号機オペレーティングフロアで見つかった、ほとんど Zr を含まない立方晶の UO₂ 粒子は、UO₂ の蒸発凝集によって生成したと考えられる。U 含有粒子については、Zr の含有の有無以外に粒子サイズにも着目すべきと考えられる。微小な粒子が確認された場合、蒸発凝集を経たものであると考えられる。
- 1号機底部堆積物から見つかった、U リッチな立方晶 (U, Zr)O₂ と Zr リッチな正方晶 (Zr, U)O₂ からなる U 含有粒子は、U-Zr-O を含む溶融物の凝固によって生じたと考えられる。
- 2号機トラス室滞留水で見つかった、大きな粒子からの破片と推定される UO₂ 粒子は、高温の大きな UO₂ 粒子が急冷される際に、割れることによって生じたと考えられる。

参考文献

- [1] Cooper, M.W., Murphy, S.T., Fossati, P.C., Rushton, M.J., Grimes, R.W., Thermophysical and anion diffusion properties of (U_x, Th_{1-x})O₂, Proc. Math. Phys. Eng. Sci., Vol.470, 2171, 2014. DOI: 10.1098/rspa.2014.0427

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5年度】

(1) はじめに

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

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

(2) タングステンパイプを用いたウラン粒子合成【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

中央にピンホールを施したタングステンパイプに試料を充填し、高温に加熱することで内容物の融解と内圧増加に伴う噴出が起ることを確認し、実燃料模擬のセリア添加 UO_2 の噴出試験とコールド模擬物質である YSZ（イットリア安定化ジルコニア）を用いた噴出試験を実施した。その結果、図 3.1.2-1～図 3.1.2-2 に示すように様々な形状の粒子が見つかったが、 CeO_2 添加 UO_2 試料ではきれいな球状の粒子は発見できなかった。一方、YSZ 試料や模擬デブリ試料 ($ZrO_2+CeO_2+SUS316L$) では、図 3.1.2-3～図 3.1.2-5 に示すように、歪ではあるが球状の粒子が見つかった。また、その大きさは数 μm から 100 μm 程度と様々な種類が見られた。

【令和5年度実施内容および成果】

令和4年度までの結果を参考にして実デブリの模擬粒子状試料作製試験は CeO_2+ZrO_2+SUS 系を用いて行った。試料を 3000 $^{\circ}C$ 以上の温度に加熱し、模擬 (U, Fe) O_2 模擬粒子試料の作製を行うとともに、試料徐冷による凝固部位の性状の変化を観察し、温度履歴による試料性状の影響について評価した。1F 1号機から採取された実サンプルの組成を参考にて、 CeO_2 を主成分とする酸化物リッチ組成と Fe を主成分とする金属リッチ組成を選定した。また、噴出時の雰囲気は 0.0001 気圧程度の真空中と 0.1 気圧程度の Ar-5 % H_2 中（還元雰囲気）の2種類で試験を実施した。以下に、実験および作製試料解析についての詳細を記述する。

① 試料作製

表 3.1.2-1 に粒子作製に用いた原料の組成等を示す。表中の試料番号は、1F サンプルで確認されたものに対応する^[1]。各原料粉末 (CeO_2 , ZrO_2 , SUS316L) を混合した後、W（タングステン）管に充填し装置にセットした後に、装置内を所定の雰囲気（真空または還元雰囲気）とし、表 3.1.2-2 に示すような温度履歴で試料溶融および噴出試験を実施した。噴出したものは、噴出口の対面に設置したガラスで捕集するとともに、W チューブ下に置いた Pt 板でも捕集し、SEM/EDS 観察に供した。また、W 管内に残った試料は、ワイヤーカッターで縦方向に半割にして溶融・凝固サンプルとして組織観察を行った。

② 試料観察結果

サンプリングした微粒子試料の SEM 画像およびエネルギー分散型分光計 (EDS) 分析結果を、それぞれ図 3.1.2-6～図 3.1.2-14 に示す。ガラスに付着した溶融凝固粒子は、雰囲気および組成によって違いが見られた。真空中での付着粒子は、金属リッチ試料（図 3.1.2-6）では 1 μm 以下の

細かな粒の集合体であったが、酸化リッチ試料（図 3.1.2-7）では 100 μm の大きなひとかたまりの状態が見られた。EDS による組成評価からは、金属リッチ試料は SUS316L の成分に Ce が混合しており原料成分と近い状態であった。一方、酸化リッチ試料では Ce と SUS316L 成分割合が近く、溶けた金属成分が噴出しやすいと考えられる。なお、いずれの試料においても W のピークがあり、加熱時に W 管も蒸発し、付着していることが分かった。今後は 0.1 気圧程度の減圧状態で W の蒸発を抑えて試験を行い、噴出物の凝固組織への W の影響を調べる必要があるかもしれない。還元雰囲気で作製した酸化リッチ試料（図 3.1.2-8）では、Ce と Zr を主体とした粒が見られた。0.1 気圧程度のガス雰囲気下では、W の蒸着は抑えられていることも確認できた。図 3.1.2-9 に EDS による元素分布結果を示す。全体的に Ce が存在している中で Zr や Fe などが 1 μm 以下の小さな粒で点在していることが分かった。

Pt 板上でサンプリングした微粒子については、概ねきれいな球状の微粒子が確認できた。その形状から噴出した小さな液滴が、気中で凝固して落ちたものであると考えられる。図 3.1.2-10～図 3.1.2-12 に示すように、金属リッチ試料で見つかった微粒子は 50～100 μm 程度の大きさであり、Ce および SUS 成分が同程度混ざったものであった。図 3.1.2-11 および図 3.1.2-12 に示す元素分布からは、Ce の一様な粒の表面に Cr が濃淡のある状態で広く分布しているのに対し、Fe や Zr は粒状に局在している様子が見られたり、右と左で Ce と Fe が分かれて分布し、Cr はどちらにも存在し、Zr は Ce 側に濃淡のある状態で分布している様子も見られた。今後、透過電子顕微鏡（以下、「TEM」と略す。）による結晶構造解析や断面観察ができれば、気中凝固過程における微粒子生成メカニズムの理解が進むと期待される。

酸化リッチ試料では、金属リッチ試料よりも小さな粒子が確認できた。ここでも、Ce が主成分できれいな粒子の一部に Zr の小さな粒が存在している物（図 3.1.2-13）や金属成分が主成分ながら Fe と Cr で分布にむらが見られるようなものも観察された。

以上、金属リッチ試料と酸化リッチ試料では金属リッチ試料での微粒子が大きい傾向があり、酸化リッチ試料においては真空雰囲気下での微粒子が小さい傾向が見られた。これは、W 管からの噴出時の差圧によって噴出スピードが異なり、速く噴出した方が粒が小さくなることが影響していると考えられる。

③ 熔融凝固試料の観察

金属リッチ試料に関して、一旦融けた試料が急冷されたときと徐冷されたときの組織の違いについて、W 管内の残留物についての断面観察と XRD 分析を実施した。表 3.1.2-3 に加熱後の冷却温度条件を示す。

図 3.1.2-15 および図 3.1.2-16 に急冷試料の断面を示す。急冷によって凝固時の体積収縮による巣ができていくことが分かる。巣内側の拡大観察からは収縮によって、ひびが入っている様子も観察できる。図右側の凝固物がある部位においても一部巣が確認できる。

図 3.1.2-17 に示す徐冷試料の断面では、ゆっくり凝固したため巣は見られない緻密な断面となっている。拡大図からも分かるように、図左側（実験時には下の方）から色の違いが見られ成分の分離が起こっていることが分かる。EDS 分析では、下の方（左）に金属成分が多く上の方に酸化物が多いことが分かった。これは、融体の密度が若干大きい SUS が底にしみ、酸素が抜けてより軽くなった酸化セリウムが上に来ているためであると考えられる。

凝固試料を粉砕し、粉末 XRD を行った結果を図 3.1.2-18 に示す。図中一番上のスペクトル（initial）では、混合した原料の CeO_2 、 ZrO_2 および SUS316L のピークが見られるが、急冷（quenched）試料では、原料ピークの他に小さな不明ピークが $2\theta = 22^\circ$ 、 27° 、 30° 、 40° 付近に見られた。徐冷（annealed）試料では、ほぼ同じ場所にピークが見られたが、 30° 付近のピークは小さく、

40° 付近のピークは大きくなっていった。今回の試験では、ピーク位置の大きな変化はなく、急冷と言えども途中の相転移をスキップするような温度変化ではなかった可能性がある。ただし、徐冷によって相分離が進んだり、反応した化合物が生成した可能性がある。図 3.1.2-19 および図 3.1.2-20 に、熱力学データベースをもとに作成した CeO₂-ZrO₂-Fe 系の状態図を示す。図中青い点は酸化物リッチ試料の初期組成を、赤い点は金属リッチ試料の初期組成を示す。図 3.1.2-19 (2000 °C) では、Ce₂O₃ が生成しやすい条件であり一部酸化物から酸素が抜けやすい。より低温の状態の図 3.1.2-20 (1200 °C) では、CeO₂ の一部が Ce₆O₁₁ になるが CeO₂ とほとんど構造は変わらない。今回は、真空中での加熱であったため、より酸素が抜けやすく Ce₂O₃ が生成していると考えられる。

今後、微細な構造解析ができればより有用な情報が得られると考えられる。

④ まとめ

模擬燃料を用いて微粒子試料の生成が可能となった。金属リッチおよび酸化物リッチ試料や周りの雰囲気によって、生成する微粒子の大きさに影響があることも分かった。ただし、本手法で生成した微粒子の大きさは、環境中で見つかったウラン含有微粒子よりも大きく、生成過程が異なることが想定される。しかしながら、今後建屋内から見つかるであろう粒子状のデブリについての知見を与えるものとして有効利用できると考えられる。

参考文献

- [1] H. Ohgi, Y. Nagae and M. Kurata, Thermodynamic evaluation on Solidification path for U-ZR-FE-O corium, Proc. of the International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research, 2022:1066. DOI: 10.1299/jsmefdr.2022.0_1066

表 3.1.2-1 試料組成 (mol%)

名称	CeO ₂ (UO ₂)	Zr	SUS316L (Fe)	対応する 1F サンプル
金属リッチ	17.9	6.3	75.8	U1-No. 1
酸化物リッチ	65.3	2.9	31.9	U1-No. 2

※ () 内は実サンプルでの元素

表 3.1.2-2 試料加熱条件等

手順	条件	雰囲気
予備加熱 1	1500 °C 5分	真空中 / Ar-5 %H ₂ (約 0.1 気圧)
予備加熱 2	1800 °C 5分	
噴出	3000 °C まで 1 秒で 加熱し、4 秒保持	

表 3. 1. 2-3 試料冷却条件等

手順	条件	雰囲気
熔融	1800 °Cで2分保持後 3000 °Cで4秒保持	真空中
急冷	スイッチオフで放冷	
徐冷	2000 °Cで10分保持後 1600 °Cで10分保持 その後スイッチオフ	

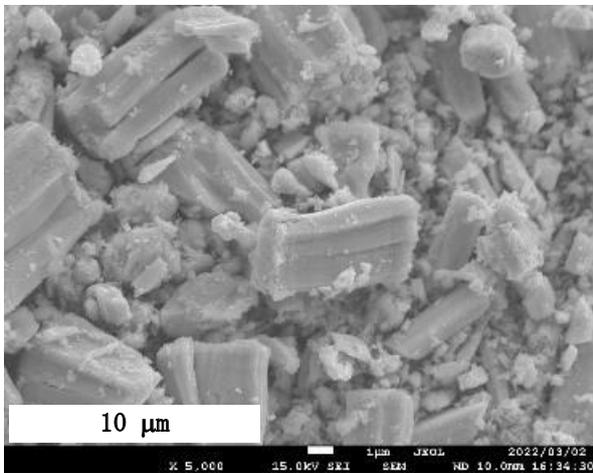


図 3. 1. 2-1 UO₂ 試料微粒子①

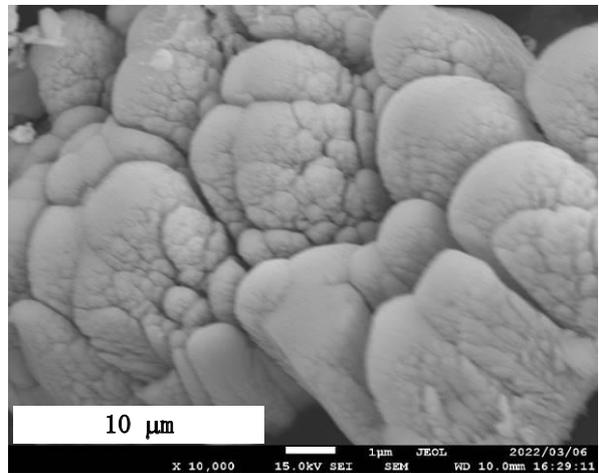


図 3. 1. 2-2 UO₂ 試料微粒子②

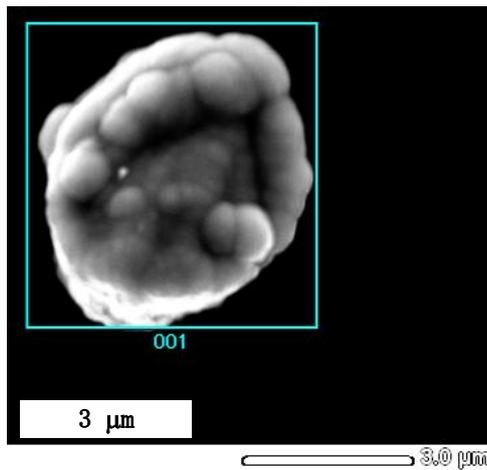


図 3. 1. 2-3 YSZ 試料微粒子①

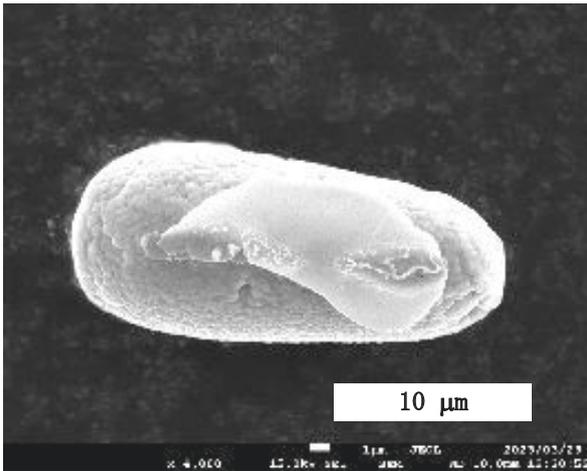


図 3. 1. 2-4 模擬デブリ試料微粒子①

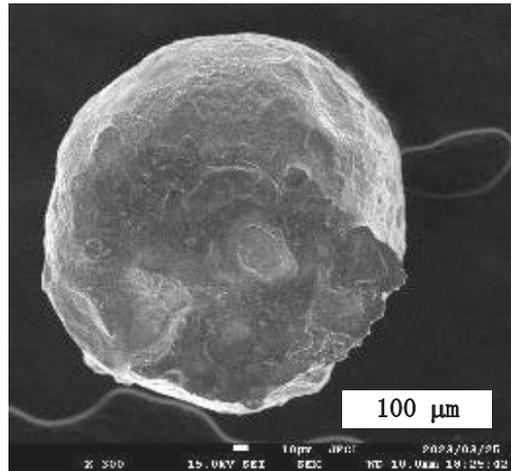


図 3. 1. 2-5 模擬デブリ試料微粒子②

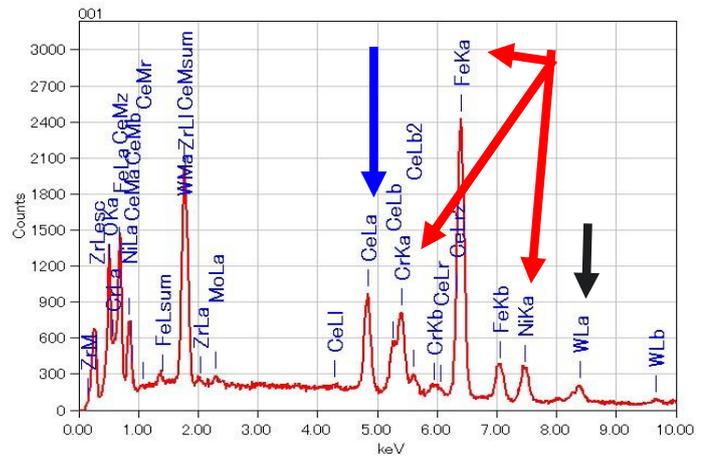
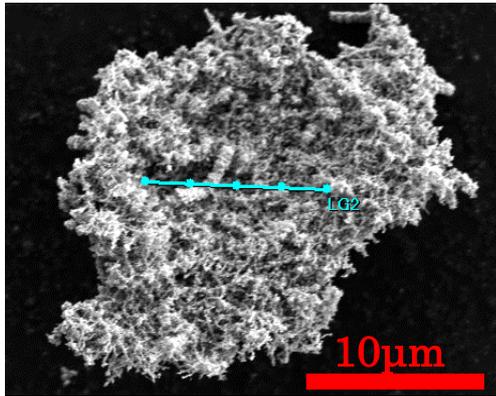


図 3. 1. 2-6 ガラス付着微粒子（金属リッチ試料・真空中）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）

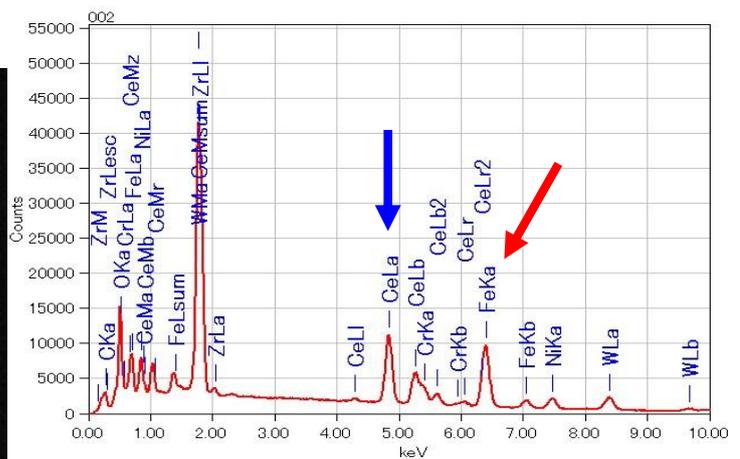
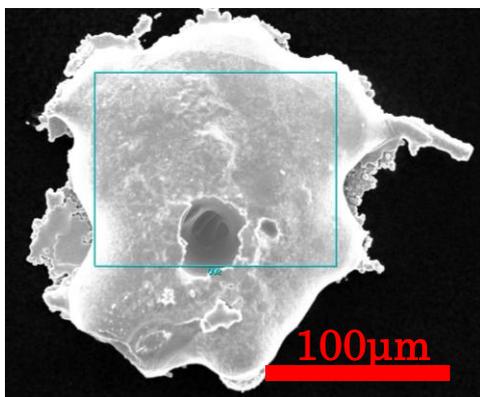


図 3. 1. 2-7 ガラス付着微粒子（酸化物リッチ試料・真空中）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）

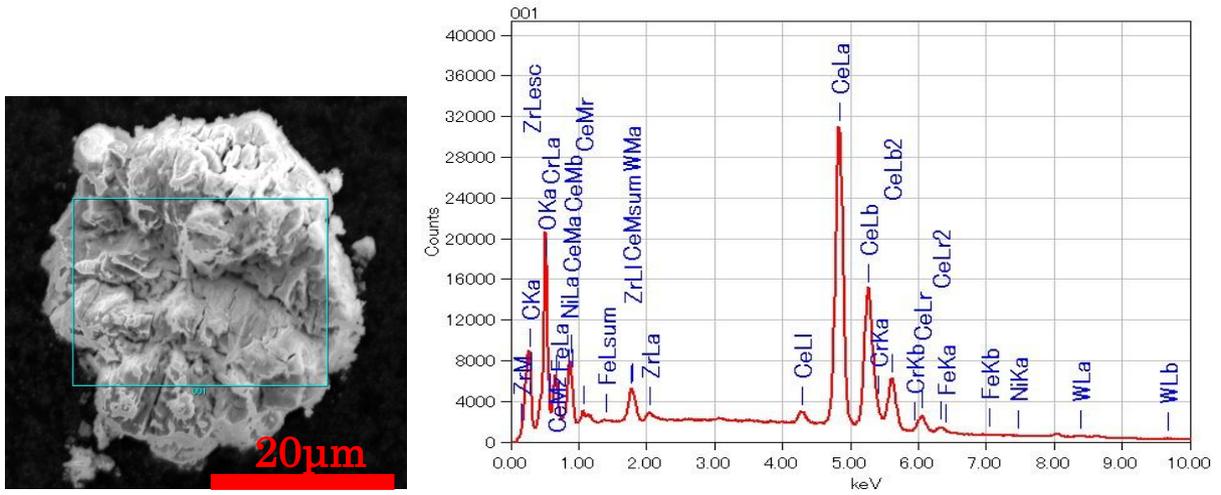


図 3. 1. 2-8 ガラス付着微粒子（酸化物リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）

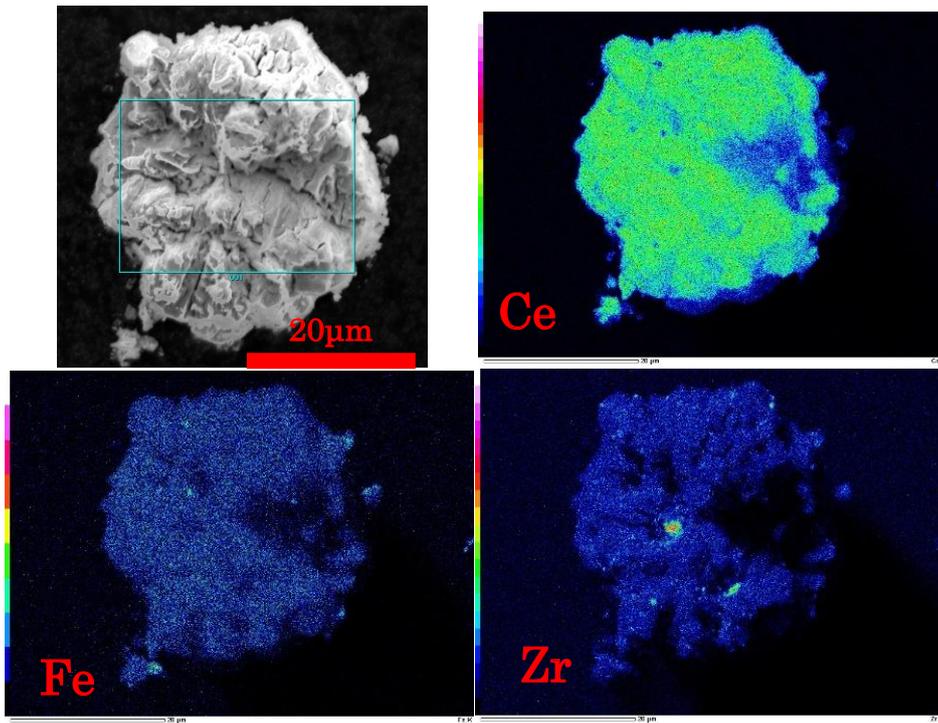


図 3. 1. 2-9 ガラス付着微粒子の元素分布像

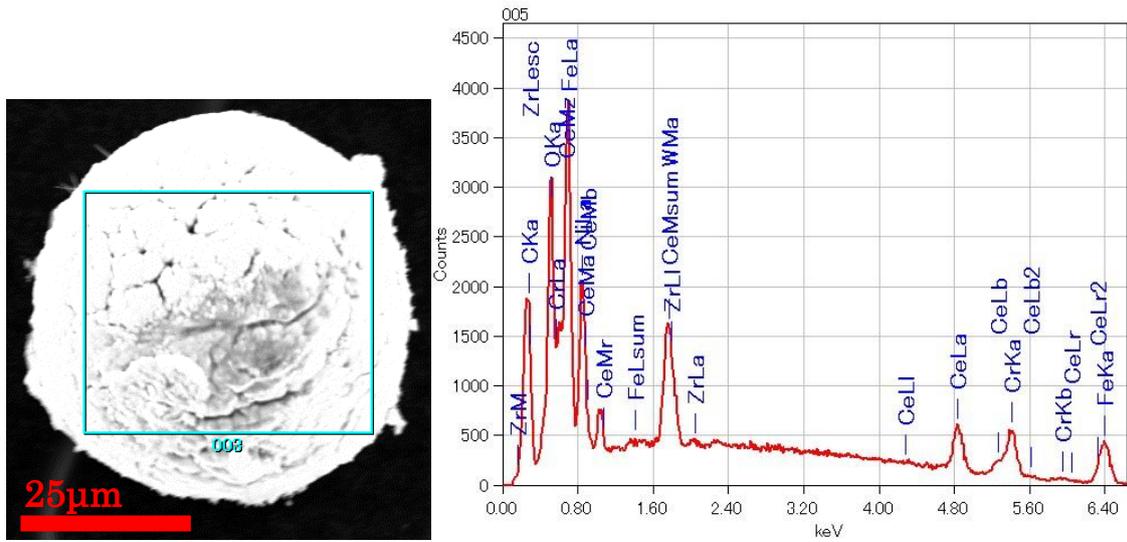


図 3.1.2-10 微粒子①（金属リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：EDS スペクトル）

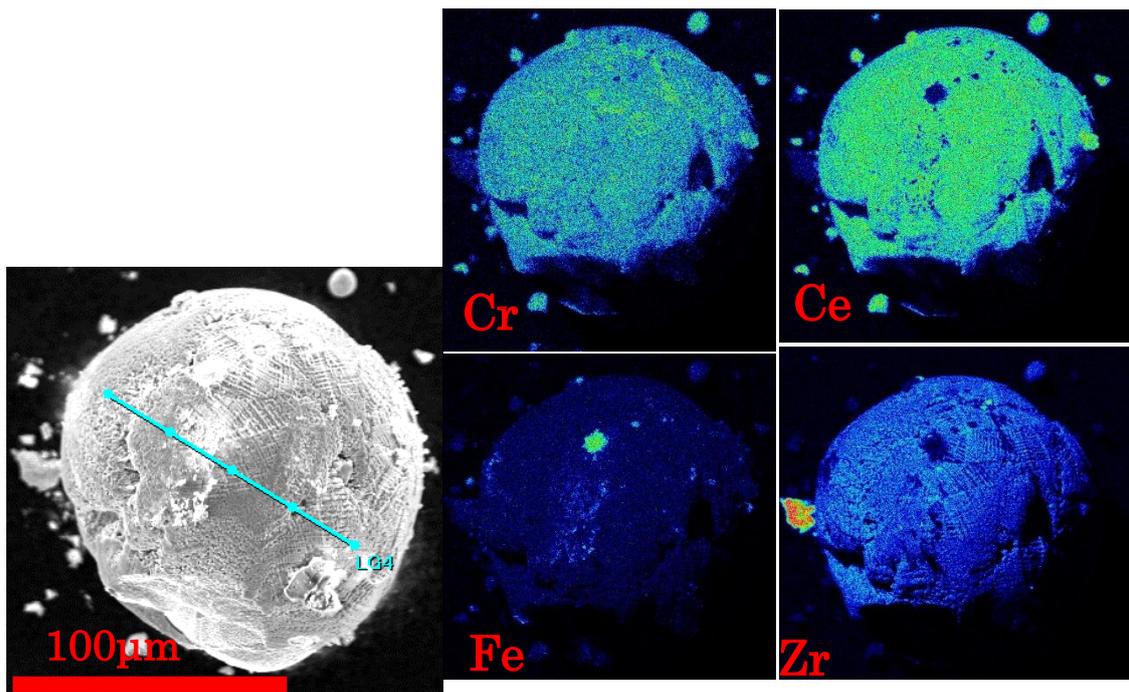


図 3.1.2-11 微粒子②（金属リッチ試料・還元雰囲気）（左：SEM 像、右：元素分布 EDS 像）

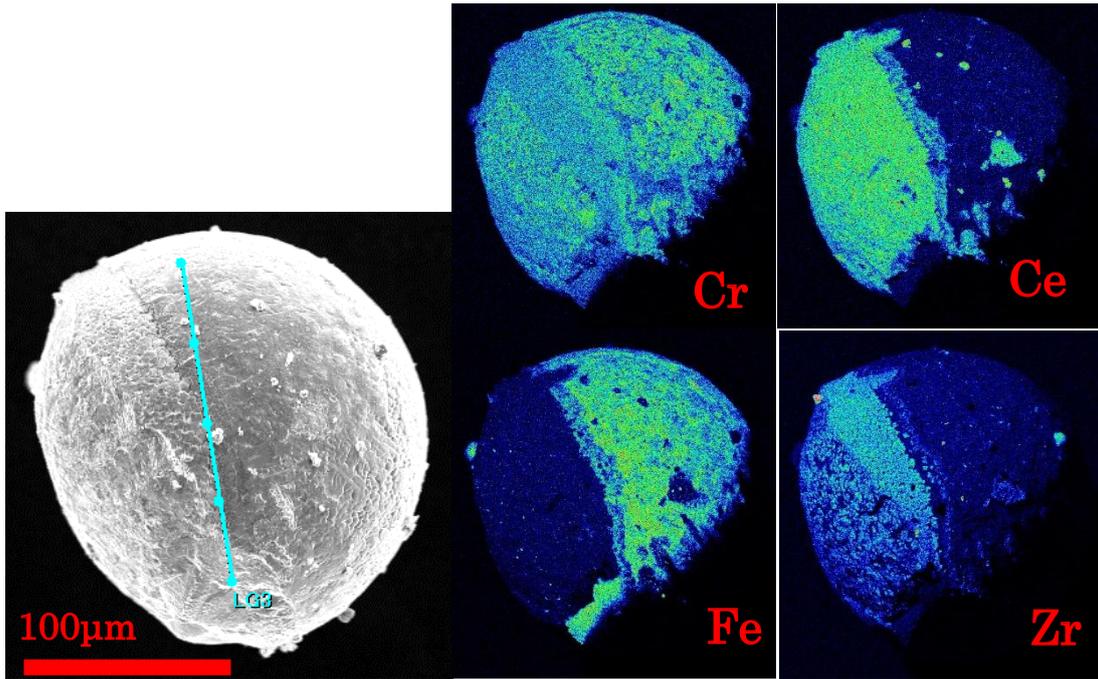


図 3.1.2-12 微粒子③ (金属リッチ試料・還元雰囲気) (左: SEM 像、右: 元素分布 EDS 像)

