

福島第一発電所2、3号機の事故進展シナリオに基づく
FP・デブリ挙動の不確かさ低減と
炉内汚染状況・デブリ性状の把握（委託研究）

－令和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－

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

－ 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
東京科学大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research and Engineering Institute
Institute of Science Tokyo

October 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

福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく
FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握
(委託研究)

ー令和 5 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー

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

東京科学大学

(2025 年 3 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、研究課題のうち、令和 3 年度に採択された「福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握」の令和 3 年度から令和 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、シールドプラグ下高線量の原因究明、事故時の Cs 移行経路や、Cs の構造材付着・堆積状態の解明及び先行溶落したと推定される金属リッチデブリ特性評価を行うため、事故進展最確シナリオ評価に基づく材料科学的アプローチを行った。Cs 分布評価の不確かさ低減については、炉内の Cs の化学形態について実験と計算の双方より、酸性・塩基性酸化物の組み合わせによる安定度の評価を行い、金属表面での Cs の化学的付着形態、Cs-Fe-O 系、Cs-Si-Al-O 系の安定度などが示され、Cs の移行経路の考慮、PCV 内部コンクリート残留 Cs の除染の重要性が示唆された。金属デブリの酸化変質評価については、熱力学的・速度論的実験により、ジルコニウムの極めて安定な氧化物生成挙動と RPV 内容融促進挙動及びステンレス含有元素の酸化膜形成における役割が示され、固液複相流体の粘性調査も併せて、金属デブリ流下挙動及び取り出し時の留意点が示唆された。これらの知見に基づく事故進展プロセスの総合評価として、水蒸気雰囲気で表面が酸化した鋼材への Cs 化学吸着形態を同定し、吸着形態が鋼材の酸化度によって変化すること及び Cs₂O のトラップ化合物種と氧化物浸透深さを考慮すべきことを明らかにするとともに、固体系金属デブリは水蒸気酸化及び Fe₃O₄ 反応相形成によって支配されること及び熔融金属デブリは酸化により ZrO₂ が優先形成し、表面と内部の酸化度の差異から固液流体の凝固プロセスでスレート状構造を作りやすいことを明らかにし、蓋然性の高い事故進展シナリオ構築に寄与した。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、東京科学大学（東京工業大学と東京医科歯科大学の統合により、令和 6 年 10 月に設立された。）が実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

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

— 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

Institute of Science Tokyo

(Received March 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 (FDNPS), Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

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

Among the adopted proposals in FY2021, this report summarizes the research results of the “Uncertainty reduction of the FPs transport mechanism and debris degradation behavior and evaluation of the reactor contamination of debris state on the basis of the accident progression scenario of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Unit 2 and 3” conducted from FY2021 to FY2023.

The present study aims to elucidate the cause of the high dosage under shield plug by clarification of the cesium behavior of migration, adhesion to structure and deposition as well as evaluate the properties of metal-rich debris predeceasing melted through the materials science approach based on the most probable scenario of accident progression of Unit 2 and 3. Through three years investigation, chemi-absorption configuration of Cs has been elucidated to change with acidity of steel surface during oxidation in humid atmosphere and Cs₂O trapping compound as well as penetration depth have found to be importantly considered. For metallic debris, solid oxidation was found to be controlled by Fe₃O₄ formation and molten state was found to tend to preferentially yield ZrO₂ resulting in formation of slate structure during solidification. Present findings obtained are contributing to better improve the accuracy of accident progression scenario in FDNPS in viewpoint of backward analysis.

Keywords: Fuel Debris, Cesium, Metallic Material, Oxidation, Fission Product, FDNPS

This work was performed by Institute of Science Tokyo (It was established in October 2024 through the merger of Tokyo Institute of Technology and Tokyo Medical and Dental University.) 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 康一郎	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・ エネルギー
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タイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (～R2. 3. 31) 竹下 健二 (～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
$\alpha/\beta/\gamma$ 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 $n\cdot\gamma$ シンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペデスタル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。

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録

成果報告書

This is a blank page.

令和 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

福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオ
に基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と
炉内汚染状況・デブリ性状の把握

(契約番号 R05I052)

成果報告書

令和 6 年 3 月

国立大学法人東京工業大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人東京工業大学が実施した「福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握」の令和 3 年度から令和 5 年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	vii
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 Cs 分布評価の不確かさの低減	2-1
2.1.2 金属デブリの酸化変質評価	2-1
2.1.3 総合評価	2-1
2.2 実施体制	2-2
2.3 令和 5 年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-3
2.3.1 Cs 分布評価の不確かさの低減	2-3
2.3.2 金属デブリの酸化変質評価	2-3
2.3.3 総合評価（東京工業大学、連携先：原子力機構）	2-4
2.3.4 研究推進	2-4
3. 実施内容及び成果	3-1
3.1 Cs 分布評価の不確かさの低減	3-1
3.1.1 2、3 号機最確シナリオに基づいた RPV 内部の Cs 化学形熱力学評価 （連携先：原子力機構）【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-1
3.1.2 2、3 号機最確シナリオに基づいた PCV 内部の Cs 化学形熱力学評価 （連携先：原子力機構）【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-9
3.1.3 Cs 混入酸化物の高温物性評価（再委託先：九州大学） 【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-14
3.1.4 Cs 挙動確認試験（連携先：原子力機構）【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-20
3.2 金属デブリの酸化変質評価	3-29
3.2.1 2、3 号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価（連携先：原子力機構） 【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-29
3.2.2 2、3 号機最確シナリオに基づいた変質酸化物と金属融体の熱力学的安定性評価 【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-34
3.2.3 2、3 号機最確シナリオに基づく酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定 （再委託先：九州大学）【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-38
3.3 総合評価（東京工業大学、連携先：原子力機構）【令和 3 年度～令和 5 年度】	3-41
3.4 研究推進	3-53
4. 結言	4-1

執筆者リスト

研究代表者

国立大学法人東京工業大学

教授
特任准教授

小林 能直
伊藤 あゆみ

再委託先

国立大学法人九州大学

准教授

齊藤 敬高

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

グループリーダー
研究員

プシェニニコフ アントン
多木 寛

表一覧

表 3.1.1-1	Cs 化合物と酸化物との相互反応調査に関する熱力学計算条件		3-4
表 3.1.1-2	熱力学解析による安定に存在する可能性のある Cs 化合物と その温度範囲		3-4
表 3.1.1-3	CsOH と酸化ステンレス、酸化金属デブリとの相互反応に関する TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果		3-4
表 3.1.3-1	粘度測定を試みた $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の試料組成 (mass%)		3-16
表 3.1.4-1	サンプルの底部 (0 mm) からの熱電対の高さ (mm)		3-24
表 3.2.2-1	実験合金の組成		3-37

図一覧

図 2. 2-1	実施体制図		2-2
図 3. 1. 1-1	CsOH と Fe_3O_4 との相互作用反応に関する Case 1 (Fe リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果		3-5
図 3. 1. 1-2	CsOH と Cr_2O_3 との相互作用反応に関する Case 1 (Cr リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果		3-5
図 3. 1. 1-3	CsOH と MoO_3 との相互作用反応に関する Case 1 (Mo リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果		3-6
図 3. 1. 1-4	CsOH と ZrO_2 との相互作用反応に関する Case 1 (Zr リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果		3-6
図 3. 1. 1-5	H_3BO_3 の温度に関する感度解析の結果		3-7
図 3. 1. 1-6	CsOH と HBO_2 との相互作用反応に関する計算結果		3-7
図 3. 1. 1-7	Cs_2O と HBO_2 との相互作用反応に関する計算結果		3-8
図 3. 1. 2-1	CsOH とコンクリートとの相互反応に関する温度と各相量の mol 比との関係		3-11
図 3. 1. 2-2	CsOH と Fe_2O_3 を含有したコンクリートとの相互反応に関する温度と各相量の mol 比との関係		3-11
図 3. 1. 2-3	CsOH とコンクリート及び Fe_2O_3 を含有したコンクリートとの相互反応に関する Cs 相状態及び Cs 量		3-12
図 3. 1. 3-1	回転法による酸化物融体の粘度測定原理図		3-17
図 3. 1. 3-2	回転法による粘度測定装置の概略図		3-17
図 3. 1. 3-3	SiO_2 - Cs_2O - Fe_2O_3 系融体の粘度の温度依存性		3-18
図 3. 1. 3-4	1873 K における SiO_2 - Cs_2O - Fe_2O_3 系融体の粘度に及ぼす $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比の影響		3-18
図 3. 1. 4-1	CLADS-MADE-05 試料の概略図		3-25
図 3. 1. 4-2	CLADS-MADE-05 試験の温度シナリオの概要		3-26
図 3. 1. 4-3	CLADS-MADE-05 試験試料の温度履歴		3-26
図 3. 1. 4-4	上部観察窓ガラスに付着した B 及び Cs を含むエアロゾル		3-27
図 3. 1. 4-5	炭素鋼表面上の B_2O_3 付着物に関する TG-DTA 曲線		3-27
図 3. 1. 4-6	クーポンの表面に付着した Cs 含有物		3-28
図 3. 2. 1-1	各試料の水蒸気酸化による質量増加曲線		3-30
図 3. 2. 1-2	Fe-B 状態図 (TAF-ID による計算結果)		3-31
図 3. 2. 1-3	Zry-4 と比較した各試料の酸化速度式		3-32
図 3. 2. 3-1	極低粘度まで検出可能なトルクセンサーを備えた 2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉外観		3-40
図 3. 3-1	現状の事故シナリオに対応した炉心状況・RPV 下部状況の推察 (2 号機) -図(1)		3-45

図 3.3-2	現状の事故シナリオに対応した炉心状況・RPV 下部状況の推察 (2 号機) -図(2)		3-45
図 3.3-3	初期燃料からの Cs 放出時に関するシールドプラグ移行ルート 候補とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関する Cs ふるまい推定図		3-46
図 3.3-4	SRV 部分開時 (RPV 下部デブリ崩落前) に関するシールドプラグ 移行ルート候補とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関する Cs ふるまい推定図		3-47
図 3.3-5	SRV 開時 (RPV 下部デブリ崩落前) に関するシールドプラグ移行 ルート候補とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関する Cs ふるま い推定図		3-48
図 3.3-6	RPV 下部デブリ崩落後に関するシールドプラグ移行ルート候補 とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関する Cs ふるまい推定図		3-49
図 3.3-7	RPV 内再冠水による残留デブリからの Cs 放出時に関するシールド プラグ移行ルート候補とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関 する Cs ふるまい推定図		3-50
図 3.3-8	1F 2 号機の炉内線量測定結果と解析結果の差異		3-51
図 3.3-9	スレート状物質を形成する例		3-51
図 3.3-10	合金組成の影響		3-52

略語一覧

1F	: 東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所	
ADS	: Automatic Depressurization System	(自動減圧システム)
BAF	: Bottom of Active Fuel	(有効燃料底部)
BWR	: Boiling Water Reactor	(沸騰水型原子炉)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
CRD	: Control Rod Drive	(制御棒駆動機構)
D/W	: Drywell	(ドライウェル)
FP	: Fission Products	(核分裂生成物)
ICP-OES	: Inductively Coupled Plasma - Optical Emission Spectrometer	(誘導結合プラズマ発光分光分析法)
MAAP	: Modular Accident Analysis Program	(モジュール事故解析プログラム)
MCCI	: Molten Core Concrete Interaction	(燃料デブリ・コンクリート相互作用)
OECD/NEA	: Organization for Economic Co- operation and Development/Nuclear Energy Agency	(経済協力開発機構／原子力機関)
PCV	: Pressure Containment Vessel	(原子炉格納容器)
RPV	: Reactor Pressure Vessel	(原子炉圧力容器)
SA	: Severe Accident	(過酷事故)
SC	: Suppression Chamber	(サプレッションチャンバー)
SEM-EDS	: Scanning Electron Microscope - Energy Dispersive X-ray Spectroscopy	(走査型電子顕微鏡－エネルギー分散 型 X 線分光法)
SRV	: Safety Relief Valve	(主蒸気逃し安全弁)
TG-DTA	: Thermogravimetry - Differential Thermal Analysis	(熱質量－示差熱分析)
XRD	: X-ray Diffraction	(X 線回折)
原子力機構	: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	
東電	: 東京電力ホールディングス株式会社	
九州大学	: 国立大学法人九州大学	
NDF	: Nuclear damage compensation and Decommissioning Facilitation corporation	(原子力損害賠償・廃炉等支援機構)
大阪大学	: 国立大学法人大阪大学	
福井大学	: 国立大学法人福井大学	

概略

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 と略記。）の過酷事故から 13 年が経過した現在、各号機の炉内破損状況やデブリ分布に合致した方法で、燃料デブリ取り出し方策が検討されている。安全かつ可能な限り迅速な廃炉を行うための基礎データとして、炉内状況把握、事故シナリオの精緻化が期待されている。他方、1F 内部調査や 1F サンプル分析の進捗で事故炉内部の状況が次第に明らかになるに伴って、従来想定していた以上に米国スリーマイル原発事故の解析に基づいて評価された「典型的な事故条件からの推定」と実際の 1F 炉内状況が異なっていることが分かってきている。従来実施されている、事故進展解析コード等を用いた事故シナリオ解析「Forward Analysis」では、このような 1F 固有の炉内状況の理解を精緻化するのに限界が見えてきている。そこで、現場知見に立脚して、従来十分に検討されていなかった重要事故事象を抽出し、その現象の的確な把握・モデル化に取り組み、より精度の高い、そしてより適切なデータを材料実験で取得して検証するという「Backward Analysis」の必要性が示されている。本研究では、現状の 1F 炉内状況における喫緊課題として、次に挙げる 2 課題に着目し Backward Analysis に取り組む。すなわち、1F 2、3 号機のシールドプラグ下高線量の原因究明に向けた事故時の Cs 移行経路や Cs の構造材付着・堆積状態の解明を目的とする研究課題“Cs 分布評価の不確かさの低減”及び 1F 2、3 号機で、原子炉圧力容器（Reactor Pressure Vessel：以下、RPV と略記。）から原子炉格納容器（Pressure Containment Vessel：以下、PCV と略記。）に先行溶落したと推定される金属リッチデブリの特性評価（溶落時の酸化特性の評価）に着目した研究課題“金属デブリの酸化変質評価”である。

【令和 5 年度の成果概要】

本研究は、1F の炉内状況の調査が進むにつれ、これまでの推測からの Forward Analysis では予見できない現象が観測されてきた。特に、まず 2、3 号機のシールドプラグ下の高線量から、Cs の構造材への移行・付着・堆積が考えられ、そして次に 2 号機ペDESTAL に金属リッチデブリの堆積の可能性がある、3 号機でも金属リッチデブリが先行溶落した可能性が考えられている。この 2 つの現象が Backward Analysis の起点となり、主要線源である Cs の移行経路及び存在量及び金属高濃度デブリ形成過程における酸化度と変質状態をクローズアップし、以下ののような課題分けで、アプローチを行った。本パラグラフでは、令和 5 年度の、そして以降のパラグラフでは令和 3～4 年度の成果について記述する。

まず、“Cs 分布評価の不確かさの低減”では、RPV 内及び PCV 内の Cs の化学系熱力学評価を行った。RPV 内では Cs_2O 、 Fe_3O_4 、 Cr_2O_3 、 MoO_3 、 ZrO_2 の各酸化物に着目し、複合酸化物の生成挙動について評価を行ったところ、関与する成分比により、Cs 化合物の種類や生成メカニズムが異なる傾向があることが推測された。また、Cs 化合物の安定性は対象物内の成分割合が大きく影響することが確認され、さらに TG-DTA（Thermogravimetry - Differential Thermal Analysis：熱質量一差熱分析）により CsOH と酸化ステンレス鋼との相互反応を解析することにより、Cs と Cr_2O_3 、 MoO_3 は Cs リッチの条件で相互反応し、Cs と Fe_3O_4 は Fe リッチの条件で相互反応していた可能性が示唆された。以上のことから、鋼材表面の酸化状態の変化に伴って、化学吸着される Cs の化学形態が変化する可能性が示唆された。今後の現場調査で、シールドプラグサンプルに吸着している Cs 化学形態を同定できれば、Cs の移行経路・吸着メカニズムに関する知見を拡充できる。また、PCV 内では、 CsOH とコンクリート（玄武岩系コンクリート及び酸化鉄を含むコンクリート）との相互反応による安定化合物の特徴について、最新のデータベースを用いた熱力学解析を実施した。固相としては Cs-Si-O 系化合物が安定して存在する結果を示したが、挙動確認試験（TG-DTA）の結果では、Cs-Si-Al-O 系化合物が生成し、かつ 1000 °C の場合

もその化合物が存在することから、Cs-Si-Al-O 系データのさらなる拡充の必要が示唆された。次に、コンクリート中に Fe が存在する場合、約 1150 °C 付近まで、Cs は Cs-Fe-O 化合物が安定に存在した。温度上昇に伴い、Cs は液相として安定に存在する結果が得られた。すなわち、玄武岩コンクリートには、Fe 酸化物が関与すると高温まで Cs が再蒸発することなく、その場に留まると考えられる。以上のことから、PCV 内のコンクリートには多くの Cs が滞留している可能性があり、1F 建屋の除染にとって、この点を考慮して対応していく必要があると示唆される。これらの試算解析と模擬実験により、PCV 内では Cs-Fe-O の安定性を示す熱力学的予測に加えて、模擬実験により Cs-Si-Al-O 系の安定性が示され、大きく知見が拡充された。また、RPV 内では、酸性酸化物、塩基性酸化物間の親和力が明確になる複合酸化物の安定度に関する知見が拡充された。また、これらの反応により生じる SiO₂ 含有 Cs₂O-Fe₂O₃ 融体の流動性評価のため、回転法粘度測定装置を用いて粘度測定を試みたところ、1873 K において 0.45~2.40 Pa・s の粘度を有しており、Fe₂O₃/Cs₂O 比に対して粘度が極値を示す傾向が見られた。これらの粘度値はこれまでに測定例が全くなかったが、流動性が高い Cs₂O-FeO 系融体からはエアロゾルが発生しやすく、SiO₂ 含有状態になると発生しにくいことが予見されるなど、融体からのエアロゾル形成プロセスの理解に資する流動物性に関する知見を拡充できた。

次に、“金属デブリの酸化変質評価”では、Zr などの成分が雰囲気中酸素により酸化され、変質する現象が予測されるため、ステンレス鋼 (SUS316L) と過去に国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 (以下、原子力機構と略記。) で実施した大規模試験で得られた模擬金属デブリから採取した Fe-B 金属デブリ及び Fe-Zr 金属デブリを用いて、水蒸気雰囲気中での熱分析試験を実施し、酸化反応速度論の評価を行った。SUS316L の場合、Cr₂O₃ の剥離効果による複雑な質量増加挙動により、酸化反応速度論を構築することが困難であることが確認されたが、SUS316L は酸化試験後の質量増加傾向の観点から、模擬金属デブリと比して、優れた耐酸化性を備えていることが分かった。Fe-B 金属デブリは拡散依存性の酸化挙動を示し、アレニウス型の反応速度式で示すことができ、低温では質量増加が SUS316L よりも大きかったが、約 1200 °C 以上では SUS316L と Fe-B 金属デブリはほぼ同じ挙動を示した。Fe-Zr 金属デブリは、温度に応じて Fe₃O₄ または ZrO₂ が支配的になり、Zr の酸化が選択的に起こる傾向が確認された。1300 °C を超える温度では、Fe-Zr 金属デブリが最も安定し、評価した他の材料よりも酸化が遅かった。このような定量評価を行うことにより炉内金属デブリの組成による酸化変質の傾向を捉えることができた。例えば Cr₂O₃ と ZrO₂ には保護膜効果があることが分かり、予測より酸化進展が遅く、デブリの金属性状維持に寄与したことが考えられる。その上で、ZrO₂ の熱力学的生成条件を導出するため、Fe-Ni-Zr 三元基本系及び Inconel718、SUS304 における Zr の活量測定を、溶融銀をリファレンスメタルとした化学平衡法にて行い、Zr の活量係数を評価した。Ni 濃度の増加に伴い、活量係数は極大値を取った後、単調減少し、Ni と Zr の親和性が示唆された。SUS304 では活量係数が大変大きくなり、相対的に Cr と Zr の親和性の小ささが示唆された。混合エンタルピー変化を評価したところ負に大きな値となり、発熱反応により事故進展が加速されることが推測された。炉内雰囲気で融体中 Zr から ZrO₂ が生成する水素・水蒸気比を見積もり、10⁻⁴~10⁻⁵ という大きな値を得た。すなわち、炉内金属溶融デブリから必ず ZrO₂ が生成し、固液共存流体になるため、その流下挙動に大きく影響を及ぼす粘性が物性値として支配因子となることが示唆された。この固液混合流体の粘性測定を、低粘性領域においても精度良く粘度測定が可能と考えられるトルクセンサーと雰囲気調整可能な電気炉による粘度測定装置を用いて行い、溶融 SUS316L 合金の粘度に及ぼす固体 ZrO₂ の影響として系統的に評価した。その結果、ZrO₂ が分散した溶融 SUS316L 合金の粘度は、含有する ZrO₂ の体積割合が大きいほど増加することが分かった。これは分散した固相粒子間の相互作用により、流体に発生するずり応力が大きくなったこ

とに起因する。また、60 vol%程度の高固相率の ZrO_2 を含有することによって、 ZrO_2 が分散した溶融 SUS316L 合金の粘度はおおよそ 10^3 倍の大きい値を示すことが明らかとなった。加えて、5 vol%程度の少量の ZrO_2 によっても溶融 SUS316L 合金の粘度はおおよそ 4 倍になることが分かり、デブリの酸化により流下挙動が大きな retardation を受けることが分かった。

そして“総合評価”では、これまでに整理した最確シナリオと熱力学解析や模擬試験の結果に基づき、1F 現場情報と炉内状況推定との差異を低減するための知見整理を実施した。“Cs 分布評価の不確かさの低減”により、鋼材または燃料デブリとの反応においては CsOH 及び CsI が特に重要であり、水蒸気雰囲気下における CsOH と酸化ステンレス鋼との相互作用において、Cs 化合物 (Cs_2CrO_4 , CsMoO_4) の形成が確認され、 CsI と酸化ステンレス鋼の場合、Cs 化合物 (Cs_2CrO_4) の形成が確認されている。酸化ステンレス鋼への Cs の浸透に関しては、酸化膜中を拡散して浸透することが確認され、ステンレス鋼の高温酸化理論によって酸化膜の定量評価を行うことができれば、潜在的な Cs 移行量を評価することが可能である。“Cs 分布評価の不確かさ低減”に向けた評価という観点からは、本研究で実施した模擬試験と解析から、水蒸気雰囲気中で表面が酸化した鋼材への Cs 化学吸着形態 (CsCrO_4 , CsMoO_4) を同定し、吸着形態が鋼材の酸化度によって変化することを明らかにした。得られたデータに基づいて、鋼材表面の酸化膜厚さを与えることで、化学吸着メカニズムによる単位鋼材表面積当たりの Cs 吸着量を概略推定できる。

金属デブリについては、 CsOH と Fe-B 系金属デブリにて酸化ステンレス鋼と同様、Cs 化合物の形成を確認、Fe-Zr 系金属デブリにて Cs_2CrO_4 の生成を確認しており、RPV 内で形成された Cs 含有金属デブリの崩落による Cs が PCV へ移行する可能性があると考えられる。Cs 化合物とコンクリートとの相互作用に関しては、長石相 (CsAlSiO_4) 及びポルサイト相 ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) といった、高温でも安定に存在する化合物が確認された。このことから、PCV のコンクリート壁が 500 °C 程度まで温度が上昇したところに CsOH/CsI が移行すれば、コンクリート内部への浸透や表面に Cs-Si-Al-O 化合物を生成する可能性がある。また、熱力学解析結果から、Cs/コンクリート相互反応に酸化鉄が関与する条件の場合、より高温でもコンクリート層中に留まる可能性がある。大規模試験の結果から、燃料集合体から放出された B 系エアロゾルは、スチームセパレーターやスチームドライヤーといった障害物に凝集し、その凝集物が高温水蒸気雰囲気下で脱水され、 B_2O_3 からなる液相を形成する。その液相は Cs_2O をトラップし、Cs がその場に留まる可能性がある。以上の知見から、1F 2号機に関する現状の事故シナリオに基づき、PCV 上部ウェル内：解析値 (数十 Sv/h) が測定値 (1 Sv/h 以下) より一桁大きい、ペDESTAL内部：解析値 (4~9 Sv/h) が測定値 (数十 Sv/h) より一桁小さい、という“現場と推定のギャップ”について検討を行った。PCV 上部ウェル内に関しては、線量評価が実際の値を過大評価していると考えられる。この不確かさの原因として Cs の RPV 炉内残留量の過小評価とコンクリート壁面の Cs 付着量・浸透を過小評価している可能性が挙げられる。RPV 炉内残留量に関しては、酸化ステンレスへの Cs 吸着や B 系エアロゾルへの Cs トラップ効果が SA (Severe Accident : 過酷事故) コードでは考慮されておらず、この知見の SA コードへの取り込みが、この差異の不確かさの低減に繋がると考えられる。コンクリート壁面への Cs 付着量・浸透に関しては、もし PCV ウェル上部壁が 300 °C 以上になる時間帯に Cs が移行することがあれば、現行の SA コードでは壁面への吸収は考慮されていないので、Cs 浸透量は無視できない。したがって、コンクリートへの Cs 浸透挙動を組み込むことによってこの差異の不確かさを低減することが可能であることが示唆された。ペDESTAL内部に関しては、燃料デブリまたは鋼材とともに Cs が移行している可能性が示唆されており、また、ステンレス鋼や金属デブリの酸化膜に浸透した Cs がペDESTALへ移行してきた可能性は排除できない。さらに、3.3 節の知見 (2)-1. ⑤から、Cs とコンクリートとが相互反応をする場合、高温でも安定な Cs 化合物を生成する可能性があり、これらの知見を組み込むことによ

ってこの差異の不確かさを低減することが可能であると示唆される。“金属デブリの酸化変質評価”では、Fe-Zr 系金属デブリ模擬物質における水蒸気酸化挙動は主に Zr 酸化挙動によって支配されること、1100 °C 近傍では Fe_3O_4 の形成が優位になり、Fe イオンの拡散による Fe_3O_4 反応相の形成が支配的であることが分かった。Fe-B 系金属デブリ模擬物質では、主に Fe 酸化挙動によって支配され、模擬物質の融点未満では酸化速度について Fe 酸化の知見を活用できることが分かった。熱力学実験により、溶融合金 Fe-Zr は、1600 °C において Ni を添加することによって Zr の熱力学的安定性が増すことが分かった。測定された Zr 活量係数の Ni 濃度依存性から活量勾配駆動による拡散係数解析を行ったところ、Ni 添加によって合金液相中金属原子の化学的拡散係数が最大で 3 倍程度にまで増加する結果が得られた。生成した ZrO_2 固相を溶融ステンレス鋼に分散させた固液混合物では、固相率の上昇に伴って粘度が増加し、また、ずり速度が大きいほど粘度が低下することが分かった。これは、固相が多く存在すると粒子が凝集してクラスター状となって流動領域と摩擦を起こす“みかけの表面積”が増加することによると考えられる。次に、グレーチングに広がる燃料デブリ堆積物のスレート形状について、固液混合状態に起因することを考察し、ずり速度分布、Zr 酸化物生成による固相率分布から、溶融物表面の流動性は維持されるが、表面より少し内部に入った領域の流動性が著しく低下することが予測され、表面・表面近傍・内部において流動性に差が生じやすくスレート状構造を作りやすいことを考察した。

以上のように、総合評価では、各個別課題で特徴的に得られた知見から、炉内の事故進展に伴う物理化学現象、特に Cs のふるまいと金属デブリの流動挙動の観点から、蓋然性の高いシナリオを構築することができた。

【令和 4 年度の成果概要】

まず、“Cs 分布評価の不確かさの低減”では、令和 3 年度に実施した 2、3 号機事故進展の最確シナリオに基づく RPV、PCV 内の事故時化学環境の評価結果と熱力学解析による 2 号機の Cs 化学形態の評価結果を参照し、3 号機の Cs 化学形態を熱力学的に解析評価した。その結果、3 号機 RPV の炉心損傷進展において Mo や I を含んだ Cs 系化学種が気相に安定に存在しうる雰囲気や温度条件を整理し、炉心構造物や金属デブリ表面に吸着する可能性のある Cs 系化学種と、それらが吸着して安定化する温度条件を提示した。また、3 号機 PCV においては、Cs とコンクリート成分の相互反応で形成する可能性のある Cs-Si-Al-O 系化合物の生成条件（温度、Cs/(Si+Al) 比）や、MCCI (Molten Core Concrete Interaction: 燃料デブリ・コンクリート相互作用) で液相に移行する Cs 含有率の温度依存性を整理した。令和 3 年度と令和 4 年度実施した 2、3 号機における Cs 系化合物の熱力学的評価の妥当性を評価するために、Cs 含有物質や金属デブリ模擬物質やコンクリートを用いた水蒸気雰囲気における熱分析試験を実施した。その結果、Cs 系化合物の気相は、ステンレス鋼や金属デブリ模擬物質表面に対しては Cr や Fe などの成分を含む化合物、コンクリート系物質表面に対しては Si や Al などの成分を含む化合物として、それぞれ化学的に吸着する傾向があることが分かった。さらに、本研究では、Cs を含有するエアロゾルに関して、1F 事故最確シナリオにおいて炉心損傷の後期過程に発生すると考えられている、ステンレス系鋼材の溶融物と燃料デブリとの相互作用に着目した。その物理化学反応を通じて形成されると推定される Cs-Fe-O 系の溶融凝固型エアロゾルについて、形成条件を検討するために、 $\text{Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度測定と流動物性に関する知見を拡充した。この結果、金属デブリ溶融物に Cs 残留燃料デブリが浸漬するなどの状況で、Cs をはじめとする揮発性の高い FP (Fission Products: 核分裂生成物) ガスが溶融金属中を気泡として上昇する過程で液滴化して飛散する機構によって Cs-Fe-O 系エアロゾルが生成し炉内を浮遊移行する可能性があること

が分かった。また、大型試験に向けて、CsOH 及び CsI が及ぼすステンレス鋼・金属デブリ・コンクリートへの吸着・再蒸発傾向（物理・化学吸着温度、化学吸着による Cs 生成物、Cs 化合物蒸発温度）の知見を拡充した。

次に“金属デブリの酸化変質評価”では、金属デブリ再溶融によるステンレス系構造物破損によって RPV 破損に至り、炉外に流出する過程で酸化変質が進行する、というシナリオ(2号機)を想定して、次の3要素について評価を進めた。すなわち、「1) Zr を含む金属デブリが溶融する際に鋼材溶融と水蒸気による Zr 酸化のいずれが安定的に進行するか (Zr 含有液体金属における Zr 活量)」、「2) 炉外流出時に部分的に凝固が進行して固液混合状態になった場合に流動性がどのように低下するか (液体金属粘度の固相率依存性)」、「3) 固化した金属デブリに対する酸化変質挙動」、である。Zr 含有液体金属における Zr 活量については、ステンレス鋼に加え溶接等に用いられている Ni 合金混入の影響を 1873 K (ステンレス鋼の溶融が顕著になる温度) について実験的に評価した。その結果、この合金系での Zr 活量は極めて小さく (活量係数としておよそ 0.01~0.05 の範囲)、Zr 金属が安定化することを示した。また、この合金系での Zr 濃度が 10 at% 以下であれば、液相中においても Zr が安定的に存在する可能性を示した。さらに、Ni が混入する系では、Zr の活量が一層低下することを明らかにした。このことは、Ni が混入する金属デブリでは Zr がより金属状態で維持されやすいことを示唆している。また、令和3年度に構築した粘度測定装置を用いて、ステンレス溶融物に酸化物 (ZrO_2) を 10 vol% 混合させた場合の粘度は 1.41 Pa·s であり、純液体合金 (SUS316L 系) の粘度 (5.24~7.8 mPa·s) に対して固相の混入によって粘度が大幅に増大することが分かった。さらに、金属デブリの酸化変質については、令和3年度で実施した Fe-B 含有金属デブリ模擬物質に加えて Zr を含有する模擬デブリ物質を準備し、水蒸気雰囲気における熱分析試験を実施した。その結果、水蒸気酸化反応に関して Fe-B 含有金属デブリについては Fe_3O_4 形成、Zr を含む場合は ZrO_2 形成がそれぞれ主要な酸化反応であることが分かった。また、大型試験に向けて、Cs 化合物吸着に影響する酸化反応に関する金属デブリ酸化速度式を算出し、まとめた。

各研究課題の要素試験や解析の結果から得られた知見に基づき、2、3号機の事故シナリオにおける Cs 化合物と金属デブリのふるまいについて総合評価を行った。“Cs 分布評価の不確かさの低減”に関しては、Cs 化合物のうち CsOH はステンレス鋼及び金属系デブリと 1000 K 以下で反応して Cs-Fe-O、Cs-Zr-O、Cs-Cr-O 化合物が形成される可能性があり、特に、金属系デブリとの反応により RPV 下部で生成された Cs 含有デブリは、崩落に伴い PCV (ペDESTAL等) に移行した可能性があることを示した。一方、金属デブリ溶落挙動に関しては、未酸化 Zr がステンレス鋼と反応して低融点共晶液体金属を形成してから、ステンレス鋼をさらに溶解し Fe 高濃度の金属プールを形成しながら RPV 破損に至った可能性がある。本研究の成果から、2号機のグレーチングを破損するあたりまでの金属デブリは固相割合が多くとも 1 割には達していないと推定される。つまり、酸化度が低く維持されていた可能性が高い。今後、実機寸法の流動解析と化学条件を組み合わせることによって、ある程度定量性を持った評価ができる可能性を示した。

【令和3年度の成果概要】

令和3年度は各実施項目を進める上で必要な基盤の整備及び予備実験などに着手するとともに、本研究で抽出した Backward Analysis の2個の課題 (“Cs 分布評価の不確かさの低減”及び “金属デブリの酸化変質評価”) について、Forward Analysis 専門家との相互連携による現象理解と炉内状況把握精緻化の方針について検討した。研究課題 “Cs 分布評価の不確かさの低減” では、2、3号機事故進展の最確シナリオに基づく MAAP (Modular Accident Analysis Program : モジュール事故解析プログラム) 解析結果から、事故時の RPV 及び PCV 内の化学環境と物質移

行を評価し、Cs 化学形態の変化を予備的に評価した。さらに、Cs 含有試料を用いて、水蒸気雰囲気中で熱分析試験を行い、Cs と鋼材等との反応傾向を予備的に調査した。また、MCCI の過程で燃料デブリ中の残留 Cs がコンクリート成分含有酸化物融体の流動性に影響を及ぼして Cs 放出挙動に与える影響を予測するために、高温で $\text{CeO}_2(-\text{ZrO}_2)-\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系高温融体の粘度測定を試みるとともに、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系エアロゾル形成現象解明のため、同融体の粘性を見積もった。これらにより、残留 Cs はわずかな量であってもコンクリート成分含有酸化物融体の粘性を劇的に低下させるが、同時に流動性の上昇により Cs は直ちに放出されるため、事故進展事象に与える影響は非常に限定的であることを示した。さらに、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{FeO}$ 系は化学的に親和性が高く容易に融体化し、事故炉内条件によっては燃料デブリからの残留 Cs と溶融ステンレス鋼の反応によってこれまで想定されていなかった Cs-Fe-O 系エアロゾルが発生し、RPV 上部の高線量状況に関与した可能性があることを示した。研究課題“金属デブリの酸化変質評価”では、模擬金属デブリの水蒸気雰囲気での熱分析試験により、その酸化時変質を予備的に評価した。金属溶融デブリと酸化物デブリの反応基礎となる溶融 Fe-Zr 系金属融体と ZrO_2 平衡の予備実験に着手し、RPV 破損機構解明の重要因子である金属融体中の未酸化 Zr 反応寄与割合を定めるために必要な Zr 活量測定手法の妥当性を確認した。さらに、RPV 破損時に流出する固液共存金属物質の流動予測に不可欠な金属デブリの粘度測定条件を決定した。これらにより、下部プレナムで金属系デブリが再溶融して水蒸気によって酸化変質しながら鋼材を溶融し、RPV 破損に至る過程を解析するための要素パラメータを抽出・測定手法を確立した。

これらの予備的な評価結果に基づき“総合評価”では、各実施課題における成果を総合的に勘案し本研究で重点的に検討する事象の特定とシナリオを決定した。すなわち、現場で課題となっている高線量状況に至った Cs 移行挙動の不確かさを低減するためには、高温かつ水蒸気枯渇状態における Cs 反応及び燃料デブリからの放出時におけるエアロゾル形成過程に着目した RPV 上部への移行を重点的に調査していくこと及び金属系デブリの再溶融に伴う RPV 破損事象は、競合関係にある水蒸気による酸化変質（気液反応）及び鋼材溶融（固液反応）のそれぞれにおける要素反応を検証することが重要であることを示した。

前年度までの成果報告書：

JAEA-Review 2022-053 福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握

（委託研究）令和 3 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-053>

JAEA-Review 2024-010 福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握

（委託研究）令和 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

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2024-010>

1. はじめに

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

2. 業務計画

2.1 全体計画

以下に示す要素課題について、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) を照らし合わせ、事故時の号機・領域ごとの化学環境変化と、そこから予測される Cs 移行プロセス及び金属系デブリの再溶融による RPV プロセスを評価し、炉内燃料デブリ・FP 推定図を更新するための知見を整備する。知見の整備にあたっては、Forward Analysis の検討結果を熟知した専門家を交えた専門家コアチームによる意見交換の結果を反映する。

2.1.1 Cs 分布評価の不確かさの低減

2、3号機のシールドプラグ下高線量は、事故時の Cs 移行経路や構造材への付着及び堆積状態が関与していると考えられる。これまでの PCV 内部調査や事故進展解析結果に基づいて、Cs 移行経路に影響を及ぼす炉内の化学状況変化という観点から事故進展最確シナリオを評価し、熱力学的解析及び検証実験によって RPV 上部への移行条件 (温度、水素／水蒸気比等) の範囲を明らかにするとともに、試験で得られた移行条件を事故進展解析にフィードバックし、事故時の Cs 移行経路の推定及び事故進展解析による化学環境の推定結果の妥当性を検討する。

2.1.2 金属デブリの酸化変質評価

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

2.1.3 総合評価

上記実施項目で得られた知見に基づき、核燃料研究の専門家と事故進展挙動解析の専門家の連携による専門家コアチームを設け、号機・領域ごとの事故進展シナリオと Cs 分布及び RPV 破損過程における金属デブリ変質の高精度化を行う。得られた結果は、炉内推定図更新に資する基礎データとして整備し本研究成果が公開された後に廃炉事業者や他の英知事業実施者などが閲覧できるようにする。

2.2 実施体制

実施体制を図 2.2-1 に示す。

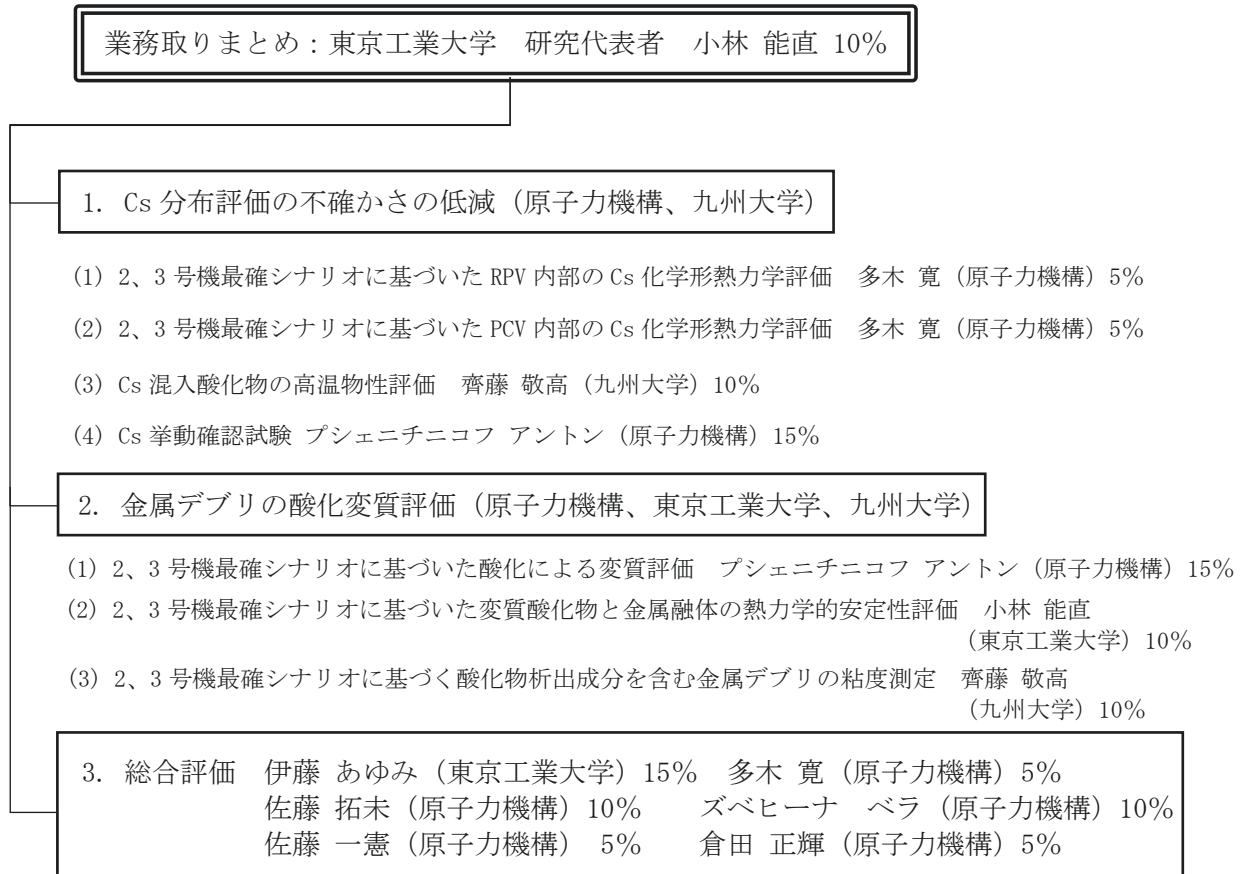


図 2.2-1 実施体制図

2.3 令和5年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.3.1 Cs 分布評価の不確かさの低減

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

事故時化学環境下における RPV 内部でのステンレス鋼及び金属系デブリ（Fe-Zr 系デブリ、Fe-B 系デブリ）への Cs 化合物の吸着・再蒸発反応に関する熱力学解析（Cs-I-O-H/Fe-Cr-Ni-O、Cs-I-O-H /Fe-Zr-O 及び Cs-I-O-H /Fe-B-O）を行い、Cs 化学形態を評価する。また、項目 2.3.1(4)での大型試験に関する熱力学解析を実施し、熱力学観点から試験結果を評価する。

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

事故時化学環境下における PCV 内部での Cs/コンクリートの相互反応傾向について、詳細な熱力学解析（Cs-I-O-H-Si-Al-Ca-Fe 系）を実施する。また、項目 2.3.1(4)での大型試験に関する熱力学解析を実施する。熱力学解析、熱分析試験及び大型試験から得られた知見を基にペDESTAL及びシールドプラグでの Cs 化学形態を評価する。

(3) Cs 混入酸化物の高温物性評価（再委託先：国立大学法人九州大学（以下、九州大学と略記。））

令和4年度の粘度測定から得られた知見及びデータを参照して、測定条件及び手順の見直しを行うとともに、引き続きルツボ回転法粘度測定装置を用いて Cs₂O-Fe₂O₃ 系高温融体の粘度測定を実施する。これにより、融体からのエアロゾル形成プロセスの理解に資する流動物性に関する知見をまとめる。

(4) Cs 挙動確認試験（連携先：原子力機構）

LEISAN（Large-scale Equipment for Investigation of Severe Accidents in Nuclear reactors）試験装置を用いて、事故条件を模擬した試験を実施し、大規模での Cs 移動経路や吸着反応挙動を総合的に評価する。具体的には、Cs 化合物を封入した被覆管を含む試験体を準備し、炉内温度上昇による被覆管からのリークを模擬した試験により、Cs 化合物と燃料集合体や、構造材（炭素鋼、ステンレス鋼、コンクリート）の相互作用反応挙動を評価し、吸着反応傾向を評価する。

2.3.2 金属デブリの酸化変質評価

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

令和3年度と令和4年度に取得した酸化変質データを集約し、金属デブリの酸化による変質評価を行う。

(2) 2、3号機最確シナリオに基づいた変質酸化物と金属融体の熱力学的安定性評価

（国立大学法人東京工業大学（以下、東京工業大学と略記。））

炉心溶融物中で、酸化物溶融物と金属溶融物が共存して移行する挙動を評価するために、酸化物飽和状態における金属（鋼材含有成分）及び鋼材に使用されている合金を用いた平衡実験を行い、事故進展時に金属 Zr が残留する化学的な条件を検討し、本研究で得られた金属融体による鋼材溶融にかかわる知見をまとめる。

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

令和4年度に導入した粘度測定装置を用いて、同じく令和4年度に策定した測定条件を参照して、溶製した酸化物析出成分を含む熔融金属の粘度測定を実施する。これにより、酸化物固相を巻き込んだ熔融金属の流動理解に資する知見をまとめる。

2.3.3 総合評価（東京工業大学、連携先：原子力機構）

項目2.3.1(1)～(3)で得られたCsのデブリまたはコンクリートとの反応傾向に関する知見及び項目2.3.1(4)のCs挙動確認試験で得られた知見に基づき、1Fの事故進展シナリオにおけるCsの構造物への吸着挙動を推定する。得られた結果を従来の知見に基づく評価と比較して、不確かさの低減に資するデータの整備を行う。また、項目2.3.2(1)～(3)で得られた金属デブリの酸化変質・熱力学安定性・粘性データに基づき、金属リッチデブリの特性評価に資するデータの整備を行う。

2.3.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター（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ち合わせや会議等を開催する。

3. 実施内容及び成果

3.1 Cs 分布評価の不確かさの低減

3.1.1 2、3号機最確シナリオに基づいた RPV 内部の Cs 化学形熱力学評価（連携先：原子力機構）

【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

令和3年度は、2、3号機の事故進展最確シナリオ評価で得られた RPV 内部の化学条件変化（温度、水素・水蒸気比等）から Cs の移行挙動を予備的に推定し、Cs 化学形の中でも特に重要な Cs-I、Cs-Mo、Cs-B 系について 1500 K における安定化合物の水素・水蒸気比依存性を熱力学解析によって評価した。その結果、2号機事故初期の水蒸気枯渇条件などにおいては、 Cs_2MoO_4 (g) の発生は制限されていた可能性が示唆された。また、CsI (g) 及び Cs_2MoO_4 (g) は水蒸気量の増加に伴い生成が抑制され、一方 CsBO_2 は水蒸気量の増加に伴い生成が促進される傾向があったので、事故の進行に伴う水蒸気発生が Cs 安定相（化学種）に影響することが考えられる。

令和4年度は、気相中の Cs 挙動に及ぼす温度の影響を予備的に評価した。Cs 化学形の中でも特に重要な Cs-I、Cs-Mo 系について安定化合物の温度依存性を熱力学解析した。 Cs_2MoO_4 は CsOH や CsI と比較してより高温でも固体として安定して存在するという計算結果から、鋼材等に付着後、高温での吸着反応が発生した可能性がある。この結果、Cs-Mo 系化合物が炉内上部には残存している可能性が示唆される。次に、Cs と鋼材・金属デブリとの反応挙動を予備的に評価した。鋼材・金属デブリ吸着反応に関しては、作成した CsOH と Fe 及び Zr の擬2成分系状態図から推定すると、未熔融からの Cs 放出による金属デブリとの吸着反応が生じた可能性があり、これにより RPV 下部での Cs 含有デブリが生成され、崩落等により PCV に Cs が移行した可能性が示唆される。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2、3号機のシールドプラグ下の高線量から Cs の構造材への移行・付着・堆積が考えられ、その RPV 内の Cs のふるまい評価による Backward Analysis を目指すものである。

1F の内部調査等により、炉内状況が少しずつ明らかになってきている^{[3.1.1-1][3.1.1-2][3.1.1-3]}が、事故時の Cs のふるまい（化学形態や移行挙動、エアロゾル形成メカニズム）に関しては、未だに不確かさが大きいのが現状である。このために現在の炉内での Cs 分布の不確かさが大きい。今後、本格的なデブリ取り出し作業を安全に実施するためには、Cs のふるまいを解明し、炉内 Cs 分布評価をする必要があると考えられる。令和5年度は、気相 Cs 化合物を介しての鋼材・金属デブリとの相互反応における Cs の安定相（化学種）の傾向を熱力学評価し、系統的に整理する。また、令和4年度に実施した TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果と比較検討を行い、吸着反応のメカニズム評価を行うこととした。また、項目 3.1.4 にて令和5年度に実施した大規模試験の結果に関する熱力学解析評価を実施することとした。

② 解析方法

本研究では、熱力学データベースとして、OECD/NEA の国際プロジェクトで開発している TAF-ID^[3.1.1-4]を用いた。また、平衡計算ツールは化学平衡計算ソフトウェア ThermoCalc^[3.1.1-5]を用いた。表 3.1.1-1 に熱力学計算条件を示す。RPV 内で想定される Cs 化合

物生成の傾向を調査するために、水蒸気雰囲気における Cs リッチ条件または対象物リッチ条件での計算を実施した。Cs 化合物として CsOH と CsI、対象物として酸化ステンレス鋼中の Fe_3O_4 、 Cr_2O_3 、 MoO_3 、酸化金属デブリ中の ZrO_2 を設定した。計算温度は、TG-DTA による Cs 挙動確認試験の結果から RPV 内で吸着反応が生じる可能性のある温度をカバーする形で設定した。また、雰囲気は水蒸気雰囲気を想定し、圧力は 1 atm で計算を行った。

③ 熱力学解析結果

図 3.1.1-1 に、CsOH と Fe_3O_4 との相互作用反応に関する Fe リッチ条件及び Cs リッチ条件の計算結果を示す。ここで、Cs 化合物に着目するために、横軸のスケールを調整している。どちらの条件においても、Cs-Fe-O 系化合物が安定に存在する結果を示し、Fe リッチ条件の場合、Cs-Fe-O 系化合物の種類が増加する傾向を示した。次に、図 3.1.1-2 に、CsOH と Cr_2O_3 との相互作用反応に関する Cr リッチ条件及び Cs リッチ条件の計算結果を示す。Cr リッチ条件では、Cs は約 200 °C 以下で Cs_2CrO_4 として安定して存在し、約 200 °C 以上の温度では液相として安定に存在する結果を示した。このことから、液相からの凝固時 (約 200 °C 以下) に Cs_2CrO_4 が安定して存在する可能性がある。すなわち、Cs-Cr-O 化合物を生成するには、固-気反応または固-固反応により液相を生成するプロセスが必要であると示唆される。一方で、Cs リッチ条件では、Cs は 250 °C ~ 640 °C の温度域で Cs_2CrO_4 として安定に存在し、約 640 °C 以上の温度では、液相として安定に存在する結果を示した。Cs リッチ条件の場合、600 °C 付近の温度であっても、 Cs_2CrO_4 が安定して存在する可能性が示唆される。700 °C を超える温度では、Cs は主に液相として存在する可能性があり、 Cs_2CrO_4 の結晶性が熱力学的に維持されなくなる可能性がある。次に、図 3.1.1-3 に、CsOH と MoO_3 との相互作用反応に関する Cs リッチ条件及び Cr リッチ条件の計算結果を示す。Mo リッチ条件では、Cs は 560 °C までは Cs-Mo-O 化合物 ($\text{Cs}_2\text{Mo}_7\text{O}_{22}$) として安定に存在し、560 °C 以上では液相として存在する結果を示した。一方で、Cs リッチ条件では、900 °C 付近まで、Cs は Cs-Mo-O 化合物 (Cs_2MoO_4) として安定に存在する結果を示した。最後に、図 3.1.1-4 に CsOH と ZrO_2 との相互作用反応に関する Zr リッチ条件及び Cs リッチ条件の計算結果を示す。Zr リッチ条件では、Cs は約 350 °C までは、Cs-Zr-O 化合物として安定に存在し、約 350 °C 以上では、気相として安定に存在する結果を示した。一方で、Cs リッチ条件では、850 °C 以下においては、Cs-Zr-O 化合物が安定に存在する結果を示した。

CsI に関しては、どの条件においても対象物との化合物が安定に存在することはない、CsI が最も安定に存在する計算結果を示した。TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果において、CsI は CsOH に比べて Cs 化合物の吸着が少なかったが、 Cs_2CrO_4 が確認されている。これはおそらく CsI の一部が高温水蒸気雰囲気において CsOH と HI に分解し、その結果、CsOH として Cs 化合物を生成した可能性が示唆される。また、Cs 挙動確認試験においてラマン分光分析結果では、Cs-I-O 化合物の結晶構造ピークパターンは確認されなかったが、SEM-EDS (Scanning Electron Microscope - Energy Dispersive X-ray Spectroscopy: 走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線分光法) の分析では、Cs-I-O 化合物として対象物に付着している可能性が示唆されるものがあつたことから、Cs-I-O システムの熱力学データの取得・格納を行うことは、より詳細な CsI に関する吸着挙動の熱力学解析に繋がると考えられる。

④ 令和4年度に実施したCs挙動確認試験との比較検討

表 3.1.1-2 に、熱力学解析結果を基に、安定に存在する可能性のある Cs 化合物とその温度範囲についてのまとめを示す。また、表 3.1.1-3 に、CsOH と酸化ステンレス、酸化金属デブリとの相互反応に関する TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果のまとめを示す。Cs 挙動確認試験の結果から、Cs 化合物と対象物の反応において Cs_2CrO_4 や CsMoO_4 といった Cs 化合物が生成される傾向が確認された。表 3.1.1-2 の熱力学解析まとめと比較すると、気相を介して CsOH と Cr_2O_3 または MoO_3 との反応が生じている場合、これら相互反応は局所的に Cs リッチの条件で生じている必要があることから、TG-DTA による CsOH と酸化ステンレス及び酸化金属デブリとの相互作用において、 Cr_2O_3 または MoO_3 付近は局所的に Cs リッチの条件であったと示唆される。また、表 3.1.1-2 から、Cs-Fe-O 系化合物は Cs リッチ条件でも Fe リッチ条件でも安定に存在する結果を示しており、Cs 挙動確認試験で検出されなかった結果と反していた。ここで、極端に Fe リッチ条件 ($\text{CsOH}=10^{-6} \text{ mol}$ 、 $\text{Fe}_3\text{O}_4=1.0 \text{ mol}$ 、 $\text{H}_2\text{O}=10 \text{ mol}$)、すなわち、CsOH 付着量に対して Fe_3O_4 が非常に大きい場合について計算した結果、Cs-Fe-O 化合物が安定して存在する温度範囲が約 500°C 以下に減少する結果を示した。このことから、Cs 挙動確認試験結果で Cs-Fe-O 化合物が確認されなかったのは、速度論的要素 (Cs の Fe_3O_4 中の拡散速度) や物理的要素 (CsOH の Fe_3O_4 への物理吸着性) などとも要因であると考えられるが、極端に Fe リッチの条件であった可能性も 1 つの要因であると示唆される。

⑤ 大規模試験に関する熱力学解析

大規模試験において、確認された Cs 含有 B_2O_3 ガラスに関する熱力学解析を実施した。

まず、B 系エアロゾルに関して、大規模試験では、 H_3BO_3 として、排気口まで移行していたと考えられる。一方で、図 3.1.1-5 に示したように、熱力学計算上では、 H_3BO_3 は安定に存在することがなく、 $\text{HBO}_2(\text{g})$ と $\text{H}_2\text{O}(\text{g})$ または $\text{B}_2\text{O}_3(\text{l or s})$ と $\text{H}_2\text{O}(\text{g})$ という形で安定する結果を示した。しかしながら、熱力学計算では、脱水反応に関する速度論的要素を考慮していないので、大規模試験におけるホウ素系エアロゾルの移行時の挙動とは異なる傾向を示していたと考えられる。

次に、図 3.1.1-6 と図 3.1.1-7 に、 B_2O_3 への Cs 含有に関する計算結果を示す。 HBO_2 と CsOH が反応した場合、Cs は液相には含有されていなかった。一方で、 HBO_2 と Cs_2O が反応した場合は、液相中に多くの Cs が含有する結果を示した。今回の熱力学解析結果からは、現状では、Cs 含有 B_2O_3 ガラスは以下の 3 つのステップで生成されたと示唆される。1) H_3BO_3 (または HBO_2) エアロゾルが凝集し脱水し、 B_2O_3 の液相が生成した。2) 生成された液相に Cs_2O がキャッチされた。3) 高温保持によりさらに脱水し、その後冷却 (急冷) され、Cs 含有 B_2O_3 ガラスが生成された。しかしながら、 Cs_2O の生成メカニズムなど、不確かな部分が多いことから、さらなる熱力学解析が必要であると考えられる。

(3) まとめ

令和5年度は、Cs 化合物の気相を介した対象物への吸着反応に関する反応に関与する成分比の影響 (Cs リッチ及び対象物リッチ条件) について、各酸化物 (Fe_3O_4 、 Cr_2O_3 、 MoO_3 、 ZrO_2) ごとに詳しく熱力学解析評価を実施した。解析結果から、関与する成分比により、Cs 化合物の種類や生成メカニズムが異なる傾向があることが予測された。また、Cs 化合物の安定性は対象物内の成分割合が大きく影響することが確認された。すなわち、TG-DTA による CsOH と酸化ステンレス鋼との相互反応を考えた場合、Cs と Cr_2O_3 、 MoO_3 は Cs リッチ

の条件で相互反応し、Cs と Fe_3O_4 は Fe リッチの条件で相互反応していた可能性が熱力学評価により推測された。以上のことから、RPV 内の Cs 分布状態を考える場合、各鋼材に含まれる成分ごとの酸化状態が Cs 吸着状態を評価する上で必要になってくる可能性が示唆される。

表 3. 1. 1-1 Cs 化合物と酸化物との相互反応調査に関する熱力学計算条件

	Composition (mol)			Temperature (°C)	Pressure (atm)
	CsOH, CsI	Reaction target material (Fe_3O_4 , Cr_2O_3 , ZrO_2 , MoO_3)	H_2O		
Case 1(Target-rich)	0.001	1.0	10	25-1000	1.0
Case 2(Cs-rich)	1.0	0.001			

表 3. 1. 1-2 熱力学解析による安定に存在する可能性のある Cs 化合物とその温度範囲

	Fe_3O_4	Cr_2O_3	MoO_3	ZrO_2
Target-rich	・ CsFeO_2 (25 °C-1000 °C)	・ Cs_2CrO_4 (25 °C-200 °C)	・ $\text{Cs}_2\text{Mo}_9\text{O}_{22}$ (25 °C-560 °C)	・ $\text{Cs}_4\text{Zr}_7\text{O}_{16}$ (25 °C-400 °C)
Cs-rich	・ CsFeO_2 (25 °C-840 °C) ・ $\text{CsFe}_{11}\text{O}_{17}$ (250 °C-840 °C)	・ Cs_3CrO_4 (25 °C-250 °C) ・ Cs_2CrO_4 (250 °C-640 °C)	・ Cs_2MoO_4 (25 °C-900 °C)	・ Cs_2ZrO_3 (400 °C) ・ $\text{Cs}_6\text{Zr}_7\text{O}_{17}$ (400 °C-700 °C) ・ $\text{Cs}_4\text{Zr}_7\text{O}_{16}$ (700 °C-850 °C)

表 3. 1. 1-3 CsOH と酸化ステンレス、酸化金属デブリとの相互反応に関する TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果

吸着対象物	Temperature [°C]					
	500	600	700	800	900	1000
酸化ステンレス鋼 (Fe-Ni-Cr-Mo) [SUS316L]	Fe_3O_4 Fe_2O_3 Cr_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 Cr_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 Cs_2MoO_4	Fe_3O_4 Cs_2MoO_4	Fe_3O_4
酸化Fe-B系金属デブリ (Fe-Ni-Cr-B-Mo)	Fe_3O_4 Cr_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 Fe_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 CsOH Cs_2MoO_4	Fe_3O_4 Cs_2MoO_4	FeO Fe_3O_4
酸化Fe-Zr系金属デブリ (Zr-Fe-Ni-Cr-B)	Fe_3O_4 Cr_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 Fe_2O_3 ZrO_2 Cr_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 Fe_2O_3 CsOH Cs_2CrO_4	Fe_3O_4 ZrO_2	Fe_3O_4 ZrO_2	FeO Fe_3O_4 ZrO_2