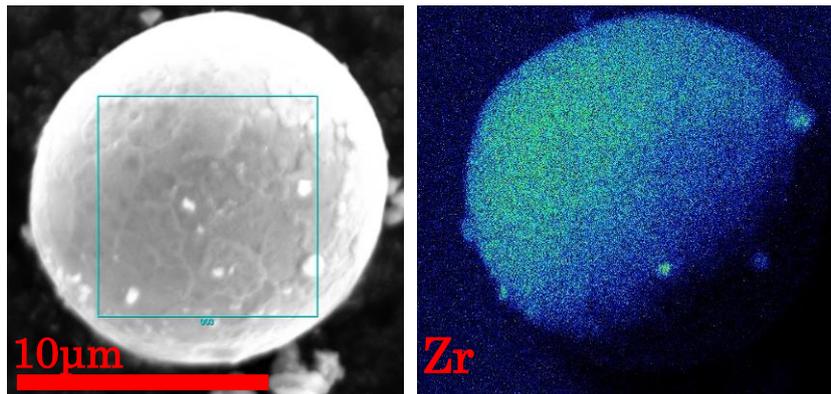


図 3.1.2-13 微粒子④ (酸化物リッチ試料、真空中) (左: SEM 像、右: Zr 分布 EDS 像)

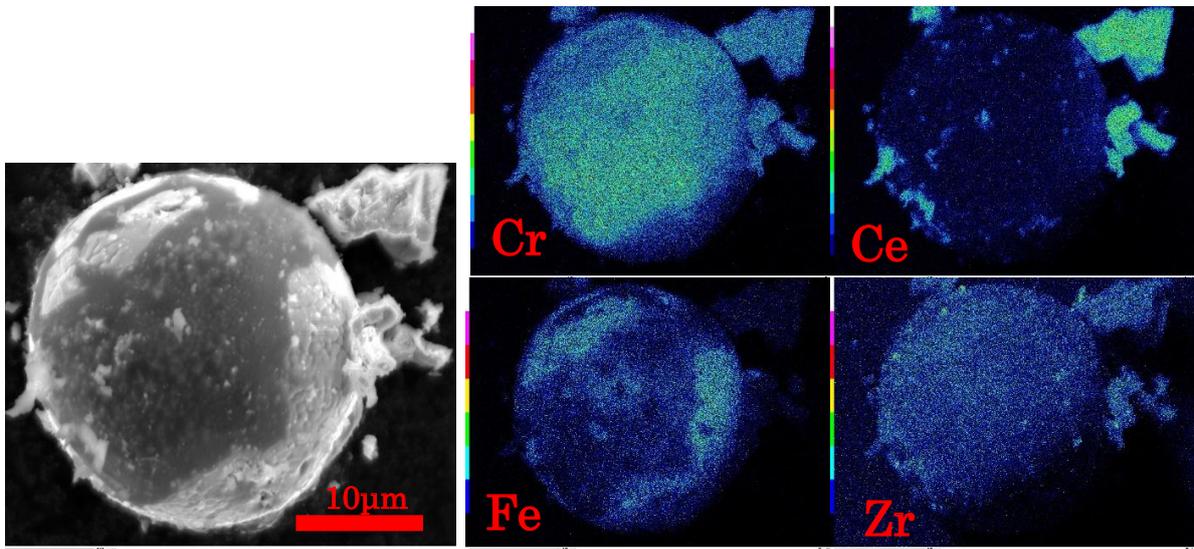


図 3.1.2-14 微粒子⑤ (酸化物リッチ試料、還元雰囲気) (左: SEM 像、右: 元素分布 EDS 像)

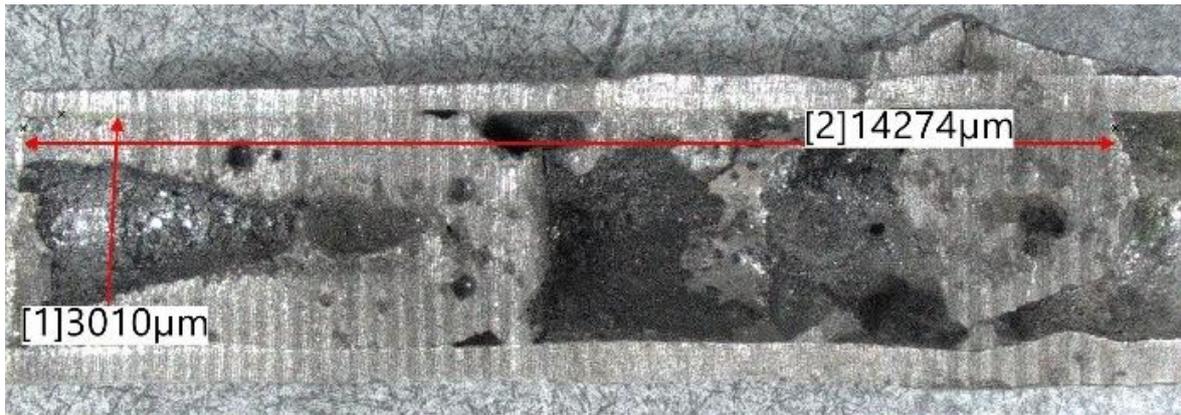


図 3. 1. 2-15 急冷試料断面の様子

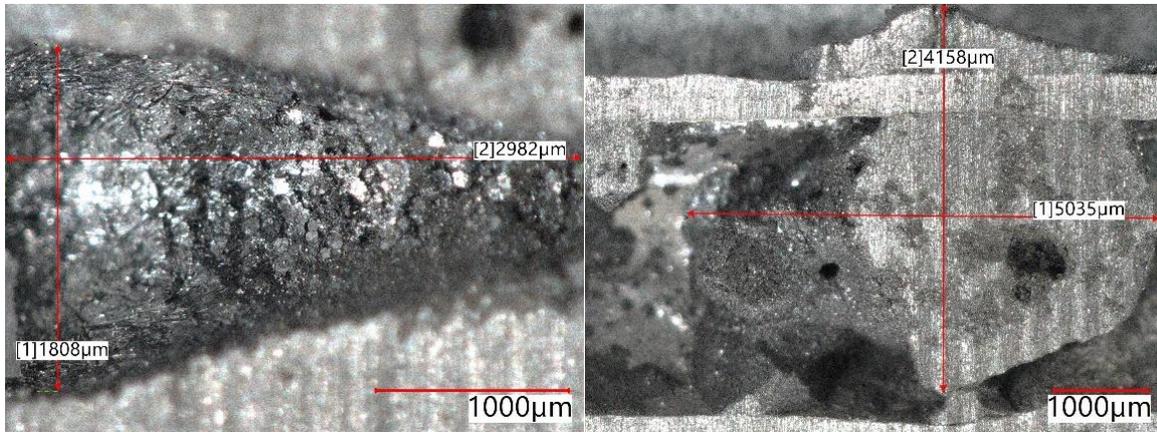


図 3. 1. 2-16 急冷試料断面拡大（左：巣の部分、右：凝固物部分）

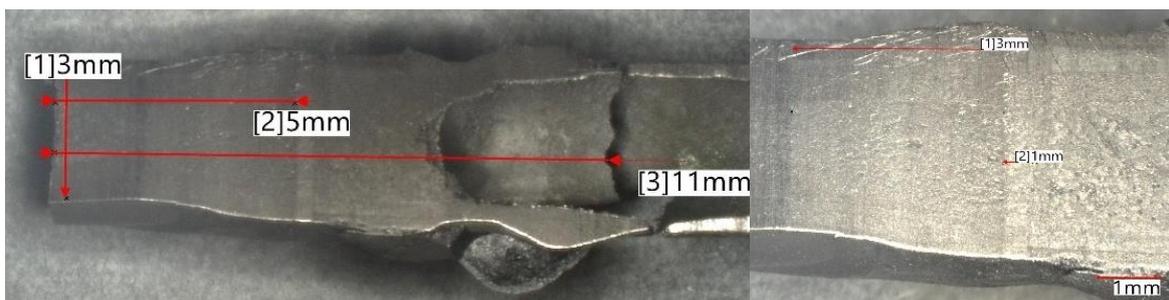


図 3. 1. 2-17 徐冷試料断面（左：凝固部分、右：拡大）

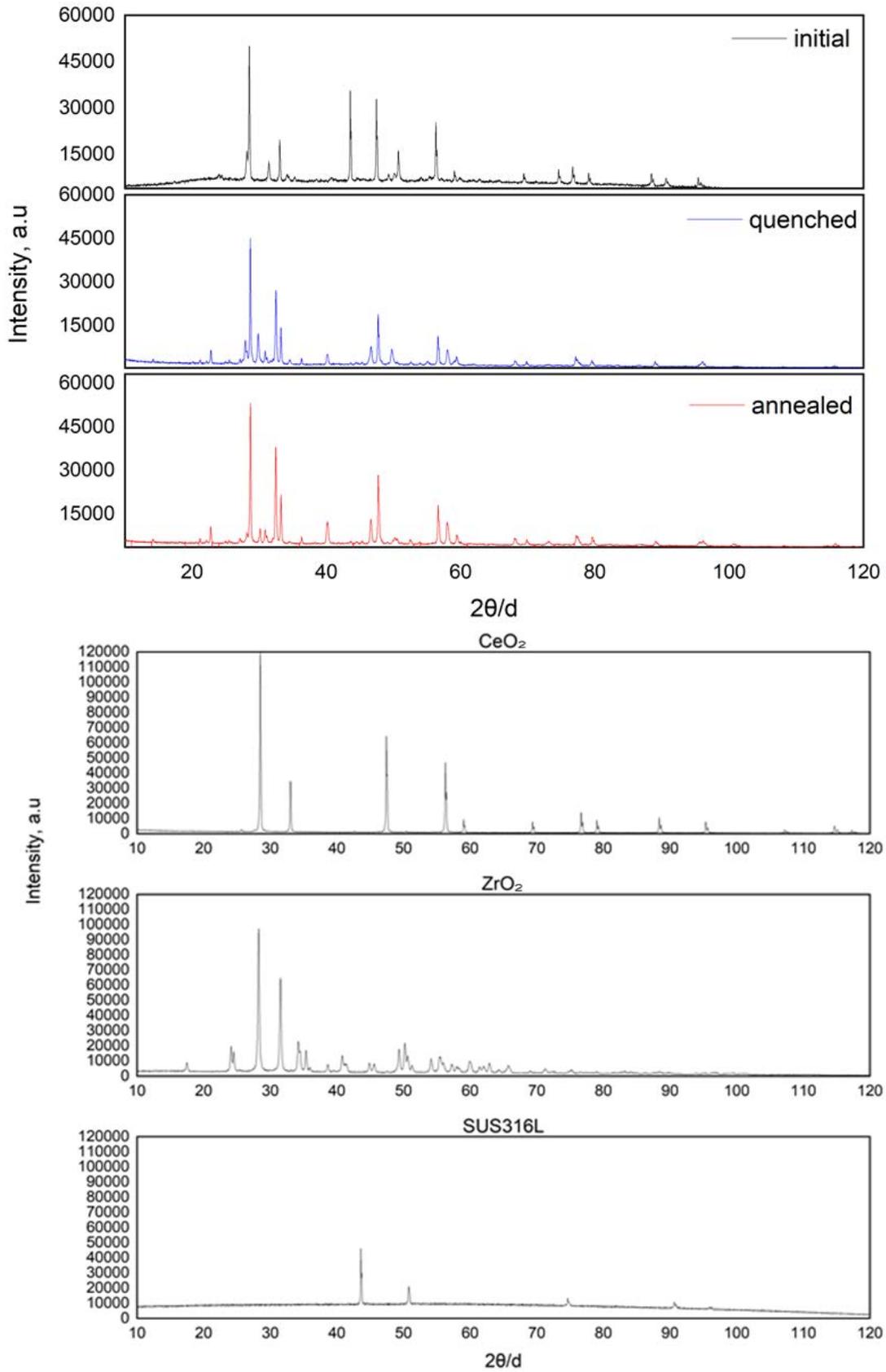


図 3.1.2-18 XRD パターン (上 3 個 : 試料、下 3 個 : 原料粉末)

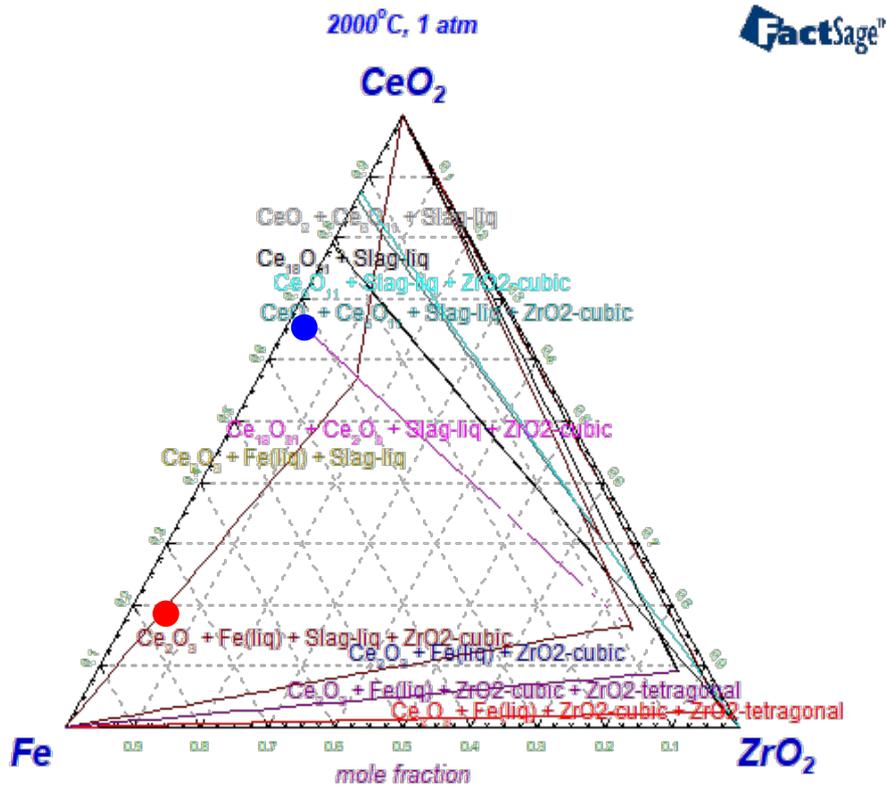


图 3.1.2-19 CeO₂-ZrO₂-Fe 系状態図 (2000 °C)

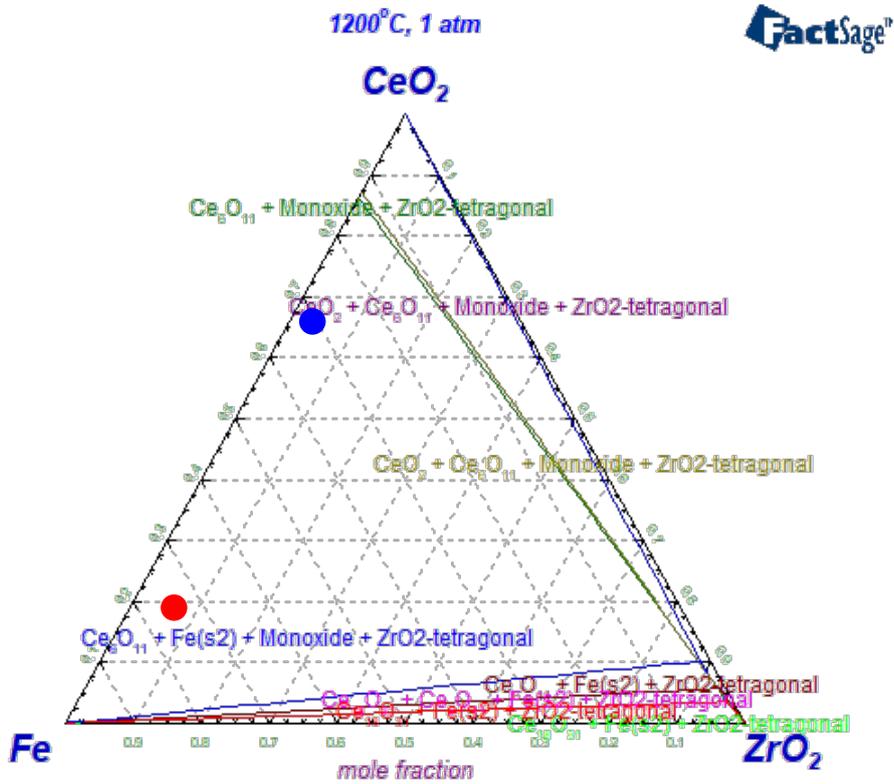


图 3.1.2-20 CeO₂-ZrO₂-Fe 系状態図 (1200 °C)

(3) 非平衡状態を模擬した反応試験 【令和3年度～5年度】

【令和4年度までの概要】

検証対象であるサンプリングデータ、U1-No. 15 について、出発原料粉末の反応試験 (PATH1 試験) を 1500 °C および 1900 °C で行った。その結果、熱力学的に予測された化合物も得られたが、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。さらに、UO₂ と Zry-2 および SUS304 の接触試験 (PATH2 試験) について、BN のるつぼを用いて行ったが、Zr と BN の反応が起こり、ZrO₂ るつぼを使う必要があることなどが分かった。

【令和5年度実施内容および成果】

令和5年度は別の検証対象を U1-No. 22 として 1900 °C での PATH 試験を行うとともに ZrO₂ るつぼを用いた PATH2 試験を行った。

① PATH1 試験

令和5年度は U1-No. 22 の試験結果を U1-No. 15 の結果と合わせて議論するため、まず U1-No. 15 試料についての令和4年度までの検証結果をまとめた。U1-No. 15 の凝固パス図における組成をもとに計算した原料粉末の重量%を表 3.1.2-4 に示す。これらの原料粉末をエタノールに浸漬しながら乳鉢中で1時間程混合した後、10 kN の一軸圧縮により直径 9 mm、高さ 1 cm 程度の円柱状にプレスした。得られたペレット状試料を BN のるつぼに入れ、不活性雰囲気 (Ar 気流中) 1500 °C で1時間および 1900 °C で15分加熱した。昇温速度は 19 °C/min としたが、降温速度は 4 °C/min の徐冷と 120 °C/min の急冷の2種類を用いた。加熱後の試料は、表面研磨の後、SEM/EDS で分析し、その後粉砕して粉末 XRD を行った。

表 3.1.2-4 U1-No. 15 の PATH1 試験 粉末ペレットの混合比

UO ₂ [wt%]	ZrO ₂ [wt%]	FeO [wt%]
54.4	24.3	21.3

1900 °C 徐冷試料表面の SEM 写真を図 3.1.2-21 に、分析結果のまとめを表 3.1.2-5 に示す。

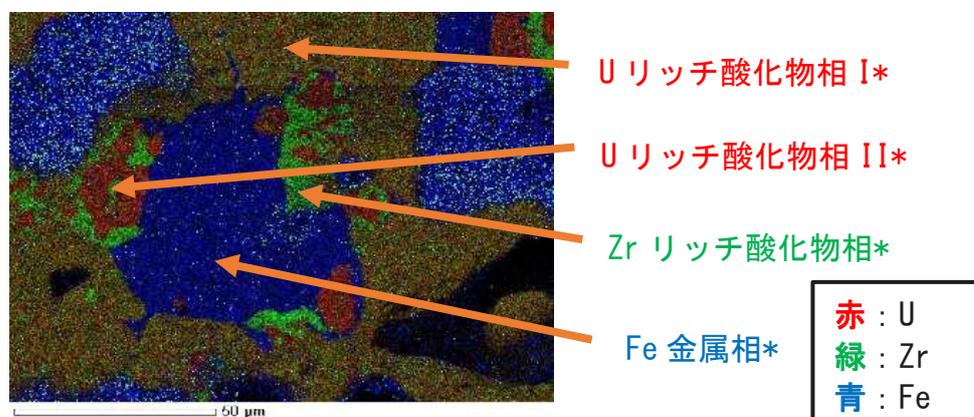


図 3.1.2-21 U1-No. 15 徐冷試料の SEM/EDS 分析

表 3. 1. 2-5 の分析結果が示すように、Zr の濃度の異なる 2 種類の U リッチな酸化物（SEM 写真上、赤で示す）と Zr がリッチな酸化物（SEM 写真上、緑で示す）および鉄（写真上、青で示す）の相が見られることが分かる。また、U リッチおよび Zr リッチな酸化物相にはわずかではあるが、鉄が固溶していることが分かる。なお、徐冷試料と急冷した試料で分析結果に大きな差は見られなかった。

表 3. 1. 2-5 U1-No. 15 徐冷試料の分析結果まとめ

	徐冷	急冷
U リッチ酸化物相 I	$(U_{0.72}Zr_{0.27}Fe_{0.01})O_{2\pm x}$	$(U_{0.72}Zr_{0.27}Fe_{0.01})O_{2\pm x}$
U リッチ酸化物相 II	$(U_{0.88}Zr_{0.10}Fe_{0.02})O_{2\pm x}$	$(U_{0.90}Zr_{0.08}Fe_{0.02})O_{2\pm x}$
Zr リッチ酸化物相	$(Zr_{0.65}U_{0.33}Fe_{0.02})O_{2\pm x}$	$(Zr_{0.63}U_{0.35}Fe_{0.02})O_{2\pm x}$
Fe 金属相	Fe	Fe

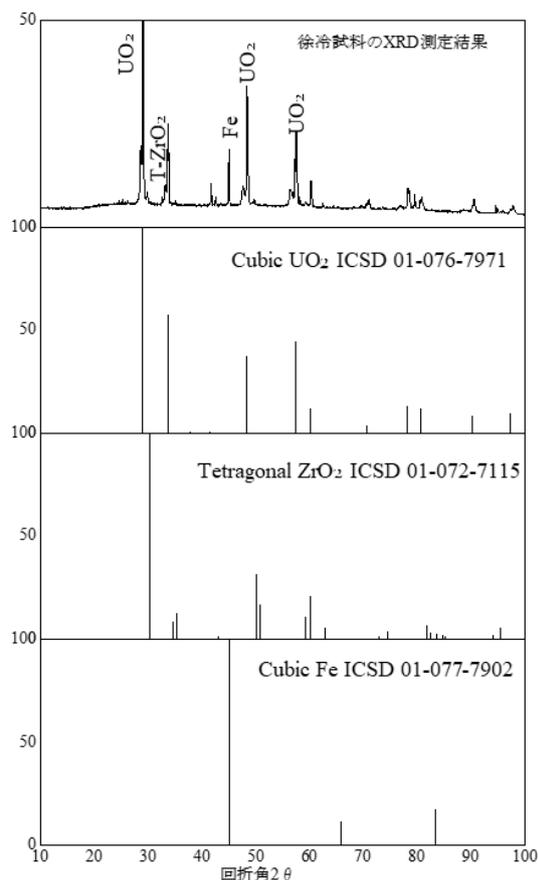


図 3. 1. 2-22 U1-No. 15 徐冷試料の XRD パターン

本研究で用いた電子線マイクロアナライザ (Electron probe micro analysis ;EPMA) の酸素濃度の分析値は精度が低いため、酸化物は次に述べる XRD 結果と合わせて二酸化物とした。

徐冷試料の XRD パターンを図 3. 1. 2-22 に示す。二段目以降の ICSD データベースから分かるように CaF₂ 型の UO₂ 相、正方晶の ZrO₂ および鉄のピークが見られ、それぞれ表 3. 1. 2-5 に示した U リッチ酸化物相 (I 、 II)、Zr 酸化物相および鉄に相当することが分かる。

この U1-No. 15 の PATH1 試験では高温での HT-fluorite 相の組成に従って出発試料を作製したが、U1-No. 15、MFO (Mole Fraction of Oxygen) =0.6 凝固パス図の高温では HT-fluorite 相が降温に伴い LT-fluorite および T-ZrO₂ に分離することが示されているので、Zr 濃度の高い U リッチ酸化物 I が HT-fluorite 相に、Zr 濃度の低い LT-fluorite 相に相当すると思われる。

このように、この PATH1 試験より、凝固パス図で示された Zr と鉄の固溶した 2 種類の UO₂ およびウランおよび鉄の固溶した ZrO₂ の存在が確認されたが、一方で鉄は fluorite 相にあまり固溶していないだけでなく、出発物質である鉄の酸化物が見つからず、鉄は金属として存在する事が分かった。

出発物質に酸化物 (FeO) として加えた鉄が還元されたことについて、本研究では装置の制約上、不活性雰囲気中で加熱したことが原因と考えられ、実際の事故上では鉄も十分酸化されると考えられる。

一方で鉄の酸化物は数百°Cで、 $\text{FeO} \rightarrow \text{Fe} + \text{Fe}_3\text{O}_4$ の不均化反応を起こすことが知られ、本研究でも不活性雰囲気下、降温途中でこの不均化反応を起こし、それによりたとえ存在していたとしても鉄酸化物の量はかなり減少していたと考えられる。

次に、令和5年度試験したU1-No. 22の出発物質の組成を表3.1.2-6に示す。

表 3.1.2-6 U1-No. 22 の出発物質の組成

UO ₂ [wt%]	ZrO ₂ [wt%]	FeO[wt%]	Fe[wt%]
74.4	17.0	6.7	1.9

U1-No. 22 試料については、酸素量の調整のため金属鉄も添加している。加熱条件等はU1-No. 15と同じである。

反応後の試料のSEM写真を図3.1.2-23に示す。

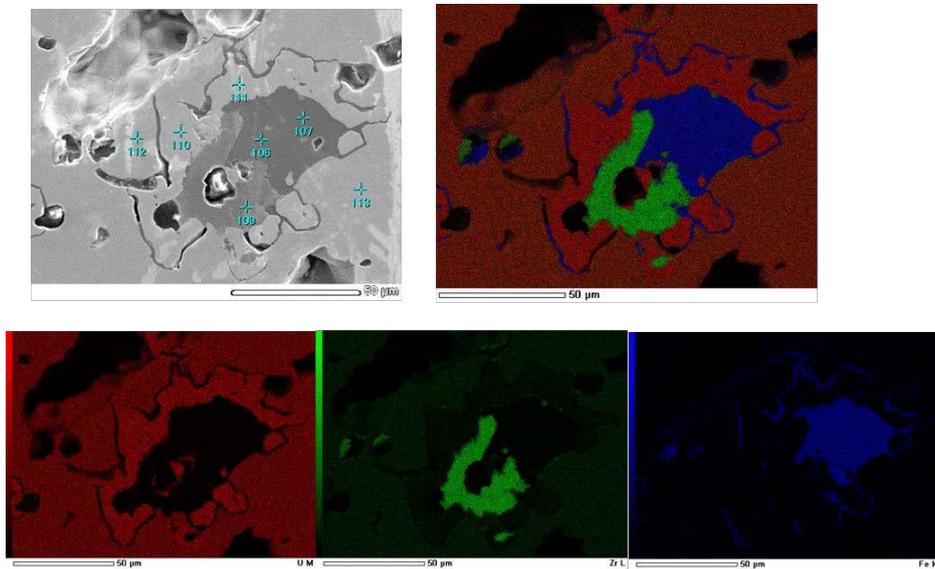


図 3.1.2-23 U1-No. 22 試料のSEM/EDS分析結果

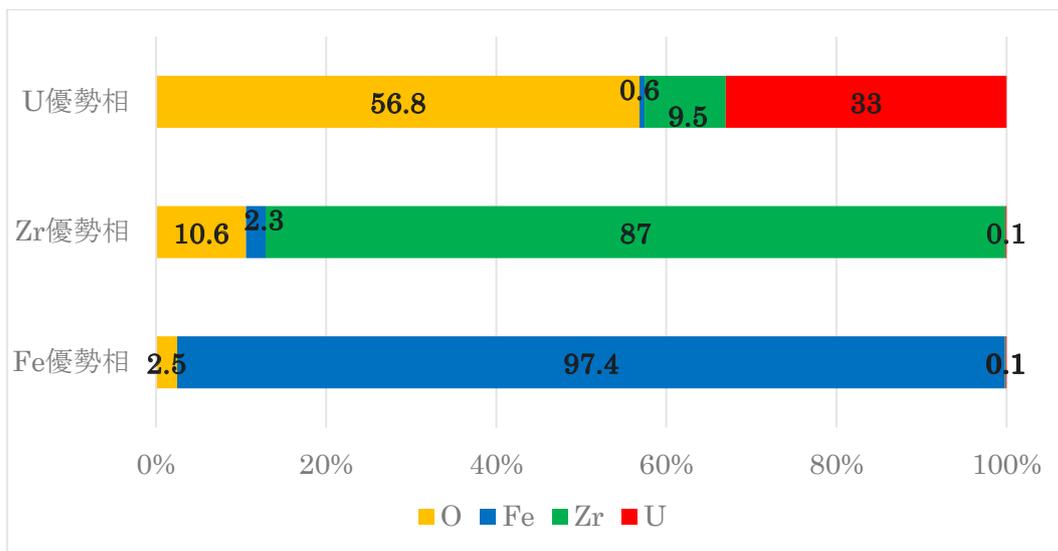


図 3.1.2-24 U1-No. 22 試料の分析結果まとめ

図 3.1.2-23 には U リッチな相 (赤)、Zr リッチな相 (緑)、Fe リッチな相が見られるが、それぞれの相の分析結果のまとめ (図 3.1.2-24) より、Zr と極少量の鉄の固溶した U 酸化物相、鉄を含む酸素の固溶した金属 Zr、わずかに酸素の固溶した鉄であることが分かる。

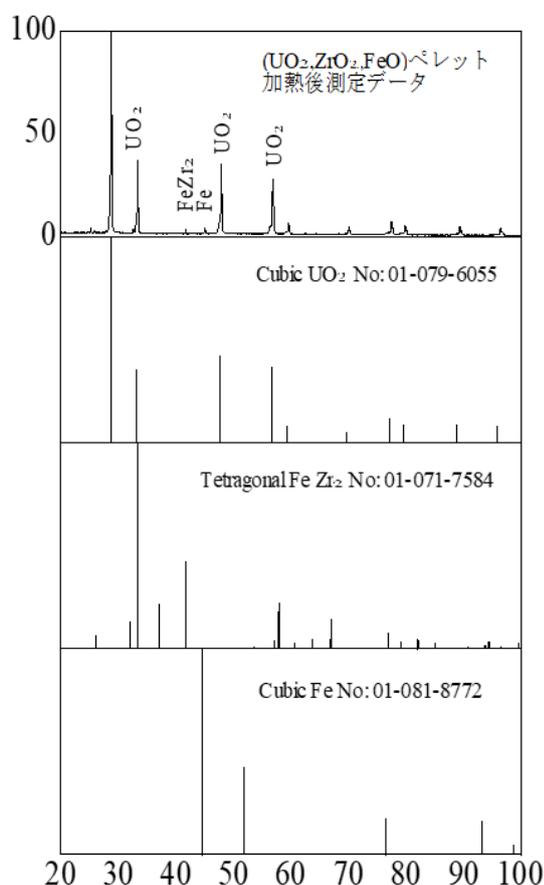


図 3.1.2-25 U1-No. 22 試料の XRD パターン

これは、図 3.1.2-25 に示す XRD 結果と一致する。図 3.1.2-25 には CaF_2 型の UO_2 、 FeZr_2 および Fe のピークが見られるが、これらはそれぞれ Zr と鉄の固溶した U 酸化物相、酸素の固溶した鉄と Zr の合金、少量の酸素が固溶した金属鉄であることが分かる。

U1-No. 22 の凝固パス図で予想されている Zr の固溶した (U, Zr, Fe) O_2 の存在が確認されたが、予想された Zr は酸化物ではなく酸素が固溶しているものの鉄との合金の形で存在していた。

U1-No. 15 試料では、Zr は酸化物として存在していたが、U1-No. 22 では金属 (FeZr_2) として存在していた。この理由については、次のようなことが考えられる。U1-No. 22 の出発物質には U1-No. 15 と異なり、 MF_0 を調整するため鉄の酸化物以外に金属鉄も添加した。この金属鉄により ZrO_2 が還元された可能性が考えられる。本研究では酸素含有量を調整するために金属鉄を添加したが、実際の 1F では鉄 (SUS) はもともと金属で存在していた。Zr も鉄も事故前は炉心では被覆管および構造材として金属状態で存在していた。したがって今後、 ZrO_2 と Fe の反応の系統的な実験により、1F からの実際の取り出しにおいて ZrO_2 と鉄が接触した部分の Fe-Zr 合金の生成具合よりある程度デブリ生成条件が推察できると思われる。

② PATH2 試験

次に PATH2 試験の結果について述べる。PATH2 試験では ZrO_2 のつばに UO_2 ペレットを入れその上に Zry-2 と SUS304 の塊状試料を置き、PATH1 試験と同じ装置を用いて不活性雰囲気下 2000 °C、15 分の加熱を 4 回繰り返した。試験後試料の写真を図 3.1.2-26 に示す。熔融したジルカロイおよびステンレス鋼が未熔融の UO_2 ペレットの周りおよび低部に回り込んでいることが分かる。また、令和 4 年度に行った 2000 °C、15 分の試験では反応層は数十 μ であったのに対し、2000 °C、1 時間の本試験では Zr および Fe は UO_2 ペレットの内部まで浸透し、 UO_2 ペレットの組織もポーラスになっていた。

この試料の酸化物と金属の界面付近 (図 3.1.2-26 (ii)) を中心に酸化物および金属相それぞれに界面から距離の異なる何点かの分析を行った。以下では、酸化物相と金属相を分けて結果を示す。

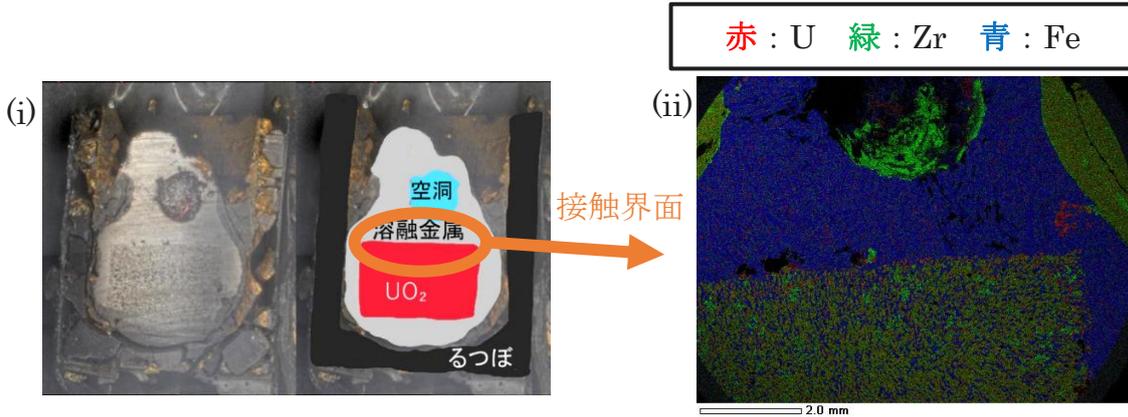


図 3.1.2-26 PATH2 試験における加熱後の試料 (i) と SEM/EDS 写真 (ii)

図 3.1.2-27 に金属部分の EDS 分析結果を示す。

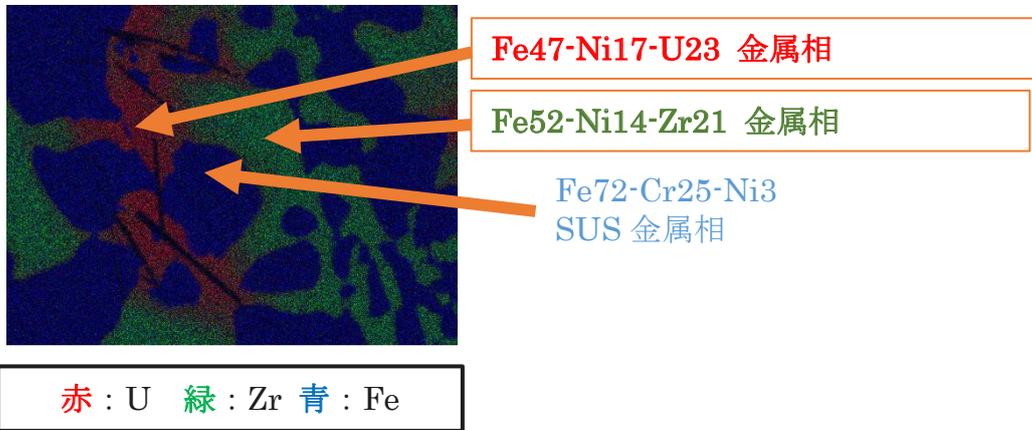


図 3.1.2-27 PATH2 試験における金属部分の分析結果

分析値は 30 点程度の分析結果の平均値であるが、SUS の部分以外にいずれも Ni も少し含む Fe と U の合金および Fe と Zr の合金が生成していることが分かる。

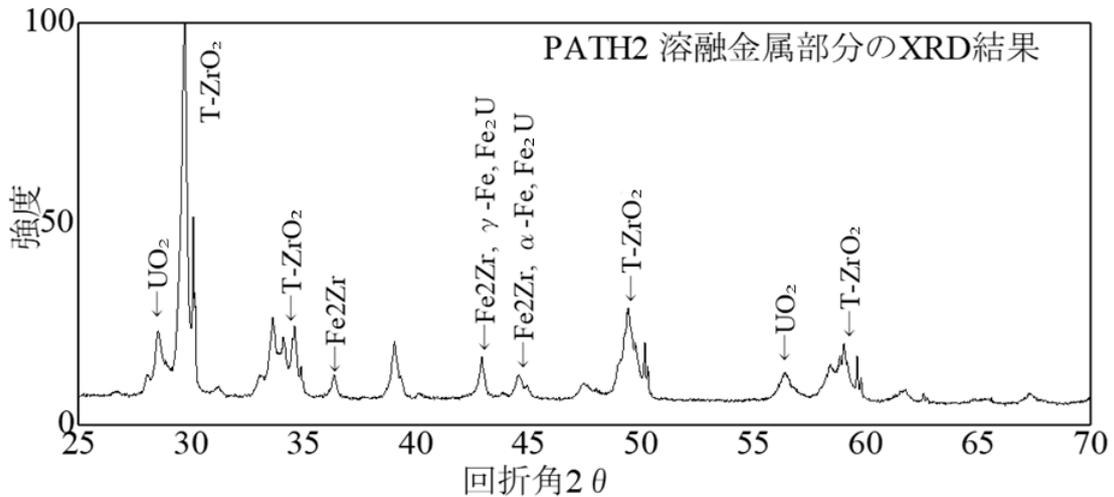


図 3.1.2-28 PATH2 試験における金属部分の XRD パターン

図 3. 1. 2-28 に XRD 結果を示す。酸化物部分と金属部分を分離する際に酸化物部分の試料の混入があったため UO_2 および ZrO_2 が見られるが、 Fe_2Zr および Fe_2U のピークが見られた。このように金属部分は Zr と Fe の合金が生成しただけでなく、 UO_2 が還元され Fe と合金を作っていることが分かる。なお、SUS の部分は出発物質と比較し、Cr の濃度が若干高くなっていた。

次に、酸化物部分の EDS 分析結果を図 3. 1. 2-29 に示す。この図は酸化物相と金属相の界面付近であるが、界面から深さ方向に位置を変えて分析した結果より分析結果の界面からの距離依存性は見られないことが分かった。いずれの地点でも U が優勢な酸化物相と Zr が優勢な酸化物相に加えて、Zr を含んだ SUS および酸素を含んだ Zr の相も見られる。また、この部分 XRD パターンを図 3. 1. 2-30 に示す。U が優勢な酸化物に相当する CaF_2 型 $(U, Zr)O_{2+x}$ および Zr が優勢な酸化物に相当する正方晶の ZrO_2 に加え α -Zr および Fe_2Zr のピークも見られる。

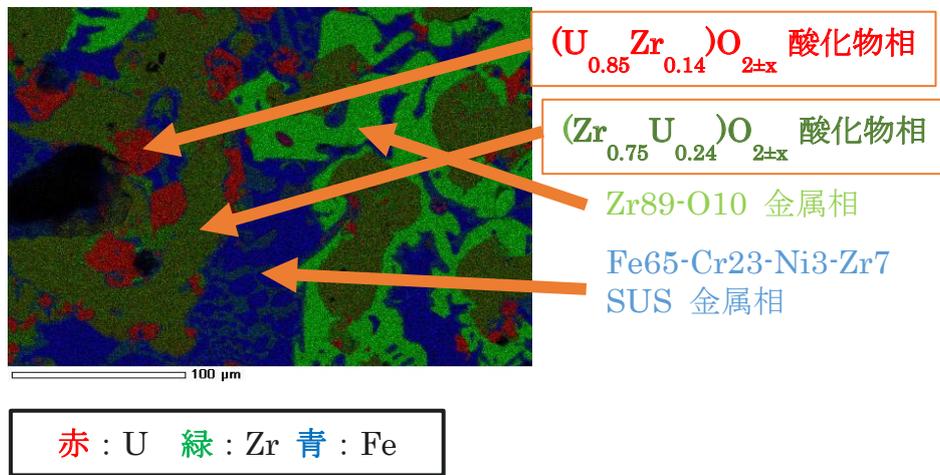


図 3. 1. 2-29 PATH2 試験における酸化物部分の分析結果

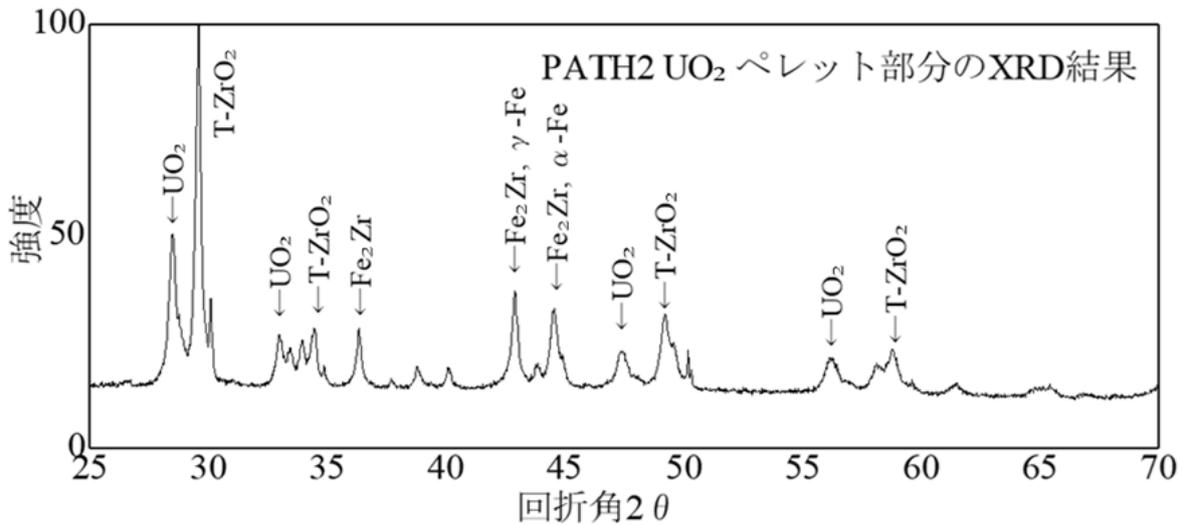


図 3. 1. 2-30 PATH2 試験の酸化物部分の XRD パターン

このように酸化物相である UO_2 ペレットには SUS および Zr 成分が中央部まで侵入し、もとのウラン酸化物に Zr が固溶しただけでなく、U が固溶した正方晶 ZrO_2 が生成していることが分かる。PATH2 の試験では酸素は UO_2 からしか供給されていないことを考慮し、U1-No. 15 試料の比較的 MF0 の小さい場合の凝固パス図をと比較すると、金属相および酸化物相で同定された化合物を考慮すると、 CaF_2 型のウラン酸化物および正方晶の ZrO_2 に加え、 Fe_2Zr 、 $\alpha-Zr(O)$ 、Fe-U 合金とほぼ全ての予測された物質が見られていることが分かる。

本研究でも実際の 1F 事故においても U の出発物質は UO_2 であり、凝固パス図からは 2500 °C 付近で UO_2 が還元されて Zr や Fe と合金を作ることが予測されている。一方、本研究ではそれより低い 2000 °C、1 時間の反応 Fe_2U の生成が確認されている。この Zr や Fe による UO_2 の還元反応およびそれに伴う金属間化合物の生成（反応自体は酸化物固溶体を生成する可能性もある）の温度、雰囲気依存性とその反応層厚さを今後系統的に調べることは、実際に取り出した燃料デブリの分析結果からデブリ生成時の条件を推定するのに極めて重要と思われる。

令和 4 年度の 2000 °C、15 分の反応ではわずかに数十 μ の反応層しか見られなかったが、令和 5 年度の 1 時間の反応では数 mm のペレット中央部まで反応が達していた。これは装置の制約上、15 分×4 回の加熱により昇降温を繰り返したため、昇温あるいは降温途中の温度勾配によりペレットにクラック等が発生し、それにより熔融した金属がより UO_2 ペレット内部に拡散しやすくなったためと考えられる。

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

(福井大学、再委託先：大阪大学)【令和3年度～令和5年度】

以上、3.1.1項および3.1.2項(2)、(3)の模擬酸化物デブリ合成試験より、燃料デブリの合成に関して下記のような知見が得られた。

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、捕集し分析する試験を実施した結果、表3.1.1-1に示した通り、2300 K程度で液相となるU-Zr-OよりもUO₂液相からの方が蒸発は顕著であり、露点-79℃のときよりも露点15℃のときの方が蒸発は顕著であった。これらの結果より、UO₂エアロゾル生成には温度と水蒸気分圧が影響しており、水蒸気分圧が高く高温であるほどUO₂の蒸発によるエアロゾル生成量が増加すると考えられる。UO₂蒸発量に対してZrやZrO₂蒸発量は少ないため、エアロゾルのZrの含有量によって蒸発凝集を経たものであるかを判断するのは妥当であると考えられる。本研究結果によると水蒸気分圧とZr含有量には相関があり、水蒸気分圧が高いほどUO₂が選択的に蒸発することが予想される。図3.1.1-9に示した通り、溶解させたUO₂から蒸発凝集により生じたエアロゾルは100 nm以下のサイズの微細な粒子であったことから、微細な粒子が見つかった際は蒸発凝集過程を経たものである可能性を検討すべきであると考えられる。エアロゾルの粒子形状やサイズと液相の温度や雰囲気にも相関があると考えられるため、これらを詳細に調べる実験を行い、知見を得ることができれば、粒子形状やサイズからエアロゾル発生時の温度や雰囲気を推定できるようになると予想される。

融体を小径の穴から噴出させることで微粒子作製を行う試験の結果、気中で固化した球形の微粒子では、金属リッチ試料の融体では微粒子が100 μm程度と大きく、酸化物リッチ試料や酸化物試料(イットリア安定化ジルコニア)数μm程度の小さな粒子が多く見られた。一方、融体がガラス壁などに付着して固化したものは球形ではなく角張ったものも多く見られた。これらの結果から数μm～100 μm程度の粒子が見つかった際には組成や凝固過程を推定することができると考えられる。今後TEMなどを用いた微細組織の結晶構造解析や偏光X線顕微鏡を用いた微細成分分布分析が活用できるようになれば、冷却速度などとの相関を探求し微粒子生成過程に関する理解が進むものと考えられる。

サンプリングデータ、U1-No. 15および22についてJAEAの作成した凝固パス図の検証を行った。出発原料粉末の反応試験(PATH1試験)では、凝固パス図から予測されるCaF₂型ウラン酸化物およびZrの酸化物などが生成したが、これら酸化物の鉄の固溶度はさほど多くはなかった。一方、凝固パス図では鉄の酸化物の生成も予測されていたが、出発物質に鉄の酸化物を用いたのにも関わらず金属鉄が生成した。これは実験の制約上、不活性雰囲気で行ったためでもあるが、鉄の酸化物は数百℃で不均化反応を起こすことにも起因している。実際に取り出した燃料デブリのUあるいはZr酸化物中の鉄の固溶度からデブリの形成温度を推定することはできそうだが、残留している鉄あるいは鉄の酸化物から形成条件を議論するのは難しそうである。また、酸素量の関係で出発物質に金属鉄を加えたU1-No. 22では一部のZrO₂が還元されてFeZr₂が生成した。実デブリ中、鉄(SUS)は事故前に金属鉄として存在しているので、これによるZrO₂の還元の度合いは、デブリ形成時の雰囲気の推定につながると考えられる。UO₂とジルカロイとステンレス鋼の接触試験では、凝固パス図の予測通り、Uの酸化物、Zrの酸化物、酸素の固溶したZr、Fe₂Zr、Fe₂Uが生成した。鉄あるいはZrによるUO₂の還元は凝固パス図上では2500℃付近で起こることが予測されているが、本研究では不活性雰囲気、2000℃でも生成したので、今後これら金属によるUO₂の還元反応の温度、雰囲気依存性を調べることは、実デブリの形成条件の推定に大変重要と思われる。

3.2 金属デブリの混合・熔融・凝固状態の評価【令和3年度～令和5年度】

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 (再委託先：東京工業大学)【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

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、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 Fe-Zr 合金を低温のステンレス鋼へ落下させる試験を実施し、反応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。

【令和5年度実施内容および成果】

(1) はじめに

令和5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（～最高温度 2100℃）で低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・金属間化合物およ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。令和3～4年度に実施した試験結果と併せてデータを整理し、項目(2)④の形成メカニズム評価の基礎データとした。平衡論と数値流体を組み合わせた解析的評価法を整備し、実験しきれない条件に対する推定を行うことを可能とした。当該事象は炉心損傷初期における鋼材金属熔融による金属系デブリ形成を想定している。Yamashita ら^[1]は平成30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压力容器(RPV)から熔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および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(平成23年3月14日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熔融反応が起きていた可能性が高い。これらの点を踏まえると、鋼材由来の金属熔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熔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。令和5年度は、特にZr濃度が低い熔融物を模擬する合金(Fe-15Zr at%)を作製し、落下先の状況としてステンレス鋼を実施した。また、実条件に近い挙動を評価するため、ステンレス鋼表面に水蒸気による酸化膜を形成させた試料を用いた追加実験を実施し、酸化膜による反応抑制効果を検証した。さらに、Fe-Zr系熱力学データベースの熱物性値を数値流体計算に簡易的に組み込んだモデルを作成し、非平衡反応による物質移動を評価した。計算結果を実験で得られた試料と比較し、簡易モデルの金属デブリ評価への適用性について検討した。

(2) Zr 低濃度融体とステンレス鋼の非平衡反応実験

① 実験方法

熔融させる Fe-Zr 合金は、Zr 濃度が 15 at%となるように電解鉄と Zr (イーメタルズ) を秤量し、アーク溶解法によりボタン状合金を 10 g 作製した。熔融落下実験に用いるために、作製した Fe-Zr 合金を 1.0 g ずつの金属片に切断した。一方、低温で反応させるステンレス鋼は SUS316 丸

棒（イーメタルズ、 $\phi 10 \times 100$ mm）を長さ 5 mm ずつに切断し、反応面を SiC 研磨紙（#400）で磨いた。

次に、Fe-Zr 合金とステンレス鋼を図 3.2.1-1 に示す反応炉に設置した。熔融させる Fe-Zr 合金は炉上部の鉄線にタンタルワイヤーで吊るし、ステンレス鋼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）した。この状態から電源を投入して炉内温度を上昇させた。炉上部の鉄線は、炉外からネオジウム磁石を用いて引き抜けるようになっており、任意のタイミングで熔融物を落下させることが可能である。また、ステンレス鋼試料台の位置を変えることによって温度を調整した。熔融させる Fe-Zr 合金の温度は、炉外上部に設置された 2 色放射温度計を用いて測定した。また、ステンレス鋼の温度は、試料台底部の R 型熱電対（Rh/Pt-13 %Rh）を用いて測定した。

放射温度計の指示値が Fe-Zr 合金の融点（1723 K）に到達したら放射温度計のスクープから合金が熔融して形状が丸くなっていることおよびステンレス鋼温度が目的温度で安定していることを確認し、炉外部から磁石で鉄線を引き抜いて合金を落下させた。熔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は上昇する。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）。炉内温度が室温程度まで低下したのを確認して、炉内圧力を大気圧に戻して試料を取り出す。

取り出した試料を切断して樹脂埋めした試料を研磨し（SiC#80→#320→ダイヤモンド 9、3 μm →シリカ 0.08 μm ）、SEM/EDS（JEOL 製 JCM7200）にて断面の金属組織を観察した（入射電圧 15 keV）。反応相組織については、装置に備え付けられている XAF 半定量法を用いた EDS 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 1 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、酸化物また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。

② 結果

表 3.2.1-1 に低 Zr 濃度熔融物とステンレス鋼の温度測定値、図 3.2.1-2 に取り出した試料の外観を示す。Fe-Zr 合金を落下させたときの放射温度計指示値は 1683~1723 K であり、1343~1573 K のステンレス鋼と接触した。低濃度 Zr 合金とステンレス鋼の接触による反応生成物は全体的に黒っぽく、粘性のやや高い様子が見られた。これは、令和 4 年度に実施した高濃度 Zr 合金による反応生成物が、金属光沢のある粘性の低い様子であったことと対照的である。いずれのケースにおいても、熔融物とステンレス鋼の接触面に反応相が形成されており、ステンレス鋼の温度が高いほど反応相が厚くなったが、形成された組織は同様であった。反応相の厚さはいずれも 200 μm 未満であり、ステンレス鋼の温度に対してあまり変化がなかった。以下に代表的な形成組織として、試料 No. 3 について詳細に述べる。

試料 No. 3 の反応界面には薄い反応相（100~200 μm ）が形成され、溶融合金の大部分はステンレス鋼の上で凝固したことが分かった。界面の反応相は EDS 点分析結果の平均値から、 $(\text{Fe}+\text{Cr}+\text{Ni})/\text{Zr}$ (at%比) が 3.5 ± 0.3 であり、 $\text{Fe}_{23}\text{Zr}_6$ ($\text{Fe}/\text{Zr} = 3.8$) であったと考えられる。高 Zr 濃度熔融物との反応で確認された $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_{23}\text{Zr}_6$ と考えられる組織は Ni 濃度が高い（10 at%以上）特徴が見られたが、低 Zr 濃度熔融物との反応相では Ni 濃度は低く、3 at% (± 1.9) 程度であった。また、試料 No. 3 の EDS 分析からは、 $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})_2\text{Zr}$ (Laves 相) や $(\text{Fe}, \text{Cr}, \text{Ni})\text{Zr}_2$ などの高 Zr 濃度熔融物との反応相に見られた金属間化合物は確認されなかった。

③ 考察

低 Zr 濃度溶融物による反応相厚さおよび令和 4 年度に実施した高 Zr 濃度溶融物による反応相厚さをステンレス鋼温度に対して評価した。低 Zr 濃度溶融物の場合は、高 Zr 濃度溶融物の場合に比べて、溶融物がステンレス鋼と反応し始める温度が高いことが分かった。これは、Fe-Zr 二元系状態図において低 Zr 濃度の領域では共晶温度が高い (1586 K) ことが原因であると考えられる。低 Zr 濃度、高 Zr 濃度のいずれにおいても、ステンレス鋼が一定温度 (～1300 K) より低い場合、極薄い反応相が界面に形成されるに留まり、ステンレス鋼の損傷は非常に限定的になることが分かった。

(3) ステンレス鋼表面酸化膜の影響評価

① 実験方法

溶融させる Fe-Zr 合金は、項目 (2) ①と同様の手順により予めアーク溶解法によって作製したものをを用いた (Fe-15Zr, Fe-87Zr at%)。一方、ステンレス鋼は予め Ar と水蒸気 (50 °C 飽和水蒸気量相当) の混合雰囲気にて 1273 K で 1、2、4 時間保持して空冷したものを作製した。それぞれの酸化膜厚さ平均値は、20、40、80 μm であった。酸化処理したステンレス鋼表面の XRD 分析結果から、酸化膜は主に FeCr_2O_4 から成っており、SEM/EDS 分析の結果からは酸化膜と Fe-Ni 金属と酸化物が入り交ざった状態であることが分かった。これは、高温酸化されたステンレス鋼に典型的に見られる反応相である。次に、Fe-Zr 合金を反応炉の上部に酸化させたステンレス鋼を下部に設置し、(1)①と同様の手順により Fe-Zr 合金溶融落下実験を行う。酸化膜が存在しない状態で顕著な反応が見られた Fe-87Zr (1450 °C) とステンレス鋼 (1100～1200 °C) の組み合わせを基準として、ステンレス鋼酸化膜の厚さおよび Fe-Zr 合金の溶融温度を変化させて酸化膜の影響を評価した。

② 結果

試験に用いたステンレス鋼の酸化膜厚さ、Fe-Zr 合金組成と溶融温度を表 3.2.1-2 に示す。また、酸化膜有試験の実験後試料の外観を図 3.2.1-3 に示す。はじめに、Fe-87Zr の融点 (1723 K) で酸化膜が侵食される厚さを知るために、酸化膜厚さの異なる落下実験を行ったところ、20 μm 試料については反応による界面の融着が見られたが (No. 2)、40、80 μm については全く反応せず合金が簡単に剥離した (No. 1)。次に、酸化膜がステンレス鋼の損傷に与える影響を評価するために、Fe-Zr 合金の溶融温度を変化させた。溶融温度が 1773 K のケースでは、溶融物がステンレス鋼全体を覆うように流れ浸食していた (No. 4)。さらに、溶融温度が高い 1873 K のケースでは、ステンレス鋼の内部が大きくえぐれて空洞となっており、反応生成物がステンレス鋼の上にかぶさるような形状となっていた (No. 5)。これらはステンレス鋼温度を一定にして溶融合金温度を変化させたが、比較のためにステンレス鋼温度を高くしたケース (1625 K) を実施したところ、合金温度を高くした場合の方がより侵食されることが分かった (No. 3)。また、低 Zr 濃度合金 (Fe-15Zr) の場合は、ステンレス鋼表面の酸化膜との濡れ性が悪く全く反応せずに溶融物が滑ってほとんど外側に流れてしまった (No. 6)。

③ 考察

ステンレス鋼の酸化膜が侵食された領域 (表 3.2.1-2 試料 No. 5) について、SEM/EDS 分析を行った結果、もともとステンレス鋼表面にあった FeCr_2O_4 領域には、Zr が濃化していることが分かった。Zr が濃化している領域を分析した結果から、当該領域は ZrO_2 であり、隣接して $(\text{Fe, Cr, Ni})_{23}\text{Zr}_6$ または $(\text{Fe, Cr, Ni})_2\text{Zr}$ が形成され、それらの金属間化合物とは Fe-Cr-Ni 固溶体が共存していた。着目すべきは、 $(\text{Fe, Cr, Ni})_{23}\text{Zr}_6$ における Ni 濃度が 15.5 at% と高いことである。

また、当該領域のステンレス鋼側にさらに Zr 濃度の高い (Fe, Cr, Ni)Zr₂ や α-Zr(0) が確認された。これらのことから、もとのステンレス鋼酸化物が Ni 濃化した Fe-Ni 金属領域との混合相であったため、Fe-Zr 融体中の Zr が FeCr₂O₄ を酸化し、さらに余った Zr が Fe-Ni 合金相と共晶溶解を起こして Ni が濃化した合金液相が形成し、酸化膜内側のステンレス鋼を大きく浸食したと考えられる。ステンレス鋼の浸食深さ（平均値）を断面 BSE 像から求めて、合金溶解温度に対してどのように変化するかを評価した。その結果、一旦酸化膜が侵食される状況に至ると合金溶解温度に比例して浸食深さが大きくなることが分かった。このことから、界面物質移動よりも溶解合金とステンレス鋼の温度差に起因する熱流束が侵食の主要な原因であったと考えられる。