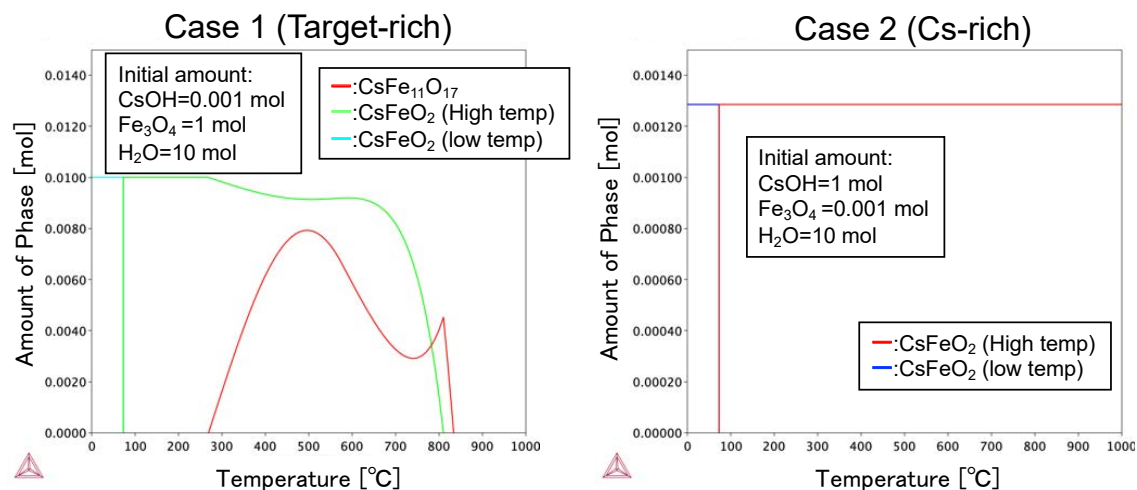


図 3. 1. 1-1 CsOH と Fe₃O₄ との相互作用反応に関する Case 1 (Fe リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果

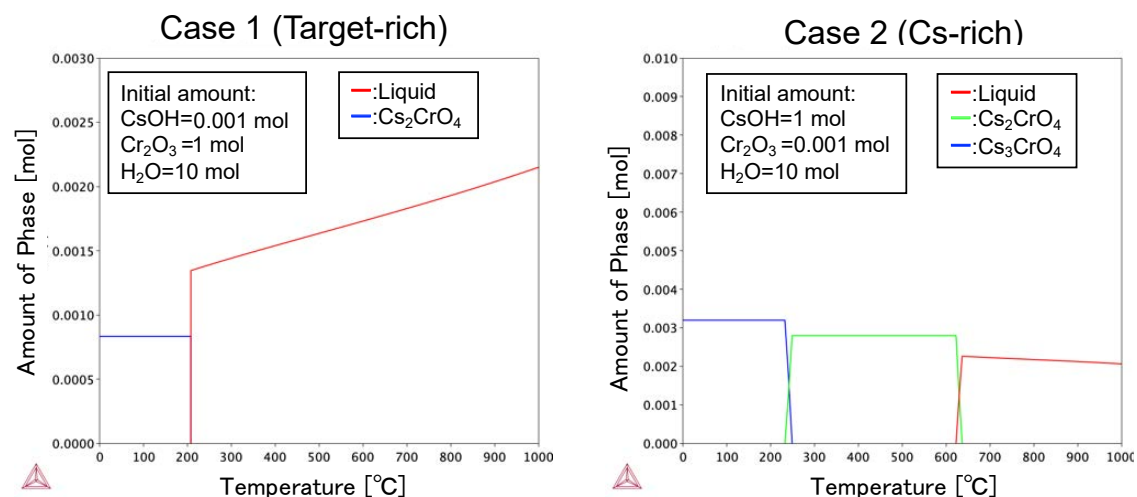


図 3. 1. 1-2 CsOH と Cr₂O₃ との相互作用反応に関する Case 1 (Cr リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果

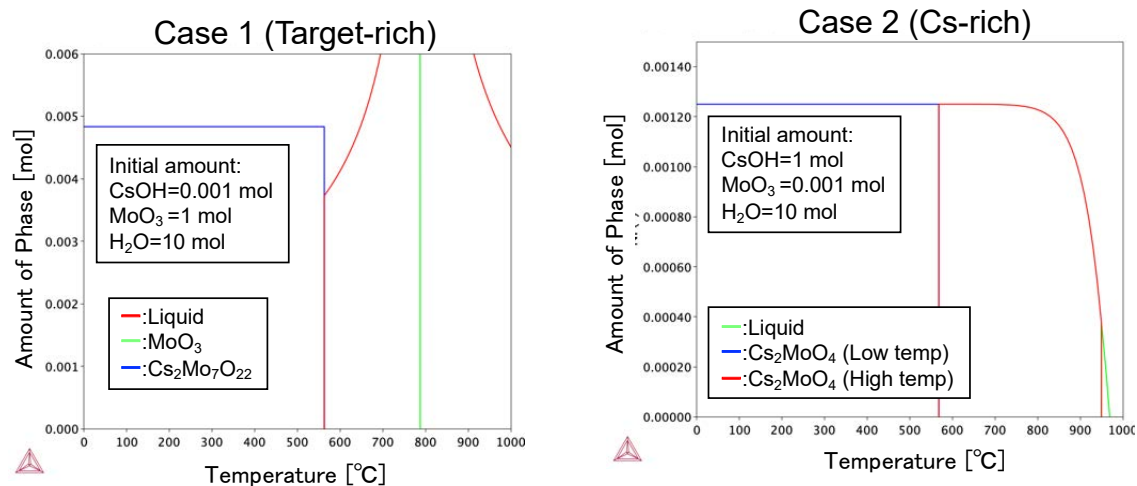


図 3.1.1-3 CsOH と MoO₃ との相互作用反応に関する Case 1 (Mo リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果

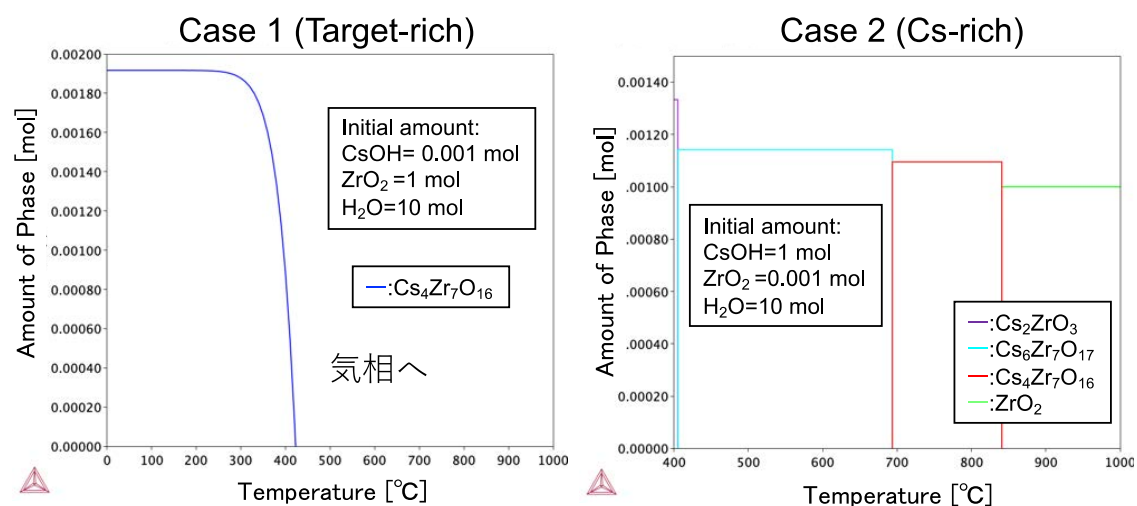
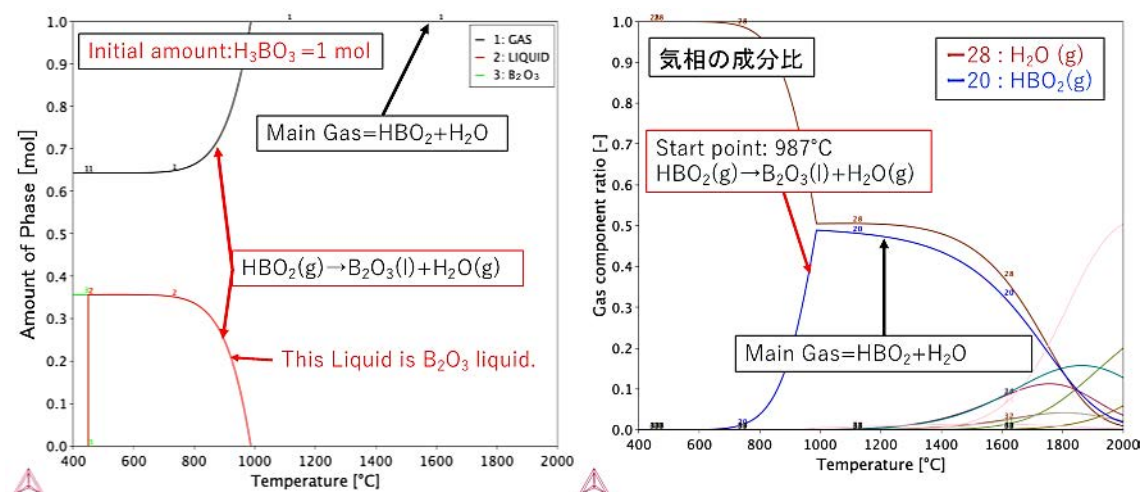
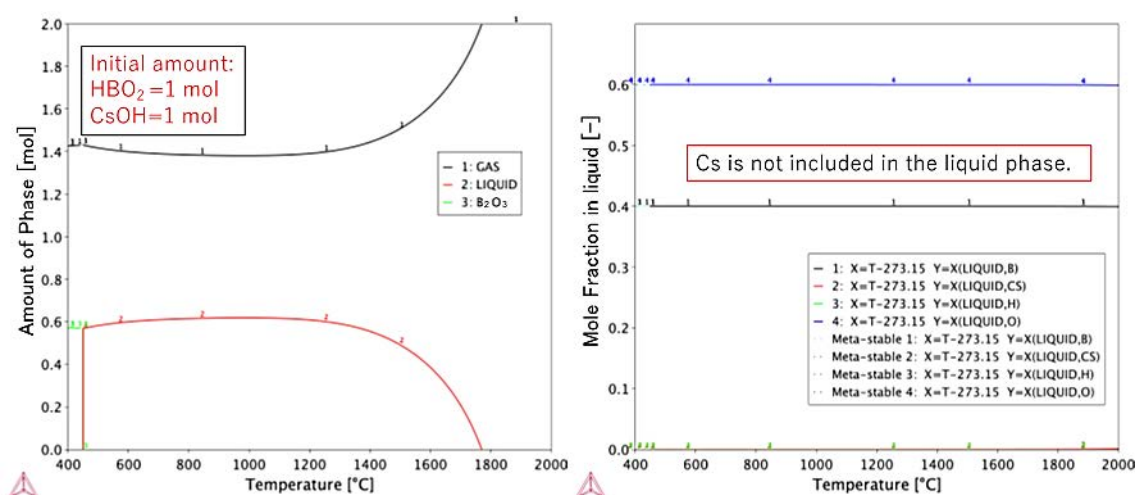


図 3.1.1-4 CsOH と ZrO₂ との相互作用反応に関する Case 1 (Zr リッチ条件) 及び Case 2 (Cs リッチ条件) についての温度と生成させる Cs 化学種量の計算結果

図 3. 1. 1-5 H_3BO_3 の温度に関する感度解析の結果図 3. 1. 1-6 CsOH と HBO_2 との相互作用反応に関する計算結果

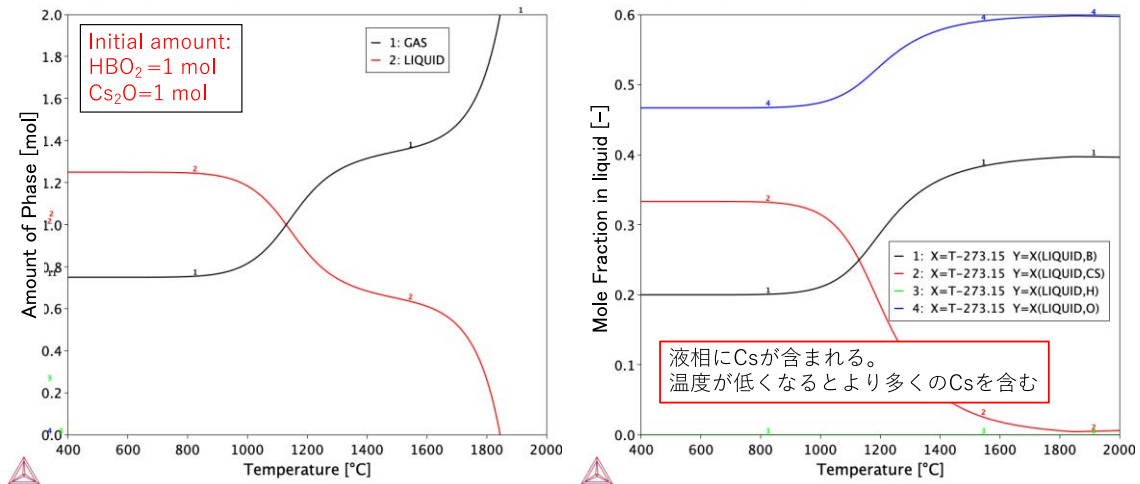


図 3.1.1-7 Cs_2O と HBO_2 との相互作用反応に関する計算結果

参考文献

- [3.1.1-1] debrisWiki [in Japanese],
<https://fdada-plus.info> (accessed 2024-01-05) .
- [3.1.1-2] 東京電力ホールディングス株式会社, 福島第一原子力発電所事故発生後の原子炉圧力容器内・格納容器内の状態推定について, (2021),
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/pdf/20210719.pdf (accessed 2024-03-11) .
- [3.1.1-3] I. Sato, S. Yoshikawa, T. Yamashita, M. Cibula, S. Mizokami, MAAP code analysis focusing on the fuel debris condition in the lower head of the pressure vessel in Fukushima-Daiichi Nuclear Power Station Unit2, Nuclear Engineering and Design, vol.404, 2023, 112574.
- [3.1.1-4] C. Gueneau, N. Dupin, L. Kjellqvist, E. Geiger, M. Kurata, S. Gosse, E. Corcoran, A. Quaini, R. Hania, A.L. Smith, M.H.A. Piro, T. Besmann, P.E.A. Turchi, J.C. Dumas, M.J. Welland, T. gata, B.O. Lee, J.R. Kennedy, C. Adkins, M. Bankhead and D. Costa, TAF-ID: An international thermodynamic database for nuclear fuels applications, Calphad, vol.72, 2021, 102212.
- [3.1.1-5] J.O. Andersson, T. Helander, L. Höglund, P.F. Shi, and B. Sundman, Thermo-Calc and DICTRA, Computational tools for materials science, Calphad, vol.26, no.2, 2002, pp.273-312.

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

(連携先：原子力機構)【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

令和3年度は、2、3号機最確シナリオにおいて重要な評価因子となる事故時のPCV内の温度に関して、事故時のPCV内壁の温度測定データとペデスタル内側領域の温度解析データがある1号機の事故シナリオに基づいて、Cs化学形態を予備的に評価した。その結果、事故時のPCV内箇所の温度の違いがCs安定相（化学種）の状態に影響することを確認した。特に、凝固途中の燃料デブリ近傍のような比較的高温領域（ペデスタル内を想定）では、 Cs_2MoO_4 が吸着する可能性が示唆された。

令和4年度は、CsOHのコンクリートへの吸着を想定した熱力学解析を実施し、その相互反応ではCs-Si-O化合物が生成され、そのCs-Si-O化合物は反応に関与するCs割合により形態が異なる可能性が示唆された。また、解析では一部のCsが約1677℃（1950 K）まで再蒸発せずに液相中に存在する結果となり、これは高温でもコンクリート中にCsが残留している可能性が高いことを示唆している。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2、3号機のシールドプラグ下の高線量から、Csの構造材への移行・付着・堆積が考えられ、そのPCV内でのCsのふるまい評価によるBackward Analysisを目指すものである。

2、3号機でのデブリ取り出しに向けた事故炉内でのCs分布の評価精度の向上がデブリへのアクセスルート構築、デブリ取り出し工程の設計等で喫緊の重要課題となっている。PCV内部でのCsのふるまいは、Cs化合物の水相を介した移行^{[3.1.2-1][3.1.2-2]}やCs化合物とコンクリート・鋼材との反応^{[3.1.2-3][3.1.2-4][3.1.2-5][3.1.2-6]}と様々なメカニズムが入り混じり、複雑になっていると考えられる。これらのメカニズムを1つ1つ解明し、主要因を特定することができれば、Cs炉内分布の精度向上に繋がると考えられる。

令和5年度は、1Fで広く使用されている玄武岩コンクリートと主要なCs化合物であるCsOHとの相互反応について温度に関する感度解析を実施する。さらに、コンクリート中の酸化鉄の影響に関する調査を行い、その傾向を評価することを目的とした。

② 解析手法

項目3.1.1と同じ熱力学データベースと計算ソフトを用いた。計算に用いたコンクリートの成分は、1Fに広く使用されている玄武岩系コンクリートの代表的な成分比を参照に、 $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{CaO} = 79 : 7 : 14$ (mol比) に設定した^[3.1.2-7]。計算条件に関しては、成分比はCsOH：コンクリート=5：95 (mol比)、計算温度は400℃～1600℃、圧力は1 atmで行った。ここで成分比は令和4年度実施条件よりCsOH割合が小さい条件で設定した。計算温度である400℃はコンクリートについてデータベース上計算可能な最低温度であり、計算温度範囲は、CsOH吸着反応が生じる可能性のある温度範囲をカバーする条件を設定した。次に、酸化鉄に関する影響に関して調査するために、コンクリート組成を $\text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3 : \text{CaO} : \text{Fe}_2\text{O}_3 = 77 : 5 : 12 : 6$ (mol比) ^[3.1.2-8]で、同様の条件で計算を実施した。

③ 熱力学解析結果

図 3.1.2-1 に、CsOH とコンクリートとの相互反応に関する温度と各相量の mol 比との関係についての計算結果を示す。Cs の挙動については、約 870 °C まで Cs-Si-O 系化合物 ($\text{Cs}_2\text{Si}_4\text{O}_9$) が安定に存在し、約 870 °C 以上では液相として安定に存在し、さらに高温にシフトするにつれて、気相がより安定となる結果を示した。令和 4 年度に実施した CsOH とコンクリートとの相互作用に関する Cs 挙動確認試験では、コンクリート表面に長石相 ($\text{Cs}(\text{AlSiO}_4)$; 500 °C ~ 900 °C) 及びポルサイト相 ($\text{Cs}(\text{AlSi}_2\text{O}_6)$; 1000 °C) といった新たな Cs 化合物が確認された。しかしながら、現在のデータベースには Cs-Si-Al-O 系化合物が格納されておらず、熱力学解析では Cs-Si-Al-O 系化合物の挙動を評価することができなかった。Cs 化合物とコンクリートとの相互反応をより詳細に評価するためにはこの Cs-Si-Al-O 化合物^{[3.1.2-9][3.1.2-10]}が重要となるので、そのデータを取得して格納する必要があると考える。

次に、図 3.1.2-2 に、CsOH と Fe_2O_3 を含有したコンクリートとの相互反応に関する温度と各相量の mol 比との関係についての計算結果を示す。酸化鉄が関与する場合、約 1150 °C 付近まで、Cs は Cs-Fe-O 化合物として安定に存在し、約 1150 °C 以上では、液相として安定に存在する結果を示した。図 3.1.2-3 に、CsOH とコンクリート及び Fe_2O_3 を含有したコンクリートとの相互反応に関する Cs の相状態及び Cs 量について結果を示す。コンクリートの場合は、温度が高温にシフトすると気相の量が増えていくが、酸化鉄が含有されている場合は、高温においても液相として安定していることが分かる。このことから、玄武岩コンクリートには、Fe 酸化物が関与すると高温まで Cs を保持する 1 つのメカニズムがある可能性が示唆される。

(3) まとめ

PCV 内で生じる可能性のある CsOH とコンクリート（玄武岩系コンクリート及び酸化鉄を含むコンクリート）との相互反応による安定化合物の特徴について、最新のデータベースを用いた熱力学解析を実施した。CsOH の玄武岩系コンクリートへの吸着を想定した場合、熱力学計算では固相としては Cs-Si-O 系化合物が安定して存在する結果を示した。しかしながら、Cs 挙動確認試験 (TG-DTA) の結果では、Cs-Si-Al-O 系化合物が生成し、かつ 1000 °C の場合もその化合物が存在することから、現状のデータベースでは、Cs-Si-Al-O 系データが不十分であり、1F 事象を推定する場合は、このデータが必要になると考えられる。次に、コンクリート中に Fe が存在する場合、約 1150 °C 付近まで、Cs は Cs-Fe-O 化合物として、安定に存在する結果を示した。温度上昇に伴い、Cs は液相として安定に存在し、高温になっても、Cs は液相として安定に存在する結果を示した。このことから、玄武岩コンクリートには、Fe 酸化物が関与すると高温まで Cs が再蒸発することなく、その場に留まる 1 つのメカニズムがある可能性が示唆される。

したがって、Cs が玄武岩系コンクリートと反応する場合、Cs の大部分は長石相 ($\text{Cs}(\text{AlSiO}_4)$) やポルサイト相 ($\text{Cs}(\text{AlSi}_2\text{O}_6)$) として、安定な相を形成して、高温でもその場に留まる可能性があり、さらに、酸化鉄が関与する条件下の場合、より高温でもその場に留まる可能性がある。以上のことから、PCV 内のコンクリートには多くの Cs が滞留している可能性があり、1F 建屋の除染にとって、この点を考慮して対応していく必要があると示唆される。

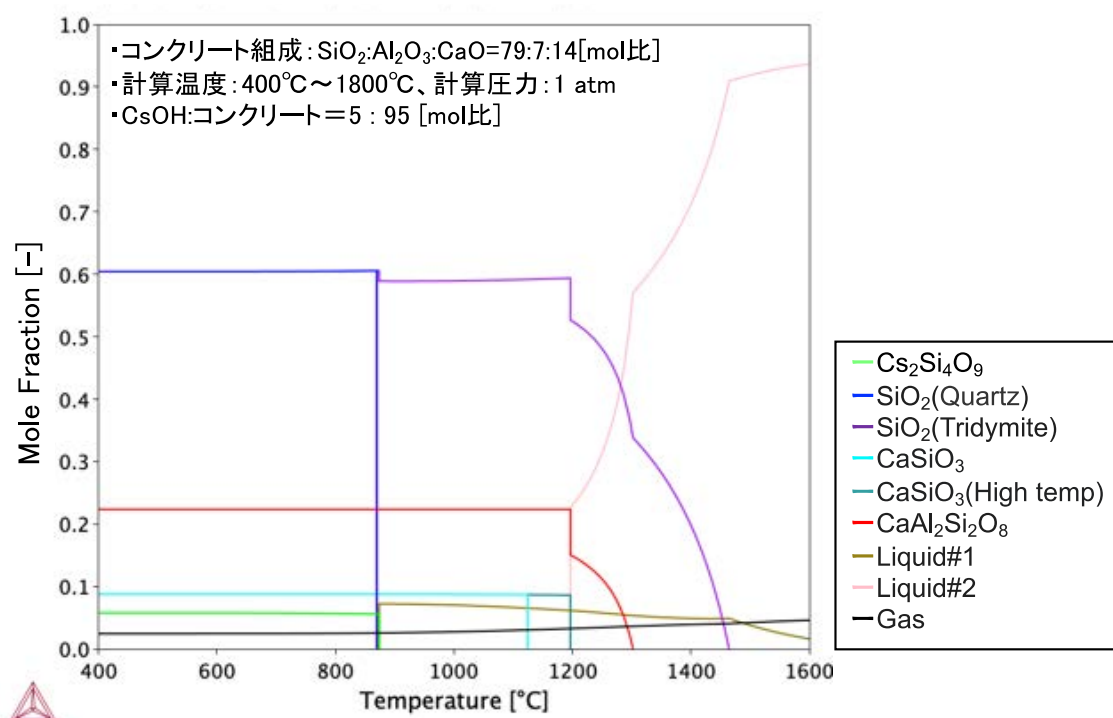


図 3. 1. 2-1 CsOH とコンクリートとの相互反応に関する
温度と各相量の mol 比との関係

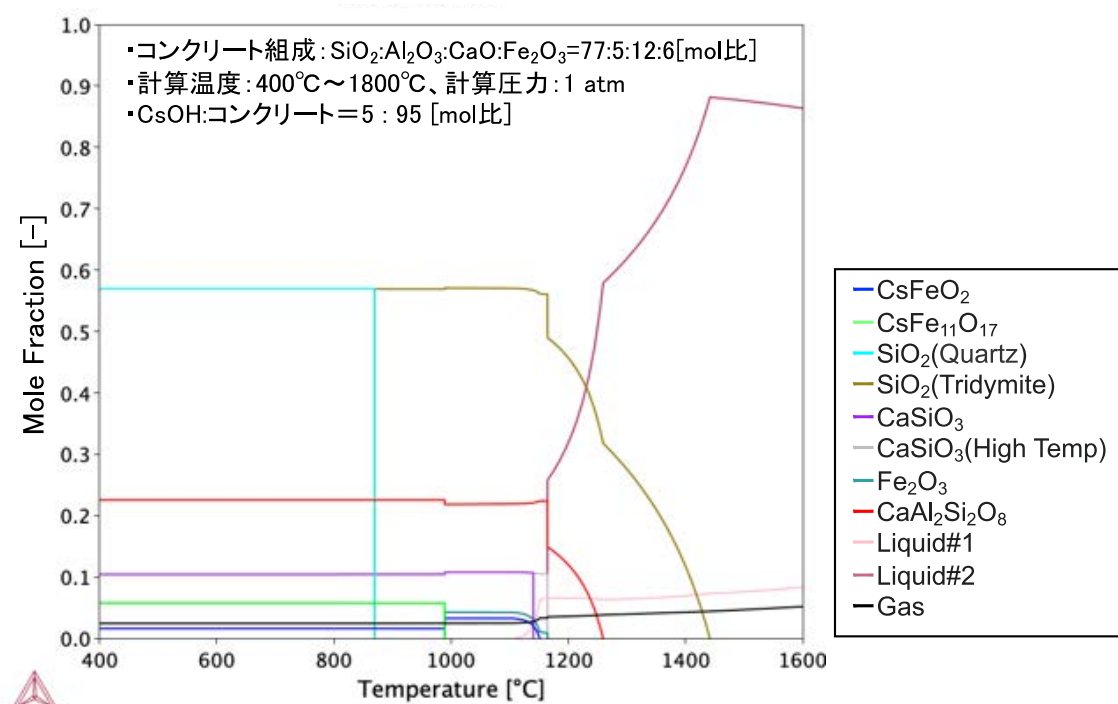


図 3. 1. 2-2 CsOH と Fe_2O_3 を含有したコンクリートとの相互反応に関する
温度と各相量の mol 比との関係

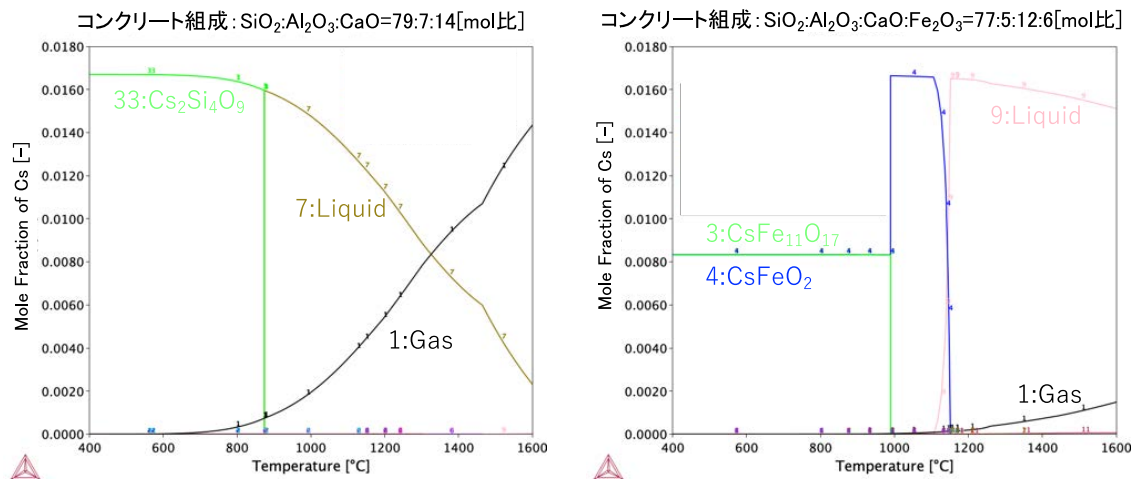


図 3. 1. 2-3 CsOH とコンクリート及び Fe_2O_3 を含有したコンクリートとの相互反応に関する Cs 相状態及び Cs 量

参考文献

- [3. 1. 2-1] 日本化学会, 化学便覧, 改訂 4 版 基礎編Ⅱ, 丸善, 1993.
- [3. 1. 2-2] Dean, J.A. and Lange, N.A., Lange's Handbook of Chemistry Fifteenth Edition, McGraw-Hill, Inc., 1999.
- [3. 1. 2-3] Elrick, R.M., Sallach, R.A., Oulette, A.L. and Douglas, S.C., Reaction between Some Cesium-Iodine Compounds and the Reactor Materials 304 Stainless Steel, Inconel 600 and Silver. vol.1- Cesium Hydroxide Reactions, NUREGCR-3197 1 of 3, SAND83-0395, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM, USA, 1984.
- [3. 1. 2-4] Miyahara, N., Miwa, S., Gouëlle, M., Imoto, J., Horiguchi, N., Sato, I. and Osaka, M., 2020, Experimental Study on Transport Behavior of Cesium Iodide in the Reactor Coolant System under LWR Severe Accident Conditions, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.57, no.12, 2020, pp.1287-1296.
- [3. 1. 2-5] Rizaal, M., Miwa, S., Suzuki, E., Imoto, J., Osaka, M. and Gouëlle, M., Revaporization Behavior of Cesium and Iodine Compounds from Their Deposits in the Steam-Boron Atmosphere, ACS Omega, vol.6, no.48, 2021, pp.32695-32708.
- [3. 1. 2-6] Sato, I. et al., Penetration behavior of water solution containing radioactive species into dried concrete/mortar and epoxy resin materials, J. Nucl. Sci. Technol., vol.52, no.4, 2015, pp.580-587.
- [3. 1. 2-7] Cole, R.K.Jr., Kelley, D.P. and Ellis, M.A., CORCON-MOD2: A Computer Program for Analysis of Molten-Core Concrete Interactions, Sandia National Laboratories, NUREG/CR-3920, SAND84-1246, 1984.