また、No.6 試験結果から、低 Zr 濃度溶解合金は Fe-Cr 酸化物との濡れ性が悪いために反応性が非常に低いことが分かった。このことは、実機において低 Zr 合金がステンレス鋼と接触しても表面に酸化膜があれば反応せずに固化してしまい、ステンレス鋼と金属デブリが分離した状態で事故進展後期に移行する可能性が高いことを示唆している。

(4) 熱力学データベースと物質移動の簡易連生モデルによる評価

① モデル式

これまでの実験結果から、Fe-Zr 合金とステンレス鋼の非等温接触反応は界面における共晶溶解、Fe-Zr 溶解合金からステンレス鋼への Zr 拡散およびステンレス鋼から Fe-Zr 溶解合金への Fe 拡散によって説明できることが分かった。Zr および Fe の拡散によって形成される金属間化合物の共存状態は、Fe-Zr 二元系状態図に沿っている。これらのことから、本研究で観察された非等温反応は Fe-Zr 二元系の物質および熱の移動方程式によって記述可能であることが推察される。一般に伝熱・物質移動に熱力学エネルギーの保存式を連成させるには、フェーズフィールド法を用いるのが厳密な解析方法であるが、解析領域やタイムステップを細かく設定する必要があり計算コストが高い。シビアアクシデント解析のようなプラントスケールの材料反応における傾向を議論するには、ミリメートルスケールで計算可能な手法が重要である。そこで、本研究では伝熱・物質移動解析に熱力学データベースから計算した熱物性関数を組み込んで実験条件を解析し、得られた試料状態と比較することによって簡易モデルの適用性を検討した。

伝熱による温度変化は、相転移を考慮した比熱（“みかけの比熱”）を用いた熱伝導方程式を解くことによって得られる。“みかけの比熱”は、相転移がある幅をもった温度域で起こると仮定し、エンタルピーの温度微分を求めた際に潜熱からの寄与項として与えられる。いま物質が相 1 と相 2 の混合物質として定義すると、密度とエンタルピーは次の式で与えられる。

$$\begin{aligned} \rho &= \theta_1 \rho_1 + \theta_2 \rho_2 \\ H &= \frac{1}{\rho} (\theta_1 \rho_1 H_1 + \theta_2 \rho_2 H_2) \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 θ_i は相 i の体積割合、 ρ_i および H_i は相 i の密度とエンタルピーである。比熱の定義から次のように求められる。

$$\begin{aligned} C_p &= \frac{\partial H}{\partial T} \\ &= \frac{1}{\rho} (\theta_1 \rho_1 C_{p,1} + \theta_2 \rho_2 C_{p,2}) + (H_2 - H_1) \frac{d\alpha}{dT} \\ \therefore \alpha &= \frac{1}{2} \frac{\theta_2 \rho_2 - \theta_1 \rho_1}{\theta_1 \rho_1 + \theta_2 \rho_2} \end{aligned} \quad (2)$$

したがって、“みかけの比熱”は、各相の平均比熱 $C_p^* = \frac{1}{\rho} (\theta_1 \rho_1 C_{p,1} + \theta_2 \rho_2 C_{p,2})$ に潜熱項 $C_L(T) = (H_2 - H_1) \frac{d\alpha}{dT}$ を加算して得られる。相 1 から相 2 へ相転移する際の両相の体積割合は理想的には温

度に関するヘビサイド関数で表されることから、その温度に関する微分は相転移温度にピークをもつ

Dirac のデルタ関数と定義することができる。したがって、熱・物質移動の結果、組成と温度が定まれば“みかけの比熱”の潜熱項は、次の式で求められる。

$$C_L(T, x) = L(x) \times \delta(T - 0.5 \times (T_S(x) + T_L(x))) \quad (3)$$

ここで、 $L(x)$ は組成 x における潜熱、 $T_S(x)$ および $T_L(x)$ は組成 x における凝固温度 (solidus) と融点 (liquidus) である。これらの値を予め熱力学データベースを用いて組成の関数として準備し、熱伝導方程式の物性パラメータとして組み込む。

一方、化学種輸送方程式では、固液混合状態における拡散係数を固相率の関数として与える。拡散係数は粘度の逆数に比例する (Einstein 式) ことを利用し、固相率 ϕ である固液混合流体の液相粘度に対する比率 (比粘度) は、次式の Thomas^[3]によるモデルを用いる。

$$\frac{\nu}{\nu_L} = 1 + 2.5\phi + 10.05\phi^2 + 0.00273 \exp(16.6\phi) \quad (4)$$

したがって、固液混合物の拡散係数は次式で与えられる。

$$D = D_L \times \frac{\nu_L}{\nu} \quad (5)$$

なお、固相率は次の式によって与えられる。

$$\phi = \begin{cases} 0 & T < T_S \\ \frac{T - T_S}{T_L - T_S} & T_S < T < T_L \\ 1 & T > T_L \end{cases} \quad (6)$$

解析は一次元で、化学種輸送 (拡散方程式) と熱伝導方程式に式 2~6 を組み込んで、COMSOL6.1 ソフトウェア^[4]を用いた。計算領域は、合金を 2 mm、ステンレス鋼を 5 mm とし、初期条件として溶融合金温度とステンレス鋼温度をそれぞれの領域に設定した。また、境界条件として溶融合金の端点はステンレス鋼温度への輻射冷却、ステンレス鋼端点は断熱とした。溶融落下による接触を時間ゼロとして物質拡散と温度を計算した。実験では、非等温接触後にステンレス鋼底部の熱電対指示値は 10 秒以内に一定値に到達していることから、解析時間を 10 秒 (タイムステップ 0.01 秒) とした。また、表 3.2.1-3 に解析ケースを示す。解析に用いた解析値 (熱伝導率、比熱、密度、拡散係数) は参考文献^{[5][6][7][8]}から、潜熱および融点・凝固温度の組成依存性は熱力学データベース TAF-ID^[9]の値を用いた。

② 計算結果

Fe-Zr 合金とステンレス鋼の界面位置における温度の時間変化から、高 Zr 濃度合金 (ZRH-1~4) と低 Zr 濃度合金 (ZRL-1~4) はいずれも融点 (1723 K) で落下させており、ステンレス鋼温度を変化させているが、界面温度の到達値は低 Zr 濃度合金の方が高いことが分かった。これは、ステンレス鋼の比熱が大きいことと、高 Zr 濃度合金は共晶温度が低いいため液相が形成されやすく熱伝導率が小さくなることが影響している。

Fe および Zr モル比率の計算結果から、高 Zr 濃度のケースでは、Fe-Zr 合金側への拡散フロント移動距離は 358 μm であり、ステンレス鋼側への拡散フロント距離は 69 μm であった。両距離を合算することにより、この場合の反応相厚さを 428 μm と算出した。同様に、低 Zr 濃度のケースにおける Fe-Zr 合金側反応相、ステンレス鋼側反応相、反応相厚さ合計は 165 μm 、69 μm 、235 μm であった。このようにして、全ての実験パラメータについて同様の計算を行い、反応相厚さを求めて実験試料の断面反射電子像から求めた反応相厚さ (またはステンレス鋼浸食深さ) と比較し、界面温度に対して評価した。

③ 考察

Fe-Zr 溶融合金の融点でステンレス鋼に接触させたケース (ZRH-1~4、ZRL-1~4) については、計算結果と実験結果は概ねあっている。ただし、ZRH-1 は反応相厚さが 10 μm 程度と極めて薄く、共晶反応が起こる下限温度に近かったことが考えられる。計算では界面温度が共晶温度より高ければ液体金属の拡散係数で反応が進行するモデルとなっているが、実際には反応が起こる下限温度での拡散は想定よりも遅かったことが分かる。また、ZRL-4 については、計算結果は実験で得られた反応相厚さよりも大きい値であった。やはり界面温度における拡散を過大評価したことによるが、低 Zr 濃度では試料の様子から粘性がやや高い様子が見られており、そのため高 Zr 濃度よりも拡散が遅いことが影響している可能性がある。また、計算結果が再現できなかったケースとして、酸化膜有のステンレス鋼を大きく浸食した ZRH-OX-3、4 である。これは、溶融合金がステンレス鋼の FeCr_2O_4 膜を酸化して侵食する際に、Ni 濃化した金属領域を巻き込んで Zr-Ni 共晶溶解を主とする液相化が起こることに起因すると考えられる。Zr-Ni 系は Fe-Zr 系よりも反応が起こりやすく液相化しやすい。合金液相がステンレス鋼と接触すると液相へのステンレス鋼成分の溶解反応が起こり、その際の反応熱はステンレス鋼の潜熱と合金液相の混合エンタルピーのバランスによって決定される。すなわち、合金系の混合エンタルピーが負に大きいほど発熱量が高くなる。例えば、1873 K の場合では、Fe-Zr 二元系は共晶温度以上の液相領域において混合による発熱量が 10 kJ/mol 程度であるが、Ni-Zr 二元系の場合は混合による発熱量が 110~160 kJ/mol となる (TAF-ID データベースによる熱力学計算)。また、Fe-Zr 二元系に Ni を 5 at% 添加した場合は、発熱量が 120 kJ/mol 程度まで増加する。混合による発熱量 (混合エンタルピーにマイナス 1 をかけた数値) の組成依存性を図 3.2.1-4 に示す。このことから分かるように、Ni 濃化領域を巻き込んだ溶融反応においては、Fe-Zr 二元系で想定した解析モデルよりも多くの発熱を伴い液相化がいつそう促進され、それによる流動が無視できなかったからであると考えられる。ZRH-OX-4 の試料断面でステンレス鋼が大きくえぐられていることから理解できる。

これまでの実験結果と計算結果を整理すると、ステンレス鋼と Fe-Zr 合金溶融物が接触反応した場合に流動が起きない範囲内では、本研究で提案した簡易的なモデルが機能することが分かった。今後、Zr-Ni 系反応が関与した場合の熱的な作用を考慮し、流動を解けるように数値解析手法を改善することによって、より広い条件における解析が可能となることが分かった。

(5) まとめ

令和 5 年度は、低濃度ジルコニウム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、試料の金属組織を観察し、反応生成物の材料学的性質を評価した。令和 4 年度までに実施した試験結果と併せてデータを整理し、低 Zr 濃度溶融物は高 Zr 濃度溶融物に比べてステンレス鋼に対する濡れ性が悪く、反応下限温度は 100 K ほど高いことや反応相厚さはやや小さく、ステンレス鋼の損傷は限定的になることが分かった。さらに、ステンレス鋼表面に酸化膜が存在する場合、一定程度の保護性はあるが、高 Zr 濃度溶融物の場合は Zr の高い還元性によって酸化膜が侵食されることが分かった。一旦酸化膜が侵食されると、Ni-Zr 反応によってステンレス鋼が大きく損傷することも分かった。また、熱・物質移動の数値流体解析に平衡論から得られる熱力学物性を簡易的に組み込む解析方法を提案し、これまでに得られた実験結果をシミュレーションしたところ、酸化膜が侵食されない範囲において計算結果は実験結果をよく再現することができた。

表 3.2.1-1 Fe-15Zr/SS 実験結果一覧

No.	合金組成	合金温度 (K)	SS 温度 (K)
1	Fe-15Zr	1723	1343
2	Fe-15Zr	1683	1433
3	Fe-15Zr	1683	1443
4	Fe-15Zr	1723	1573

表 3.2.1-2 酸化膜有試験の試料および実験結果一覧

No.	合金組成	SS 酸化膜厚さ (μm)	合金温度 (K)	SS 温度 (K)
1	Fe-87Zr	40	1713	1439
2	Fe-87Zr	20	1710	1452
3	Fe-87Zr	20	1750	1625
4	Fe-87Zr	20	1773	1453
5	Fe-87Zr	20	1873	1453
6	Fe-15Zr	20	1773	1431

表 3.2.1-3 解析ケース

Case Name	合金組成	合金温度 (K)	SS 温度 (K)	対応する試験
ZRH-1	Fe-87Zr	1723	1173	
ZRH-2	Fe-87Zr	1723	1273	高 Zr 濃度溶融合金 (1723 K)
ZRH-3	Fe-87Zr	1723	1373	酸化膜無ステンレス鋼
ZRH-4	Fe-87Zr	1723	1493	
ZRL-1	Fe-15Zr	1723	1493	
ZRL-2	Fe-15Zr	1723	1343	低 Zr 濃度溶融合金 (1723 K)
ZRL-3	Fe-15Zr	1723	1443	酸化膜無ステンレス鋼
ZRL-4	Fe-15Zr	1723	1573	
ZRH-OX-1	Fe-87Zr	1723	1453	
ZRH-OX-2	Fe-87Zr	1750	1625	高 Zr 濃度溶融合金 酸化膜有ステンレス鋼
ZRH-OX-3	Fe-87Zr	1773	1453	(1453 K)
ZRH-OX-4	Fe-87Zr	1873	1453	

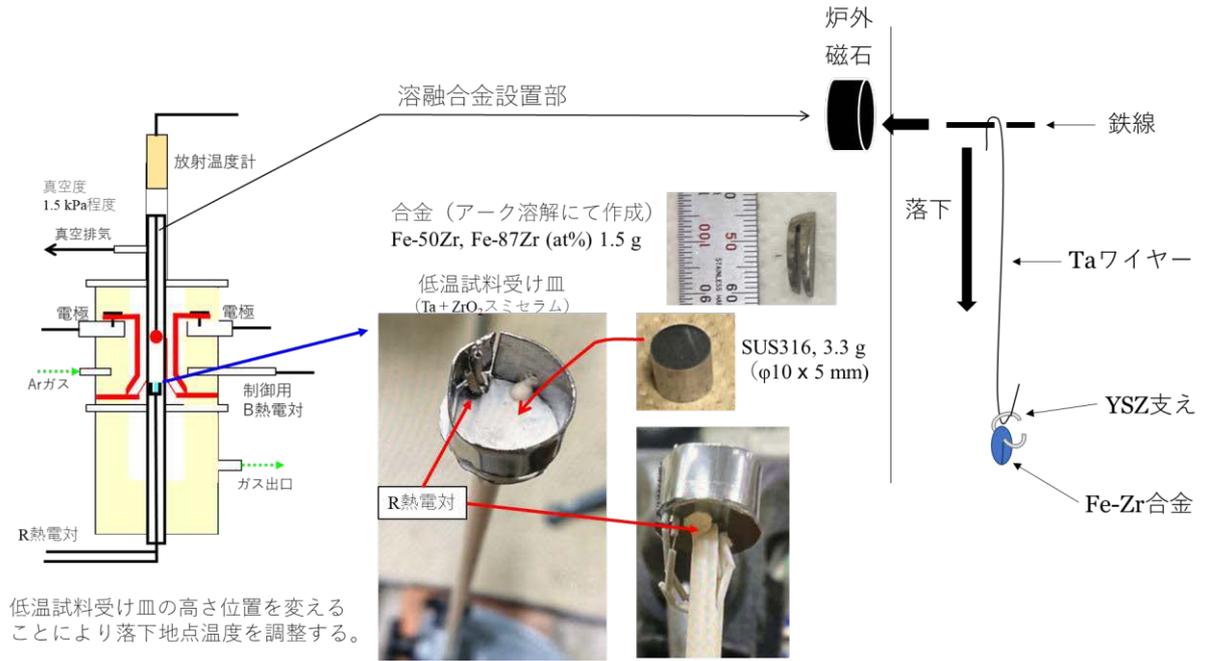


図 3. 2. 1-1 実験装置概略図



図 3. 2. 1-2 試料外観図 (Fe-15Zr/SS)

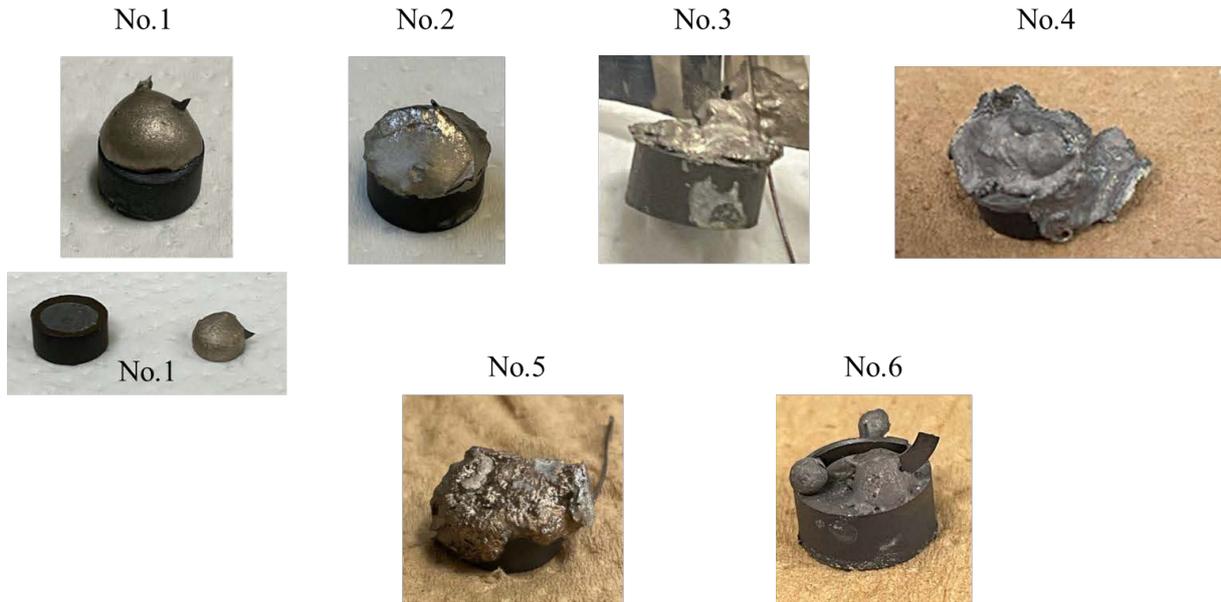


図 3. 2. 1-3 酸化膜有試験後試料の外観

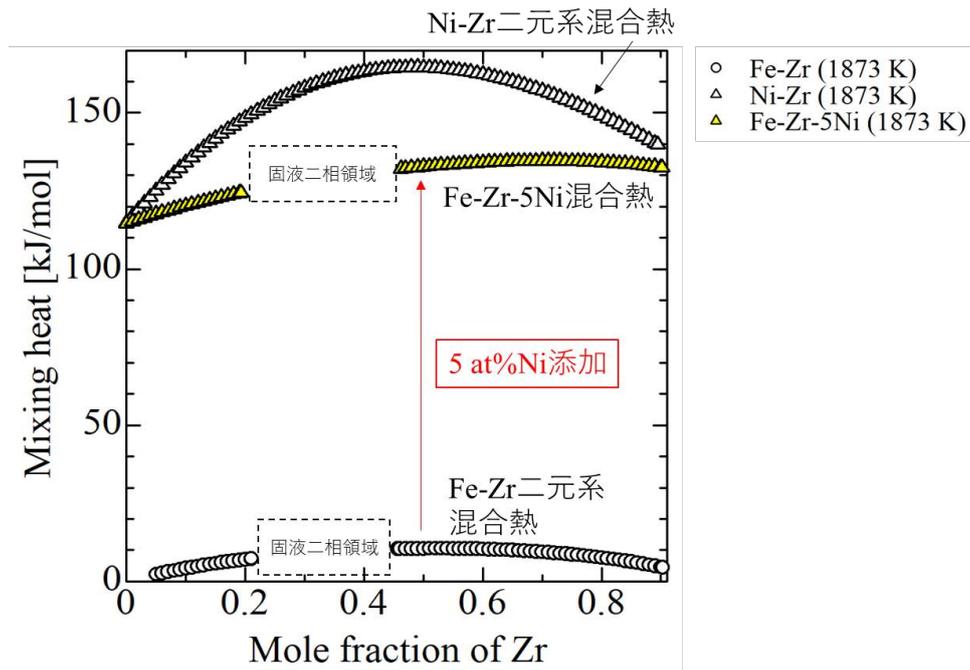


図 3. 2. 1-4 Fe-Zr, Ni-Zr および Fe-Zr-5Ni における混合熱計算値

参考文献

- [1] T. Yamashita, 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事故 1~3 号機の炉心・格納容器の状態の推定と未解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/221110j0103.pdf (参照 : 2025 年 3 月 31 日) .
- [3] D.G. Thomas, Transport characteristics of suspension: VIII. A note on the viscosity of Newtonian suspensions of uniform spherical particles, J Colloid Sci. Vol.20, (1965), pp.267-277. DOI: 10.1016/0095-8522(65)90016-4
- [4] COMSOL Multiphysics® v. 6.1. www.comsol.com. COMSOL AB, Stockholm, Sweden.
- [5] C.Y. Ho, et al., Thermal Conductivity of the Elements, J. Phys. Chem. Ref. Data 1, pp.279-421 (1972). DOI: 10.1063/1.3253100
- [6] L. J. Siefken, et al., SCDAP/RELAP5/MOD 3.3 Code Manual MATPRO, NUREG/CR-6150, Vol.4, Rev.2 (2001).
- [7] G.K. White and M.L. Mingos, Thermophysical Properties of Some Key Solids: An Update, International Journal of Thermophysics, Vol.18, 1997, pp.1269-1327. DOI: 10.1007/BF02575261
- [8] J.L. McClure and A. Cezairliyan, Thermophysical measurements on iron above 1500 K using a transient (subsecond) technique, Journal of research of the National Bureau of Standards-A. Physics and Chemistry (1974), pp.1-4.
- [9] C. Gueneau, et al. TAF-ID: An international thermodynamic database for nuclear fuels applications, Calphad 72 (2021): 102212.

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

(再委託先：東北大学)【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

本項目は、炉心崩落時に構造材および下部プレナムに溶融・移行したステンレス鋼を主とした金属融体と B_4C 、ジルカロイとの反応による、生成した金属デブリの組成への影響を検証試験および平衡・速度論解析により提示し、2、3号機内部調査結果などに基づく炉内金属デブリ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。制御棒およびステンレス鋼材由来の金属系融体および半溶融物を、温度および雰囲気を制御した高温下で B_4C およびジルカロイと接触させ、B および 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4年度までは、溶融ステンレス鋼に B_4C タブレットを接触させ、C および B の移行挙動を調査した。

【令和5年度実施内容および成果】

(1) はじめに

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 、ジルカロイの接触試験を行い B、C および 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取得整備した。圧力容器下部を想定した条件でのステンレス鋼融体中での固相生成挙動、B、C および Zr 濃度の変化を評価した。

(2) 実験方法

① Zry-4 試料の表面酸化処理

本実験では、Nilaco 製 Zry-4 (97.56mass%Zr, 1.63mass%Sn, 0.094mass%Cr, 0.0027mass%Hf, 0.001mass%Ca) を実験に用いた。Zry-4 の合金板から小片 (10×20×1.5 mm) を切り出し、粒度 #1200 のエメリー紙を用いて表面の研磨処理を行った。純水による洗浄とアセトンを用いた超音波洗浄を行った後、乾燥させ実験に供した。

縦型電気抵抗炉を用いて Zry-4 試料の表面の水蒸気による酸化処理を行った。図 3.2.2-1(a) に装置の概要を示す。炉にはムライト製反応管 1000 mm×φ50 mmID が取り付けられ、反応管内の均熱体の温度は B 型熱電対を接続した温度制御器を用いて PID (Proportional Integral Differential Controller) 制御により所定温度に制御した。反応管の上部下部はシリコン栓で閉じた。炉の均熱帯の温度を 1200 °C に保持した。予め反応管内の空気を除去するために、反応管内に 200 ml/min の流量で 20 分間高純度 Ar ガスを導入した。その後、Ar-30.8 %H₂O ガスに切り替え、反応管内に導入した。Zry-4 試料を Pt ワイヤで均熱帯位置に吊るした。ガス吹き付け管の先を試料上部 50 mm の位置に設置し、上部より Ar-H₂O ガスを吹き付けた。試料を 15、30、60 分間保持した後、反応管内から試料を直ちに取出し、ヘリウムガスを吹き付け急冷した。本実験で用いたガスは、全て不純物量が 0.3 ppm 以下の高純度ガスであった。水蒸気混合ガスは、水温をサーモスタットで 70 °C に保持した図 3.2.2-1(b) に示す水蒸気発生装置に、流量 300 ml/min の Ar ガスをキャリアガスとして導入し Ar-30.8 %H₂O ガスを生成した。水蒸気発生装置からはキャリアガスの流速に依存せずに、サーモスタットで調節した水温での飽和水蒸気圧の水蒸気混合ガスが発生する構造になっている。

水蒸気による酸化処理を行ったジルカロイ試料を切断し、試料の樹脂埋めを行った。表面を研磨し、Pt コーティングを施した後、EPMA (JXA-8200 型) を用いて加熱後の試料断面の観察を行った。図 3.2.2-2(a) (b) (c) に、それぞれ 15 分、30 分、60 分の酸化処理によって得られた試料断面の SEM 像を示す。ジルカロイ片の表面に一定かつ均一な膜厚の酸化膜が生成した。図 3.2.2-2(c) の図中に示すように、明灰色は金属部であり濃灰色部は酸化相である。また、これらの画像から、

得られた酸化膜の厚さを測定することにより、本条件の 15、30、60 分の表面の酸化処理により、表面の酸化膜厚さがそれぞれ約 50、150、250 μm であった。同一条件で、処理時間を変えることで任意の酸化層を有する Zry 試料を得られる。なお、酸化膜厚はランダムに選択した 10 箇所以上の酸化膜厚さの平均値から導出した。

表 3.2.2-1 に酸化処理を施した試料の Zry 相および酸化膜組成を EPMA を用いて組成分析した結果を示す。組成の平均値は、ランダムに選択した 5 点以上の箇所の測定値から算出した。酸化膜厚が 50、150 および 250 μm の試料についても Zr、O とともに濃度の差は小さく、Zry 相の Zr 濃度は 90~94 mass%、O 濃度は 3~5 mass% であった。Zry-4 には Zr の他に Sn や Cr、Hf、Ca などの元素が含まれているが、低濃度であるため Zr-O 系状態図^[1]から、これらの試料の Zry 相の主成分は α -Zr であり、酸化膜相は ZrO_2 であると評価した。

② Zry-4-SUS316L 反応実験方法

本項目では、Zry-4 および前項で作製した 50、150 および 250 μm の厚の酸化膜を生成した Zry-4 とステンレス鋼粉末 (316 type-L grade stainless steel, 100 mesh, 67.5 wt% Fe, 16.7 wt% Cr, 12.7 wt% Ni, Alfa Aesar) を使用した。次項以降では、酸化処理を行っていない Zry の表面には酸化膜がない (0 μm) として表記する。

ステンレス鋼粉末約 10g をジルコニアるつぼ (ZrO_2 -8 mol% Y_2O_3 ; ϕ 15 mmID \times 40 mm) に入れ、その中にジルコニア板の下半分をステンレス鋼粉末中に埋設した。電気抵抗炉の反応管内には高純度アルゴンガス (6 N) を流速 162 ml/min で流し、不活性雰囲気制御した。均熱帯温度は 1450 $^{\circ}\text{C}$ に調整した。酸化膜厚さ、保持時間等の実験条件については表 3.2.2-2 に示す。加熱試料を炉内に挿入し目的の温度で 5、15、30、60 および 90 分間保持した。加熱後、試料をるつぼごと炉内から取り出し、直ちにるつぼの外側を水に浸漬しながら、るつぼの上から試料表面にヘリウムガスを吹き付けることで試料を急冷した。急冷後、試料の断面を研磨し、分析試料を作成した。組織観察には、エネルギー分散型分光計 (EDS) と波長分散型分光計 (WDS) を搭載した SEM (EPMA JXA-8200) を用いた。EPMA 観察時の加速電圧は 15 kV、加速電流は 15 mA で行った。

(3) 実験結果

① 試料の状態

図 3.2.2-3 に 250 μm の酸化膜を有するジルカロイを 15 分間ステンレス鋼融体と反応した試料の外観を示す。Zry 板の下部は、ステンレス鋼に埋没しているように見える。分析のために Zry 板の断面が見えるように、試料を切断した。

図 3.2.2-4 に予備酸化実験で (a) 0 μm 、(b) 50 μm 、(c) 150 μm 、(d) 250 μm の厚さの酸化層を生成した Zry 試料を、ステンレス鋼融体中で 15 分保持した試料の反射電子像を示す。図 3.2.2-4(a) の薄いグレー色の部分は $(\text{Fe}, \text{Ni}, \text{Cr})_2\text{Zr}$ であり、濃いグレー色の部分はステンレス鋼に数パーセントの Zr が含有されるステンレス鋼系融体である。ジルカロイに酸化膜が形成していない (0 μm) 場合、Zry 相内にはステンレス鋼融体と Zry の反応によって形成されたラーベス相 ($(\text{Fe}, \text{Ni}, \text{Cr})_2\text{Zr}$) のみが存在していた。また、金属相との間に酸化膜層は確認されなかった。図 3.2.2-4(b) の白色部分は、Zry に数パーセントの Fe、Cr、Ni が含まれる Zr 系の固液共存相である。薄いグレー色の部分は $(\text{Fe}, \text{Ni}, \text{Cr})_2\text{Zr}$ の固体であり、濃いグレー色の部分はステンレス鋼系の液体である。酸化膜の膜厚が 50 μm の場合、もともとジルカロイがあった部分から Zr などが鉄相に移行しており、穴の存在も確認できる。また、Zr 系融体に溶解ステンレス鋼融体から Fe、Cr、Ni が侵入している。Zr 濃縮相とステンレス鋼融体の間に酸化膜が見られない。図 3.2.2-4(c) の白色部分は Zr 系の固液共存相である。薄いグレー色の部分は $(\text{Fe}, \text{Ni}, \text{Cr})_2\text{Zr}$ であり、濃いグレー