- [3.1.2-8] Ozawa, M., Yabuki, K., Shimada A. and Ueno, T., Chemical component analysis of core boring samples at reactor building in Fukushima-1 nuclear power plant, Proc. 2014 Annual Meeting of AESJ, Tokyo, Japan, Mar. 2014, pp.26-28, G35. [in Japanese].
- [3.1.2-9] 伊藤ら, 管理型最終処分場浸出水中の天然鉱物ゼオライト, イライト, バーミキュライトへの収着特性, 土木学会論文集 G (環境), vol.72, no.7, III_429-III_436, 2016.
- [3.1.2-10] Miyazaki, K., Miyazaki, K., Takehara, M., Minomo, K., Horie, K., Takehara, M., Yamasaki, S., Saito, T., Ohnuki, T., Takano, M., Shiotsu, H., Iwata, H., Vettese, G.F., Sarparanta, M.P., Law, G.T.W., Grambow, B., Ewing, R.C., Utsunomiya, S., “Invisible” radioactive cesium atoms Revealed: Pollucite inclusion in cesium-rich microparticles (CsMPs) from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, Journal of Hazardous Materials, vol.470, 2024, 134104.

3.1.3 Cs 混入酸化物の高温物性評価（再委託先：九州大学）【令和 3 年度～令和 5 年度】

(1) 令和 4 年度までの概要

令和 3 年度は、 $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系の物性を予見するため、 $\text{R}\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系溶融酸化物（R：アルカリ、アルカリ土類）の粘性に関する文献調査を追加として行った。その結果、 $10^{-2}\sim 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 程度の粘度を有することが分かり、本系融体に対して精度良く粘度測定を行うことができる条件の設定を行うことができた。令和 4 年度は、ルツボ回転法粘度測定装置（現有設備）を用いて 1773 K で $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系高温融体の粘度測定を試みた。測定の結果、1773 K において $23\sim 28 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ の粘度を有しており、 Cs_2O 量が増加するに伴い粘度も上昇する傾向が見られた。これらの粘度値はこれまでに測定例が全くなかったため、後述のような融体からのエアロゾル形成プロセスの理解に資する流動物性に関する知見を拡充できた。

(2) 令和 5 年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2、3 号機のシールドプラグ下の高線量から、Cs の構造材への移行・付着・堆積が考えられ、その移行経路の 1 つとして $\text{Cs}_2\text{O}-\text{FeO}$ 系エアロゾルの発生、移動が考えられる。本系エアロゾルの発生メカニズムへのアプローチによる Backward Analysis を目指すものである。

RPV 内 (in-vessel) 条件にて、いったん蒸発した Cs や燃料ペレット中に残留した Cs が、構造材であるステンレス鋼表面に付着し、これと反応することによって、その表面に $\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系融体を形成する可能性があることに着目した。具体的には、炉心溶融時において融解したステンレス鋼主体の制御棒が、燃料棒から放出される Cs と接した。また、下部プレナムに落下した燃料ペレットに残存した Cs が、燃料棒またはステンレス鋼由来のデブリに接した。その後、事故進展に伴う温度上昇により、この融体からエアロゾルが形成・飛散すると考えられ、炉内での Cs 移行・再凝縮に影響を与えると考えられる。

これによって、2、3 号機の Cs 移行挙動の評価に必要な Cs_2O 酸化物系の粘度を精緻に測定することで、炉内 Cs 分布の評価精度向上に資する融体からのエアロゾル形成プロセス理解の一助となる流動物性に関する知見を拡充することを目的とし、 $\text{SiO}_2-\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度に及ぼす SiO_2 含有量及び $\text{Cs}_2\text{O}/\text{Fe}_2\text{O}_3$ 比の影響を系統的に測定した。

② 実験方法

測定を行う $\text{SiO}_2-\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の試料組成を選定するために、Yamaguchi らが 1F から放出された Cs を含んだ放射性マイクロ粒子の STEM-EDS 解析を行った結果を参照した^[3.1.3-1]。その結果、Cs を含んだ放射性マイクロ粒子の SiO_2 含有量は 69.3 及び 73.3 mass% であった。また、 $\text{Cs}_2\text{O}/\text{Fe}_2\text{O}_3$ 比 (mass%) はそれぞれ 0.40 ($\text{Cs}_2\text{O}/\text{Fe}_2\text{O}_3=3.4/8.6$) 及び 0.46 ($\text{Cs}_2\text{O}/\text{Fe}_2\text{O}_3=3.3/7.2$) であることが分かった。この SiO_2 含有量及び $\text{Cs}_2\text{O}/\text{Fe}_2\text{O}_3$ 比 (mass%) を基準に選定した $\text{SiO}_2-\text{Cs}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の試料組成を表 3.1.3-1 に示す。また、粘度測定に用いるコンタクトマテリアルの選定及び測定条件の設定は令和 3 年度に行った $\text{R}\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3$ 系溶融酸化物（R：アルカリ、アルカリ土類）の粘性に関する文献調査の結果、 $10^{-3}\sim 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ 程度の粘度に対して精度良く粘度測定を行うことができる手法は回転法^[3.1.3-2]であり、コンタクトマテリアルとして酸化物融体に対して反応性が低く高温における強度を有する Pt-20 mass%Rh 合金製のルツボ及びロッド（回転モメント：トルクを検出する測定子）を採用した。

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

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

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

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

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

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

試料融体の温度検出は R-Type (Pt/Pt-13 mass%Rh) 熱電対をルツボの真横に設置して行った。また、回転は支持台をモーター (Oriental Motor、MSM425-402) に接続して行った。ダンパーオイルの粘度、モーターの回転数、ルツボの形状、ロッドの浸漬深さ、トーションワイヤーの径または長さ等については、粘度既知のシリコンオイルを用いて検定を行っており、高温での検定は SRM2 を用いて行った^[3.1.3-2]。

表 3.1.3-1 に示す組成に秤量混合した後に、混合粉末を Pt-20 mass%Rh 合金製のルツボに入れて炉内に設置し、1873 K まで昇温した。その後、1873 K において保持を行い、熔融を確認後、回転数 60 rpm によって、試料融体の粘性抵抗によって生じる電位差を測定した。この電位差をあらかじめ作成しておいた検量線の式に代入して見かけの粘度を求めた後、各温度における Pt-20 mass%Rh 合金製のルツボ及びロッドの熱膨張による影響を補正して粘度とした。なお、粘度測定は大気雰囲気にて行い、また、ロッド等の測定系を懸垂するトーションワイヤーは $\phi 0.30 \times L40$ mm を採用した。

③ 結果と考察

図 3.1.3-3 に、 $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度測定結果を温度による変化として示す。これよりいずれの組成においても温度の低下に伴って $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度は増加することが分かった。また、1873 K において 0.45～2.40 Pa・s の粘度を有することが明らかとなったが、これは令和 4 年度に測定した SiO_2 を含有しない $\text{Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体が 1773 K において 0.023～0.028 Pa・s の粘度を示したことから、 SiO_2 を 50～60 mass% 添加することにより融体の粘度が大幅に増大することが分かった。これは、 SiO_2 が融体中にネットワーク構造を形成することによって、流動ユニットが大きくなったためであると考えられる。図 3.1.3-4 に 1873 K における $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度測定結果を $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比による変化として示す。これより 60 mass% SiO_2 における $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度は $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比が 1.5 程度にて極大値を有することが分かった。これは、融体中の Fe^{3+} イオンの両性的挙動によるものであると考えられる。融体中の Fe^{3+} は、酸素 4 配位 4 面体の中心に位置し、 FeO_4^{5-} をモノマーとしたネットワーク構造を形成する $\text{Fe}(\text{tetr.})$ と、酸素 6 配位 8 面体の中心に位置し、陽イオンとして挙動する $\text{Fe}(\text{oct.})$ を取ると考えられる^[3.1.3-3]。また、 FeO_4^{5-} をモノマーとしたネットワーク構造は Cs^+ が電荷補償イオンとしての役割を担うことによって安定する。そのため、 Cs_2O 量が増加するに伴い、 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比が低下し、 $\text{Fe}(\text{tetr.})$ の存在比が増加したことによってネットワークが形成され粘度が上昇したのち、過剰の Cs_2O が $\text{Fe}(\text{tetr.})$ 及び SiO_2 を含む融体のネットワーク重合度を低下させるため粘度が低下したものと推定される。50 mass% SiO_2 における $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の粘度は 2 点のみであるため、 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比に対して極値を有するか否か判断できないが、 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比が 1.5 程度において高い粘度値を示していることから同様の傾向が予想される。

(3) まとめ

ルツボ回転法粘度測定装置（現有設備）を用いて $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系高温融体の粘度測定を試みた。測定の結果、1873 K において 0.45～2.40 Pa・s の粘度を有しており、 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比に対して粘度が極値を示す傾向が見られた。これらの粘度値はこれまでに測定例が全くなかったが、流動性が高い $\text{Cs}_2\text{O-FeO}$ 系融体からはエアロゾルが発生しやすく、 SiO_2 含有状態になると発生しにくいことが予見されるなど、融体からのエアロゾル形成プロセスの理解に資する流動物性に関する知見を拡充できた。

表 3.1.3-1 粘度測定を試みた $\text{SiO}_2\text{-Cs}_2\text{O-Fe}_2\text{O}_3$ 系融体の試料組成 (mass%)

	SiO_2	Cs_2O	Fe_2O_3
No. 1	50	16.7	33.3
No. 2	50	20.0	30.0
No. 3	60	13.3	26.7
No. 4	60	16.0	24.0
No. 5	60	30.8	9.2

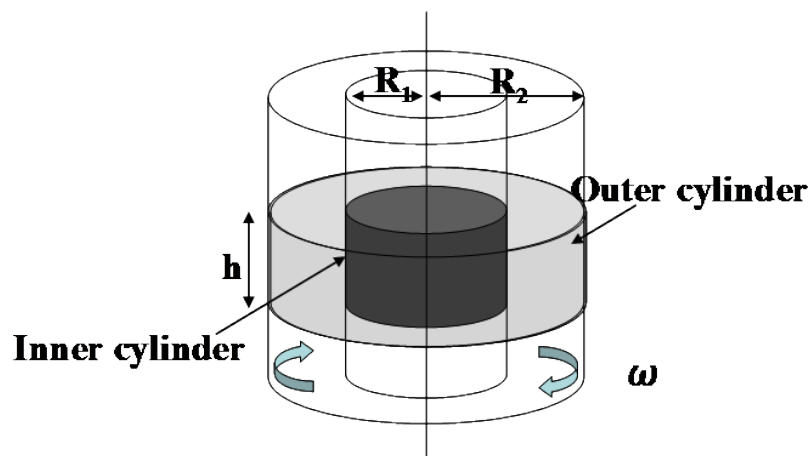


図 3.1.3-1 回転法による酸化物融体の粘度測定原理図

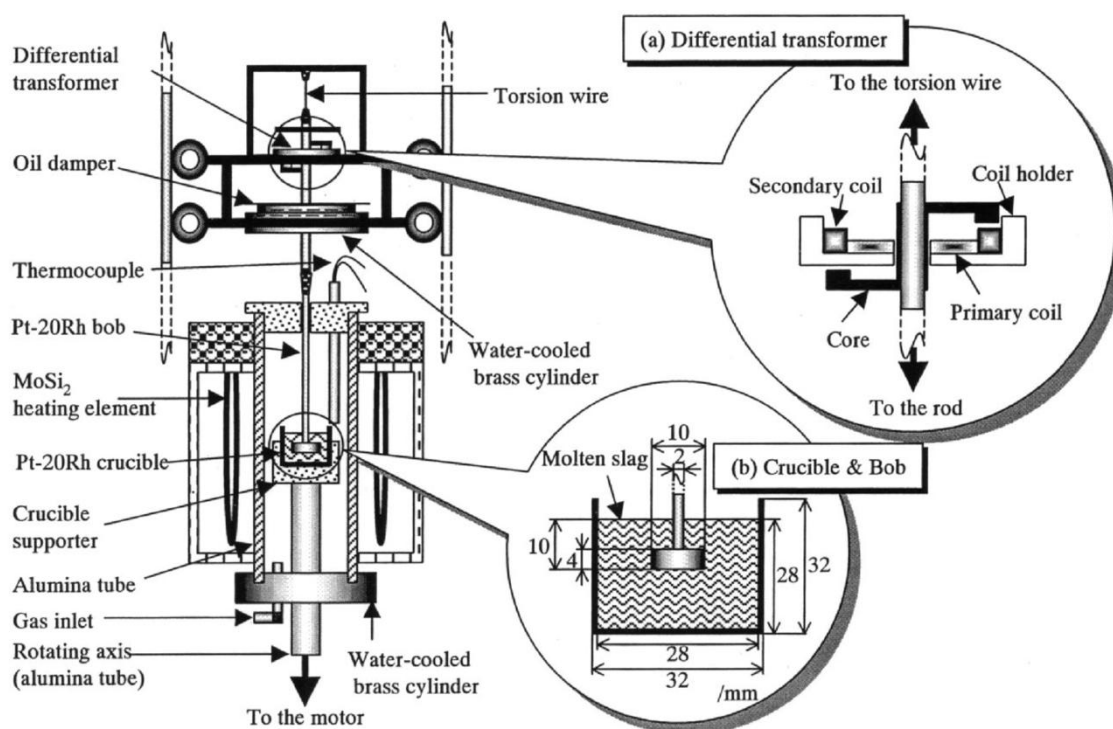


図 3.1.3-2 回転法による粘度測定装置の概略図
 (出典：Metallurgical and Materials Transactions B^[3.1.3-2])

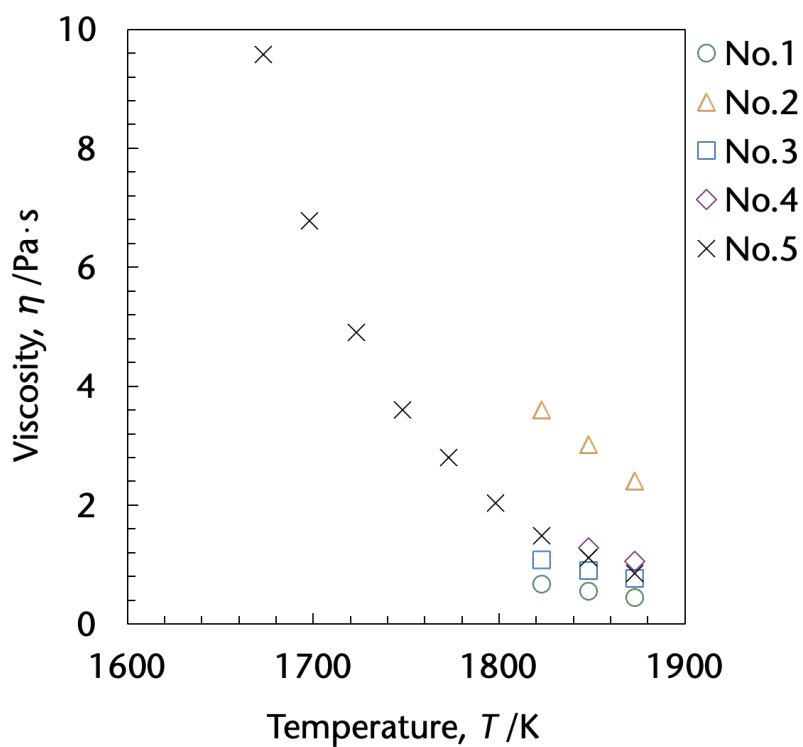


図 3.1.3-3 SiO₂-Cs₂O-Fe₂O₃ 系融体の粘度の温度依存性

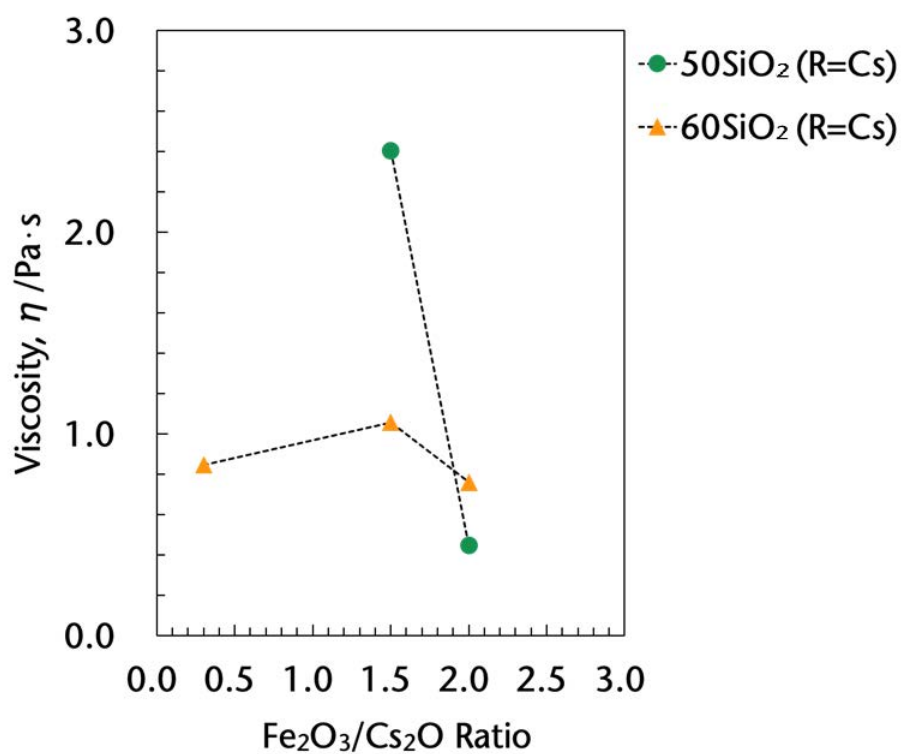


図 3.1.3-4 1873 K における SiO₂-Cs₂O-Fe₂O₃ 系融体の粘度に及ぼす Fe₂O₃/Cs₂O 比の影響

参考文献

- [3.1.3-1] N. Yamaguchi, M. Mitome, A-H. Kotone, M. Asano, K. Adachi and T. Kogure, Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant, Scientific Reports, vol.6, no.1, 2016, 20548. <https://doi.org/10.1038/srep20548>
- [3.1.3-2] N. Saito, N. Hori, K. Nakashima and K. Mori, Viscosity of Blast Furnace Type Slags, Metall. Mater. Trans. B, vol.34, no.5, 2003, pp.509-516. <https://doi.org/10.1007/s11663-003-0018-9>
- [3.1.3-3] 角田成夫, 三森隆, 森永健次, 柳ヶ瀬勉, Fe₂O₃を含むスラグの粘度, 日本金属学会誌, vol.44, no.1, 1980, pp.94-99. https://doi.org/10.2320/jinstmet1952.44.1_94

3.1.4 Cs 挙動確認試験（連携先：原子力機構）【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

Cs 化合物 (CsOH 、 CsI 、 Cs_2SiO_3) とステンレス鋼 (SUS316L)、模擬金属デブリ (Fe-Zr 系及び Fe-B 系デブリ: CLADS-MADE 試験から採取) 及びコンクリートとの相互作用に関して、TG-DTA を使用し、Cs 挙動確認試験を実施してきた。微細構造観察の結果、未酸化部分への Cs 浸透は確認されなかった。一方で、酸化物層へは容易に浸透することが明らかになった。酸化物層内には新たな Cs 化合物は確認されなかったが、酸化物表面に少量ではあるが Cs 化合物が検出された。SEM-EDS、XRD (X-ray Diffraction: X線回折) 及びラマン分光法により、ステンレス鋼や模擬金属デブリの表面には Cs_2CrO_4 、コンクリート表面には長石相 ($\text{Cs}(\text{AlSiO}_4)$ at 500 °C～900 °C) 及びポルサイト相 ($\text{Cs}(\text{AlSi}_2\text{O}_6)$ at 1000 °C) といった相互作用による新たな相が確認された。

また、令和5年度に実施する大規模試験に備え、シングルロッド試験を実施した。開閉機能付きロッドの製作やその中への Cs 化合物の挿入方法を考案した。また、大型装置を使用した事前加熱試験を実施し、大規模試験の温度シナリオや条件を設定した。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2、3号機のシールドプラグ下の高線量から、Cs の構造材への移行・付着・堆積が考えられ、これらの現象の事故進展を模擬した大規模実験を行い、明らかにすることによる Backward Analysis を目指すものである。

令和4年度は、局所的な Cs 相互作用の傾向・特徴に関して分析評価を実施した。しかしながら、大規模の場合にも、同様な傾向・特徴があるかどうかは不明である。また、文献調査から、これまでに実施された OUT-OF-PILE 試験において、被覆管から放出する Cs 化学種とその反応挙動を模擬するために、被覆管に Cs 化合物を充填したものはなかった。そこで、令和5年度は、Cs 移行挙動の不確実な点を減らすために、被覆管に Cs 化合物を充填した燃料棒を用いて、事故時を模擬した高温水蒸気中での Cs の挙動を確認する大規模試験を実施し、被覆管の破裂による Cs 放出から移行・吸着に関する評価を行った。さらに、1F 各号機の汚染メカニズムや条件の解明に役立つと考えられるデータをとりまとめた。

② 実験方法

本試験 (CLADS-MADE-05) は、LEISAN 試験装置を用いて行った。図 3.1.4-1 に大規模試験の加熱試料の概略図を示す。試料は、Cs 充填ロッド、チャンネルボックス、制御棒、制御ブレード及び台座からなる。各ロッドには、Cs 化合物として、0.3 g の CsI と 0.5 g の CsOH が充填されている。また、Cs 化合物放出後の移行経路と予想されるマッフル上部には、ステンレス鋼と炭素鋼のクーポンを設置し、Cs 化合物の付着に関する調査を行った (図 3.1.4-1)。

図 3.1.4-2 に、本試験の温度シナリオを示す。令和5年度までに議論されてきた事故進展に関する最確シナリオに基づいて設定した。試料の高温到達温度は約 1600 °C を想定した。水蒸気雰囲気中で 0.6 °C/s の加熱速度でヒーター温度が 1600 °C に達するまで昇温し、その後 25 分間、その温度で保持した。ここで、マッフル上部では、軸方向の温度勾配により、約 500 °C～1400 °C となると想定される。保持後、水蒸気発生装置のスイッチを切り、Ar 中で自然冷却を行った。装置内が室温まで冷却後、ガラス窓への

付着物や加熱後クーポンを採取した。試験中の温度履歴に関しては、W-Re タイプの熱電対をチャンネルボックスや制御ブレードなど高さの異なる 9 箇所に設置して検出した（表 3.1.4-1）。採取した試料に関しては、TG-DTA（NETZSCH STA 2500 Regulus : Selb, Germany）、SEM-EDS 装置（JEOL、JSM-7800F）、ラマン分光分析器を用いて分析を行った。

③ 試験結果

図 3.1.4-3 に、大規模試験中の温度履歴を示す。約 4600～4700 秒で CsOH 化合物の蒸発開始温度（272 °C～300 °C）に達した。また、約 4750 秒において、CsOH の熔融が活発になったことによる TC1 の温度の大きな経時変化を確認した。4900 秒の TC1 の温度は約 360 °C で、温度は令和 4 年度のシングルロッド試験と同様にその後上昇し続けた。

1) 観察ガラス窓への付着

これまでの試験（CLADS-MADE-01～04、CLADS-MADE : Mock-up Assembly Degradation）では、B 系エアロゾル（ホウ酸、メタホウ酸、酸化ホウ素等）の明確な煙の発生は、制御ブレードの熔融が開始してから数分後に観察され、そのほとんどが上部カメラで観察されていた。しかしながら、本試験（CLADS-MADE-05）では、低温の約 1000 °C（約 5600 秒）で、すでに灰色のエアロゾルがすべてのカメラで観察された。約 1100 °C 付近でエアロゾル煙の量が非常に多くなり、上部カメラが視界を失った。その後は、他の 2 台のカメラで観測を続けた。

本試験（CLADS-MADE-05）でのエアロゾルの特徴

- エアロゾルは、一部のクーポンと Si ガラスの観察窓（窓の最高到達温度は 200 °C）で付着していた（図 3.1.4-4）。
- エアロゾルは Si ガラスとは反応はしていなかった。付着物はガラスから容易に分離できた。
- SEM-EDS による分析結果では、付着物は B_2O_3 で構成されており、その中に溶解した Cs_2O が約 5～6 wt% 含まれていた。
- 付着した比較的薄い層（付着したエアロゾル層全体の厚さの 1/10）は、ほとんどが B_2O_3 からなる約 1.3 μm の球状粒子で構成されていた。粒子中の母相は B_2O_3 であったが、約 45 wt% の Cs_2O 、約 15 wt% の CsI 及び他の酸化物（<5 wt%）が含まれていた。Cs 含有量が非常に高いため、反射電子画像の色はほぼ白であった。
- ラマン分光分析の結果、 B_2O_3 のピークパターンは得られなかった。すなわち、酸化ホウ素の非晶質形態（g ; B_2O_3 ）であった。TG-DTA でこの化合物の融解温度をチェックすると、金属のような鋭いピークではなく、幅広い融解のピークが得られた。熔融範囲は 328 °C～564 °C であることが確認された（図 3.1.4-5）。これは B_2O_3 に関するデータに比較的近い値であった^[3.1.4-1]。

2) クーポンへの付着

クーポンの表面に対して SEM-EDS 分析を実施した。図 3.1.4-6 a)～f) に各推定温度域まで加熱されたクーポンの表面の SEM-EDS 分析結果を示す。ここで、温度については、化合物の融解温度に基づく間接的な観察によって決定されたもので、あくまで推定である。また、結果の一部に WO_2 が含まれているが、これは熱電対の劣化によるものなので、本分析では無視する。以下に各推定温度域での特徴を示す。

- 図 3.1.4-6 a) 炭素鋼：推定温度 350 °C～400 °C
B₂O₃ ガラス（ホウ酸ガラス）上に Cs₂O-CsI の析出物が多数検出された。B₂O₃ ガラス母相には、Cs が 0.5 wt%未満含まれていた（元素 EDX によって測定）。
- 図 3.1.4-6 b) 炭素鋼：推定温度 400 °C～500 °C
350 °C～400 °Cと同様の Cs₂O-CsI 析出物が一部表面で検出された。
- 図 3.1.4-6 c) ステンレス鋼：推定温度 400 °C～500 °C
Cs が 0.3 wt%未満含有している B₂O₃ ガラスが検出された。
- 図 3.1.4-6 d) 炭素鋼：推定温度 800 °C～900 °C
B₂O₃ ガラス内に Cs₂O-CsI のいくつかの析出物を検出した。
- 図 3.1.4-6 e) ステンレス鋼：推定温度 1000 °C以上
針状物質のみに非常に少量の Cs が含まれていた。これらの針状物質は、SiO₂ ベースの酸化物であった。しかし、温度の上昇に伴い、付着 Cs 量が不十分になり、Cs ケイ酸塩が形成されなかったことが示唆される。
- 図 3.1.4-6 f) ステンレス鋼：推定温度 1400 °C以上
ステンレス鋼由来の酸化物だけが検出された。これらの酸化物の表面には Cs は検出されなかった。

大規模の SA を想定した試験の結果として、本試験（CLADS-MADE-05）ではじめて、微量の Cs を含む H₃BO₃ エアロゾルから B₂O₃ ガラスの生成が確認された。令和 5 年度は、スチームドライヤーとスチームセパレーターを簡略化した方法で再現することが試みられ、事故条件下での炉材料の挙動について新たな知見が得られた。

(3) 考察

TG-DTA による Cs 挙動確認試験や大規模 Cs 移行挙動試験（CLADS-MADE-05）の結果から、以下の知見が得られた。

1) TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果

Cs 化合物の表面への付着に関して、500 °C以下では表面への密着性や浸透性が低く、大きな影響はないことが確認された。500 °C以上では、Cs 化合物が Cr₂O₃ 表面に Cs 化合物が吸着する可能性があり、クロム酸セシウム（Cs₂CrO₄）のような Cs 含有相の形成が確認された。また、令和 5 年度の分析で、未知の結晶相であったものが、モリブデン酸セシウム（Cs₂MoO₄）であったことが確認された。Cs₂CrO₄ と Cs₂MoO₄ は、Cr と Mo の酸化物が存在する反応領域で局所的に Cs 濃度が高い場合に形成される可能性のある主な化合物である。

Cs 化合物がコンクリート表面に沈殿すると、Si 及び Al 酸化物との反応が起こり、500 °C～600 °Cで長石状相の形成が確認された。温度が 1000 °Cに達すると、安定した形態の鉱物ポルサイトの形成が確認された。このように Cs 化合物は、コンクリートとの相互作用により、不溶性の相になるため、廃炉措置の際にはこれを理解して考慮する必要がある。

2) 大規模 Cs 移行挙動試験（CLADS-MADE-05）の結果

大規模試験の場合、Cs はより広い範囲に分布し、気相または液相として、B 系エアロゾルと反応する可能性があることが確認された。これは TG-DTA による Cs 挙動確認試験結果とは異なるものであった。分析結果から、Cs は主に B₂O₃ ガラス母相中に含有されているか、母相表面に Cs₂O 及び極少量の CsI の形で確認された。

Cs_2O が B_2O_3 に溶解し、鋼材表面に付着した場合、 Cs_2CrO_4 や Cs_2MoO_4 といった Cs 化合物が形成されない可能性があり、その結果、本試験において、温度が 500 °C～1000 °C の範囲にあったにも拘わらず、ステンレス鋼等との相互反応による Cs 化合物の生成が確認されなかったと考えられる。

ここで、基本的に炉心から発生する B 系エアロゾルは、ホウ酸であり、ホウ酸の状態で排気されると考えられる。なぜなら、高温の水蒸気雰囲気中では、化学量論的にホウ酸が安定であり、脱水のためには、高温かつ長時間保持が必要であると考えられるからである。過去の研究による熱力学的アプローチによれば、湿潤雰囲気の場合、800 °C～900 °C 以下では、主相は H_3BO_3 であると述べられている^[3.1.4-3]。また、実際に過去のすべての LEISAN 装置を使用した試験では、排気ラインの付着物はすべてホウ酸であった。しかしながら、本試験のように、B 系エアロゾルの移行経路に障害（クーポン）がある場合、以下のメカニズムにより Cs 含有 B_2O_3 が生成された可能性がある。

- クーポンは、B 系エアロゾルの移行経路にあり、500 °C～1000 °C といった比較的高温の排気ライン内に配置されていた。
- B 系エアロゾル移行中に、ホウ酸の一部がこれらのクーポンで凝縮し、留まったことが示唆される。
- 高温水蒸気の影響が長く続くと、最終的にはホウ酸が段階的に脱水され、メタホウ酸（さらに、その安定な二量体^[3.1.4-4]）、さらに脱水され B_2O_3 に至る可能性がある。
- したがって、 B_2O_3 が形成されると、1000 °C 以下での再蒸発は制限される^[3.1.4-3]。500 °C～1000 °C 排気ライン内では、再蒸発能が低い液体の状態で留まる可能性がある。
- 液化しているため、エアロゾルをキャッチしやすくなる。（非晶質 B_2O_3 の軟化範囲は、325 °C～約 500 °C（液体）と非常に広い。）

本試験中、このような温度はかなりの時間維持されたと考えられる。したがって、観察窓に取り付けられた表面層によって観察されたように、飛散するエアロゾルから Cs 化合物の一部を吸着する可能性がある。ただし、吸着された Cs の割合は温度に依存する。 B_2O_3 と CsBO_2 (Cs_2O と B_2O_3 の相互作用の結果として形成される可能性がある化合物) との蒸気圧は大きく異なる^[3.1.4-2]。また、メタホウ酸セシウムは、約 500 °C～1000 °C の範囲で B_2O_3 よりも気相になりやすく、このために、最も高温域クーポンには B_2O_3 ガラスも Cs も確認されなかったと考えられる。一方、約 800 °C～300 °C の異なるクーポンには、0.3～5 wt% の元素状 Cs の溶解が確認された。

最後に、観察窓上の付着物（1400 °C から 200 °C に急冷）には 11 wt% の Cs（金属に再計算）が含まれ、ホウ酸ガラス中には、 Cs_2O を 45 wt% 含有しているものも確認した。しかし、そのような高濃縮ホウ酸ガラスの量はわずかであった。このような急速な冷却により、 CsBO_2 や他の Cs_2O - B_2O_3 系化合物の結晶形は確認されなかったものと考えられる。 B_2O_3 ガラスへの Cs の含有量は少ないように見えているが、試験後に堆積した酸化ホウ素ガラスの量を考慮すると、その中に吸着された Cs の絶対量は試験装置規模ではかなり大きくなる可能性がある。

(4) まとめ

本研究の結果から、Cs 移行の複雑な問題についての重要な理解が得られた。Cs 相互作用の可能性、その相互作用の可能な温度及びその他条件について概説した。現時点では、次のステップのためには、1F からの実際の Cs に汚染されたサンプルによる研究が必要である。研究はモデル材料やシミュレーション条件に限定されており、たとえ大規模な LEISAN 装置を使用してもプロセスの全体像を作り出すことができないことが明らかになりつつある。実際のサンプルとその相組成から得られる情報は、必然的に事故の理解を新たなレベルに高め、現在存在する多くの疑問や不確かな事故シナリオの答えを導き出し、損傷した 1F の各号機で何が起こったのかを明確にしてくれるものと思われる。

令和 5 年度の大規模試験により、1F 事故条件下での Cs の挙動の理解が大きく前進した。大規模なスケールでは、Cs の挙動の多くは、同時に存在するエアロゾルと、Cs 化合物と別のエアロゾルの相互の全体濃度に依存することが判明した。表面に吸着された場合、付着後の Cs 化合物の形態は、エアロゾル相におけるそれらの相互作用の前史及び堆積された Cs 化合物の濃度に強く依存する。吸着状態での反応は主に Cs 化合物の形態とその利用可能性に依存するため、これは重要である。TG-DTA の小規模試験では、初期状態の CsOH により、局所的に Cs_2CrO_4 と Cs_2MoO_4 の形成が確認されたが、大規模試験の場合、CsOH は Cs_2O に分解されるため、CsOH は検出されなかった。一方で、少量の CsI は確認された。Cs の最終形態は、 B_2O_3 ガラスに溶解した Cs 酸化物であり、これは以前の研究や熱力学計算と完全に一致している。B 系エアロゾル相、炭素鋼及びステンレス鋼クーポンの表面での観察からは、Cs 化合物生成のような内部への顕著な浸透は確認されなかった。その原因の 1 つは、本試験の条件下では鋼表面の酸化層が厚く成長することができなかったこと、また、もう 1 つは対象反応物に対する Cs 濃度が低かったと考えられる。付着部分の Cs 濃度が高い場合には、各対象反応物との小規模試験 (Cs 挙動確認試験) の結果を大規模試験に適用することが可能である。したがって、LEISAN 装置での大規模な CLADS-MADE テストと小規模な TG-DTA テストを組み合わせることにより、事故中の Cs のふるまいについての理解が広がった。したがって、本研究における目的は達成された。

表 3.1.4-1 サンプルの底部 (0 mm) からの熱電対の高さ (mm)

TC1	TC2	TC3	TC4	TC5	TC6	TC7	TC8	TC9
490	423	335	250	180	159	105	50	0

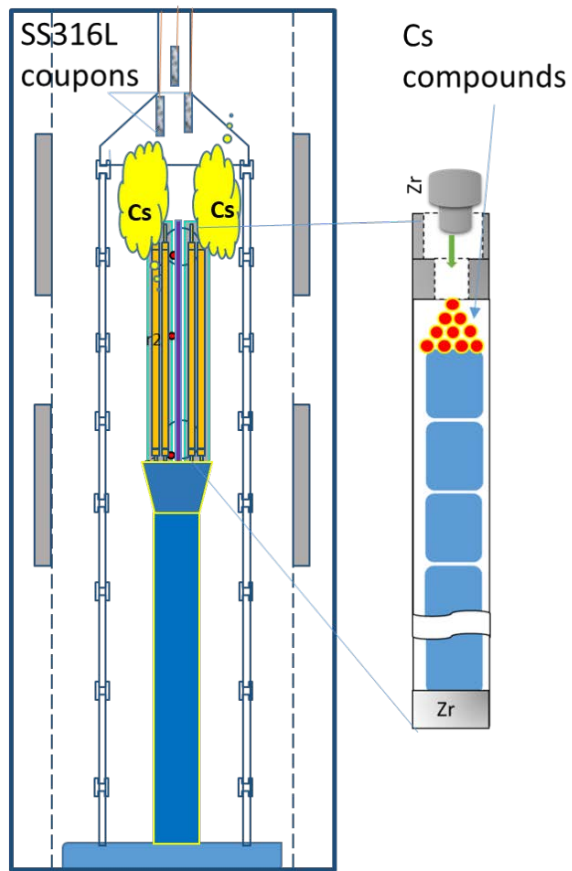


図 3. 1. 4-1 CLADS-MADE-05 試料の概略図

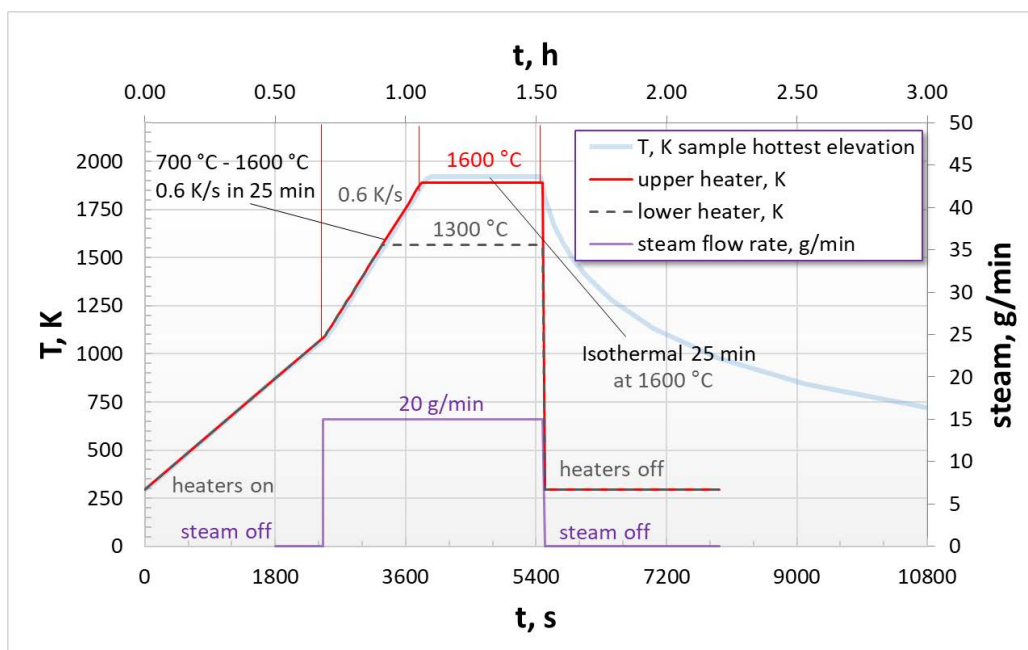


図 3. 1. 4-2 CLADS-MADE-05 試験の温度シナリオの概要

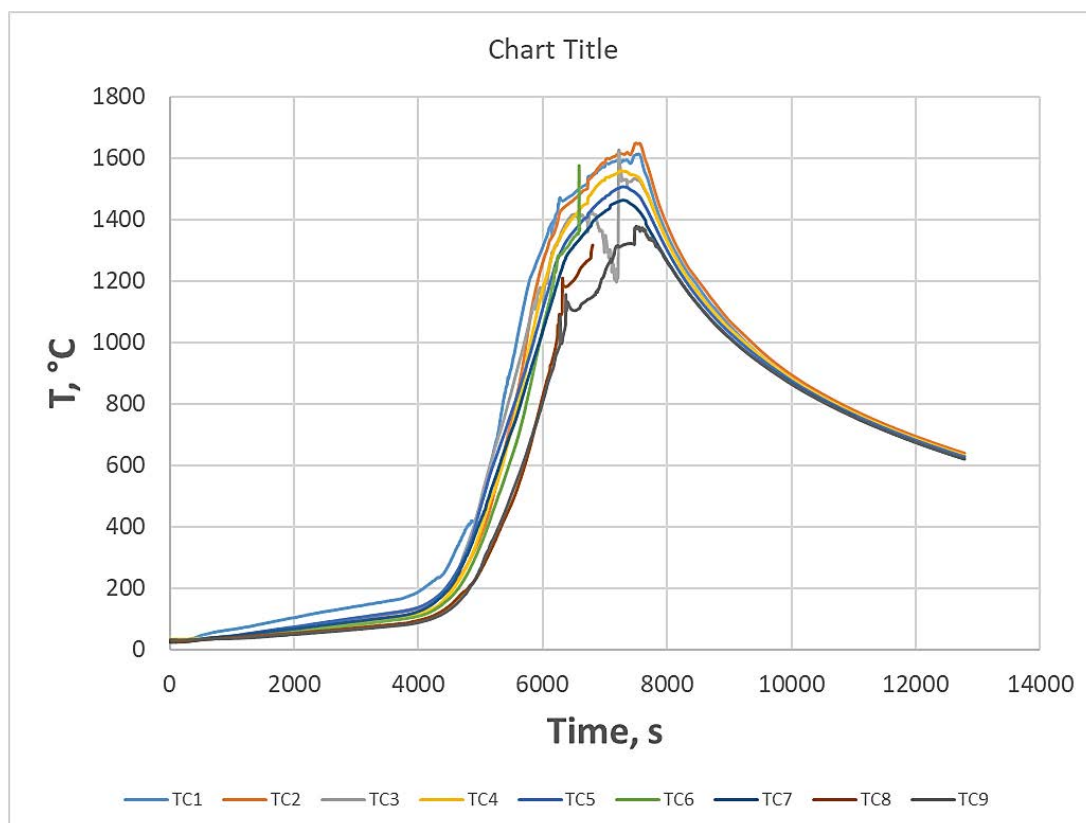


図 3. 1. 4-3 CLADS-MADE-05 試験試料の温度履歴

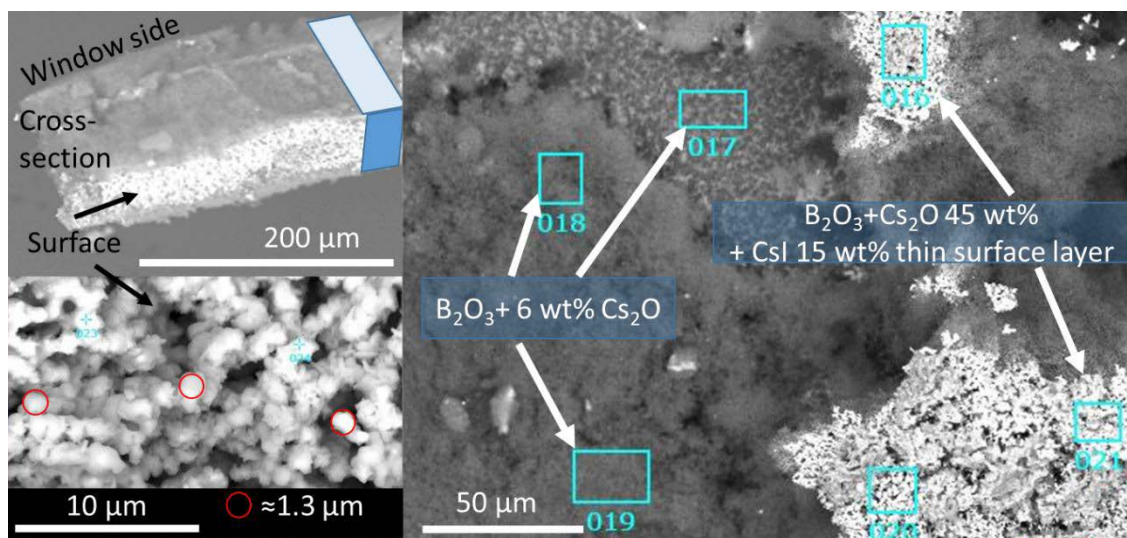


図 3.1.4-4 上部観察窓ガラスに付着した B 及び Cs を含むエアロゾル

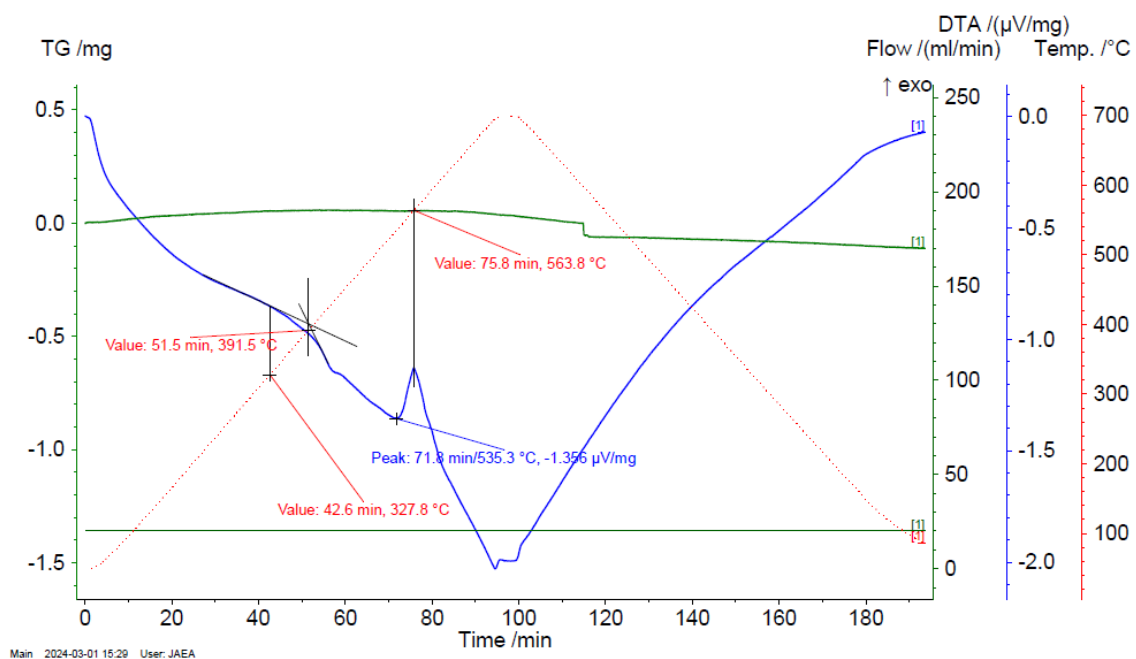


図 3.1.4-5 炭素鋼表面上の B_2O_3 付着物に関する TG-DTA 曲線

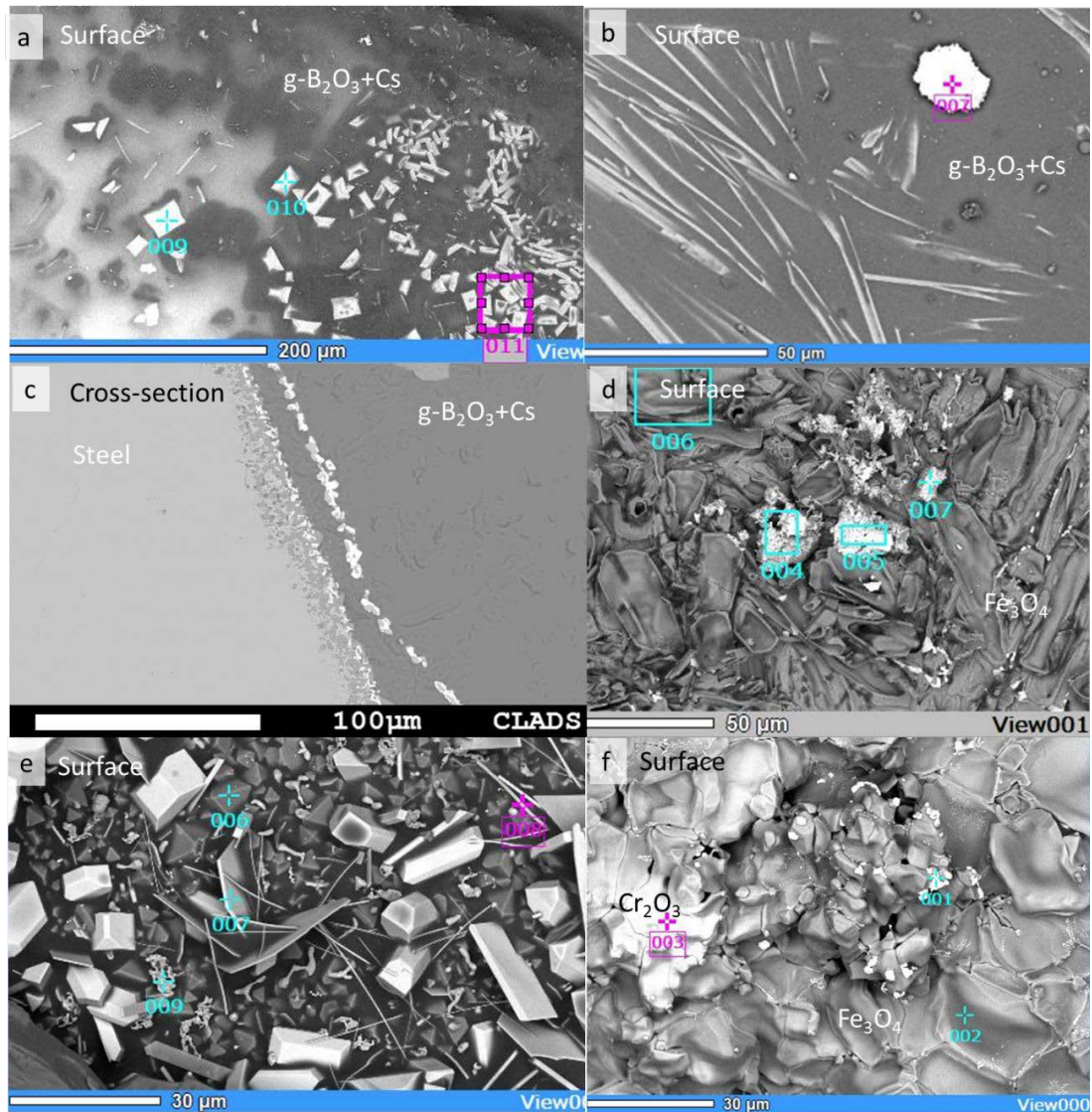


図 3.1.4-6 クーボンの表面に付着した Cs 含有物

- a) 炭素鋼：推定温度 350 °C～400 °C、b) 炭素鋼：推定温度 400 °C～500 °C
 c) ステンレス鋼：推定温度 400 °C～500 °C、d) 炭素鋼：推定温度 800 °C～900 °C
 e) ステンレス鋼：推定温度 1000 °C以上、f) ステンレス鋼：推定温度 1400 °C以上

参考文献

- [3.1.4-1] Sevim, F., Demir, F., Bilen, M. et al., Kinetic analysis of thermal decomposition of boric acid from thermogravimetric data, Korean J Chem Eng, vol.23, 2006, pp.736-740.
 [3.1.4-2] Stolyarova, V.L., Vorozhtcov, V.A., Lopatin, S.I. et al., High-temperature mass spectrometric study of vaporization and thermodynamics of the $\text{Cs}_2\text{O} - \text{B}_2\text{O}_3$ system: Review and experimental investigation, Rapid Commun Mass Spectrom, vol.35, 2021, e9079.
 [3.1.4-3] Willemin S, Carminati P, Jacques S, et al. Identification of Complex Oxidation/Corrosion Behaviours of Boron Nitride Under High Temperature, Oxid Met. vol.88, 2017, pp.247-256.
 [3.1.4-4] Slutskii, V.G., Severin, E.S., Polenov, L.A., An Ab Initio Study of Reactions in the $\text{H}_3\text{BO}_3/\text{B}_2\text{O}_3/\text{H}_2\text{O}$ System, vol.1, 2007, pp.549-552.

3.2 金属デブリの酸化変質評価

3.2.1 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価（連携先：原子力機構）

【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

ステンレス鋼 (SUS316L) と過去の大型試験^{[3.2.1-1][3.2.1-2][3.2.1-3][3.2.1-4][3.2.1-5]}にて生成した2種類の模擬金属デブリを用いて水蒸気酸化試験を実施した。ここで、模擬金属デブリの1つは、ステンレス鋼と B_4C の溶融物からなるもの（以下、Fe-B 金属デブリとする。）であり、もう1つは、この Fe-B 系溶融物とチャンネルボックスや被覆管などの Zr 部分とが相互反応して形成した Zr リッチの Fe-Zr 系共晶組成に近いもの（以下、Fe-Zr 金属デブリとする。）である。

TG-DTA による質量増加傾向の観点から、ステンレス鋼と模擬デブリを比較すると、ステンレス鋼の方が、耐酸化性に優れていた。しかしながら、Cr 酸化物層の厚さが増加すると、Cr 酸化物層が剥離する傾向があり、その場合は、酸化保護機能が失われ、デブリよりも早く酸化・劣化する傾向が確認された。この Cr 酸化物層の剥離は、900 °C以上の温度で進行することが確認された。ステンレス鋼の酸化による質量変化曲線は、線状や放物線状を示さず、複雑な特性があることが確認された。一方で、模擬金属デブリの酸化による質量変化曲線は、拡散律速からなる放物線状を示した。

Fe-B 金属デブリにおいて、激しく酸化する 1100 °C以上の温度においても、バルクの数 μm サイズの Fe-Ni 化合物相は、酸化されずに残っていた。

Fe-Zr 金属デブリは、800 °C～1100 °Cの温度範囲では、Fe-B 金属デブリと同様の特徴を示し、1100 °C～1400 °Cの温度範囲では、Zry-4 と同様の特徴を示した。Fe-Zr 金属デブリは、主に AB_2 形なる Laves 相と Zr リッチの共晶物からなることが分かった。

Fe-Zr 金属デブリの不完全な酸化（低酸化金属デブリ）は、U 燃料、溶融コリウム及び RPV 鋼との相互反応に作用する、より多くの金属 Zr が生成される可能性がある。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2号機ペダスタルに金属リッチデブリの堆積の可能性があり、3号機でも金属リッチデブリが先行溶落した可能性が考えられており、これら金属リッチデブリの雰囲気からの酸化挙動を模擬実験により明らかにすることによる Backward Analysis を目指すものである。

本研究では、ステンレス鋼 (SUS316L) と過去の大型試験にて生成した Fe-B 及び Fe-Zr 共晶物からなる特徴的な2種類の模擬金属デブリに関して、酸化による劣化の可能性を評価するために、水蒸気雰囲気での熱分析試験を実施した。CLADS で実施した BWR (Boiling Water Reactor: 沸騰水型原子炉) の燃料集合体の劣化を模擬した大規模試験 (CLADS-MADE 試験) において、SUS316L と金属デブリは、特徴的な酸化傾向を示し、たとえ酸化雰囲気だとしても金属デブリが生成されることが示された。しかしながら、それらの酸化速度式に関するデータはなく、本研究の中で、その特徴的な酸化傾向に関する速度式の取得を行うこととした。令和5年度は、1F 2号機と3号機のデブリの現状解明に役立つデータの取りまとめ、酸化変質評価を行った。

② 実験方法

模擬金属デブリに関する水蒸気酸化試験は、TG-DTA (NETZSCH STA 2500 Regulus: Selb, Germany) を用いて行った。試験に際しては、Fe や Zr と相互作用が生じないアル

ミナルツボを使用した。試料として、ステンレス鋼（SUS316L）と CLADS-MADE-02 大型試験体^[3.2.1-5]から採取した Fe-B 金属デブリ及び CLADS-MADE-04 大型試験体^[3.2.1-1]から採取した Fe-Zr デブリを用いた。温度条件（700 °C～1400 °C）で水蒸気酸化試験を実施した。試料をルツボに挿入し、Ar（純度 99.99%）雰囲気中で目的温度まで昇温し、その後、ガスを Ar から Ar-20% H₂O に切り替えて実施した。目的温度にて 60 分間保持した後、ガスを Ar に切り替えて冷却した。また、エアロゾル形成に関しては、装置の排気ラインの低温領域への付着によって確認した。試験後試料の表面について SEM-EDS 装置（JEOL、JSM-7800F）を用いて組織観察を実施し、XRD 分析（リガク、SmartLab）を用いて相同定を行った。

③ 酸化変質評価

図 3.2.1-1(a)-(d)に各試料の水蒸気酸化による質量増加曲線を示す。ここで、縦軸は質量増加量（g/cm²）で、横軸は時間の平方根（s^{1/2}）である。

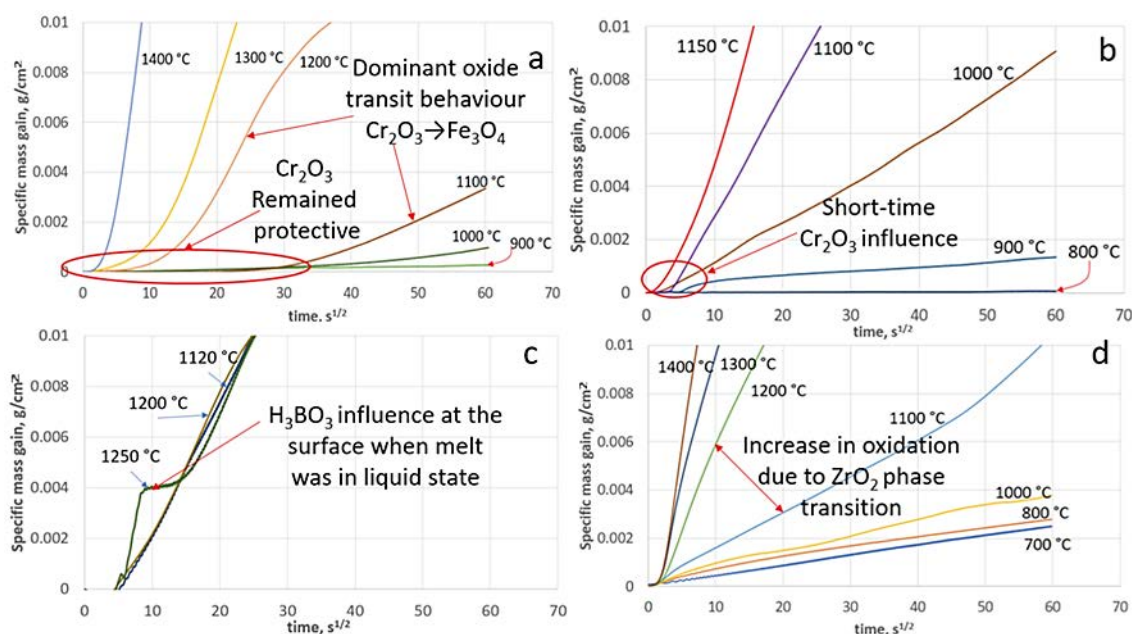


図 3.2.1-1 各試料の水蒸気酸化による質量増加曲線

- (a) SUS316L、(b) Fe-B 金属デブリ、
(c) Fe-B 金属デブリ：固体状態（1120 °C）と液体状態（1200 °C と 1250 °C）の比較、
(d) Fe-Zr 金属デブリ

図 3.2.1-1(a)から分かるように、SUS316L の場合、質量増加曲線は複雑な非線形の傾向を示した。酸化初期段階では、ステンレス鋼表面を保護する役目のある Cr₂O₃ の薄層形成による質量増加であった。また、1000 °C 以下の場合、質量増加量は小さくなる傾向を示した（模擬金属デブリと比較しても、小さい値を示した）。しかし、温度または保持時間を大きくすることにより、質量増加速度の明らかな傾向変化が確認された。令和 4 年度に報告した通り、この傾向変化は、Cr₂O₃ の剥離に関連する可能性が示唆される。また、700 °C～1100 °C の曲線と 1200 °C～1400 °C の曲線との間には明らかな違いがあり、1200 °C 以上では酸化反応開始後、急激に質量が増加しており、酸化が次のステージに急速に進行すると示唆される。この段階では、Cr₂O₃ の保護機能は無視できるほ