色の部分はステンレス鋼系の液体である。酸化膜の膜厚が 150 μm の場合、膜厚 0 μm 、50 μm の場合とは異なり、Zry 相表面に ZrO_2 酸化膜相が存在する。Zry 相内に留まっている Zr は減少しており、成分の流出により穴が存在している。また、Zry 相内にも熔融ステンレス鋼融体が侵入している。Zry 相表面と $(\text{Fe}, \text{Ni}, \text{Cr})_2\text{Zr}$ 濃縮相の間に二次酸化膜が形成されており、Zry 相、反応層、ステンレス鋼相が酸化膜を挟んで共存している構造となっていることが確認できる。図 3.2.2-4(d) は 150 μm 試料と同様に、白色部分は Zr 系の液体である。薄いグレー色の部分は $(\text{Fe}, \text{Ni}, \text{Cr})_2\text{Zr}$ であり、濃いグレー色の部分はステンレス鋼系の液体である。酸化膜の膜厚が 250 μm の場合も、膜厚が 150 μm の試料と同様に、二重の ZrO_2 酸化膜層が確認されている。

Zry 相内へのステンレス鋼の構成元素の移行は少ない。また、Zry 相、反応層、ステンレス鋼相が酸化膜を挟んで共存している構造となっていることが確認できる。

以上の酸化相厚が異なる試料の反応挙動の比較により、酸化膜があることにより Zry はステンレス鋼融体から隔離され、酸化膜の厚さが厚いほど熔融ステンレス鋼との反応が抑制されることが分かる。

② 反応層、二次酸化層の生成

図 3.2.2-5 に 250 μm 、15 分間ステンレス鋼融体と反応した試料の Zry および反応層について SEM/EDS による元素分析結果を示す。図の左側より Zry 相、二次酸化物層、生成相、一次酸化物相である。SEM 像の輝度より相を分別したところ、Zry 相、生成相にはそれぞれ三相が存在するように見える。Zry 相では白色 (I) (視野外)、明灰色 (II)、灰色 (III)、生成相では、明灰色 (IV)、灰色 (V)、暗灰色 (VI) が存在する。初期酸化物層の外側はステンレス鋼融体が存在する。二層の酸化物層により構成相の異なる Zry、生成層、ステンレス鋼相が分離されている。二次酸化物層の水平方向に線状の明灰色相が見える。この層は Zr を主体とする液相である。二次酸化物層の内部を Zry とステンレス鋼の成分が通過し、両側で液相を生成していることが分かる。

図 3.2.2-6 は、図 3.2.2-5 の存在相の組成分析結果を Cr-Fe-Zr 系状態図上に表している。状態図は FactSage^[2]を用いて、1450 $^{\circ}\text{C}$ におけるステンレス鋼 316L-Zr 系から得られる Cr-Fe-Zr 系状態図である。図中には記載されていないが、計算においてステンレス鋼成分中の Ni 濃度を 12.7 mass%として、Cr および Fe と共存している。

I-VI 相をそれぞれ、白四角、灰四角、黒四角、白丸、灰丸、黒丸で表した。図の明度が同じ相を複数回定量したため、平均的な値を示している。I は Zry 相の中心部を表す。I は Zr を主成分とする固体 Zry であり、Fe、Cr 等ステンレス鋼の成分は含まれない。II、III は Zr を主成分とする液相、IV は Zr を主成分とする液相、V は液相とラーベス相の混合物、VI はラーベス相である。酸化物層の両側で構成相が異なるため、酸化物層が成分の拡散を抑制していると評価できる。初期酸化物層を通過したステンレス鋼成分が、Zry の熔融およびラーベス相の生成に寄与することが分かる。また、二次酸化物層をステンレス鋼成分および Zry 成分が相互に通過していることが分かる。

③ 層構造の変化

図 3.2.2-7 に 150 μm 酸化膜を生成した Zry を熔融ステンレス鋼中で (a)5、(b)15、(c)30、(d)60、(e)90 分間保持した試料の反射電子像を示す。図 3.2.2-7(a)の明るい白色部分が Zry 相、外側にある濃配色の相がステンレス鋼融体であり、その間にあるのが初期酸化物層である。酸化物層の内部に Zry 由来の Zr 等の成分が留まっている。酸化物層の内側に、酸化物層内側に灰色の薄層があり、ステンレス鋼成分がわずかに Zry 相に移行していることを示している。図 3.2.2-7(b)

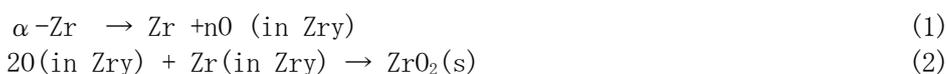
には、初期酸化物層の内側に二次酸化物層の存在が確認できる。初期酸化物層内部上部は Zry 相で、中下部では Zry と Zr 主体の液相が共存する。また、下部では黒色に見える空隙が多く存在し、Zry の成分が二次酸化物層の外部に移行したことが分かる。生成相内の濃灰色の部分では $(\text{Fe, Ni, Cr})_2\text{Zr}$ がステンレス系融体に懸濁している。初期酸化物層と二次酸化物層の生成層に、溶融ステンレス鋼が侵入して濃灰色を呈する部分増加している。図 3.2.2-7(c) では(b)に比べ Zry 相内の空隙が減り、ステンレス鋼成分が移行している。Zry 相内では Zr 主体の液相にラーベス相が懸濁している。図 3.2.2-7(d)、(e)のもとと Zry のあった部分の濃配色部位はステンレス鋼系の液体であり図からは読み取りにくい、(d)では中心部にラーベス相が存在する。初期酸化物層および二次酸化物層が存在している。初期酸化物層内部に多量の溶融ステンレス鋼が移行し、外側のステンレス鋼相と構成相の区別がつきにくい。

以上より、時間の経過とともに酸化物層、生成相の両側から Zry 成分とステンレス鋼成分が相互に移行する。また、酸化物層は 90 分経過後も存在することが分かった。

④ 二次酸化層の生成挙動

以上より推定できる、二次酸化層および相構造の生成過程の模式図を図 3.2.2-8 に示す。図 3.2.2-7(a)では、Zry とステンレス鋼が相互に接触し、5 分後には初期酸化物層内側にステンレス鋼成分が存在することが確認されている。このことから、図 3.2.2-8(a)-(c)のように元素の移行と二次酸化物層の生成が進行すると考える。(a)溶融ステンレス鋼と初期酸化物層が接触し、初期酸化物層中をステンレス鋼成分が移動する。(b)溶融ステンレス鋼へ Zr が溶解し、Fe-Zr 融体を主成分とした反応層が成長する。(c)反応層と Zry 相の間に二次酸化相が生成する。

Zr は α -Zr として酸素を固溶するため、表面を酸化した試料のジルカロイにも 3~5 mass%の酸素が固溶していた。その一方で、ステンレス鋼融体およびラーベス相への酸素の溶解度は低い。そのため、ジルカロイとステンレス鋼融体が接するとジルカロイ中の Zr は鉄系融体に取り込まれるが、固溶する酸素は生成層中に取り込まれずに Zry 相に残る。さらに Zr が反応層に取り込まれていくことにより Zry 相に残る酸素の量が増加し、界面において ZrO_2 が生成する酸素ポテンシャルに達するまで酸素が濃縮すると、二次酸化物層として ZrO_2 主体の酸化物層が形成される。これらの反応が連続して起こることにより、二次酸化膜が形成される。これらの反応を表すと下記のようなになる。



⑤ Zry 相から生成層へ移行した Zr 量評価

Zry-SUS316L 系融体の接触において、Zry から金属融体へ移行した Zr 量の評価を試みた。二次酸化物層を Zry 相と外部を分ける境界と定義し、初期の Zry 相内の Zr 量から所定の保持時間後に二次酸化物層内側に存在する Zr 量の差から、Zry 相外に移行した分の Zr 量を定量することを試みた。単位面積当たりの Zr 流出量を導出した結果を図 3.2.2-9 に示す。縦軸は試料の単位表面面積当たり流出する Zr の重量である。灰点線、灰線、破線、黒線は、それぞれ初期酸化物層厚が 0、50、150、250 μm の試料を表す。また、後述の方法で導出した 50、150、250 μm 試料の時間と溶出量の関係を灰色線、破線、実線で示す。

150 μm 試料の単位面積当たりの Zr 流出量から近似式を導出すると、

$$\frac{m(t)}{A} = 0.0795 \ln(t+0.63) + 0.0365 \quad (\text{g/cm}^2) \quad (3)$$

で表すことができる。この式を図 3.2.2-9 中に破線として表す。 $\ln(t+0.63)$ の係数を B とすると単位面積当たりの Zr 流出量の式は、

$$\frac{m(t)}{A} = B \ln(t+0.63) + 0.0365 \quad (4)$$

と書き直すことができる。この $m(t)$ の式について 250 μm 、50 μm 試料について B の値を変化させることによって近似式を導出した。

250 μm 、50 μm 試料に対してそれぞれ、

$$\frac{m(t)}{A} = 0.0595 \ln(t+0.63) + 0.0365 \quad (5)$$

と、

$$\frac{m(t)}{A} = 0.0995 \ln(t+0.63) + 0.0365 \quad (6)$$

となる。これらは、図 3.2.2-9 中の線として表される。

式 7 の B と初期酸化膜の厚さの関係を図 3.2.2-10 に示す。測定データから以下の一次の近似式が得られた。

$$B = -0.0002x + 0.11 \quad (7)$$

ここで、 x は酸化膜の厚さ (μm) である。

従って、単位面積当たりの Zr 流出量の式について、酸化膜の厚さの変数を加えることが可能である。式 4 と式 7 から下式が得られる。

$$\frac{m(x,t)}{A} = (-0.0002x+0.11) \ln(t+0.63) + 0.0365 \text{ (g/cm}^2\text{)} \quad (8)$$

以上より、表面を酸化したジルカロイと 1450 $^{\circ}\text{C}$ の熔融ステンレス鋼の接触により、ジルカロイから溶出する Zr の単位面積当たりの重量を、ジルカロイ表面の初期酸化膜厚さ (x [μm]) と接触時間 (t [min]) の関係から得ることができる。

⑥ 熔融ステンレス鋼に B_4C タブレットを接触させた際の、C および B の移行挙動評価

1450 $^{\circ}\text{C}$ 、Ar-12.2 % H_2O 雰囲気下で、5 分間および 240 分間 B_4C と熔融ステンレス鋼を接し保持し、EPMA により金属相中の C と B の濃度分析を行った。図 3.2.2-11 に C と B の濃度と B_4C との接触面からの距離の関係を示す。オレンジ色が炭素濃度を、青色がホウ素濃度を示す。点線は FactSage8.2 を用いて計算した、この系における金属相中の B と C の飽和濃度を表す。このグラフから 240 分の試料では、ペレット接面から下部に向けて金属相中の B、C 濃度がほぼ均一であることが分かった。一方で、5 分では反応界面からの距離に伴い濃度が減少しており、濃度勾配があることが分かる。界面における B_4C からの B の溶出よりも、金属相中での B の拡散が遅く、反応界面から濃度勾配ができることが確認された。

(4) まとめ

1450 $^{\circ}\text{C}$ における Zry と熔融 SUS316L の反応実験により下記の知見を得た。

- ・予備酸化処理により酸化膜を表面に生成されたジルカロイと熔融ステンレス鋼が反応することにより、表面酸化膜よりも内部に二次酸化膜が形成される。
- ・二次酸化膜の厚さは初期の酸化膜の厚さのみ依存し、保持時間を変えても二次酸化膜の厚さは変化しない。

- ・ Zry と熔融ステンレス鋼が反応すると (Fe, Cr, Ni)₂Zr を含む生成層が、初期酸化物層と二次酸化物層の間に生成する。この生成層は保持時間に伴って厚くなる。
- ・ 酸化物層があることにより Zry はステンレス鋼融体から保護され、酸化膜の厚さに伴い Zr の移行も抑制される。(Fe, Cr, Ni)₂Zr を含む生成層も成分の移行を抑制する。
- ・ Ar 雰囲気、1450 °Cにおける Zry-SUS316L 反応による Zry から外部に移行する Zr の量は以下の式で表すことができる。

$$m(x, t) = (-0.0011x+0.4034) \ln(t+2.1) - 0.1794 \text{ (g)} \quad (9)$$

x: Zry 表面の酸化膜の厚さ (μm)、t: 反応時間 (min)

- ・ B₄C のステンレス鋼融体への溶解による重量変化から、以下のステンレス鋼に対する B₄C の総括溶出速度式を得た。

$$(dm(t))/A \ 1/dt=0.1419/t \text{ (g/cm}^2\text{/h)} \quad (10)$$

ここで、m(t)はB₄Cの重量、Aは固液の接触面積、tは時間を示す。

参考文献

- [1] H. Okamoto, O-Zr (Oxygen-Zirconium), Journal of Phase Equilibria and Diffusion Vol. 28, 2007, 498p.
- [2] M. Hino, K. Ito, ed., Thermodynamic data for steelmaking, Tohoku Univ Press, Sendai, 2010.

表 3.2.2-1 ジルカロイの金属相および酸化物層の組成

Thickness of oxide layer	Metal phase		Oxide phase	
	Zr (mass%)	O (mass%)	Zr (mass%)	O (mass%)
50 μm	93.7	3.1	71.5	21.1
150 μm	93.8	5.2	71.3	20.0
250 μm	90.3	3.6	69.3	16.4

表 3.2.2-2 実験条件

Oxide phase [μm]	Holding time [min]				
	5	15	30	60	90
0		✓			
50		✓		✓	
150	✓	✓	✓	✓	✓
250		✓		✓	

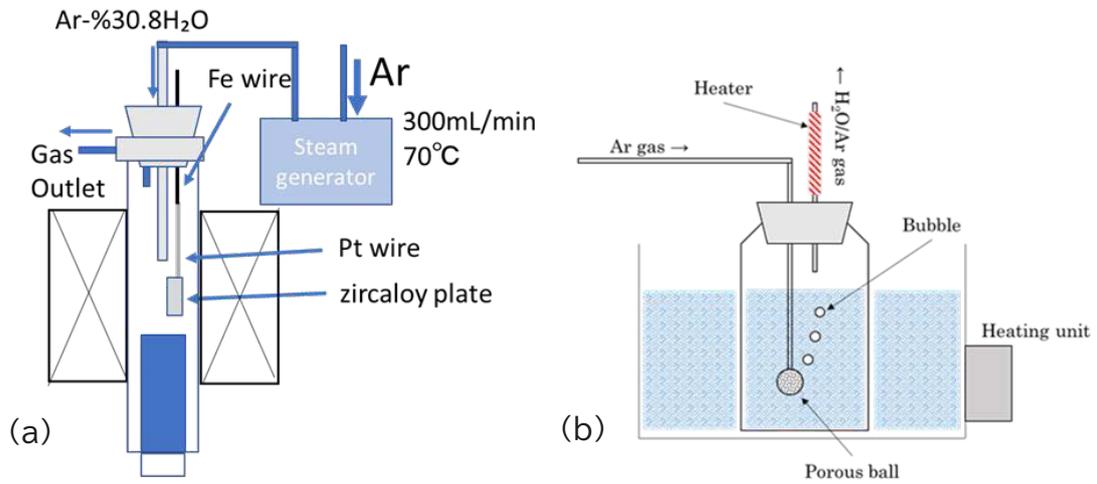


図 3. 2. 2-1 実験装置概略図

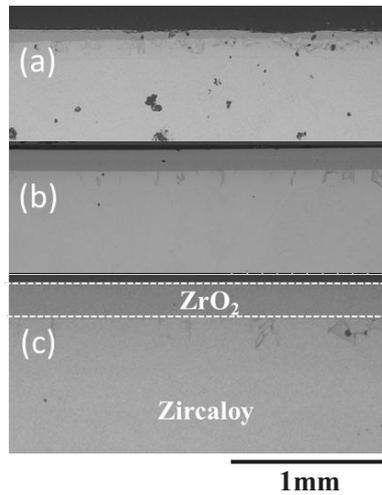


図 3. 2. 2-2 水蒸気中で加熱したジルカロイ試料の断面(a)15分、(b)30分、(c)60分



図 3. 2. 2-3 ステンレス鋼とジルカロイを15分加熱した試料の外観

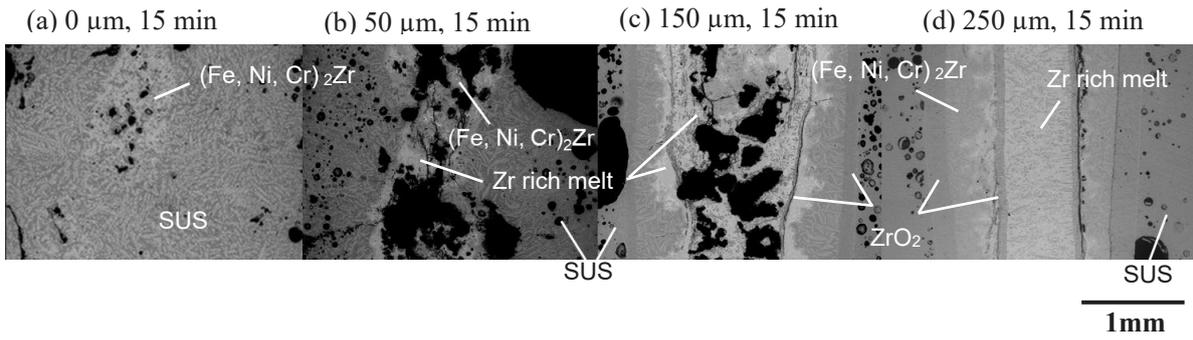


図 3.2.2-4 酸化物の厚さ(a)0 μm 、(b)50 μm 、(c)150 μm 、(d)250 μm の試料をステンレス鋼の融液中で15分間保持した試料の断面

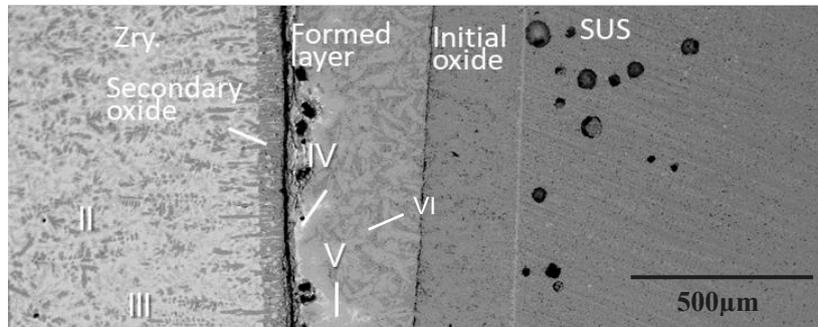


図 3.2.2-5 生成層近傍の相構造

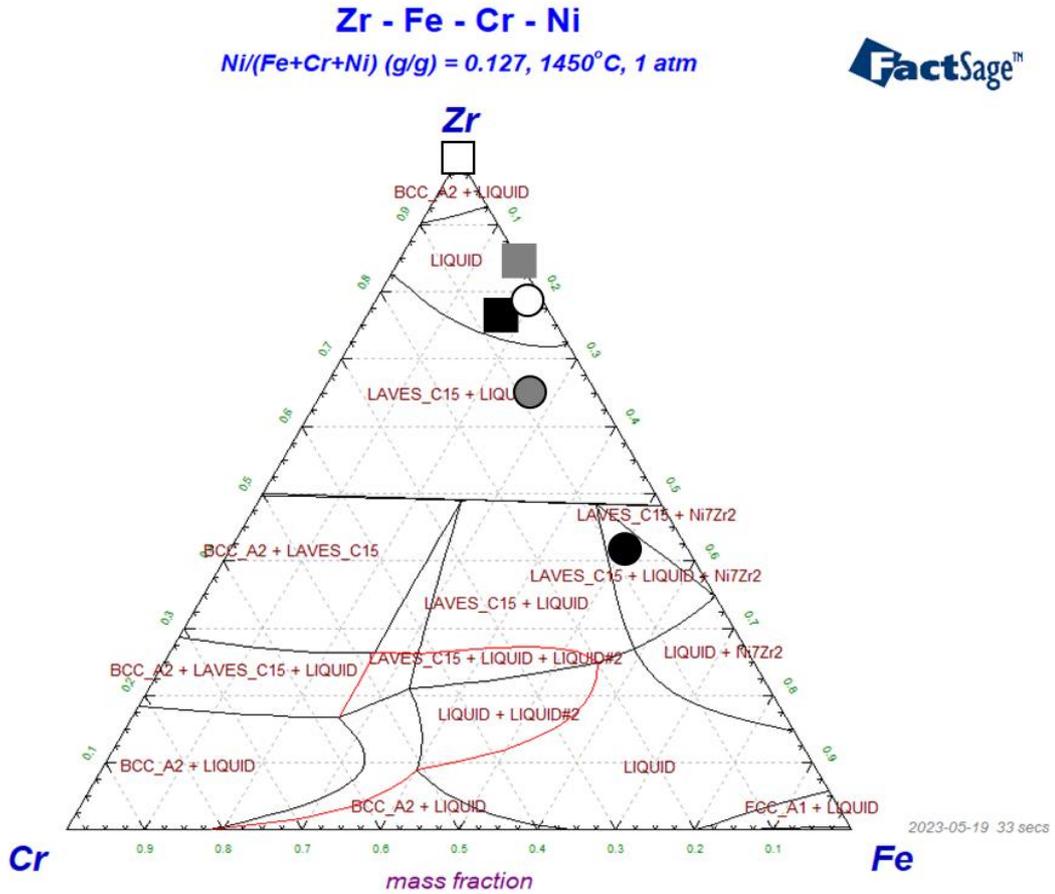


図 3. 2. 2-6 生成層内の鉍物相組成

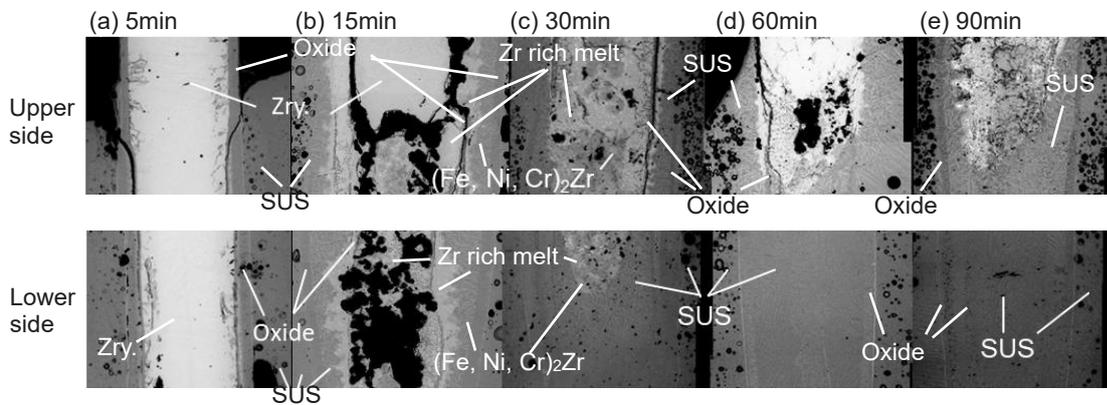


図 3. 2. 2-7 ステンレス鋼熔融液中で保持した酸化膜厚 150 μm の試料断面

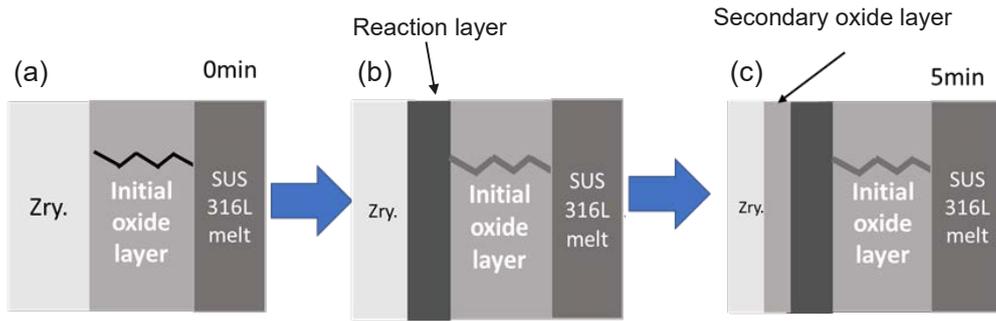


図 3. 2. 2-8 二次酸化層の生成機構

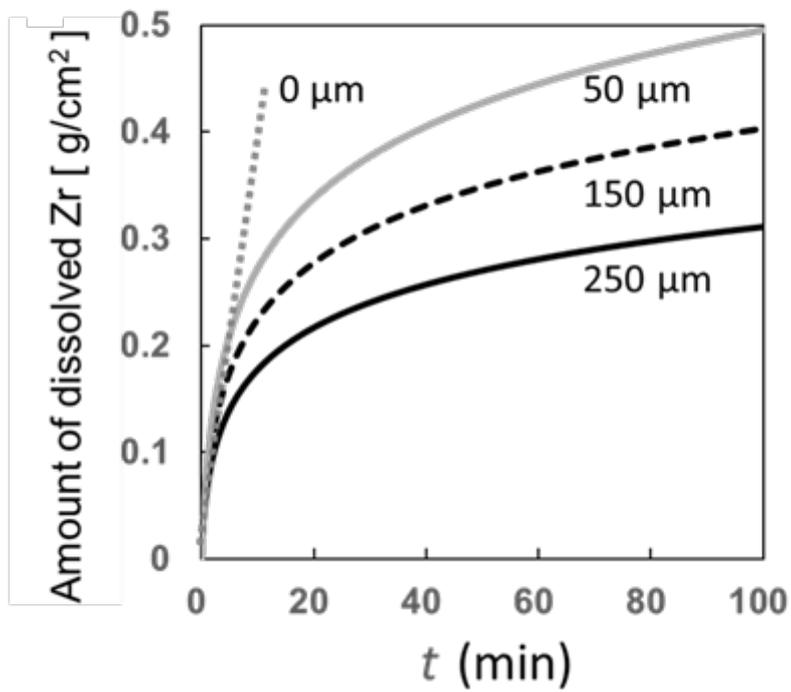


図 3. 2. 2-9 ジルコニアから溶出した Zr 量

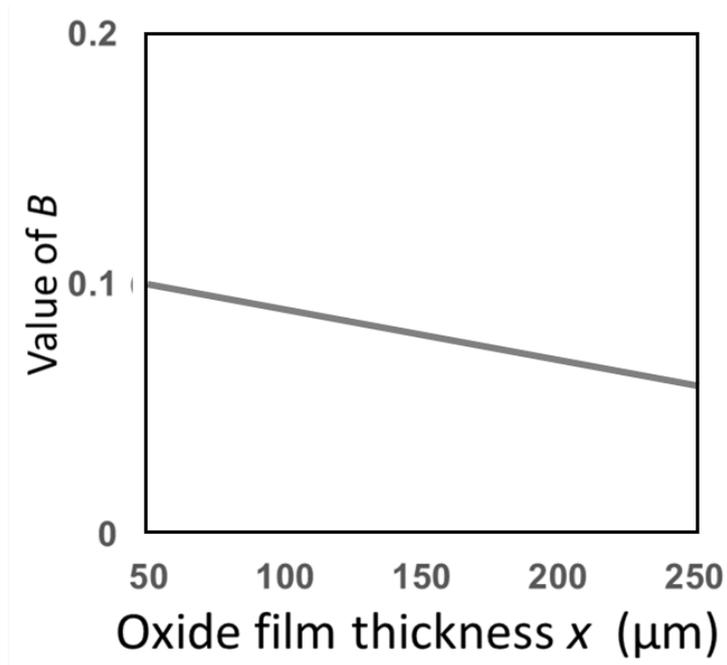


図 3.2.2-10 Zry-4 板表面の酸化膜の厚さと B の値の関係

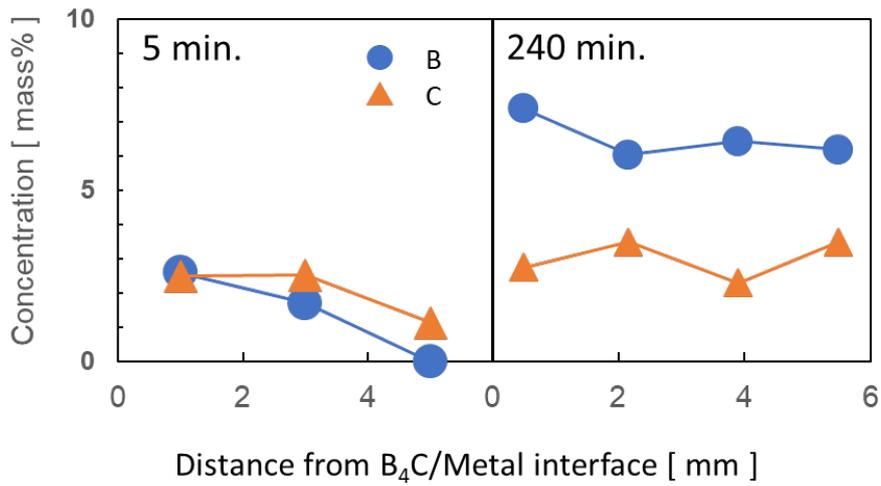


図 3.2.2-11 金属相中の C と B の濃度分布の時間変化

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（連携先：JAEA）【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

1F 2、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。

令和4年度までは、Zrリッチ金属デブリと2種の下部プレナム構造材（ステンレス鋼、インコネル）の高温反応試験を実施し、インコネル材の方が反応速度が高い傾向を示した。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、2000℃以上の温度域において反応が進展し、金属デブリ中のジルコニウムが酸化物層に移行、成層化する様子が観察された。さらに、圧力容器の破損および溶融物流出挙動を評価するために、大型模擬試験を実施した。ステンレス鋼リッチ金属デブリ存在下では、温度上昇による圧力容器破損が支配的であり、金属デブリ-構造材間の材料反応は限定的になる結果となった。

【令和5年度実施内容および成果】

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を拡充し、大型試験体系で解析可能な簡素化反応速度式を提案した。溶融金属物質による圧力容器下部破損挙動の大型試験における試験体を分析するとともに、提案する反応速度式による大型試験の実験解析と併せて、溶融金属と圧力容器構造材との反応による圧力容器下部破損挙動、溶融物流出挙動を評価した。また、圧力容器下部におけるデブリ再溶融過程でのウラン化合物とステンレス鋼等の金属物質の反応試験データを拡充し、金属デブリ層へのウラン移行挙動を評価した。