ど小さくなる。このように、 Cr_2O_3 により酸化傾向の違いが生成され、SUS316L に関しては、通常の酸化速度式を求めることができなかった。

図 3. 2. 1-1 (b)に、Fe-B 金属デブリの質量増加曲線を示す。Fe-B 金属デブリの場合、ステンレス鋼のような明確な Cr_2O_3 層は確認されなかった。これはおそらく、ホウ化物中の B と Cr が結合したため、 Cr_2O_3 の生成が抑制されたと示唆される。ゆえに、 Cr_2O_3 層による影響がほとんどないために、Fe-B 金属デブリの酸化速度式の算出は可能であった。図 3. 2. 1-1 (a) と (b) から、Fe-B 金属デブリの 1100 °C での酸化挙動は、ステンレス鋼の 1300 °C での酸化挙動と同様であることが確認された。このことから、Fe-B 金属デブリはステンレス鋼より酸化速度が大きいことが分かるが、Fe-B 金属デブリとステンレス鋼の化学組成の違いは約 1.6 wt% の B の有無のみであった。しかしながら、この B は Cr-B 系化合物相を形成することによる構造変化により、Fe 中の Cr 量を減少させた効果があり、その結果、Fe-B 金属デブリ中の Fe は高い耐酸化性のステンレス鋼の特徴を失う傾向を示したと示唆される。したがって、B が含有する場合、酸化による劣化がステンレス鋼より大きいことは明らかである。

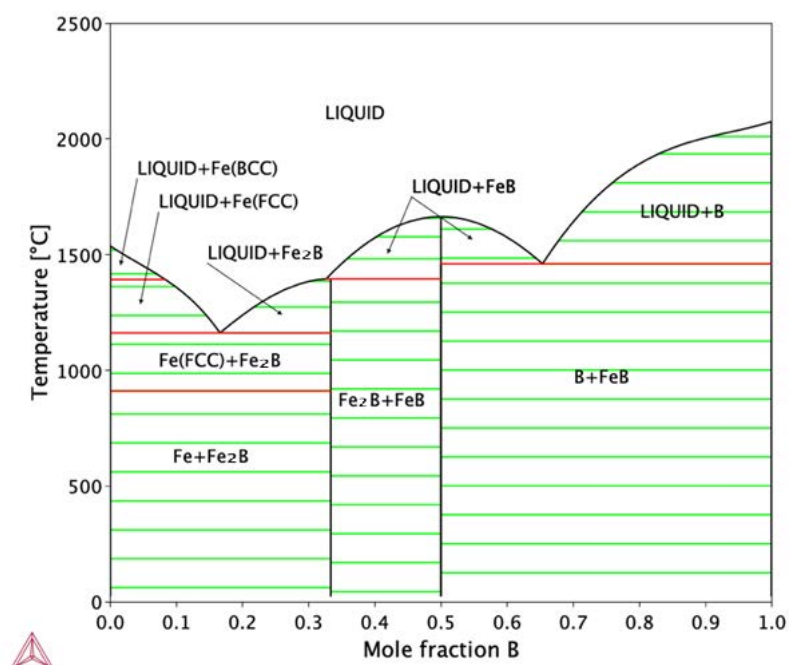


図 3. 2. 1-2 Fe-B 状態図 (TAF-ID による計算結果)

しかしながら、図 3. 2. 1-1 (c) から分かるように、1200 °C の場合、酸化速度が 1120 °C と比較して小さくなる傾向が確認された。これは、 Fe_2B 化合物の融点が 1162 °C であることから、液化による酸素の拡散が阻害され、酸化速度が小さくなった可能性が示唆される。

一方で、1250 °C の場合、1200 °C と異なり、初期に急速な酸化を示している。これは、1250 °C の場合、 H_3BO_3 が形成することにより、表面の Fe-B 化合物中の B 割合の減少に伴い、図 3. 2. 1-2 の Fe-B 状態図に示したように、液相の割合が低下し、液化の影響が低減した可能性が示唆される。さらに、保持時間の増加に伴い、 H_3BO_3 が溶剤として働き、表面を覆い、酸化を阻害する。そのため、一時的に酸化が停止していることが分かった。しかし、 H_3BO_3 の蒸発に伴い、その後は 1200 °C と同等程度の酸化傾向を示した。

Fe-Zr 金属デブリの酸化に関しては、 Fe_3O_4 と ZrO_2 という 2 つの酸化物が表面に観察された。低温では、 ZrO_2 が酸化保護膜として機能し、 Fe_3O_4 を酸化から保護したため、酸化曲線はステンレス鋼のようにふるまう傾向が確認された。しかし、1100 °C と 1200 °C とを比較すると酸化傾向が急激に変化していた。これは、 ZrO_2 の 1200 °C 付近での単斜晶から正方晶への結晶構造変化に伴い、保護特性が変化（低下）したためであると示唆される。

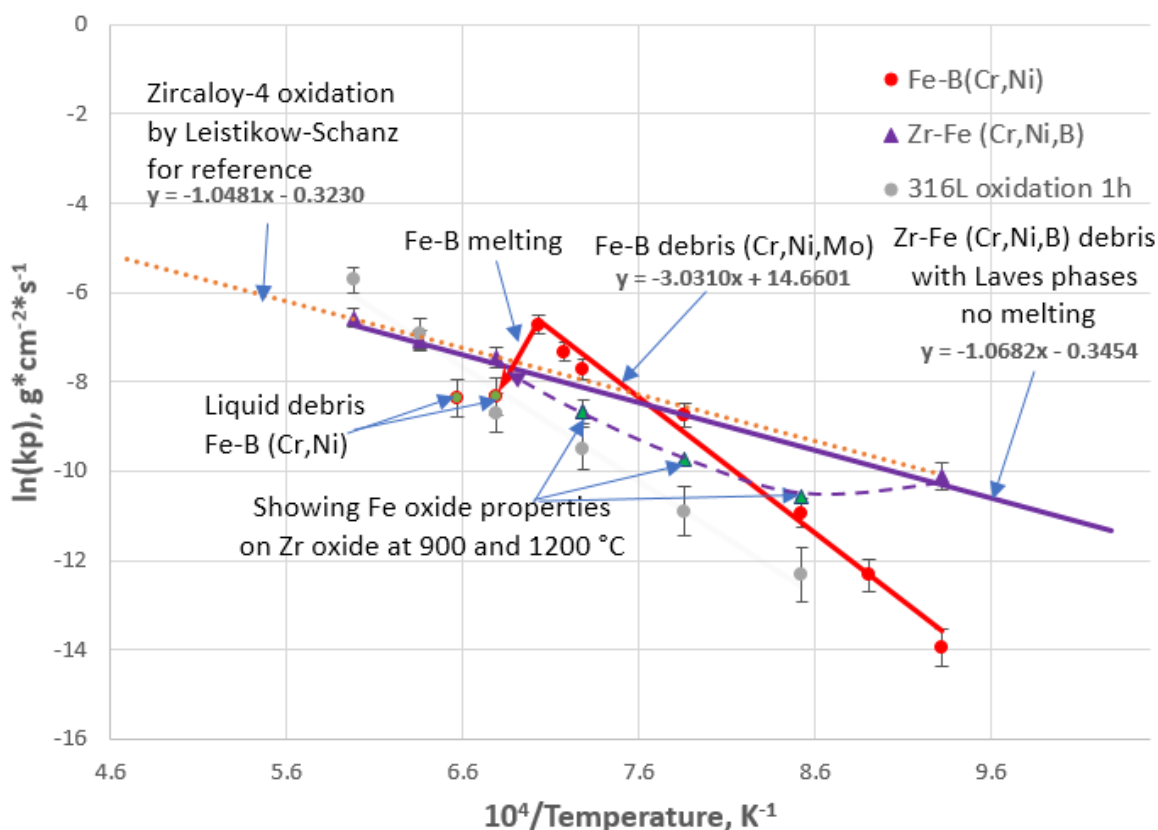


図 3.2.1-3 Zry-4 と比較した各試料の酸化速度式

ここで、酸化傾向をより正確に把握するために、反応速度式の算出及び評価を実施した（図 3.2.1-3）。ステンレス鋼に関しては、生成された酸化物層の剥離が随時生じることや放物線の法則に則らないために、酸化反応速度方程式の算出は困難であった。そこで、酸化速度式ではなく、SUS316L の質量増加点（灰色の円）とその他の金属デブリ挙動との比較を行い評価した。

Fe-B 金属デブリの酸化は次のようになる。

$$X = 6.93 \times 10^6 \sqrt{t} \times \exp\left(-\frac{3.03 \times 10^4}{T}\right) \quad \text{式(3.2.1-1)}$$

ここで、 X は 単位面積当たり酸化された材料の質量 (g/cm^2)、 t は時間 (s)、 T は温度 (K) を示している。

Fe-Zr 含有模擬デブリの酸化速度式は、図 3.2.1-3 から分かるように、水蒸気中の Zry-4 に関する Leistikow-Schanz の酸化速度式によって近似が可能であるが、今回の試験結果からの酸化速度式は次のようになる。

$$X = 7.38 \times 10^{-1} \sqrt{t} \times \exp\left(-\frac{1.07 \times 10^4}{T}\right) \quad \text{式(3.2.1-2)}$$

図 3.2.1-3 から分かるように、1200 °C をわずかに下回る温度にて、すべてのデブリにとって興味深い点を確認された。酸化反応は、調査したすべての材料で比較的同様の方法で発生したと考えられる。

(3) まとめ

ステンレス鋼 (SUS316L) と過去に原子力機構で実施した大規模試験で得られた模擬金属デブリから採取した Fe-B 金属デブリ及び Fe-Zr 金属デブリを用いて、水蒸気雰囲気中での熱分析試験を実施し、酸化反応速度論の評価を行った。

SUS316L の場合、 Cr_2O_3 の剥離効果による複雑な質量増加挙動により、酸化反応速度論を構築することが困難であることが確認された。しかしながら、SUS316L は酸化試験後の質量増加傾向の観点から、ステンレス鋼と模擬金属デブリを比較すると、デブリに比べて優れた耐酸化性を備えていることが確認された。

Fe-B 金属デブリは拡散依存性の酸化挙動を示し、アレニウス型の反応速度式で示すことができた。低温では、質量増加が SUS316L よりも大きかったが、約 1200 °C 以上では SUS316L と Fe-B 金属デブリはほぼ同じ挙動を示した。

Fe-Zr 金属デブリは、温度に応じて Fe_3O_4 または ZrO_2 が支配的になり、Zr の酸化が選択的に起こる傾向が確認された。1300 °C を超える温度では、Fe-Zr 金属デブリが最も安定し、評価した他の材料よりも酸化が遅かった。

参考文献

- [3.2.1-1] Pshenichnikov, A., Kurata, M., Nagae, Y., An investigation of the microstructure and phase composition of the Zr bearing metallic debris in a bypass channel of a BWR fuel after the exothermic reaction in the CLADS-MADE-04 test, Proc. FDR2022 Int. Top Workshop Fukushima Decommissioning Res., Naraha, Fukushima, Japan; 2022, Paper No.: FDR2022-1047.
- [3.2.1-2] Pshenichnikov, A., Yamazaki, S., Bottomley, D. et al., Features of a control blade degradation observed in situ during severe accident conditions in boiling water reactors, J. Nucl. Sci. Technol., vol.56, no.5, 2019, pp.440-453.
- [3.2.1-3] Pshenichnikov, A., Nagae, Y., The results of the CLADS-MADE-03 BWR bundle degradation test in steam under 1F Unit 1 postulated conditions, Nucl. Eng. Des., vol.415, 2023, 112729.
- [3.2.1-4] Pshenichnikov, A., Nagae, Y., Kurata, M., On the degradation progression of a BWR control blade under high-temperature steam-starved conditions, Mech. Eng. J., vol.7, no.3, 2020, pp.1-10.
- [3.2.1-5] Pshenichnikov, A., Kurata, M., Nagae, Y., A BWR control blade degradation observed in situ during a CLADS-MADE-02 test under Fukushima Dai-Ichi Unit 3 postulated conditions, J. Nucl. Sci. Technol., vol.58, no.9, 2021, pp.1025-1037.

3.2.2 2、3号機最確シナリオに基づいた変質酸化物と金属融体の熱力学的安定性評価

【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

令和3年度は、下部プレナムへ先行的に崩落したと考えられている金属系デブリが構造材由来のステンレス鋼を巻き込んで再溶融する際の、酸化物共存環境における金属デブリ溶融反応の熱力学的安定性を系統的に評価することを目的として、 ZrO_2 飽和状態における Fe-Zr 系液相の Zr 活量を測定する実験的手法を確立し、その妥当性を確認した。

令和4年度は、令和3年度に確立した実験手法（化学平衡法）を用いて、酸化物と金属溶融物が共存する環境における金属系デブリ溶融物の熱力学的安定性を評価することを目的として、 ZrO_2 飽和状態のステンレス鋼主成分 Fe-Zr 金属液相における Zr 活量を測定した。さらに、実際の RPV 内ではステンレス製構造物の溶接部やスタブチューブに Ni 合金が用いられており、RPV 破損においては Ni 混入の影響を無視できないことから、Fe-Zr 金属中の Zr 活量に及ぼす Ni 添加の影響を併せて評価した。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2号機ペDESTALに金属リッチデブリの堆積の可能性がある、3号機でも金属リッチデブリが先行溶落した可能性が考えられており、これら金属リッチデブリの雰囲気からの酸化挙動を、Zr の活量の観点から明らかにすることによる Backward Analysis を目指すものである。

令和4年度までは、RPV 内で生じる金属間溶融・溶解現象に関する基礎知見を得るために、その基本系として、Fe-Ni-Zr 溶融合金を対象として実験を行ってきた。しかし、実機内では燃料被覆材の Zr は制御材被覆管のステンレス鋼と至近距離にあり、また、Ni 基合金も構造材として多く用いられている観点から、より模擬的な現象を検討する必要がある。そこで令和5年度は、Zr と SUS304 の溶融合金系及び Zr と Inconel718 の合金系において、Zr の活量係数の測定を行った。Fe-Ni-Zr 溶融合金と比較を行い、Cr の効果について評価した。また、実験から総合的に得られた Zr の活量から、事故時の RPV 内の雰囲気として考えられる水素／水蒸気混合ガスによって酸化される可能性の評価を行った。

② 実験方法

Zr-SUS304、Zr-Inconel718 系を模した合金の実験組成を表 3.2.2-1 に示す。本研究では、液体金属中の Zr に対する参照物質として Ag ショット（ニラコ、純度 99.99%）、合金材料として電解鉄（東亜、純度 99.99%以上）、Zr 片（イーメタルズ、純度 99.9%）、Ni ショット（高純度化学、純度 99.99%）を用いた。秤量した金属をアーク溶解炉（大亜真空、SCM-01）にセットし、高純度 Ar（99.9999%）30 mmHg にてプラズマ溶融させた。試料は水冷された銅製装荷部に設置されているため溶融後は水冷によって急冷凝固する。また、金属元素（Fe、Ni、Zr、Cr）の濃度を誘導結合プラズマ発光分光分析装置（Inductively Coupled Plasma - Optical Emission Spectrometer：以下、ICP-OES と略記。日立、PS7800）を用いて測定したところ、秤量組成に対する収率はいずれの試料においても 99.9%以上であった。

酸化物（ ZrO_2 ）飽和にするため、ルツボに 8 mol% イットリア安定化ジルコニア（YSZ、ニッカトー）を用いた。系内への酸素汚染を回避するために、Ti ルツボ（オーファ）に

YSZ を二重に装荷した。その際、Ti ルツボ内部をいったん真空排気した後、Ar ガスを 0.21 atm 封入して溶接密閉した。

あらかじめ 1873 K に昇温して熱平衡させた電気抵抗炉に試料をセットした Ti ルツボを装荷し、Ar フロー (200 ml/min) にて 18 時間保持したのち、取り出して水冷した。冷却した Ti ルツボを切断して合金を取り出し、SEM-EDS (JEOL, JCM-7000) を用いて断面の組織観察を実施して Ag と合金の相分離を確認した。その後、合金と Ag を 0.1 g 切り出して、フッ酸 1 ml (HF 46.0~48.0 mass%)、硝酸 (HNO₃ 60 mass%) 10 ml を用いて溶解し、100 ml に希釈したものをサンプルとして ICP-OES によって Fe、Ni、Zr、Cr の濃度を測定した。

本実験は、Zr-SUS304 及び Zr-Inconel718 系溶融合合金中の Zr の活量を、リファレンス金属材料である溶融銀中 Zr の濃度を測定することによって評価する。その際に必要となる溶融銀中 Zr の活量は、Redlich-Kister 型の以下の式(3.2.2-1)から求めた。2 元素間の親和性を評価する相互作用パラメータ L としては、式(3.2.2-2)の値^[3.2.2-1]を適用した。

$$a_{\text{Zr}} = x_{\text{Zr}} \exp \left(\frac{x_{\text{Ag}}^2 (L^{(0)} + (x_{\text{Ag}} - x_{\text{Zr}}) L^{(1)}) - 2x_{\text{Ag}}^2 x_{\text{Zr}} L^{(1)}}{RT} \right) \quad \text{式(3.2.2-1)}$$

$$\begin{aligned} L_{\text{Ag,Zr}}^{(0)} &= -23481.8 + 16.7326 \times T \\ L_{\text{Ag,Zr}}^{(1)} &= +16991.4 + 1.8009 \times T \end{aligned} \quad \text{式(3.2.2-2)}$$

③ 結果及び考察

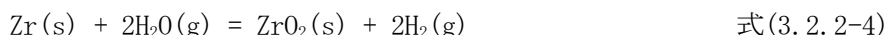
式(3.2.2-1)と溶融銀中 Zr 濃度から得られた Zr-SUS304 及び Zr-Inconel718 合金中 Zr 活量から活量係数を求め、合金中 Ni 濃度の関数として得た。Zr-Inconel 合金においては、これまでの三元系の傾向に沿う結果となったが、Zr-SUS304 合金においては、これらの傾向から大きく正に偏倚し、非常に大きな活量係数を示した。このことについて、以下のように考察した。まず、SUS304 は他の系と異なり、Cr が主成分の 1 つとなっており、約 18 mass% 含まれている。そこで、この Cr の存在がどのように Zr の性質に影響を及ぼすかを検討するため、Zr-Cr、Fe-Zr 及び Zr-Ni 系の混合エンタルピー^{[3.2.2-2][3.2.2-3][3.2.2-4]}を比較した。令和 4 年度までの結果ですでに明らかになっているように、Zr の活量係数は、Ni の存在により大きく低下し、 $X_{\text{Ni}}=0.2$ 付近でいったん極大値を持つものの、その後は単調減少となる。これは、マトリックスの鉄が Zr との親和性が大きい Ni に置き換えられたためと考えられ、これはそれぞれ負の値を取る混合エンタルピーの大きさの順序からも妥当であると考えられる。一方、今回の Cr は Zr-Cr 系の混合エンタルピーは負の値ではあるものの、その絶対値は Zr-Ni 系、Fe-Zr 系に比較して小さく、Fe、Ni をマトリックスとして持つ合金の中にあつては、Zr に対しては相対的に斥力として作用することが考えられる。

次に、このようにして得た Zr の活量係数から、式(3.2.2-3)に基づき Zr の部分混合エンタルピーを求め、10Zr-Fe-Ni 系、15Zr-Fe-Ni 系について Ni 濃度の関数を得た。

$$\Delta H_{\text{mix}}^{\text{Zr}} = RT \ln \gamma_{\text{Zr}} \quad \text{式(3.2.2-3)}$$

両系とも Ni 濃度の増大とともに、Zr の部分混合エネルギーは負に大きくなっており、Zr と Ni の親和性をよく示す結果となっている。また、混合エンタルピーが負であることは発熱反応を示唆しており、事故進展時に Zr と Ni を含む構造材の溶融・溶解が大きな熱量を放出し、RPV 破損を加速した可能性が考えられる。

また、炉内ではこのように加速的に溶融・溶解が進んで生成した Fe-Ni-Zr(-Cr)系溶融合金、雰囲気からどのように酸化されたかを評価しておくことは重要である。そこで、式(3.2.2-4)で示される Zr-水反応の標準ギブズエネルギー変化から、本合金中の Zr から ZrO_2 が生成する臨界 $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ 比を求め、Ni 濃度の関数として得た。



$$\Delta G = -454 \text{ kJ/mol at } 1873 \text{ K}^{[3.2.2-5]} \quad \text{式(3.2.2-5)}$$

合金中 Zr 中の活量係数は、理想溶液である 1 から大きく負に偏移していたにも拘わらず、 $\text{H}_2/\text{H}_2\text{O}$ 比が $10^4 \sim 10^5$ という大変大きい Steam Starvation 条件であっても、 ZrO_2 は生成しうることが分かった。すなわち、事故時の炉内雰囲気では、どのような進展シナリオであっても、共融・溶解して生じた金属デブリは、その中に溶解した Zr が雰囲気の水蒸気と反応して ZrO_2 を不可避免的に生成し、その融体は固液共存状態となることが示唆され、その流下挙動を評価する際に混合した ZrO_2 の影響を十分に加味しなくてはならないことが分かった。

(3) まとめ

炉心溶融物中で、酸化物溶融物と金属溶融物が共存して移行する挙動を評価するために、Fe-Ni-Zr 三元基本系における Zr の活量測定を溶融銀をリファレンスメタルとした化学平衡法にて行い、Zr の活量係数を評価した。Ni 濃度の増加に伴い、活量係数は極大値を取った後、単調減少し Ni と Zr の親和性が示唆された。これは、Inconel718 材でも同様であった。一方、SUS304 では活量係数が大変大きくなり、相対的に Cr と Zr の親和性の小ささが示唆された。混合エンタルピー変化を評価したところ、負に大きな値となり発熱反応により事故進展が加速されることが推測された。また、炉内雰囲気で融体中 Zr から ZrO_2 が生成する水素・水蒸気比を見積もり、 $10^4 \sim 10^5$ という大きな値を得た。すなわち、炉内金属溶融デブリから必ず ZrO_2 が生成し、固液共存流体になるため、その流下挙動に大きく影響を及ぼす粘性が物性値として支配因子となることが示唆された。

表 3.2.2-1 実験合金の組成

mol%	Ni	Fe	Cr	Zr
Zr-Inconel718	51.4	20.4	20.5	7.7
Zr-SUS304	11.1	66.6	17.9	4.4

参考文献

- [3.2.2-1] H.M. Hsiao, S.M. Liang, R. Schmid-Fetzer, and Y.wen. Yen, Thermodynamic assessment of the Ag-Zr and Cu-Zr binary systems, Calphad, vol.55, 2016, pp.77-87.
- [3.2.2-2] J. Pavlu, J. Vrestal, M. Sob, Stability of Laves phases in the CrZr System, Calphad, vol.33, 2009, pp.382-387.
- [3.2.2-3] C. Servant, C. Gueneau, I. Ansara, Experiment and thermodynamic assessment of the Fe-Zr system, J. Alloys Compounds, vol.220, 1995, pp.19-26.
- [3.2.2-4] T. Tokunaga, S. Matsumoto, H. Ohtani, M. Haseb. Thermodynamic calculation of phase equilibria in the Nb-Ni-Ti-Zr quaternary system, Mater. Trans, vol.48, 2007, pp.89-96.
- [3.2.2-5] E.T. Turkdogan, Physical Chemistry of High Temperature Technology, Academic Press, New York, NY, 1980.

3.2.3 2、3号機最確シナリオに基づく酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定 (再委託先：九州大学)【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

令和3年度は、2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉の基本仕様・設計を完了した。また、熔融 Fe-Cr-Ni 系金属と反応性が低い ZrO_2 をコンタクトマテリアル（試料融体と接触するルツボ等）として選定した。令和4年度は、粘度測定の対象とする熔融 Fe-Cr-Ni 系金属は $mPa \cdot s$ オーダーであることから、トルクの検出が困難であるので、より低粘性領域においても精度良く粘度測定が可能と考えられるトルクセンサー（現有設備）による粘度測定装置のセットアップを行った。しかしながら、試料融体に直接接触するロッドに ZrO_2 焼結体を用いることから、粘度測定時における回転偏心を小さくする必要があり、トルクセンサー及びロッドの回転軸が直線上に固定できる治具を考案することによって、高精度の粘度測定が可能となった。また、ロッドの下端面とルツボ底面間の距離及び回転数を系統的に変化させて、検出されるトルクの標準偏差を求めることによって、最も検出されるトルクの標準偏差が小さい測定条件を選定した。なお、回転法を用いて精度良く粘度を測定可能な固相率は最大 60 vol% 程度である。さらに、体積率 10 vol% の ZrO_2 ビーズを熔融 SUS316L 中に分散させた試料の粘度を 1773 K において測定した。その結果、固相が熔融金属に分散することによって、粘度が増大することが明らかとなったが、これは分散した固相粒子間の相互作用により、流体に発生するずり応力が大きくなったことに起因することが分かった。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

① はじめに

この課題は、2号機ペDESTALに金属リッチデブリの体積の可能性があり、3号機でも金属リッチデブリが先行溶落した可能性が考えられており、これら金属リッチデブリが雰囲気からの酸化を受けて、固相 ZrO_2 共存状態になった際の流動性評価の観点からの Backward Analysis を目指すものである。

事故後これまでに行われた RPV の内部調査において、ペDESTAL堆積物の外観や構造物の残存状態から燃料デブリは酸化物溶融する温度域まで到達しておらず、構造物や未酸化 Zr、制御材などを多く含む金属リッチなデブリであり、先行溶落した可能性が指摘されている。また、この金属デブリは均一な融体ではなく、酸化・変質を経ることによって析出した酸化物を含む固液共存融体を形成していると考えられるため、その流動挙動を理解するためには非ニュートン性の挙動を示す粘度を系統的に評価することが必要である。そこで、本項においては Fe-Cr-Ni 系金属の固液共存状態の粘度測定手法を確立し、酸化物析出物を含む金属デブリの粘度測定を行う。Fe-Cr-Ni 系金属の固液共存状態の粘度測定装置のセットアップに必要な文献調査、コンタクトマテリアルの選定、粘度測定装置のセットアップ及び検定はすでに令和4年度までに実施しており、令和5年度では Fe-Cr-Ni 系熔融金属のみかけ粘度に及ぼす固体 ZrO_2 の影響を系統的に評価した。

② 実験方法

令和3年度に設計を行い、令和4年度に導入された 2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉の外観図を図 3.2.3-1 に示す。極低粘度まで検出可能なトルクセンサー（Anton Paar、DSR502）を電気炉上部に設置しており、電気炉内部で溶融させた試料中において回転させたロッドに生じるトルク（回転モーメント）を検出することができる。

トルク検出を行うロッドとして、熔融 Fe-Cr-Ni 系金属と反応性が低いと考えられる ZrO_2 (ZR-11 : 93% ZrO_2 -5.5% CaO) の丸底保護管をロッドとし、トルクセンサーの測定治具と接続した。また、令和 4 年度の装置検定の結果、この治具を用いることによって検出されるトルクの標準偏差は小さくなり、粘度既知のシリコンオイルを用いた場合、シリコンオイルの粘度と検出されたトルクの相関係数は 0.9997 であることを確認した。測定には、直径 0.5 mm の ZrO_2 ビーズ (95% ZrO_2 -4.8% Y_2O_3) を SUS316L に 5~60 vol% 分散させた試料を用い、測定は 1723 K の Ar 雰囲気下において行った。

③ 結果と考察

1773 K において ZrO_2 が分散した熔融 SUS316L 合金の粘度に及ぼす ZrO_2 の体積率の影響を得た。これより ZrO_2 が分散した熔融 SUS316L 合金の粘度は、含有する ZrO_2 の体積割合が大きいほど増加することが分かった。これは、熔融金属中に分散した固相粒子の相互作用により、ずり回転によって流体に発生するずり応力が大きくなったことに起因する。また、60 vol% の ZrO_2 を含む熔融 SUS316L 合金は最大で 5600 mPa・s 程度の粘度値を示すことが分かった。ここで、令和 3 年度に行った文献調査の結果から、熔融 SUS316L 系合金は 1733~1823 K において 5.24~7.8 mPa・s の極低粘度を示すことが分かっている^[3.2.3-1]ことから、高固相率の ZrO_2 を含有することによって、およそ 10^3 倍の大きい粘度を示すことが明らかとなった。加えて、ずり速度が大きいほど ZrO_2 が分散した熔融 SUS316L 合金の粘度は低下することが分かった。これは、流動速度の上昇に伴って熔融 SUS316L 合金中に分散した ZrO_2 が再配列を起し、より低いずり応力によって流動が可能になったことを示唆している。

また、高固相率領域のみならず 5 vol% といった低固相率領域においても、含有する ZrO_2 の体積割合が大きいほど ZrO_2 が分散した熔融 SUS316L 合金の粘度が増加することが分かった。また、5 vol% の ZrO_2 を含む熔融 SUS316L 合金は、最大で 27.9 mPa・s 程度の粘度値を示すことから、少量の ZrO_2 によっても熔融 SUS316L 合金の粘度は、およそ 4 倍になることが分かった。以上より、 ZrO_2 といった酸化物析出成分を含む熔融金属の粘度は酸化の度合いが低い場合においても、熔融金属単体に比較して大きな値を示すことが明らかとなった。加えて、酸化物析出成分を含む熔融金属の粘度は、酸化反応の進行に伴って桁違いに増大することが示唆された。

(3) まとめ

令和 4 年度までにセットアップ及び検定を完了した低粘性領域においても、精度良く粘度測定が可能と考えられるトルクセンサー（現有設備）と雰囲気調整可能な電気炉（導入設備）による粘度測定装置を用いて、熔融 SUS316L 合金の粘度に及ぼす固体 ZrO_2 の影響を系統的に評価した。その結果、これより ZrO_2 が分散した熔融 SUS316L 合金の粘度は含有する ZrO_2 の体積割合が大きいほど増加することが分かった。これは、分散した固相粒子間の相互作用により、流体に発生するずり応力が大きくなったことに起因する。また、60 vol% 程度の高固相率の ZrO_2 を含有することによって、 ZrO_2 が分散した熔融 SUS316L 合金の粘度は、およそ 10^3 倍の大きい値を示すことが明らかとなった。加えて、5 vol% 程度の少量の ZrO_2 によっても熔融 SUS316L 合金の粘度は、およそ 4 倍になることが分かった。



図 3.2.3-1 極低粘度まで検出可能なトルクセンサーを備えた
2023 K まで昇温及び雰囲気調整可能な電気炉外観

参考文献

- [3.2.3-1] 小久保宏紀, 西剛史, 太田弘道, 山野秀将, ステンレス鋼-B₄C 溶融混合物の系統的な粘度測定を目指したニッケル及びステンレス鋼の粘度測定, 日本金属学会誌, vol. 82, no. 10, 2018, pp. 400-402.
<https://doi.org/10.2320/jinstmet.JAW201812>