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、アーク溶解で作製した直径約30mm×高さ約10mmのペレット状のSUS304-Zr合金を用いた。令和4年度では、Zrリッチの共晶組成を用いたのに対して、令和5年度の試験では、ステンレス鋼リッチのSUS304-16wt% Zr組成を用いた。下部プレナム構造材としては、制御棒駆動機構（以下、「CRD」と略す。）のハウジングや溶接部に使用されている^[2]ステンレス鋼（SUS304）とNi基合金（Inconel600以下、「インコネル材」と呼ぶ。）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、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）にて加熱試験を実施した。模擬金属デブリと構造材を接触させた試料をAr雰囲気、1200℃、1300℃、1400℃の各温度で60分、120分保持した。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およびSEMによる組織観察を実施した。構造材側での液相侵食距離と反応層厚さから反応量を算出するとともに、EDXによる反応界面部の元素分析を実施した。

2) 結果および考察

図 3.2.3-2 および図 3.2.3-3 に試験後のインコネルおよびステンレス鋼の断面の光学顕微鏡観察結果を示す。1200 °C の試験では金属デブリと構造材間の反応は見られなかったのに対し、1300 °C から反応が進展し、1400 °C でも模擬金属デブリは形状を維持していた。これは、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ことが考えられる。模擬金属デブリとインコネル材の反応に着目すると（図 3.2.3-2）、1300 °C では反応時間の増加に伴い反応溶融により侵食が進んでいることが分かる。1400 °C ではインコネル材全体が反応溶融する結果となった。ステンレス鋼の反応挙動においては（図 3.2.3-3）、1300 °C と 1400 °C とともに反応溶融し、反応温度および時間が増加するに伴い反応量が増加することが分かる。インコネルと比べると反応量が少なく、1400 °C でも板状を保っている。

各試験条件における構造材の反応量を表 3.2.3-1 に示す。1300 °C から反応が進行し、温度、時間が増加するにつれて反応量が増加していることが分かる。1400 °C ではインコネル全体が反応する結果となったが、反応温度がインコネル自体の融点約 1420 °C に近いため、溶融が進展したと考えられる。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い結果となった。代表的なものとして各構造材の 1300 °C × 60 分保持試験の反応界面部の SEM/EDX 分析結果を図 3.2.3-4 に示す。インコネル材、ステンレス鋼ともに金属デブリ側から板材に向けて反応相が侵食して溶融が進展している様子が観察された。各構造材の反応相としてインコネルでは Ni_7Zr_2 が形成され、ステンレス鋼では $\text{Fe}_{23}\text{Zr}_6$ の形成が確認された。Fe-Zr および Ni-Zr の状態図^[3]

（図 3.2.3-5）を確認してみると、インコネル材とステンレス鋼ともに、金属デブリ中の Zr 成分が少ないため、低 Zr 領域で反応相が形成されていることが分かる。一方で、形成される反応相の融点に着目すると、ステンレス鋼の方が高いことが分かる。令和 4 年度に実施した Zr リッチ金属デブリの試験結果においても、ステンレス鋼では Fe_2Zr の高融点反応相が形成されており、ステンレス鋼はこの高融点反応相が溶融の妨げになり、反応速度がインコネルよりも遅くなっている可能性がある。

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、令和 4 年度の結果と合わせて図 3.2.3-6 に示す。ここでは、金属デブリおよび構造材が完全に溶融した条件を除いている。金属デブリ組成や温度に関わらず、反応速度はステンレス鋼 < インコネルという結果となった。金属デブリ組成は反応温度域 (Zr リッチ: 1000 °C ~ 1200 °C、ステンレス鋼リッチ: 1300 °C ~ 1400 °C) が異なるが、組成によらず反応速度は温度上昇により指数関数的に増加している。これまでの試験結果から、反応する構造材の温度ごと (1000 °C ~ 1400 °C) の反応速度 k をアレニウス式に当てはめると (図 3.2.3-7) 以下のような式を得る。

インコネル材：

$$k = 3.383 \exp\left(-\frac{2.783 \times 10^5}{RT}\right)$$

ステンレス鋼：

$$k = 2.072 \times 10^4 \exp\left(-\frac{4.238 \times 10^5}{RT}\right)$$

ここで、R は気体定数[J/K・mol]、T は温度[K]である。

溶融状態になる前の金属デブリ-構造材の反応速度は金属デブリ組成によらず、インコネル材の方がステンレス鋼よりも反応速度が速いことが分かる。特に、低温域では反応速度差が大きいこ

とが分かる。金属デブリによる圧力容器破損に着目すると、インコネル材はステンレス鋼よりも低温で反応溶融が進行し、優先的に破損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

溶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、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。令和4年度では、U-Zr-Oが反応する2000℃以上での温度域における金属デブリ-酸化物デブリの反応試験を実施し、金属デブリ中のZr成分が酸化物層に移行する挙動を確認した。令和5年度は、金属デブリによる圧力容器破損が発生すると考えられる低温域での反応試験を実施し、金属/酸化物デブリの相互作用を確認した。

試験体模式図を図3.2.3-8に、試験条件を表3.2.3-2に示す。令和4年度と同様に、外形φ10mm×高さ15mmの(U,Zr)O₂るつぼを作製、そこに模擬金属デブリを装荷し、これを高温で保持してその反応を観察した。(U,Zr)O₂るつぼは、Ar-5% H_2 混合気流中700℃以上で定比組成にU₃O₈を還元処理したUO₂を遊星ボールミルで十分粉砕した後に、ZrO₂粉末をUO₂:ZrO₂=80:20になるように混合してφ10mmペレット形状に成型し、片側底面をドリルで深さ4mmほどの穴を開けてるつぼ状に成形して、これを高純度Ar気流中1700℃以上で焼結した。また、模擬金属デブリとしては、3.2.3項①、③で用いているものと同様に、アーク溶解で作製した直径約30mm×高さ約10mmのペレット状のSUS304-83 wt%Zr合金(Zrリッチ共晶組成)を2~3mmの小片状に切断して(U,Zr)O₂るつぼに装荷した。令和4年度までの試験では、2000℃以上のU-Zr-Oが反応する高温域での試験を実施したが、令和5年度では金属デブリによる圧力容器破損温度の低温域として1223℃~1623℃で保持し、反応の様子を観察した。試験後、試料を切断、研磨し、その断面を光学顕微鏡で観察後SEM/EDXにより分析した。

2) 結果および考察

1223℃の断面観察結果およびEDX分析結果を図3.2.3-9、表3.2.3-3に示す。金属デブリが溶融し、るつぼ接触部で反応していることが分かる。金属デブリ-るつぼの接触界面部には薄いZrO₂の反応層が形成されている。このZrO₂層の内側にはさらにα-Zr(O)層が形成されている。EDX分析結果からは、金属デブリ部においては酸素濃度が上昇していると見られるが、Zr濃度等の金属成分に大きな差異は見られない。図3.2.3-10、表3.2.3-4に1423℃の試料断面観察結果およびEDX分析結果を示す。1223℃の試料と同様に、金属デブリ-るつぼ界面部にZrO₂の薄い反応層とその内側にα-Zr(O)層が形成されている。ただし、ZrO₂反応層は1223℃のものよりも成長し厚くなっている。各部位の相組成は1223℃と大きな差異は見られなかった。温度が上昇し界面部での反応が進展し、ZrO₂反応層が成長するものの、反応は界面部のみに限定されていると考えられる。1623℃の断面観察結果およびEDX分析結果を図3.2.3-11、表3.2.3-5に示す。他条件と同様に溶融した金属デブリが(U,Zr)O₂るつぼと反応しZrO₂層とα-Zr(O)層が形成され、ZrO₂反応層が成長しているのを確認した。このZrO₂反応層中には、α-Zr(O)やウラン酸化物の(U,Zr)O₂、ウラン含有金属相が存在している。また、金属デブリ部は(U,Zr)O₂るつぼからの酸素供給とZrの消費でわずかに組成が変化している。また、金属層中にウランが1.5at%程度移行する結果となった。1623℃でも金属/酸化物デブリの反応は界面部の限定的なものであると考えられる。しかし、接触界面部の局所的なものではあるが、ウランと反応してU-Zr-O相が形成される結果となっている。

金属デブリと酸化物デブリの反応では、令和5年度試験条件の低温域(1700℃以下)においては反応が限定的となる結果となった。接触部界面近傍においてのみ、反応層が形成される結果となった。酸化物層からの酸素供給により金属Zr成分が酸化してZrO₂およびα-Zr(O)の反応層を

形成する。温度上昇により ZrO_2 反応層が成長し、1623 °Cでは U-Zr-O 相の形成も観察されたが、この反応も接触部近傍のみに留まる結果となった。酸化物層との反応で金属層中の酸素濃度が上昇しているが、全体としては熔融金属層として維持されると考えられる。ウランの金属層移行についても高 U 含有相は形成されず、わずかなウラン成分が金属層中に移行する結果となった。令和 4 年度までの試験結果を踏まえると、低温域（～1700 °C）では金属/酸化物デブリの相互作用は限定的であり、2000 °C以上になると U-Zr-O の反応が進展すると考えられる。熔融金属デブリプールが压力容器破損に寄与したと考えられる低温域では、金属/酸化物デブリの相互作用は限定的であり、金属デブリによる压力容器破損挙動に与える影響は少ないと考えられる。一方で、2000 °Cを超える高温域では、金属/酸化物デブリの反応により、金属 Zr が酸化物層に移行、U-Zr-O の酸化物層が形成することで金属/酸化物層に成層化すると考えられる。

③ 下部プレナム破損試験

1) 压力容器破損挙動模擬試験

令和 4 年度に、以下に記述する金属デブリによる压力容器破損挙動の模擬試験を実施した（図 3.2.3-12）。CRD や使用されている材質を参照した大型試験体を作製し、試験体内に充填する模擬デブリとして金属系（ステンレス鋼リッチ共晶組成の SUS304-Zr 合金）、酸化物系（水蒸気により酸化したジルコニウム等）を使用し、金属デブリの酸化や酸化物が压力容器下部ヘッド破損挙動に与える影響について、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）で模擬試験を実施した。試験体系および試験経過、結果については令和 4 年度報告書に記載している。

令和 5 年度は、試験後の試験体断面の観察および試験体格部位の SEM/EDX 分析を実施し、压力容器の破損挙動を評価した。図 3.2.3-13 に試験後試験体の断面観察結果を示す。試験体外観からは CRDハウジングが熔融消失していることが分かる。断面外観からは、CRD 内部に凝固物が確認されるが、压力容器内部の金属デブリは残存している。SEM/EDX 分析からも金属デブリと接触しているハウジングが健在であることが分かる。インコネル材のスタブチューブはその大部分が、金属デブリからの Zr 成分供給による Zr-Ni 液相が侵食することで熔融または半熔融状態にあり破損していると見られる。一方で、ステンレス鋼のハウジングは金属デブリによる顕著な反応、熔融は観察されなかった。CRD 内部の凝固物はステンレス鋼であり、熔融したハウジング上部が CRDハウジング内部に流入凝固したと考えられる。CRD を通過して落下した凝固物（図 3.2.3-14）についても、均一なステンレス鋼であり、CRD を内部に流入した熔融物はハウジング自身であると考えられる。試験の経過では 1500 °C前後でハウジング上部が熔融している様子が観察されており、ステンレス鋼リッチ金属デブリ存在下では、金属デブリ-構造材の材料反応は限定的であり、温度上昇での融点到達による構造物の熔融が支配的な破損挙動になると考えられる。

JAEA で過去に実施した試験 ELSA-1 (Experiment on Late in-vessel Severe Accident phenomena) ^[4] では、Zr リッチ共晶組成金属デブリ用いているが、Zr 成分との共晶反応により 1250 °C程度で CRD が破損する結果となっている。金属デブリ中の Zr 成分が構造材との反応性に大きく寄与しており、Zr 成分量によって压力容器の破損メカニズムが異なる可能性が示唆される。

2) 压力容器破損模擬試験の数値解析

令和 4 年度までに整備した試験体系にて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压力容器破損試験体系を対象にし、金属デブリ熔融プールによる、CRD 構造周辺の熔融、反応挙動に対する試験解析を実施した。解析体系を図 3.2.3-15 に示す。今回は Zr リッチ金属デブリ (SUS304-83 wt% Zr) を充填した ELSA-1 試験^[4]を対象とした。

試験体内に金属デブリが充填されている状態であり、試験体等の物性は令和3、4年度と同様の値を使用した。解析では金属デブリが溶融し、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。高温での材料間反応（インコネル材-模擬金属デブリ、ステンレス材-模擬金属デブリ）として本研究で取得、設定した反応速度式を使用した。時間経過により、模擬金属デブリの表面が溶融し、スタブチューブ（インコネル合金）側へ徐々に拡散する様子が確認された（図 3.2.3-16）。内張溶接（ステンレス鋼）側への拡散はスタブチューブ側に比べて限定的であり、この傾向は本研究で実施した MEISAN 試験結果と同様の挙動である。溶融金属デブリによりインコネル材であるスタブチューブが、優先的に溶融し破損することが解析からも示唆される。

④ まとめ

本項目では、下部プレナムに金属リッチデブリが存在する際の構造物との反応、破損挙動および燃料ウランと反応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。金属デブリ-構造材の反応においては、金属デブリ組成によって反応温度域が異なるものの、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。また、反応速度は温度上昇に伴い指数関数的に増加し、本項目内にてアレニウスの式で近似的に示した。金属/酸化物デブリの反応では、1700 °C以下の低温域では反応が限定的であり、金属デブリによる圧力容器破損挙動への影響は小さいと考えられる。2000 °C以上の高温域になると U-Zr-O の反応により酸化物層が形成され、反応が進展すると考えられる。金属デブリによる圧力容器破損挙動においては、金属デブリ中の Zr 成分が反応性に大きく寄与すると考えられる。Zr リッチ金属デブリ存在下では、共晶反応により 1250 °Cの比較的低温で圧力容器破損が進行することに対し、ステンレス鋼リッチ金属デブリ存在下では温度上昇により構造材融点到達（1500 °C程度）で破損が進行すると考えられる。

参考文献

- [1] debrisWiki, <https://fdada-plus.info/wiki/>（参照：2024年4月5日）。
- [2] 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).
- [3] JAEA, 核燃料・原子力材料熱力学データベース, <https://thermodb.jaea.go.jp/index.html>（参照：2024年4月5日）。
- [4] T. Yamashita, et al., BWR Lower Head Penetration Failure Test Focusing on Eutectic Melting, Ann. Nucl. Eng., Vol.173, 2022, 109129.

表 3.2.3-1 構造材の反応量

温度：℃	時間：分	反応量：μm	
		インコネル	ステンレス鋼
1200	60	反応せず	反応せず
	120	反応せず	反応せず
1300	60	2445	711
	120	3857	1402
1400	60	5420*	1824
	120	5380*	2635

*インコネル板材の全体が反応、溶融

表 3.2.3-2 金属デブリ-ウラン酸化物反応試験条件

ウラン酸化物	金属デブリ	温度：℃	保持時間：分	昇温速度 ℃/min	冷却速度 ℃/min
(U, Zr)O ₂	SUS304-83 wt%Zr 合金	1223	120	20	30
		1423	120		
		1623	60		

表 3.2.3-3 1223 ℃ 120 分保持試料の EDX 分析結果

同定された相		組成：at%					
		O	Cr	Fe	Ni	Zr	U
金属デブリ部 バルク	Zr-Fe(Ni, Cr)-O	22-23	0.4-1	18-19	3	55-56	< 0.5
金属デブリ部 マイナー相	Zr-Fe-Cr	15-18	15-16	20-23	0.5-1	44-48	nd*
るつぼ側 反応層	α-Zr(O)	26-34	nd	nd	nd	67-74	nd
金属デブリ側 反応層	ZrO ₂	64-66	nd	nd	nd	34-36	nd

*nd : Not Detected (未検出)

表 3.2.3-4 1423 °C 120 分保持試料の EDX 分析結果

同定された相		組成 : at%					
		O	Cr	Fe	Ni	Zr	U
金属デブリ部 バルク	Zr-Fe(Cr, Ni)-O	21-23	0.5-1	16-19	3-4	55-59	< 0.5
金属デブリ部 マイナー相	Zr-Fe-Cr	18-22	13	22-26	1	39-47	nd
るつぼ側 反応層	α -Zr(O)	23-37	nd	nd	nd	63-77	nd
金属デブリ側 反応層	ZrO ₂	64	nd	nd	nd	36	nd

表 3.2.3-5 1623 °C 60 分保持試料の EDX 分析結果

同定された相		組成 : at%					
		O	Cr	Fe	Ni	Zr	U
金属デブリ部 バルク	Zr-Fe(Cr, Ni)-U-O	20-29	1-2	14-22	1-3	45-54	1-2
金属デブリ部 マイナー相	Zr-Fe-Cr	14-22	11-16	22-32	nd	36-44	< 0.5
反応層 主相	ZrO ₂	61-68	nd	nd	nd	32-39	nd
反応層 析出相	α -Zr(O)	34-39	nd	nd	nd	62-66	nd
反応層 マイナー相	(U, Zr)O ₂	63-69	nd	0-2	nd	12-20	14-20
反応層 マイナー相	Zr-Fe(Cr, Ni)-U-O	21-29	1-4	14-18	2-3	45-60	2-5

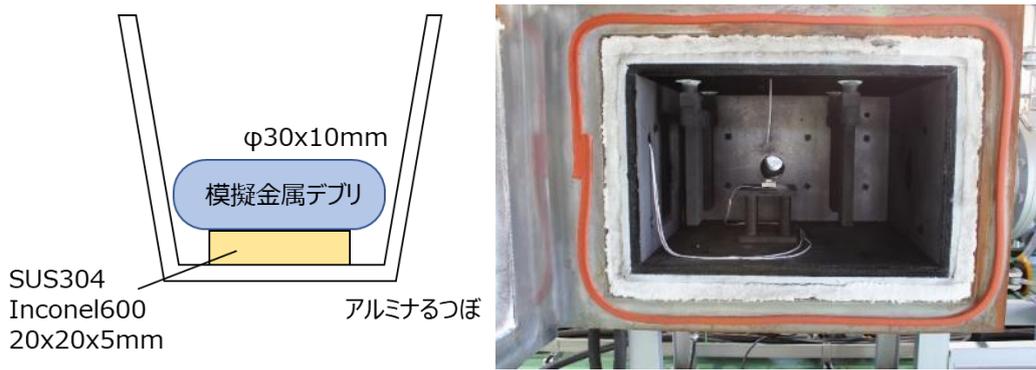


図 3. 2. 3-1 試験体系 (左) 試験体模式図 (右) MEISAN 試験装置

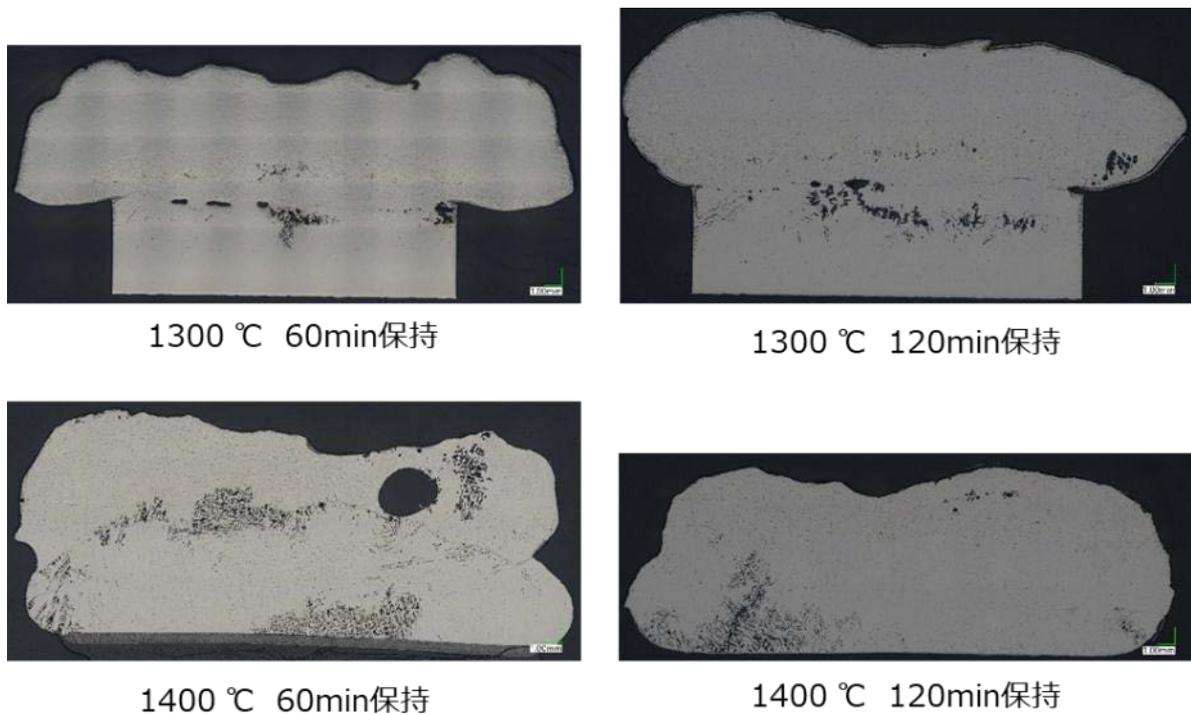
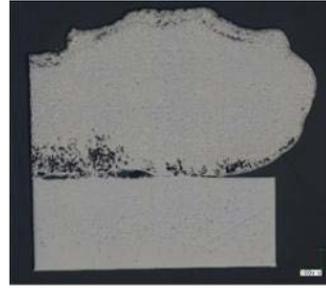


図 3. 2. 3-2 インコネル試験体断面の光学顕微鏡観察結果



1300 °C 60min保持



1300 °C 120min保持



1400 °C 60min保持



1400 °C 120min保持

図 3. 2. 3-3 ステンレス鋼試験体断面の光学顕微鏡観察結果

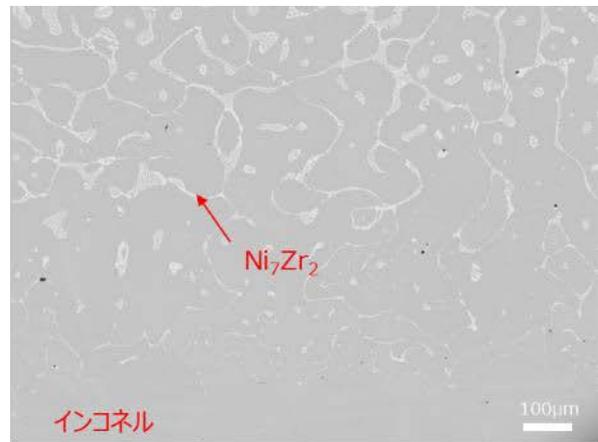
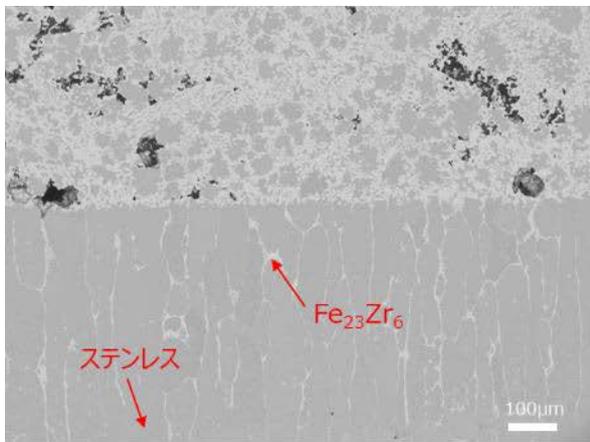


図 3. 2. 3-4 1300 °C 60 分保持試験の模擬金属デブリ-構造材反応界面の SEM/EDX 分析結果
(左) ステンレス鋼 (右) インコネル

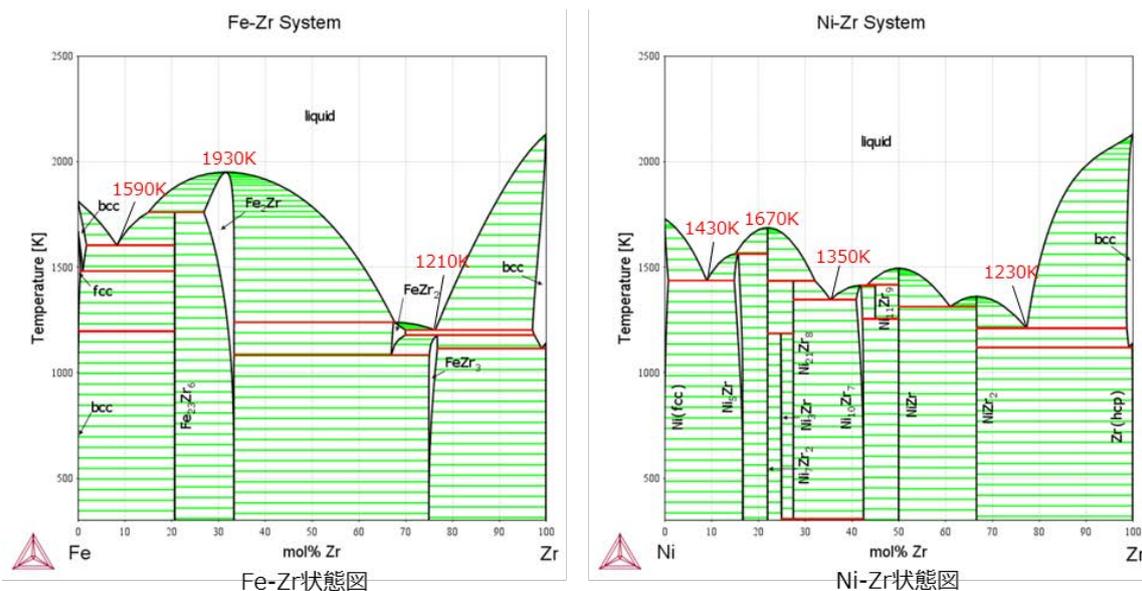


図 3. 2. 3-5 状態図 (左) Fe-Zr (右) Ni-Zr

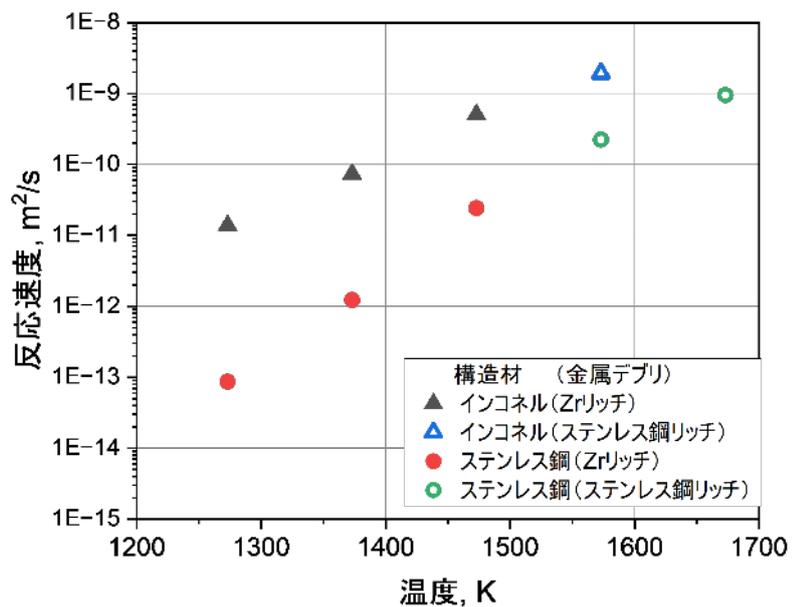


図 3. 2. 3-6 各組成の金属デブリ-構造材の反応速度

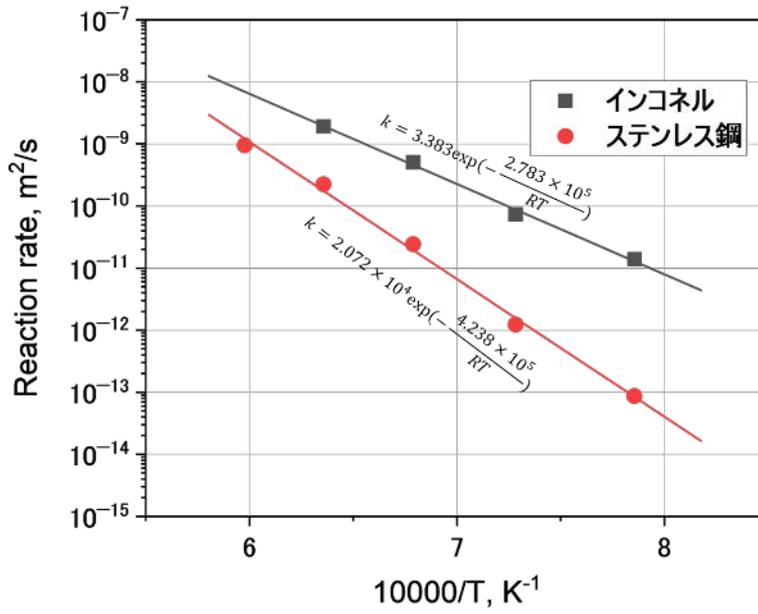


図 3. 2. 3-7 金属デブリ-構造材の反応速度

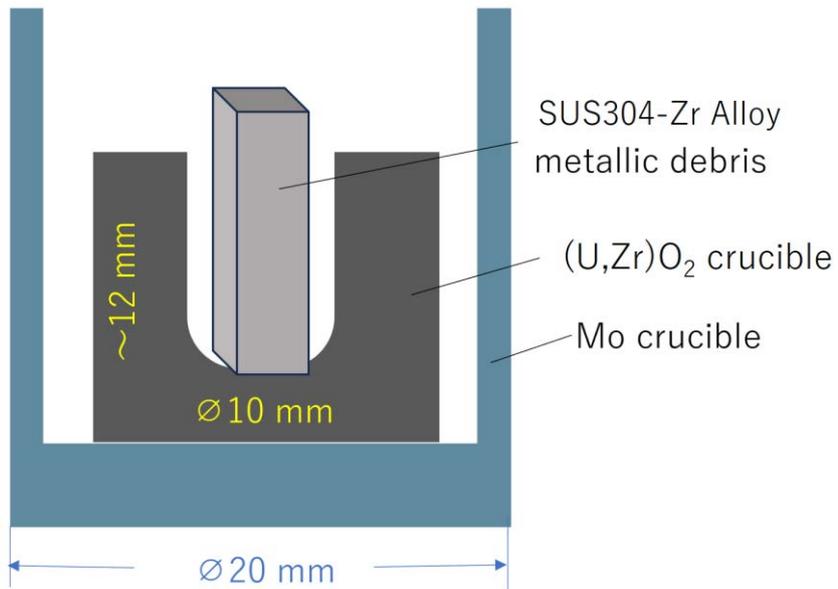


図 3. 2. 3-8 試験体系模式図

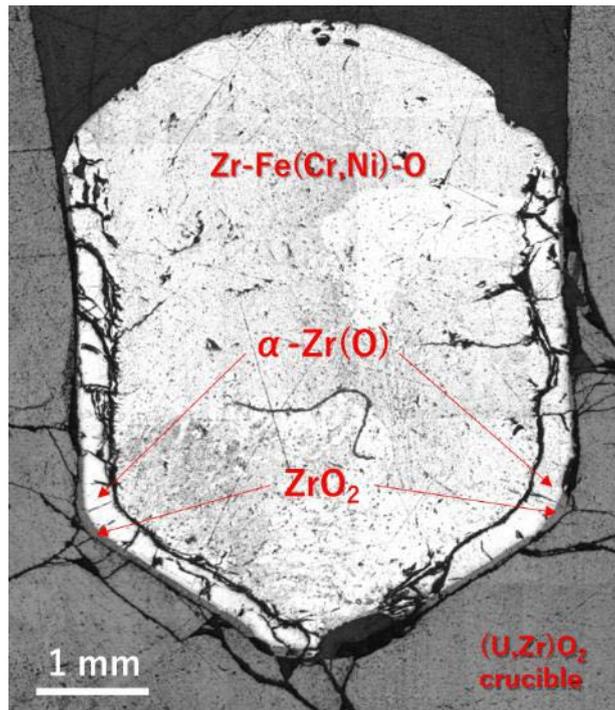


図 3. 2. 3-9 1223 °C 120 分保持試料の断面観察結果 (光学顕微鏡)

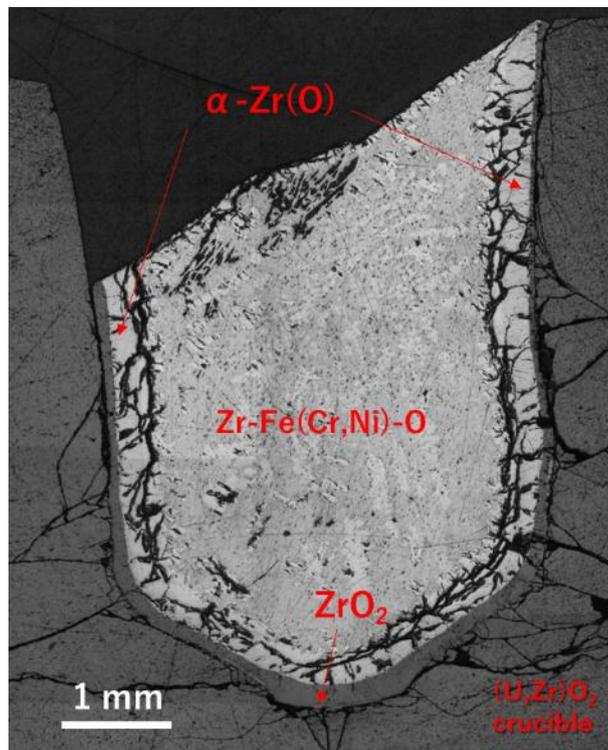
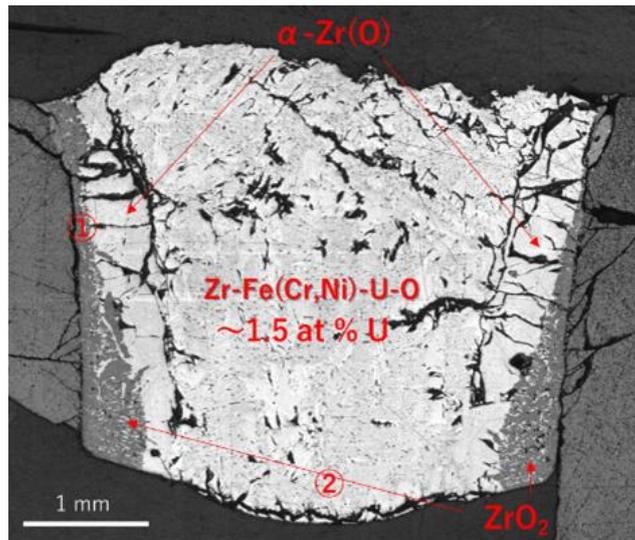
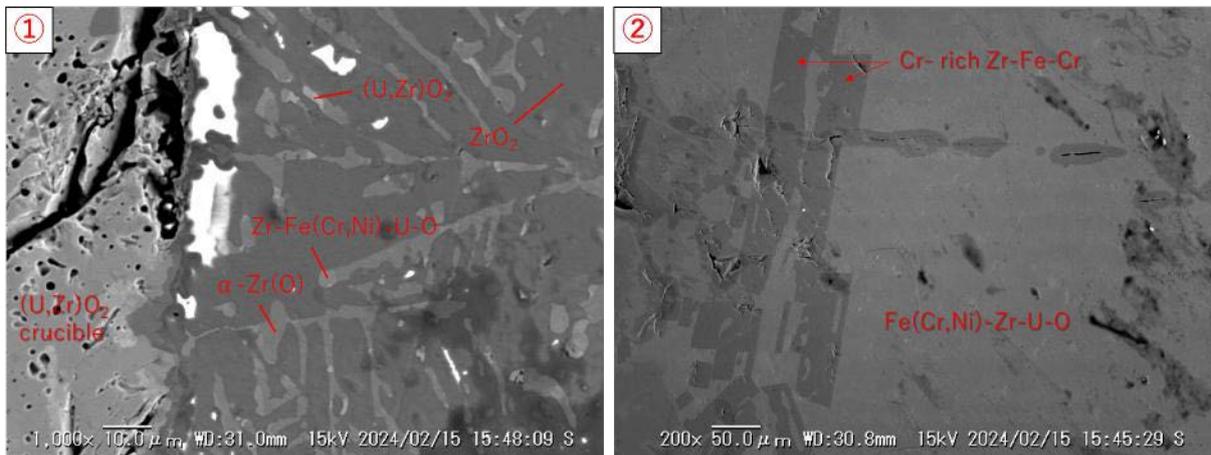


図 3. 2. 3-10 1423 °C 120 分保持試料の断面観察結果 (光学顕微鏡)



全体像（光学顕微鏡）



るつぼ界面の反応相（BSE 像）

金属デブリ部（BSE 像）

図 3. 2. 3-11 1623 °C 60 分保持の断面観察結果

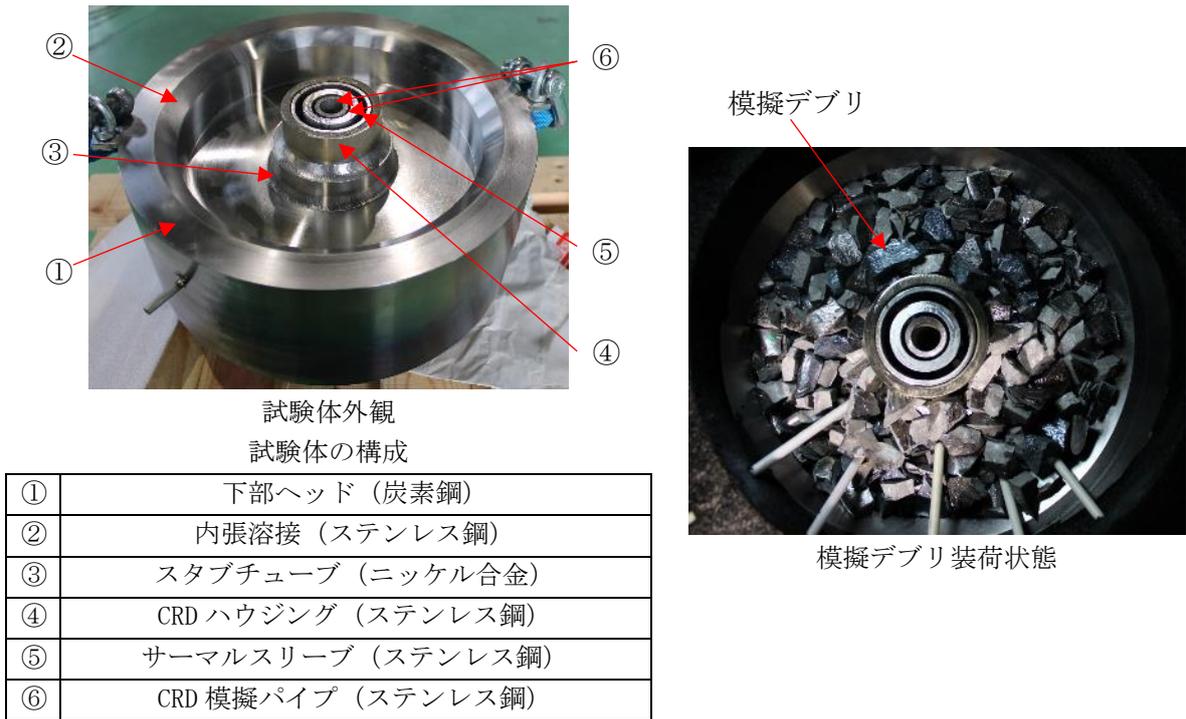


図 3.2.3-12 試験前の試験体外観

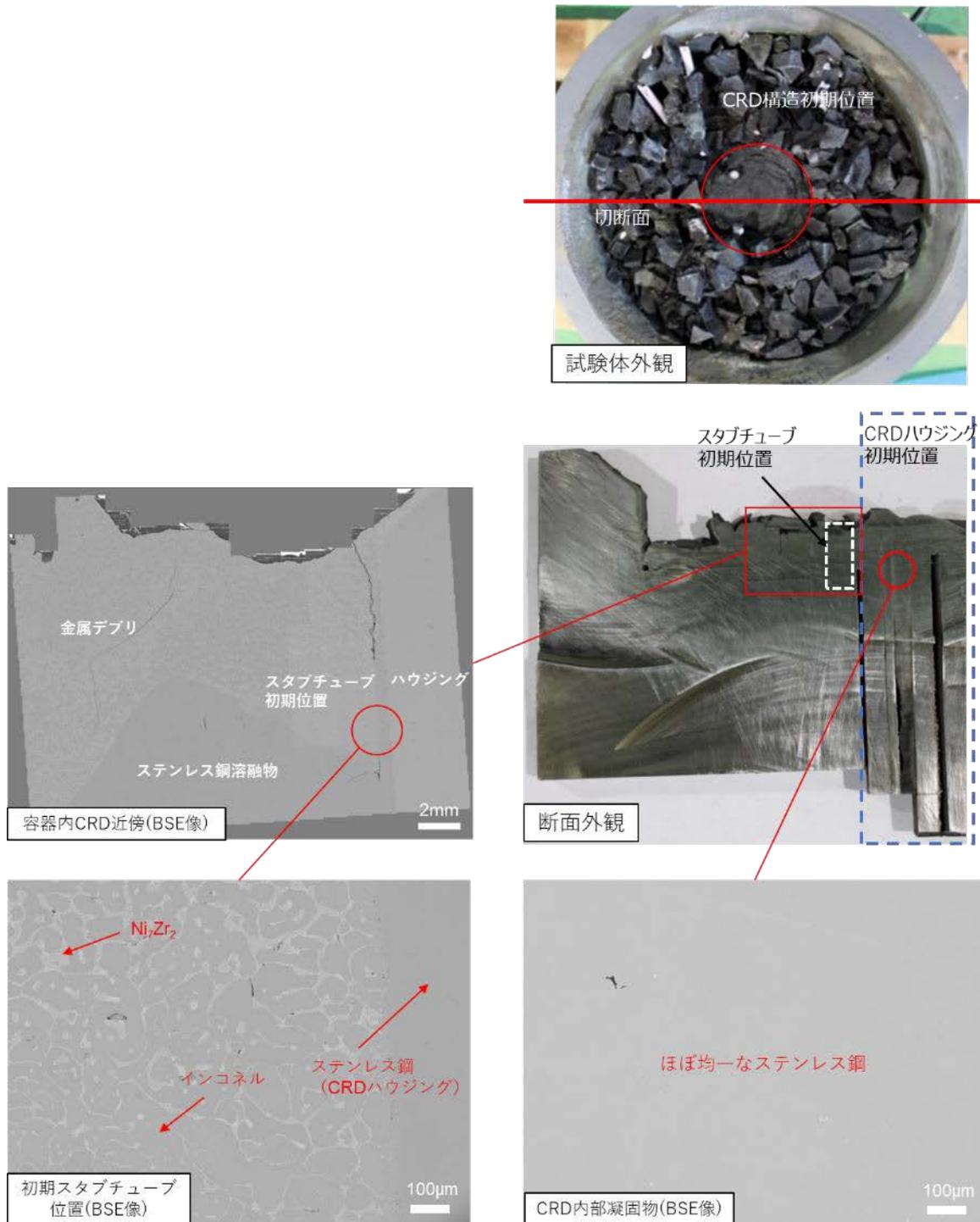


図 3. 2. 3-13 試験後試験体の断面観察結果

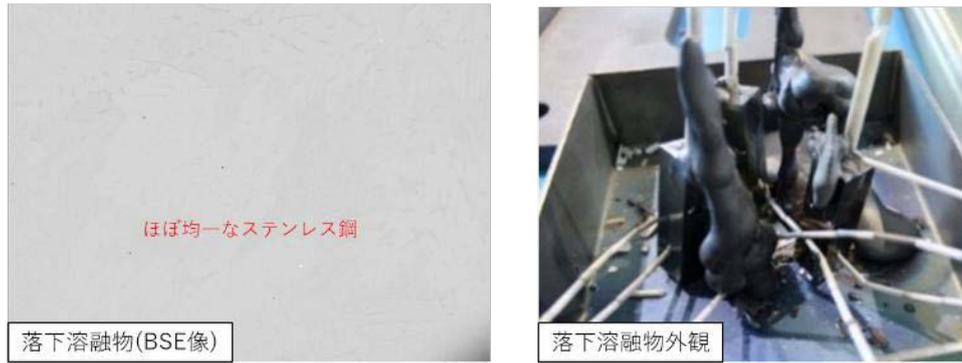


図 3.2.3-14 落下溶融物の観察結果

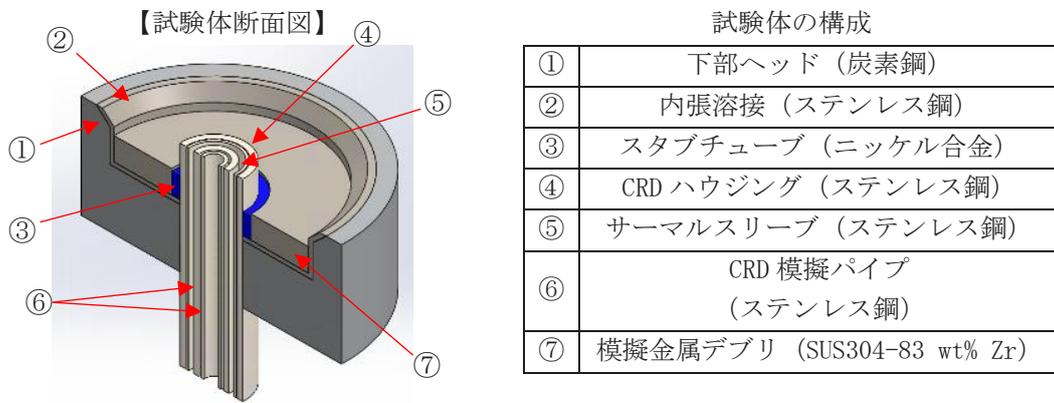


図 3.2.3-15 解析体系

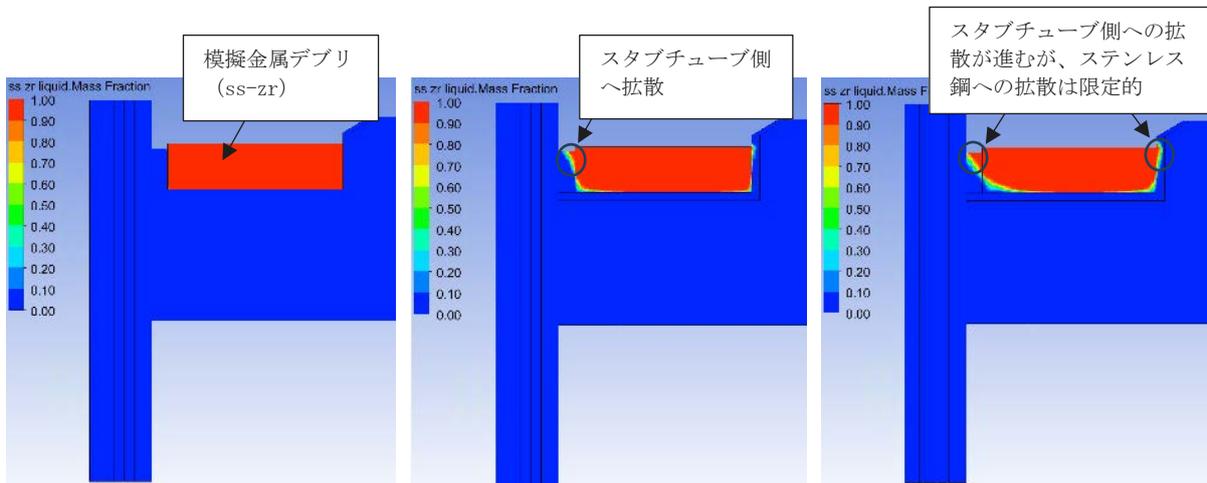


図 3.2.3-16 解析結果 (模擬金属デブリの分布)

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（再委託先：東京工業大学、東北大学、連携先：JAEA）

【令和3年度～令和5年度】

3.2.1項～3.2.3項の試験結果をもとにして、金属デブリ組成の違いによる金属デブリ形成および下部プレナム破損メカニズムを明らかにした。令和4年度までの概要および令和5年度実施内容および成果を以下に記述する。

【令和4年度までの概要】

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

令和4年度は、3.2.1項～3.2.3項で得られた試験結果をもとに、熔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、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。

【令和5年度実施内容および成果】

令和5年度は、3.2.1項～3.2.3項で拡充した試験結果をもとにして、金属デブリ形成メカニズムおよび下部プレナム破損メカニズムを解明した。

1F 2、3号機では、下部プレナムで熔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年度に1Fプラントデータおよびシビアアクシデント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。代表として2号機事故シナリオ^[1]を図3.2.4-1に示す。炉心が熔融し、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熔融物の再熔融過程初期において、金属成分が熔融しプールを形成する可能性がある。この熔融金属により圧力容器の初期破損が発生し、熔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。令和5年度は、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実施した模擬試験を総合して、金属デブリの形成および金属デブリによる破損挙動について評価した。

図3.2.4-2に、事故進展に従った炉心支持板付近での金属デブリ形成から圧力容器下部に移行した金属デブリによる圧力容器下部構造の損傷挙動についてまとめた結果を示す。また、図3.2.4-3に、温度上昇に従った挙動についてまとめた結果を示す。なお、金属デブリとしては、ステンレス鋼-Zr系混合物であるZrリッチ金属デブリ（Zrリッチ側の共晶組成）とFe（ステンレス鋼）リッチ金属デブリ（ステンレス鋼側の共晶組成）を選んだ。これはZrは被覆管などに、また、ステンレス鋼は制御棒ブレードなどに使用されており、本研究ではこれらの混合物を金属デブリと想定するのが、より実際に近い単純系を考える上で適切であると考えた。さらに、Fe（ステンレス鋼）リッチ金属デブリにおいては、それが熔融した後に固体のZr（+酸化膜）やB₄Cとの接触を仮定した反応挙動結果を含めて、推測される金属デブリの変質の状況について評価した。

金属デブリ形成から圧力容器下部に移行した金属デブリによる圧力容器下部構造の損傷挙動は、以下に示す金属デブリの組成に依存した2種のルートで金属デブリ形成から圧力容器下部構造の損傷が進展していくことを示した。なお、本研究で設定した2種の金属デブリ組成によ

らず、高温域（2000℃を超える温度）ではU-Zr-O液相が出現する傾向があること、低温域（～1600℃）では熔融金属プールが出現する傾向があることを示した。また、U-Zr-O系の酸化物と金属デブリ間の低温域（～1600℃）での反応については限定的であり、金属デブリの変質はわずかであった。

・Zrリッチ金属デブリの場合

炉心支持板：構造物と反応して、ステンレス鋼-Zr 溶融物として下部に移行

下部プレナム：

高温域（2000℃を超える温度）の場合：U-Zr-O液相の形成、金属/酸化物層に成層化

低温域（～1600℃）の場合：酸化物デブリとの接触による金属デブリの変質は限定的

圧力容器：低温域（1100℃～1250℃）で反応が進行

・Fe（ステンレス鋼）リッチ金属デブリの場合

炉心支持板：金属デブリの変質は構造材との接触界面のみで限定的

下部プレナム：

低温域（～1600℃）の場合：金属デブリの変質は限定的

溶融ステンレス鋼-Zr(+表面酸化膜)/B₄Cとの反応はわずか

圧力容器：ステンレス鋼融点以上（1500℃～）で制御棒駆動機構部材が溶融

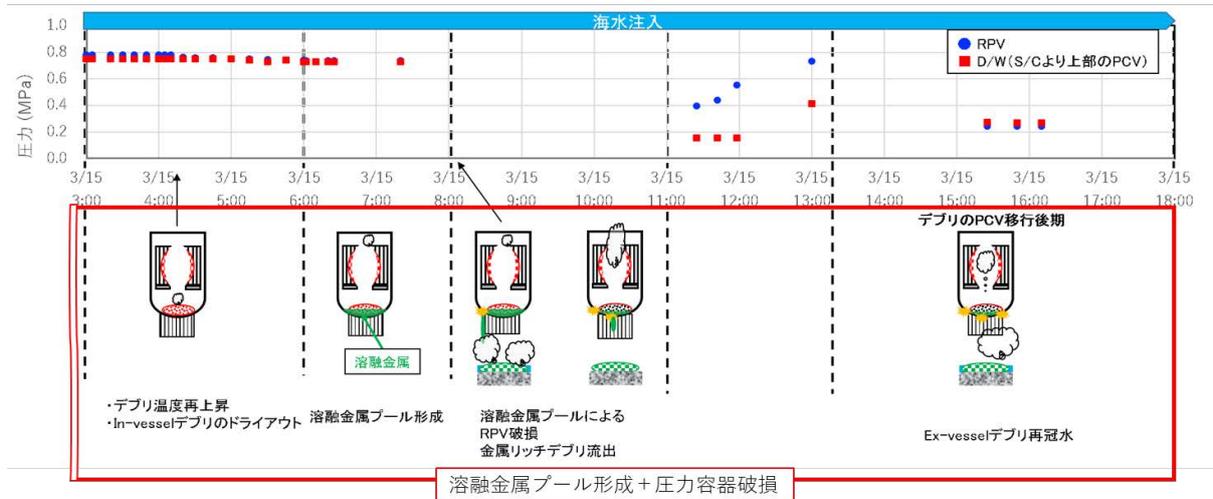
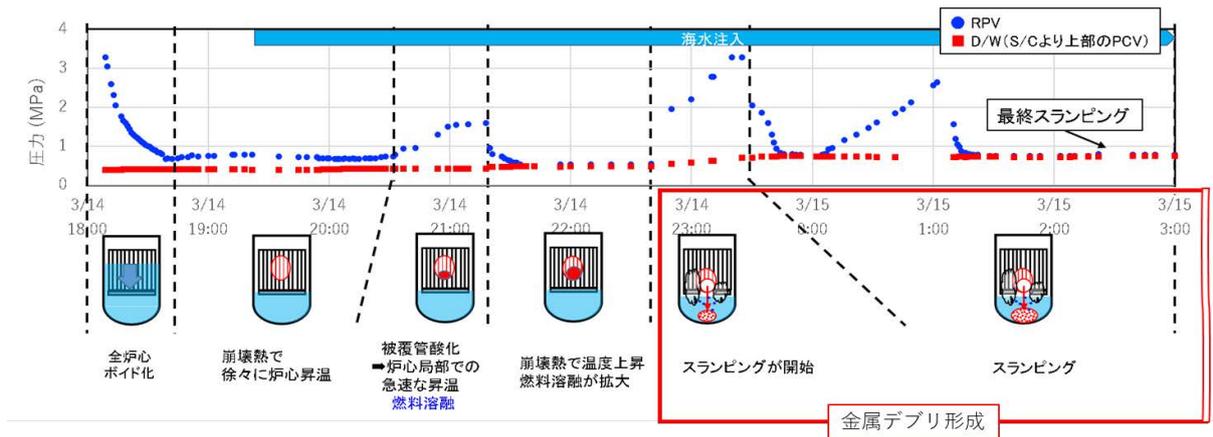


図 3.2.4-1 2号機事故シナリオ（RPV破損まで）^[1]

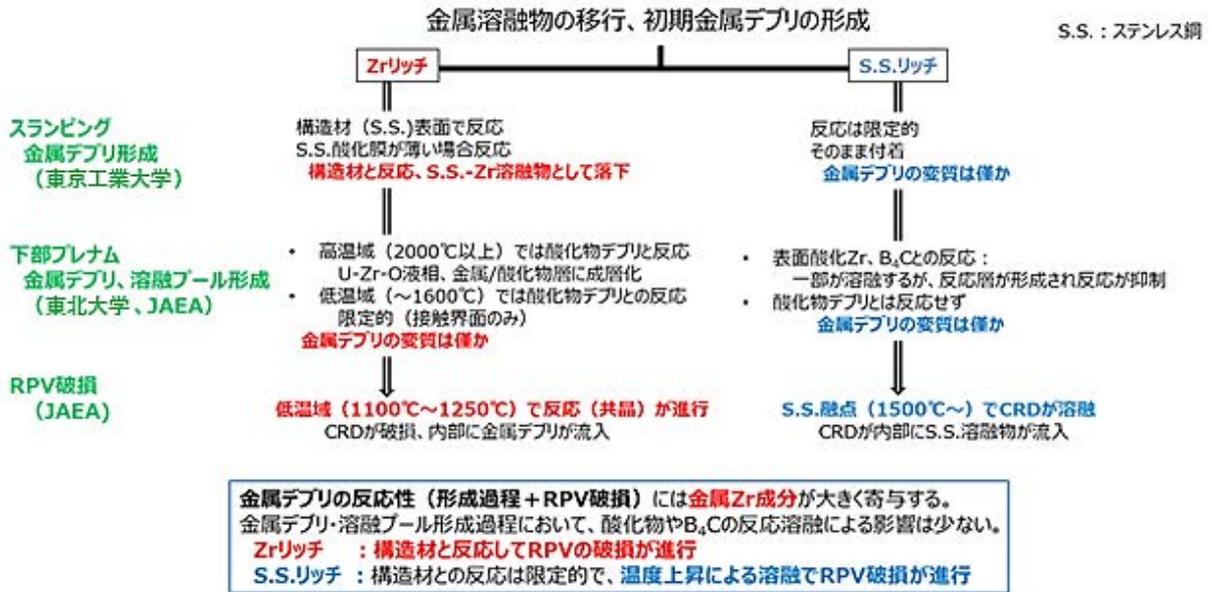


図 3. 2. 4-2 事象進展に従った金属デブリ形成、圧力容器下部構造の破損挙動

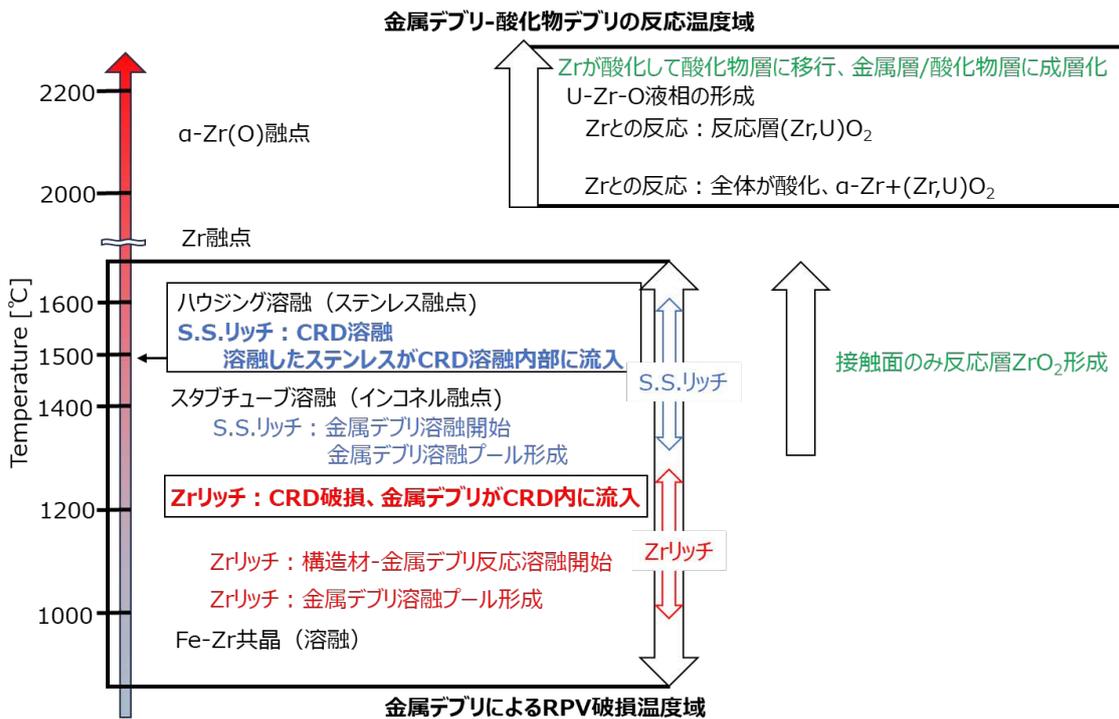


図 3. 2. 4-3 温度上昇に従った金属デブリ形成、圧力容器下部構造の破損挙動

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4年度成果報告書, 2023.