3.3 総合評価（東京工業大学、連携先：原子力機構）【令和3年度～令和5年度】

(1) 令和4年度までの概要

令和4年度までに実施した要素試験や解析の結果から得られた知見に基づき、2、3号機の事故シナリオにおける、Cs化合物と金属デブリのふるまいについて総合評価を行った。その結果、Cs化合物のうちCsOHはステンレス鋼及び金属デブリの表面に反応物として移行する可能性があることを示した。また、金属デブリ溶落に関しては、未酸化Zrがステンレス鋼と反応して低融点共晶液体金属を形成してからステンレス鋼をさらに溶解し、Fe高濃度の金属プールを形成しながらRPV破損に至った可能性があることを示した。

(2) 令和5年度実施内容及び成果

令和5年度は、これまでに整理した最確シナリオと熱力学解析や模擬試験の結果に基づき、1F現場情報（観測結果またはPCV内部調査で得られた画像情報など）と炉内状況推定（解析コードなどに基づく評価）との差異を低減するための知見整理を実施した。今回、現場情報と炉内推定の双方について、比較に十分なデータを入手できた2号機に関して総合評価を行った。

(2)-1. Cs分布評価の不確かさの低減

本研究で実施した熱力学解析とCs挙動確認試験によって、Csのふるまいに関して以下に示す知見を得た。

- ① 2号機または3号機を想定した雰囲気のおいれにおいても、炉心損傷段階で燃料から放出されるCs化合物のうち、鋼材または燃料デブリとの反応においてはCsOH及びCsIが特に重要である。
- ② 水蒸気雰囲気下におけるCsOHと酸化ステンレス鋼との相互作用において、500℃～900℃にて相互作用によるCs化合物（ Cs_2CrO_4 at 500℃～700℃、 CsMoO_4 at 800℃～900℃）の形成が確認された。また、CsIと酸化ステンレス鋼の場合、630℃～700℃にて、Cs化合物（ Cs_2CrO_4 ）の形成が確認された。
- ③ 酸化ステンレス鋼へのCsの浸透に関しては、Csは酸化膜の厚さに関係なく、酸化膜中を拡散して浸透することが確認された。したがって、ステンレス鋼の高温酸化理論^[3.3-1]によって酸化膜の定量評価を行うことができれば、およそその潜在的なCs移行量を評価することが可能である。
- ④ 金属デブリ（Fe-Zr系、Fe-B系）に対して、CsOHとFe-B系金属デブリとの相互作用において、酸化ステンレス鋼と同様のCs化合物の形成を確認した。Fe-Zr系金属デブリに関しては、500℃～700℃にて Cs_2CrO_4 の生成を確認した。このことから、RPV内で形成されたCs含有金属デブリの崩落によるCsがPCVへ移行する可能性があると考えられる。
- ⑤ Cs化合物とコンクリートとの相互作用に関して、長石相（ $\text{Cs(AlSiO}_4)$ at 500℃～900℃）及びポルサイト相（ $\text{Cs(AlSi}_2\text{O}_6)$ at 1000℃）といった、高温でも安定に存在する化合物が確認された。このことから、PCVのコンクリート壁が500℃程度まで温度が上昇したところにCsOH-CsIが移行して来れば、コンクリート内部への浸透や表面にCs-Si-Al-O化合物を生成する可能性がある。また、熱力学解析結果から、Cs-コンクリート相互反応に酸化鉄が関与する条件の場合より高温でもコンクリート層中に留まる可能性がある。

- ⑥ 大規模試験の結果から、燃料集合体から放出された B 系エアロゾルは、スチームセパレーターやスチームドライヤーといった障害物に凝集し、その凝集物が高温水蒸気雰囲気下で脱水され、 B_2O_3 からなる液相を形成する。その液相は Cs_2O をトラップし、Cs がその場に留まる可能性がある。

次に、図 3.3-1 と図 3.3-2 に本研究で作成した 2 号機に関する現状の事故シナリオに対応した、炉心状況・RPV 下部状況の推察を示す。

主な事故シナリオの特徴：

- ・ SRV (Safety Relief Valve：主蒸気逃し安全弁) 手動開までは、炉心はほぼ冷却水中（上部はボイド化した可能性）。
- ・ SRV 開により、減圧沸騰、水位が BAF (Bottom of Active Fuel：有効燃料底部) 以下に、燃料温度 300℃程度まで急速低下の可能。
- ・ 水位が BAF まで戻らない期間があり、水蒸気枯渇条件で金属材料が先行溶落の可能性。
- ・ 最初の RPV 内圧力ピークは、水位の BAF 復帰、Zry 急速酸化開始（炉心局部）によるものと推定。
- ・ 崩壊熱による温度上昇、溶融範囲の拡大、溶融プール化し、燃料クラストがプール内金属酸化を抑制した可能性。
- ・ 燃料スランピング開始、崩落燃料による水蒸気発生、崩落した燃料はいったん凝固と推定。
- ・ SRV 開閉による圧力ピークの発生。
- ・ 下部プレナム内液相水喪失（堆積デブリのドライアウト）。
- ・ 下部プレナム堆積デブリの崩壊熱による昇温、その後、下部ヘッドで金属溶融。
- ・ 溶融金属がプールを形成、固液体混合状態。
- ・ 溶融金属対流伝熱による側部破損、溶融金属の初期流出。
- ・ 残留溶融金属の対流伝熱による、CRD (Control Rod Drive：制御棒駆動機構) 貫通部溶融破損と溶融金属（先行流出物）の流出、CRD 付着。
- ・ 酸化燃料／溶融金属などの伝熱による底面局所破損、金属リッチ燃料デブリの流出。
- ・ ペDESTAL への金属デブリ、金属リッチ燃料デブリの堆積。
- ・ In-vessel デブリ再冠水。
- ・ Ex-vessel デブリ再冠水。

図 3.3-3～図 3.3-7 に、(1) 初期燃料からの Cs 放出時（RPV 下部デブリ崩落前）、(2) SRV 部分開時（RPV 下部デブリ崩落前）、(3) SRV 開時（RPV 下部デブリ崩落前）、(4) RPV 下部デブリ崩落後及び(5) RPV 内再冠水による残留デブリからの Cs 放出時に関する Cs ふるまい推定図〔シールドプラグ移行ルートとその際の Cs 相互（吸着）反応〕を示す。ここで、青色枠で示した相互反応に関して、本研究の知見(2)-1. ①～⑥により不確かさを低減することが期待される。

以上のことを基に、1F 現場情報と炉内状況推定との差異を低減するための知見整理を行った。まず、1F 2 号機炉内線量分布^[3.3-2]と原子力機構による解析結果^{[3.3-3][3.3-4]}を比較して、現時点における“現場と推定のギャップ”を明確にした。その結果、現場情報と炉内線量評価に、以下の箇所で特に差異が確認された（図 3.3-8）。

- ・ PCV 上部ウェル内：解析値（数十 Sv/h）が、測定値（1 Sv/h 以下）より一桁大きい。
- ・ ペデスタル内部：解析値（4～9 Sv/h）が、測定値（数十 Sv/h）より一桁小さい。

PCV 上部ウェル内に関しては、線量評価が実際の値を過大評価していることを示している。参考文献^[3, 3-4]によると、SA コード解析では線量評価計算のために、格納容器壁面の Cs 付着量を初期値として与えられている。したがって、SA 解析結果に不確かさがあると仮定すれば、その原因は Cs の RPV 炉内残留量の過小評価とコンクリート壁面の Cs 付着量・浸透を過小評価している可能性が挙げられる。RVP 炉内残留量に関しては、知見(2)-1. ②、⑤から、酸化ステンレスへの Cs 吸着や B 系エアロゾルに Cs トラップ効果といった SA コードでは考慮していない要素があり、この知見を SA コードに取り込むことができれば、この差異の不確かさを低減することが可能であると示唆される。また、コンクリート壁面への Cs 付着量・浸透に関しては、もし PCV ウェル上部壁が 300 °C 以上になる時間帯に Cs が移行することがあれば、現行の SA コードでは壁面への吸収は考慮されていないので、Cs 浸透量は無視できない。したがって、コンクリートへの Cs 浸透挙動を組み込むことによって、この差異の不確かさを低減することが可能であると示唆される。

次に、ペデスタル内部に関しては、燃料デブリまたは鋼材とともに Cs が移行している可能性を示唆している。知見(2)-1. ②～④を考慮すると、ステンレス鋼や金属デブリの酸化膜に浸透した Cs がペデスタルへ移行して来た可能性は排除できない。さらに、知見(2)-1. ⑤から Cs とコンクリートとが相互反応をする場合、高温でも安定な Cs 化合物を生成する可能性があり、これら知見を組み込むことによって、この差異の不確かさを低減することが可能であると示唆される。

(2)-2. 金属デブリの酸化変質評価

本研究で実施した試験によって、RPV 破損前後における金属含有デブリが有すると考えられる性質に関して、以下に示す知見を得た。

- ① Fe-Zr 系金属デブリ模擬物質における水蒸気酸化挙動（700 °C～1400 °C）は、主に Zr 酸化挙動によって支配され、その酸化速度については Zr 酸化の知見をほぼ活用できることが分かった。ただし、1100 °C 近傍では Fe_3O_4 の形成が優位になったという例外があり、当該温度では Fe イオンの拡散による Fe_3O_4 反応相の形成が 0 拡散による ZrO_2 形成を上回った結果と考えられる。この現象は材料組成にも依存するが、Fe 高濃度層が表面近傍に存在するようなデブリ構造であった場合は、外部酸化による Fe_3O_4 成長によって内側の Zr 酸化が抑制される、という副次的な作用を検討することは金属デブリ形成挙動を考察する上で重要な点であると思われる。
- ② Fe-B 系金属デブリ模擬物質の水蒸気酸化挙動（800 °C～1150 °C）は、B の水蒸気酸化もあるが、主に Fe 酸化挙動によって支配され、模擬物質の融点未満（1000 °C 以下）では酸化速度について Fe 酸化の知見を活用できることが分かった。
- ③ 溶融合金 Fe-Zr は、1600 °C において Ni を添加することによって、Zr の熱力学的安定性が増すことが分かった。測定された Zr 活量係数の Ni 濃度依存性から活量勾配駆動による拡散係数解析を行ったところ、Ni 添加によって合金液相中金属原子の化学的拡散係数が、最大で 3 倍程度まで増加する結果が得られた。
- ④ 1500 °C のステンレス鋼融体に ZrO_2 固相を分散させた固液混合物では、固相率の上昇に伴って粘度が増加した（30 vol% 程度で数百 mPa・s、50 vol% では 10^3 mPa・s を超える）。同じ固相率であっても、ずり速度が大きいほど粘度が低下することが分かった。

これは、固相が多く存在すると粒子が凝集してクラスター状となって、流動領域と摩擦を起こす“みかけの表面積”が増加することによって、粘度が増加して流動性を低下させる原因となるものの、流体そのものの速度が高い場合にはクラスター形成単位が小さくなって粘度が若干低下する、という現象が起こることを示唆している。

次に、PCV 内部調査によって報告された炉内デブリの画像^{[3.3-5][3.3-6]}から、グレーチングに広がっている燃料デブリと思われる堆積物は、スレート状（スレートとは、粘板岩または粘板岩の薄い板を言う。建築材でスレートと言う時、波打つ形状で一定間隔の溝が繰り返されている外壁材を示す。本報告書では、堆積物の表面が波打っている形状に見える様子を“スレート状”と表現する。）の物質であると考えられる。RPV から流れ出た燃料デブリは完全な液相というよりも、内部に固相を含む固液混合状態であった可能性が高い。本節では、本研究で得られた知見から燃料デブリがスレート状となるための条件や機構を考察する。

知見(2)-2.④から、固相率が同じであっても、ずり速度が大きければ粘度が低下するので、燃料デブリ溶融物内部のせん断応力分布と固相率によって、粘度が局所的に大きくなったり小さくなったりする。今、量が十分に多い燃料デブリ溶融物が、ステンレス鋼融点程度の温度を持って流れ出て来る状況を考える（図 3.3-9）。雰囲気による酸化または RPV 内外の温度差に起因する過冷却によって、表面近傍に Zr 酸化物が形成されることが考えられる。固相率は酸化割合に比例すると考えて良く、これは酸素拡散によって定まるので、溶融物内部から表面にかけての固相率分布は、概ね図 3.3-9(a)のように表せる。流体内部のせん断応力は、流体の比表面積や流路の形状に大きく影響を受けるため一般化は非常に難しいが、図 3.3-9 のような状況では、溶融物内部から表面にかけて増加すると考えられる。表面酸化膜の状態（厚さや強度）は、せん断応力分布に影響を与えるであろうが、傾向としては図 3.3-9(b)のようになると思われる。この時、固相率がほとんど同じであるが、せん断応力の差によって、粘度に分布が生じる（図 3.3-9(c)）という状況が生じる。つまり、溶融物表面の流動性は維持されるが、表面より少し内部に入った領域の流動性が著しく低下するために、一様に流れず層状構造が形成される原因となりうる。また、知見(2)-2.③から、このような流動性の不均一性は組成変化によっても促進される可能性が示唆される。1F 2、3 号機の RPV 下部の構造物には Ni 合金が含まれているため、溶融物は Ni と Zr を含んだ Fe 高濃度溶融物である可能性が高い。Zr は酸化によって表面近傍で消費されるとすれば、Zr は表面に向かって移動して来ることになる（図 3.3-10）。Zr 活量係数変化の Ni 濃度依存性は、Fe 濃度が低いほど顕著に現れたことを考慮すると、表面近傍では化学的拡散係数が内側よりも大きくなることが示唆される。先に述べた粘度の観点と合わせると、表面・表面近傍・内部において流動性に差が生じやすく、スレート状構造を作りやすいと言える。

したがって、PCV 内部調査に見られるスレート状構造が金属デブリ溶融物から形成される条件として、溶融物の表面と内部において流動性に著しく差が生じること、より具体的には、粘度が極大値を持つような流体特性がありえたかが挙げられる。

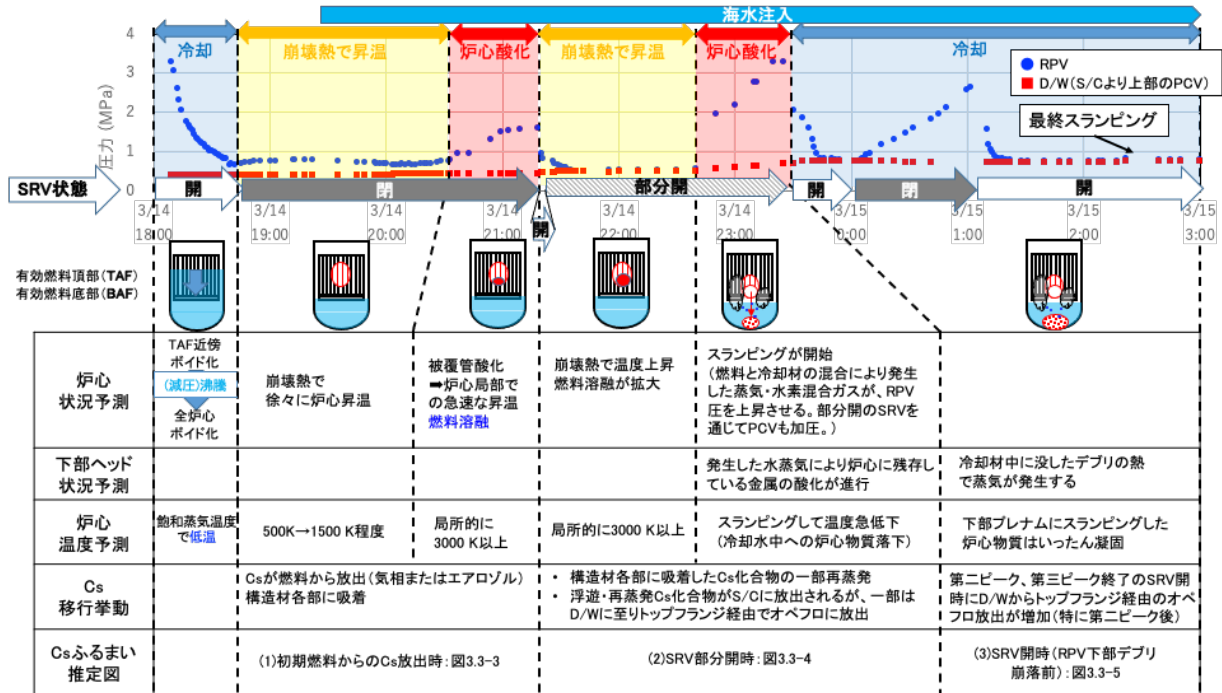


図 3.3-1 現状の事故シナリオに対応した炉心状況・RPV 下部状況の推察 (2 号機) -図(1)

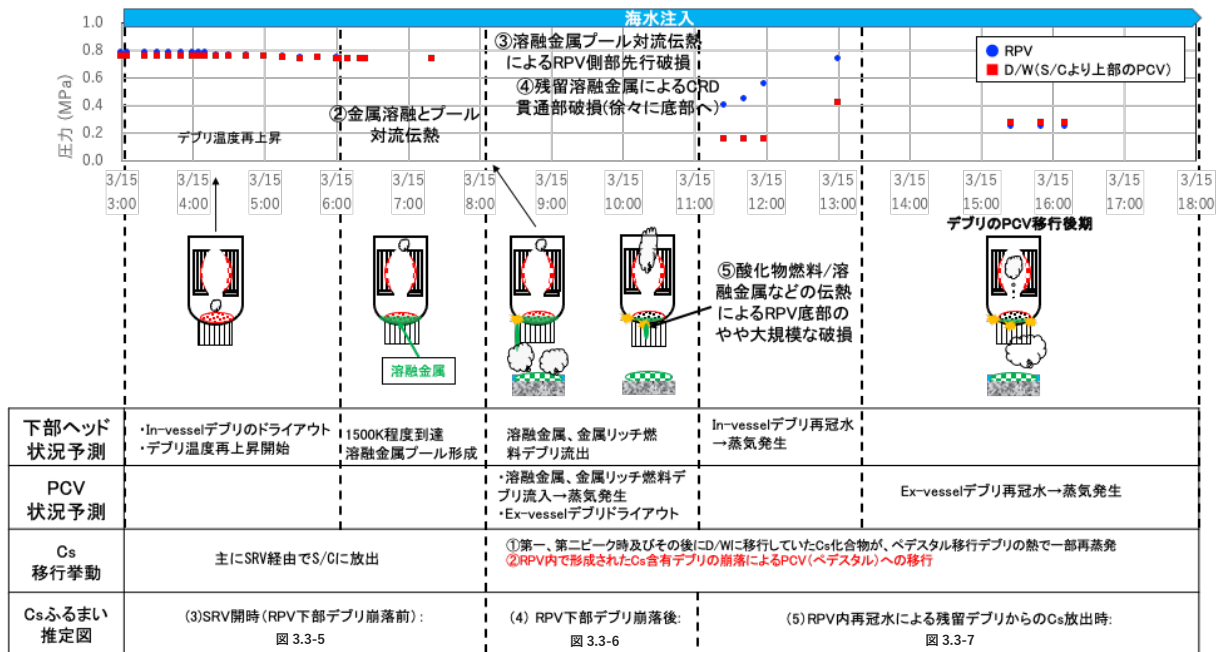


図 3.3-2 現状の事故シナリオに対応した炉心状況・RPV 下部状況の推察 (2 号機) -図(2)

(1)初期燃料からのCs放出時 (RPV下部デブリ崩落前)

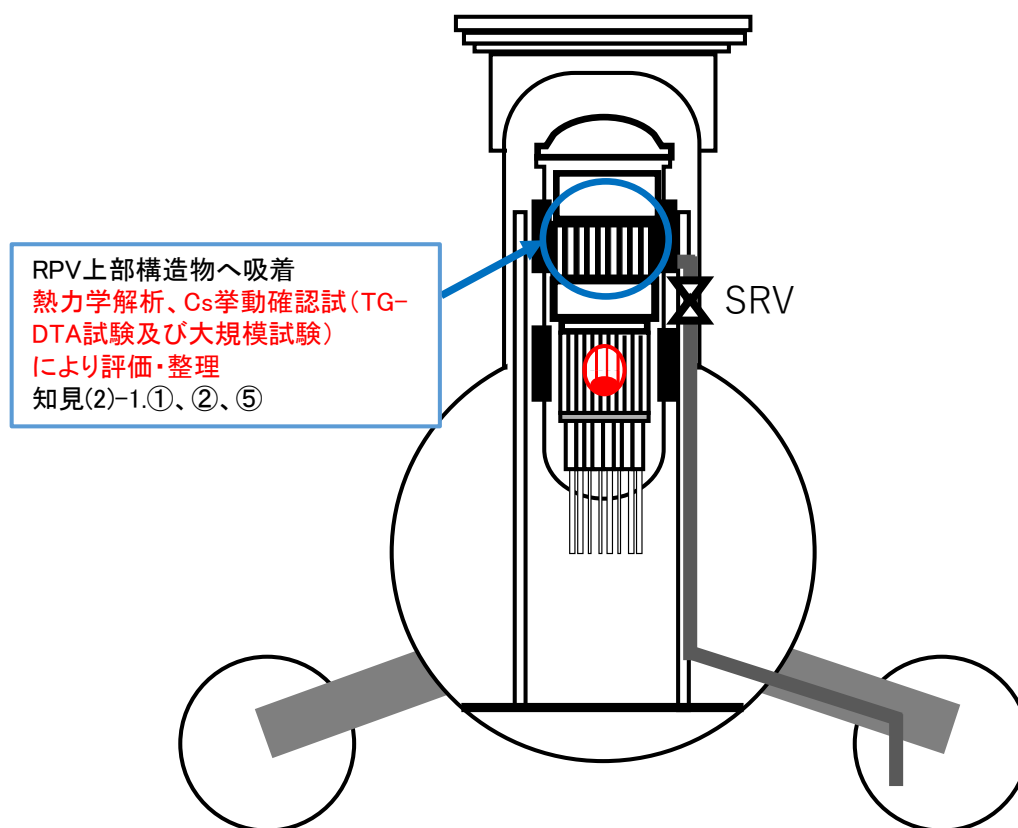


図 3.3-3 初期燃料からのCs放出時に関するシールドプラグ移行ルート候補とその際のCs相互(吸着)反応に関するCsふるまい推定図

(2)SRV部分開時
(RPV下部デブリ崩落前)

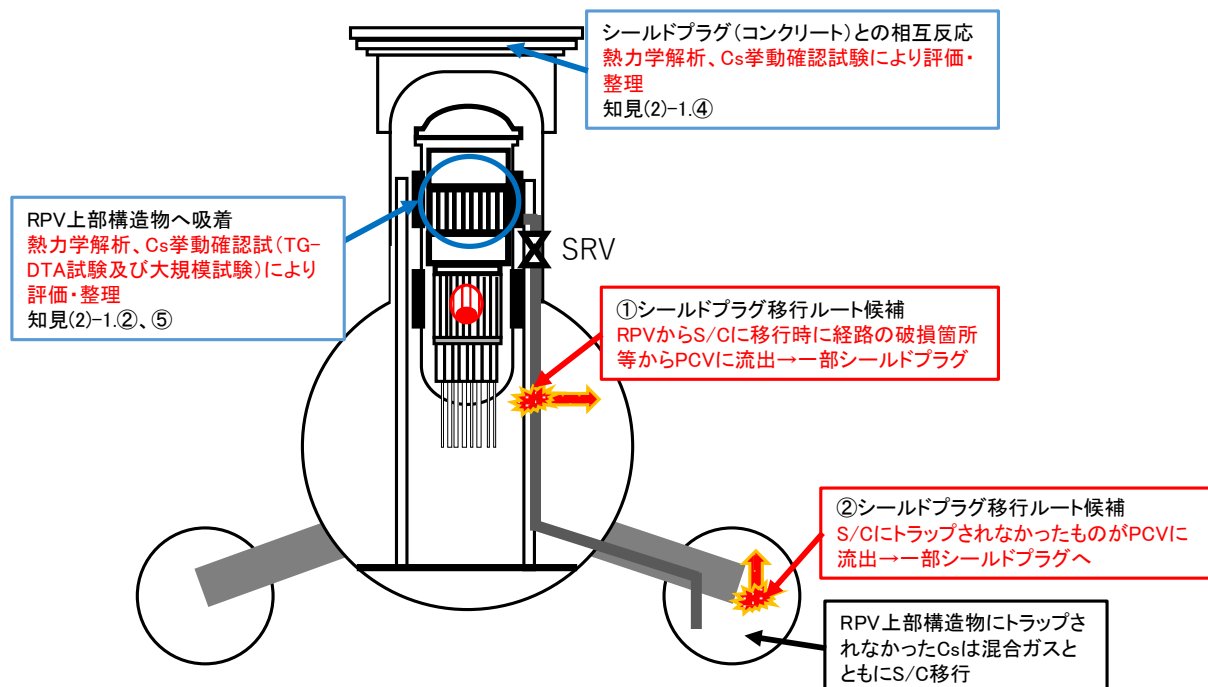


図 3. 3-4 SRV 部分開時 (RPV 下部デブリ崩落前) に関するシールドプラグ移行ルート候補とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関する Cs ふるまい推定図

(3)SRV開時 (RPV下部デブリ崩落前)

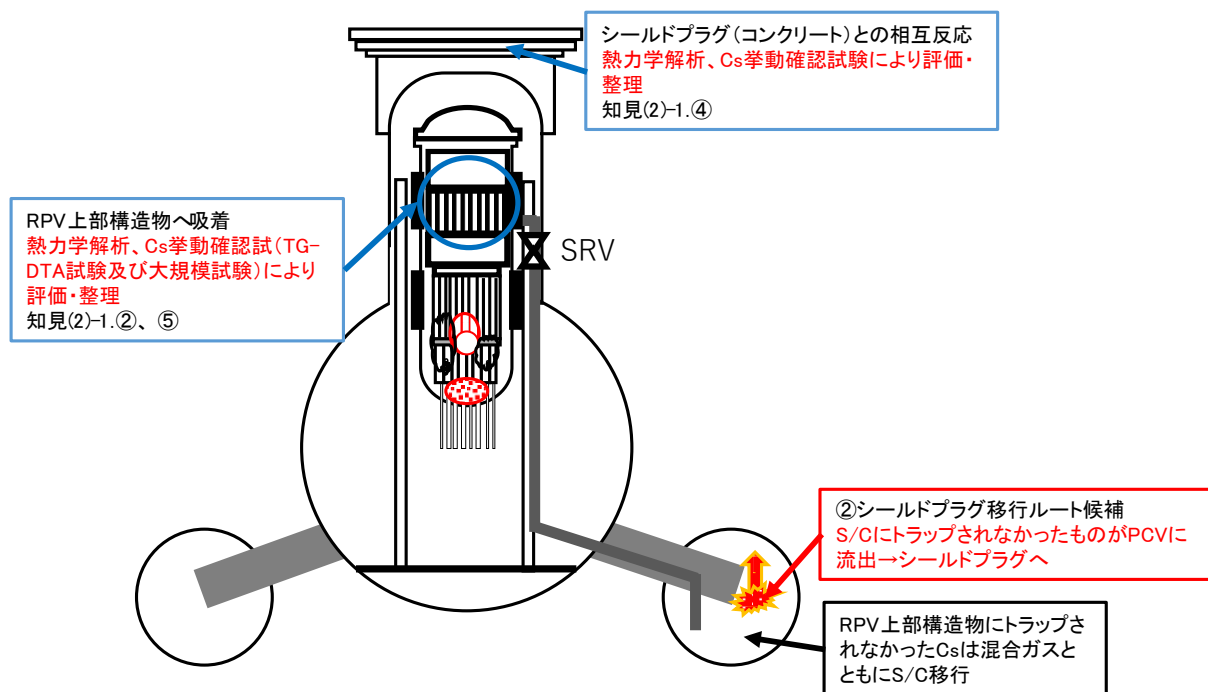


図 3.3-5 SRV 開時 (RPV 下部デブリ崩落前) に関するシールドプラグ移行ルート候補とその際の Cs 相互 (吸着) 反応に関する Cs ふるまい推定図

(4) RPV下部デブリ崩落後

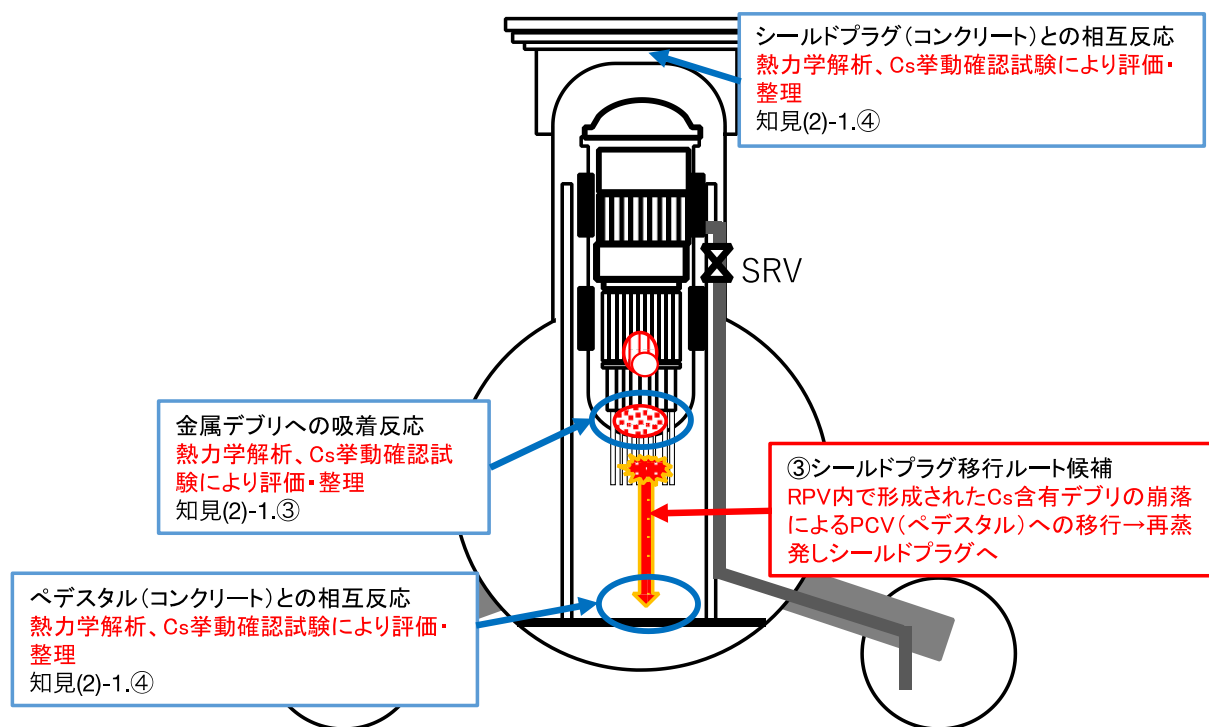


図 3.3-6 RPV 下部デブリ崩落後に関するシールドプラグ移行ルート候補とその際の Cs 相互（吸着）反応に関する Cs ふるまい推定図

(5) RPV内再冠水による残留デブリからのCs放出時

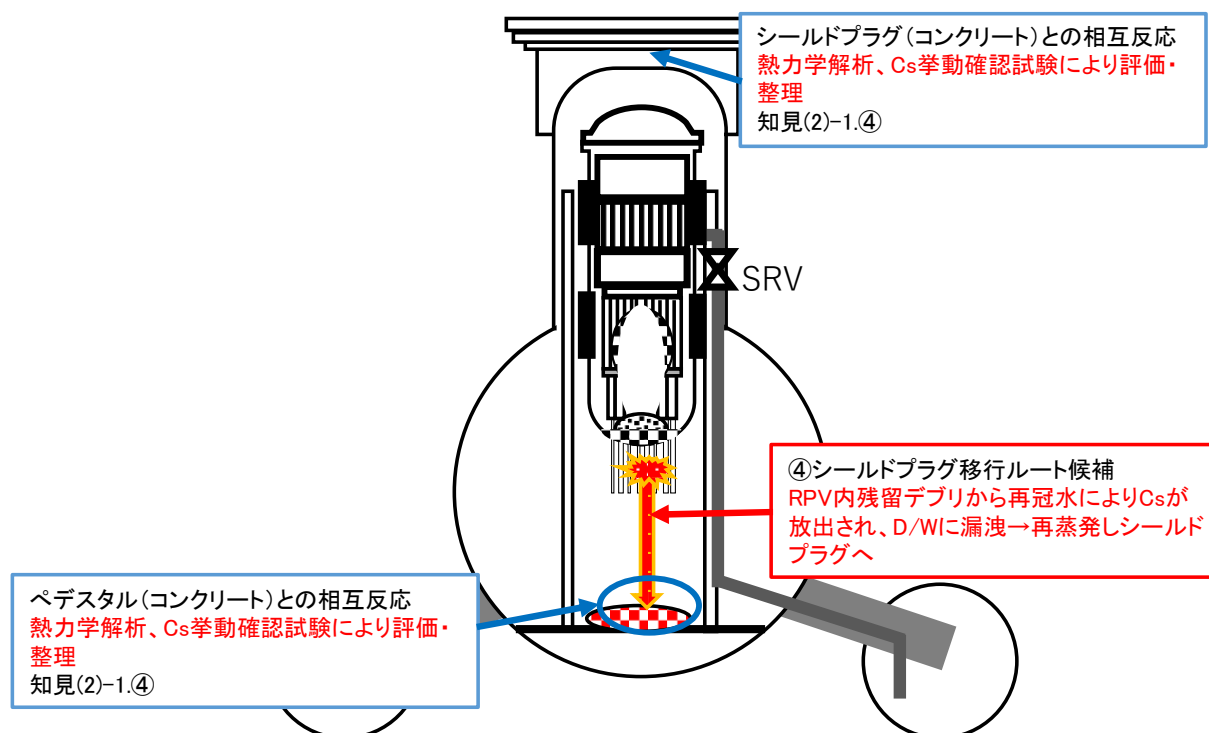


図 3.3-7 RPV 内再冠水による残留デブリからの Cs 放出時に関するシールドプラグ移行ルート候補とその際の Cs 相互（吸着）反応に関する Cs ふるまい推定図

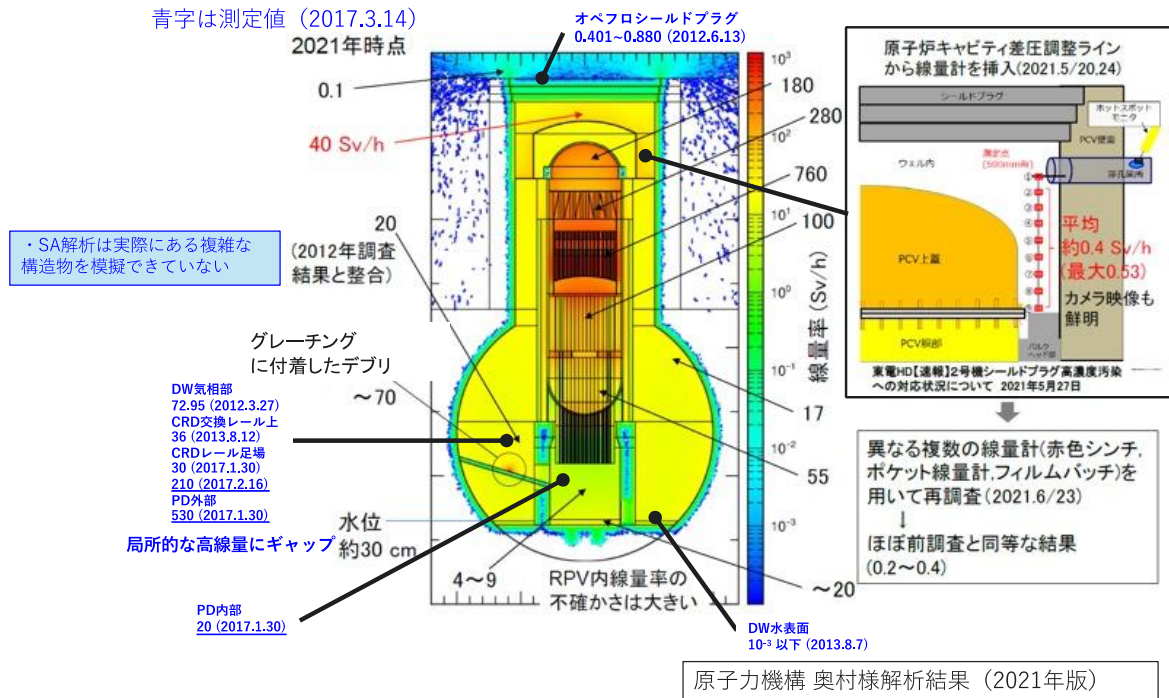


図 3.3-8 1F 2号機の炉内線量測定結果と解析結果の差異

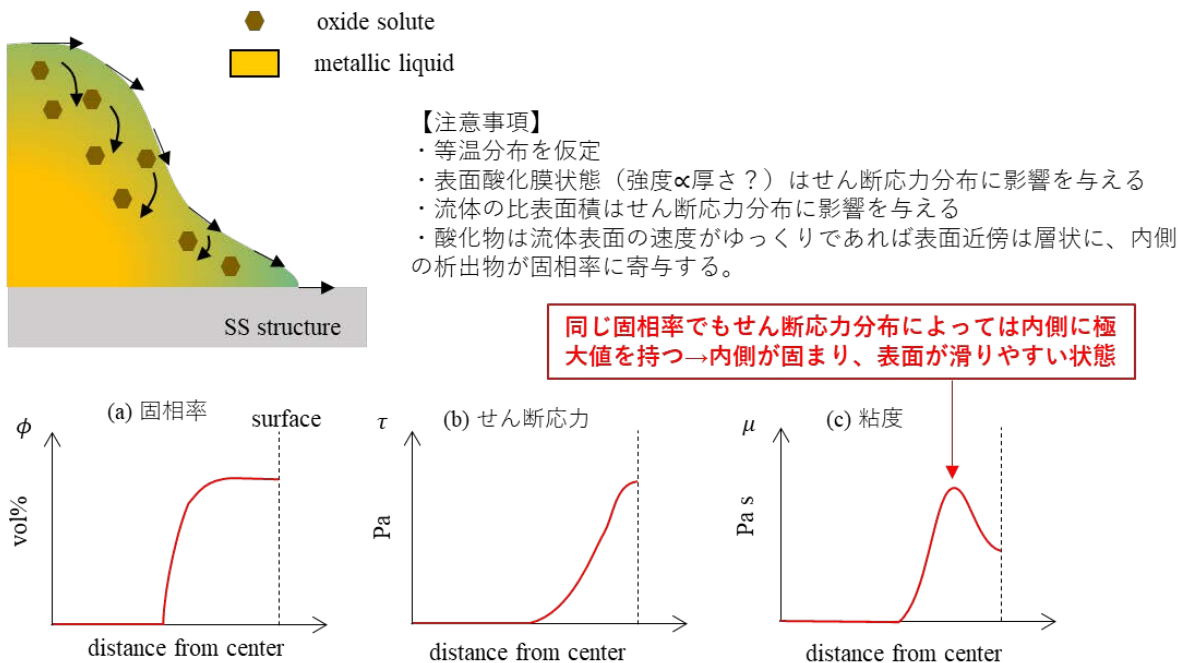


図 3.3-9 スレート状物質を形成する例

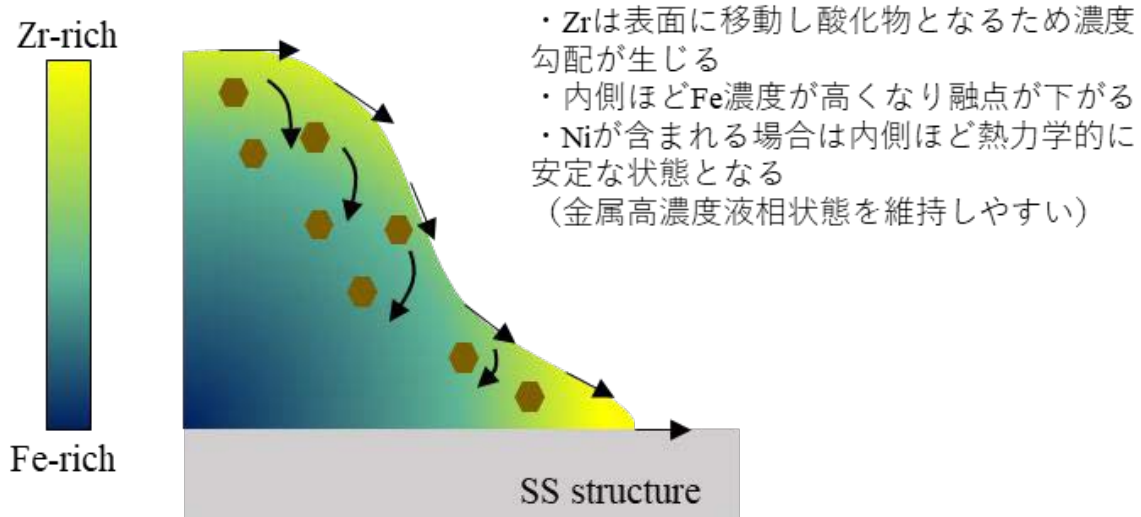


図 3.3-10 合金組成の影響

参考文献

- [3.3-1] N. Birks, G.H. Meier, and F.S. Pettit, Introduction to the high temperature oxidation of metals, Cambridge university press, 2006.
- [3.3-2] debrisWiki, <https://fdada-plus.info> (accessed 2024-01-05) .
- [3.3-3] K. Okumura, et al., A method for the prediction of the dose rate distribution in a primary containment vessel of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Progress in Nuclear Science and Technology, vol.6, 2019, pp.108-112.
- [3.3-4] 奥村 啓介, 「1F 廃炉に係る FP 挙動」研究専門委員会活動報告 (2) PCV 内線量率分布推定と今後の課題, 日本原子力学会 2022 年春の年会企画セッション 総合講演・報告 (2H_PL02), 2022 Mar, pp.16-18, オンライン開催.
- [3.3-5] 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決問題に関する検討「第 6 回進捗報告」, https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/pdf/2_21110j0103.pdf (accessed 2024-01-06) .
- [3.3-6] 東京電力ホールディングス, 動画・写真ライブラリー, 福島第一原子力発電所 2 号機原子炉格納容器内部調査結果, <https://photo.tepco.co.jp/date/2018/201804-j/180426-01j.html> (accessed 2024-03-11) .

3.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打ち合わせや会議などを開催した。研究推進委員会を令和 5 年 9 月 11 日、令和 6 年 1 月 22 日、令和 6 年 3 月 25 日の 3 回にわたって実施し、本研究の試験結果について議論した。

【研究推進委員会】

- ① ・開催日：令和 5 年 9 月 11 日（月）13:00～15:30
 - ・実施場所：リモートミーティング
 - ・参加者：小林能直（東京工業大学）、伊藤あゆみ（東京工業大学）、
齊藤敬高（九州大学）、中西賢斗（九州大学）、
プシェニチニコフ アントン（原子力機構）、ズベヒーナ ベラ（原子力機構）、
多木寛（原子力機構）、永江勇二（原子力機構）、倉田正輝（原子力損害賠償・
廃炉等支援機構：NDF）
 - ・主な議題：研究進捗報告と課題取りまとめへ向けての策定
- ② ・開催日：令和 6 年 1 月 22 日（月）10:00～12:00
 - ・実施場所：東京工業大学・大岡山キャンパス・北 2 号館 5 階 523 会議室
（ハイブリッド開催）
 - ・参加者：小林能直（東京工業大学）、齊藤敬高（九州大学）、中西賢斗（九州大学）、
多木寛（原子力機構）プシェニチニコフ アントン（原子力機構）、
ズベヒーナ ベラ（原子力機構）、平井睦（東電）、溝上暢人（東電）、
宇埜正美（福井大学）、大石佑治（大阪大学）
 - ・主な議題：各要素課題への有識者からの助言及び研究結果の事故事象シナリオへの
反映
- ③ ・開催日：令和 6 年 3 月 25 日（月）
 - ・実施場所：リモートミーティング
 - ・参加者：小林能直（東京工業大学）、齊藤敬高（九州大学）、中西賢斗（九州大学）、
多木寛（原子力機構）、プシェニチニコフ アントン（原子力機構）、
ズベヒーナ ベラ（原子力機構）、倉田正輝（NDF）
 - ・主な議題：各要素課題からの最終報告と福島第一発電所 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
把握に資する知見の取りまとめ

4. 結言

4.1 Cs 分布評価の不確かさの低減

4.1.1 2、3号機最確シナリオに基づいた RPV 内部の Cs 化学形熱力学評価

(連携先：原子力機構)

Cs 化合物の気相を介した、対象物への吸着反応に関する反応に関与する成分比の影響 (Cs リッチ及び対象物リッチ条件) について、各酸化物 (Fe_3O_4 、 Cr_2O_3 、 MoO_3 、 ZrO_2) ごとに詳しく熱力学解析評価を実施した。解析結果から、関与する成分比により Cs 化合物の種類や生成メカニズムが異なる傾向があることが推測された。また、Cs 化合物の安定性は対象物内の成分割合が大きく影響することが確認された。すなわち、TG-DTA による CsOH と酸化ステンレス鋼との相互反応を考えた場合、Cs と Cr_2O_3 、 MoO_3 は Cs リッチの条件で相互反応し、Cs と Fe_3O_4 は Fe リッチの条件で相互反応していた可能性が熱力学評価により推測された。以上のことから、RPV 内の Cs 分布状態を考える場合、各鋼材に含まれる成分ごとの酸化状態が Cs 吸着状態を評価する上で必要になってくる可能性が示唆される。

4.1.2 2、3号機最確シナリオに基づいた PCV 内部の Cs 化学形熱力学評価 (連携先：原子力機構)

PCV 内で生じる可能性のある CsOH とコンクリート (玄武岩系コンクリート及び酸化鉄を含むコンクリート) との相互反応による安定化合物の特徴について、最新のデータベースを用いた熱力学解析を実施した。CsOH の玄武岩系コンクリートへの吸着を想定した場合、熱力学計算では、固相としては Cs-Si-O 系化合物が安定して存在する結果を示した。しかしながら、Cs 挙動確認試験 (TG-DTA) の結果では、Cs-Si-Al-O 系化合物が生成し、かつ 1000 °C の場合もその化合物が存在することから、現状のデータベースでは、Cs-Si-Al-O 系データが不十分であり、1F 事象を推定する場合は、このデータが必要になると考えられる。次に、コンクリート中に Fe が存在する場合、約 1150 °C 付近まで Cs は、Cs-Fe-O 化合物として安定に存在する結果を示した。温度上昇に伴い、Cs は液相として安定に存在し、高温になっても Cs は液相として安定に存在する結果を示した。このことから、玄武岩コンクリートには、Fe 酸化物が関与すると高温まで Cs が再蒸発することなく、その場に留まる 1 つのメカニズムがある可能性が示唆される。

したがって、Cs が玄武岩系コンクリートと反応する場合、Cs の大部分は長石相 ($\text{Cs}(\text{AlSiO}_4)$) やポルサイト相 ($\text{Cs}(\text{AlSi}_2\text{O}_6)$) として、安定な相を形成して高温でもその場に留まる可能性があり、さらに、酸化鉄が関与する条件下の場合、より高温でもその場に留まる可能性がある。以上のことから、PCV 内のコンクリートには多くの Cs が滞留している可能性があり、1F 建屋の除染にとってこの点を考慮して対応していく必要があることが示唆される。

これらの試算により、PCV 内では Cs-Fe-O の安定性を示す熱力学的予測に加えて、模擬実験により Cs-Si-Al-O 系の安定性が示され、大きく知見が拡充された。また、RPV 内では酸性酸化物、塩基性酸化物間の親和力が明確になる複合酸化物の安定度に関する知見が拡充され、模擬実験によりその安定性が実証された。

4.1.3 Cs 混入酸化物の高温物性評価 (再委託先：九州大学)

ルツボ回転法粘度測定装置 (現有設備) を用いて SiO_2 - Cs_2O - Fe_2O_3 系高温融体の粘度測定を試みた。測定の結果、1873 K において 0.45~2.40 Pa・s の粘度を有しており、 $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Cs}_2\text{O}$ 比に対して粘度が極値を示す傾向が見られた。これらの粘度値は、これまでに測定例が全くなかったが、流動性が高い Cs_2O -FeO 系融体からはエアロゾルが発生しやすく、 SiO_2 含有状態になると発生しにくいことが予見されるなど、融体からのエアロゾル形成プロセスの理解に資する流動物性に関する知見を拡充できた。

4.1.4 Cs 挙動確認試験（連携先：原子力機構）

本研究の結果から、Cs 移行の複雑な問題についての重要な理解が得られた。Cs 相互作用の可能性、その相互作用の可能な温度及びその他条件について概説した。現時点では、次のステップのためには、1F からの実際の Cs に汚染されたサンプルによる研究が必要である。研究はモデル材料やシミュレーション条件に限定されており、たとえ大規模な LEISAN 装置を使用してもプロセスの全体像を作り出すことができないことが明らかになりつつある。実際のサンプルとその相組成から得られる情報は、必然的に事故の理解を新たなレベルに高め、現在存在する多くの疑問や不確かな事故シナリオの答えを導き出し、損傷した 1F の各号機で何が起こったのかを明確にできると考えられる。本大規模試験により、1F 事故条件下での Cs の挙動の理解が大きく前進した。大規模なスケールでは、Cs の挙動の多くは、同時に存在するエアロゾルと Cs 化合物と別のエアロゾルの相互の全体濃度に依存することが判明した。表面に吸着された場合、付着後の Cs 化合物の形態は、エアロゾル相におけるそれらの相互作用の前史及び堆積された Cs 化合物の濃度に強く依存することが分かった。吸着状態での反応は、主に Cs 化合物の形態とその利用可能性に依存する。TG-DTA の小規模試験では、初期状態の CsOH により局所的に Cs_2CrO_4 と Cs_2MoO_4 の形成が確認されたが、大規模試験の場合、CsOH は Cs_2O に分解されるため CsOH は検出されなかった。一方で、少量の CsI は確認された。Cs の最終形態は、 B_2O_3 ガラスに溶解した Cs 酸化物であり、これは以前の研究や熱力学計算と完全に一致している。B 系エアロゾル相、炭素鋼及びステンレス鋼クーボンの表面での観察からは、Cs 化合物生成のような内部への顕著な浸透は確認されなかった。この原因の 1 つは、本試験の条件下では鋼表面の酸化層が厚く成長することができなかったこと、また、もう 1 つは対象反応物に対する Cs 濃度が低かったと考えられる。付着部分の Cs 濃度が高い場合には、各対象反応物との小規模試験（Cs 挙動確認試験）の結果を大規模試験に適用することが可能である。したがって、LEISAN 装置での大規模な CLADS-MADE テストと小規模な TG-DTA テストを組み合わせることにより、構造部材表面に形成される Cs 系化合物の組成、生成厚さから事故進展時の雰囲気について推測を行うことができる知見を得ることができた。

4.2 金属デブリの酸化変質評価

4.2.1 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化による変質評価（連携先：原子力機構）

ステンレス鋼 (SUS316L) と過去に原子力機構で実施した大規模試験で得られた模擬金属デブリから採取した Fe-B 金属デブリ及び Fe-Zr 金属デブリを用いて、水蒸気雰囲気中での熱分析試験を実施し、酸化反応速度論の評価を行った。SUS316L の場合、 Cr_2O_3 の剥離効果による複雑な質量増加挙動により、酸化反応速度論を構築することが困難であることが確認された。しかしながら、SUS316L は酸化試験後の質量増加傾向の観点から、ステンレス鋼と模擬金属デブリを比較すると、デブリに比べて優れた耐酸化性を備えていることが確認された。Fe-B 金属デブリは拡散依存性の酸化挙動を示し、アレニウス型の反応速度式で示すことができた。低温では質量増加が SUS316L よりも大きかったが、約 1200 °C 以上では SUS316L と Fe-B 金属デブリはほぼ同じ挙動を示した。Fe-Zr 金属デブリは、温度に応じて Fe_3O_4 または ZrO_2 が支配的になり、Zr の酸化が選択的に起こる傾向が確認された。1300 °C を超える温度では、Fe-Zr 金属デブリが最も安定し、評価した他の材料よりも酸化が遅かった。このような知見から、例えば Cr_2O_3 と ZrO_2 には保護膜効果があることが分かり、予測より酸化進展が遅く、デブリの金属性状維持に寄与したことが考えられ、特に 2 号機の事故進展シナリオの中での酸化を免れて落ちて来た構造物についての推測を支持している。

4.2.2 2、3号機最確シナリオに基づいた変質酸化物と金属融体の熱力学的安定性評価（東京工業大学）

炉心溶融物中で、酸化物溶融物と金属溶融物が共存して移行する挙動を評価するために、Fe-Ni-Zr 三元基本系における Zr の活量測定を、溶融銀をリファレンスメタルとした化学平衡法にて行い、Zr の活量係数を評価した。Ni 濃度の増加に伴い、活量係数は極大値を取った後、単調減少し、Ni と Zr の親和性が示唆された。これは、Inconel718 材でも同様であった。一方、SUS304 では活量係数が大変大きくなり、相対的に Cr と Zr の親和性の小ささが示唆された。混合エンタルピー変化を評価したところ、負に大きな値となり発熱反応により事故進展が加速されることが推測された。また、炉内雰囲気中で融体中 Zr から ZrO_2 が生成する水素・水蒸気比を見積もり、 $10^4 \sim 10^5$ という大きな値を得た。すなわち、炉内金属溶融デブリから必ず ZrO_2 が生成し、固液共存流体になるため、その流下挙動に大きく影響を及ぼす粘性が物性値として支配因子となることが示唆された。また、必ず酸化反応が生じるという熱力学的予測は、Steam Starvation 雰囲気であった 3 号機シナリオにあっても、金属状デブリの表面は金属光沢を維持することなく酸化されていることを支持している。

4.2.3 2、3号機最確シナリオに基づいた酸化物析出成分を含む金属デブリの粘度測定（再委託先：九州大学）

令和 4 年度までにセットアップ及び検定を完了した低粘性領域においても、精度良く粘度測定が可能と考えられるトルクセンサー（現有設備）と雰囲気調整可能な電気炉（導入設備）による粘度測定装置を用いて、溶融 SUS316L 合金の粘度に及ぼす固体 ZrO_2 の影響を系統的に評価した。その結果、これより ZrO_2 が分散した溶融 SUS316L 合金の粘度は含有する ZrO_2 の体積割合が大きいほど増加することが分かった。これは、分散した固相粒子間の相互作用により、流体に発生するずり応力が大きくなったことに起因する。また、60 vol% 程度の高固相率の ZrO_2 を含有することによって、 ZrO_2 が分散した溶融 SUS316L 合金の粘度

は、おおよそ 10^3 倍の大きい値を示すことが明らかとなった。加えて、5 vol%程度の少量の ZrO_2 によっても溶融 SUS316L 合金の粘度はおおよそ 4 倍になることが分かった。すなわち、本来粘性の小さい溶融金属が波打つような形状で凝固しているという 2、3 号機の事故進展シナリオにおいて、固体酸化物の混入により粘性が大きい状態になっていたことが強く推測される。

4.3 総合評価（東京工業大学、連携先：原子力機構）

これまでに整理した最確シナリオと熱力学解析や模擬試験の結果に基づき、1F 現場情報（観測結果または PCV 内部調査で得られた画像情報など）と炉内状況推定（解析コードなどに基づく評価）との差異を低減するための知見整理を実施した。今回、現場情報と炉内推定の双方について、比較に十分なデータを入手できた 2 号機に関して総合評価を行った。

“Cs 分布評価の不確かさの低減”により、鋼材または燃料デブリとの反応においては CsOH 及び CsI が特に重要であり、水蒸気雰囲気下における CsOH と酸化ステンレス鋼との相互作用において、Cs 化合物 (Cs_2CrO_4 、 CsMoO_4) の形成が確認され、CsI と酸化ステンレス鋼の場合、Cs 化合物 (Cs_2CrO_4) の形成が確認されている。酸化ステンレス鋼への Cs の浸透に関しては、酸化膜中を拡散して浸透することが確認され、ステンレス鋼の高温酸化理論によって酸化膜の定量評価を行うことができれば、潜在的な Cs 移行量を評価することが可能である。金属デブリについては、CsOH と Fe-B 系金属デブリにて酸化ステンレス鋼と同様、Cs 化合物の形成を確認、Fe-Zr 系金属デブリにて Cs_2CrO_4 の生成を確認しており、RPV 内で形成された Cs 含有金属デブリの崩落による Cs が PCV へ移行する可能性があると考えられる。Cs 化合物とコンクリートとの相互作用に関しては、長石相 (CsAlSiO_4) 及びボルサイト相 ($\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$) といった、高温でも安定に存在する化合物が確認された。このことから、PCV のコンクリート壁が 500 °C 程度まで温度が上昇したところに CsOH-CsI が移行すれば、コンクリート内部への浸透や表面に Cs-Si-Al-O 化合物を生成する可能性がある。また、熱力学解析結果から、Cs-コンクリート相互反応に酸化鉄が関与する条件の場合、より高温でもコンクリート層中に留まる可能性がある。大規模試験の結果から、燃料集合体から放出された B 系エアロゾルは、スチームセパレーターやスチームドライヤーといった障害物に凝集し、その凝集物が高温水蒸気雰囲気下で脱水され、 B_2O_3 からなる液相を形成する。その液相は Cs_2O をトラップし、Cs がその場に留まる可能性がある。以上の知見から、2 号機に関する現状の事故シナリオに基づき、PCV 上部ウェル内：解析値 (数十 Sv/h) が測定値 (1 Sv/h 以下) より一桁大きい、ペDESTAL内部：解析値 (4~9 Sv/h) が測定値 (数十 Sv/h) より一桁小さい、という“現場と推定のギャップ”について検討を行った。PCV 上部ウェル内に関しては、線量評価が実際の値を過大評価していると考えられる。この不確かさの原因として、Cs の RPV 炉内残留量の過小評価とコンクリート壁面の Cs 付着量・浸透を過小評価している可能性が挙げられる。RVP 炉内残留量に関しては、酸化ステンレスへの Cs 吸着や B 系エアロゾルへの Cs トラップ効果が SA コードでは考慮されておらず、この知見の SA コードへの取り込みが、この差異の不確かさの低減に繋がると考えられる。コンクリート壁面への Cs 付着量・浸透に関しては、もし PCV ウェル上部壁が 300 °C 以上になる時間帯に Cs が移行することがあれば、現行の SA コードでは壁面への吸収は考慮されていないので、Cs 浸透量は無視できない。したがって、コンクリートへの Cs 浸透挙動を組み込むことによって、この差異の不確かさを低減することが可能であることが示唆された。ペDESTAL内部に関しては、燃料デブリまたは鋼材とともに Cs が移行している可能性が示唆されており、また、ステンレス鋼や金属デブリの酸化膜に浸透した Cs がペDESTALへ移行して来た可能性は排除できない。さらに、3.3 節の知見 (2)-1. ⑤から、Cs とコンクリートとが相互反応をする場合、高温でも安定な Cs 化合物を生成する可能性があり、これら知見を組み込むことによってこの差異の不確かさを低減することが可能であると示唆される。

“金属デブリの酸化変質評価”では、Fe-Zr 系金属デブリ模擬物質における水蒸気酸化挙動は主に Zr 酸化挙動によって支配されること、1100 °C 近傍では Fe_3O_4 の形成が優位になり、Fe イオンの拡散による Fe_3O_4 反応相の形成が支配的であることが分かった。Fe-B 系金属デブリ模擬物質では、主に Fe 酸化挙動によって支配され、模擬物質の融点未満では酸化速度について

Fe 酸化の知見を活用できることが分かった。熱力学実験により、溶融合金 Fe-Zr は 1600 °C において、Ni を添加することによって Zr の熱力学的安定性が増すことが分かった。測定された Zr 活量係数の Ni 濃度依存性から活量勾配駆動による拡散係数解析を行ったところ、Ni 添加によって合金液相中金属原子の化学的拡散係数が最大で 3 倍程度まで増加する結果が得られた。生成した ZrO_2 固相をステンレス鋼融体に分散させた固液混合物では、固相率の上昇に伴って粘度が増加し、また、ずり速度が大きいほど粘度が低下することが分かった。これは、固相が多く存在すると粒子が凝集してクラスター状となって流動領域と摩擦を起こす“みかけの表面積”が増加することによると考えられる。次に、グレーチングに広がる燃料デブリ堆積物のスレート形状について、固液混合状態に起因することを考察し、ずり速度分布、Zr 酸化物生成による固相率分布から溶融物表面の流動性は維持されるが、表面より少し内部に入った領域の流動性が著しく低下することが予測され、表面・表面近傍・内部において流動性に差が生じやすくスレート状構造を作りやすいことを考察した。

以上のように、総合評価では各個別課題で特徴的に得られた知見から、炉内の事故進展に伴う物理化学現象、特に Cs のふるまいと金属デブリの流動挙動の観点から、事故炉の内部観測結果を合理的に説明できる化学反応メカニズムを提案することができた。