3.3 デブリ特性の詳細把握に向けた試験技術の整備【令和3年度～令和5年度】

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 (再委託先：東京工業大学)【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

令和3年度は、CCIMによる半熔融酸化物デブリの模擬物質作製および評価方法を確立した。

令和4年度は、令和3年度に構築したCCIM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およ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熔融状態からCCIM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、半熔融状態の模擬デブリ作製に成功した。

【令和5年度実施内容および成果】

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（二回目）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および酸化物の偏析状態を評価した。令和4年度に実施した1回目試験の結果と併せて得られた模擬物質の金属組織特性について整理し、3号機燃料デブリ化学状態として考えられる性状について知見を取りまとめ、金属デブリ熔融凝固試験の傾向と比較し、項目(2)①の機構論的解析に反映した。実炉では、金属デブリが最初に熔融してから、酸化物デブリが熔融し始め半熔融となり反応するので、なるべく熔融部の多い熔融状態を保ちながら（Zr投入量を減じるなど）ステンレス鋼を浸漬する、などの実験条件を改良しての実験を行うこととした。さらに、ステンレス鋼の内部に B_4C を装荷した状態の棒を作製して浸漬実験を行い、より実際の条件に近い元素系での実験を行うこととした。

CVR（チェコ共和国 Research Centre Rez）のCCIMを用いた溶解実験を行った。3000℃まで測定可能な2色高温計を上部に設置して測温しながら、IRカメラにより加熱、熔融の様子をモニターすることで溶解プロセスの可視化を図り、スムーズなオペレーションを可能とした。

実験手順としては、所定の組成に秤量した材料を完全熔融した後、ジルコニウムを投入し、半熔融状態にした後、 B_4C を装荷したステンレス棒を浸漬することで、3号機下部プレナム条件を模して各材料間の反応、物質移動の挙動について明らかにすることを目的とした。

UO_2 と ZrO_2 を65 mass%-25 mass%で混合してCCIM炉内に、 ZrO_2 のライニングを水冷銅るつぼ壁および底部に施した状態で装荷した。残りの10 mass%は金属ジルコニウムであり、上記酸化物が溶解した後に上部から段階的に投入した。

そして、その後に B_4C を装荷したステンレス棒を半熔融状態の試料に浸漬する。温度は最高2500℃以上の高温に達しており、その後も安定した加熱が可能であった。溶解電力・インダクターへの損失電力・電圧の状況から、効率的に溶解に電力が投じられており、良いマッチングが取れていたことが分かった。

実験前後のマスバランスを取ると、全体として約5 mass%の重量損失が見られた。今回試料の上部・中部・下部から2箇所ずつ調査することとし、また、上部からさらに飛散したエアロゾル粒子についても調査を行った。

試料の底部より得られた、SEM観察写真像、組成分析結果およびEDS-Mapping結果より、底部では広い範囲にわたってほぼ均一な UO_2 - ZrO_2 の組成であり、よく熔融していたことが分かった。ま

た、部分的にステンレス鋼のもと組成が保たれていたままの金属部分が存在し、令和4年度と異なり、底部までよくステンレス鋼由来の金属部が到達していたことが明らかとなった。

試料の中部より得られた、SEM観察写真像、組成分析結果およびEDS-Mapping結果により、中部では、 UO_2 - ZrO_2 系が大部分を占めるも、ステンレス組成の異なる金属相が存在していることが分かった。また、底部と異なり、Bを含む酸化物相の存在が見られた。底部より反応がやや進み、ステンレス鋼の装荷されていたBが酸化物相に混じったり、金属相の組成が熔融を経て再構成されるといった、現象の複雑化が見られることが分かった。

試料の上部より得られた、SEM観察写真像、組成分析結果およびEDS-Mapping結果より、上部では UO_2 - ZrO_2 系については分離気味なところが多く、冷却過程で共晶した可能性が高いことが分かった。また、Bが存在する箇所と存在しない箇所に分けられ、存在する場合は金属相中にFe、Ni、Crなどととも合金化していることが分かった。すなわち、 B_4C を装荷したステンレス鋼は上部での溶解当初は金属相に留まるが、その後溶解・混合が進むにつれて、酸化物層にも溶解し始めるという挙動を取ることが推測された。

エアロゾル試料のSEM観察写真像、組成分析結果およびEDS-Mapping結果より、エアロゾルは UO_2 系と UO_2 - ZrO_2 系およびU-B-O系が存在しており、 UO_2 - ZrO_2 系は分離性のものも見られることが分かった。すなわち、もとの組成の UO_2 - ZrO_2 系が蒸発して凝固した後分離するケースと、 UO_2 として蒸発するケースがあることが推察される。また、Bは酸化物となってからも蒸発し、エアロゾルとして凝華することが予測された。

このように令和5年度は、なるべく熔融部の多い熔融状態を保ちながら、 B_4C を装荷したステンレス鋼を浸漬する実験条件を行い、性状分析を実施した結果、以下のことを明らかにすることができた。

1. 今回は、令和4年度と比してステンレス鋼の成分が底部まで届いており、全体としてよく混合できていることが分かった。
2. UO_2 と ZrO_2 はよく混合されている部分と分離性のある部分があり、後者は初期から混ざらなかった場合と、共晶分離した場合とがある可能性が考えられる。
3. Bは主に金属相に存在するが、酸化物相に存在する場合があり、両相に分配されている可能性が考えられる。
4. エアロゾルは UO_2 系とU-B-O系があり、Bも酸化物として蒸気化し、凝華する可能性があることが分かった。

これらを3号機事故進展シナリオに反映させると、ステンレス鋼はまずBと反応するが、酸化物相は基本的には混じり合わず、一方Bは金属相、酸化物相、気相に分配される可能性があり、再臨界抑制には有利である可能性が考えられた。また、U-O系は蒸発しやすく、大規模破損が起きた後も上空にエアロゾル粒子を供給できることが示唆された。

3.3.2 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～令和5年度】

【令和4年度までの概要】

令和3年度は、数g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、5g程度のUO₂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取りまとめた。その結果、CCIM炉は100g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1g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mmg、レーザー出力：100W）をもとに5gの試料を溶融できるよう大型化した場合、8000Wのレーザー出力が必要であることなどが見積もられた。

【令和5年度実施内容および成果】

令和5年度は、令和4年度にガス浮遊法により作製した模擬デブリを分析し、ガス浮遊法によるウラン含有模擬デブリの溶融条件を見出すとともに、可能な最大試料量とその際の炉の仕様についても検討した。得られた検討結果等をもとにCCIM炉法およびガス浮遊法を用いたそれぞれの炉の仕様と最適なウラン溶融試験方法について取りまとめた。これまでの議論からUO₂とZrおよびSUSの融点・沸点を考慮し、少量の金属を含む酸化物の短時間の溶融試験をガス浮遊炉で、溶融凝固した大量の酸化物デブリと金属デブリの部分溶融試験をCCIM炉で行うことが提案された。

令和5年度の浮遊溶解法では、6.70mgのHfO₂-ZrO₂-SUS316Lの試料をAr-O₂中で完全溶融することに成功したが、同じ組成系でも完全溶融できなかった試料もあり、これが何に起因するのかが不明であった。また、今後のデブリ評価のためには、数mgオーダーの溶解量では不足で、大型化が課題であった。

そこで、本試験では、令和4年度の浮遊溶解試験を行った試料の中で完全溶融したものとしなかったものの微細組織観察を行い、それらの試料内で生じている現象を明確化するとともに、大型化に対しては、浮遊溶解法とアーク溶解法でもトライした。

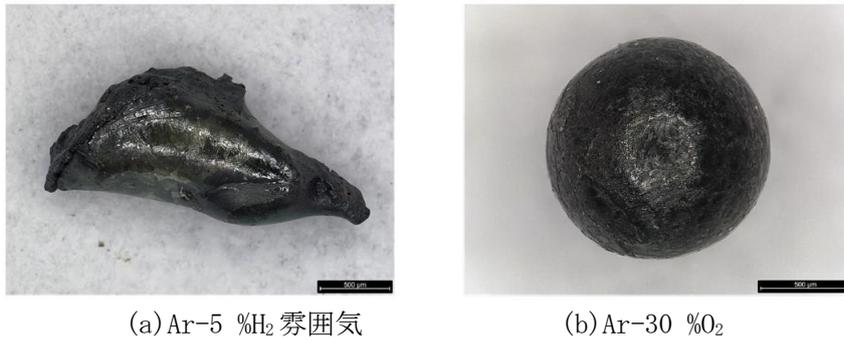
(1) ガス浮遊溶解試料の分析

令和4年度のほぼ同じ組成で、溶融および非溶融となった試験条件を表3.3.2-1に示す。

表 3.3.2-1 令和4年度のガス浮遊溶解試験結果

組成・重量	加熱条件	結果
HfO ₂ :ZrO ₂ :SUS316L=1:1:1・5.43 mg	Ar-5 %H ₂	部分溶融・球状化せず
HfO ₂ :ZrO ₂ :SUS316L=1:1:1・6.70 mg	Ar-30 %O ₂	溶融・球状化

試験後の試料外観を図3.3.2-1（マーカーは500μm）に示すが、特にAr-5%H₂雰囲気で行った試験した試料は部分溶融で球状化していないことが分かる。この2つの試料について、クロスセクションポリッシング（CP）により切断し、SEM/EDSによる分析を行った。



(a) Ar-5 %H₂ 雰囲気 (b) Ar-30 %O₂
 図 3. 3. 2-1 令和 4 年度実施したガス浮遊溶解試験後の試料

全溶解した試料の切断した SEM 写真および EDS 分析結果を図 3. 3. 2-2 に示す。全ての元素がほぼ一様に分布しており、また中央部に大きな「巣」があることが分かる。

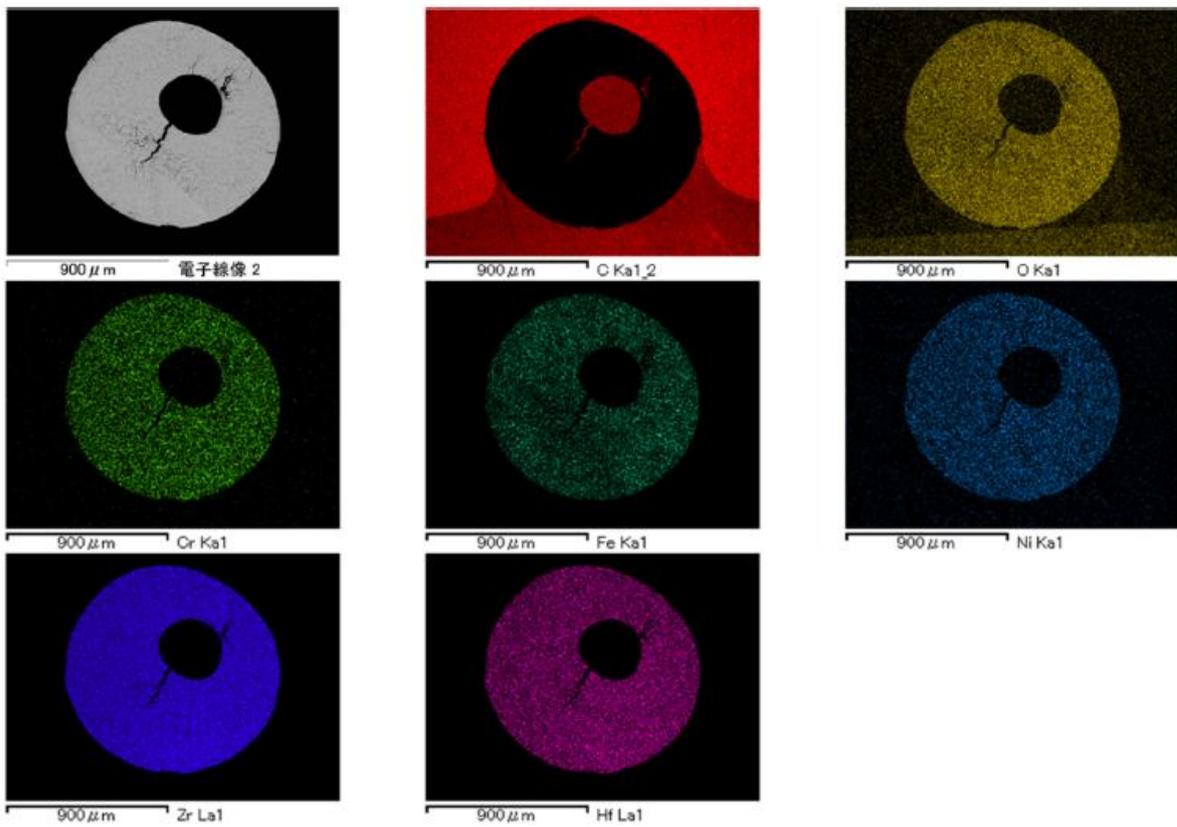


図 3. 3. 2-2 完全溶解した試料の SEM/EDS 分析結果

一方、部分溶解した試料の SEM/EDS 分析結果を図 3. 3. 2-3 に示す。完全溶解しなかった試料では、試料の右上部は密に詰まった領域であるのに対し、左下部はポーラスな状態である。SUS 由来の鉄、Cr、Ni が部分的に濃化していることが分かる。完全溶解した試料と部分溶解した試料の加熱条件の差は、前者が酸素を 30 %含む Ar、後者が水素を 5 %含む Ar である。SUS に含まれる鉄、Cr、Ni は金属として添加されたので、水素混合雰囲気加熱し部分溶解した試料で濃化している鉄、Cr、Ni は金属として存在している可能性が考えられる。

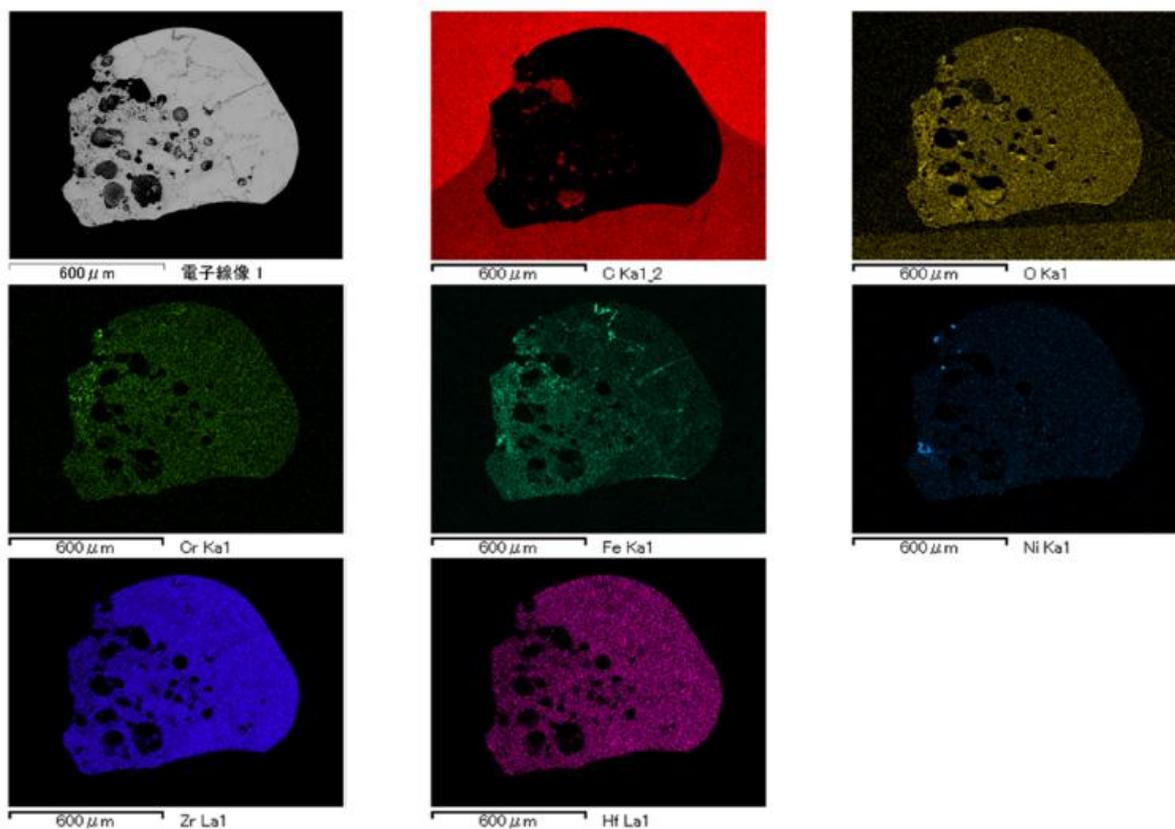


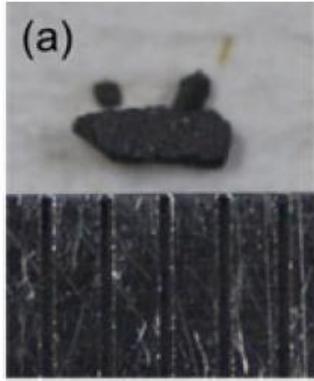
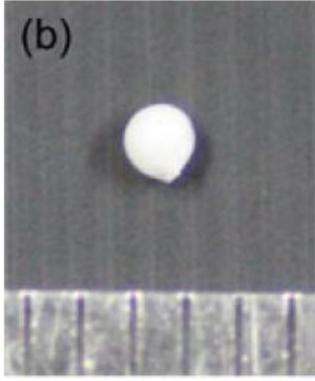
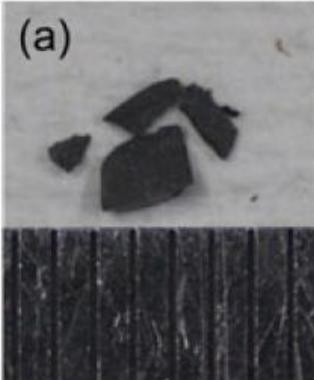
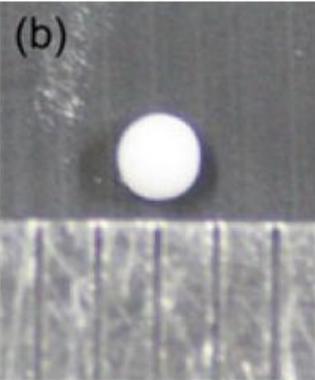
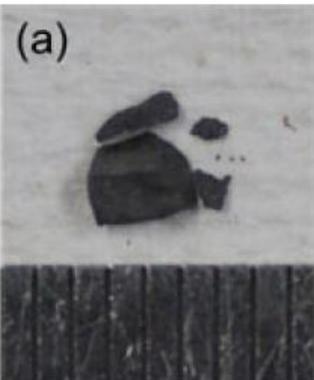
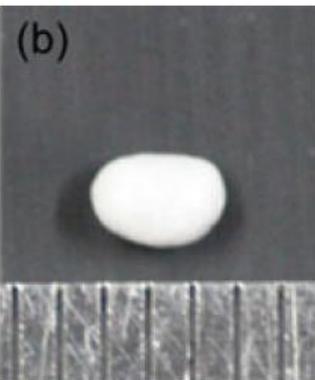
図 3. 3. 2-3 部分溶融した試料の SEM/EDS 分析結果

上記試料は数十 mg で XRD は行えず濃化した鉄、Cr、Ni の化学状態は確認できていない。この室温で見ついている物質（金属、酸化物）の融点はいずれも加熱温度（3000 °C と推定）を下回っているため、実際の加熱状態では、物理的、化学的に複雑な反応が生じていると考えられる。

(2) ガス浮遊炉の大型化

大阪大学所有の装置でどこまで試料量を増やせるかを確認し、それにより将来 1 g 程度の UO_2 を溶融させるにはどのような装置が必要か検証してみた。実験に供した試料の組成は HfO_2 : $ZrO_2=1:1$ （モル比）であり、試料重量としては 10.13、20.35 および 50.18 mg であった。加熱条件は Ar-30 % O_2 である。加熱後の試料外観を表 3. 3. 2-2 にまとめた。20 mg の試料まで完全に溶融し球状化しているが、50 mg の試料は球状化せず部分溶融したと思われる。この 50 mg の試料の SEM 写真を図 3. 3. 2-4 に示す。完全溶融せず球状化しなかった試料ではあるが、内部は均一な組織で溶融・凝固に伴う「巣」や凝固時の収縮に伴うクラックも見られる。したがって、どの部分も一度は溶融することにより均一化し、凝固に伴い「巣」も発生しているが、全体が同時に溶融することがなかったため、球状化しなかったと考えられる。

表 3. 3. 2-2 ガス浮遊溶解法の大型化検証のための試験結果

供試試料重量	溶解前	溶解後	結果
10.13 mg			完全溶解
20.35 mg			完全溶解
50.18 mg			部分溶解

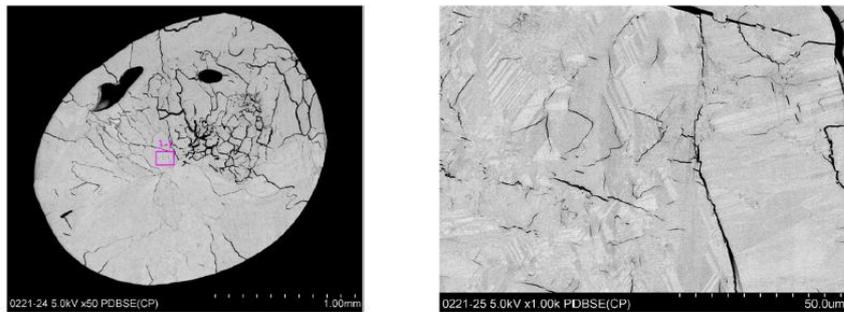


図 3. 3. 2-4 部分溶解した試料 (50 mg) の SEM 写真

以上のように、ガス浮遊溶解法に関しては、比較的容易に入手可能な大型レーザー装置（レーザーパワー8000 W）を用いた場合、完全溶解した5 g程度の試料の作成が可能と考えられる。令和4年度の成果として、CCIM炉を用いた場合、小型化により数百gの試料を用いて、部分溶解であり、かつ不均一な試料の作製が可能と見積もられた。この場合、「るつぼ」の中から数十gの試料を取得することが可能であるが、組成は試料ごとに分析が必要であり、所定の組成になるかどうかは不明である。このように、大型化されたガス浮遊炉と小型化されたCCIM炉をうまく使い分けることにより、燃料デブリの実験的研究は可能と思われる。

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

【令和3年度～令和5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4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5年3月2日に開催された第2回1F事故進展基盤研究に関わる分科会および令和4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踏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。

【令和5年度実施内容および成果】

令和5年度は、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い、事故進展シナリオの高度化に反映し、得られた結果は、燃料デブリ基盤データベース^[1]に格納可能なデータとして整備し、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した^[2]。

3.5 研究推進【令和3年度～令和5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。

令和5年7月5日に研究実施者と第1回の研究推進委員会を開催し、令和4年度の成果、令和5年度の計画および最終的な成果物について議論した。また、令和5年12月21日に第2回の研究推進委員会を開催し、これまでの研究進捗について議論した。令和6年3月8日第3回の研究推進委員会を開催し、燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。さらに、令和6年3月25日に第4回の研究推進委員会を開催し、最終の成果およびそこから導き出された燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。

参考文献

- [1] debrisWiki, <https://fdada-plus.info/wiki/>（参照：2025年3月25日）。
- [2] 廃炉環境国際共同研究センター，福井大学，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，JAEA-Review 2024-014，2024，112p.
DOI: 10.11484/jaea-review-2024-014

4. 結言（各章のまとめ）

4.1 酸化物デブリ化学状態の逆解析

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

ウラン含有試料を用いて様々な条件でエアロゾル粒子を作製し、捕集したエアロゾル粒子を分析した。これにより、実際にこれまで見つかった粒子の特徴を再現するような粒子生成条件を明らかにした。Bi、Fe、 $(UO_2)_{(1-x)/3}Zr$ ($X = 0.57$)、 UO_2 等について、ガス浮遊溶融試験を実施した。エアロゾルが発生したものについては、エアロゾルを捕集して分析した。

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）

試料を3000℃以上の温度に加熱し、模擬(U, Fe) O_2 模擬粒子試料の作製を行うとともに、試料徐冷による凝固部位の性状の変化を観察し、温度履歴による試料性状の影響について評価した。令和4年度に行った試料の検証に引き続き、模擬デブリ合成を試み、物性を測定した。得られた結果の比較により、この2種類のウラン含有デブリの微細組織評価から組織形成モデル推定によるデブリ形成条件を解明した。真空中と還元雰囲気での生成粒子の大きさに差が見られるとともに凝固部位の性状においても差が見られ、徐冷試料では緻密で層分離した部位も観察された。Zr含有量の異なる2種類のウラン酸化物固溶体とZr酸化物など生成が見られたが、鉄の酸化物は生成せず、凝固パス図とは部分的に一致した。さらに、酸素濃度が低い条件では酸素を含む金属Zrが生成し、 ZrO_2 が還元されることも示唆された。

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 (福井大学、再委託先：大阪大学)

4.1.1および4.1.2のこれまでの成果を取りまとめ、酸化物デブリの形成過程のメカニズムを解明した。令和5年8月21日、令和6年3月8日、25日に酸化物燃料デブリの形成のために必要な温度、雰囲気等について議論し、燃料デブリ形成条件と実デブリの分析から得られるデブリ形成条件についてまとめた。

4.2 金属デブリの混合・溶融・凝固状態の評価

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

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、低濃度ジルコニウム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。試料の金属組織観察・金属間化合物およ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。令和3～4年度に実施した試験結果と併せてデータを整理し、3.2.4項の形成メカニズム評価の基礎データとした。

平衡論と数値流体を組み合わせた解析的評価法を整備し、実験しきれない条件に対する推定を行うことを可能とした。実施した実験結果に基づいて非等温反応によるステンレス損傷量の評価法を実施した結果、ステンレス鋼温度が1000℃程度の場合は溶融金属のZr濃度に関わらず薄い反応相を形成し、ステンレス鋼損傷が抑制されることが分かった。

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およ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および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取得整備した。圧力容器下部を想定した条件でのステンレス鋼融体中での固相生成挙動、B、CおよびZr濃度の変化を評価した。その結果、 B_4C およびジルカロイのステンレス鋼融体への溶出速度を定量化した。

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を拡充し、大型試験体系で解析可能な簡素化反応速度式を提案した。熔融金属物質による圧力容器下部破損挙動の大型試験における試験体を分析するとともに、提案する反応速度式による大型試験の実験解析と併せて、熔融金属と圧力容器構造材との反応による圧力容器下部破損挙動、熔融物流出挙動を評価した。また、圧力容器下部におけるデブリ再熔融過程でのウラン化合物とステンレス鋼等の金属物質の反応試験データを拡充し、金属デブリ層へのウラン移行挙動を評価した。熔融金属物質が高 Zr 濃度の場合と低 Zr 濃度の場合における、各種圧力容器部材や溶接部材であるステンレス鋼や Ni 合金との簡素化反応速度式を提案した。その式を適用した実験解析により圧力容器下部破損状況の評価し、その妥当性を確認した。また、ウラン化合物と金属物質との反応状況の温度依存性を評価し、約 2000 °Cを超える温度域でその反応が顕著になることを確認した。

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

3.2.1 項～3.2.3 項の結果をもとにして、金属デブリ形成メカニズムおよび下部プレナム破損メカニズムを解明した。金属デブリ形成においては、熔融した金属物質と固体の炉内構造材などとの反応は限定的であることを明らかにした。ただし、高 Zr 濃度の熔融金属物質との反応は低 Zr 濃度の場合と比して速い傾向があった。圧力容器下部における破損においては、高 Zr 濃度の金属物質の場合には Ni 合金との反応が進みやすいこと、低 Zr 濃度の金属物質の場合には炉内構造材の融点に達して熔融が進みやすいことを明らかにした。

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 CCIM 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（2回目）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および酸化物の偏析状態を評価した。令和4年度に実施した1回目試験の結果と併せて得られた模擬物質の金属組織特性について整理し、3号機燃料デブリ化学状態として考えられる性状について知見を取りまとめ、金属デブリ熔融凝固試験の傾向と比較し、項目(2)①の機構論的解析に反映した。上記熔融・浸漬実験により、ジルコニウムおよびステンレス鋼の熔融および侵入挙動の把握、ウラン系エアロゾルおよび鉄クロム複合酸化物生成の確認、ボロンの溶解挙動の把握を行った。

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）

令和4年度に、ガス浮遊法により作製した模擬デブリを分析し、ガス浮遊法によるウラン含有模擬デブリの溶融条件を見出すとともに、可能な最大試料量とその際の炉の仕様についても検討した。得られた検討結果等をもとにCCIM炉法およびガス浮遊法を用いたそれぞれの炉の仕様と最適なウラン溶融試験方法について取りまとめた。これまでの議論からUO₂とZrおよびSUSの融点・沸点を考慮し、少量の金属を含む酸化物の短時間の溶融試験をガス浮遊炉で、溶融凝固した大量の酸化物デブリと金属デブリの部分溶融試験をCCIM炉で行うことが提案された。

4.4 Forward AnalysisとBackward Analysisの総合評価（福井大学、連携先：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い、事故進展シナリオの高度化に反映し、得られた結果は、燃料デブリ基盤データベース^[1]に格納可能なデータとして整備し、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した^[2]。

4.5 研究推進

研究代表者の下で、各研究項目間ならびにCLADS等との連携を密にして研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。JAEA、東電、九州大学の外部委員を交えて、令和5年7月5日に研究実施者と第1回の研究推進委員会を開催し、令和4年度の成果、令和5年度の計画および最終的な成果物について議論した。また、令和5年12月21日に第2回の研究推進委員会を開催し、これまでの研究進捗について議論した。令和6年3月8日に第3回の研究推進委員会を開催し、燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。さらに、令和6年3月25日に第4回の研究推進委員会を開催し、最終の成果およびそこから導き出された燃料デブリの形成メカニズムについて議論した。

参考文献

- [1] debrisWiki, <https://fdada-plus.info/wiki/> (2025年3月25日) .
- [2] 廃炉環境国際共同研究センター，福井大学，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，JAEA-Review 2024-014，2024，112p.
DOI: 10.11484/jaea-review-2024-014

